(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2023年9月21日(21.09.2023)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2023/176764 A1

(51) 国際特許分類:
C08F 290/06 (2006.01) *C08J 5/24* (2006.01)
B32B 15/08 (2006.01) *H05K 1/03* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2023/009586

(22) 国際出願日： 2023年3月13日(13.03.2023)

(25) 国際出願の言語： 日本語

(26) 国際公開の言語： 日本語

(30) 優先権データ：
特願 2022-039677 2022年3月14日(14.03.2022) JP

(71) 出願人: 三菱瓦斯化学株式会社(**MITSUBISHI GAS CHEMICAL COMPANY, INC.**) [JP/JP]; 〒1008324 東京都千代田区丸の内二丁目５番２号 Tokyo (JP).

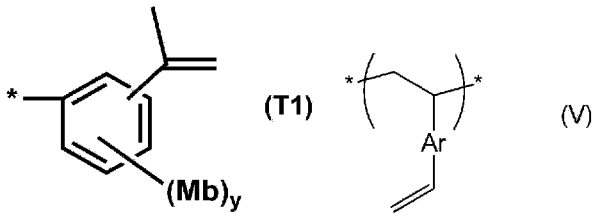
(72) 発明者: 伊藤 祥一(**ITOH Syouichi**); 〒5100886 三重県四日市市日永東二丁目４番１６号 三菱瓦斯化学株式会社 四日市工場内 Mie (JP). 田所 弘晃(**TADOKORO Hiroaki**); 〒1258601 東京都葛飾区新宿６丁目１番１号 三菱瓦斯化学株式会社 東京研究所内 Tokyo (JP). 印南 享(**INNAN Susumu**); 〒1258601 東京都葛飾区新宿６丁目１番１号 三菱瓦斯化学株式会社 東京研究所内 Tokyo (JP). 宮本 真(**MIYAMOTO Makoto**); 〒1258601 東京都葛飾区新宿６丁目１番１号 三菱瓦斯化学株式会社 東京研究所内 Tokyo (JP). 二村 圭亮(**FUTAMURA Keisuke**); 〒1258601 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 東京研究所内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人特許事務所サイクス(**SIKS & CO.**); 〒1040031 東京都中央区京橋一丁目８番７号 京橋日殖ビル８階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG,

(54) **Title:** RESIN COMPOSITION, CURED PRODUCT, PREPREG, METAL FOIL-CLAD LAMINATE, RESIN COMPOSITE SHEET, PRINTED WIRING BOARD, AND SEMICONDUCTOR DEVICE

(54) 発明の名称： 樹脂組成物、硬化物、プリプレグ、金属箔張積層板、樹脂複合シート、プリント配線板、および、半導体装置



(57) **Abstract:** The present invention provides: a resin composition which has excellent moldability and a low dielectric loss tangent (Df); a cured product; a prepreg; a metal foil-clad laminate; a resin composite sheet; a printed wiring board; and a semiconductor device. A resin composition according to the present invention contains, per 100 parts by mass of a resin (A) that has an indane skeleton and an end group represented by formula (T1), 10 to 300 parts by mass of a polyphenylene ether compound (B) that has a carbon-carbon unsaturated double bond at an end and 10 to 300 parts by mass of a polymer that has a constituent unit represented by formula (V).

(57) 要約：成形性に優れ、かつ、誘電正接（Ｄｆ）が低い樹脂組成物、ならびに、硬化物、プリプレグ、金属箔張積層板、樹脂複合シート、プリント配線板、および、半導体装置の提供。式（Ｔ１）で表される末端基を有し、かつ、インダン骨格を有する樹脂（Ａ）１００質量部に対し、末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）１０～３００質量部と、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体１０～３００質量部とを含む、樹脂組成物。

WO 2023/176764 A1

［続葉有］

SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

明　細　書

発明の名称 ：

樹脂組成物、硬化物、プリプレグ、金属箔張積層板、樹脂複合シート、プリント配線板、および、半導体装置

技術分野

[0001] 本発明は、樹脂組成物、硬化物、プリプレグ、金属箔張積層板、樹脂複合シート、プリント配線板、および、半導体装置に関する。

背景技術

[0002] 近年、携帯端末をはじめ、電子機器や通信機器等に用いられる半導体素子の高集積化および微細化が加速している。これに伴い、半導体素子の高密度実装を可能とする技術が求められており、その重要な位置をしめるプリント配線板についても改良が求められている。

一方、電子機器等の用途は多様化し拡大をつづけている。これを受け、プリント配線板やこれに用いる金属箔張積層板、プリプレグなどに求められる諸特性も多様化し、かつ厳しいものとなっている。そうした要求特性を考慮しながら、改善されたプリント配線板を得るために、各種の材料や加工法が提案されている。その１つとして、プリプレグや樹脂複合シートを構成する樹脂材料の改良開発が挙げられる。

[0003] 特許文献１には、半導体封止材、および、プリント配線板に好適な材料として、末端にイソプロペニルフェニル基を有し、かつ、インダン骨格を有する樹脂が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開２０２１－１４３３３３号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] しかしながら、上記特許文献１に記載のインダン骨格を有する樹脂をそのまま用いると十分に硬化しない。そこで、他の化合物、特に、他の熱硬化性化合物とブレンドした新規な樹脂組成物が求められる。特に、成形性に優れ、かつ、誘電正接（Ｄｆ）が低い樹脂組成物が求められる。

本発明はかかる課題を解決することを目的とするものであって、成形性に優れ、かつ、誘電正接（Ｄｆ）が低い樹脂組成物、ならびに、硬化物、プリプレグ、金属箔張積層板、樹脂複合シート、プリント配線板、および、半導体装置を提供することを目的とする。

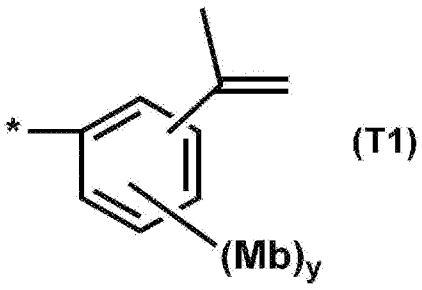
課題を解決するための手段

[0006] 上記課題のもと、本発明者が検討を行った結果、末端にイソプロペニル基を有し、かつ、インダン骨格を有する樹脂に、末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物と所定の芳香族ビニル重合体を配合することにより、上記課題は解決された。

具体的には、下記手段により、上記課題は解決された。

＜１＞式（Ｔ１）で表される末端基を有し、かつ、インダン骨格を有する樹脂（Ａ）１００質量部に対し、末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）１０～３００質量部と、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体１０～３００質量部とを含む、樹脂組成物。

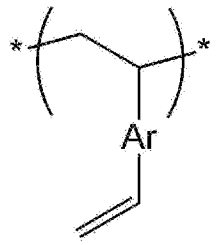
[化1]



(T1)

（式（Ｔ１）中、Ｍｂは、それぞれ独立にハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～１２の炭化水素基を表し、ｙは０～４の整数を表す。＊は他の部位との結合位置を表す。）

[化2]

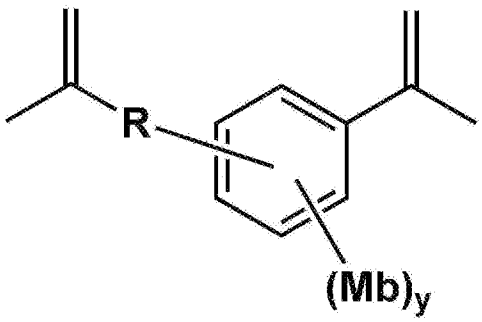


(V)

（式（Ｖ）中、Ａｒは芳香族炭化水素連結基を表す。＊は、結合位置を表す。）

＜２＞前記樹脂（Ａ）が、式（Ｔ１－１）で表される樹脂を含む、＜１＞に記載の樹脂組成物。

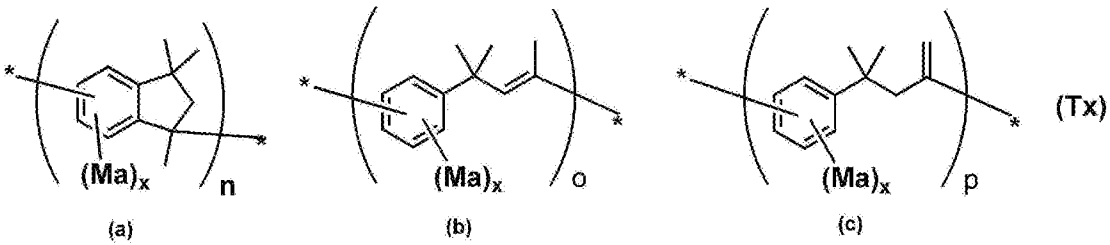
[化3]



(T1-1)

（式（Ｔ１－１）中、Ｒは、式（Ｔｘ）で表される構成単位を含む基である。Ｍｂは、それぞれ独立にハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～１２の炭化水素基を表す。ｙは０～４の整数である。）

[化4]



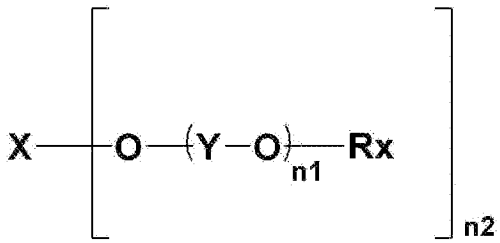
(Tx)

（式（Ｔｘ）中、ｎ、ｏ、およびｐは、平均繰り返し単位数であり、ｎは０超２０以下の数を表し、ｏおよびｐは、それぞれ独立して０～２０の数を表し、１．０≦ｎ＋ｏ＋ｐ≦２０．０である。Ｍａは、それぞれ独立にハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～１２の炭化水素基を表す。ｘは０

～４の整数を表す。構成単位（ａ）、（ｂ）、（ｃ）は、それぞれ＊で構成単位（ａ）、（ｂ）、（ｃ）、または他の基と結合しており、各構成単位はランダムに結合していてもよい。）

＜３＞前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）が、式（ＯＰ）で表されるポリフェニレンエーテル化合物を含む、＜１＞または＜２＞に記載の樹脂組成物。

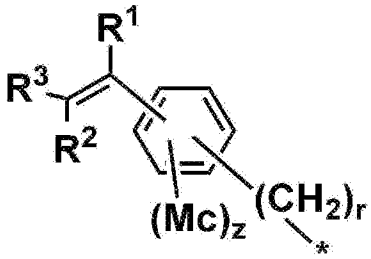
[化5]



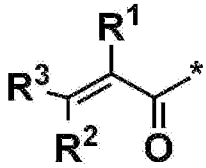
(OP)

（式（ＯＰ）中、Ｘは芳香族基を表し、－（Ｙ－Ｏ）$_{n1}$－はポリフェニレンエーテル構造を表し、ｎ１は１～１００の整数を表し、ｎ２は１～４の整数を表す。Ｒｘは、式（Ｒｘ－１）または式（Ｒｘ－２）で表される基である。）

[化6]



(Rx-1)



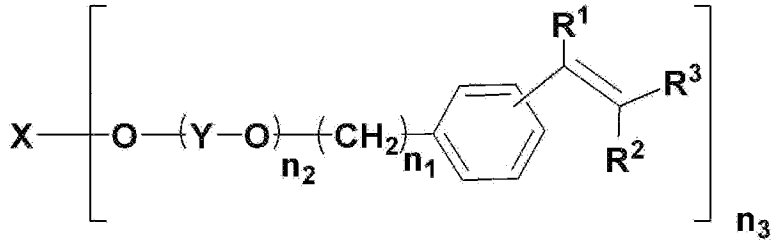
(Rx-2)

（式（Ｒｘ－１）および式（Ｒｘ－２）中、Ｒ^{1}、Ｒ^{2}、およびＲ^{3}は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、またはアルキニル基を表す。＊は、酸素原子との結合部位である。Ｍｃは、それぞれ独立に炭素数１～１２の炭化水素基を表す。ｚは０～４の整数を表す。ｒは１～６の整数を表す。）

＜４＞前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）が、式（ＯＰ－１）で表されるポリフェニレンエーテル化合

物を含む、＜１＞～＜３＞のいずれか１つに記載の樹脂組成物。

[化7]



(OP-1)

（式（ＯＰ－１）中、Ｘは芳香族基を表し、－（Ｙ－Ｏ）n_2－はポリフェニレンエーテル構造を表し、R^1、R^2、および、R^3は、それぞれ独立して、水素原子、アルキル基、アルケニル基またはアルキニル基を表し、n_1は１～６の整数を表し、n_2は１～１００の整数を表し、n_3は１～４の整数を表す。）

＜５＞前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）の数平均分子量（Ｍｎ）が５００～３０００であり、かつ、重量平均分子量（Ｍｗ）が８００～６０００である、＜１＞～＜４＞のいずれか１つに記載の樹脂組成物。

＜６＞前記樹脂（Ａ）の数平均分子量（Ｍｎ）が４００～３０００である、＜１＞～＜５＞のいずれか１つに記載の樹脂組成物。

＜７＞前記樹脂（Ａ）と前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）の合計１００質量部に対する、樹脂（Ａ）の質量比率が、１０～５０質量部である、＜１＞～＜６＞のいずれか１つに記載の樹脂組成物。

＜８＞重合禁止剤を実質的に含まない、＜１＞～＜７＞のいずれか１つに記載の樹脂組成物。

＜９＞さらに、前記樹脂（Ａ）、前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）および前記式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体以外の他の化合物（Ｃ）を含む、＜１＞～＜８＞のいずれか１つに記載の樹脂組成物。

＜１０＞前記他の化合物（Ｃ）が、マレイミド化合物、シアン酸エステル化

合物、エポキシ化合物、フェノール化合物、（メタ）アリル基を含む化合物（例えば、アルケニルナジイミド化合物）、オキセタン樹脂、ベンゾオキサジン化合物、アリールシクロブテン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ペルフルオロビニルエーテル樹脂、前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）以外のスチレン基を有する化合物、前記インダン骨格を有する樹脂（Ａ）以外のイソプロペニル基を有する化合物、前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）以外の多官能（メタ）アクリレート化合物、エラストマー、ならびに、石油樹脂からなる群より選択される１種以上を含む、＜９＞に記載の樹脂組成物。

＜１１＞前記樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対する、前記樹脂（Ａ）および前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）の合計含有量が４０質量部以上である、＜１＞～＜１０＞のいずれか１つに記載の樹脂組成物。

＜１２＞さらに、充填材（Ｄ）を含む、＜１＞～＜１１＞のいずれか１つに記載の樹脂組成物。

＜１３＞前記樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対する、前記充填材（Ｄ）の含有量が、１０～１０００質量部である、＜１２＞に記載の樹脂組成物。

＜１４＞前記樹脂（Ａ）が、式（Ｔ１－１）で表される樹脂を含み、

前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）が、式（ＯＰ－１）で表されるポリフェニレンエーテル化合物を含み、

前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）の数平均分子量（Ｍｎ）が５００～３０００であり、かつ、重量平均分子量（Ｍｗ）が８００～６０００であり、

前記樹脂（Ａ）の数平均分子量（Ｍｎ）が４００～３０００であり、

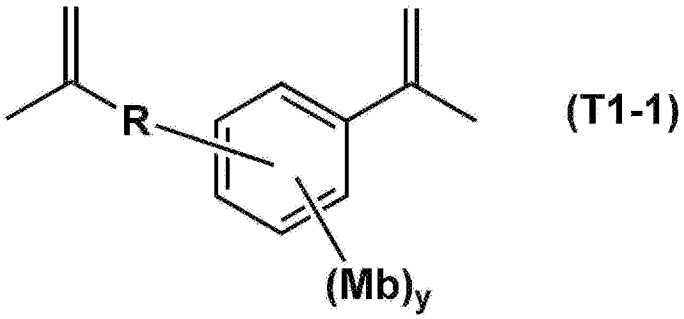
前記樹脂（Ａ）と前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニ

レンエーテル化合物（Ｂ）の合計１００質量部に対する、樹脂（Ａ）の質量比率が、１０～５０質量部であり、

重合禁止剤を実質的に含まず、

前記樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対する、前記樹脂（Ａ）および前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）の合計含有量が４０質量部以上である、＜１＞～＜１３＞のいずれか１つに記載の樹脂組成物。

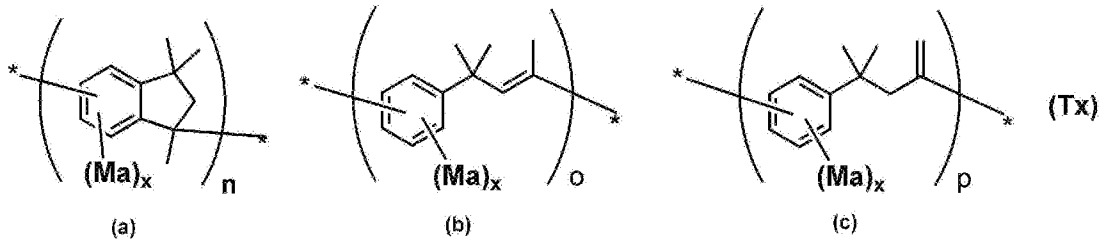
[化8]



(T1-1)

（式（Ｔ１－１）中、Ｒは、式（Ｔｘ）で表される構成単位を含む基である。Ｍｂは、それぞれ独立にハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～１２の炭化水素基を表す。ｙは０～４の整数である。）

[化9]

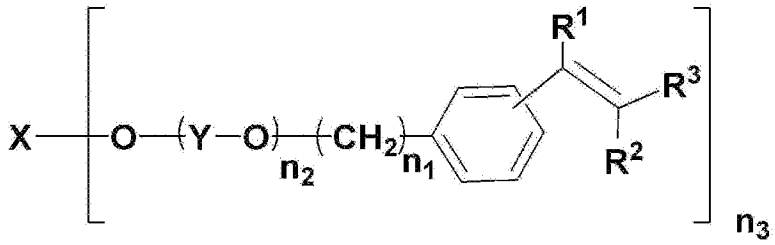


(Tx)

（式（Ｔｘ）中、ｎ、ｏ、およびｐは、平均繰り返し単位数であり、ｎは０超２０以下の数を表し、ｏおよびｐは、それぞれ独立して０～２０の数を表し、１．０≦ｎ＋ｏ＋ｐ≦２０．０である。Ｍａは、それぞれ独立にハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～１２の炭化水素基を表す。ｘは０～４の整数を表す。構成単位（ａ）、（ｂ）、（ｃ）は、それぞれ＊で構成単位（ａ）、（ｂ）、（ｃ）、または他の基と結合しており、各構成単位は

ランダムに結合していてもよい。）

[化10]



(OP-1)

（式（ＯＰ－１）中、Ｘは芳香族基を表し、－（Ｙ－Ｏ）n_2－はポリフェニレンエーテル構造を表し、R^1、R^2、および、R^3は、それぞれ独立して、水素原子、アルキル基、アルケニル基またはアルキニル基を表し、n_1は１～６の整数を表し、n_2は１～１００の整数を表し、n_3は１～４の整数を表す。）

＜１５＞＜１＞～＜１４＞のいずれか１つに記載の樹脂組成物の硬化物。

＜１６＞基材と、＜１＞～＜１４＞のいずれか１つに記載の樹脂組成物とから形成された、プリプレグ。

＜１７＞＜１６＞に記載のプリプレグから形成された少なくとも１つの層と、前記プリプレグから形成された層の片面または両面に配置された金属箔とを含む、金属箔張積層板。

＜１８＞支持体と、前記支持体の表面に配置された＜１＞～＜１４＞のいずれか１つに記載の樹脂組成物から形成された層とを含む、樹脂複合シート。

＜１９＞絶縁層と、前記絶縁層の表面に配置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、＜１＞～＜１４＞のいずれか１つに記載の樹脂組成物から形成された層を含む、プリント配線板。

＜２０＞＜１９＞に記載のプリント配線板を含む半導体装置。

発明の効果

[0007] 本発明により、成形性に優れ、かつ、誘電正接（Ｄｆ）が低い樹脂組成物、ならびに、硬化物、プリプレグ、金属箔張積層板、樹脂複合シート、プリント配線板、および、半導体装置を提供可能になった。

図面の簡単な説明

[0008] [図1]合成例１のＮＭＲチャートを示す。

発明を実施するための形態

[0009] 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。なお、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、本発明は本実施形態のみに限定されない。

なお、本明細書において「～」とはその前後に記載される数値を下限値および上限値として含む意味で使用される。

本明細書において、各種物性値および特性値は、特に述べない限り、２３℃におけるものとする。

本明細書における基（原子団）の表記において、置換および無置換を記していない表記は、置換基を有さない基（原子団）と共に置換基を有する基（原子団）をも包含する。例えば、「アルキル基」とは、置換基を有さないアルキル基（無置換アルキル基）のみならず、置換基を有するアルキル基（置換アルキル基）をも包含する。本明細書では、置換および無置換を記していない表記は、無置換の方が好ましい。

本明細書において、（メタ）アリル基は、アリルおよびメタリルの双方、または、いずれかを表し、「（メタ）アクリレート」は、アクリレートおよびメタクリレートの双方、または、いずれかを表し、「（メタ）アクリル」は、アクリルおよびメタクリルの双方、または、いずれかを表し、「（メタ）アクリロイル」は、アクリロイルおよびメタクリロイルの双方、または、いずれかを表す。

本明細書において「工程」との語は、独立した工程だけではなく、他の工程と明確に区別できない場合であってもその工程の所期の作用が達成されれば、本用語に含まれる。

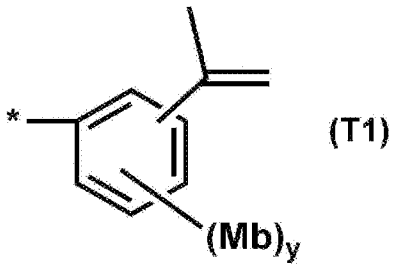
本明細書で示す規格で説明される測定方法等が年度によって異なる場合、特に述べない限り、２０２２年１月１日時点における規格に基づくものとする。

[0010] 本明細書において、樹脂固形分とは、充填材および溶剤を除く成分をいい、樹脂（Ａ）、ポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）、および、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体、ならびに、必要に応じて配合される他の化合物（Ｃ）、およびその他の樹脂添加剤成分（難燃剤等の添加剤等）を含む趣旨である。

本明細書において、比誘電率と誘電率は同じ意味として用いられる。

[0011] 本実施形態の樹脂組成物は、式（Ｔ１）で表される末端基を有し、かつ、インダン骨格を有する樹脂（Ａ）（単に「樹脂（Ａ）」と称することもある」）と、末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）（単に「ポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）」と称することもある」）と、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体とを含む。具体的には、本実施形態の樹脂組成物は、式（Ｔ１）で表される末端基を有し、かつ、インダン骨格を有する樹脂（Ａ）１００質量部に対し、末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）１０～３００質量部と、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体１０～３００質量部とを含むことを特徴とする。

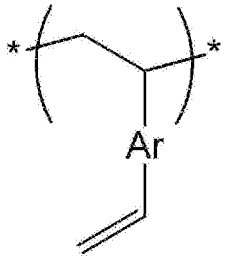
[化11]



(T1)

（式（Ｔ１）中、Ｍｂは、それぞれ独立にハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～１２の炭化水素基を表し、ｙは０～４の整数を表す。＊は他の部位との結合位置を表す。）

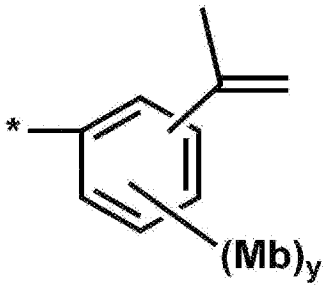
[化12]



(V)

（式（Ｖ）中、Ａｒは芳香族炭化水素連結基を表す。＊は、結合位置を表す。）

[化13]



(T1)

（式（Ｔ１）中、Ｍｂは、それぞれ独立にハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～１２の炭化水素基を表し、ｙは０～４の整数を表す。＊は他の部位との結合位置を表す。）

このような構成とすることにより、成形性に優れ、かつ、硬化物としたときに誘電正接（Ｄｆ）が低い樹脂組成物が得られる。

式（Ｔ１）で表される末端基を有し、かつ、インダン骨格を有する樹脂（Ａ）は、単独では重合しにくい。また、樹脂（Ａ）との相溶性がある化合物と組合せて用いないと、相分離を引き起こしやすい。本実施形態においては、樹脂（Ａ）に、末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）および式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体を所定の比率でブレンドすることにより、相溶性が向上し、成形性に優れた樹脂組成物が得られたと推測される。また、樹脂（Ａ）がインダン骨格を有することから、硬化物としたときに誘電正接（Ｄｆ）を低くてきる樹脂組成物が得られたと推測される。また、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合

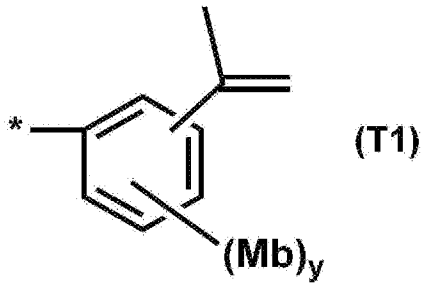
体を用いることにより、得られる硬化物の誘電正接（Ｄｆ）をより低くできたと推測している。

さらに、本実施形態においては、溶融粘度が低い樹脂組成物が得られる。溶融粘度が低いと、例えば、溶融粘度が高く成形性が劣る樹脂を配合する場合などにも、最低溶融粘度を下げることができ、成形性を改善することができる。また、本実施形態においては、耐熱性が高い樹脂組成物が得られる。

[0012] ＜式（Ｔ１）で表される末端基を有し、かつ、インダン骨格を有する樹脂（Ａ）＞

本実施形態の樹脂組成物は、式（Ｔ１）で表される末端基を有し、かつ、インダン骨格を有する樹脂（Ａ）を含む。樹脂（Ａ）を用いることにより、低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）に優れた樹脂組成物が得られる。

[化14]



(T1)

（式（Ｔ１）中、Ｍｂは、それぞれ独立にハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～１２の炭化水素基を表し、ｙは０～４の整数を表す。＊は他の部位との結合位置を表す。）

[0013] 式（Ｔ１）において、Ｍｂは、それぞれ独立にハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～１０の炭化水素基であることが好ましく、ハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～５の炭化水素基であることがより好ましく、ハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～３の炭化水素基であることがさらに好ましい。ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子が例示され、フッ素原子または塩素原子が好ましい。Ｍｂは、それぞれ独立にハロゲン原子で置換されていない炭素数１～１２の炭化水素基であることが好ましい。

前記炭化水素基は、アルキル基であることが好ましく、直鎖のアルキル基であることがより好ましい。Ｍｂとしては、メチル基、エチル基が好ましい。

[0014] ｙは０～３の整数であることが好ましく、０～２の整数であることがより好ましく、０または１であることがさらに好ましく、０であることが一層好ましい。

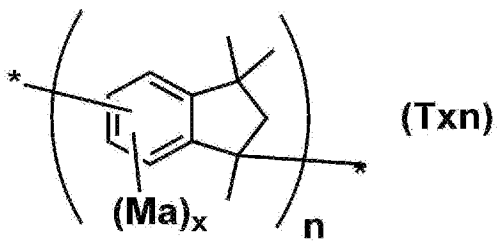
[0015] 樹脂（Ａ）は、樹脂分子それぞれについて、式（Ｔ１）で表される末端基を、すべての末端に有していてもよいし、一部の末端にのみ有していてもよい。

樹脂（Ａ）の樹脂分子における式（Ｔ１）で表される末端基の数は、２つ含まれることが好ましい。

[0016] 樹脂（Ａ）は、インダン骨格を有する。樹脂（Ａ）に含まれる樹脂分子の内、少なくとも１つの分子が、少なくとも１つのインダン骨格を有していれば特に限定されないが、樹脂（Ａ）の樹脂分子におけるインダン骨格の数は、１分子当たり１以上含むことが好ましく、１～２０含むことがより好ましい。このような構成とすることにより、本発明の効果がより効果的に発揮される傾向にある。

[0017] 樹脂（Ａ）は、下記式（Ｔｘｎ）で表される構成単位を含むことが好ましい。

[化15]



(Txn)

（式（Ｔｘｎ）中、ｎは、平均繰り返し単位数であり、０超２０以下の数を表す。Ｍａはそれぞれ独立にハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～１２の炭化水素基を表し、ｘは０～４の整数を表す。）

[0018] 式（Ｔｘｎ）において、Ｍａは、それぞれ独立に、ハロゲン原子で置換さ

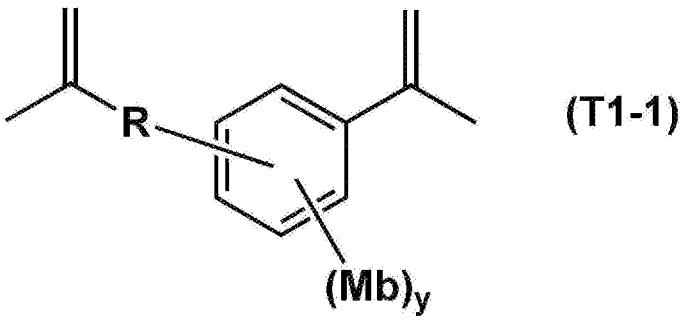
れていてもよい炭素数１～１０の炭化水素基であることが好ましく、ハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～５の炭化水素基であることがより好ましく、ハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～３の炭化水素基であることがさらに好ましい。ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子が例示され、フッ素原子または塩素原子が好ましい。Ｍａはそれぞれ独立にハロゲン原子で置換されていない炭素数１～１２の炭化水素基であることが好ましい。前記炭化水素基は、アルキル基であることが好ましく、直鎖のアルキル基であることがより好ましい。

Ｍａとしては、メチル基、エチル基が特に好ましい。

[0019] ｘは０～３の整数であることが好ましく、０～２の整数であることがより好ましく、０または１であることがさらに好ましく、０であることが一層好ましい。

[0020] 樹脂（Ａ）は、式（Ｔ１－１）で表される樹脂を含むことがより好ましく、式（Ｔ１－１－２）で表される樹脂を含むことがより好ましい。

[化16]

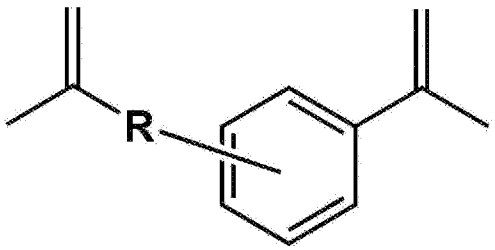


(T1-1)

（式（Ｔ１－１）中、Ｒは、式（Ｔｘ）で表される構成単位を含む基である。Ｍｂは、それぞれ独立にハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～１２の炭化水素基を表す。ｙは０～４の整数である。）

式（Ｔ１－１）中、Ｍｂおよびｙは、式（Ｔ１）におけるＭｂおよびｙと同義であり、好ましい範囲も同様である。

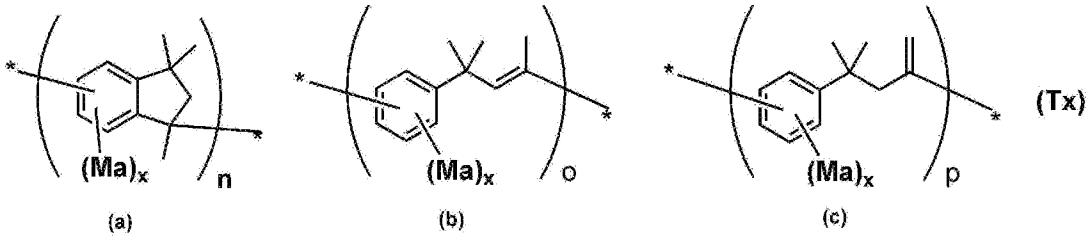
[化17]



