(19)日本国特許庁(JP)　(12)公開特許公報(A)　(11)特許出願公開番号
特開2017-145270
(P2017-145270A)
(43)公開日　平成29年8月24日(2017.8.24)

(51)Int.Cl.		F I			テーマコード（参考）
C08G 59/32	(2006.01)	C08G	59/32		4F072
C08G 59/40	(2006.01)	C08G	59/40		4F100
C08L 63/04	(2006.01)	C08L	63/04		4J002
C08K 13/02	(2006.01)	C08K	13/02		4J036
C08J 5/24	(2006.01)	C08J	5/24	CFC	

審査請求 未請求　請求項の数 9　ＯＬ　（全 18 頁）　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2016-25493(P2016-25493)
(22)出願日　平成28年2月15日(2016.2.15)

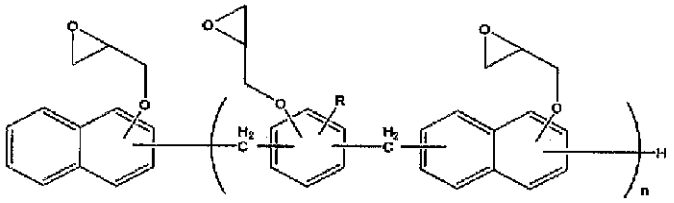
(71)出願人　000004466
三菱瓦斯化学株式会社
東京都千代田区丸の内２丁目５番２号
(72)発明者　高野　健太郎
東京都葛飾区新宿６丁目１番１号　三菱瓦斯化学株式会社東京テクノパーク内
(72)発明者　古賀　将太
東京都葛飾区新宿６丁目１番１号　三菱瓦斯化学株式会社東京テクノパーク内

Ｆターム(参考)　4F072 AA02 AA07 AB09 AB28 AD27 AE01 AE06 AF06 AF17 AF26 AF27 AG03 AG17 AG19 AH02 AH21 AJ04 AJ37 AK14 AL13

最終頁に続く

(54)【発明の名称】樹脂組成物、プリプレグ、金属箔張積層板、樹脂シート及びプリント配線板

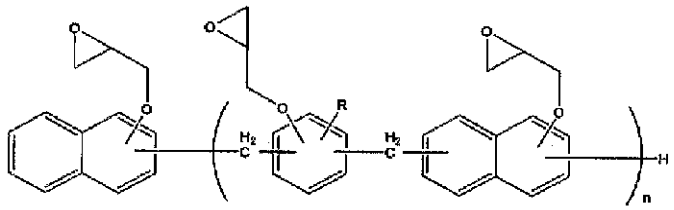
(57)【要約】　（修正有）
【課題】硬化した際の硬化物が、ガラス転移温度に優れるプリント配線板を実現し得る樹脂組成物の提供。
【解決手段】式（１）で表されるエポキシ樹脂（Ａ）及びシアン酸エステル化合物（Ｂ）を含有する樹脂組成物。



(1)

（ＲはＣ１～３のアルキル基；ｎは１～２０の整数；ｎが異なる混合物でも良い）前記エポキシ樹脂（Ａ）の含有量が樹脂固形分１００質量部に対し、１～９０質量である樹脂成物。充填材（Ｃ）を更に含有することが好ましく、その含有量は樹脂固分１００質量部に対し、５０～１６００質量部である樹脂組成物。
【選択図】なし

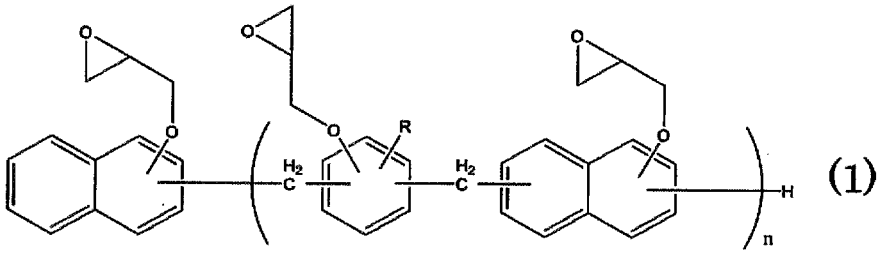
【特許請求の範囲】
【請求項１】
下記一般式（１）で表されるエポキシ樹脂（Ａ）及びシアン酸エステル化合物（Ｂ）を含有する樹脂組成物。
【化１】



(1)

（式中、Ｒは炭素数１～３のアルキル基を示す。ｎは１～２０の整数を示し、ｎが異なる混合物であっても良い。）
【請求項２】
前記エポキシ樹脂（Ａ）の樹脂組成物における含有量が、樹脂固形分１００質量部に対し、１～９０質量部である、請求項１に記載の樹脂組成物。
【請求項３】
さらに、充填材（Ｃ）を含有する、請求項１又は２に記載の樹脂組成物。
【請求項４】
さらに、一般式（１）で表されるエポキシ樹脂（Ａ）以外のエポキシ樹脂、マレイミド化合物、フェノール樹脂、オキセタン樹脂、ベンゾオキサジン化合物、重合可能な不飽和基を有する化合物から選択される群のうち、いずれか１種以上を含有する、請求項１～３のいずれか一項に記載の樹脂組成物。
【請求項５】
前記充填材（Ｃ）の樹脂組成物における含有量が、樹脂固形分１００質量部に対し、５０～１６００質量部である、請求項３又は４に記載の樹脂組成物。
【請求項６】
基材及び該基材に含浸又は塗布された、請求項１～５のいずれか一項に記載の樹脂組成物とを有するプリプレグ。
【請求項７】
少なくとも１枚以上積層された請求項６に記載のプリプレグ及び該プリプレグの片面又は両面に配された金属箔とを有する、金属箔張積層板。
【請求項８】
支持体及び該支持体の表面に配された、請求項１～５のいずれか一項に記載の樹脂組成物とを有する、樹脂シート。
【請求項９】
絶縁層と、該絶縁層の表面に形成された導体層とを有し、該絶縁層が、請求項１～５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。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、樹脂組成物、プリプレグ、該樹脂組成物、プリプレグを用いた金属箔張積層板及び樹脂シート並びにこれらを用いた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・微細化はますます加速している。これに伴い、プリント配線板に用いられる半導体パッケージ用積層板に求められる諸特性はますます厳しいものとなっている。求められる特性として、例えば、低吸水性、吸湿耐熱性、難燃性、低誘電率、低誘電正接、低熱膨張率、耐熱性、耐薬品性、高めっきピール強度等の特性が挙げられる。しかし、これま