(T1-1-2)

（式（Ｔ１－２）中、Ｒは、式（Ｔｘ）で表される構成単位を含む基である。）

[化18]



(Tx)

（式（Ｔｘ）中、ｎ、ｏ、およびｐは、平均繰り返し単位数であり、ｎは０超２０以下の数を表し、ｏおよびｐは、それぞれ独立して０～２０の数を表し、１．０≦ｎ＋ｏ＋ｐ≦２０．０である。Ｍａは、それぞれ独立にハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～１２の炭化水素基を表す。ｘは０～４の整数を表す。構成単位（ａ）、（ｂ）、（ｃ）は、それぞれ＊で構成単位（ａ）、（ｂ）、（ｃ）、または他の基と結合しており、各構成単位はランダムに結合していてもよい。）

[0021] 式（Ｔｘ）中、ｎ、ｏおよびｐは、それぞれ、樹脂中の全分子における平均繰り返し単位数を意味する。

式（Ｔｘ）中、ｎ、ｏおよびｐの総和は、１．１≦ｎ＋ｏ＋ｐであることが好ましく、１．２≦ｎ＋ｏ＋ｐであることがより好ましく、１．５≦ｎ＋ｏ＋ｐであることがさらに好ましく、２．０≦ｎ＋ｏ＋ｐであることが一層好ましく、２．５≦ｎ＋ｏ＋ｐであることがより一層好ましく、３．０≦ｎ＋ｏ＋ｐであることがさらに一層好ましく、３．３≦ｎ＋ｏ＋ｐであることが特に一層好ましい。また、式（Ｔｘ）中、ｎ、ｏおよびｐの総和はｎ＋ｏ

＋ｐ≦２０．０であることが好ましく、ｎ＋ｏ＋ｐ≦１０．０であることがより好ましく、ｎ＋ｏ＋ｐ≦８．０であることがさらに好ましく、ｎ＋ｏ＋ｐ≦７．０であることが一層好ましく、ｎ＋ｏ＋ｐ≦６．４であることがより一層好ましい。ｎ、ｏおよびｐの総和は、後述する実施例に記載の方法で算出できる。

式（Ｔｘ）中、Ｍａおよびｘは、それぞれ、式（Ｔｘｎ）におけるＭａおよびｘと同義であり、好ましい範囲も同様である。

[0022] 式（Ｔ１－１）で表される樹脂（好ましくは、式（Ｔ１－１－２）で表される樹脂）は、さらに、式（α）から算出されるパラメーターαが０．５５以上１．００以下であり、式（β）から算出されるパラメーターβが０．２０以上３．００以下であることが好ましい。パラメーターαおよびパラメーターβを上記範囲とすることにより、得られる硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）、耐熱性が優れる傾向にある。

[数1]

$$\text{パラメーター}\alpha=\frac{(2.55ppm\sim2.31ppm)}{(6.24ppm\sim5.91ppm)+(2.98ppm\sim2.55ppm)/2+(2.55ppm\sim2.31ppm)} \quad (\alpha)$$

$$\text{パラメーター}\beta=\frac{\{(5.49ppm\sim4.89ppm)-(4.89ppm\sim4.45ppm)\}\times1.5}{(2.31ppm\sim1.96ppm)-(2.55ppm\sim2.31ppm)} \quad (\beta)$$

（式（α）および式（β）における括弧内は、^{1}Ｈ－ＮＭＲにおける該当する化学シフト値間の積分値を示す。）

[0023] ここで、αは、式（Ｔ１－１）で表される樹脂（好ましくは、式（Ｔ１－１－２）で表される樹脂）中のインダン骨格を有する構成単位（式（Ｔｘ）における構成単位（ａ））の比率を示している。より具体的には、インダン骨格を有する構成単位を、上記パラメーターαの範囲を満たすように調整することにより、得られる樹脂分子の剛直性が高く、ガラス転移温度を高くできると推測される。さらに、剛直性が高い分子は剛直性が低い分子に比べて運動性が低いため、誘電緩和の際の緩和時間が長くなり、Ｄｆを低くできると推測される。αは、式（Ｔ１－１）で表される樹脂を合成する際、原料の濃度を薄くする、高極性溶媒を使用する、触媒量を増やす、反応温度を高め

る等の条件によって高めることができる。

一方、βは、式（Ｔ１－１）で表される樹脂（好ましくは、式（Ｔ１－１－２）で表される樹脂）中の末端の二重結合比率を規定している。より具体的には、例えば、後述する他の化合物（Ｃ）が有する官能基との架橋点が多くなり、熱硬化した際にネットワークを形成しやすくなり、ガラス転移温度が高く、Ｄｆが低い硬化物が得られると推測される。βは、式（Ｔ１－１）で表される樹脂を合成する際、触媒量を少なくする、反応温度を低くする、低極性溶媒を使用する等の条件によって高めることができる。

式（Ｔ１－１）で表される樹脂（好ましくは、式（Ｔ１－１－２）で表される樹脂）を合成する際に、上記記載のパラメーターα、βを高める方法を用いて、式（Ｔ１－１）で表される樹脂（好ましくは、式（Ｔ１－１－２）で表される樹脂）のパラメーターα、βを調整することができる。もちろん、上記以外の方法によってパラメーターα、βを調整してもよい。

[0024] パラメーターαは、０．５７以上であることが好ましく、０．５９以上であることがさらに好ましく、０．６０以上であることが一層好ましく、０．６２以上であることがより一層好ましく、０．６５以上、０．７０以上、０．７５以上、０．８０以上であってもよい。前記下限値以上とすることにより、得られる硬化物の耐熱性がより向上する傾向にある。パラメーターαは、実質的には、低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）および耐熱性が優れる傾向にあることから、パラメーターαは大きい方がよいが、０．９５以下、０．９０以下、０．８５以下、０．８２以下、０．８０以下、０．７７以下、０．７５以下、０．７４以下であってもよい。

パラメーターβは、０．２５以上であることが好ましく、０．３０以上であることがより好ましく、０．３５以上であることがさらに好ましく、０．４０以上であることが一層好ましく、０．４３以上であることがより一層好ましく、０．５０以上であることがさらに一層好ましく、０．６０以上、０．６５以上、０．７０以上、０．７７以上、０．８０以上、０．９０以上、０．９５以上であってもよい。前記下限値以上とすることにより、得られる

硬化物の耐熱性が向上し、かつ、Ｄｆが低くなる傾向にある。パラメーターβは、２．５０以下であることが好ましく、２．００以下であることがより好ましく、１．５０以下であることがさらに好ましく、１．３０以下であることが一層好ましく、１．２０以下であることがより一層好ましく、１．１０以下であることがさらに一層好ましく、さらには、１．００以下、０．９５以下、０．９０以下、０．８５以下、０．８３以下、０．８０以下であってもよい。パラメーターβを前記上限値以下とすることにより、得られる硬化物の耐熱性が向上し、かつＤｆが低くなる傾向にある。

[0025] 樹脂（Ａ）のＧＰＣ（ゲルパーミエーションクロマトグラフィ）法によるポリスチレン換算の数平均分子量（Ｍｎ）（詳細は後述する実施例に記載の方法に従う）は、４００以上であることが好ましく、５００以上であることがより好ましく、５５０以上であることがさらに好ましく、６００以上であることが一層好ましく、６５０以上であることがより一層好ましい。数平均分子量を前記下限値以上とすることにより、得られる硬化物の耐熱性が向上し、かつＤｆが低くなる傾向にある。また、樹脂（Ａ）のＧＰＣ（ゲルパーミエーションクロマトグラフィ）法によるポリスチレン換算の数平均分子量（Ｍｎ）の上限値は、３０００以下であることが好ましく、２５００以下であることがより好ましく、２０００以下であることがさらに好ましく、１５００以下であることが一層好ましく、１２５０以下であることがより一層好ましく、用途等に応じて、１０００以下、８００以下であってもよい。数平均分子量を前記上限値以下とすることにより、得られる硬化物の耐熱性が向上し、かつ、比誘電率（Ｄｋ）および誘電正接（Ｄｆ）が低くなる傾向にある。

また、樹脂（Ａ）のＧＰＣによるポリスチレン換算の重量平均分子量（Ｍｗ）（詳細は後述する実施例に記載の方法に従う）は、５００以上であることが好ましく、８００以上であることがより好ましく、９００以上であることがさらに好ましく、１０００以上であることが一層好ましい。重量平均分子量を前記下限値以上とすることにより、得られる硬化物の耐熱性が向上し

、かつ、Ｄｆが低くなる傾向にある。樹脂（Ａ）のＧＰＣによるポリスチレン換算の重量平均分子量（Ｍｗ）（詳細は後述する実施例に記載の方法に従う）の上限値は、６０００以下であることが好ましく、５０００以下であることがより好ましく、４０００以下であることがさらに好ましく、３０００以下であることが一層好ましく、２８００以下であることがより好ましく、用途等に応じて、２５００以下、２０００以下、１５００以下であってもよい。重量平均分子量を前記上限値以下とすることにより、得られる硬化物の耐熱性が向上し、かつ、比誘電率（Ｄｋ）および誘電正接（Ｄｆ）が低くなる傾向にある。

[0026] 樹脂（Ａ）は、重量平均分子量と数平均分子量の比である、Ｍｗ／Ｍｎが、１．１～３．０であることが好ましい。樹脂（Ａ）のＭｗ／Ｍｎは、１．２以上であることがより好ましく、１．３以上であることがさらに好ましく、１．４以上であることが一層好ましく、１．５以上であることがより一層好ましく、１．６以上であることがさらに一層好ましい。また、樹脂（Ａ）のＭｗ／Ｍｎは、２．５以下であることがより好ましく、２．４以下であることがさらに好ましく、２．３以下であってもよく、２．０以下であってもよく、１．８以下であってもよい。

重量平均分子量および数平均分子量は後述する実施例に記載の方法に従って測定される。

[0027] 本実施形態の樹脂組成物における樹脂（Ａ）の含有量は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、５質量部以上であることが好ましく、８質量部以上であることがより好ましく、１０質量部以上であってもよく、用途等に応じて、１５質量部以上、２０質量部以上、２５質量部以上であってもよい。樹脂（Ａ）の含有量を前記下限値以上とすることにより、得られる硬化物のＤｆを低くできる傾向にある。また、樹脂（Ａ）の含有量の上限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、７０質量部以下であることが好ましく、５５質量部以下であることがさらに好ましく、５０質量部以下であることが一層好ましく、４５質量部以下であることがより一層好まし

く、４０質量部以下であることがさらに一層好ましく、３５質量部以下であることが特に一層好ましい。樹脂（Ａ）の含有量を前記上限値以下とすることにより、樹脂組成物の成形性、得られる硬化物の耐熱性が向上する傾向にある。

本実施形態の樹脂組成物は、樹脂（Ａ）を１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

[0028] 本実施形態における樹脂（Ａ）の製造方法は特に限定されるものではなく、公知の製造方法で得られたものを使用することができる。また、樹脂（Ａ）を合成する際の、原料、反応温度、触媒種、触媒量、反応溶媒、原料濃度等は、特に限定されるものではなく、上述した所望の物性に応じて、適宜選択あるいは制御することができる。

[0029] 本実施形態において、樹脂（Ａ）を合成する際の原料の一例として、ｍ－ビス（α－ヒドロキシイソプロピル）ベンゼン、ｐ－ビス（α－ヒドロキシイソプロピル）ベンゼン、１，３-ジイソプロペニルベンゼン、および、１，４-ジイソプロペニルベンゼンなどを使用することができる。

[0030] 本実施形態における、樹脂（Ａ）を合成するときの反応温度は、４０℃以上であることが好ましく、５０℃以上であることがより好ましく、６０℃以上であることがさらに好ましく、７０℃以上、８０℃以上、９０℃以上、１００℃以上、１１０℃以上、１２０℃以上であってもよい。前記下限値以上とすることにより、反応速度の向上およびインダン骨格（式（Ｔｘ）における構成単位（ａ））比率が向上する傾向にあり、好ましい。また、反応温度は、１８０℃以下であることが好ましく、１５０℃以下であることがより好ましく、１４０℃以下であることがさらに好ましい。前記上限値以下とすることにより、副生成物の生成を効果的に抑制できる傾向にある。

また、反応の開始から終了まで同じ反応温度である必要はなく、温度を変化させてもよい。この場合、全行程の反応温度の平均温度が上記範囲であることが好ましい。

[0031] 本実施形態における、樹脂（Ａ）を合成するときに使用する触媒は、特に定めるものでは無いが、酸触媒が例示される。酸触媒としては、塩酸、硫酸、リン酸のような無機酸、シュウ酸、ベンゼンスルホン酸、トルエンスルホン酸、メタンスルホン酸、フルオロメタンスルホン酸等の有機酸、BF_3エーテル錯体、BF_3フェノール錯体、塩化アルミニウム、塩化亜鉛、塩化インジウムなどのルイス酸、活性白土、酸性白土、シリカアルミナ、ゼオライト等の固体酸、ヘテロポリ塩酸、強酸性イオン交換樹脂等を用いることができる。

触媒を用いる場合、その量は、樹脂（Ａ）の上記原料１００質量部に対し、０．０１～２０．０質量部であることが挙げられる。

触媒は、通常、１種単独であるが、２種以上を併用してもよい。併用する場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

[0032] 本実施形態において、樹脂（Ａ）を合成するときの反応溶媒は、特に定めるものでは無いが、トルエン、ベンゼン、クロロベンゼン、キシレン等の芳香族炭化水素系溶剤、メチレンクロライド、クロロホルム等のハロゲン化炭化水素系溶剤、ヘキサン、ヘプタン等の脂肪族炭化水素系溶剤、酢酸エチル、酢酸プロピル等のエステル系溶剤、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等のアミド系溶剤、アルコール溶剤あるいはケトン溶剤などと併用することができ、水を添加することもできる。アルコール溶剤としては、メタノール、エタノール、ブタノール、プロパノール、メチルプロピレンジグリコール、ジエチレングリコールエチルエーテル、ブチルプロピレングリコール、プロピルプロピレングリコール等が挙げられ、ケトン溶剤としては、アセトン、メチルエチルケトン、ジエチルケトン、メチルブチルケトン、メチルイソブチルケトン等が挙げられ、その他には　テトラヒドロフラン、ジオキサン等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

本実施形態における反応溶媒の一例は、芳香族炭化水素系溶剤を含むことである。

[0033] 本実施形態における、樹脂（Ａ）を合成するときの上述の原料の濃度は、

５％以上であることが好ましく、８％以上であることがより好ましく、１０％以上であることが好ましく、１２％以上、１５％以上、１７％以上、２０％以上、２２％以上、２５％以上であってもよい。前記下限値以上とすることにより、反応速度の向上およびインダン骨格（式（Ｔｘ）における構成単位（ａ））比率が向上する傾向にあり、好ましい。また、上述の原料の濃度は、４９％以下であることが好ましく、４０％以下であることがより好ましい。前記上限値以下とすることにより、副生成物の生成を効果的に抑制できる傾向にある。

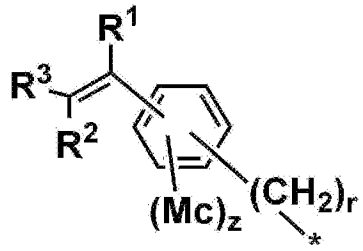
また、反応の開始から終了まで同じ濃度である必要はなく、濃度を変化させてもよい。

[0034] ＜末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）＞

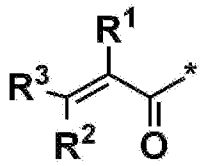
本実施形態の樹脂組成物は、末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）を含む。本実施形態において、ポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）は、炭素－炭素不飽和二重結合を２以上含むポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ２）を含むことが好ましい。

末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）は、末端に、ビニルベンジル基等の式（Ｒｘ－１）で表される基、（メタ）アクリル基等の式（Ｒｘ－２）で表される基、マレイミド基からなる群から選択される基を有するポリフェニレンエーテル化合物であることが好ましく、ビニルベンジル基等の式（Ｒｘ－１）で表される基および／または（メタ）アクリル基等の式（Ｒｘ－２）で表される基を有するポリフェニレンエーテル化合物であることがより好ましく、末端に、ビニルベンジル基等の式（Ｒｘ－１）で表される基および／または（メタ）アクリル基等の式（Ｒｘ－２）で表される基を２以上含むポリフェニレンエーテル化合物であることがさらに好ましい。

[化19]



(Rx-1)



(Rx-2)

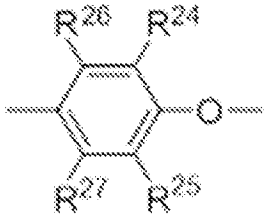
（式（Ｒｘ－１）および式（Ｒｘ－２）中、Ｒ[1]、Ｒ[2]、および、Ｒ[3]は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、またはアルキニル基を表す。＊は、酸素原子との結合部位である。Ｍｃは、それぞれ独立に炭素数１～１２の炭化水素基を表す。ｚは０～４の整数を表す。ｒは１～６の整数を表す。）

[0035] これらのポリフェニレンエーテル化合物を用いることにより、プリント配線板等の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）と低吸水性等をより効果的に向上させることができる傾向がある。本実施形態では、特に、末端に、ビニルベンジル基を有するポリフェニレンエーテル化合物であることが好ましい。ビニルベンジル基を有することにより、樹脂（Ａ）との相溶性が顕著に向上する傾向にある。

以下、これらの詳細を説明する。

[0036] 末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）（好ましくは、炭素－炭素不飽和二重結合を２以上含むポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ２））は、下記式（Ｘ１）で表されるフェニレンエーテル骨格を有する化合物が例示される。

[0037] [化20]



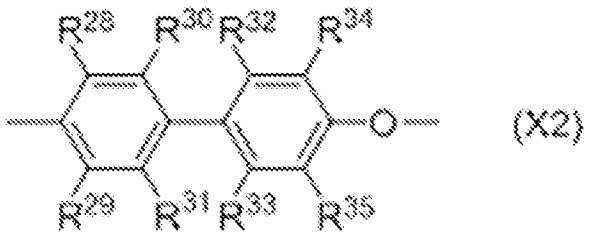
(X1)

（式（Ｘ１）中、Ｒ[24]、Ｒ[25]、Ｒ[26]、および、Ｒ[27]は、同一または異なって

もよく、炭素数６以下のアルキル基、アリール基、ハロゲン原子、または、水素原子を表す。）

[0038] 末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）（好ましくは、炭素－炭素不飽和二重結合を２以上含むポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ２））は、式（Ｘ２）：

[化21]

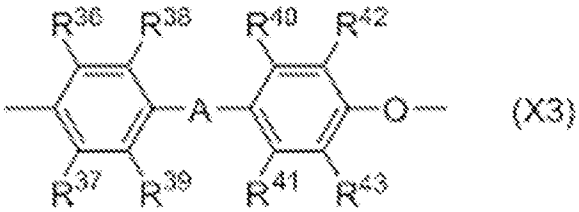


(X2)

（式（Ｘ２）中、R^{28}、R^{29}、R^{30}、R^{34}、および、R^{35}は、同一または異なってもよく、炭素数６以下のアルキル基またはフェニル基を表す。R^{31}、R^{32}、および、R^{33}は、同一または異なってもよく、水素原子、炭素数６以下のアルキル基またはフェニル基である。）

で表される繰り返し単位、および／または、式（Ｘ３）：

[化22]



(X3)

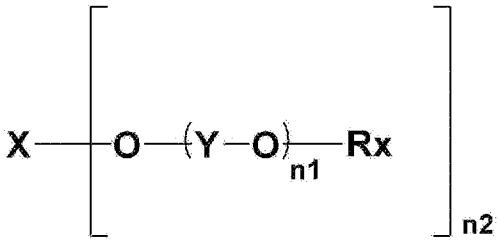
（式（Ｘ３）中、R^{36}、R^{37}、R^{38}、R^{39}、R^{40}、R^{41}、R^{42}、および、R^{43}は、同一または異なってもよく、水素原子、炭素数６以下のアルキル基またはフェニル基である。－Ａ－は、炭素数２０以下の直鎖、分岐または環状の２価の炭化水素基である。）で表される繰り返し単位をさらに含んでもよい。

[0039] 末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）（好ましくは、炭素－炭素不飽和二重結合を２以上含むポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ２））は、末端の一部または全部を、エチレン性不飽

和基で官能基化された変性ポリフェニレンエーテル化合物（以下、「変性ポリフェニレンエーテル化合物（ｇ）」ということがある）であることが好ましく、末端に、ビニルベンジル基等の式（Ｒｘ－１）で表される基、（メタ）アクリル基等の式（Ｒｘ－２）で表される基、マレイミド基からなる群から選択される基を２以上有する変性ポリフェニレンエーテル化合物であることがより好ましく、ビニルベンジル基等の式（Ｒｘ－１）で表される基および／または（メタ）アクリル基等の式（Ｒｘ－２）で表される基であることがさらに好ましい。このような変性ポリフェニレンエーテル化合物（ｇ）を採用することにより、樹脂組成物の硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）をより小さくし、かつ、低吸水性、金属箔ピール強度を高めることが可能になる。これらは１種または２種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0040] 変性ポリフェニレンエーテル化合物（ｇ）は、式（ＯＰ）で表されるポリフェニレンエーテル化合物が挙げられる。

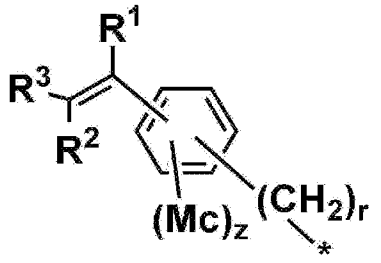
[化23]



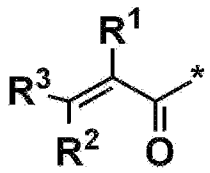
(OP)

（式（ＯＰ）中、Ｘは芳香族基を表し、－（Ｙ－Ｏ）$_{n1}$－はポリフェニレンエーテル構造を表し、ｎ１は１～１００の整数を表し、ｎ２は１～４の整数を表す。Ｒｘは、式（Ｒｘ－１）または式（Ｒｘ－２）で表される基である。）

[化24]



(Rx-1)



(Rx-2)

（式（Ｒｘ－１）および式（Ｒｘ－２）中、R^1、R^2、および、R^3は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、またはアルキニル基を表す。＊は、酸素原子との結合部位である。Ｍｃは、それぞれ独立に炭素数１～１２の炭化水素基を表す。ｚは０～４の整数を表す。ｒは１～６の整数を表す。）

[0041] n_1および／またはn_2が２以上の整数の場合、n_1個の構成単位（Ｙ－Ｏ）および／またはn_2個の構成単位は、それぞれ同一であっても異なっていてもよい。n_2は、２以上が好ましく、より好ましくは２である。

[0042] 式（Ｒｘ－１）および式（Ｒｘ－２）中、R^1、R^2、および、R^3は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、またはアルキニル基を表す。

R^1は、水素原子またはアルキル基が好ましく、水素原子またはメチル基がより好ましく、水素原子がさらに好ましい。

R^2およびR^3は、それぞれ独立に、水素原子またはアルキル基が好ましく、水素原子またはメチル基がより好ましく、水素原子がさらに好ましい。

R^1、R^2、および、R^3としての、アルキル基、アルケニル基、またはアルキニル基の炭素数は、それぞれ、５以下であることが好ましく、３以下であることがより好ましい。

[0043] 式（Ｒｘ－１）における、ｒは１～６の整数を表し、１～５の整数であることが好ましく、１～４の整数であることがより好ましく、１～３の整数であることがさらに好ましく、１または２であることが一層好ましく、１であることがより一層好ましい。

[0044] 式（Ｒｘ－１）における、Ｍｃは、それぞれ独立に、炭素数１～１２の炭化水素基を表し、炭素数１～１０の炭化水素基であることが好ましく、炭素数１～１０の直鎖または分岐のアルキル基であることがより好ましく、メチル基、エチル基、イソプロピル基、イソブチル基、ｔ－ブチル基、ペンチル基、オクチル基、またはノニル基であることがさらに好ましく、メチル基、エチル基、イソプロピル基、イソブチル基、またはｔ－ブチル基であること

が一層好ましい。

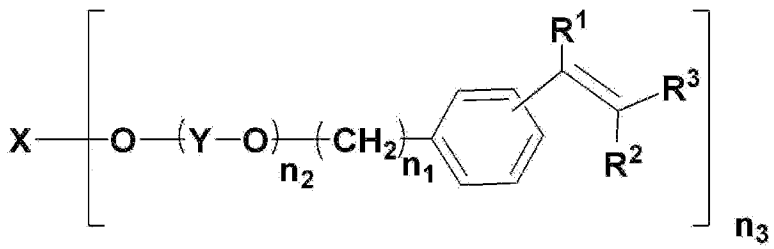
式（Ｒｘ－１）における、ｚは０～４の整数を表し、０～３の整数が好ましく、０～２の整数がより好ましく、０または１がさらに好ましく、０が一層好ましい。

[0045] 式（Ｒｘ－１）で表される基の具体例は、ビニルベンジル基であり、式（Ｒｘ－２）で表される基の具体例は、（メタ）アクリロイル基である。

Ｒｘは、式（Ｒｘ－１）で表される基であることが好ましい。

[0046] 変性ポリフェニレンエーテル化合物（ｇ）としては、式（ＯＰ－１）で表されるポリフェニレンエーテル化合物が挙げられる。

[化25]



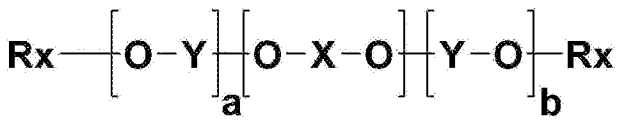
(OP-1)

（式（ＯＰ－１）中、Ｘは芳香族基を表し、－（Ｙ－Ｏ）n_2－はポリフェニレンエーテル構造を表し、R^1、R^2、および、R^3は、それぞれ独立して、水素原子、アルキル基、アルケニル基またはアルキニル基を表し、n_1は１～６の整数を表し、n_2は１～１００の整数を表し、n_3は１～４の整数を表す。）

n_2および／またはn_3が２以上の整数の場合、n_2個の構成単位（Ｙ－Ｏ）および／またはn_3個の構成単位は、それぞれ同一であっても異なっていてもよい。n_3は、２以上が好ましく、より好ましくは２である。

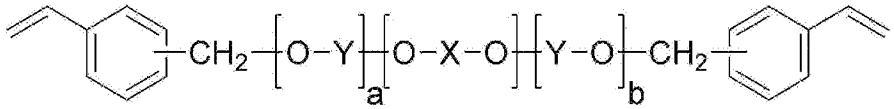
[0047] 本実施形態における変性ポリフェニレンエーテル化合物（ｇ）は、また、式（ＯＰ－２）で表される化合物であることが好ましく、式（ＯＰ－２－２）で表される化合物であることがより好ましい。

[化26]



(OP-2)

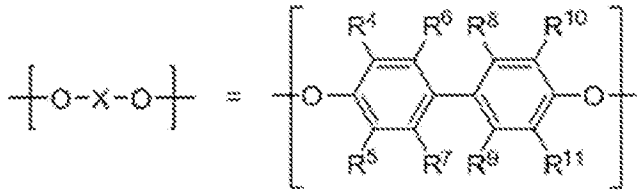
[化27]



(OP-2-2)

ここで、－（Ｏ－Ｘ－Ｏ）－は、式（ＯＰ－３）：

[化28]

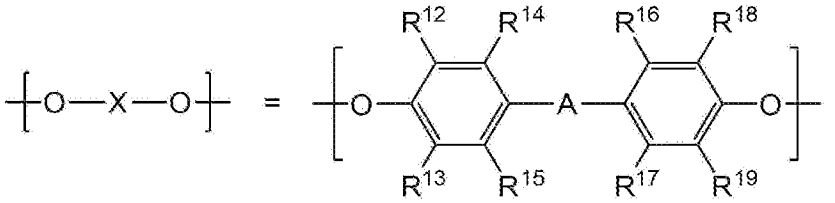


(OP-3)

（式（ＯＰ－３）中、Ｒ[4]、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[10]、および、Ｒ[11]は、同一または異なってもよく、炭素数６以下のアルキル基またはフェニル基である。Ｒ[7]、Ｒ[8]、および、Ｒ[9]は、同一または異なってもよく、水素原子、炭素数６以下のアルキル基またはフェニル基である。）

および／または式（ＯＰ－４）：

[化29]

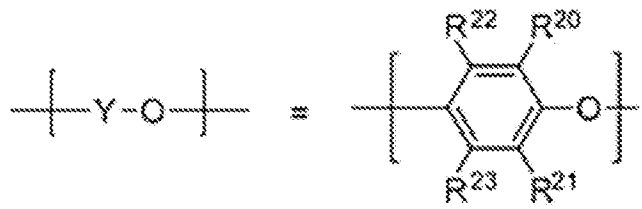


(OP-4)

（式（ＯＰ－４）中、Ｒ[12]、Ｒ[13]、Ｒ[14]、Ｒ[15]、Ｒ[16]、Ｒ[17]、Ｒ[18]、および、Ｒ[19]は、同一または異なってもよく、水素原子、炭素数６以下のアルキル基またはフェニル基である。－Ａ－は、炭素数２０以下の直鎖、分岐または環状の２価の炭化水素基である。）で表されることが好ましい。

[0048] また、－（Ｙ－Ｏ）－は、式（ＯＰ－５）：

[化30]

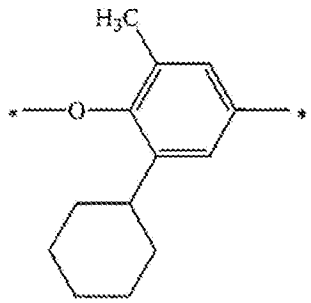


(OP-5)

（式（ＯＰ－５）中、Ｒ^{20}、Ｒ^{21}は、同一または異なってもよく、炭素数６以下のアルキル基またはフェニル基である。Ｒ^{22}、Ｒ^{23}は、同一または異なってもよく、水素原子、炭素数６以下のアルキル基またはフェニル基である。）で表されることが好ましい。特にＲ^{20}およびＲ^{21}は、それぞれ独立に、メチル基および／またはシクロヘキシル基を１つ以上有する基とすることで、得られる樹脂分子の剛直性が高くなり、剛直性が高い分子は剛直性が低い分子に比べて運動性が低いため、誘電緩和の際の緩和時間が長くなり、低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）が向上するために好ましい。

式（ＯＰ－５）の一例は、下記構造である。

[化31]



上記構造を有するポリフェニレン化合物については、特開２０１９－１９４３１２号公報の記載を参酌でき、この内容は本明細書に組み込まれる。

[0049] 式（ＯＰ－２）において、ａおよびｂは、それぞれ独立に、０～１００の整数を表し、ａおよびｂの少なくとも一方は、１～１００の整数である。ａおよびｂは、それぞれ独立に、０～５０の整数であることが好ましく、１～３０の整数であることがより好ましく、１～１０の整数であることが好ましい。ａおよび／またはｂが２以上の整数の場合、２以上の－（Ｙ－Ｏ）－は、それぞれ独立に、１種の構造が配列したものであってよく、２種以上の構造がブロックまたはランダムに配列していてもよい。

また、式（ＯＰ－２）で表される化合物を複数種含む場合、ａの平均値は１＜ａ＜１０であることが好ましく、ｂの平均値は１＜ｂ＜１０であることが好ましい。

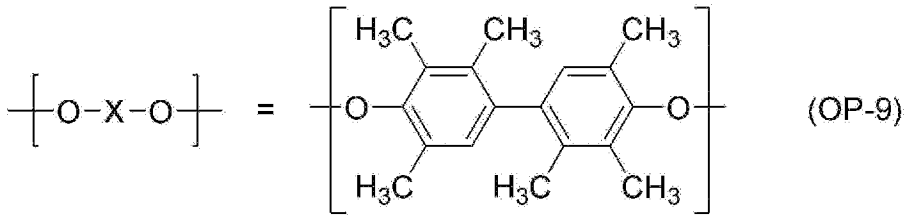
[0050] 式（ＯＰ－４）における－Ａ－としては、例えば、メチレン基、エチリデ

ン基、１－メチルエチリデン基、１，１－プロピリデン基、１，４－フェニレンビス（１－メチルエチリデン）基、１，３－フェニレンビス（１－メチルエチリデン）基、シクロヘキシリデン基、フェニルメチレン基、ナフチルメチレン基、１－フェニルエチリデン基等の２価の有機基が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

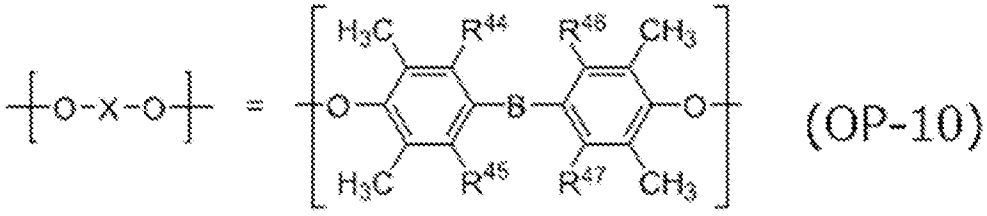
[0051] Ｒｘは、式（ＯＰ）におけるＲｘと同義であり、好ましい範囲も同様である。

[0052] 上記式（ＯＰ－２）で表される化合物のなかでは、R^4、R^5、R^6、R^{10}、R^{11}、R^{20}、および、R^{21}が炭素数３以下のアルキル基であり、R^7、R^8、R^9、R^{12}、R^{13}、R^{14}、R^{15}、R^{16}、R^{17}、R^{18}、R^{19}、R^{22}、および、R^{23}が水素原子または炭素数３以下のアルキル基であるポリフェニレンエーテル化合物が好ましく、特に式（ＯＰ－３）または式（ＯＰ－４）で表される－（Ｏ－Ｘ－Ｏ）－が、式（ＯＰ－９）、式（ＯＰ－１０）、および／または式（ＯＰ－１１）であり、式（ＯＰ－５）で表される－（Ｙ－Ｏ）－が、式（ＯＰ－１２）または式（ＯＰ－１３）であることが好ましい。ａおよび／またはｂが２以上の整数の場合、２以上の－（Ｙ－Ｏ）－は、それぞれ独立に、式（ＯＰ－１２）および／または式（ＯＰ－１３）が２以上配列した構造であるか、あるいは式（ＯＰ－１２）と式（ＯＰ－１３）がブロックまたはランダムに配列した構造であってよい。

[0053] [化32]



[化33]

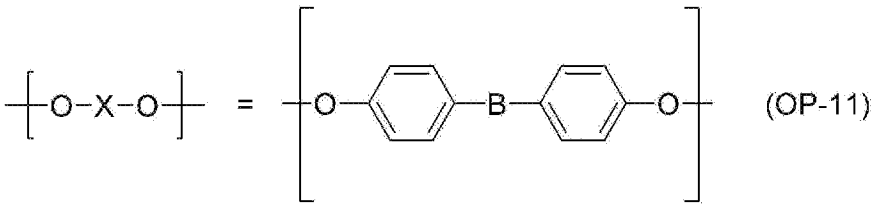


(OP-10)

（式（ＯＰ－１０）中、Ｒ^{44}、Ｒ^{45}、Ｒ^{46}、および、Ｒ^{47}は、同一または異なってもよく、水素原子またはメチル基である。－Ｂ－は、炭素数２０以下の直鎖、分岐または環状の２価の炭化水素基である。）

－Ｂ－は、式（ＯＰ－４）における－Ａ－の具体例と同じものが具体例として挙げられる。

[化34]

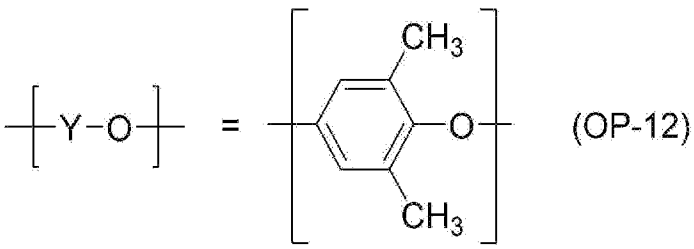


(OP-11)

（式（ＯＰ－１１）中、－Ｂ－は、炭素数２０以下の直鎖、分岐または環状の２価の炭化水素基である。）

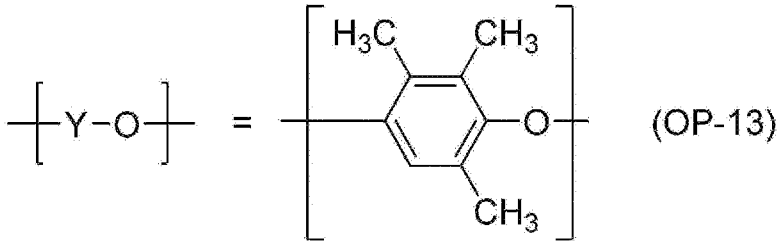
－Ｂ－は、式（ＯＰ－４）における－Ａ－の具体例と同じものが具体例として挙げられる。

[化35]



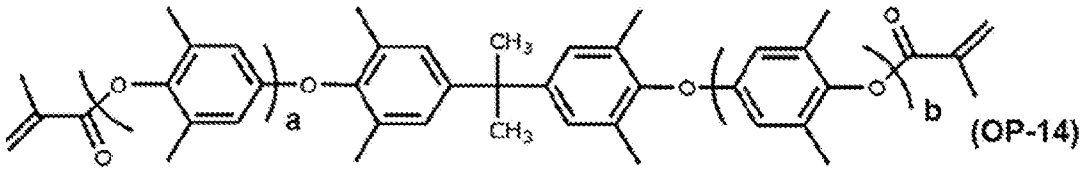
(OP-12)

[化36]



[0054] 本実施形態で用いる変性ポリフェニレンエーテル化合物（ｇ）は、式（ＯＰ－１４）で表される化合物および／または式（ＯＰ－１５）で表される化合物であることがさらに好ましい。

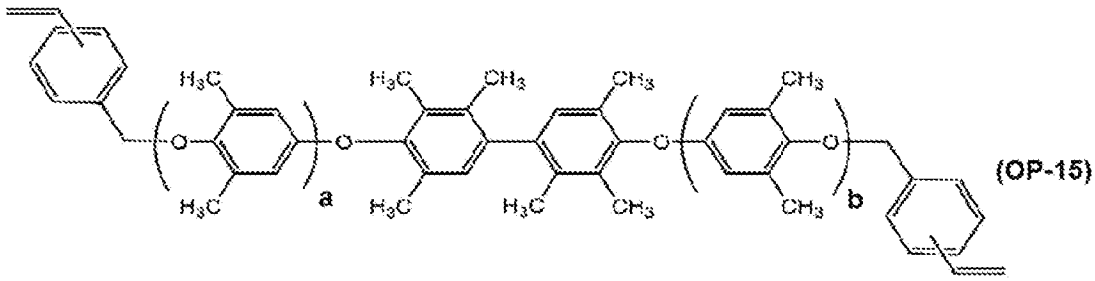
[化37]



（式（ＯＰ－１４）中、ａおよびｂは、それぞれ独立に、０～１００の整数を表し、ａおよびｂの少なくとも一方は、１～１００の整数である。）

式（ＯＰ－１４）におけるａおよびｂは、それぞれ独立に、式（ＯＰ－２）におけるａおよびｂと同義であり、好ましい範囲も同様である。

[化38]



（式（ＯＰ－１５）中、ａおよびｂは、それぞれ独立に、０～１００の整数を表し、ａおよびｂの少なくとも一方は、１～１００の整数である。）

式（ＯＰ－１５）におけるａおよびｂは、それぞれ独立に、式（ＯＰ－２）におけるａおよびｂと同義であり、好ましい範囲も同様である。

[0055] 末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物

（Ｂ）（好ましくは、炭素－炭素不飽和二重結合を２以上含むポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ２）であり、より好ましくは、変性ポリフェニレンエーテル化合物（ｇ））のＧＰＣ（ゲルパーミエーションクロマトグラフィ）法によるポリスチレン換算の数平均分子量（Ｍｎ）（詳細は後述する実施例に記載の方法に従う）は、例えば、５００以上、さらには、８００以上であることが好ましく、また、３，０００以下であることが好ましい。数平均分子量が５００以上であることにより、本実施形態の樹脂組成物を塗膜状にする際にべたつきがより一層抑制される傾向にある。数平均分子量が３，０００以下であることにより、溶剤への溶解性がより一層向上する傾向にある。

また、末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）（好ましくは、炭素－炭素不飽和二重結合を２以上含むポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ２）であり、より好ましくは、変性ポリフェニレンエーテル化合物（ｇ））のＧＰＣによるポリスチレン換算の重量平均分子量（Ｍｗ）（詳細は後述する実施例に記載の方法に従う）は、８００以上６０００以下であることが好ましく、８００以上５０００以下であることがより好ましい。前記下限値以上とすることにより、樹脂組成物の硬化物の比誘電率（Ｄｋ）および誘電正接（Ｄｆ）がより低くなる傾向にあり、上記上限値以下とすることにより、後述するワニス等を作製する際の溶剤への樹脂組成物の溶解性、低粘度性および成形性がより向上する傾向にある。

さらに、変性ポリフェニレンエーテル化合物（ｇ）である場合の、末端の炭素－炭素不飽和二重結合当量は、炭素－炭素不飽和二重結合１つあたり４００～５０００ｇであることが好ましく、４００～２５００ｇであることがより好ましい。前記下限値以上とすることにより、樹脂組成物の硬化物の比誘電率（Ｄｋ）および誘電正接（Ｄｆ）がより低くなる傾向にある。上記上限値以下とすることにより、溶剤への樹脂組成物の溶解性、低粘度性および成形性がより向上する傾向にある。

[0056] 本実施形態の樹脂組成物における末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）（好ましくは、炭素－炭素不飽和二

重結合を２以上含むポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ２））の含有量の下限値は、樹脂（Ａ）１００質量部に対し、１０質量部以上であり、５０質量部以上であることが好ましく、１００質量部以上であることがさらに好ましく、１５０質量部以上であることが一層好ましく、１８０質量部以上であってもよい。前記下限値以上とすることにより、樹脂組成物の成形性、得られる硬化物の低吸水性、低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）がより向上する傾向にある。また、末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）（好ましくは、炭素－炭素不飽和二重結合を２以上含むポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ２））の含有量の上限値は、樹脂（Ａ）１００質量部に対し、３００質量部以下であり、２８０質量部以下であることが好ましく、質量部以下であることがより好ましく、２５０質量部以下であってもよく、さらには２２０質量部以下であってもよい。前記上限値以下とすることにより、得られる硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）、耐熱性、耐薬品性がより向上する傾向にある。

[0057] 本実施形態の樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対する、樹脂（Ａ）およびポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）の合計含有量は４０質量部以上であることが好ましく、４５質量部以上であることがさらに好ましく、５０質量部以上であることが一層好ましく、５５質量部以上であってもよい。樹脂（Ａ）およびポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）の合計含有量を前記下限値以上とすることにより、得られる硬化物の低吸水性、低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）がより向上する傾向にある。また、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対する、樹脂（Ａ）およびポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）の合計含有量は、８０質量部以下であることが好ましい。樹脂（Ａ）およびポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）の合計含有量を前記上限値以下とすることにより、樹脂組成物の成形性、得られる硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）、耐熱性、耐薬品性等のバランスに優れる傾向にある。

[0058] 本実施形態においては、樹脂（Ａ）とポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ

）の合計１００質量部に対する、樹脂（Ａ）の質量比率が、１０質量部以上であることが好ましく、１５質量部以上であることがより好ましく、２０質量部以上であることがさらに好ましく、２５質量部以上であることが一層好ましく、３０質量部以上であることがより一層好ましい。前記質量比率を上記下限値以上とすることにより、得られる硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）がより向上する傾向にある。また、樹脂（Ａ）とポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）の合計１００質量部に対する、樹脂（Ａ）の質量比率が、５０質量部以下であることが好ましく、４５質量部以下であることがより好ましく、４０質量部以下であることがさらに好ましく、３８質量部以下であることが一層好ましい。前記質量比率を上記上限値以下とすることにより、樹脂組成物の成形性、得られる硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）がより向上する傾向にある。

[0059] 本実施形態の樹脂組成物における末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）（好ましくは、炭素－炭素不飽和二重結合を２以上含むポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ２））の含有量の下限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、３０質量部以上であることが好ましく、３５質量部以上であることがさらに好ましい。前記下限値以上とすることにより、得られる硬化物の低吸水性および低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）がより向上する傾向にある。また、末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）（好ましくは、炭素－炭素不飽和二重結合を２以上含むポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ２））の含有量の上限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、７５質量部以下であることが好ましく、７０質量部以下であることがより好ましく、６５質量部以下であってもよく、さらには６０質量部以下であってもよい。前記上限値以下とすることにより、得られる硬化物の耐熱性、耐薬品性がより向上する傾向にある。

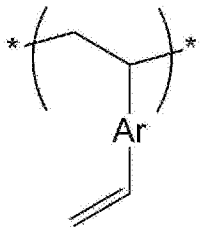
本実施形態における樹脂組成物は、末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）を１種のみ含んでいてもよいし、

２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

[0060] ＜式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体＞

本実施形態の樹脂組成物は、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体を含む。式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体を含むことにより、低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）に優れた硬化物を提供可能な樹脂組成物が得られる。

[化39]



(V)

（式（Ｖ）中、Ａｒは芳香族炭化水素連結基を表す。＊は、結合位置を表す。）

[0061] 芳香族炭化水素連結基とは、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素のみからなる基であってもよいし、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素と他の連結基の組み合わせからなる基であってもよく、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素のみからなる基であることが好ましい。なお、芳香族炭化水素が有していてもよい置換基は、置換基Ｚ（例えば、炭素数１～６のアルキル基、炭素数２～６のアルケニル基、炭素数２～６のアルキニル基、炭素数１～６のアルコキシ基、ヒドロキシ基、アミノ基、カルボキシ基、ハロゲン原子等）が挙げられる。また、上記芳香族炭化水素は、置換基を有さない方が好ましい。

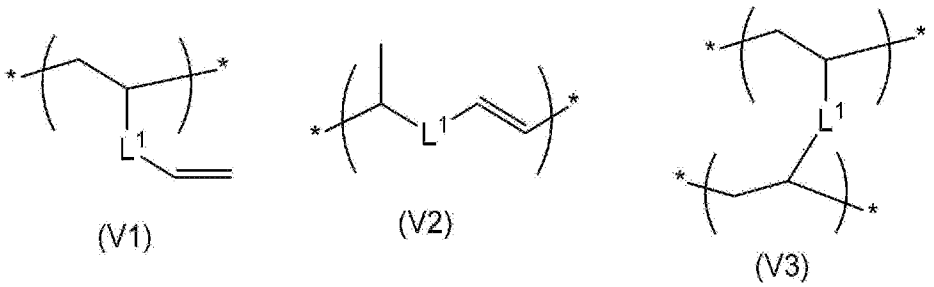
芳香族炭化水素連結基は、通常、２価の連結基である。

[0062] 芳香族炭化水素連結基は、具体的には、置換基を有していてもよい、フェニレン基、ナフタレンジイル基、アントラセンジイル基、フェナントレンジイル基、ビフェニルジイル基、フルオレンジイル基が挙げられ、中でも置換基を有していてもよいフェニレン基が好ましい。置換基は、上述の置換基Ｚ

が例示されるが、上述したフェニレン基等の基は置換基を有さない方が好ましい。

[0063] 式（Ｖ）で表される構成単位は、下記式（Ｖ１）で表される構成単位、下記式（Ｖ２）で表される構成単位、および、下記式（Ｖ３）で表される構成単位の少なくとも１つを含むことがより好ましい。なお、下記式中の＊は結合位置を表す。また、以下、式（Ｖ１）～（Ｖ３）で表される構成単位をまとめて、「構成単位（ａ）」ということがある。

[0064] [化40]



(V1) (V2) (V3)

式（Ｖ１）～（Ｖ３）中、Ｌ^{1}は芳香族炭化水素連結基（炭素数６～２２が好ましく、６～１８がより好ましく、６～１０がさらに好ましい）である。具体的には、置換基を有していてもよい、フェニレン基、ナフタレンジイル基、アントラセンジイル基、フェナントレンジイル基、ビフェニルジイル基、フルオレンジイル基が挙げられ、中でも置換基を有していてもよいフェニレン基が好ましい。置換基は、上述の置換基Ｚが例示されるが、上述したフェニレン基等の基は置換基を有さない方が好ましい。

構成単位（ａ）を形成する化合物としては、ジビニル芳香族化合物であることが好ましく、例えば、ジビニルベンゼン、ビス（１－メチルビニル）ベンゼン、ジビニルナフタレン、ジビニルアントラセン、ジビニルビフェニル、ジビニルフェナントレンなどが挙げられる。中でもジビニルベンゼンが特に好ましい。これらのジビニル芳香族化合物は、１種を用いてもよく、必要に応じて２種以上を用いてもよい。

[0065] 式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体は、上述のとおり、構成単位（ａ）の単独重合体であってもよいが、他のモノマー由来の構成単位との共

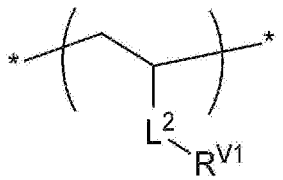
重合体であってもよい。

式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体は、共重合体であるとき、その共重合比は、構成単位（ａ）が３モル％以上であることが好ましく、５モル％以上であることがより好ましく、１０モル％以上であることがさらに好ましく、１５モル％以上であってもよい。上限値としては、９０モル％以下であることが好ましく、８５モル％以下であることがより好ましく、８０モル％以下であることがさらに好ましく、７０モル％以下であることが一層好ましく、６０モル％以下であることがより好ましく、５０モル％以下であることがさらに一層好ましく、４０モル％以下であることがさらによりさらに一層好ましく、３０モル％以下であることが特に一層好ましく、さらには、２５モル％以下、２０モル％以下であってもよい。

[0066] 他のモノマー由来の構成単位としては、１つのビニル基を有する芳香族化合物（モノビニル芳香族化合物）に由来する構成単位（ｂ）が例示される。

[0067] モノビニル芳香族化合物に由来する構成単位（ｂ）は、下記式（Ｖ４）で表される構成単位であることが好ましい。

[0068] [化41]



(V4)

式（Ｖ４）中、L^2は芳香族炭化水素連結基であり、好ましいものの具体例としては、上記L^1の例が挙げられる。

R^{V1}は水素原子または炭素数１～１２の炭化水素基（好ましくはアルキル基）である。R^{V1}が炭化水素基であるとき、その炭素数は１～６が好ましく、１～３がより好ましい。R^{V1}およびL^2は上述の置換基Ｚを有していてもよい。

[0069] 式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体が、モノビニル芳香族化合物に由来する構成単位（ｂ）を含む共重合体であるとき、モノビニル芳香族化合物の例としては、スチレン、ビニルナフタレン、ビニルビフェニルなどの

ビニル芳香族化合物；ｏ－メチルスチレン、ｍ－メチルスチレン、ｐ－メチルスチレン、ｏ，ｐ－ジメチルスチレン、ｏ－エチルビニルベンゼン、ｍ－エチルビニルベンゼン、ｐ－エチルビニルベンゼン、メチルビニルビフェニル、エチルビニルビフェニルなどの核アルキル置換ビニル芳香族化合物などが挙げられる。ここで例示したモノビニル芳香族化合物は適宜上述の置換基Ｚを有していてもよい。また、これらのモノビニル芳香族化合物は、１種を用いても２種以上を用いてもよい。

[0070] 式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体が構成単位（ｂ）を含む共重合体であるとき、構成単位（ｂ）の共重合比は、１０モル％以上であることが好ましく、１５モル％以上であることがさらに好ましく、さらには、２０モル％以上、３０モル％以上、４０モル％以上、５０モル％以上、６０モル％以上、７０モル％以上、７５モル％以上であってもよい。上限値としては、９８モル％以下であることが好ましく、９０モル％以下であることがより好ましく、８５モル％以下であることがさらに好ましい。

[0071] 式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体は、構成単位（ａ）および構成単位（ｂ）以外のその他の構成単位を有していてもよい。その他の構成単位としては、例えば、シクロオレフィン化合物に由来する構成単位（ｃ）などが挙げられる。シクロオレフィン化合物としては、環構造内に二重結合を有する炭化水素類が挙げられる。具体的に、シクロブテン、シクロペンテン、シクロヘキセン、シクロオクテンなどの単環の環状オレフィンの他、ノルボルネン、ジシクロペンタジエンなどのノルボルネン環構造を有する化合物、インデン、アセナフチレンなどの芳香族環が縮合したシクロオレフィン化合物などを挙げることができる。ノルボルネン化合物の例としては、特開２０１８－３９９９５号公報の段落００３７～００４３に記載のものが挙げられ、これの内容は本明細書に組み込まれる。なお、ここで例示したシクロオレフィン化合物はさらに上述の置換基Ｚを有していてもよい。

[0072] 式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体が構成単位（ｃ）を含む共重合体であるとき、構成単位（ｃ）の共重合比は、１０モル％以上であること

が好ましく、２０モル％以上であることがより好ましく、３０モル％以上であることがさらに好ましい。上限値としては、９０モル％以下であることが好ましく、８０モル％以下であることがより好ましく、７０モル％以下であることがさらに好ましく、５０モル％以下であってもよく、３０モル％以下であってもよい。

[0073] 式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体にはさらに異なる重合性化合物（以下、他の重合性化合物ともいう）に由来する構成単位（ｄ）が組み込まれていてもよい。他の重合性化合物（単量体）としては、例えば、ビニル基を３つ含む化合物が挙げられる。具体的には、１，３，５－トリビニルベンゼン、１，３，５－トリビニルナフタレン、１，２，４－トリビニルシクロヘキサンが挙げられる。あるいは、エチレングリコールジアクリレート、ブタジエン等が挙げられる。他の重合性化合物に由来する構成単位（ｄ）の共重合比は、３０モル％以下であることが好ましく、２０モル％以下であることがより好ましく、１０モル％以下であることがさらに好ましい。

[0074] 式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体の一実施形態として、構成単位（ａ）を必須とし、構成単位（ｂ）～（ｄ）の少なくとも１種を含む重合体が例示される。さらには、構成単位（ａ）～（ｄ）の合計が、全構成単位の９５モル％以上、さらには９８モル％以上を占める態様が例示される。

式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体の他の一実施形態として、構成単位（ａ）を必須とし、末端を除く全構成単位のうち、芳香族環を含む構成単位が９０モル％以上のものであることが好ましく、９５モル％以上のものであることがより好ましく、１００モル％のものであってもよい。

なお、全構成単位当たりのモル％を算出するにあたり、１つの構成単位とは、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体の製造に使用する単量体（例えば、ジビニル芳香族化合物、モノビニル芳香族化合物など）１分子に由来するものとする。

[0075] 式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体の製造方法は特に限定されず常法によればよいが、例えば、ジビニル芳香族化合物を含む原料を（必要に

より、モノビニル芳香族化合物、シクロオレフィン化合物等を共存させ）、ルイス酸触媒の存在下で重合させることが挙げられる。ルイス酸触媒としては、三フッ化ホウ素等の金属フッ化物またはその錯体を用いることができる。

[0076] 式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体の鎖末端の構造は特に限定されないが、上記ジビニル芳香族化合物に由来する基について言うと、以下の式（Ｅ１）の構造を取ることが挙げられる。なお、式（Ｅ１）中のL^1は上記式（Ｖ１）で規定したものと同じである。＊は結合位置を表す。

＊－ＣＨ＝ＣＨ－L^1－ＣＨ＝CH_2　　（Ｅ１）

[0077] モノビニル芳香族化合物に由来する基が鎖末端となったときには、下記式（Ｅ２）の構造を取ることが挙げられる。式中のL^2およびR^{V1}はそれぞれ前記の式（Ｖ４）で定義したものと同じ意味である。＊は結合位置を表す。

＊－ＣＨ＝ＣＨ－L^2－R^{V1}　　（Ｅ２）

[0078] 式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体の分子量は、数平均分子量Ｍｎで、３００以上であることが好ましく、５００以上であることがより好ましく、１，０００以上であることがさらに好ましく、１，５００以上であることがより好ましい。上限としては、１３０，０００以下であることが好ましく、１２０，０００以下であることがより好ましく、１１０，０００以下であることがさらに好ましく、１００，０００以下であることがさらに好ましい。

式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体の分子量は、重量平均分子量Ｍｗで、３，０００以上であることが好ましく、５，０００以上であることがより好ましく、１０，０００以上であることがさらに好ましい。前記下限値以上とすることにより、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体が持つ優れた低誘電特性、特にＤｆや吸湿後の誘電特性を、樹脂組成物の硬化物に効果的に発揮させることができる。上限としては１３０，０００以下であることが好ましく、１００，０００以下であることがより好ましく、８０，０００以下であることがさらに好ましく、５０，０００以下であることが一

層好ましい。前記上限値以下とすることにより、プリプレグもしくは樹脂シートを回路形成基板に積層した際、埋め込み不良が起こりにくい傾向にある。

重量平均分子量Ｍｗと数平均分子量Ｍｎの比で表される単分散度（Ｍｗ／Ｍｎ）は、１００以下であることが好ましく、５０以下であることがより好ましく、２０以下であることがさらに好ましい。下限値としては、１．１以上であることが実際的であり、５以上であることが好ましく、７以上であることがより好ましく、１０以上であることがさらに好ましい。

上記ＭｗおよびＭｎは後述する実施例の記載に従って測定される。

本実施形態の樹脂組成物が式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体を２種以上含む場合、混合物のＭｗ、ＭｎならびにＭｗ／Ｍｎが上記範囲を満たすことが好ましい。

[0079] 式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体のビニル基の当量は、２００ｇ／ｅｑ．以上であることが好ましく、２３０ｇ／ｅｑ．以上であることがより好ましく、２５０ｇ／ｅｑ．以上であることがさらに好ましい。また、ビニル基の当量は、１２００ｇ／ｅｑ．以下であることが好ましく、１０００ｇ／ｅｑ．以下であることがより好ましく、さらには、８００ｇ／ｅｑ．以下、６００ｇ／ｅｑ．以下、４００ｇ／ｅｑ．以下、３００ｇ／ｅｑ．以下であってもよい。前記下限値以上とすることにより、樹脂組成物の保存安定性が向上し、樹脂組成物の流動性が向上する傾向にある。そのため、成形性が向上し、プリプレグ等の形成時にボイドが発生しにくくなり、より信頼性の高いプリント配線板が得られる傾向にある。一方、上記上限値以下とすることにより、得られる硬化物の耐熱性が向上する傾向にある。

[0080] 本明細書において式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体については、国際公開第２０１７／１１５８１３号の段落００２９～００５８に記載の化合物およびその合成反応条件等、特開２０１８－０３９９９５号公報の段落００１３～００５８に記載の化合物およびその合成反応条件等、特開２０１８－１６８３４７号公報の段落０００８～００４３に記載の化合物および

その合成反応条件等、特開２００６－０７０１３６号公報の段落００１４～００４２に記載の化合物およびその合成反応条件等、特開２００６－０８９６８３号公報の段落００１４～００６１に記載の化合物およびその合成反応条件等、特開２００８－２４８００１号公報の段落０００８～００３６に記載の化合物およびその合成反応条件等を参照することができ、本明細書に組み込まれる。

[0081] 式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体の含有量の下限値は、樹脂（Ａ）１００質量部に対し、１０質量部以上であり、２０質量部以上であることがより好ましく、４０質量部以上であることがさらに好ましく、６０質量部以上であることが一層好ましく、８０質量部以上であることがより一層好ましい。他方、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体の含有量の上限値は、樹脂（Ａ）１００質量部に対し、３００質量部以下であり、２８０質量部以下であることが好ましく、２６０質量部以下であることがより好ましく、２４０質量部以下であることがさらに好ましく、２２０質量部以下であることが一層好ましい。含有量を上述の範囲とすることで、樹脂組成物の成形性、得られる硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）、耐熱性、耐薬品性等のバランスが優れる傾向にある。

[0082] 式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体の含有量の下限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分を１００質量部としたとき、５質量部以上であることがより好ましく、１０質量部以上であることがさらに好ましく、１５質量部以上であることが一層好ましく、２０質量部以上であることがより一層好ましい。他方、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体の含有量の上限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分を１００質量部としたとき、６０質量部以下であることが好ましく、５５質量部以下であることがより好ましく、５０質量部以下であることがさらに好ましく、４５質量部以下であることが一層好ましい。

[0083] 本実施形態においては、樹脂（Ａ）と式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体の合計１００質量部に対する、樹脂（Ａ）の質量比率が、１０質量

部以上であることが好ましく、１５質量部以上であることがより好ましく、２０質量部以上であることがさらに好ましく、２５質量部以上であることが一層好ましい。前記下限値以上とすることにより低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）がより向上する傾向にある。

また、樹脂（Ａ）と式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体の合計１００質量部に対する、樹脂（Ａ）の質量比率が、７０質量部以下であることが好ましく、６５質量部以下であってもよい。前記上限値以下とすることにより、耐熱性がより向上する傾向にある。

式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体は、樹脂組成物中に、１種のみ含まれていても、２種以上含まれていてもよい。２種以上含まれる場合は、合計量が上記範囲となることが好ましい。

[0084] 本実施形態においては、樹脂固形分１００質量部中、樹脂（Ａ）、ポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）、および、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体の合計が樹脂組成物の９０質量部以上を占める態様が例示される。

[0085] ＜他の化合物（Ｃ）＞

本実施形態の樹脂組成物は、さらに、樹脂（Ａ）、ポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）および式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体以外の他の化合物（Ｃ）（好ましくは他の硬化性化合物および／または可塑性化合物、より好ましくは他の熱硬化性化合物および／または熱可塑性化合物、さらに好ましくは他の熱硬化性化合物）を含むことが好ましい。他の化合物（Ｃ）は、マレイミド化合物、シアン酸エステル化合物、エポキシ化合物、フェノール化合物、（メタ）アリル基を含む化合物（例えば、アルケニルナジイミド化合物）、オキセタン樹脂、ベンゾオキサジン化合物、アリールシクロブテン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ペルフルオロビニルエーテル樹脂、前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）以外のスチレン基を有する化合物、前記インダン骨格を有する樹脂（Ａ）以外のイソプロペニル基を有する化合物、前記末端に炭素－

炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）以外の多官能（メタ）アクリレート化合物、エラストマー、ならびに、石油樹脂からなる群より選択される１種以上を含むことが好ましく、マレイミド化合物、シアン酸エステル化合物、エポキシ化合物、フェノール化合物、（メタ）アリル基を含む化合物（例えば、アルケニルナジイミド化合物）、オキセタン樹脂、および、ベンゾオキサジン化合物からなる群より選択される少なくとも１種以上を含むことがより好ましい。このような成分を含むことにより、プリント配線板に求められる所望の性能をより効果的に発揮させることができる。