でのところ、これらの要求特性は必ずしも満足されてきたわけではない。
【０００３】
従来から、耐熱性や電気特性に優れるプリント配線板用樹脂として、シアン酸エステル化合物が知られており、近年シアン酸エステル化合物にエポキシ樹脂、ビスマレイミド化合物などを併用した樹脂組成物が半導体プラスチックパッケージ用などの高機能のプリント配線板用材料などに幅広く使用されている。
また、多層プリント配線板の小型化、高密度化により、多層プリント配線板に用いられるビルドアップ層が複層化され、配線の微細化及び高密度化が求められている。それに伴い、このビルドアップ層に用いられる積層板を薄膜化する検討が盛んに行なわれている。
さらに、多層プリント配線板には反りの拡大という問題が生じるため、絶縁層の材料となる樹脂組成物には、高ガラス転移温度が求められている。
【先行技術文献】
【特許文献】
【０００４】
【特許文献１】国際公開第２０１３／０６５６９４号パンフレット
【特許文献２】国際公開第２０１４／２０３８６６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】
【０００５】
例えば特許文献１及び２においては、密着性、低吸水性、吸湿耐熱性、絶縁信頼性などの特性に優れるシアン酸エステル化合物とエポキシ樹脂からなる樹脂組成物が提案されているが、密着性や耐熱性については未だ不十分であるため、さらなる特性の向上が求められている。中でもエポキシ樹脂は一般的に密着性や流動性、加工性に優れた樹脂であり、構造が異なる種々のエポキシ樹脂を用いてさらなる特性の付与を目的とする検討が行われている。
【０００６】
本発明は、ガラス転移温度に優れるプリント配線板を実現し得る樹脂組成物の提供を目的とするものであり、これを用いたプリプレグ及び単層あるいは積層シート、並びに該プリプレグを用いた金属箔張積層板やプリント配線板等を提供することにある。
【課題を解決するための手段】
【０００７】
本発明者らは、上記課題について鋭意検討した結果、一般式（１）で表されるエポキシ樹脂（Ａ）及びシアン酸エステル化合物（Ｂ）を含有する樹脂組成物を使用することにより、高いガラス転移温度を有する硬化物が得られることを見出し、本発明に到達した。すなわち、本発明は以下の通りである。
【０００８】
１．下記一般式（１）で表されるエポキシ樹脂（Ａ）及びシアン酸エステル化合物（Ｂ）を含有する樹脂組成物。
【化１】

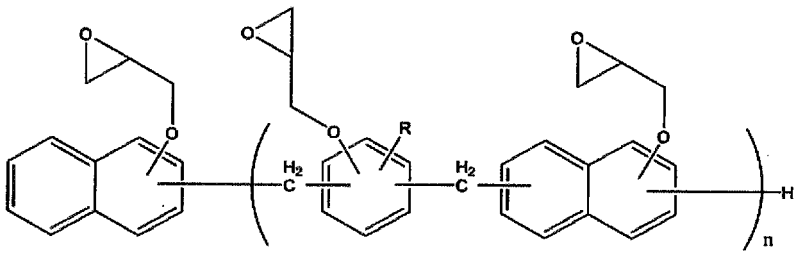


(1)

（式中、Ｒは炭素数１～３のアルキル基を示す。ｎは１～２０の整数を示し、ｎが異なる混合物であっても良い。）
【０００９】
２．前記エポキシ樹脂（Ａ）の樹脂組成物における含有量が、樹脂固形分１００質量部

に対し、１～９０質量部である、１．に記載の樹脂組成物。
【００１０】
３．さらに、充填材（Ｃ）を含有する、１．又は２．に記載の樹脂組成物。
【００１１】
４．さらに、一般式（１）で表されるエポキシ樹脂（Ａ）以外のエポキシ樹脂、マレイミド化合物、フェノール樹脂、オキセタン樹脂、ベンゾオキサジン化合物、重合可能な不飽和基を有する化合物から選択される群のうち、いずれか１種以上を含有する、１．～３．のいずれか一項に記載の樹脂組成物。
【００１２】
５．前記充填材（Ｃ）の樹脂組成物における含有量が、樹脂固形分１００質量部に対し、５０～１６００質量部である、３．又は４．に記載の樹脂組成物。
【００１３】
６．基材及び該基材に含浸又は塗布された、１．～５．のいずれか一項に記載の樹脂組成物とを有するプリプレグ。

【００１４】
７．少なくとも１枚以上積層された６．に記載のプリプレグ及び該プリプレグの片面又は両面に配された金属箔とを有する、金属箔張積層板。
【００１５】
８．支持体及び該支持体の表面に配された、１．～５．のいずれか一項に記載の樹脂組成物とを有する、樹脂シート。
【００１６】
９．絶縁層と、該絶縁層の表面に形成された導体層とを有し、該絶縁層が、１．～５．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。
【発明の効果】
【００１７】
本発明によれば、ガラス転移温度に優れるプリプレグ、樹脂シート、金属箔張積層板等を実現することができ、高性能なプリント配線板を実現することができ、その工業的な実用性は極めて高いものである。
【発明を実施するための形態】
【００１８】
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。
【００１９】
本実施形態で使用するエポキシ樹脂（Ａ）は、下記一般式（１）で表される。
【化２】



(1)

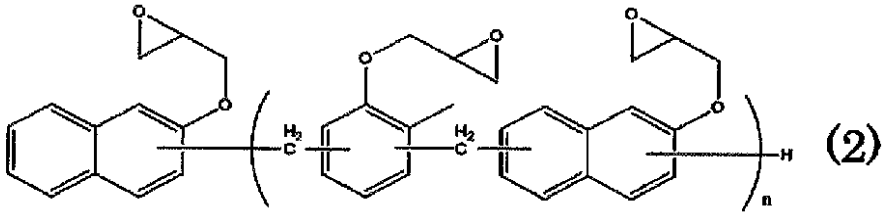
（式中、Ｒは炭素数１～３のアルキル基を示す。ｎは１～２０の整数を示し、ｎが異なる混合物であっても良い。）
一般式（１）で表されるエポキシ樹脂（Ａ）を含有する樹脂硬化物は、ガラス転移温度が向上する効果がある。
【００２０】
一般式（１）で表されるエポキシ樹脂（Ａ）の式中のＲは置換する芳香環のメチレン基、グリシジル基が置換されている部位以外の任意の位置に置換できる炭素数１～３のアル

キル基を示す。炭素数は好ましくは１～２であり、より好ましくは１である。ｎは、１～２０の整数であり、好ましくは１～１５であり、より好ましくは１～１０である。ｎが上記範囲であることにより、得られる樹脂組成物のガラス転移温度が向上する。

【００２１】

このような一般式（１）で表されるエポキシ樹脂（Ａ）は市販のものを使用しても良く、例えば式（２）で表される、日本化薬（株）製ＮＣ－７７００（エポキシ当量２２６ｇ／ｅｑ）を好適に使用できる。

【化３】



(2)

【００２２】

一般式（１）で表されるエポキシ樹脂（Ａ）の本実施形態の樹脂組成物における含有量は、所望する特性に応じて適宜設定することができ、特に限定されないが、樹脂組成物中の樹脂固形分を１００質量部とした場合、１～９０質量部が好ましい。含有量が１～９０質量部の範囲である場合、耐熱性に優れる樹脂組成物が得られる。

ここで、「樹脂組成物中の樹脂固形分」とは、特に断りのない限り、樹脂組成物における、溶剤、及び充填材（Ｃ）を除いた成分をいい、樹脂固形分１００質量部とは、樹脂組成物における溶剤、及び充填材（Ｃ）を除いた成分の合計が１００質量部であることをいうものとする。

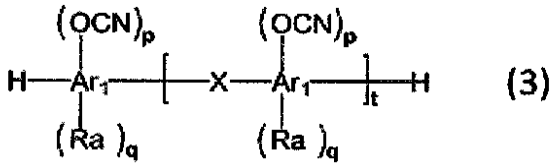
【００２３】

本実施形態で使用するシアン酸エステル化合物（Ｂ）は、シアナト基（シアン酸エステル基）が少なくとも１個置換された芳香族部分を分子内に有する樹脂であれば特に限定されない。

【００２４】

例えば一般式（３）で表されるものが挙げられる。

【化４】



(3)

（ここで、式中、Ａｒ$_1$は、ベンゼン環、ナフタレン環又は２つのベンゼン環が単結合したものを表す。複数ある場合は互いに同一であっても異なっていても良い。Ｒａは各々独立に水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数６～１２のアリール基、炭素数１～４のアルコキシル基、炭素数１～６のアルキル基と炭素数６～１２のアリール基とが結合された基を示す。Ｒａにおける芳香環は置換基を有していてもよく、Ａｒ$_1$及びＲａにおける置換基は任意の位置を選択できる。ｐはＡｒ$_1$に結合するシアナト基の数を示し、各々独立に１～３の整数である。ｑはＡｒ$_1$に結合するＲａの数を示し、Ａｒ$_1$がベンゼン環の時は４－ｐ、ナフタレン環の時は６－ｐ、２つのベンゼン環が単結合したものの時は８－ｐである。ｔは平均繰り返し数を示し、０～５０の整数であり、他のシアン酸エステル化合物は、ｔが異なる化合物の混合物であってもよい。Ｘは、複数ある場合は各々独立に、単結合、炭素数１～５０の２価の有機基（水素原子がヘテロ原子に置換されていてもよい。）、窒素数１～１０の２価の有機基（例えば－Ｎ－Ｒ－Ｎ－（ここでＲは有機気を示す。））、カルボニル基（－ＣＯ－）、カルボキシ基（－Ｃ（＝Ｏ）Ｏ－）、カルボニルジオキサイド基（－ＯＣ（＝Ｏ）Ｏ－）、スルホニル基（－ＳＯ$_2$－）、２価の硫黄原子

又は２価の酸素原子のいずれかを示す。）

【００２５】

一般式（３）のＲａにおけるアルキル基は、直鎖もしくは分枝の鎖状構造、及び、環状構造（例えばシクロアルキル基等）いずれを有していてもよい。

また、一般式（３）におけるアルキル基及びＲａにおけるアリール基中の水素原子は、フッ素原子、塩素原子等のハロゲン原子、メトキシ基、フェノキシ基等のアルコキシル基、又はシアノ基等で置換されていてもよい。

アルキル基の具体例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、１－エチルプロピル基、２，２－ジメチルプロピル基、シクロペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基、及びトリフルオロメチル基が挙げられる。

アリール基の具体例としては、フェニル基、キシリル基、メシチル基、ナフチル基、フェノキシフェニル基、エチルフェニル基、ｏ－，ｍ－又はｐ－フルオロフェニル基、ジクロロフェニル基、ジシアノフェニル基、トリフルオロフェニル基、メトキシフェニル基、及びｏ－，ｍ－又はｐ－トリル基等が挙げられる。更にアルコキシル基としては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ｎ－ブトキシ基、イソブトキシ基、及びｔｅｒｔ－ブトキシ基が挙げられる。

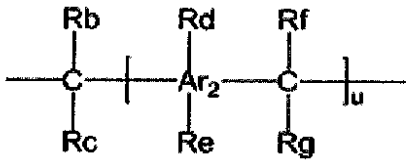
一般式（３）のＸにおける炭素数１～５０の２価の有機基の具体例としては、メチレン基、エチレン基、トリメチレン基、シクロペンチレン基、シクロヘキシレン基、トリメチルシクロヘキシレン基、ビフェニルイルメチレン基、ジメチルメチレン－フェニレン－ジメチルメチレン基、フルオレンジイル基、及びフタリドジイル基等が挙げられる。該２価の有機基中の水素原子は、フッ素原子、塩素原子等のハロゲン原子、メトキシ基、フェノキシ基等のアルコキシル基、シアノ基等で置換されていてもよい。

一般式（３）のＸにおける窒素数１～１０の２価の有機基としては、イミノ基、ポリイミド基等が挙げられる。

【００２６】

また、一般式（３）中のＸの有機基として、例えば、下記一般式（４）又は下記一般式（５）で表される構造であるものが挙げられる。

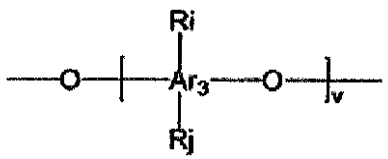
【化５】



(4)

ここで、式中、Ａｒ$_2$はベンゼンテトライル基、ナフタレンテトライル基又はビフェニルテトライル基を示し、ｕが２以上の場合、互いに同一であっても異なっていてもよい。Ｒｂ、Ｒｃ、Ｒｆ、及びＲｇは各々独立に、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数６～１２のアリール基、トリフルオロメチル基、又はフェノール性ヒドロキシ基を少なくとも１個有するアリール基を示す。Ｒｄ及び、Ｒｅは各々独立に、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数６～１２のアリール基、炭素数１～４のアルコキシル基、又はヒドロキシ基のいずれか一種から選択される。ｕは０～５の整数を示す。

【化６】



(5)

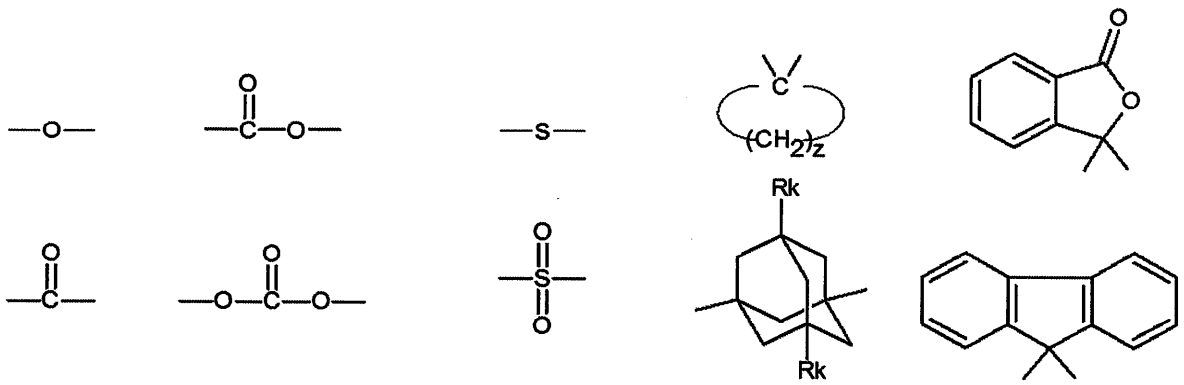
ここで、式中、Ａｒ$_3$はベンゼンテトライル基、ナフタレンテトライル基又はビフェニルテトライル基を示し、ｖが２以上の場合、互いに同一であっても異なっていてもよい。Ｒｉ、及びＲｊは各々独立に、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数６～１２の

アリール基、ベンジル基、炭素数１～４のアルコキシル基、ヒドロキシ基、トリフルオロメチル基、又はシアナト基が少なくとも１個置換されたアリール基を示す。ｖは０～５の整数を示すが、ｖが異なる化合物の混合物であってもよい。

【００２７】

さらに、一般式（３）中のＸとしては、下記式で表される２価の基が挙げられる。

【化７】



ここで式中、ｚは４～７の整数を示す。Ｒｋは各々独立に、水素原子又は炭素数１～６のアルキル基を示す。

一般式（４）のAr_2及び一般式（５）のAr_3の具体例としては、一般式（４）に示す２個の炭素原子、又は一般式（５）に示す２個の酸素原子が、１，４位又は１，３位に結合するベンゼンテトライル基、上記２個の炭素原子又は２個の酸素原子が４，４‘位、２，４’位、２，２‘位、２，３’位、３，３‘位、又は３，４’位に結合するビフェニルテトライル基、及び、上記２個の炭素原子又は２個の酸素原子が、２，６位、１，５位。１，６位、１，８位、１，３位、１，４位、又は２，７位に結合するナフタレンテトライル基が挙げられる。