[0086] 本実施形態の樹脂組成物が他の化合物（Ｃ）を含む場合、その含有量（総量）は、樹脂固形分１００質量部に対し、１質量部以上であることが好ましく、１０質量部以上であることがより好ましく、１５質量部以上であることがさらに好ましく、２０質量部以上であることが一層好ましく、３０質量部以上であることがより一層好ましい。前記下限値以上とすることにより、耐熱性、めっき密着性、低熱膨張性等がより向上する傾向にある。また、他の化合物（Ｃ）（好ましくは他の硬化性化合物および／または可塑性化合物、より好ましくは他の熱硬化性化合物および／または熱可塑性化合物、さらに好ましくは他の熱硬化性化合物）の含有量の上限値は、樹脂固形分１００質量部に対し、５０質量部以下であることが好ましく、４５質量部以下であることがより好ましく、４０質量部以下であることがさらに好ましい。前記上限値以下とすることにより、低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）、低吸水性がより向上する傾向にある。

本実施形態の樹脂組成物は、他の化合物（Ｃ）を１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

[0087] ＜＜マレイミド化合物＞＞

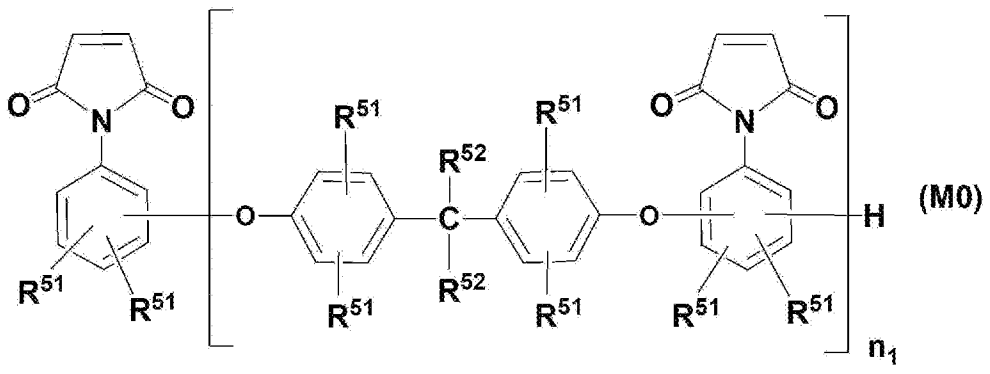
本実施形態の樹脂組成物は、マレイミド化合物を含んでいてもよい。

マレイミド化合物は、分子中に１以上（好ましくは２～１２、より好まし

くは２～６、さらに好ましくは２～４、一層好ましくは２または３、より一層好ましくは）のマレイミド基を含む化合物であれば特に限定されず、プリント配線板の分野で通常用いられる化合物を広く用いることができる。

本実施形態においては、マレイミド化合物は、式（ＭＯ）で表される化合物、式（Ｍ１）で表される化合物、式（Ｍ２）で表される化合物、式（Ｍ３）で表される化合物、式（Ｍ４）で表される化合物、式（Ｍ５）で表される化合物、マレイミド化合物（Ｍ６）、および、マレイミド化合物（Ｍ７）からなる群より選択される１種以上を含むことが好ましく、式（ＭＯ）で表される化合物、式（Ｍ１）で表される化合物、式（Ｍ３）で表される化合物、式（Ｍ４）で表される化合物、式（Ｍ５）で表される化合物、および、マレイミド化合物（Ｍ６）からなる群より選択される１種以上を含むことがより好ましく、式（Ｍ１）で表される化合物、式（Ｍ３）で表される化合物、式（Ｍ４）で表される化合物、および、式（Ｍ５）で表される化合物からなる群より選択される１種以上を含むことがさらに好ましく、式（Ｍ１）で表される化合物、式（Ｍ３）で表される化合物、および、式（Ｍ５）で表される化合物からなる群より選択される１種以上を含むことが一層好ましく、式（Ｍ１）で表される化合物および／または式（Ｍ３）で表される化合物を含むことがより一層好ましく、式（Ｍ１）で表される化合物がさらに一層好ましい。これらのマレイミド化合物を、プリント配線板用材料（例えば、金属箔張積層板）等に用いると、優れた耐熱性を付与できる。

[0088] [化42]



（式（ＭＯ）中、Ｒ^{51}は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数１～８のアル

キル基またはフェニル基を表し、R^{52}は、それぞれ独立に、水素原子またはメチル基を表し、n_1は１以上の整数を表す。）

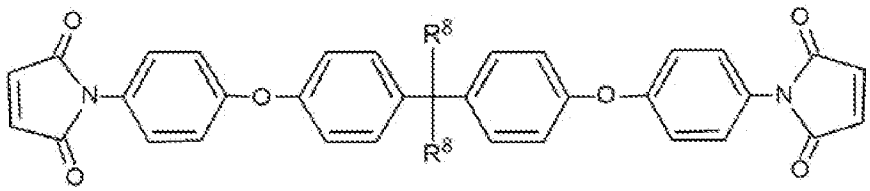
R^{51}は、それぞれ独立に、水素原子、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｔ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、およびフェニル基からなる群より選択される１種であることが好ましく、水素原子および／またはメチル基あることがより好ましく、水素原子であることがさらに好ましい。

R^{52}は、メチル基であることが好ましい。

n_1は１～１０の整数が好ましく、１～５の整数がより好ましく、１～３の整数がさらに好ましく、１または２であることが一層好ましく、１であることがより一層好ましい。

具体的には、以下の化合物が式（ＭＯ）の好ましい例として挙げられる。

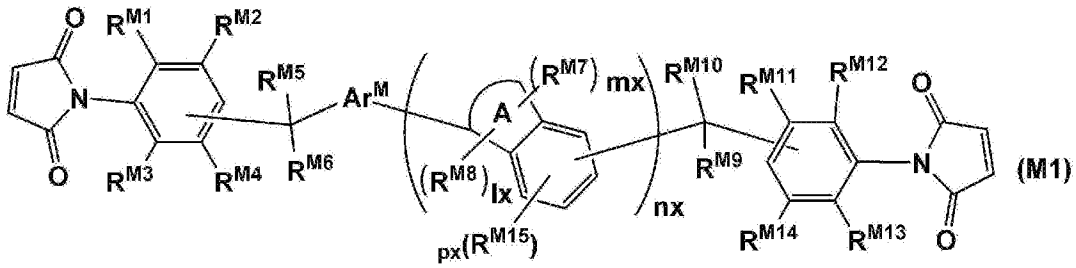
[化43]



上記式中、R^8は各々独立に水素原子、メチル基またはエチル基を表し、メチル基が好ましい。

[0089] 式（ＭＯ）で表される化合物は、１種のみの他、２種以上の混合物であってもよい。混合物の例としては、n_1が異なる化合物の混合物、R^{51}および／またはR^{52}の置換基の種類が異なる化合物の混合物、ベンゼン環に対するマレイミド基と酸素原子の結合位置（メタ位、パラ位、オルト位）が異なる化合物の混合物、ならびに、前記の２つ以上の異なる点が組み合わされた化合物の混合物などが挙げられる。以下、式（Ｍ１）～（Ｍ６）で表される化合物についても同様である。

[化44]



(M1)

（式（Ｍ１）中、R^{M1}、R^{M2}、R^{M3}、およびR^{M4}は、それぞれ独立に、水素原子または有機基を表す。R^{M5}およびR^{M6}は、それぞれ独立に、水素原子またはアルキル基を表す。Ａｒ^{M}は２価の芳香族基を表す。Ａは、４～６員環の脂環基である。R^{M7}およびR^{M8}は、それぞれ独立に、アルキル基である。ｍｘは１または２であり、Ｉｘは０または１である。R^{M9}およびR^{M10}は、それぞれ独立に、水素原子またはアルキル基を表す。R^{M11}、R^{M12}、R^{M13}、およびR^{M14}は、それぞれ独立に、水素原子または有機基を表す。R^{M15}は、それぞれ独立に、炭素数１～１０のアルキル基、炭素数１～１０のアルキルオキシ基、炭素数１～１０のアルキルチオ基、炭素数３～１０のシクロアルキル基、炭素数６～１０のアリール基、炭素数６～１０のアリールオキシ基、炭素数６～１０のアリールチオ基、ハロゲン原子、水酸基またはメルカプト基を表す。ｐｘは０～３の整数を表す。ｎｘは１～２０の整数を表す。）

[0090] 式中のR^{M1}、R^{M2}、R^{M3}、およびR^{M4}は、それぞれ独立に、水素原子または有機基を表す。ここでの有機基はアルキル基であることが好ましく、炭素数１～１２のアルキル基がより好ましく、炭素数１～６のアルキル基がさらに好ましく、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基が一層好ましく、中でもメチル基が特に好ましい。R^{M1}およびR^{M3}は、それぞれ独立に、アルキル基が好ましく、R^{M2}およびR^{M4}は、水素原子が好ましい。

R^{M5}およびR^{M6}は、それぞれ独立に、水素原子またはアルキル基を表し、アルキル基が好ましい。ここでのアルキル基は、炭素数１～１２のアルキル基が好ましく、炭素数１～６のアルキル基がより好ましく、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基がさらに好ましく、中でもメチル基が特に好ま

しい。

Ar^Mは２価の芳香族基を表し、好ましくはフェニレン基、ナフタレンジイル基、フェナントレンジイル基、アントラセンジイル基であり、より好ましくはフェニレン基であり、さらに好ましくはｍ－フェニレン基である。Ar^Mは置換基を有していてもよく、置換基としては、アルキル基が好ましく、炭素数１～１２のアルキル基がより好ましく、炭素数１～６のアルキル基がさらに好ましく、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基が一層好ましく、メチル基が特に好ましい。しかしながら、Ar^Mは無置換であることが好ましい。

Ａは、４～６員環の脂環基であり、５員環の脂環基（好ましくはベンゼン環と合せてインダン環となる基）がより好ましい。R^{M7}およびR^{M8}は、それぞれ独立に、アルキル基であり、炭素数１～６のアルキル基が好ましく、炭素数１～３のアルキル基がより好ましく、メチル基が特に好ましい。

ｍｘは１または２であり、２であることが好ましい。

Ｉｘは０または１であり、１であることが好ましい。

R^{M9}およびR^{M10}は、それぞれ独立に、水素原子またはアルキル基を表し、アルキル基がより好ましい。ここでのアルキル基は、炭素数１～１２のアルキル基が好ましく、炭素数１～６のアルキル基がより好ましく、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基がさらに好ましく、中でもメチル基が特に好ましい。

R^{M11}、R^{M12}、R^{M13}、およびR^{M14}は、それぞれ独立に、水素原子または有機基を表す。ここでの有機基はアルキル基であることが好ましく、炭素数１～１２のアルキル基がより好ましく、炭素数１～６のアルキル基がさらに好ましく、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基が一層好ましく、中でもメチル基が特に好ましい。R^{M12}およびR^{M13}は、それぞれ独立に、アルキル基が好ましく、R^{M11}およびR^{M14}は、水素原子が好ましい。

R^{M15}は、それぞれ独立に、炭素数１～１０のアルキル基、炭素数１～１０のアルキルオキシ基、炭素数１～１０のアルキルチオ基、炭素数３～１０の

シクロアルキル基、炭素数６～１０のアリール基、炭素数６～１０のアリールオキシ基、炭素数６～１０のアリールチオ基、ハロゲン原子、水酸基またはメルカプト基を表し、炭素数１～４のアルキル基、炭素数３～６のシクロアルキル基、または、炭素数６～１０のアリール基であることが好ましい。

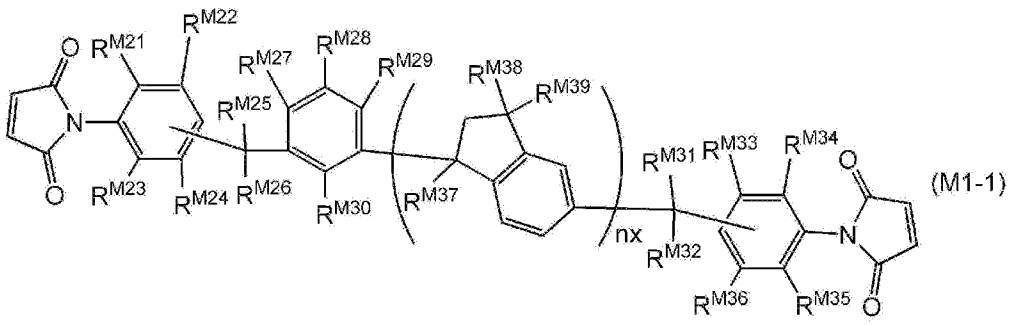
ｐｘは０～３の整数を表し、０～２の整数が好ましく、０または１がより好ましく、０がさらに好ましい。

ｎｘは１～２０の整数を表す。ｎｘは１０以下の整数であってもよい。

尚、本実施形態の樹脂組成物は、式（Ｍ１）で表される化合物であって、少なくともｎｘの値が異なる化合物を１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、樹脂組成物中の式（Ｍ１）で表される化合物におけるｎｘの平均値（平均繰返単位数）ｎは、低い融点（低軟化点）で、かつ溶融粘度が低く、ハンドリング性に優れたものとするため、０．９２以上であることが好ましく、０．９５以上であることがより好ましく、１．０以上であることがさらに好ましく、１．１以上であることが一層好ましい。また、ｎは、１０．０以下であることが好ましく、８．０以下であることがより好ましく、７．０以下であることがさらに好ましく、６．０以下であることが一層好ましく、５．０以下であってもよい。後述する式（Ｍ１－２）および式（Ｍ１－３）で表される化合物についても同様である。

式（Ｍ１）で表される化合物は、下記の式（Ｍ１－１）で表される化合物であることが好ましい。

[化45]



(M1-1)

（式（Ｍ１－１）中、R^{M21}、R^{M22}、R^{M23}、およびR^{M24}は、それぞれ独

立に、水素原子または有機基を表す。R^{M25}およびR^{M26}は、それぞれ独立に、水素原子またはアルキル基を表す。R^{M27}、R^{M28}、R^{M29}、およびR^{M30}は、それぞれ独立に、水素原子または有機基を表す。R^{M31}およびR^{M32}は、それぞれ独立に、水素原子またはアルキル基を表す。R^{M33}、R^{M34}、R^{M35}、およびR^{M36}は、それぞれ独立に、水素原子または有機基を表す。R^{M37}、R^{M38}、およびR^{M39}は、それぞれ独立に、水素原子またはアルキル基を表す。ｎｘは１以上２０以下の整数を表す。）

[0091] 式中のR^{M21}、R^{M22}、R^{M23}、およびR^{M24}は、それぞれ独立に、水素原子または有機基を表す。ここでの有機基はアルキル基であることが好ましく、炭素数１～１２のアルキル基がより好ましく、炭素数１～６のアルキル基がさらに好ましく、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基が一層好ましく、メチル基が特に好ましい。R^{M21}およびR^{M23}は、アルキル基が好ましく、R^{M22}およびR^{M24}は、水素原子が好ましい。

R^{M25}およびR^{M26}は、それぞれ独立に、水素原子またはアルキル基を表し、アルキル基が好ましい。ここでのアルキル基は、炭素数１～１２のアルキル基が好ましく、炭素数１～６のアルキル基がより好ましく、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基がさらに好ましく、中でもメチル基が特に好ましい。

R^{M27}、R^{M28}、R^{M29}、およびR^{M30}は、それぞれ独立に、水素原子または有機基を表し、水素原子が好ましい。ここでの有機基はアルキル基であることが好ましく、炭素数１～１２のアルキル基がより好ましく、炭素数１～６のアルキル基がさらに好ましく、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基が一層好ましく、メチル基が特に好ましい。

R^{M31}およびR^{M32}は、それぞれ独立に、水素原子またはアルキル基を表し、アルキル基が好ましい。ここでのアルキル基は、炭素数１～１２のアルキル基が好ましく、炭素数１～６のアルキル基がより好ましく、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基がさらに好ましく、中でもメチル基が特に好ましい。

R^{M33}、R^{M34}、R^{M35}、およびR^{M36}は、それぞれ独立に、水素原子または有機基を表す。ここでの有機基はアルキル基であることが好ましく、炭素数１～１２のアルキル基がより好ましく、炭素数１～６のアルキル基がさらに好ましく、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基が一層好ましく、メチル基が特に好ましい。

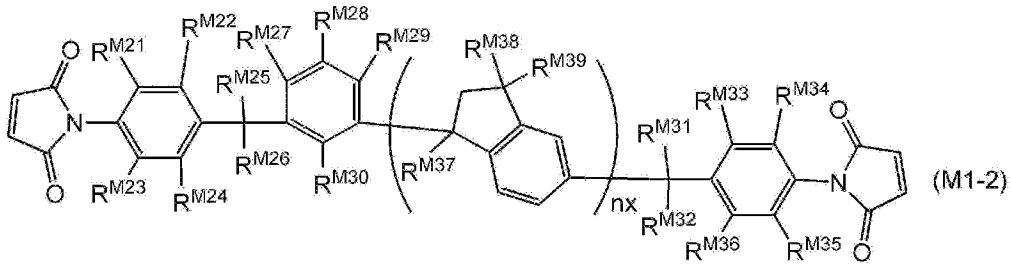
R^{M33}およびR^{M36}は、水素原子が好ましく、R^{M34}およびR^{M35}はアルキル基が好ましい。

R^{M37}、R^{M38}、およびR^{M39}は、それぞれ独立に、水素原子またはアルキル基を表し、アルキル基が好ましい。ここでのアルキル基は、炭素数１～１２のアルキル基が好ましく、炭素数１～６のアルキル基がより好ましく、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基がさらに好ましく、中でもメチル基が特に好ましい。

ｎｘは１以上２０以下の整数を表す。ｎｘは１０以下の整数であってもよい。

[0092] 式（Ｍ１－１）で表される化合物は、下記式（Ｍ１－２）で表される化合物であることが好ましい。

[化46]



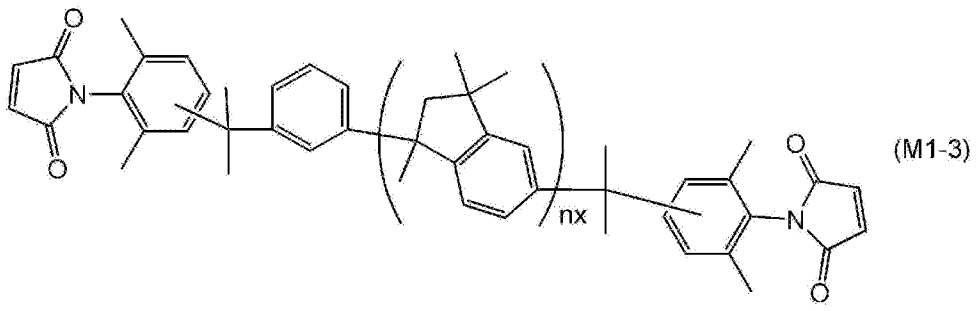
（式（Ｍ１－２）中、R^{M21}、R^{M22}、R^{M23}、およびR^{M24}は、それぞれ独立に、水素原子または有機基を表す。R^{M25}およびR^{M26}は、それぞれ独立に、水素原子またはアルキル基を表す。R^{M27}、R^{M28}、R^{M29}、およびR^{M30}は、それぞれ独立に、水素原子または有機基を表す。R^{M31}およびR^{M32}は、それぞれ独立に、水素原子またはアルキル基を表す。R^{M33}、R^{M34}、R^{M35}、およびR^{M36}は、それぞれ独立に、水素原子または有機基を表す。R^{M37}、

R^{M38}、およびR^{M39}は、それぞれ独立に、水素原子またはアルキル基を表す。ｎｘは１以上２０以下の整数を表す。）

[0093] 式（Ｍ１－２）中、R^{M21}、R^{M22}、R^{M23}、R^{M24}、R^{M25}、R^{M26}、R^{M27}、R^{M28}、R^{M29}、R^{M30}、R^{M31}、R^{M32}、R^{M33}、R^{M34}、R^{M35}、R^{M36}、R^{M37}、R^{M38}、R^{M39}、および、ｎｘは、それぞれ、式（Ｍ１－１）におけるR^{M21}、R^{M22}、R^{M23}、R^{M24}、R^{M25}、R^{M26}、R^{M27}、R^{M28}、R^{M29}、R^{M30}、R^{M31}、R^{M32}、R^{M33}、R^{M34}、R^{M35}、R^{M36}、R^{M37}、R^{M38}、R^{M39}、および、ｎｘと同義であり、好ましい範囲も同様である。

[0094] 式（Ｍ１－１）で表される化合物は、下記式（Ｍ１－３）で表される化合物であることが好ましく、下記式（Ｍ１－４）で表される化合物であることがより好ましい。

[化47]

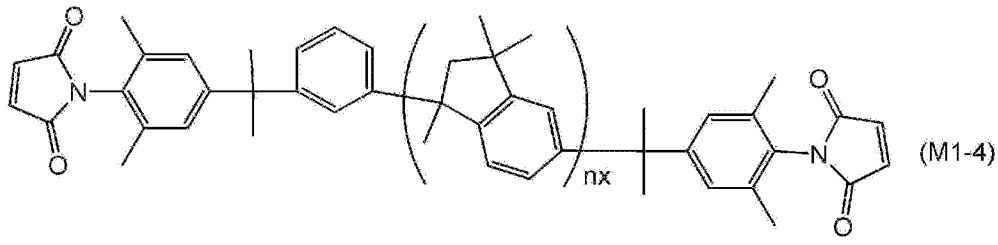


(M1-3)

（式（Ｍ１－３）中、ｎｘは１以上２０以下の整数を表す。）

ｎｘは１０以下の整数であってもよい。

[化48]



(M1-4)

（式（Ｍ１－４）中、ｎｘは１以上２０以下の整数を表す。）

ｎｘは１０以下の整数であってもよい。

[0095] 式（Ｍ１）で表される化合物の分子量は、５００以上であることが好まし

く、６００以上であることがより好ましく、７００以上であることがさらに好ましい。前記下限値以上とすることにより、得られる硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）および低吸水性がより向上する傾向にある。また、式（Ｍ１）で表される化合物の分子量は、１００００以下であることが好ましく、９０００以下であることがより好ましく、７０００以下であることがさらに好ましく、５０００以下であることが一層好ましく、４０００以下であることがより一層好ましい。前記上限値以下とすることにより、得られる硬化物の耐熱性および取り扱い性がより向上する傾向にある。

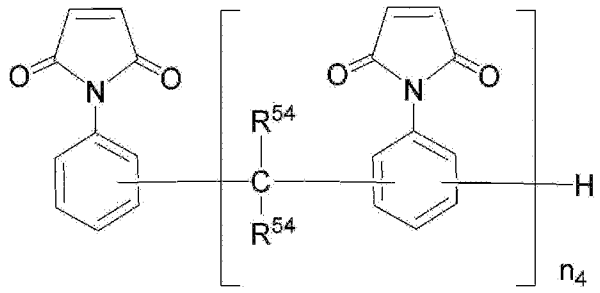
[0096] 式（Ｍ１）で表される化合物は、マレイミド基当量が、５０ｇ／ｅｑ．以上であることが好ましく、１００ｇ／ｅｑ．以上であることがより好ましく、２００ｇ／ｅｑ．以上であることがさらに好ましい。前記マレイミド当量の上限値は、２０００ｇ／ｅｑ．以下であることが好ましく、１０００ｇ／ｅｑ．以下であることがより好ましく、８００ｇ／ｅｑ．以下であることがさらに好ましい。ここで、マレイミド基当量は、マレイミド基１ 当量あたりのマレイミド化合物の質量を表す。式（Ｍ１）で表される化合物のマレイミド基当量が上記範囲にある場合、得られる硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）、低吸水性、耐熱性および取り扱い性がより向上する傾向にある。

[0097] 式（Ｍ１）で表される化合物は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィ（ＧＰＣ） 測定から算出される分子量分布Ｍｗ／Ｍｎが、１．０～４．０であることが好ましく、１．１～３．８であることがより好ましく、１．２～３．６であることがさらに好ましく、１．３～３．４であることが一層このましい。式（Ｍ１）で表される化合物のＭｗ／Ｍｎが上記範囲にある場合、得られる硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）、低吸水性、耐熱性および取り扱い性がより向上する傾向にある。

[0098] その他、式（Ｍ１）で表される化合物の詳細は、国際公開第２０２０－２１７６７９号の記載を参酌でき、これらの内容は本明細書に組み込まれる。

[0099]

[化49]



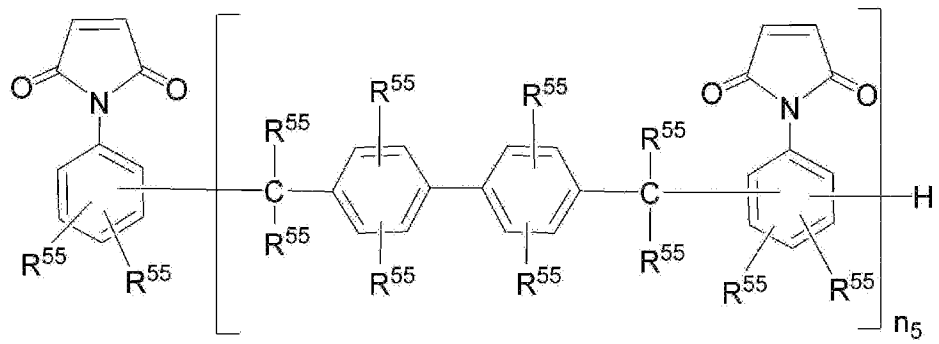
(M2)

（式（Ｍ２）中、Ｒ^{54}は、それぞれ独立に、水素原子またはメチル基を表し、ｎ$_4$は１以上の整数を表す。）

ｎ$_4$は１～１０の整数が好ましく、１～５の整数がより好ましく、１～３の整数がさらに好ましく、１または２であることが一層好ましく、１であってもよい。

式（Ｍ２）で表される化合物は、ｎ$_4$が異なる化合物の混合物であってもよく、混合物であることが好ましい。また、式（Ｍ０）で表される化合物の所で述べたように、他の部分が異なる化合物の混合物であってもよい。

[化50]



(M3)

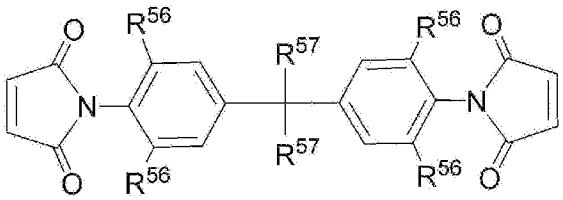
（式（Ｍ３）中、Ｒ^{55}は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数１～８のアルキル基またはフェニル基を表し、ｎ$_5$は１以上１０以下の整数を表す。）

Ｒ^{55}は、それぞれ独立に、水素原子、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｔ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、および、フェニル基からなる群より選択される１種であることが好ましく、水素原子および／またはメチル基であることがより好ましく、水素原子であることがさらに好ましい。

n_5は１以上５以下の整数であることが好ましく、１～３の整数がさらに好ましく、１または２であることが一層好ましい。

式（Ｍ３）で表される化合物は、n_5が異なる化合物の混合物であってもよく、混合物であることが好ましい。また、式（Ｍ０）で表される化合物の所で述べたように、他の部分が異なる化合物の混合物であってもよい。

[化51]

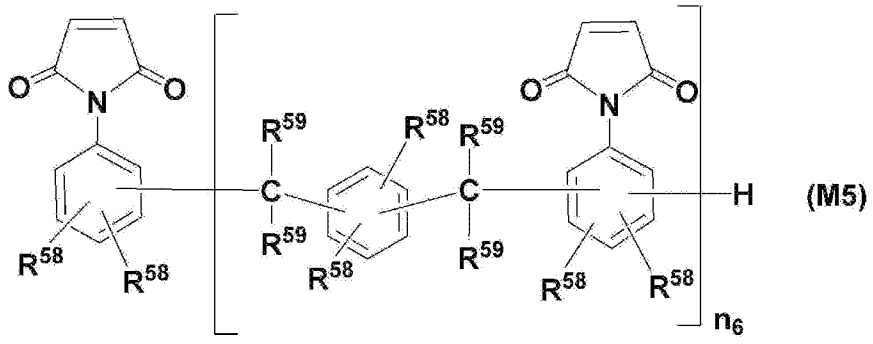


(M4)

（式（Ｍ４）中、R^{56}は、それぞれ独立に、水素原子、メチル基またはエチル基を表し、R^{57}はそれぞれ独立に水素原子またはメチル基を表す。）

R^{56}は、それぞれ独立にメチル基またはエチル基であることが好ましく、２つあるベンゼン環のそれぞれにおいてメチル基およびエチル基であることがより好ましく、R^{57}は、メチル基が好ましい。

[0100] [化52]



(M5)

（式（Ｍ５）中、R^{58}は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数１～８のアルキル基またはフェニル基を表し、R^{59}は、それぞれ独立に、水素原子またはメチル基を表し、n_6は１以上の整数を表す。）

R^{58}は、それぞれ独立に、水素原子、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｔ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、および、フェニル基からなる群より選択される１種であることが

好ましく、水素原子および／またはメチル基であることがより好ましく、水素原子であることがさらに好ましい。

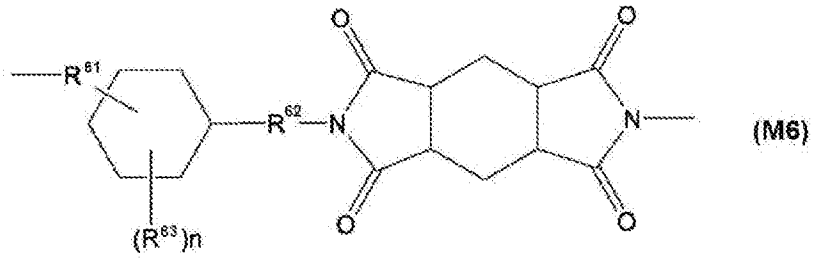
R^{59}は、メチル基であることが好ましい。

n_6は１～１０の整数が好ましく、１～５の整数がより好ましく、１～３の整数がさらに好ましく、１または２であることが一層好ましく、１であってもよい。

式（Ｍ５）で表される化合物は、n_6が異なる化合物の混合物あってもよく、混合物であることが好ましい。また、式（Ｍ０）で表される化合物の所で述べたように、他の部分が異なる化合物の混合物であってもよい。

[0101] マレイミド化合物（Ｍ６）は、式（Ｍ６）表される構成単位と、分子鎖の両末端にマレイミド基とを有する化合物である。

[化53]



(M6)

（式（Ｍ６）中、R^{61}は、炭素数１～１６の直鎖状もしくは分岐状のアルキレン基、または炭素数２～１６の直鎖状もしくは分岐状のアルケニレン基を表す。R^{62}は、炭素数１～１６の直鎖状もしくは分岐状のアルキレン基、または炭素数２～１６の直鎖状もしくは分岐状のアルケニレン基を表す。R^{63}は、それぞれ独立に、炭素数１～１６の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、または炭素数２～１６の直鎖状もしくは分岐状のアルケニル基を表す。ｎは、それぞれ独立に、０～１０の整数を表す。）