一般式（４）のＲｂ、Ｒｃ、Ｒｄ、Ｒｅ、Ｒｆ及びＲｇ、並びに一般式（５）のＲｉ、Ｒｊにおけるアルキル基及びアリール基は、上記一般式（３）におけるものと同義である。

【００２８】

上記一般式（３）で表されるシアナト置換芳香族化合物の具体例としては、シアナトベンゼン、１－シアナト－２－，１－シアナト－３－，又は１－シアナト－４－メチルベンゼン、１－シアナト－２－，１－シアナト－３－，又は１－シアナト－４－メトキシベンゼン、１－シアナト－２，３－，１－シアナト－２，４－，１－シアナト－２，５－，１－シアナト－２，６－，１－シアナト－３，４－又は１－シアナト－３，５－ジメチルベンゼン、シアナトエチルベンゼン、シアナトブチルベンゼン、シアナトオクチルベンゼン、シアナトノニルベンゼン、２－（４－シアナフェニル）－２－フェニルプロパン（４－α－クミルフェノールのシアネート）、１－シアナト－４－シクロヘキシルベンゼン、１－シアナト－４－ビニルベンゼン、１－シアナト－２－又は１－シアナト－３－クロロベンゼン、１－シアナト－２，６－ジクロロベンゼン、１－シアナト－２－メチル－３－クロロベンゼン、シアナトニトロベンゼン、１－シアナト－４－ニトロ－２－エチルベンゼン、１－シアナト－２－メトキシ－４－アリルベンゼン（オイゲノールのシアネート）、メチル（４－シアナトフェニル）スルフィド、１－シアナト－３－トリフルオロメチルベンゼン、４－シアナトビフェニル、１－シアナト－２－又は１－シアナト－４－アセチルベンゼン、４－シアナトベンズアルデヒド、４－シアナト安息香酸メチルエステル、４－シアナト安息香酸フェニルエステル、１－シアナト－４－アセトアミノベンゼン、４－シアナトベンゾフェノン、１－シアナト－２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルベンゼン、１，２－ジシアナトベンゼン、１，３－ジシアナトベンゼン、１，４－ジシアナトベンゼン、１，４－ジシアナト－２－ｔｅｒｔ－ブチルベンゼン、１，４－ジシアナト－２，４－ジメチルベンゼン、１，４－ジシアナト－２，３，４－ジメチルベンゼン、１，３－ジシアナ

ト－２，４，６－トリメチルベンゼン、１，３－ジシアナト－５－メチルベンゼン、１－シアナト又は２－シアナトナフタレン、１－シアナト４－メトキシナフタレン、２－シアナト－６－メチルナフタレン、２－シアナト－７－メトキシナフタレン、２，２'－ジシアナト－１，１'－ビナフチル、１，３－，１，４－，１，５－，１，６－，１，７－，２，３－，２，６－又は２，７－ジシアナトシナフタレン、２，２’－又は４，４’－ジシアナトビフェニル、４，４’－ジシアナトオクタフルオロビフェニル、２，４’－又は４，４’－ジシアナトジフェニルメタン、ビス（４－シアナト－３，５－ジメチルフェニル）メタン、１，１－ビス（４－シアナトフェニル）エタン、１，１－ビス（４－シアナトフェニル）プロパン、２，２－ビス（４－シアナトフェニル）プロパン、２，２－ビス（４－シアナト－３－メチルフェニル）プロパン、２，２－ビス（２－シアナト－５－ビフェニルイル）プロパン、２，２－ビス（４－シアナトフェニル）ヘキサフルオロプロパン、２，２－ビス（４－シアナト－３，５－ジメチルフェニル）プロパン、１，１－ビス（４－シアナトフェニル）ブタン、１，１－ビス（４－シアナトフェニル）イソブタン、１，１－ビス（４－シアナトフェニル）ペンタン、１，１－ビス（４－シアナトフェニル）－３－メチルブタン、１，１－ビス（４－シアナトフェニル）－２－メチルブタン、１，１－ビス（４－シアナトフェニル）－２，２－ジメチルプロパン、２，２－ビス（４－シアナトフェニル）ブタン、２，２－ビス（４－シアナトフェニル）ペンタン、２，２－ビス（４－シアナトフェニル）ヘキサン、２，２－ビス（４－シアナトフェニル）－３－メチルブタン、２，２－ビス（４－シアナトフェニル）－４－メチルペンタン、２，２－ビス（４－シアナトフェニル）－３，３－ジメチルブタン、３，３－ビス（４－シアナトフェニル）ヘキサン、３，３－ビス（４－シアナトフェニル）ヘプタン、３，３－ビス（４－シアナトフェニル）オクタン、３，３－ビス（４－シアナトフェニル）－２－メチルペンタン、３，３－ビス（４－シアナトフェニル）－２－メチルヘキサン、３，３－ビス（４－シアナトフェニル）－２，２－ジメチルペンタン、４，４－ビス（４－シアナトフェニル）－３－メチルヘプタン、３，３－ビス（４－シアナトフェニル）－２－メチルヘプタン、３，３－ビス（４－シアナトフェニル）－２，２－ジメチルヘキサン、３，３－ビス（４－シアナトフェニル）－２，４－ジメチルヘキサン、３，３－ビス（４－シアナトフェニル）－２，２，４－トリメチルペンタン、２，２－ビス（４－シアナトフェニル）－１，１，１，３，３，３－ヘキサフルオロプロパン、ビス（４－シアナトフェニル）フェニルメタン、１，１－ビス（４－シアナトフェニル）－１－フェニルエタン、ビス（４－シアナトフェニル）ビフェニルメタン、１，１－ビス（４－シアナトフェニル）シクロペンタン、１，１－ビス（４－シアナトフェニル）シクロヘキサン、２，２－ビス（４－シアナト－３－イソプロピルフェニル）プロパン、１，１－ビス（３－シクロヘキシル－４－シアナトフェニル）シクロヘキサン、ビス（４－シアナトフェニル）ジフェニルメタン、ビス（４－シアナトフェニル）－２，２－ジクロロエチレン、１，３－ビス［２－（４－シアナトフェニル）－２－プロピル］ベンゼン、１，４－ビス［２－（４－シアナトフェニル）－２－プロピル］ベンゼン、１，１－ビス（４－シアナトフェニル）－３，３，５－トリメチルシクロヘキサン、４－［ビス（４－シアナトフェニル）メチル］ビフェニル、４，４－ジシアナトベンゾフェノン、１，３－ビス（４－シアナトフェニル）－２－プロペン－１－オン、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）スルフィド、ビス（４－シアナトフェニル）スルホン、４－シアナト安息香酸－４－シアナトフェニルエステル（４－シアナトフェニル－４－シアナトベンゾエート）、ビス－（４－シアナトフェニル）カーボネート、１，３－ビス（４－シアナトフェニル）アダマンタン、１，３－ビス（４－シアナトフェニル）－５，７－ジメチルアダマンタン、３，３－ビス（４－シアナトフェニル）イソベンゾフラン－１（３Ｈ）－オン（フェノールフタレインのシアネート）、３，３－ビス（４－シアナト－３－メチルフェニル）イソベンゾフラン－１（３Ｈ）－オン（ｏ－クレゾールフタレインのシアネート）、９，９’－ビス（４－シアナトフェニル）フルオレン、９，９－ビス（４－シアナト－３－メチルフェニル）フルオレン、９，９－ビス（２－シアナト－５－ビフェニルイル）フルオレン、トリス（４－シアナトフェニル）メタン、１，１，１－トリス（４－シアナトフェ