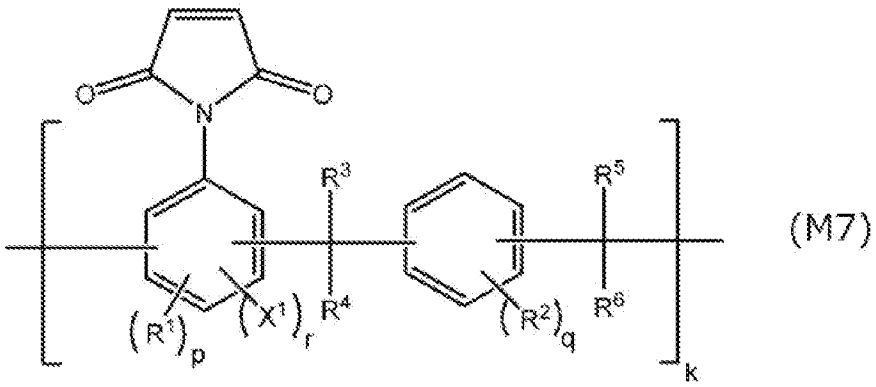
マレイミド化合物（Ｍ６）の詳細およびその製造方法は、国際公開第２０２０／２６２５７７号の段落００６１～００６６の記載を参酌でき、この内容は本明細書に組み込まれる。

[0102] マレイミド化合物（Ｍ７）は、芳香環にアルキル基を１以上３以下有する

芳香族アミン化合物（ａ１）と、エテニル基を２つ有する芳香族ジビニル化合物（ａ２）と、無水マレイン酸とを反応原料（１）とする、マレイミド化合物である。

マレイミド化合物（Ｍ７）は、好ましくは、式（Ｍ７）で表される化合物である。

[化54]



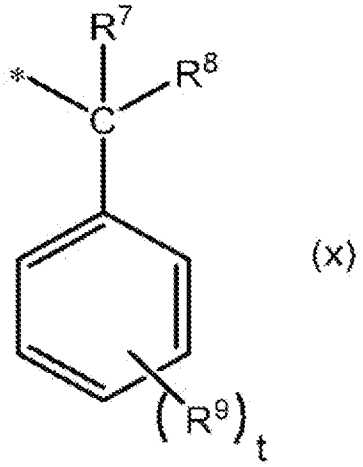
(M7)

（上記式（Ｍ７）中、Ｒ^{1}はそれぞれ独立して、前記アルキル基を表し、Ｒ^{2}はそれぞれ独立して、炭素数１～１０のアルキル基、アルコキシ基若しくはアルキルチオ基；炭素数６～１０のアリール基、アリールオキシ基若しくはアリールチオ基；炭素数３～１０のシクロアルキル基；ハロゲン原子；水酸基；またはメルカプト基を表し、

Ｒ^{3}、Ｒ^{4}、Ｒ^{5}およびＲ^{6}はそれぞれ独立して、水素原子またはメチル基を表し、かつＲ^{3}およびＲ^{4}の一方が水素原子、他方がメチル基であり、Ｒ^{5}およびＲ^{6}の一方が水素原子、他方がメチル基であり、

Ｘ^{1}は、以下の式（ｘ）：

[化55]



(x)

（式（ｘ）中、Ｒ[7]およびＲ[8]はそれぞれ独立して、水素原子またはメチル基を表し、かつＲ[7]およびＲ[8]の一方が水素原子、他方がメチル基であり、Ｒ[9]はそれぞれ独立して、炭素数１～１０のアルキル基、アルコキシ基若しくはアルキルチオ基；炭素数６～１０のアリール基、アリールオキシ基若しくはアリールチオ基；炭素数３～１０のシクロアルキル基；ハロゲン原子；水酸基；またはメルカプト基を表し、ｔは０～４の整数を表す。）

で表される置換基を表し、ｒは、Ｘ[1]が結合されたベンゼン環１つ当たりのＸ[1]の置換数の平均値であり、０～４の数を表し、ｐは１～３の整数を表し、ｑは０～４の整数を表し、ｋは１～１００の整数を表す。）

[0103] 本実施形態で用いるポリマレイミド化合物（Ｍ７）の詳細は、特許第７１６０１５１号の記載を参酌でき、この内容は本明細書に組み込まれる。

[0104] マレイミド化合物は、公知の方法で製造してもよく、市販品を用いてもよい。市販品としては、例えば、式（Ｍ０）で表される化合物として、ケイ・アイ化成社製「ＢＭＩ－８０」、式（Ｍ１）で表される化合物として、ＤＩＣ社製「ＮＥ－Ｘ－９４７０Ｓ」、式（Ｍ２）で表される化合物として大和化成工業社製「ＢＭＩ－２３００」、式（Ｍ３）で表される化合物として、日本化薬株式会社製「ＭＩＲ－３０００－７０ＭＴ」、式（Ｍ４）で表される化合物としてケイ・アイ化成社製「ＢＭＩ－７０」、式（Ｍ５）で表される化合物として、日本化薬社製「ＭＩＲ－５０００」、マレイミド化合物（

Ｍ６）として、日本化薬社製「ＭＩＺ－００１」、マレイミド化合物（Ｍ７）として、ＤＩＣ社製「ＮＥ－Ｘ－９５００」が挙げられる。

[0105] また、上記以外のマレイミド化合物としては、例えば、Ｎ－フェニルマレイミド、Ｎ－シクロヘキシルマレイミド、フェニルメタンマレイミドのオリゴマー、ｍ－フェニレンビスマレイミド、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、およびこれらのプレポリマー、これらのマレイミドとアミンのプレポリマー等が挙げられる。

中でも、Ｎ－フェニルマレイミド、Ｎ－シクロヘキシルマレイミド等の単官能のマレイミド化合物は、下記式（Ｖ）で表される構造単位を有する重合体と併用することにより、より低誘電特性に優れた硬化物を提供可能な樹脂組成物が得られる傾向にある。

[0106] 本実施形態の樹脂組成物がマレイミド化合物を含む場合、その含有量の下限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、１質量部以上であることが好ましく、５質量部以上であることがより好ましく、１０質量部以上であることがさらに好ましく、２０質量部以上であることが一層好ましく、２５質量部以上であることがより一層好ましい。マレイミド化合物の含有量が１質量部以上であることにより、得られる硬化物の低誘電特性、耐燃性が向上する傾向にある。また、マレイミド化合物の含有量の上限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、７０質量部以下であることが好ましく、５０質量部以下であることがより好ましく、４０質量部以下であってもよい。マレイミド化合物の含有量が７０質量部以下であることにより、金属箔ピール強度および低吸水性が向上する傾向にある。

本実施形態における樹脂組成物は、マレイミド化合物を１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記

範囲となることが好ましい。

また、本実施形態における樹脂組成物は、マレイミド化合物を実質的に含まない構成とすることもできる。実質的に含まないとはマレイミド化合物の含有量が樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、１質量部未満であることをいい、０．１質量部未満であることが好ましく、０．０１質量部未満であることがより好ましい。

[0107] ＜＜シアン酸エステル化合物＞＞

本実施形態の樹脂組成物は、シアン酸エステル化合物を含んでいてもよい。

シアン酸エステル化合物は、シアネート基（シアナト基）を分子内に１以上（好ましくは２～１２、より好ましくは２～６、さらに好ましくは２～４、一層好ましくは２または３、より一層好ましくは２）含む化合物であれば特に限定されず、プリント配線板の分野で通常用いられる化合物を広く用いることができる。

[0108] シアン酸エステル化合物は、プリント配線板に通常用いられる少なくとも１つのシアナト基により置換された芳香族部分を分子内に２つ以上有するシアン酸エステル化合物が好ましい。

具体的には、シアン酸エステル化合物が有するシアナト基の数の下限は、２以上であることが好ましく、３以上であることがより好ましい。上記下限値以上とすることにより、耐熱性がより向上する傾向にある。また、シアナト基の数の上限は、１００以下であることが好ましく、５０以下であることがより好ましい。

また、シアン酸エステル化合物は、その硬化物が低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）に優れることが好ましい。例えば、シアン酸エステル化合物の硬化物は、空洞共振摂動法に従って測定した周波数１０ＧＨｚにおける誘電率（Ｄｋ）が４．０以下であることが好ましく、３．５以下であることがより好ましい。また、前記誘電率の下限値は、例えば、２．０以上が実際的である。また、シアン酸エステル化合物（Ｂ）の硬化物は、空洞共振摂動法

に従って測定した周波数１０ＧＨｚにおける誘電正接（Ｄｆ）が０．０２以下であることが好ましく、０．０１５以下であることがより好ましい。また、前記誘電正接の下限値は、例えば、０．０００１以上が実際的である。誘電率、誘電正接は、例えば、実施例に記載の方法（硬化条件、測定条件）に準じて測定することができる。

[0109] また、シアン酸エステル化合物は、その硬化物の耐熱性が高いことが好ましい。シアン酸エステル化合物の硬化物は、ＪＩＳ　Ｃ６４８１動的粘弾性測定に従って測定したガラス転移温度が１５０℃以上であることが好ましく、１８０℃以上であることがより好ましく、２００℃以上であることがさらに好ましい。ガラス転移温度を前記下限値以上とすることにより、耐熱性に優れた硬化物が得られる。

[0110] シアン酸エステル化合物は、ＧＰＣ法によるポリスチレン換算の重量平均分子量が、２００以上であることが好ましく、３００以上であることがより好ましく、４００以上であることがさらに好ましい。重量平均分子量を前記下限値以上とすることにより、耐熱性がより向上する傾向にある。また、シアン酸エステル化合物の重量平均分子量は、１０００以下であることが好ましく、９００以下であることがより好ましく、８００以下であることがさらに好ましい。重量平均分子量を前記上限値以下とすることにより、成形性および取り扱い性がより向上する傾向にある。

[0111] シアン酸エステル化合物の好ましい範囲としては、国際公開第２０２１／１７２３１７号の段落００２８～００３３の記載を参酌でき、この内容は本明細書に組み込まれる。

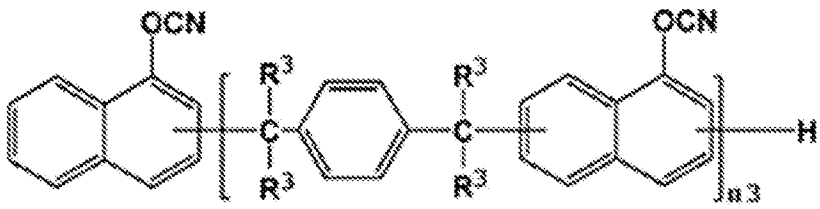
[0112] 好ましいシアン酸エステル化合物としては、フェノールノボラック型シアン酸エステル化合物、ナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物（ナフトールアラルキル型シアネート）、ナフチレンエーテル型シアン酸エステル化合物、ビフェニルアラルキル型シアン酸エステル化合物、キシレン樹脂型シアン酸エステル化合物、トリスフェノールメタン型シアン酸エステル化合物、アダマンタン骨格型シアン酸エステル化合物、ビスフェノールＭ型シ

アン酸エステル化合物、および、ビスフェノールＡ型シアン酸エステル化合物からなる群より選択される少なくとも１種が挙げられる。これらの中でも、低吸水性をより一層向上させる観点から、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、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、および、ビスフェノールＭ型シアン酸エステル化合物、ビスフェノールＡ型シアン酸エステル化合物からなる群より選択される少なくとも１種であることが好ましく、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、ナフチレンエーテル型シアン酸エステル化合物、ビスフェノールＡ型シアン酸エステル化合物、および、ビスフェノールＭ型シアン酸エステル化合物からなる群より選択される少なくとも１種であることがより好ましく、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、および、ビスフェノールＡ型シアン酸エステル化合物からなる群より選択される少なくとも１種であることがさらに好ましく、ナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物および／またはビスフェノールＡ型シアン酸エステル化合物であることが一層好ましく、ナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物であることがより一層好ましい。

[0113] ナフトールアラルキル型シアン酸エステル化合物としては、式（Ｎ１）で表される化合物がより好ましい。

[0114] 式（Ｎ１）

[化56]



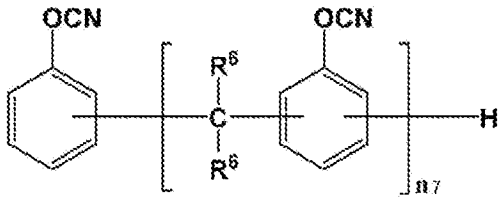
（式（Ｎ１）中、R^3は、それぞれ独立して、水素原子またはメチル基を表し、ｎ３は、１以上の整数を表す。）

[0115] 式（Ｎ１）中、R^3は、それぞれ独立して、水素原子またはメチル基を表し、この中でも水素原子が好ましい。

式（Ｎ１）中、ｎ３は、１以上の整数であり、１～５０の整数であることが好ましく、１～２０の整数であることがより好ましく、１～１０の整数であることがさらに好ましく、１～６の整数であることが一層好ましい。

[0116] また、フェノールノボラック型シアン酸エステル化合物としては、特に限定されないが、例えば、式（ＶＩＩ）で表される化合物が好ましい。

[化57]



(VII)

（式（ＶＩＩ）中、R^6は、それぞれ独立して、水素原子またはメチル基を表し、ｎ７は１以上の整数を表す。）

[0117] 式（ＶＩＩ）中、R^6は、それぞれ独立して、水素原子またはメチル基を表し、この中でも水素原子が好ましい。

式（ＶＩＩ）中、ｎ７は１以上の整数であり、１～２０の整数であることが好ましく、１～１０の整数であることがより好ましく、１～６の整数であることがさらに好ましい。

[0118] ビスフェノールＡ型シアン酸エステル化合物としては、２、２－ビス（４－シアナトフェニル）プロパン、および、２、２－ビス（４－シアナトフェニル）プロパンのプレポリマーからなる群より選択される１種以上を用いてもよい。

[0119] これらのシアン酸エステル化合物は、公知の方法により調製してもよく、市販品を用いてもよい。なお、ナフトールアラルキル骨格、ナフチレンエーテル骨格、キシレン骨格、トリスフェノールメタン骨格、またはアダマンタン骨格を有するシアン酸エステル化合物は、比較的、官能基当量数が大きく、未反応のシアン酸エステル基が少なくなるため、これらを用いた樹脂組成

物は低吸水性がより一層優れる傾向にある。また、芳香族骨格またはアダマンタン骨格を有することに主に起因して、めっき密着性がより一層向上する傾向にある。

[0120] 本実施形態の樹脂組成物が、シアン酸エステル化合物を含む場合、その含有量の下限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、１質量部以上であることが好ましく、５質量部以上であることがより好ましく、１０質量部以上であることがさらに好ましく、２０質量部以上であってもよい。シアン酸エステル化合物の含有量が上記下限値以上であることにより、耐熱性、耐燃焼性、耐薬品性、低誘電率、低誘電正接、絶縁性が向上する傾向にある。シアン酸エステル化合物の含有量の上限値は、本実施形態の樹脂組成物がシアン酸エステル化合物を含む場合、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、７０質量部以下であることが好ましく、６０質量部以下であることがより好ましく、５０質量部以下であることがさらに好ましく、４０質量部以下、３０質量部以下であってもよい。

本実施形態における樹脂組成物は、シアン酸エステル化合物を１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

また、本実施形態における樹脂組成物は、シアン酸エステル化合物を実質的に含まない構成とすることもできる。実質的に含まないとはシアン酸エステル化合物の含有量が樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、１質量部未満であることをいい、０．１質量部未満であることが好ましく、０．０１質量部未満であることがより好ましい。

[0121] ＜＜エポキシ化合物＞＞

本実施形態の樹脂組成物は、エポキシ化合物を含んでいてもよい。

エポキシ化合物は、１分子中に１以上（好ましくは２～１２、より好ましくは２～６、さらに好ましくは２～４、一層好ましくは２または３、より一層好ましくは２）のエポキシ基を有する化合物または樹脂であれば特に限定されず、プリント配線板の分野で通常用いられる化合物を広く用いることが

できる。

エポキシ化合物は、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、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、ブタジエン等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ロヒドリンとの反応により得られる化合物等が挙げられる。これらを用いることで、樹脂組成物の成形性、密着性が向上する。これらの中でも、難燃性および耐熱性をより一層向上させる観点から、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であることが好ましく、ビフェニルアラルキル型エポキシ樹脂であることがより好ましい。

[0122] 本実施形態の樹脂組成物は、エポキシ化合物を本発明の効果を損なわない範囲で含むことが好ましい。成形性、密着性の観点から、本実施形態の樹脂組成物がエポキシ化合物を含む場合、その含有量は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、０．１質量部以上であることが好ましく、１質量部以上であることがより好ましく、２質量部以上であることがさらに好ましい。エポキシ化合物の含有量が０．１質量部以上であることにより、金属箔ピール強度、靭性が向上する傾向にある。エポキシ化合物の含有量の上限値は、本実施形態の樹脂組成物がエポキシ化合物を含む場合、樹脂組成物中の

樹脂固形分１００質量部に対し、５０質量部以下であることが好ましく、３０質量部以下であることがより好ましく、２０質量部以下であることがさらに好ましく、１０質量部以下であることが一層好ましく、８質量部以下、５質量部以下であってもよい。エポキシ化合物の含有量が５０質量部以下であることにより、得られる硬化物の電気特性が向上する傾向にある。

本実施形態における樹脂組成物は、エポキシ化合物を１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

また、本実施形態における樹脂組成物は、エポキシ化合物を実質的に含まない構成とすることもできる。実質的に含まないとは、エポキシ化合物の含有量が樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、０．１質量部未満であることをいい、好ましくは０．０１質量部未満であり、さらには０．００１質量部未満であってもよい。

[0123] ＜＜フェノール化合物＞＞

本実施形態の樹脂組成物は、フェノール化合物を含んでいてもよい。

フェノール樹脂の詳細は、国際公開第２０２１／１７２３１７号の段落００４９の記載を参酌でき、この内容は本明細書に組み込まれる。

[0124] 本実施形態の樹脂組成物は、フェノール化合物を本発明の効果を損なわない範囲で含むことが好ましい。本実施形態の樹脂組成物がフェノール化合物を含む場合、その含有量は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、０．１質量部以上であることが好ましく、また、５０質量部以下であることが好ましい。

本実施形態における樹脂組成物は、フェノール化合物を１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

また、本実施形態における樹脂組成物は、フェノール化合物を実質的に含まない構成とすることもできる。実質的に含まないとは、フェノール化合物の含有量が樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、０．１質量部未

満であることをいう。

[0125] ＜＜（メタ）アリル基を含む化合物＞＞

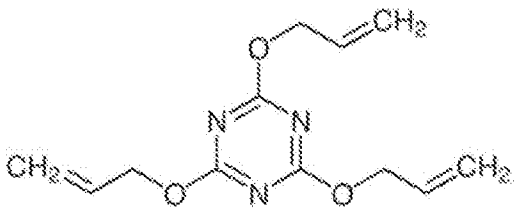
本実施形態の樹脂組成物は、（メタ）アリル基を含む化合物を含むことが好ましく、アリル基を含む化合物を含むことがより好ましい。

また、（メタ）アリル基を含む化合物は、（メタ）アリル基を２以上含む化合物であることが好ましく、アリル基を２以上含む化合物であることがより好ましい。

（メタ）アリル基を含む化合物としては、（メタ）アリルイソシアヌレート化合物、シアヌル酸トリ（メタ）アリル化合物、（メタ）アリル基置換ナジイミド化合物、グリコールウリル構造を有する（メタ）アリル化合物、および、ジアリルフタレートからなる群より選択される少なくとも１種を含むことが好ましく、（メタ）アリルイソシアヌレート化合物、（メタ）アリル基置換ナジイミド化合物、および、グリコールウリル構造を有する（メタ）アリル化合物からなる群より選択される少なくとも１種を含むことがより好ましく、（メタ）アリルイソシアヌレート化合物、および／または（メタ）アリル基置換ナジイミド化合物を含むことがさらに好ましく、（メタ）アリル基置換ナジイミド化合物を含むことが一層好ましい。

[0126] シアヌル酸トリ（メタ）アリル化合物としては、シアヌル酸トリ（メタ）アリル化合物（例えば、下記に構造を示すシアヌル酸トリアリル）などが例示される。

[化58]



また、（メタ）アリル基を含む化合物としては、国際公開第２０２２／２１００９５号に記載のアリル基を有する樹脂（例えば、同公報の合成例３、４、６、２０、２２に記載の化合物）が例示され、この内容は本明細書に組

み込まれる。

[0127] 本実施形態の樹脂組成物が、（メタ）アリル基を含む化合物を含む場合、その分子量は、１９５以上であることが好ましく、３００以上であることがより好ましく、４００以上であることがさらに好ましく、５００以上であることが一層好ましい。前記下限値以上とすることにより、低誘電性、耐熱性がより向上する傾向にある。（メタ）アリル基を含む化合物の分子量は、また、３０００以下であることが好ましく、２０００以下であることがより好ましく、１０００以下であることがさらに好ましく、８００以下であることが一層好ましい。前記上限値以下とすることにより、低熱膨張性がより向上する傾向にある。

[0128] 本実施形態の樹脂組成物が（メタ）アリル基を含む化合物を含む場合、その含有量は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、１質量部以上であることが好ましく、３質量部以上であることがより好ましく、５質量部以上であることがさらに好ましく、１０質量部以上であってもよい。（メタ）アリル基を含む化合物の含有量を上記下限値以上とすることにより、成形性に優れ、耐熱性がより向上する傾向にある。また、（メタ）アリル基を含む化合物の含有量の上限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、４０質量部以下であることが好ましく、３０質量部以下であることがより好ましく、２０質量部以下であることがさらに好ましい。（メタ）アリル基を含む化合物の含有量を上記上限値以下とすることにより、低熱膨張性がより向上する傾向にある。

本実施形態の樹脂組成物は、（メタ）アリル基を含む化合物を１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

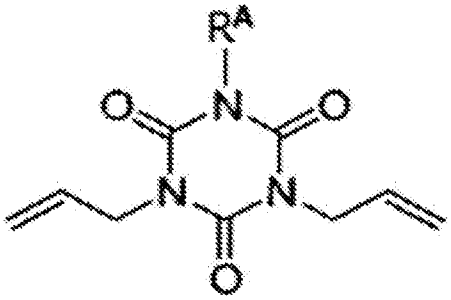
[0129] ＜＜＜（メタ）アリルイソシアヌレート化合物＞＞＞

（メタ）アリルイソシアヌレート化合物としては、（メタ）アリル基を２つ以上有し、かつ、イソシアヌレート環（ヌレート骨格）を有する化合物である限り、特に定めるものではない。（メタ）アリルイソシアヌレート化合

物は、架橋点となる（メタ）アリル基の数が多いため、樹脂（Ａ）およびポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）ならびに他の樹脂成分（例えば、他の化合物（Ｃ））と強固に硬化し、低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）、および、耐熱性に優れる硬化物が得られる傾向にある。（メタ）アリルイソシアヌレート化合物としては、式（ＴＡ）で表される化合物が好ましい。

式（ＴＡ）

[化59]



（式（ＴＡ）中、R^Aは、置換基を表す）。

[0130] 式（ＴＡ）中、R^Aは、置換基を表し、式量１５～５００の置換基であることがより好ましい。

[0131] R^Aの第一の例は、炭素数１～２２のアルキル基、または、炭素数２～２２のアルケニル基である。炭素数１～２２のアルキル基、または、炭素数２～２２のアルケニル基を有するアリル化合物を使用することによって、架橋性に優れ、かつ、高靭性を有する硬化物を得ることができる樹脂組成物を提供することができる。それにより、樹脂組成物にガラスクロスなどの基材を含めない場合であっても、エッチング処理などの際に割れたりすることを抑制できる。

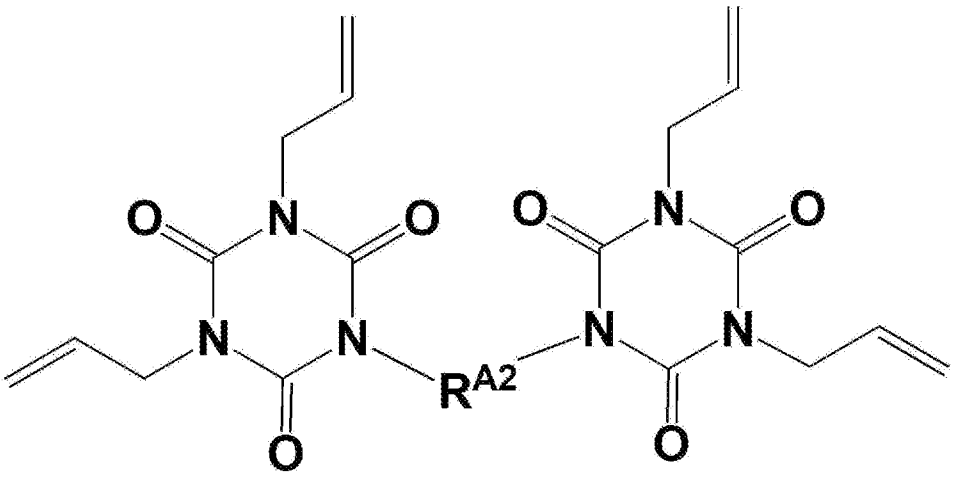
前記アルキル基および／またはアルケニル基の炭素数は、ハンドリング性向上の観点から、３以上が好ましく、８以上がより好ましく、さらには、１２以上であってもよく、１８以下であってもよい。それにより樹脂組成物の樹脂流れ性が良好となり、本実施形態の樹脂組成物を用いて多層回路基板などを作成する際の回路充填性などにより優れるようになると考えられる。

[0132] R^Aの第二の例は、アリルイソシアヌレート基を含む基である。R^Aがアリ

ルイソシアヌレート基を含む場合、式（ＴＡ）で表される化合物は、式（ＴＡ－１）で表される化合物であることが好ましい。

式（ＴＡ－１）

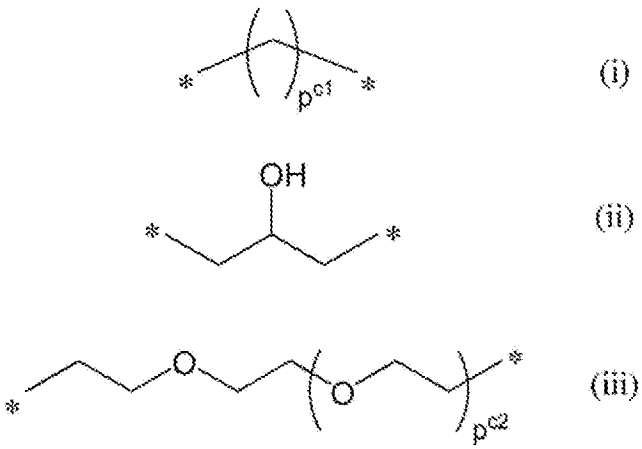
[化60]



（式（ＴＡ－１）中、R^{A2}は、２価の連結基である。）

[0133] 式（ＴＡ－１）中、R^{A2}は、式量が５４～２５０の２価の連結基であることが好ましく、式量が５４～２５０で、両末端が炭素原子である２価の連結基であることがより好ましく、炭素数２～２０の脂肪族炭化水素基であることがさらに好ましい（但し、脂肪族炭化水素基中にエーテル基を含んでいてもよく、また、水酸基を有していてもよい）。より具体的には、R^{A2}は、下記式（ｉ）～（iii）のいずれかで表される基であることが好ましい。

[化61]



（式中（ｉ）～（ｉｉｉ）中、ｐｃ1はメチレン基の繰り返し単位数を表し、２～１８の整数である。ｐｃ2はオキシエチレン基の繰り返し単位数を表し、０または１である。＊は結合部位である。）

前記ｐｃ1は、好ましくは２～１０の整数、より好ましくは３～８の整数、さらに好ましくは３～５の整数である。

前記ｐｃ2は、０であってもよいし、１であってもよいが、好ましくは１である。

[0134] ＲAの第三の例は、リン系置換基である。

[0135] ＲA2は第一の例であることが好ましい。

[0136] 本実施形態では、式（ＴＡ）で表される化合物の反応基（アリル基）当量が１０００ｇ／ｅｑ.以下であることが好ましい。前記当量が１０００ｇ／ｅｑ.以下であれば、高いＴｇをより確実に得ることができると考えられる。

[0137] 前記炭素数１～２２のアルキル基としては、直鎖状または分岐鎖状のアルキル基が挙げられ、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ドデシル基、テトラデシル基、ヘキサデシル基、オクタデシル基、エイコシル基、ドコシル基等が挙げられる。また、前記炭素数２～２２のアルケニル基としては、例えば、アリル基、デセニル基等が挙げられる。

[0138] 式（ＴＡ）で表される化合物の具体例としては、例えば、トリアリルイソシアヌレート、５－オクチル－１，３－ジアリルイソシアヌレート、５－ドデシル－１，３－ジアリルイソシアヌレート、５－テトラデシル－１，３－ジアリルイソシアヌレート、５－ヘキサデシル－１，３－ジアリルイソシアヌレート、５－オクタデシル－１，３－ジアリルイソシアヌレート、５－エイコシル－１，３－ジアリルイソシアヌレート、５－ドコシル－１，３－ジアリルイソシアヌレート、５－デセニル－１，３－ジアリルイソシアヌレートなどが挙げられる。これらは１種または２種以上を組み合わせて使用してもよく、プレポリマーとして使用してもよい。

[0139] 式（ＴＡ）で表される化合物の製造方法は、特に限定はされないが、例え

ば、ジアリルイソシアヌレートとアルキルハライドとをＮ，Ｎ’－ジメチルホルムアミド等の非プロトン性極性溶剤中において、水酸化ナトリウム、炭酸カリウム、トリエチルアミンなどの塩基性物質の存在下で、６０℃～１５０℃程度の温度で反応させることにより、得ることができる。

[0140] また、式（ＴＡ）で表される化合物は、市販のものを用いることもできる。市販されているものとしては、特に限定されないが、例えば、四国化成工業(株)製Ｌ－ＤＡＩＣ、リン系置換基を有する四国化成工業(株)Ｐ－ＤＡＩＣ、が挙げられる。トリアリルイソシアヌレートとしては、例えば、（株）新菱製ＴＡＩＣが挙げられる。式（ＴＡ－１）で表される化合物としては、例えば、四国化成工業(株)製ＤＤ－１が挙げられる。

[0141] （メタ）アリルイソシアヌレート化合物（好ましくは、式（ＴＡ）で表される化合物）の分子量は、２００以上であることが好ましく、３００以上であることがより好ましく、４００以上であることがさらに好ましく、５００以上であることが一層好ましい。前記分子量を上記下限値以上とすることにより、得られる硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）、耐熱性がより向上する傾向にある。また、（メタ）アリルイソシアヌレート化合物（好ましくは、式（ＴＡ）で表される化合物）の分子量は、３０００以下であることが好ましく、２０００以下であることがより好ましく、１０００以下であることがさらに好ましく、８００以下であることが一層好ましい。前記分子量を上記上限値以下とすることにより、得られる硬化物の低熱膨張性がより向上する傾向にある。

[0142] 本実施形態の樹脂組成物が（メタ）アリルイソシアヌレート化合物を含む場合、その含有量は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、１質量部以上であることが好ましく、３質量部以上であることがより好ましく、５質量部以上であることがさらに好ましく、１０質量部以上であってもよい。（メタ）アリルイソシアヌレート化合物の含有量を上記下限値以上とすることにより、樹脂組成物が成形性に優れ、得られる硬化物の耐熱性、低熱膨張性がより向上する傾向にある。また、（メタ）アリルイソシアヌレート化