ニル）エタン、１，１，３－トリス（４－シアナトフェニル）プロパン、α，α，α'－トリス（４－シアナトフェニル）－１－エチル－４－イソプロピルベンゼン、１，１，２，２－テトラキス（４－シアナトフェニル）エタン、テトラキス（４－シアナトフェニル）メタン、２，４，６－トリス（Ｎ－メチル－４－シアナトアニリノ）－１，３，５－トリアジン、２，４－ビス（Ｎ－メチル－４－シアナトアニリノ）－６－（Ｎ－メチルアニリノ）－１，３，５－トリアジン、ビス（Ｎ－４－シアナト－２－メチルフェニル）－４，４’－オキシジフタルイミド、ビス（Ｎ－３－シアナト－４－メチルフェニル）－４，４’－オキシジフタルイミド、ビス（Ｎ－４－シアナトフェニル）－４，４’－オキシジフタルイミド、ビス（Ｎ－４－シアナト－２－メチルフェニル）－４，４’－（ヘキサフルオロイソプロピリデン）ジフタルイミド、トリス（３，５－ジメチル－４－シアナトベンジル）イソシアヌレート、２－フェニル－３，３－ビス（４－シアナトフェニル）フタルイミジン、２－（４－メチルフェニル）－３，３－ビス（４－シアナトフェニル）フタルイミジン、２－フェニル－３，３－ビス（４－シアナト－３－メチルフェニル）フタルイミジン、１－メチル－３，３－ビス（４－シアナトフェニル）インドリン－２－オン、及び、２－フェニル－３，３－ビス（４－シアナトフェニル）インドリン－２－オンが挙げられる。また、上記一般式（３）で表される化合物の別の具体例としては、フェノールノボラック樹脂及びクレゾールノボラック樹脂（公知の方法により、フェノール、アルキル置換フェノール又はハロゲン置換フェノールと、ホルマリンやパラホルムアルデヒドなどのホルムアルデヒド化合物とを、酸性溶液中で反応させたもの）、トリスフェノールノボラック樹脂（ヒドロキシベンズアルデヒドとフェノールとを酸性触媒の存在下に反応させたもの）、フルオレンノボラック樹脂（フルオレノン化合物と９，９－ビス（ヒドロキシアリール）フルオレン類とを酸性触媒の存在下に反応させたもの）、フェノールアラルキル樹脂、クレゾールアラルキル樹脂、ナフトールアラルキル樹脂及びビフェニルアラルキル樹脂（公知の方法により、$Ar_2-(CH_2Y)_2$（Ar_2はフェニル基を示し、Ｙはハロゲン原子を示す。以下、この段落において同様。）で表されるようなビスハロゲノメチル化合物とフェノール化合物とを酸性触媒若しくは無触媒で反応させたもの、$Ar_2-(CH_2OR)_2$で表されるようなビス（アルコキシメチル）化合物とフェノール化合物とを酸性触媒の存在下に反応させたもの、又は、$Ar_2-(CH_2OH)_2$で表されるようなビス（ヒドロキシメチル）化合物とフェノール化合物を酸性触媒の存在下に反応させたもの、あるいは、芳香族アルデヒド化合物とアラルキル化合物とフェノール化合物とを重縮合させたもの）、フェノール変性キシレンホルムアルデヒド樹脂（公知の方法により、キシレンホルムアルデヒド樹脂とフェノール化合物とを酸性触媒の存在下に反応させたもの）、変性ナフタレンホルムアルデヒド樹脂（公知の方法により、ナフタレンホルムアルデヒド樹脂とヒドロキシ置換芳香族化合物を酸性触媒の存在下に反応させたもの）、フェノール変性ジシクロペンタジエン樹脂、ポリナフチレンエーテル構造を有するフェノール樹脂（公知の方法により、フェノール性ヒドロキシ基を１分子中に２つ以上有する多価ヒドロキシナフタレン化合物を、塩基性触媒の存在下に脱水縮合させたもの）等のフェノール樹脂を、上述と同様の方法によりシアネート化したもの等、並びにこれらのプレポリマー等が挙げられる。これらは、特に制限されるものではない。これらの他のシアン酸エステル化合物は、１種又は２種以上混合して用いることができる。

【００２９】

この中でも、フェノールノボラック型シアン酸エステル化合物、ナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物、ビフェニルアラルキル型シアン酸エステル化合物、ナフチレンエーテル型シアン酸エステル化合物、キシレン樹脂型シアン酸エステル化合物、アダマンタン骨格型シアン酸エステル化合物が好ましく、ナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物が特に好ましい。

【００３０】

これらのシアン酸エステル化合物を用いた樹脂硬化物は、ガラス転移温度、低熱膨張性、めっき密着性等に優れた特性を有する。

【００３１】

シアン酸エステル化合物（Ｂ）の本実施形態の樹脂組成物における含有量は、所望する特性に応じて適宜設定することができ、特に限定されないが、樹脂組成物中の樹脂固形分を１００質量部とした場合、１～９０質量部が好ましい。

【００３２】

本実施形態に用いられる充填材（Ｃ）としては、公知のものを適宜使用することができ、その種類は特に限定されない。特に、積層板用途において一般に使用されている充填材を、充填材（Ｃ）として好適に用いることができる。充填材（Ｃ）として具体的には、天然シリカ、溶融シリカ、合成シリカ、アモルファスシリカ、アエロジル、中空シリカ等のシリカ類、ホワイトカーボン、チタンホワイト、酸化亜鉛、酸化マグネシウム、酸化ジルコニウム等の酸化物、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）、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、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－ガラス、Ａ－ガラス、ＮＥ－ガラス、Ｃ－ガラス、Ｌ－ガラス、Ｄ－ガラス、Ｓ－ガラス、Ｍ－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ガラス等のガラス微粉末類を含む。）、中空ガラス、球状ガラスなど無機系の充填材の他、スチレン型、ブタジエン型、アクリル型などのゴムパウダー、コアシェル型のゴムパウダー、並びにシリコーンレジンパウダー、シリコーンゴムパウダー、シリコーン複合パウダーなど有機系の充填材などが挙げられる。これらの充填材は、１種を単独で又は２種以上を組み合わせて用いることができる。

これらの中でも、シリカ、水酸化アルミニウム、ベーマイト、酸化マグネシウム及び水酸化マグネシウムからなる群から選択される１種又は２種以上が好適である。これらの充填材を使用することで、樹脂組成物の熱膨張特性、寸法安定性、難燃性などの特性が向上する。

【００３３】

本実施形態の樹脂組成物における充填材（Ｃ）の含有量は、所望する特性に応じて適宜設定することができ、特に限定されないが、樹脂組成物中の樹脂固形分を１００質量部とした場合、５０～１６００質量部とすることで、樹脂組成物の成形性が良好となる。

【００３４】

ここで充填材（Ｃ）を樹脂組成物に含有させるにあたり、シランカップリング剤や湿潤分散剤を併用することが好ましい。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用いられ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。シランカップリング剤として、具体的には、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ランなどのアミノシラン系、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、β－（３，４－エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシランなどのエポキシシラン系、γ－メタアクリロキシプロピルトリメトキシシラン、ビニルートリ（β－メトキシエトキシ）シランなどのビニルシラン系、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ラン塩酸塩などのカチオニックシラン系、並びにフェニルシラン系が挙げられる。シランカップリング剤は、１種を単独で又は２種以上を組み合わせて用いることができる。また、湿潤分散剤としては、一般に塗料用に用いら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。湿潤分散剤としては、好ましくは、共重合体ベースの湿潤分散剤が用いられ、市販品であってもよい。市販品の具体例としては、ビックケミー・ジャパン（株）製のＤｉｓｐｅｒｂｙｋ－１１０、１１１、１６１、１８０、ＢＹＫ－Ｗ９９６、ＢＹＫ－Ｗ９０１０、ＢＹＫ－Ｗ９０３、ＢＹＫ－Ｗ９４０などが挙げられる。湿潤分散剤は、１種を単独で又は２種以上を組み合わせて用いることができる。

【００３５】

さらに、本実施形態の樹脂組成物においては、所期の特性が損なわれない範囲において、上記一般式（１）で表されるエポキシ樹脂（Ａ）以外のエポキシ樹脂（以下、「他のエ

ポキシ樹脂」という。）、マレイミド化合物、フェノール樹脂、オキセタン樹脂、ベンゾオキサジン化合物、重合可能な不飽和基を有する化合物等を含有していてもよい。
これらを併用することで、樹脂組成物を硬化した硬化物の難燃性、低誘電性など所望する特性を向上させることができる。