合物の含有量の上限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、４０質量部以下であることが好ましく、３０質量部以下であることがより好ましく、２０質量部以下であってもよい。（メタ）アリルイソシアヌレート化合物の含有量を上記上限値以下とすることにより、得られる硬化物の耐熱性、低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）がより向上する傾向にある。

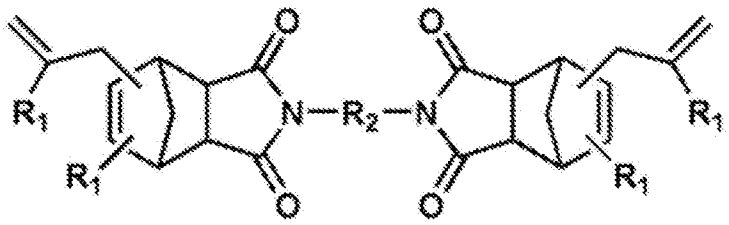
本実施形態の樹脂組成物は、（メタ）アリルイソシアヌレート化合物を１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

[0143] ＜＜＜（メタ）アリル基置換ナジイミド化合物＞＞＞

（メタ）アリル基置換ナジイミド化合物としては、分子中に２個以上の（メタ）アリル基置換ナジイミド基を有する化合物であれば、特に限定されるものではない。その具体例としては下記式（ＡＮ）で表される化合物が挙げられる。

式（ＡＮ）

[化62]



（式（ＡＮ）中、R_1は、それぞれ独立に、水素原子、または、炭素数１～６のアルキル基を表し、R_2は、炭素数１～６のアルキレン基、フェニレン基、ビフェニレン基、ナフチレン基、または、式（ＡＮ－２）または（ＡＮ－３）で表される基を表す。

式（ＡＮ－２）

[化63]



（式（ＡＮ－２）中、R_3は、メチレン基、イソプロピリデン基、－Ｃ（＝Ｏ）－、－Ｏ－、－Ｓ－、または、－Ｓ（＝Ｏ）$_2$－で表される基を表す。）

式（ＡＮ－３）

[化64]

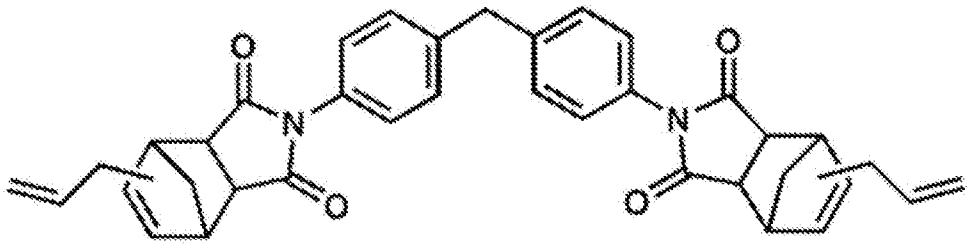


（式（ＡＮ－３）中、R_4は、それぞれ独立に、炭素数１～４のアルキレン基、または、炭素数５～８のシクロアルキレン基を表す。）

[0144] また、式（ＡＮ）で表される化合物は、市販のものを用いることもできる。市販されているものとしては、特に限定されないが、例えば、式（ＡＮ－４）で表される化合物（ＢＡＮＩ－Ｍ（丸善石油化学（株）製））、式（ＡＮ－５）で表される化合物（ＢＡＮＩ－Ｘ（丸善石油化学（株）製））などが挙げられる。これらは１種または２種以上を組み合わせて使用してもよい。

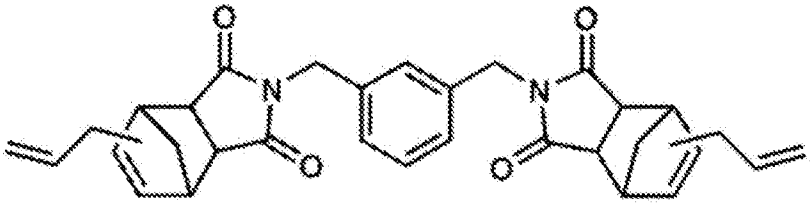
式（ＡＮ－４）

[化65]



式（ＡＮ－５）

[化66]



[0145] （メタ）アリル基置換ナジイミド化合物（好ましくは式（ＡＮ）で表され

る化合物）の分子量は、４００以上であることが好ましく、５００以上であることがより好ましく、５５０以上であってもよい。（メタ）アリル基置換ナジイミド化合物の分子量を上記下限値以上とすることにより、低誘電性、低熱膨張性、耐熱性がより向上する傾向にある。（メタ）アリル基置換ナジイミド化合物（好ましくは式（ＡＮ）で表される化合物）の分子量は、また、１５００以下であることが好ましく、１０００以下であることがより好ましく、８００以下であることがさらに好ましく、７００以下、６００以下であってもよい。（メタ）アリル基置換ナジイミド化合物の分子量を上記上限値以下とすることにより、成形性、ピール強度がより向上する傾向にある。

[0146] 本実施形態の樹脂組成物が（メタ）アリル基置換ナジイミド化合物（好ましくは式（ＡＮ）で表される化合物）を含む場合、その含有量は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、１質量部以上であることが好ましく、３質量部以上であることがより好ましく、５質量部以上であることがさらに好ましく、１０質量部以上であってもよい。（メタ）アリル基置換ナジイミド化合物の含有量を上記下限値以上とすることにより、成形性に優れ、低誘電性、低熱膨張性、耐熱性がより向上する傾向にある。また、（メタ）アリル基置換ナジイミド化合物（好ましくは式（ＡＮ）で表される化合物）の含有量の上限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、４０質量部以下であることが好ましく、３０質量部以下であることがより好ましく、２５質量部以下であることがさらに好ましく、２０質量部以下であってもよい。（メタ）アリル基置換ナジイミド化合物の含有量を上記上限値以下とすることにより、成形性、ピール強度がより向上する傾向にある。

本実施形態の樹脂組成物は、（メタ）アリル基置換ナジイミド化合物を１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

[0147] ＜＜＜グリコールウリル構造を有する（メタ）アリル化合物＞＞＞

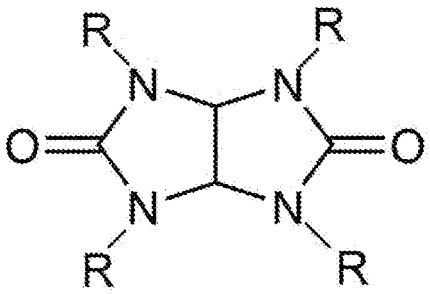
グリコールウリル構造を有する（メタ）アリル化合物としては、グリコールウリル構造と（メタ）アリル基を２つ以上含む化合物であれば、特に定め

るものではない。樹脂組成物にグリコールウリル構造を有する（メタ）アリル化合物を配合した場合も、（メタ）アリル基の数を多くすることができ、すなわち、架橋点を多くすることができる。そのため、（メタ）アリルイソシアヌレート化合物と同様に、樹脂（Ａ）およびポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）ならびに他の樹脂成分（例えば、他の化合物（Ｃ））と強固に硬化し、低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）、および、耐熱性に優れる硬化物が得られる傾向にある。

本実施形態において、グリコールウリル構造を有する（メタ）アリル化合物は、式（ＧＵ）で表される化合物が好ましい。

式（ＧＵ）

[化67]



（式（ＧＵ）中、Ｒは、それぞれ独立に、水素原子または置換基であり、Ｒの少なくとも２つは、（メタ）アリル基を含む基である。）

式（ＧＵ）中、Ｒは、それぞれ独立に、水素原子、炭素数１～５のアルキル基、または、炭素数２～５のアルケニル基であることが好ましく、炭素数２～５のアルケニル基であることが好ましく、（メタ）アリル基であることがより好ましく、アリル基であることがさらに好ましい。

式（ＧＵ）中、Ｒは、３つまたは４つが（メタ）アリル基を含む基であることが好ましく、４つが（メタ）アリル基を含む基であることがより好ましい。

[0148] 式（ＧＵ）で表される化合物の具体例としては、１，３，４，６－テトラアリルグリコールウリル（式（ＧＵ）において、Ｒが全てアリル基である化合物）が挙げられる。

[0149] また、式（ＧＵ）で表される化合物は、市販のものを用いることもできる。市販されているものとしては、特に限定されないが、例えば、四国化成工業社製ＴＡ－Ｇが挙げられる。

[0150] グリコールウリル構造を有する（メタ）アリル化合物（好ましくは式（ＧＵ）で表される化合物）の分子量は、１９５以上であることが好ましく、２２０以上であることがより好ましく、２５０以上であることがさらに好ましく、３００以上、４００以上であってもよい。グリコールウリル構造を有する（メタ）アリル化合物の分子量を上記下限値以上とすることにより、得られる硬化物の耐熱性、低熱膨張性がより向上する傾向にある。グリコールウリル構造を有する（メタ）アリル化合物（好ましくは式（ＧＵ）で表される化合物）の分子量は、また、１５００以下であることが好ましく、１０００以下であることがより好ましく、８００以下であることがさらに好ましく、７００以下、６００以下であってもよい。グリコールウリル構造を有する（メタ）アリル化合物の分子量を上記上限値以下とすることにより、得られる硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）、耐熱性がより向上する傾向にある。

[0151] 本実施形態の樹脂組成物がグリコールウリル構造を有する（メタ）アリル化合物（好ましくは式（ＧＵ）で表される化合物）を含む場合、その含有量は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、１質量部以上であることが好ましく、３質量部以上であることがより好ましく、５質量部以上であることがさらに好ましく、１０質量部以上であってもよい。グリコールウリル構造を有する（メタ）アリル化合物の含有量を上記下限値以上とすることにより、樹脂組成物が成形性に優れ、得られる硬化物の耐熱性および低熱膨張性がより向上する傾向にある。また、グリコールウリル構造を有する（メタ）アリル化合物（好ましくは式（ＧＵ）で表される化合物）の含有量の上限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、４０質量部以下であることが好ましく、３０質量部以下であることがより好ましく、２５質量部以下であることがさらに好ましく、２０質量部以下であってもよい。グリ

コールウリル構造を有する（メタ）アリル化合物の含有量を上記上限値以下とすることにより、得られる硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）がより向上する傾向にある。

本実施形態の樹脂組成物は、グリコールウリル構造を有する（メタ）アリル化合物を１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

[0152] ＜＜オキセタン樹脂＞＞

本実施形態の樹脂組成物は、オキセタン樹脂を含んでいてもよい。

オキセタン樹脂は、オキセタニル基を１以上（好ましくは２～１２、より好ましくは２～６、さらに好ましくは２～４、一層好ましくは２または３、より一層好ましくは２）有する化合物であれば、特に限定されず、プリント配線板の分野で通常用いられる化合物を広く用いることができる。

オキセタン樹脂としては、例えば、オキセタン、アルキルオキセタン（例えば、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）、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）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（東亞合成社製）、ＯＸＴ－１２１（東亞合成社製）等が挙げられる。

[0153] 本実施形態の樹脂組成物は、オキセタン樹脂を本発明の効果を損なわない範囲で含むことが好ましい。本実施形態の樹脂組成物が、オキセタン樹脂を含む場合、その含有量は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、０．１質量部以上であることが好ましく、１質量部以上であることがより好ましく、２質量部以上であることがさらに好ましい。オキセタン樹脂の含有量が０．１質量部以上であることにより、得られる硬化物の金属箔ピール強度および靭性が向上する傾向にある。オキセタン樹脂の含有量の上限値は、本実施形態の樹脂組成物が、オキセタン樹脂を含む場合、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、５０質量部以下であることが好ましく、３０

質量部以下であることがより好ましく、２０質量部以下であることがさらに好ましく、１０質量部以下であることが一層好ましく、８質量部以下であることがより一層好ましい。オキセタン樹脂の含有量が５０質量部以下であることにより、得られる硬化物の電気特性が向上する傾向にある。

本実施形態における樹脂組成物は、オキセタン樹脂を１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

また、本実施形態における樹脂組成物は、オキセタン樹脂を実質的に含まない構成とすることもできる。実質的に含まないとは、オキセタン樹脂の含有量が樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、０．１質量部未満であることをいう。

[0154] ＜＜ベンゾオキサジン化合物＞＞

本実施形態の樹脂組成物は、ベンゾオキサジン化合物を含んでいてもよい。

ベンゾオキサジン化合物としては、１分子中に２以上（好ましくは２～１２、より好ましくは２～６、さらに好ましくは２～４、一層好ましくは２または３、より一層好ましくは２）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特に限定されず、プリント配線板の分野で通常用いられる化合物を広く用いることができる。

ベンゾオキサジン化合物としては、例えば、ビスフェノールＡ型ベンゾオキサジンＢＡ－ＢＸＺ（小西化学社製）、ビスフェノールＦ型ベンゾオキサジンＢＦ－ＢＸＺ（小西化学社製）、ビスフェノールＳ型ベンゾオキサジンＢＳ－ＢＸＺ（小西化学社製）等が挙げられる。

[0155] 本実施形態の樹脂組成物は、ベンゾオキサジン化合物を本発明の効果を損なわない範囲で含むことが好ましい。本実施形態の樹脂組成物がベンゾオキサジン化合物を含む場合、その含有量は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、０．１質量部以上であることが好ましく、５０質量部以下であることが好ましい。

本実施形態における樹脂組成物は、ベンゾオキサジン化合物を１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

また、本実施形態における樹脂組成物は、ベンゾオキサジン化合物を実質的に含まない構成とすることもできる。実質的に含まないとは、ベンゾオキサジン化合物の含有量が樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、０．１質量部未満であることをいう。

[0156] ＜＜アリールシクロブテン樹脂＞＞

本実施形態の樹脂組成物は、アリールシクロブテン樹脂を含んでいてもよい。

この詳細は、特開２０１９－１９４３１２号公報の段落００４２に記載のアリールシクロブテン樹脂等が例示され、この内容は本明細書に組み込まれる。

[0157] ＜＜ポリアミド樹脂＞＞

本実施形態の樹脂組成物は、ポリアミド樹脂を含んでいてもよく、熱硬化性ポリアミド樹脂を含んでいてもよい。

この詳細は、特開２０１９－１９４３１２号公報の段落００６５に記載のポリアミドおよび特許第６９５１８２９号公報の段落００６３に記載のポリアミド等を参照することができ、この内容は本明細書に組み込まれる。

[0158] ＜＜ポリイミド樹脂＞＞

本実施形態の樹脂組成物は、ポリイミド樹脂を含んでいてもよく、熱硬化性ポリイミド樹脂を含んでいてもよい。

この詳細は、特許第６９５１８２９号の段落００６３～００６４に記載のポリイミド等を参照することができ、この内容は本明細書に組み込まれる。

[0159] ＜＜ペルフルオロビニルエーテル樹脂＞＞

本実施形態の樹脂組成物は、ペルフルオロビニルエーテル樹脂を含んでいてもよく、ペルフルオロビニルベンジルエーテル樹脂を含んでいてもよい。

この詳細は、特開２０１９－１９４３１２号公報の段落００４３に記載の

ペルフルオロビニルエーテル樹脂等が例示され、この内容は本明細書に組み込まれる。

[0160] ＜＜末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）以外のスチレン基を有する化合物＞＞

本実施形態の樹脂組成物は、末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）以外のスチレン基を有する化合物を含んでいてもよい。

これらの詳細は、国際公開第２０２２／２１００９５号に記載の末端にスチレンを有する化合物（例えば、同公報の合成例１２～１６に記載の化合物）、特開２０２２－８５６１０号公報の段落００２９～００３８の記載、特開２０１９－１９４３１２号公報の段落００４１に記載のビニルベンジルエーテル樹脂等が例示され、これらの内容は本明細書に組み込まれる。

[0161] ＜＜インダン骨格を有する樹脂（Ａ）以外のイソプロペニル基を有する化合物＞＞

本実施形態の樹脂組成物は、インダン骨格を有する樹脂（Ａ）以外のイソプロペニル基を有する化合物を含んでいてもよい。

これらの詳細は、国際公開第２０２２／２１００９５号に記載のイソプロペニル基を有する樹脂（例えば、同公報の合成例１、２、７、８に記載の化合物）が例示され、この内容は本明細書に組み込まれる。

[0162] ＜＜前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）以外の多官能（メタ）アクリレート化合物＞＞

本実施形態の樹脂組成物は、前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）以外の多官能（メタ）アクリレート化合物を含んでいてもよい。ここで、多官能（メタ）アクリレート化合物とは、一分子内に（メタ）アクリロイルオキシ基を２つ以上含む化合物を意味し、一分子内に（メタ）アクリロイルオキシ基を３つ以上含むことが好ましい。

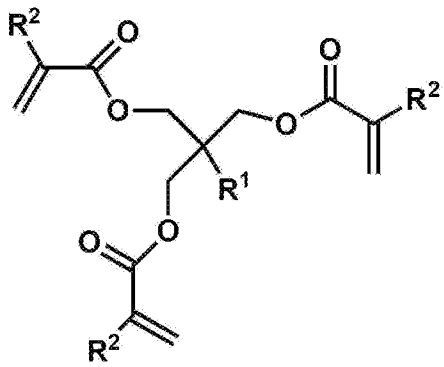
多官能（メタ）アクリレート化合物は、（メタ）アクリロイルオキシ基を

３つから５つ有している化合物であることが好ましく、（メタ）アクリロイルオキシ基を３つまたは４つ有している化合物であることがより好ましく、（メタ）アクリロイルオキシ基を３つ有している化合物であることがさらに好ましい。（メタ）アクリレート化合物は、メタアクリロイルオキシ基を有する化合物であることが好ましい。

多官能（メタ）アクリレート化合物は、架橋点となる（メタ）アクリレート基の数が多いため、樹脂（Ａ）およびポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）ならびに他の樹脂成分（例えば、他の化合物（Ｃ））と強固に硬化し、低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）、および、耐熱性に優れる硬化物が得られる。多官能（メタ）アクリレート化合物としては、式（ＭＡ）で表される化合物が好ましい。

式（ＭＡ）

[化68]



（式（ＭＡ）中、Ｒ[1]は、水素原子または置換基を表し、Ｒ[2]は、それぞれ独立に水素原子またはメチル基を表す。）

[0163] 式（ＭＡ）中、Ｒ[1]は、水素原子または置換基を表し、式量１５～５００の置換基であることがより好ましく、式量１５～３００の置換基であることがより好ましく、式量１５～１００の置換基であることがさらに好ましく、式量１５～５０の置換基であることが一層好ましい。

[0164] Ｒ[1]は、好ましくは炭化水素基または（メタ）アクリロイルオキシ基であり、より好ましくは炭素数２２以下の炭化水素基であり、さらに好ましくは炭素数１～２２のアルキル基、または、炭素数２～２２のアルケニル基である

。炭素数１～２２のアルキル基、または、炭素数２～２２のアルケニル基を有する化合物を使用することによって、架橋性に優れ、かつ、高靭性を有する硬化物を得ることができる樹脂組成物を提供することができる。それにより、樹脂組成物にガラスクロスなどの基材を含めない場合であっても、エッチング処理などの際に割れたりすることを抑制できる。

前記アルキル基および／またはアルケニル基の炭素数は、ハンドリング性向上の観点から、２以上が好ましく、８以上であってもよく、さらには、１２以上であってもよく、１８以下であってもよい。それにより樹脂組成物の樹脂流れ性が良好となり、本実施形態の樹脂組成物を用いて多層回路基板などを作成する際の回路充填性などにより優れるようになると考えられる。

[0165] 本実施形態では、式（ＭＡ）で表される化合物の（メタ）アクリル基当量が１０００ｇ／ｅｑ.以下であることが好ましい。前記当量が１０００ｇ／ｅｑ.以下であれば、高いＴｇをより確実に得ることができる傾向にある。（メタ）アクリル基当量の下限値は、例えば、９９ｇ／ｅｑ．以上である。

[0166] 前記炭素数１～２２のアルキル基としては、炭素数１～２２の直鎖状、または、炭素数３～２２分岐鎖状のアルキル基が好ましく、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ドデシル基、テトラデシル基、ヘキサデシル基、オクタデシル基、エイコシル基、ドコシル基等が挙げられる。また、前記炭素数２～２２のアルケニル基としては、炭素数２～１５のアルケニル基が好ましく、例えば、アリル基、デセニル基等が挙げられる。

[0167] 式（ＭＡ）で表される化合物の具体例としては、例えば、トリメチロールプロパントリメタクリレート、トリメチロールプロパントリアクリレート、ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレートなどが挙げられる。これらは１種または２種以上を組み合わせて使用してもよく、プレポリマーとして使用してもよい。

[0168] また、式（ＭＡ）で表される化合物は、市販のものを用いることもできる。市販されているものとしては、特に限定されないが、例えば、トリメチロ

ールプロパントリメタクリレートとして、新中村化学工業株式会社製「ＮＫエステルＴＭＰＴ」が挙げられる。

[0169] 多官能（メタ）アクリレート化合物の分子量は、３００以上であることが好ましく、３３０以上であることがより好ましく、４００以上であってもよく、５００以上であってもよい。前記分子量を上記下限値以上とすることにより、得られる硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）、耐熱性がより向上する傾向にある。また、（メタ）アクリレート化合物（好ましくは、式（ＭＡ）で表される化合物）の分子量は、３０００以下であることが好ましく、２０００以下であることがより好ましく、１０００以下であることがさらに好ましく、８００以下であることが一層好ましい。前記分子量を上記上限値以下とすることにより、得られる硬化物の低熱膨張性がより向上する傾向にある。

[0170] これらの詳細は、国際公開第２０２２／２１００９５号に記載の（メタ）アクリル基を有する樹脂（例えば、同公報の合成例５、２１に記載の化合物）および特許第６９６２５０７号の（メタ）アクリル基を有する樹脂（例えば、実施例１～９に記載の化合物）が例示され、この内容は本明細書に組み込まれる。

[0171] 本実施形態の樹脂組成物が多官能（メタ）アクリレート化合物を含む場合、その含有量は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、１質量部以上であることが好ましく、３質量部以上であることがより好ましく、５質量部以上であることがさらに好ましく、１０質量部以上であってもよい。多官能（メタ）アクリレート化合物の含有量を上記下限値以上とすることにより、樹脂組成物が成形性に優れ、得られる硬化物の耐熱性、低熱膨張性がより向上する傾向にある。また、（メタ）アクリレート化合物の含有量の上限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、４０質量部以下であることが好ましく、３０質量部以下であることがより好ましく、２０質量部以下であってもよい。多官能（メタ）アクリレート化合物の含有量を上記上限値以下とすることにより、得られる硬化物の耐熱性、低誘電特性（Ｄｋお

よび／またはＤｆ）がより向上する傾向にある。

本実施形態の樹脂組成物は、多官能（メタ）アクリレート化合物を１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

[0172] ＜＜エラストマー＞＞

本実施形態の樹脂組成物は、エラストマーを含んでいてもよい。エラストマーは熱可塑性であっても、熱硬化性であっても、熱可塑性および熱硬化性のいずれも示さなくてもよいが、熱可塑性が好ましい。

本実施形態におけるエラストマーは、特に限定されず、例えば、ポリイソプレン、ポリブタジエン、スチレンブタジエン、ブチルゴム、エチレンプロピレンゴム、スチレンブタジエンエチレン、スチレンブタジエンスチレン、スチレンイソプレンスチレン、スチレンエチレンブチレンスチレン、スチレンプロピレンスチレン、スチレンエチレンプロピレンスチレン、フッ素ゴム、シリコーンゴム、それらの水添化合物、それらのアルキル化合物、およびそれらの共重合体からなる群より選択される少なくとも１種が挙げられる。

また、エラストマーとしては、特開２０１９－１９４３１２号公報の段落００４４および００４５に記載の硬化性ビニル官能基を有するオリゴマーまたはポリマー、ポリブタジエン樹脂も例示され、これらの内容は本明細書に組み込まれる。

[0173] 本実施形態で用いるエラストマー（好ましくは熱可塑性エラストマー）の数平均分子量は、１０００以上であることが好ましい。数平均分子量を、１０００以上とすることにより、得られる硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ、特に、低誘電正接性）がより優れる傾向にある。数平均分子量は、１５００以上であることが好ましく、２０００以上であることがより好ましく、用途等に応じて、６００，０００以上、７００，０００以上、８００，０００以上であってもよい。エラストマーの数平均分子量の上限は、４００，０００以下であることが好ましく、３５０，０００以下であることがより好ましく、３００，０００以下であることがさらに好ましい。前記上限

値以下とすることにより、エラストマー成分の樹脂組成物への溶解性が向上する傾向にある。

本実施形態の樹脂組成物が２種以上のエラストマーを含む場合、それらの混合物の数平均分子量が上記範囲を満たすことが好ましい。

[0174] 本実施形態で用いるエラストマーは、ポリブタジエン構造を含む樹脂が挙げられる。ポリブタジエン構造は、一部または全てが、水素添加されていてもよい。具体例としては、日本曹達株式会社製、Ｂ－１０００、Ｂ－２０００、Ｂ－３０００、ＢＩ－２０００、ＢＩ－３０００、ＣＲＡＹ ＶＡＬＬＥＹ社製、Ｒｉｃｏｎ１００、Ｒｉｃｏｎ１３０、Ｒｉｃｏｎ１３１、Ｒｉｃｏｎ１４２、Ｒｉｃｏｎ１５０、Ｒｉｃｏｎ１８１、Ｒｉｃｏｎ１８４等が挙げられる。

[0175] 本実施形態で用いるエラストマーは、ポリ（メタ）アクリレート構造を含有する樹脂が挙げられる。具体例としては、ナガセケムテックス社製テイサンレジン、根上工業社製のＭＥ－２０００ 、Ｗ－１９７Ｃ、ＫＧ－１５、ＫＧ－３０００等が挙げられる。

[0176] 本実施形態で用いるエラストマーは、ポリカーボネート構造を含有する樹脂が挙げられる。ポリカーボネート構造を含有する樹脂を「ポリカーボネート樹脂」ということがある。このような樹脂としては、反応基を持たないカーボネート樹脂、ヒドロキシ基含有カーボネート樹脂、フェノール性水酸基含有カーボネート樹脂、カルボキシ基含有カーボネート樹脂、酸無水物基含有カーボネート樹脂、イソシアネート基含有カーボネート樹脂、ウレタン基含有カーボネート樹脂、エポキシ基含有カーボネート樹脂等が挙げられる。ここで反応基とは、ヒドロキシ基、フェノール性水酸基、カルボキシ基、酸無水物基、イソシアネート基、ウレタン基、およびエポキシ基等他の成分と反応し得る官能基のことをいう。

ポリカーボネート樹脂の具体例としては、三菱ガス化学社製のＦＰＣ０２２０、ＦＰＣ２１３６、旭化成ケミカルズ社製のＴ６００２、Ｔ６００１（ポリカーボネートジオール）等が挙げられる。

[0177] 本実施形態で用いるエラストマーは、ポリシロキサン構造を含有する樹脂が挙げられる。具体例としては、信越シリコーン社製のＳＭＰ－２００６、ＳＭＰ－２００３ＰＧＭＥＡ、ＳＭＰ－５００５ＰＧＭＥＡ、ＫＲ－５１０、ＳＭＰ－７０１４－３Ｓ等が挙げられる。

[0178] 本実施形態で用いるエラストマーは、ポリアルキレン構造および／またはポリアルキレンオキシ構造を含有する樹脂が挙げられる。ポリアルキレンオキシ構造は、炭素数２～１５のポリアルキレンオキシ構造が好ましく、炭素数３～１０のポリアルキレンオキシ構造がより好ましく、炭素数５～６のポリアルキレンオキシ構造が特に好ましい。ポリアルキレン構造および／またはポリアルキレンオキシ構造を含有する樹脂の具体例としては、旭化成せんい社製のＰＴＸＧ－１０００、ＰＴＸＧ－１８００等が挙げられる。

[0179] 本実施形態で用いるエラストマーは、ポリイソプレン構造を含有する樹脂が挙げられる。具体例としては、クラレ社製のＫＬ－６１０、ＫＬ６１３等が挙げられる。

[0180] 本実施形態で用いるエラストマーは、ポリイソブチレン構造を含有する樹脂が挙げられる。具体例としては、カネカ社製のＳＩＢＳＴＡＲ－０７３Ｔ（スチレン－イソブチレン－ スチレントリブロック共重合体）、ＳＩＢＳＴＡＲ －０４２Ｄ（ スチレン－イソブチレンジブロック共重合体）等が挙げられる。

[0181] 本実施形態において、エラストマーは、スチレン単量体単位と、共役ジエン単量体単位を含むエラストマー（以下、「エラストマー（ｅ）」と称する）が好ましい。このようなエラストマー（ｅ）を用いることにより、得られる硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ、特に、低誘電正接性）がより優れる。

[0182] 上記エラストマー（ｅ）は、スチレン単量体単位を含む。スチレン単量体単位を含むことにより、エラストマー（ｅ）の樹脂組成物への溶解性が向上する。スチレン単量体としては、スチレン、α－メチルスチレン、ｐ－メチルスチレン、ジビニルベンゼン（ビニルスチレン）、Ｎ，Ｎ－ジメチル－ｐ

－アミノエチルスチレン、Ｎ，Ｎ－ジエチル－ｐ－アミノエチルスチレン等が例示され、これらの中でも、入手性および生産性の観点から、スチレン、α－メチルスチレン、ｐ－メチルスチレンが好ましい。これらの中でもスチレンが特に好ましい。

上記エラストマー（ｅ）におけるスチレン単量体単位の含有量は、全単量体単位の１０～５０質量％の範囲が好ましく、１３～４５質量％の範囲がより好ましく、１５～４０質量％の範囲がさらに好ましい。スチレン単量体単位の含有量が５０質量％以下であれば、基材等との密着性、粘着性がより良好になる。また、１０質量％以上であれば、粘着昂進を抑制でき、糊残りやストップマークが生じにくく、粘着面同士の易剥離性が良好になる傾向にあるため好ましい。

エラストマー（ｅ）はスチレン単量体単位を１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲であることが好ましい。

本実施形態のエラストマー（ｅ）中のスチレン単量体単位の含有量の測定方法は、国際公開第２０１７／１２６４６９号の記載を参酌でき、この内容は本明細書に組み込まれる。後述する、共役ジエン単量体単位等についても同様である。

[0183] 上記エラストマー（ｅ）は、共役ジエン単量体単位を含む。共役ジエン単量体単位を含むことにより、エラストマー（ｅ）の樹脂組成物への溶解性が向上する。共役ジエン単量体としては、１対の共役二重結合を有するジオレフィンである限り、特に限定されない。共役ジエン単量体は、例えば、１，３－ブタジエン、２－メチル－１，３－ブタジエン（イソプレン）、２，３－ジメチル－１，３－ブタジエン、１，３－ペンタジエン、２－メチル－１，３－ペンタジエン、１，３－ヘキサジエン、および、ファルネセンが挙げられ、１，３－ブタジエン、および、イソプレンが好ましく、１，３－ブタジエンがより好ましい。

エラストマー（ｅ）は共役ジエン単量体単位を１種のみ含んでいてもよい

し、２種以上含んでいてもよい。

[0184] 上記エラストマー（ｅ）においては、スチレン単量体単位と共役ジエン単量体単位との質量比率が、スチレン単量体単位／共役ジエン単量体単位＝５／９５～８０／２０の範囲であることが好ましく、７／９３～７７／２３の範囲であることがより好ましく、１０／９０～７０／３０の範囲であることがさらに好ましい。スチレン重合体単位と共役ジエン単量体単位の質量比率が、５／９５～８０／２０の範囲であれば、粘着昂進を抑制し粘着力を高く維持でき、粘着面同士の易剥離性が良好になる。