【００３６】

他のエポキシ樹脂としては、一般式（１）で表されるものでなく、１分子中に２個以上のエポキシ基を有するエポキシ樹脂であれば、公知のものを適宜使用することができ、その種類は特に限定されない。具体的には、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、グリシジルエステル型エポキシ樹脂、アラルキルノボラック型エポキシ樹脂、ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂、ナフチレンエーテル型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、多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、アントラセン型エポキシ樹脂、ナフタレン骨格変性ノボラック型エポキシ樹脂、フェノー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、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、ポリオール型エポキシ樹脂、リン含有エポキシ樹脂、グリシジルアミン、グリシジルエステル、ブタジエンなどの二重結合をエポキシ化した化合物、水酸基含有シリコー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などが挙げられる。これらのエポキシ樹脂のなかでは、ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂、ナフチレンエーテル型エポキシ樹脂、多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が難燃性、耐熱性の面で好ましい。これらのエポキシ樹脂は、１種を単独で又は２種以上を組み合わせて用いることができる。

【００３７】

マレイミド化合物としては、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、一般に公知のものを使用できる。例えば、４，４－ジフェニルメタンビスマレイミド、フェニルメタンマレイミド、ｍ－フェニレンビスマレイミド、２，２－ビス（４－（４－マレイミドフェノキシ）－フェニル）プロパン、３，３－ジメチル－５，５－ジエチル－４，４－ジフェニルメタンビスマレイミド、４－メチル－１，３－フェニレンビスマレイミド、１，６－ビスマレイミド－（２，２，４－トリメチル）ヘキサン、４，４－ジフェニルエーテルビスマレイミド、４，４－ジフェニルスルフォンビスマレイミド、１，３－ビス（３－マレイミドフェノキシ）ベンゼン、１，３－ビス（４－マレイミドフェノキシ）ベンゼン、ポリフェニルメタンマレイミド、ノボラック型マレイミド、ビフェニルアラルキル型マレイミド、及び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が、特に制限されるものではない。これらのマレイミド化合物は、１種又は２種以上混合して用いることができる。この中でも、ノボラック型マレイミド化合物、ビフェニルアラルキル型マレイミド化合物が特に好ましい。

【００３８】

フェノール樹脂としては、１分子中に２個以上のヒドロキシ基を有するフェノール樹脂であれば、一般に公知のものを使用できる。例えば、ビスフェノールＡ型フェノール樹脂、ビスフェノールＥ型フェノール樹脂、ビスフェノールＦ型フェノール樹脂、ビスフェノールＳ型フェノール樹脂、フェノールノボラック樹脂、ビスフェノールＡノボラック型フェノール樹脂、グリシジルエステル型フェノール樹脂、アラルキルノボラック型フェノール樹脂、ビフェニルアラルキル型フェノール樹脂、クレゾールノボラック型フェノール樹脂、多官能フェノール樹脂、ナフトール樹脂、ナフトールノボラック樹脂、多官能ナフトール樹脂、アントラセン型フェノール樹脂、ナフタレン骨格変性ノボラック型フェノール樹脂、フェノールアラルキル型フェノール樹脂、ナフトールアラルキル型フェノール樹脂、ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂、ビフェニル型フェノール樹脂、脂環式フェノール樹脂、ポリオール型フェノール樹脂、リン含有フェノール樹脂、水酸基含有シリコー

ン樹脂類等が挙げられるが、特に制限されるものではない。これらのフェノール樹脂の中では、ビフェニルアラルキル型フェノール樹脂、ナフトールアラルキル型フェノール樹脂、リン含有フェノール樹脂、水酸基含有シリコーン樹脂が難燃性の点で好ましい。これらのフェノール樹脂は、１種を単独で又は２種以上を組み合わせて用いることができる。

【００３９】

オキセタン樹脂としては、一般に公知のものを使用できる。例えば、オキセタン、２－メチルオキセタン、２，２－ジメチルオキセタン、３－メチルオキセタン、３，３－ジメチルオキセタン等のアルキルオキセタン、３－メチル－３－メトキシメチルオキセタン、３，３－ジ（トリフルオロメチル）パーフルオキセタン、２－クロロメチルオキセタン、３，３－ビス（クロロメチル）オキセタン、ビフェニル型オキセタン、ＯＸＴ－１０１（東亞合成製商品名）、ＯＸＴ－１２１（東亞合成製商品名）等が挙げられる、特に制限されるものではない。これらのオキセタン樹脂は、１種又は２種以上混合して用いることができる。

【００４０】

ベンゾオキサジン化合物としては、１分子中に２個以上のジヒドロベンゾオキサジン環を有する化合物であれば、一般に公知のものを用いることができる。例えば、ビスフェノールＡ型ベンゾオキサジンＢＡ－ＢＸＺ（小西化学製商品名）ビスフェノールＦ型ベンゾオキサジンＢＦ－ＢＸＺ（小西化学製商品名）、ビスフェノールＳ型ベンゾオキサジンＢＳ－ＢＸＺ（小西化学製商品名）、Ｐ－ｄ型ベンゾオキサジン（四国化成工業製商品名）、Ｆ－ａ型ベンゾオキサジン（四国化成工業製商品名）等が挙げられる、特に制限されるものではない。これらのベンゾオキサジン化合物は、１種又は２種以上混合して用いることができる。

【００４１】

重合可能な不飽和基を有する化合物としては、一般に公知のものを使用できる。例えば、エチレン、プロピレン、スチレン、ジビニルベンゼン、ジビニルビフェニル等のビニル化合物、メチル（メタ）アクリレート、２－ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、２－ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、ポリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパンジ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート等の１価又は多価アルコールの（メタ）アクリレート類、ビスフェノールＡ型エポキシ（メタ）アクリレート、ビスフェノールＦ型エポキシ（メタ）アクリレート等のエポキシ（メタ）アクリレート類、及びベンゾシクロブテン樹脂、（が挙げられるが、特に制限されるものではない。これらの不飽和基を有する化合物は、１種又は２種以上混合して用いることができる。なお、上記「（メタ）アクリレート」は、アクリレート及びそれに対応するメタクリレートを包含する概念である。

【００４２】

また、本実施形態の樹脂組成物は、必要に応じて、硬化速度を適宜調節するための硬化促進剤を含有していてもよい。この硬化促進剤としては、シアン酸エステル化合物やエポキシ樹脂等の硬化促進剤とし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、その種類は特に限定されない。硬化促進剤の具体例としては、オクチル酸亜鉛、ナフテン酸亜鉛、ナフテン酸コバルト、ナフテン酸銅、アセチルアセトン鉄、オクチル酸ニッケル、オクチル酸マンガン等の有機金属塩類、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、オクチルフェノール、ノニルフェノール等のフェノール化合物、１－ブタノール、２－エチルヘキサノール等のアルコール類、２－メチルイミダゾール、２－エチル－４－メチルイミダゾール、２－フェニルイミダゾール、１－シアノエチル－２－フェニルイミダゾール、１－シアノエチル－２－エチル－４－メチルイミダゾール、２－フェニル－４，５－ジヒドロキシメチルイミダゾール、２－フェニル－４－メチル－５－ヒドロキシメチルイミダゾール等のイミダゾール類及びこれらのイミダゾール類のカルボン酸若しくはその酸無水類の付加体等の誘導体、ジシアンジアミド、ベンジルジメチルアミン、４－メチル－Ｎ，Ｎ－ジメチルベンジルアミン等のアミン類、ホスフィン系化合物

、ホスフィンオキサイド系化合物、ホスホニウム塩系化合物、ダイホスフィン系化合物等のリン化合物、エポキシ－イミダゾールアダクト系化合物、ベンゾイルパーオキサイド、ｐ－クロロベンゾイルパーオキサイド、ジ－ｔ－ブチルパーオキサイド、ジイソプロピルパーオキシカーボネート、ジ－２－エチルヘキシルパーオキシカーボネート等の過酸化物、又はアゾビスイソブチロニトリル等のアゾ化合物が挙げられる。硬化促進剤は、１種を単独で又は２種以上を組み合わせて用いることができる。

硬化促進剤の使用量は、樹脂の硬化度や樹脂組成物の粘度等を考慮して適宜調整でき、特に限定されない。硬化促進剤の使用量は、樹脂組成物中の樹脂固形分を１００質量部に対し、０．００５～１０質量部であってもよい。

【００４３】

さらに、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、他の熱硬化性樹脂、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、並びに各種添加剤等を併用することができる。これらは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、難燃性化合物の具体例としては、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、メラミン及びベンゾグアナミンなどの窒素化合物、オキサジン環含有化合物、並びに、シリコーン系化合物等が挙げられる。また、各種添加剤としては、例えば、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、流動調整剤、滑剤、消泡剤、分散剤、レベリング剤、光沢剤、重合禁止剤等が挙げられる。これらは、所望に応じて１種を単独で又は２種以上を組み合わせて用いることができる。

【００４４】

なお、本実施形態の樹脂組成物は、必要に応じて、有機溶剤を含有することができる。この場合、本実施形態の樹脂組成物は、上述した各種樹脂成分の少なくとも一部、好ましくは全部が有機溶剤に溶解又は相溶した態様（溶液又はワニス）として用いることができる。有機溶剤としては、上述した各種樹脂成分の少なくとも一部、好ましくは全部を溶解又は相溶可能なものであれば、公知のものを適宜用いることができ、その種類は特に限定されるものではない。有機溶剤として、具体的には、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート等のセロソルブ系溶媒、乳酸エチル、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸イソアミル、乳酸エチル、メトキシプロピオン酸メチル、ヒドロキシイソ酪酸メチル等のエステル系溶媒、ジメチルアセトアミド、ジメチルホルムアミド等のアミド類などの極性溶剤類、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素等の無極性溶剤が挙げられる。これらは、１種を単独で又は２種以上を組み合わせて用いることができる。

【００４５】

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、一般式（１）で表されるエポキシ樹脂（Ａ）及びシアン酸エステル化合物（Ｂ）、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、その調整方法は特に限定されない。例えば、一般式（１）で表されるエポキシ樹脂（Ａ）及びシアン酸エステル化合物（Ｂ）を順次溶剤に配合し、十分に撹拌することで本実施形態の樹脂組成物を容易に調整することができる。

【００４６】

なお、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（撹拌、混合、混練処理など）を行うことができる。例えば、充填材（Ｃ）の均一分散にあたり、適切な撹拌能力を有する撹拌機を付設した撹拌槽を用いて撹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。上記の撹拌、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、または、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。

【００４７】

本実施形態の樹脂組成物は、プリプレグ、金属箔張積層板、プリント配線板、及び半導体パッケージの構成材料として用いることができる。例えば、本実施形態の樹脂組成物を溶剤に溶解させた溶液を基材に含浸又は塗布し乾燥することでプリプレグを得ることができる。

また、機材として剥離可能なプラスチックフィルムを用い、本実施形態の樹脂組成物を溶剤に溶解させた溶液を、そのプラスチックフィルムに塗布し乾燥することでビルドアップ用フィルム又はドライフィルムソルダーレジストを得ることができる。ここで、溶剤は、２０℃～１５０℃の温度で１～９０分間乾燥することで乾燥できる。

また、本実施形態の樹脂組成物は溶剤を乾燥しただけの未硬化の状態で使用することもできるし、必要に応じて半硬化（Ｂステージ化）の状態にして使用することもできる。

【００４８】

以下、本実施形態のプリプレグについて詳述する。本実施形態のプリプレグは、基材と、該基材に含浸又は塗布された上記樹脂組成物とを有するものである。本実施形態のプリプレグの製造方法は、本実施形態の樹脂組成物と基材とを組み合わせてプリプレグを製造する方法であれば、特に限定されない。具体的には、本実施形態の樹脂組成物を基材に含浸又は塗布させた後、１２０～２２０℃の乾燥機中で、２～１５分程度乾燥させる方法等によって半硬化させることで、本実施形態のプリプレグを製造することができる。このとき、基材に対する樹脂組成物の付着量、すなわち半硬化後のプリプレグの総量に対する樹脂組成物の含有量（充填材（Ｃ）を含む。）は、２０～９９質量％の範囲であることが好ましい。

【００４９】

本実施形態のプリプレグを製造する際に用いられる基材としては、各種プリント配線板材料に用いられている公知のものであってもよい。そのような基材としては、例えば、Ｅガラス、Ｄガラス、Ｌガラス、Ｓガラス、Ｔガラス、Ｑガラス、ＵＮガラス、ＮＥガラス、球状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、ポリイミド、ポリアミド、ポリエステル等の有機繊維、液晶ポリエステル等の織布が挙げられるが、これらに特に限定されるものではない。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、及びサーフェシングマット等が知られており、これらのいずれであってもよい。基材は、１種を単独で又は２種以上を適宜組み合わせて用いることができる。織布の中では、特に超開繊処理や目詰め処理を施した織布が、寸法安定性の観点から好適である。さらに、エポキシシラン処理、又はアミノシラン処理などの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。さらに、基材の厚さは、特に限定されないが、積層板用途であれば、０．０１～０．２ｍｍの範囲が好ましい。

【００５０】

本実施形態の金属箔張積層板は、少なくとも１枚以上積層された上述のプリプレグと、そのプリプレグの片面又は両面に配された金属箔とを有するものである。具体的には、前述のプリプレグ１枚に対して、又はプリプレグを複数枚重ねたものに対して、その片面又は両面に銅やアルミニウムなどの金属箔を配置して、積層成形することにより作製することができる。ここで用いられる金属箔は、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、圧延銅箔及び解銅箔等の銅箔が好ましい。また、金属箔の厚さは、特に限定されないが、２～７０μｍであると好ましく、３～３５μｍであるとより好ましい。成形条件としては、通常のプリント配線板用積層板及び多層板の作製時に用いられる手法を採用できる。例えば、多段プレス機、多段真空プレス機、連続成形機、又はオートクレーブ成形機などを用い、温度１８０～３５０℃、加熱時間１００～３００分、面圧２０～１００ｋｇ／ｃｍ^{2}の条件で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製造することができる。また、上記のプリプレグと、別途作製した内層用の配線板とを組み合わせて積層成形することにより、多層板を作製することもできる。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３５μｍ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

板を形成する。さらに、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。こうして、多層板を作製することができる。

【００５１】

本実施形態の金属箔張積層板は、更にパターン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、常法に従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を形成を形成することにより、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施し、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る。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する。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。