[0185] 上記エラストマー（ｅ）は、エラストマーの共役ジエン結合の全部が水素添加されていてもよいし、一部水素添加されていてもよいし、水素添加されていなくてもよい。

[0186] 上記エラストマー（ｅ）は、スチレン単量体単位および共役ジエン単量体単位に加え、他の単量体単位を含んでいてもよいし、含んでいなくてもよい。他の単量体単位としては、スチレン単量体単位以外の芳香族ビニル化合物単位などが例示される。

上記エラストマー（ｅ）は、スチレン単量体単位および共役ジエン単量体単位の合計が全単量体単位の９０質量％以上であることが好ましく、９５質量％以上であることがより好ましく、９７質量％以上であることがさらに好ましく、９９質量％以上であることが一層好ましい。

上述の通り、エラストマー（ｅ）は、スチレン単量体単位および共役ジエン単量体単位を、それぞれ、１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

[0187] 本実施形態で用いるエラストマー（ｅ）は、ブロック重合体であっても、ランダム重合体であってもよい。また、共役ジエン単量体単位が水素添加された水添エラストマーであっても、水素添加されていない未水添エラストマーであっても、部分的に水素添加された部分水添エラストマーであってもよく、未水添エラストマーまたは部分水添エラストマーであることが好ましい。

本実施形態の一実施形態においては、エラストマー（ｅ）は、水添エラストマーである。ここで、水添エラストマーは、例えば、エラストマー中の共役ジエン単量体単位に基づく二重結合が水素添加されているものを意味し、水素添加率（水添率）が１００％のもののほか、８０％以上のものを含む趣旨である。水添エラストマーにおける水添率は、８５％以上が好ましく、９０％以上がより好ましく、９５％以上がさらに好ましい。本実施形態において、水添率は^{1}Ｈ－ＮＭＲスペクトル測定の測定結果から算出される。

本実施形態の一実施形態においては、エラストマー（ｅ）は、未水添エラストマーである。ここで、未水添エラストマーとは、エラストマー中の共役ジエン単量体単位に基づく二重結合のうち、水素添加されているものの割合、すなわち、水素添加率（水添率）が２０％以下のものをいう。水添率は、１５％以下が好ましく、１０％以下がより好ましく、５％以下がさらに好ましい。

一方、部分水添エラストマーは、エラストマー中の共役ジエン単量体単位に基づく二重結合の一部が水素添加されているものを意味し、通常、水素添加率（水添率）が８０％未満、２０％超であるものをいう。

[0188] 本実施形態で用いるエラストマー（ｅ）の市販品としては、株式会社クラレ製のＳＥＰＴＯＮ（登録商標）２１０４、Ｖ９４６１、Ｓ８１０４、旭化成株式会社製のＳ．Ｏ．Ｅ．（登録商標）Ｓ１６０６、Ｓ１６１３、Ｓ１６０９、Ｓ１６０５、旭化成株式会社製のタフテック（登録商標）のＨ１０４１、Ｈ１０４３、Ｐ２０００、ＭＰ１０、ＪＳＲ株式会社製、ＤＹＮＡＲＯＮ（登録商標）９９０１Ｐ、ＴＲ２２５０、等が例示される。

[0189] 本実施形態で用いるエラストマーは、また、液状ジエンであってもよい。液状ジエンとは、共役ジエン単量体単位を含む液状のエラストマーを意味する。共役ジエン単量体としては、１，３－ブタジエン、２－メチル－１，３－ブタジエン（イソプレン）、２，３－ジメチル－１，３－ブタジエン、１，３－ペンタジエン、２－メチル－１，３－ペンタジエン、１，３－ヘキサジエン、および、ファルネセンが挙げられ、１，３－ブタジエン、および、

イソプレンが好ましく、１，３－ブタジエンがより好ましい。

本実施形態で用いる液状ジエンとしては、液状ポリブタジエン、液状ポリイソプレン、液状ポリブタジエンの変性物、液状ポリイソプレンの変性物、液状アクリルニトリル－ブタジエンの共重合体、液状スチレン－ブタジエン共重合体が挙げられる。

また、液状ジエンの数平均分子量については、２０℃において液状である限り、特に限定されないが、好ましくは５００以上１０，０００以下である。

[0190] 本実施形態の樹脂組成物がエラストマー（好ましくは、エラストマー（ｅ））を含む場合、その含有量は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、１質量部以上であることが好ましく、５質量部以上であることがより好ましく、８質量部以上であることがさらに好ましく、用途等に応じて、１０質量部以上、１２質量部以上であってもよい。前記下限値以上とすることにより、誘電特性（低誘電正接性）がより向上する傾向にある。また、エラストマーの含有量の上限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、４５質量部以下であることが好ましく、４０質量部以下であることがより好ましく、３５質量部以下であることがさらに好ましく、３２質量部以下であることが一層好ましく、２８質量部以下であることがより一層好ましい。前記上限値以下とすることにより、耐熱性がより向上する傾向にある。

本実施形態の樹脂組成物は、エラストマーを１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

また、本実施形態における樹脂組成物は、エラストマーを実質的に含まない構成とすることもできる。実質的に含まないとはエラストマーの含有量が樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、１質量部未満であることをいい、０．１質量部未満であることが好ましく、０．０１質量部未満であることがより好ましい。

[0191] ＜＜石油樹脂＞＞

本実施形態の樹脂組成物は、石油樹脂を含んでいてもよい。石油樹脂を含むことにより、溶融粘度を低くすることができる。

石油樹脂は、石油ナフサを熱分解して必要な留分を採取した残りの成分を、不飽和炭化水素を単離することなく無触媒、もしくは、触媒存在下に重合して得られる樹脂である。前記残りの留分としては、主として、Ｃ５留分（イソプレン、ピペリレン、シクロペンタジエン、ペンテン類、ペンタン類等）またはＣ９留分（ビニルトルエン、インデン、ジシクロペンタジエン等）を含む留分である。

[0192] 石油樹脂の製造に用いられる触媒は、酸性触媒が好ましい。具体的には、三フッ化ホウ素フェノール錯体、三フッ化ホウ素エーテル錯体、塩化アルミニウム、臭化アルミニウム、塩化鉄（ＩＩＩ）、臭化鉄（ＩＩＩ）などのルイス酸、ゼオライト、シリカ、モンモリロナイト、アルミナ等の固体酸、スルホン酸基含有フッ素樹脂、スルホン酸基含有ポリスチレン樹脂等のイオン交換樹脂、硫酸、塩酸、酢酸、リン酸、シュウ酸、硝酸、パラトルエンスルホン酸、トリフルオロ酢酸等のプロトン酸等を用いることができる。これらの中でも、副反応が起こりにくく、反応速度が速い、ルイス酸や固体酸を用いることが好ましく、三フッ化ホウ素の各種錯体、塩化アルミニウムが入手のし易さや反応性が高い点でより好ましい。

[0193] 石油樹脂の重量平均分子量は特に制限されないが、好ましくは５００～１００００であり、より好ましくは５００～５０００である。前記上限値以下とすることにより、他の樹脂と相溶しやすくなり、かつ、溶剤への溶解性も高くなる傾向にある。前記下限値以上とすることにより、得られる硬化物の耐熱性や機械的強度がより向上する傾向にある。

[0194] 石油樹脂の軟化点は特に制限されないが、高いことが好ましく、８０℃以上であることが好ましく、１００℃以上であることがより好ましい。前記下限値以上とすることにより、得られる硬化物の耐熱性が向上する傾向にある。

[0195] 石油樹脂は、脂肪族系石油樹脂、芳香族系石油樹脂、共重合系石油樹脂、

ジシクロペンタジエン系石油樹脂が例示され、ジシクロペンタジエン系石油樹脂が好ましい。

ジシクロペンタジエン系石油樹脂としては、ジシクロペンタジエン、イソプロペニルノルボルネン、ジメチルジシクロペンタジエン、トリシクロペンタジエン等のジシクロペンタジエン系留分を重合して得られる樹脂、ジシクロペンタジエン系留分とその他の不飽和結合を有するモノマー、好ましくは不飽和環状オレフィン類を重合して得られる樹脂等が挙げられる。

[0196] 前記不飽和環状オレフィン類としては、シクロペンタジエン；２－ノルボルネン、５－メチル－２－ノルボルネン、５－エチリデン－２－ノルボルネン、５－フェニルノルボルネン、５－プロペニル－２－ノルボルネン，５－エチリデン－２－ノルボルネン等のノルボルネン系モノマー；さらに三環体以上のノルボルネン系モノマーとして、ジエチルジシクロペンタジエン，ジヒドロジシクロペンタジエン等のジシクロペンタジエン系留分以外の三環体、テトラシクロドデセン等の四環体、トリシクロペンタジエン等の五環体、テトラシクオロペンタジエン等の七環体およびこれらの多環体のアルキル置換体、アルキリデン置換体、アリール置換体等が挙げられる。前記多環体のアルキル置換体としては、例えば、メチル、エチル、プロピル、ブチル置換体等が挙げられ、また前記多環体のアルキリデン置換体としては、例えば、エチリデン置換体等が挙げられ、さらに前記多環体のアリール置換体としては、例えば、フェニル、トリル、ナフチル置換体等が挙げられる。

[0197] さらに、不飽和環状オレフィン類以外の、その他の不飽和結合を有するモノマーとしては、炭素数３～１２のオレフィンを共重合してもよく、例えば、プロピレン、ブテン－１、ペンテン－１、１，３－ペンタジエン、ヘキセン－１、ヘプテン－１、オクテン－１、ジイソブチンレン、ノネン－１、デセン－１、４－フェニルブテン－１、６－フェニルヘキセン－１、３－メチルブテン－１、４－メチルペンテン－１、３－メチルペンテン－１、３－メチルヘキセン－１、４－メチルヘキセン－１、５－メチルヘキセン－１、３，３－ジメチルペンテン－１、３，４－ジメチルペンテン－１、４，４－ジ

メチルペンテン－１、ビニルシクロヘキサン、ビニルシクロヘキセンなどのα－オレフィン；ヘキサフルオロプロペン、２－フルオロプロペン、３－フルオロプロペン、３，４－ジクロロブテン－１などのハロゲン置換α－オレフィン等が挙げられる。

[0198] 前記以外のその他の不飽和結合を有するモノマーとしては、例えば、エチレン、テトラフルオロエチレン、フルオロエチレン、１，１－ジフルオロエチレン、トリフルオロエチレン；スチレン、ｐ－メチルスチレン、ｏ－メチルスチレン、ｍ－メチルスチレン、２，４－ジメチルスチレン、２，５－ジメチルスチレン、３，４－ジメチルスチレン、３，５－ジメチルスチレン、ｐ－ｔ－ブチルスチレンなどのアルキルスチレン；ｐ－クロロスチレン、ｍ－クロロスチレン、ｏ－クロロスチレン、ｐ－ブロモスチレン、ｍ－ブロモスチレン、ｏ－ブロモスチレン、ｐ－フルオロスチレン、ｍ－フルオロスチレン、ｏ－フルオロスチレン、ｏ－メチル－ｐ－フルオロスチレンなどのハロゲン化スチレン；無水マレイン酸、マレイン酸、フマル酸、アリルアルコール、３－ブテン－２－オール、メチルブテン－１－オール、酢酸ビニル、塩化ビニルなどが挙げられる。

[0199] 前記モノマーは、単独で用いられてもよく、２種以上を併用してもよい。

[0200] 石油樹脂は市販のものを適宜使用することが可能であり、脂肪族系石油樹脂としては、日本ゼオン株式会社製クイントンＡ１００、クイントンＢ１７０、クイントンＫ１００、クイントンＭ１００、クイントンＲ１００、クイントンＣ２００Ｓ、丸善石油化学株式会社製マルカレッツＴ－１００ＡＳ、マルカレッツＲ－１００ＡＳ、芳香族系石油樹脂としては、ＪＸＴＧエネルギー株式会社製ネオポリマーＬ－９０、ネオポリマー１２０、ネオポリマー１３０、ネオポリマー１４０、ネオポリマー１５０、ネオポリマー１７０Ｓ、ネオポリマー１６０、ネオポリマーＥ－１００、ネオポリマーＥ－１３０、ネオポリマー１３０Ｓ、ネオポリマーＳ、東ソー株式会社製ペトコールＬＸ、ペトコールＬＸ－ＨＳ、ペトコール１００Ｔ、ペトコール１２０、ペトコール１２０ＨＳ、ペトコール１３０、ペトコール１４０、ペトコール１４

０ＨＭ、ペトコール１４０ＨＭ５、ペトコール１５０、ペトコール１５０ＡＳ、共重合系石油樹脂としては、日本ゼオン株式会社製クイントンＤ１００、クイントンＮ１８０、クイントンＰ１９５Ｎ、クイントンＳ１００、クイントンＳ１９５、クイントンＵ１８５、クイントンＧ１００Ｂ、クイントンＧ１１５、クイントンＤ２００、クイントンＥ２００ＳＮ、クイントンＮ２９５、東ソー株式会社製ペトロタック６０、ペトロタック７０、ペトロタック９０、ペトロタック９０Ｖ、ペトロタック１００、ペトロタック１００Ｖ、ペトロタック９０ＨＭ、ＤＣＰＤ（ジシクロペンタジエン）系石油樹脂としては、丸善石油化学株式会社製マルカレッツＭ－８９０Ａ、マルカレッツＭ－８４５Ａ、日本ゼオン株式会社製クイントン１３２５、クイントン１３４５、クイントン１５００、クイントン１５２５Ｌ、クイントン１７００、ＥＮＥＯＳ株式会社製ＨＡ０８５、ＨＡ１０３、ＨＡ１０５、ＨＡ１２５、ＨＢ１０３、ＨＢ１２５等が挙げられる。

また、石油樹脂としては、有機合成化学　第25巻第6号（1967）に記載のものも採用することができる。

[0201] 本実施形態の樹脂組成物が石油樹脂を含む場合、その含有量の下限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、１質量部以上であることが好ましく、５質量部以上であることがより好ましく、１０質量部以上であることがさらに好ましく、２０質量部以上であることが一層好ましく、２５質量部以上であることがより一層好ましい。前記下限値以上とすることにより、溶融粘度が低下する傾向にある。また、石油樹脂の含有量の上限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、７０質量部以下であることが好ましく、５０質量部以下であることがより好ましく、４０質量部以下であってもよい。前記上限値以下とすることにより、Ｄｆが低下する傾向にある。

本実施形態における樹脂組成物は、石油樹脂を１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

また、本実施形態における樹脂組成物は、石油樹脂を実質的に含まない構成とすることもできる。実質的に含まないとは石油樹脂の含有量が樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、１質量部未満であることをいい、０．１質量部未満であることが好ましく、０．０１質量部未満であることがより好ましい。

[0202] ＜充填材（Ｄ）＞

本実施形態の樹脂組成物は、充填材（Ｄ）を含むことが好ましい。充填材（Ｄ）を含むことにより、樹脂組成物やその硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）、耐燃性、低熱膨張性等の物性をより向上させることができる。

また、本実施形態で用いる充填材（Ｄ）は、低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）に優れることがより好ましい。例えば、本実施形態で用いる充填材（Ｄ）は、空洞共振器摂動法に従って測定した周波数１０ＧＨｚにおける比誘電率（Ｄｋ）が８．０以下であることが好ましく、６．０以下であることがより好ましく、４．０以下であることがさらに好ましい。また、比誘電率の下限値は、例えば、２．０以上が実際的である。また、本実施形態で用いる充填材（Ｄ）は、空洞共振器摂動法に従って測定した周波数１０ＧＨｚにおける誘電正接（Ｄｆ）が０．０５以下であることが好ましく、０．０１以下であることがより好ましい。また、誘電正接の下限値は、例えば、０．０００１以上が実際的である。

[0203] 本実施形態で使用される充填材（Ｄ）としては、その種類は特に限定されず、当業界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る。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、アルミナ、ホワイトカーボン、チタンホワイト、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化マグネシウム、酸化ジルコニウム等の金属酸化物、ホウ酸亜鉛、錫酸亜鉛、フォルステライト、チタン酸バリウム、チタン酸ストロンチウム、チタン酸カルシウム等の複合酸化物、窒化ホウ素、凝集窒化ホウ素、窒化ケイ素、窒化アルミニウム等の窒化物、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酸化物（水和物を含む）、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、硫酸バリウム、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、ＮＥＲ－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、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。

本実施形態においては、無機充填材が好ましく、シリカ、水酸化アルミニウム、窒化アルミニウム、窒化ホウ素、フォルステライト、酸化チタン、チタン酸バリウム、チタン酸ストロンチウム、および、チタン酸カルシウムからなる群より選択される１種以上を含むことがより好ましく、低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）の観点からは、シリカ、および、水酸化アルミニウム、からなる群より選択される１種以上を含むことがより好ましく、シリカを含むことがさらに好ましい。これらの無機充填材を使用することで、樹脂組成物の硬化物の耐熱性、低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）、熱膨張特性、寸法安定性、難燃性などの特性がより向上する。

[0204] 本実施形態の樹脂組成物における充填材（Ｄ）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１００質量部に対し、１０質量部以上であることが好ましく、２０質量部以上であることがより好ましく、４０質量部以上であることがさらに好ましく、６０質量部以上であることが一層好ましく、８０質量部以上であることがより一層好ましい。前記下限値以上とすることにより、得られる硬化物の耐熱性、低熱膨張性、低誘電正接性がより向上する傾向にある。また

、充填材（Ｄ）の含有量の上限値は、樹脂固形分１００質量部に対し、１０００質量部以下であることが好ましく、５００質量部以下であることがより好ましく、３００質量部以下であることがさらに好ましく、２５０質量部以下であることが一層好ましく、２００質量部以下、１２０質量部以下であってもよい。前記上限値以下とすることにより、樹脂組成物の成形性がより向上する傾向にある。

本実施形態の樹脂組成物において、好ましい実施形態の一例として、充填材（Ｄ）の含有量が溶剤を除く成分の３０質量％～９０質量％である態様が例示される。

本実施形態の樹脂組成物は、充填材（Ｄ）を１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

[0205] 本実施形態の樹脂組成物において、充填材（Ｄ）、特に無機充填材を用いる際、シランカップリング剤をさらに含んでもよい。シランカップリング剤を含むことにより、充填材（Ｄ）の分散性、樹脂成分と、充填材（Ｄ）および後述する基材との接着強度がより向上する傾向にある。

シランカップリング剤としては特に限定されず、一般に無機物の表面処理に使用されるシランカップリング剤が挙げられ、アミノシラン系化合物（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）、エポキシシラン系化合物（例えば、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン等）、ビニルシラン系化合物（例えば、ビニルトリメトキシシラン等）、スチリルシラン系化合物、アクリルシラン系化合物（例えば、γ－アクリロキシプロピルトリメトキシシラン等）、カチオニックシラン系化合物（例えば、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）、フェニルシラン系化合物等が挙げられる。シランカップリング剤は、１種を単独で、または２種以上を組み合わせて用いられる。

シランカップリング剤の含有量は、特に限定されないが、樹脂固形分１０

０質量部に対して、０．１～５．０質量部であってよい。

[0206] ＜エチレン性不飽和基を有するモノマーまたはオリゴマー＞

本実施形態の樹脂組成物には、熱硬化性および活性エネルギー線による硬化性（例えば紫外線による光硬化性等）を高めるために、エチレン性不飽和基を有するモノマーまたはオリゴマーを併用することも可能である。本実施形態に用いるエチレン性不飽和基を有するオリゴマーまたはモノマーは、１分子中に１個以上のエチレン性不飽和基を有するオリゴマーまたはモノマーであれば、特に限定されないが、例えば、ビニル基、イソプロペニル基、アリル基、（メタ）アクリロイル基等を有するモノマーまたはオリゴマーが挙げられ、ビニル基を有するモノマーまたはオリゴマーが好ましい。

尚、本明細書においては、エチレン性不飽和基を有するモノマーまたはオリゴマーに該当する化合物であって、ポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）にも該当する化合物は、ポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）とする。

[0207] より具体的には、エチレン性不飽和基を有するモノマーとしては、分子量が１，０００未満であり、かつ、分子内にエチレン性不飽和結合を含む有機基を１つ含む化合物（Ｆ１）（化合物（Ｆ１））が挙げられる。

前記エチレン性不飽和結合を含む有機基を構成するエチレン性不飽和結合は、芳香環の一部として含まれるものは含まない趣旨である。一方、非芳香環の一部として含まれるエチレン性不飽和結合は含む趣旨である。非芳香環の一部として含まれるエチレン性不飽和結合の例としては、分子中のシクロヘキセニル基などが挙げられる。また、直鎖または分岐鎖の有機基の末端以外の部分、すなわち、直鎖または分岐鎖中に含まれるエチレン性不飽和結合も含む趣旨である。

前記エチレン性不飽和結合を含む有機基は、ビニル基、イソプロペニル基、アリル基、アクリロイル基、および、メタクリル基からなる群より選択される１つであることがより好ましく、ビニル基であることがさらに好ましい。

また、本明細書においては、エチレン性不飽和基を有するモノマーまたは

オリゴマーに該当する化合物であって、シランカップリング剤にも該当する化合物は、シランカップリング剤とする。

[0208] 本実施形態で用いる化合物（Ｆ１）は、また、炭素原子、水素原子、酸素原子、窒素原子、およびケイ素原子から選択される原子のみで構成されていることが好ましく、炭素原子、水素原子、酸素原子、およびケイ素原子から選択される原子のみで構成されていることがより好ましく、炭素原子、水素原子、酸素原子、および酸素原子から選択される原子のみで構成されていることがさらに好ましい。

本実施形態で用いる化合物（Ｆ１）は、また、極性基を有していてもよいし、有していなくてもよい。本実施形態で用いる化合物（Ｆ１）は、極性基を有していない方が好ましい。極性基としては、アミノ基、カルボキシル基、ヒドロキシ基、ニトロ基が例示される。

[0209] 本実施形態において、化合物（Ｆ１）の分子量は７０以上であることが好ましく、８０以上であることがより好ましく、９０以上であることがさらに好ましい。前記下限値以上とすることにより、本実施形態の樹脂組成物やその硬化物等からの化合物（Ｆ１）の揮発を抑制できる傾向にある。前記化合物（Ｆ１）の分子量の上限は、５００以下であることが好ましく、４００以下であることがより好ましく、３００以下であることがさらに好ましく、２００以下であることが一層好ましく、１５０以下であってもよい。前記上限値以下とすることにより、他の樹脂成分との反応性を高める効果がより向上する傾向にある。

本実施形態の樹脂組成物が化合物（Ｆ１）を２種以上含む場合、化合物（Ｆ１）の平均分子量値が上記範囲に含まれることが好ましく、それぞれの化合物の分子量が上記好ましい範囲に含まれることがより好ましい。

[0210] 本実施形態において、化合物（Ｆ１）は沸点が１１０℃以上であることが好ましく、１１５℃以上であることがより好ましく、１２０℃以上であることがさらに好ましい。前記下限値以上とすることにより、樹脂組成物を熱硬化させる際の化合物（Ｆ１）の揮発が抑制され、他の化合物（Ｃ）と化合物

（Ｆ１）とを反応させることができる。前記化合物（Ｆ１）の沸点は、３００℃以下であることが好ましく、２５０℃以下であることがより好ましく、２００℃以下であることがさらに好ましい。前記上限値以下とすることにより、硬化物中に残溶剤として残りにくくすることができる。

本実施形態の樹脂組成物が化合物（Ｆ１）を２種以上含む場合、沸点の平均値が上記範囲に入ればよいが、それぞれの化合物の沸点が上記好ましい範囲に含まれることが好ましい。

[0211] 化合物（Ｆ１）としては、（メタ）アクリル酸エステル化合物、芳香族ビニル化合物（好ましくはスチレン系化合物）、イソプロペニル基含有化合物、飽和脂肪酸ビニル化合物、シアン化ビニル化合物、エチレン性不飽和カルボン酸、エチレン性不飽和カルボン酸無水物、エチレン性不飽和ジカルボン酸モノアルキルエステル、エチレン性不飽和カルボン酸アミド、無水マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、およびシトラコン酸をベースにした不飽和ポリエステル化合物；アクリロイル基またはメタクリロイル基を含有する不飽和エポキシ（メタ）アクリレート化合物；ビニル基または（メタ）アリル基を含有する不飽和エポキシ化合物、ウレタン（メタ）アクリレート化合物、ポリエーテル（メタ）アクリレート化合物、ポリアルコール（メタ）アクリレート化合物、アルキドアクリレート化合物、ポリエステルアクリレート化合物、スピロアセタールアクリレート化合物、ジアリルフタレート化合物、ジアリルテトラブロモフタレート化合物、ジエチレングリコールビスアリルカーボネートおよびポリエチレンポリチオールなどが例示され、（メタ）アクリル酸エステル化合物、芳香族ビニル化合物、および飽和脂肪酸ビニル化合物、からなる群より選択される少なくとも１種が好ましく、芳香族ビニル化合物がより好ましい。

化合物（Ｆ１）の具体例としては、メチルスチレン（例えば、４－メチルスチレン）、エチルビニルベンゼン、ジエチル４－ビニルベンジルホスホネート、４－ビニルベンジルグリシジルエーテル、α－メチルスチレン、等が例示される。また、化合物（Ｆ１）の具体例として、特開２０１９－１９４

３１２号公報の段落００４６および段落００４９の記載を参酌でき、この内容は本明細書に組み込まれる。

[0212] 一方、本実施形態に係る樹脂組成物は、低誘電率性および低誘電正接性向上のために、スチレンオリゴマー（Ｆ２）を含むことも好ましい。本実施形態に係るスチレンオリゴマー（Ｆ２）とは、スチレンおよび上記スチレン誘導体、ビニルトルエンからなる群より選択される少なくとも１種を重合してなることが好ましい。スチレンオリゴマー（Ｆ２）の数平均分子量は、１７８以上であることが好ましく、また、１６００以下であることが好ましい。また、スチレンオリゴマー（Ｆ２）は、平均の芳香環数が２～１４、芳香環数の２～１４の総量が５０質量％以上、沸点が３００℃以上である分岐構造のない化合物であることが好ましい。

[0213] 本実施形態に用いられるスチレンオリゴマー（Ｆ２）としては、例えば、スチレン重合体、ビニルトルエン重合体、α－メチルスチレン重合体、ビニルトルエン－α－メチルスチレン重合体、スチレン－α－スチレン重合体等が挙げられる。スチレン重合体としては、市販品を用いてもよく、例えばピコラスチックＡ５（イーストマンケミカル社製）、ピコラスチックＡ－７５（イーストマンケミカル社製）、ピコテックス７５（イーストマンケミカル社製）、ＦＴＲ－８１００（三井化学（株）製）、ＦＴＲ－８１２０（三井化学（株）製）が挙げられる。また、ビニルトルエン－α－メチルスチレン重合体としては、ピコテックスＬＣ（イーストマンケミカル社製）が挙げられる。また、α－メチルスチレン重合体としてはクリスタレックス３０７０（イーストマンケミカル社製）、クリスタレックス３０８５（イーストマンケミカル社製）、クリスタレックス（３１００）、クリスタレックス５１４０（イーストマンケミカル社製）、ＦＭＲ－０１００（三井化学（株）製）、ＦＭＲ－０１５０（三井化学（株）製）が挙げられる。また、スチレン－α－スチレン重合体としてはＦＴＲ－２１２０（三井化学（株）製）が挙げられる。これらのスチレンオリゴマーは単独で用いても、２種以上を併用してもよい。

本実施形態の樹脂組成物においては、α－メチルスチレンオリゴマーが、良好に熱硬化し、良好な微細配線の埋め込み性および半田耐熱性、低比誘電率、低誘電正接に優れることから好ましい。

[0214] また、本実施形態に係る樹脂組成物は、低誘電率性および低誘電正接性向上のために、エチレン性不飽和基を有するモノマーとして、ジビニル化合物（Ｆ３）を含むことも好ましい。

ジビニル化合物は、ビニル基を２つ有する低分子化合物である。ビニル基が２つであることにより、高まり過ぎない程度の良好な架橋密度となり、その結果、分子の自由体積が大きくなるため、得られる硬化物の誘電正接（Ｄｆ）を小さく抑えることができる。さらに、ジビニル化合物（Ｆ３）は、樹脂（Ａ）およびポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）、ならびに、他の化合物（Ｃ）の一部の代わりとして使用されるため、極性基を有する成分の含有量が低減されること自体も誘電正接（Ｄｆ）の低減に寄与すると考えられる。また、ジビニル化合物が有する官能基２つがいずれもビニル基であることによって、樹脂（Ａ）およびポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）との反応性が良好なものとなり、その結果、耐熱性が向上し易くなる傾向があると考えられる。

なお、ここでのジビニル化合物（Ｆ３）は、分子量が６００未満のものをいい、３００以下であることが好ましく、１９５未満であることがより好ましい。また、分子量の下限値は５４が実際的である。ジビニル化合物（Ｆ３）としては、ジビニルベンゼン、１－エチニル－４－［２－（４－エチニルフェニル）エチル］ベンゼン（ＢＶＰＥ）
、１，３－ビニルテトラメチルシロキサン等が挙げられる。

[0215] その他、エチレン性不飽和基を有するモノマーまたはオリゴマーとしては、１，３－ジイソプロペニルベンゼン、および、１，４－ジイソプロペニルベンゼンも好ましく用いられる。

その他、エチレン性不飽和基を有するモノマーまたはオリゴマーの詳細は、国際公開第２０１７／１３５１６８号の段落００６９～００８７の記載、

および、国際公開第２０１９／２３０９４５号の段落００６５～００６７を参酌でき、この内容は本明細書に組み込まれる。

[0216] 本実施形態の樹脂組成物がエチレン性不飽和基を有するモノマーまたはオリゴマーを含む場合、その含有量は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、０．５質量部以上であることが好ましく、１質量部以上であることがより好ましく、２質量部以上であることがさらに好ましく、３質量部以上であることが一層好ましく、さらには、５質量部以上であってもよい。前記下限値以上とすることにより、得られる硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）がより向上する傾向にある。また、エチレン性不飽和基を有するモノマーまたはオリゴマーの含有量の上限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、３０質量部以下であることが好ましく、２５質量部以下であることがより好ましく、２０質量部以下であることがさらに好ましく、１５質量部以下であることが一層好ましく、１０質量部以下であることがより一層好ましい。前記上限値以下とすることにより、得られる硬化物の耐熱性がより向上する傾向にある。また、低誘電率性、低誘電正接性および耐薬品性がより向上する傾向にある。

本実施形態の樹脂組成物は、エチレン性不飽和基を有するモノマーまたはオリゴマーを１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

[0217] ＜難燃剤＞

本実施形態の樹脂組成物は、難燃剤を含んでいてもよい。難燃剤としては、リン系難燃剤、ハロゲン系難燃剤、無機系難燃剤およびシリコーン系難燃剤が例示され、リン系難燃剤が好ましい。

難燃剤としては、公知のものが使用でき、例えば、臭素化エポキシ樹脂、臭素化ポリカーボネート、臭素化ポリスチレン、臭素化スチレン、臭素化フタルイミド、テトラブロモビスフェノールＡ、ペンタブロモベンジル（メタ）アクリレート、ペンタブロモトルエン、トリブロモフェノール、ヘキサブロモベンゼン、デカブロモジフェニルエーテル、ビス－１，２－ペンタブロ