【００５２】

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。

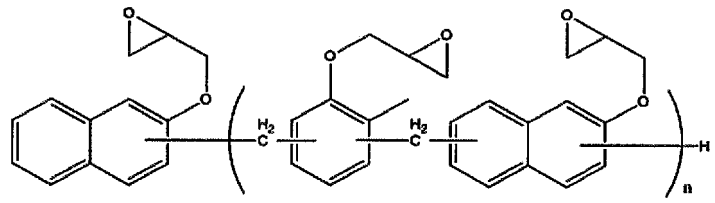
【００５３】

本実施形態の樹脂複合シートは、支持体と、その支持体の表面に配された、上記樹脂組成物とを有するものである。この樹脂複合シートは、上記の樹脂組成物を溶剤に溶解させた溶液を支持体に塗布し乾燥することで得ることができる。ここで用いる支持体としては、特に限定されないが、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系のフィルム基材、銅箔、アルミ箔等の導体箔、ガラス板、ＳＵＳ板、ＦＲＰ等の板状の無機系のフィルムが挙げられる。塗布方法としては、例えば、上記の樹脂組成物を溶剤に溶解させた溶液を、バーコーター、ダイコーター、ドクターブレード、ベーカーアプリケーター等で支持体上に塗布することで、支持体と樹脂シートが一体となった積層シートを作製する方法が挙げられる。また、塗布後、さらに乾燥して得られる樹脂複合シートから支持体を剥離又はエッチングすることで、単層シート（樹脂シート）を得ることもできる。なお、上記の本実施形態の樹脂組成物を溶剤に溶解又は相溶させた溶液を、シート状のキャビティを有する金型内に供給し乾燥する等してシート状に成形することで、支持体を用いることなく単層シート（樹脂シート）を得ることもできる。

【００５４】

なお、本実施形態の樹脂複合シート又は単層シートの作製において、溶剤を除去する際の乾燥条件は、特に限定されないが、２０℃～２００℃の温度で１～９０分間乾燥させることが好ましい。２０℃以上であると樹脂組成物中への溶剤の残存をより防止でき、２００℃以下であると樹脂組成物の硬化の進行を抑制することができる。また、本実施形態の樹脂複合シート又は単層シートにおける樹脂層の厚さは、本実施形態の樹脂組成物の溶液の濃度と塗布厚さにより調整することができ、特に限定されない。ただし、その厚さは０．１～５００μｍであると好ましい。樹脂層の厚さが５００μｍ以下であると、乾燥時に溶剤が更に残り難くなる。

【実施例】
【００５５】
以下、合成例、実施例及び比較例を示し、本発明の実施形態をさらに詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。
【００５６】
（合成例１）シアン酸エステル化合物の合成
１－ナフトールアラルキル樹脂（新日鉄住金化学（株）製）３００ｇ（ＯＨ基換算１．２８ｍｏｌ）及びトリエチルアミン１９４．６ｇ（１．９２ｍｏｌ）（ヒドロキシ基１ｍｏｌに対して１．５ｍｏｌ）をジクロロメタン１８００ｇに溶解させ、これを溶液１とした。
塩化シアン１２５．９ｇ（２．０５ｍｏｌ）（ヒドロキシ基１ｍｏｌに対して１．６ｍｏｌ）、ジクロロメタン２９３．８ｇ、３６％塩酸１９４．５ｇ（１．９２ｍｏｌ）（ヒドロキシ基１モルに対して１．５モル）、水１２０５．９ｇを、撹拌下、液温－２～－０．５℃に保ちながら、溶液１を３０分かけて注下した。溶液１注下終了後、同温度にて３０分撹拌した後、トリエチルアミン６５ｇ（０．６４ｍｏｌ）（ヒドロキシ基１ｍｏｌに対して０．５ｍｏｌ）をジクロロメタン６５ｇに溶解させた溶液（溶液２）を１０分かけて注下した。溶液２注下終了後、同温度にて３０分撹拌して反応を完結させた。
その後反応液を静置して有機相と水相を分離した。得られた有機相を水１３００ｇで５回洗浄した。水洗５回目の廃水の電気伝導度は５μＳ／ｃｍであり、水による洗浄により、除けるイオン性化合物は十分に除けられたことを確認した。
水洗後の有機相を減圧下で濃縮し、最終的に９０℃で１時間濃縮乾固させて目的とするナフトールアラルキル型のシアン酸エステル化合物（ＳＮＣＮ）（橙色粘性物）を３３１ｇ得た。得られたＳＮＣＮの質量平均分子量Ｍｗは６００であった。また、ＳＮＣＮのＩＲスペクトルは２２５０ｃｍ$^{-1}$（シアン酸エステル基）の吸収を示し、且つ、ヒドロキシ基の吸収は示さなかった。
【００５７】
（実施例１）
合成例１により得られたＳＮＣＮ５０質量部、式（２）で表される、エポキシ樹脂（ＮＣ－７７００、日本化薬（株）製）５０質量部、溶融シリカ（ＳＣ２０５０ＭＢ、アドマテックス製）１００質量部、オクチル酸亜鉛（日本化学産業（株）製）０．１５質量部を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で希釈し、厚さ０．１ｍｍのＥガラス織布に含浸塗工し、１５０℃で５分間加熱乾燥して、樹脂含有量５０質量％のプリプレグを得た。
【化８】



(2)

（式中のｎは、１～２０の整数である。）
【００５８】
得られたプリプレグを８枚重ねて１２μｍ厚の電解銅箔（３ＥＣ－Ｍ３－ＶＬＰ、三井金属（株）製）を上下に配置し、圧力３０ｋｇｆ／ｃｍ^{2}、温度２２０℃で１２０分間の積層成型を行い、絶縁層厚さ０．８ｍｍの金属箔張積層板を得た。得られた金属箔張積層板を用いて、ガラス転移温度の評価を行った。結果を表１に示す。
【００５９】
（比較例１）
実施例１において、一般式（１）で表されるエポキシ樹脂を５０質量部用いる代わりに、ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂（ＮＣ－３０００－ＦＨ、日本化薬（株）製）５

０質量部、オクチル酸亜鉛を０．１２質量部用いた以外は、実施例１と同様にして厚さ０．８ｍｍの金属箔張積層板を得た。得られた金属箔張積層板の評価結果を表１に示す。

【００６０】

（測定方法及び評価方法）

１）得られた８枚重ねの金属箔張積層板について、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。

【００６１】

【表１】

		実施例１	比較例１
ガラス転移温度[Tg]	[℃]	265	250

【００６２】

表１から明らかなように、本発明の樹脂組成物を用いることで、ガラス転移温度に優れるプリプレグ及びプリント配線板等を実現できることが確認された。

【産業上の利用可能性】

【００６３】

以上説明した通り、本発明の樹脂組成物は、電気・電子材料、工作機械材料、航空材料等の各種用途において、例えば、電気絶縁材料、半導体プラスチックパッケージ、封止材料、接着剤、積層材料、レジスト、ビルドアップ積層板材料等として、広く且つ有効に利用可能であり、とりわけ、近年の情報端末機器や通信機器などの高集積・高密度化対応のプリント配線板材料として殊に有効に利用可能である。また、本発明の積層板及び金属箔張積層板等は、ガラス転移温度に優れた性能を有するので、その工業的な実用性は極めて高いものとなる。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I		テーマコード（参考）
Ｂ３２Ｂ 15/08	*(2006.01)*	Ｂ３２Ｂ	15/08	１０５Ａ
Ｂ３２Ｂ 27/38	*(2006.01)*	Ｂ３２Ｂ	27/38	
Ｈ０５Ｋ 1/03	*(2006.01)*	Ｈ０５Ｋ	1/03	６１０Ｌ
		Ｈ０５Ｋ	1/03	６３０Ｈ

Ｆターム(参考) 4F100 AB00B AB17 AB33 AG00A AK53A AT00A CA23A DG12 DH01A EJ17
GB43 JJ03
4J002 CC032 CC282 CD002 CD061 CH032 DJ017 EA018 EA048 EH078 EH108
ET006 EU028 FD017 FD142 FD146 FD148 GF00 GQ00 GQ01
4J036 AA01 AF05 AF08 DB09 DB23 DC31 DC32 DC41 EA01 EA03
EA07 FA03 FA04 FA05 FA12 FB02 FB07 FB16 GA12 GA13
GA17 HA12 JA05 JA08 JA11