モフェニルエタン、塩素化ポリスチレン、塩素化パラフィン等のハロゲン系難燃剤、赤リン、トリクレジルホスフェート、トリフェニルホスフェート、クレジルジフェニルホスフェート、トリキシレニルホスフェート、トリアルキルホスフェート、ジアルキルホスフェート、トリス（クロロエチル）ホスフェート、ホスファゼン、１，３－フェニレンビス（２，６－ジキシレニルホスフェート）、１０－（２，５－ジヒドロキシフェニル）－１０Ｈ－９－オキサ－１０－ホスファフェナントレン－１０－オキサイド等のリン系難燃剤、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、部分ベーマイト、ベーマイト、ホウ酸亜鉛、三酸化アンチモン等の無機系難燃剤、シリコーンゴム、シリコーンレジン等のシリコーン系難燃剤が挙げられる。

本実施形態においては、これらの中でも、１，３－フェニレンビス（２，６－ジキシレニルホスフェート）が得られる硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）を損なわないことから好ましい。

[0218] 本実施形態の樹脂組成物が難燃剤を含む場合、その含有量は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、１質量部以上であることが好ましく、５質量部以上であることがより好ましい。また、難燃剤の含有量の下限値は、３０質量部以下であることが好ましく、２５質量部以下であることがより好ましい。

難燃剤は、１種を単独で、または２種以上を組み合わせて用いることができる。２種以上用いる場合は、合計量が上記範囲となる。

[0219] ＜活性エステル化合物＞

本実施形態の樹脂組成物は、活性エステル化合物を含んでいてもよい。活性エステル化合物としては、特に限定されず、例えば、国際公開第２０２１／１７２３１７号の段落００６４～００６６の記載を参酌でき、この内容は本明細書に組み込まれる。

[0220] 本実施形態の樹脂組成物が活性エステル化合物を含む場合、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、１質量部以上であることが好ましく、また、９０質量部以下であることが好ましく、５０質量部以下であってもよい

。

本実施形態における樹脂組成物は、活性エステル化合物を１種のみ含んでいてもよいし、２種以上含んでいてもよい。２種以上含む場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

また、本実施形態における樹脂組成物は、活性エステル化合物を実質的に含まない構成とすることもできる。実質的に含まないとは、活性エステル化合物の含有量が樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、１質量部未満であることをいい、０．１質量部未満であることが好ましく、０．０１質量部未満であることがさらに好ましい。

[0221] ＜分散剤＞

本実施形態の樹脂組成物は、分散剤を含んでいてもよい。分散剤としては、一般に塗料用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。分散剤は、好ましくは、共重合体ベースの湿潤分散剤、フッ素を含有するフッ素系分散剤が使用される。

分散剤の具体例としては、ビックケミー・ジャパン（株）製のＤＩＳＰＥＲＢＹＫ（登録商標）－１１０、１１１、１６１、１８０、２００９、２１５２、２１５５、ＢＹＫ（登録商標）－Ｗ９９６、Ｗ９０１０、Ｗ９０３、Ｗ９４０、株式会社ネオス製のフタージェント、三菱鉛筆株式会社製ＭＰＴなどが挙げられる。

[0222] 本実施形態の樹脂組成物が分散剤を含む場合、その含有量の下限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、０．０１質量部以上であることが好ましく、０．１質量部以上であることがより好ましく、０．３質量部以上であってもよい。また、分散剤の含有量の上限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、１０質量部以下であることが好ましく、５質量部以下であることがより好ましく、３質量部以下であることがさらに好ましい。

分散剤は、１種を単独で、または２種以上を組み合わせて用いることができる。２種以上用いる場合は、合計量が上記範囲となる。

[0223] ＜硬化促進剤＞

本実施形態の樹脂組成物は、硬化促進剤をさらに含んでもよい。硬化促進剤としては、特に限定されないが、例えば、２－エチル－４－メチルイミダゾール、トリフェニルイミダゾール等のイミダゾール類；過酸化ベンゾイル、ビス（１－メチル－１－フェニルエチル）パーオキサイド）、ジ－ｔ－ブチルパーオキサイド、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、α，α’－ジ（ｔ－ブチルペルオキシ）ジイソプロピルベンゼン、２，５－ジメチル－２，５－ジ（ｔ－ブチルペルオキシ）ヘキサン、２，５－ジメチル－２，５－ビス（ｔ－ブチルペルオキシ）ヘキシン－３などの有機過酸化物；アゾビスニトリル（例えば、アゾビスイソブチロニトリル）などのアゾ化合物；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－メチルピペリジンなどの第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、カテコールなどのフェノール類；２，３－ジメチル－２，３－ジフェニルブタンなどの高温分解型ラジカル発生剤；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、オクチル酸マンガン、オレイン酸錫、ジブチル錫マレート、ナフテン酸マンガン、ナフテン酸コバルト、アセチルアセトン鉄などの有機金属塩；これら有機金属塩をフェノール、ビスフェノールなど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、塩化アルミニウムなどの無機金属塩；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などの有機錫化合物などが挙げられる。

硬化促進剤は、イミダゾール類、有機過酸化物、および有機金属塩からなる群より選択される少なくとも１種が好ましく、イミダゾール類および有機金属塩からなる群より選択される少なくとも１種がより好ましく、イミダゾ

ール類がさらに好ましい。

また、本実施形態においては、有機過酸化物、アゾ化合物などの重合開始剤を実質的に含まない構成とすることもできる。実質的に含まないとは、重合開始剤の含有量が樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、０．１質量部未満であることをいい、０．０１質量部未満であることが好ましく、０．００１質量部未満であることがより好ましい。

特に、末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）として、式（ＯＰ－１）で表されるポリフェニレンエーテル化合物を用いた時に、重合開始剤（硬化促進剤を含む）を実質的に含まない構成としても、十分に硬化させることができる。

[0224] 本実施形態の樹脂組成物が硬化促進剤を含む場合、その含有量の下限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、０．００５質量部以上であることが好ましく、０．０１質量部以上であることがより好ましく、０．１質量部以上であることがさらに好ましい。また、硬化促進剤の含有量の上限値は、樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対し、１０質量部以下であることが好ましく、５質量部以下であることがより好ましく、２質量部以下であることがさらに好ましい。

硬化促進剤は、１種を単独で、または２種以上を組み合わせて用いることができる。２種以上用いる場合は、合計量が上記範囲となる。

[0225] ＜溶剤＞

本実施形態の樹脂組成物は、溶剤を含有してもよく、有機溶剤を含むことが好ましい。溶剤を含有する場合、本実施形態の樹脂組成物は、上述した各種樹脂固形分の少なくとも一部、好ましくは全部が溶剤に溶解または相溶した形態（溶液またはワニス）である。溶剤としては、上述した各種樹脂固形分の少なくとも一部、好ましくは全部を溶解または相溶可能な極性有機溶剤または無極性有機溶剤であれば特に限定されず、極性有機溶剤としては、例えば、ケトン類（例えば、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）、セロソルブ類（例えば、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）、エステル類（例えば、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）、アミド類（例えば、ジメトキシアセトアミド、ジメチルホルムアミド類等）が挙げられ、無極性有機溶剤としては、芳香族炭化水素（例えば、トルエン、キシレン等）が挙げられる。

溶剤は、１種を単独で、または２種以上を組み合わせて用いることができる。２種以上用いる場合は、合計量が上記範囲となる。

[0226] ＜その他の成分＞

本実施形態の樹脂組成物は、上記の成分以外に、樹脂およびそのオリゴマー等の種々の高分子化合物、各種添加剤を含有してもよい。添加剤としては、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、流動調整剤、滑剤、消泡剤、レベリング剤、光沢剤、重合禁止剤等が挙げられる。これらの添加剤は、１種を単独で、または２種以上を組み合わせて用いることができる。

また、本実施形態の樹脂組成物は、重合禁止剤を実質的に含まない構成とすることもできる。実質的に含まないとは、樹脂組成物が重合禁止剤を含まないか、樹脂組成物中の重合禁止剤の含有量が、樹脂固形分１００質量部に対し、例えば、０．００８質量部未満であることであり、０．００７質量部以下であることが好ましく、０．００１質量部以下であることがさらに好ましく、０．０００１質量部以下であることが一層好ましい。

[0227] ＜用途＞

本実施形態の樹脂組成物は、硬化物として用いられる。具体的には、本実施形態の樹脂組成物は、低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ）を有する材料として、プリント配線板の絶縁層、半導体パッケージ用材料等、電子材料用樹脂組成物として好適に用いることができる。本実施形態の樹脂組成物は、プリプレグ、プリプレグを用いた金属箔張積層板、樹脂複合シート、およびプリント配線板用の材料として好適に用いることができる。

[0228] 本実施形態の樹脂組成物は、最低溶融粘度が１００，０００Ｐａ・ｓ以下であることが好ましく、２０，０００Ｐａ・ｓ以下であることがより好ましい。最低溶融粘度の下限値は、特に定めるものでは無いが、１０Ｐａ・ｓ以上が実際的である。このような低い溶融粘度は、樹脂（Ａ）および式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体を用いることによって達成される。

また、本実施形態の樹脂組成物は、（最低溶融温度＋１０℃）の粘度÷最低溶融粘度が８０倍以下であることが好ましく、２０倍以下であることがより好ましい。（最低溶融温度＋１０℃）の粘度÷最低溶融粘度が低いと、硬化反応がマイルドに進行し、ボイドの生成を効果的に抑制できる傾向にある。

最低溶融粘度は後述する実施例に記載する方法に従って測定される。

[0229] 本実施形態の樹脂組成物の最低溶融温度は、２１０℃以下であることが好ましく、２００℃以下であることがより好ましく、１９０℃以下であることがさらに好ましく、１８０℃以下であることが一層好ましく、１７５℃以下であることがより一層好ましい。下限値は、例えば、１２０℃以上が実際的である。

最低溶融温度は後述する実施例に記載する方法に従って測定される。

[0230] 本実施形態の樹脂組成物は、その硬化物のＤＭＡ（動的機械分析）に従ったガラス転移温度が、１３０℃以上であることが好ましく、１５０℃以上であることがより好ましく、１６５℃以上であることがさらに好ましく、１７５℃以上であることが一層好ましく、さらには、１８０℃以上、１９０℃以上であってもよい。

このような高いガラス転移温度は、主に、ポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）を用いることにより達成される。ガラス転移温度の上限値は、例えば、３５０℃以下が実際的である。

ガラス転移温度は後述する実施例に記載の方法に従って測定される。

[0231] 本実施形態の樹脂組成物は、その硬化物の比誘電率（Ｄｋ）が低いことが好ましい。具体的には、空洞共振器摂動法に従って測定した周波数１０ＧＨ

ｚにおける比誘電率（Ｄｋ）が２．５０以下であることが好ましく、２．４５未満であることがより好ましく、２．４４以下であることがさらに好ましい。比誘電率（Ｄｋ）の下限値については、特に定めるものではないが、例えば、０．０１以上が実際的である。

また、本実施形態の樹脂組成物は、その硬化物の誘電正接（Ｄｆ）が低いことが好ましい。具体的には、空洞共振器摂動法に従って測定した周波数１０ＧＨｚにおける誘電正接（Ｄｆ）が０．００２２未満であることが好ましく、０．００２１以下であることがより好ましく、０．００２０以下であることがさらに好ましく、０．００１８以下、０．００１５以下、０．００１４以下、０．００１３以下であってもよい。誘電正接（Ｄｆ）の下限値については、特に定めるものではないが、例えば、０．０００１以上が実際的である。

このような低誘電特性は、主に、樹脂（Ａ）および式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体を用いることにより達成される。

比誘電率（Ｄｋ）および誘電正接（Ｄｆ）は、後述する実施例に記載の方法で測定される。

[0232] 本実施形態の樹脂組成物は、プリント配線板の絶縁層となる、プリプレグ、樹脂複合シート等の層状（フィルム状、シート状等を含む趣旨である）の材料として用いられるが、かかる層状の材料としたとき、その厚さは、５μｍ以上であることが好ましく、１０μｍ以上であることがより好ましい。厚さの上限値としては、２００μｍ以下であることが好ましく、１８０μｍ以下であることがより好ましい。尚、上記層状の材料の厚さは、例えば、本実施形態の樹脂組成物をガラスクロス等に含浸させたものである場合、ガラスクロスを含む厚さを意味する。

本実施形態の樹脂組成物から形成される材料は、露光現像してパターンを形成する用途に用いてもよいし、露光現像しない用途に用いてもよい。特に、露光現像しない用途に適している。

[0233] ＜＜プリプレグ＞＞

本実施形態のプリプレグは、基材（プリプレグ基材）と、本実施形態の樹脂組成物とから形成される。本実施形態のプリプレグは、例えば、本実施形態の樹脂組成物を基材に適用（例えば、含浸および／または塗布）させた後、加熱（例えば、１２０～２２０℃で２～１５分乾燥させる方法等）によって半硬化させることにより得られる。この場合、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量（充填材（Ｄ）を含む）は、２０～９９質量％の範囲であることが好ましく、２０～８０質量％の範囲であることがより好ましい。

[0234] 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基材であれば特に限定されない。基材の材質としては、例えば、ガラス繊維（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、ＮＥＲ－ガラス、球状ガラス等）、ガラス以外の無機繊維（例えば、クォーツ等）、有機繊維（例えば、ポリイミド、ポリアミド、ポリエステル、液晶ポリエステル、ポリテトラフルオロエチレン等）が挙げられる。基材の形態としては、特に限定されず、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。これらの基材は、単独で用いても、２種以上を併用してもよい。これらの基材の中でも、寸法安定性の観点から、超開繊処理、目詰め処理を施した織布が好ましく、強度と低吸水性の観点から、基材は、厚み２００μｍ以下、質量２５０ｇ／ｍ^{2}以下のガラス織布が好ましく、吸湿耐熱性の観点から、エポキシシラン、アミノシランなどのシランカップリング剤等により表面処理されたガラス織布が好ましい。電気特性の観点から、Ｌ－ガラスやＮＥ－ガラスＮＥＲ－ガラス、Ｑ－ガラス等の低比誘電率、低誘電正接を示すガラス繊維からなる、低誘電ガラスクロスがより好ましい。

低比誘電率性の基材とは、例えば、比誘電率が５．０以下（好ましくは、３．０～４．９）の基材が例示される。低誘電正接性の基材とは、例えば、誘電正接が０．００６以下（好ましくは、０．００１～０．００５）の基材が例示される。比誘電率および誘電正接は、摂動法空洞共振器により、周波

数１０ＧＨｚで測定した値とする。

[0235] ＜＜金属箔張積層板＞＞

本実施形態の金属箔張積層板は、本実施形態のプリプレグから形成された少なくとも１つの層と、前記プリプレグから形成された層の片面または両面に配置された金属箔とを含む。本実施形態の金属箔張積層板の作製方法としては、例えば、本実施形態のプリプレグを少なくとも１枚配置し（好ましくは２枚以上重ね）、その片面または両面に金属箔を配置して積層成形する方法が挙げられる。より詳細には、プリプレグの片面または両面に銅、アルミニウム等の金属箔を配置して積層成形することにより作製できる。プリプレグの枚数としては、１～１０枚が好ましく、２～１０枚がより好ましく、２～９枚がさらに好ましい。金属箔としては、プリント配線板用材料に用いられるものであれば特に限定されないが、例えば、圧延銅箔、電解銅箔等の銅箔が挙げられる。金属箔（好ましくは、銅箔）の厚さは、特に限定されず、１．５～７０μｍ程度であってもよい。また、金属箔として銅箔を用いる場合、銅箔としては、ＪＩＳ　Ｂ０６０１：２０１３に従って測定した銅箔表面の粗度Ｒｚが、０．２～４．０μｍに調整されていることが好ましい。銅箔表面の粗度Ｒｚを０．２μｍ以上とすることにより、銅箔表面の粗度が適度な大きさとなり、銅箔ピール強度がより向上する傾向にある。一方、銅箔表面の粗度Ｒｚを４．０μｍ以下とすることにより、銅箔表面の粗度が適度な大きさとなり、誘電正接特性がより向上する傾向にある。銅箔表面の粗度Ｒｚは、誘電正接低減の観点から、より好ましくは０．５μｍ以上であり、さらに好ましくは０．６μｍ以上であり、特に好ましくは０．７μｍ以上であり、また、より好ましくは３．５μｍ以下であり、さらに好ましくは３．０μｍ以下であり、特に好ましくは２．０μｍ以下である。

[0236] 積層成形の方法としては、プリント配線板用積層板および多層板を成形する際に通常用いられる方法が挙げられ、より詳細には多段プレス機、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使用して、温度１８０～３５０℃程度、加熱時間１００～３００分程度、面圧２０～１００ｋｇ／

ｃｍ^{2}程度で積層成形する方法が挙げられる。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て積層成形することにより、多層板とすることもできる。多層板の製造方法としては、例えば、本実施形態のプリプレグ１枚の両面に３５μｍ程度の銅箔を配置し、上記の成形方法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、この後、この内層回路板と本実施形態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とにより、多層板を作製することができる。本実施形態の金属箔張積層板は、プリント配線板として好適に使用することができる。

[0237] 以上のように、本実施形態の樹脂組成物（特定成分の組合せからなる樹脂組成物）を用いて得られる電子材料用樹脂組成物は、樹脂組成物の成形性、その硬化物の低誘電特性（Ｄｋおよび／またはＤｆ、特に低誘電正接性）のほか、低比誘電率、耐クラック性、硬化物の外観、低熱膨張性、吸湿耐熱性に優れる特性を有するものとすることができる。

[0238] ＜＜プリント配線板＞＞

本実施形態のプリント配線板は、絶縁層と、前記絶縁層の表面に配置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、本実施形態の樹脂組成物から形成された層および本実施形態のプリプレグから形成された層の少なくとも一方を含む。このようなプリント配線板は、常法に従って製造でき、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。まず上述した銅箔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、基材および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。

[0239] 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および／またはその硬化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（例えば、基材およびこれに含浸または塗布された本実施形態の樹脂組成物から形成されたプリプレグ）、上述した本実施形態の金属箔張積層板の樹脂組成物から形成された層が、本実施形態の絶縁層となる。

また、本実施形態は、前記プリント配線板を含む半導体装置にも関する。半導体装置の詳細は、特開２０２１－０２１０２７号公報の段落０２００～０２０２の記載を参酌でき、これらの内容は本明細書に組み込まれる。

[0240] また、本実施形態の樹脂組成物の硬化物で形成された絶縁層は、その絶縁層の粗化処理後の表面粗さを小さくすることが好ましい。具体的には、粗化処理後の絶縁層の表面の算術平均粗さＲａは、好ましくは２００ｎｍ以下、より好ましくは１５０ｎｍ以下、特に好ましくは１００ｎｍ以下である。算術平均粗さＲａの下限値は、特に限定されないが、例えば、１０ｎｍ以上でありうる。絶縁層の表面の算術平均粗さＲａの測定は、非接触型表面粗さ計を用いて、ＶＳＩモード、５０倍レンズを用いて測定して求める。

非接触型表面粗さ計は、ビーコインスツルメンツ社製ＷＹＫＯＮＴ３３００を用いる。

[0241] ＜＜樹脂複合シート＞＞

本実施形態の樹脂複合シートは、支持体と、前記支持体の表面に配置された本実施形態の樹脂組成物から形成された層を含む。樹脂複合シートは、ビルドアップ用フィルムまたはドライフィルムソルダーレジストとして使用することができる。樹脂複合シートの製造方法としては、特に限定されないが

、例えば、上記の本実施形態の樹脂組成物を溶剤に溶解させた溶液を支持体に塗布（塗工）し乾燥することで樹脂複合シートを得る方法が挙げられる。

[0242] ここで用いる支持体としては、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、ならびに、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（Steel Use Stainless）板、ＦＲＰ（Fiber-Reinforced Plastics）等の板状のものが挙げられるが、特に限定されるものではない。

[0243] 塗布方法（塗工方法）としては、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、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方法が挙げられる。また、乾燥後に、支持体と樹脂組成物が積層された樹脂複合シートから支持体を剥離またはエッチングすることで、単層シートとすることもできる。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を得ることもできる。

[0244] なお、本実施形態の単層シートまたは樹脂複合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、低温であると樹脂組成物中に溶剤が残り易く、高温であると樹脂組成物の硬化が進行することから、２０℃～２００℃の温度で１～９０分間が好ましい。また、単層シートまたは樹脂複合シート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。さらに、本実施形態の単層シートまたは樹脂複合シートにおける樹脂層の厚みは、塗布（塗工）に用いる本実施形態の樹脂組成物の溶液の濃度と塗布厚みにより調整することができ、特に限定されないが、一般的には塗布厚みが厚くなると乾燥時に溶剤が残り易くなることから、０．１～５００μｍが好ましい。

実施例

[0245] 以下に実施例を挙げて本発明をさらに具体的に説明する。以下の実施例に示す材料、使用量、割合、処理内容、処理手順等は、本発明の趣旨を逸脱しない限り、適宜、変更することができる。従って、本発明の範囲は以下に示す具体例に限定されるものではない。

実施例で用いた測定機器等が廃番等により入手困難な場合、他の同等の性能を有する機器を用いて測定することができる。

[0246] ＜重量平均分子量および数平均分子量の測定＞

式（Ｔ１）で表される末端基を有し、かつ、インダン骨格を有する樹脂（Ａ）、末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体の重量平均分子量（Ｍｗ）および数平均分子量（Ｍｎ）は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィ（ＧＰＣ）法によって測定した。送液ポンプ（島津製作所社製、ＬＣ－２０ＡＤ）、示差屈折率検出器（島津製作所社製、ＲＩＤ－２０Ａ）、ＧＰＣカラム（昭和電工社製、ＧＰＣ　ＫＦ－８０１、８０２、８０３、８０４）を使用し、溶媒にテトラヒドロフラン、流量１．０ｍＬ／分、カラム温度４０℃、単分散ポリスチレンによる検量線を用いて行った。

[0247] ＜パラメーターα、βの測定＞

樹脂（Ａ）におけるパラメーターα、βは、^{1}Ｈ－ＮＭＲ測定により算出した。合成した樹脂をヘプタンとメタノールの混合溶媒に溶解し、乾固させる操作を繰り返し行うことで回収した固体に含まれる残存溶媒を除去した。その後、回収した固体を$CDCl_3$に溶解し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ測定を行った。測定した^{1}Ｈ－ＮＭＲにおいて下記に示す式を用いて各樹脂のパラメーターα、βを算出した。

[数2]

$$\text{パラメーター}\alpha=\frac{(2.55ppm\sim2.31ppm)}{(6.24ppm\sim5.91ppm)+(2.98ppm\sim2.55ppm)/2+(2.55ppm\sim2.31ppm)} \quad (\alpha)$$

$$\text{パラメーター}\beta=\frac{\{(5.49ppm\sim4.89ppm)-(4.89ppm\sim4.45ppm)\}\times1.5}{(2.31ppm\sim1.96ppm)-(2.55ppm\sim2.31ppm)} \quad (\beta)$$

（式（α）および式（β）における括弧内は、^{1}Ｈ－ＮＭＲにおける該当する化学シフト値間の積分値を示す。）

[0248] ＜合成例１　式（Ｔ１）で表される末端基を有し、かつ、インダン骨格を有する樹脂（Ａ）の合成＞

温度計、冷却管を取り付けた三口フラスコに、トルエン５２０ｇ、活性白土３ｇ、攪拌子を入れ、攪拌しながら内温７０℃まで加熱した。その後、１，３－ジイソプロペニルベンゼン（東京化成社製）１５０ｇを内温が８０℃を超えないように滴下速度を制御して滴下した。滴下後内温が７０℃に下がるまで撹拌した。その後、１，３－ジイソプロペニルベンゼン（東京化成社製）１５０ｇを同様に滴下し、滴下終了後さらに２時間反応させた。反応終了時にトルエン４３３ｇを添加し、濾過により活性白土を取り除いた。濾液を加熱減圧下にて溶剤を留去することにより、２３１ｇの固形樹脂を得た。

得られた樹脂（Ａ）のＭｗは２６７４であり、Ｍｎは１１５３であり、Ｍｗ／Ｍｎは２．３であり、式（Ｔｘ）において、パラメーターαは０．７１であり、パラメーターβは０．５０であり、ｎ＋ｏ＋ｐは６．３であった。（ａ）、（ｂ）、（ｃ）で示される括弧内の構造はすべて同一の分子量であり、合成された樹脂のＭｎを平均分子量と仮定してｎ＋ｏ＋ｐを算出した。また、ＧＰＣ分析により、残存モノマーが１質量％以下であることを確認した。

得られた樹脂について、図１にＮＭＲチャートを示した。

[0249] ＜合成例２　末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）＞

＜＜２官能フェニレンエーテルオリゴマーの合成＞＞

撹拌装置、温度計、空気導入管、および、じゃま板のついた１２Ｌの縦長反応器に$CuBr_2$９．６４ｇ（４３．２ｍｍｏｌ）、Ｎ，Ｎ’－ジ－ｔ－ブチルエチレンジアミン１．８６ｇ（１０．８ｍｍｏｌ）、ｎ－ブチルジメチルアミン６９．８３ｇ（６９０．１ｍｍｏｌ）、トルエン２，６００ｇを仕込み、反応温度４０℃にて撹拌を行い、予め２，３００ｇのメタノールに溶

解させた２，２’，３，３’，５，５’－ヘキサメチル－（１，１’－ビフェノール）－４，４’－ジオール１２９．３ｇ（０．４８ｍｏｌ）、２，６－ジメチルフェノール８７８．４ｇ（７．２ｍｏｌ）、Ｎ，Ｎ’－ジ－ｔ－ブチルエチレンジアミン１．２６ｇ（７．３ｍｍｏｌ）、ｎ－ブチルジメチルアミン２７．１９ｇ（２６８．７ｍｍｏｌ）の混合溶液を、窒素と空気とを混合して酸素濃度８体積％に調整した混合ガスを５．２Ｌ／分の流速でバブリングを行いながら２３０分かけて滴下し、撹拌を行った。滴下終了後、エチレンジアミン四酢酸四ナトリウム４８．０６ｇ（１２６．４ｍｍｏｌ）を溶解した水溶液１，５００ｇを加え、反応を停止した。水層と有機層を分液し、有機層を１Ｎの塩酸水溶液、次いで純水で洗浄した。得られた溶液をエバポレーターで５０質量％に濃縮し、２官能性フェニレンエーテルオリゴマー体（樹脂「Ｂ０」）のトルエン溶液を１９８０ｇ得た。樹脂「Ｂ０」のＧＰＣ法によるポリスチレン換算の数平均分子量は２１００、ＧＰＣ法によるポリスチレン換算の重量平均分子量は３７４０、水酸基当量は１０７０であった。

[0250] ＜＜変性ポリフェニレンエーテル化合物の合成＞＞

２官能性フェニレンエーテルオリゴマー体（Ｂ０）の５０質量％トルエン溶液７９２ｇをエバポレーターで乾固後、Ｎ，Ｎ－ジメチルアセトアミド２７７２ｇを加え、固形分が２０質量％になるまで濃縮を行い、２官能フェニレンエーテルオリゴマー体のＮ，Ｎ－ジメチルアセトアミド７９．８０質量％、トルエン０．２０質量％溶液（Ｂ０）１９８０ｇを得た。次に、撹拌装置、温度計、還流管を備えた反応器に、２官能フェニレンエーテルオリゴマー体溶液（Ｂ０）１９８０ｇ（ＯＨ当量で０．３７ｍｏｌ）、クロロメチルスチレン（ＣＭＳ－Ｐ）６７．７８ｇ（０．４４ｍｏｌ）を仕込み、５０℃に加熱撹拌した。反応温度を５０℃に保ちながらナトリウムメトキシドのメタノール溶液（濃度：２８．４質量％）８４．４８ｇ（０．４４ｍｏｌ）を滴下し、１時間撹拌した。さらにナトリウムメトキシドのメタノール溶液（濃度：２８．４質量％）９．７５ｇ（０．０５ｍｏｌ）を滴下し、２時間撹

拌した。その後、８５質量％のリン酸水溶液を５．９１ｇ（０．０５ｍｏｌ）加え、生成した無機塩を除去した後、反応溶液を１９７５ｇの水に滴下することで固形化し、遠心分離機で、固液分離を行った後、純水およびメタノールで洗浄した後、減圧乾燥して目的とするポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）３８１．８７ｇを得た。変性ポリフェニレンエーテル化合物のＧＰＣ法によるポリスチレン換算の数平均分子量は２３５０、重量平均分子量は３８８０、ビニル基当量は１２２０ｇ／ビニル基であった。

[0251] ＜合成例３　式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体（ｖａ）の合成＞

ジビニルベンゼン２．２５モル（２９２．９ｇ）、エチルビニルベンゼン１．３２モル（１７２．０ｇ）、スチレン１１．４３モル（１１９０．３ｇ）、酢酸ｎ－プロピル１５．０モル（１５３２．０ｇ）を反応器内に投入し、７０℃で６００ミリモルの三フッ化ホウ素のジエチルエーテル錯体を添加し、４時間反応させた。重合反応を炭酸水素ナトリウム水溶液で停止させた後、純水で３回油層を洗浄し、６０℃で減圧脱揮し、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体（ｖａ）を回収した。得られた式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体（ｖａ）を秤量して、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体（ｖａ）８６０．８ｇが得られたことを確認した。

[0252] 得られた式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体（ｖａ）の数平均分子量Ｍｎは２，０６０、重量平均分子量Ｍｗは３０，７００、単分散度Ｍｗ／Ｍｎは１４．９であった。^{13}Ｃ－ＮＭＲおよび^{1}Ｈ－ＮＭＲ分析を行うことにより、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体（ｖａ）には、原料として用いた各単量体単位に由来する共鳴線が観察された。ＮＭＲ測定結果、および、ＧＣ分析結果に基づき、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体（ｖａ）における各単量体単位（各原料に由来する構成単位）の割合は以下のように算出された。

ジビニルベンゼン由来の構成単位：２０．９モル％（２４．３質量％）

エチルビニルベンゼン由来の構成単位：９．１モル％(１０．７質量％)

スチレンに由来する構成単位：７０．０モル％（６５．０質量％）

また、ジビニルベンゼン由来の残存ビニル基をもつ構成単位は、１６．７モル％（１８．５質量％）であった。

[0253] 実施例１

上記合成例１で得られた樹脂（Ａ）２０質量部と合成例２で得られた末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）４０質量部と、合成例３で得られた式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体（ｖａ）４０質量部を、メチルエチルケトンおよびトルエンで溶解させて混合し、ワニスを得た。上述の各成分の配合量は固形分量での値を示す。

[0254] ＜厚さ１．０ｍｍの硬化板の試験片の製造＞

得られたワニスから溶剤を蒸発留去することで、樹脂組成物粉末を得た。得られた樹脂組成物の粉末を用いて、以下のようにして硬化板を作製した。ステンレス製の金型１００ｍｍ×３０ｍｍ×１．０ｍｍ高の枠に樹脂組成物の粉末を４．５ｇ敷き詰め、真空プレス機（北川精機株式会社製）にセットして、２００℃で１．５時間保持、面圧１．９ＭＰａでプレスを行った。得られた樹脂組成物の粉末または硬化板を用いて、最低溶融粘度、（最低溶融温度＋１０℃）の粘度÷最低溶融粘度、成形性、最低溶融温度、ガラス転移温度、比誘電率（Ｄｋ）、誘電正接（Ｄｆ）の評価を行った。評価結果を表１に示す。

[0255] ＜測定方法および評価方法＞

（１）最低溶融粘度、および、（最低溶融温度＋１０℃）の粘度÷最低溶融粘度

得られた樹脂組成物の粉末は、ＧＣ測定（ＧＣ－２０２５、株式会社島津製作所製）により残溶剤量が１質量％以下であることを確認した後、１ｇ採って直径２５ｍｍの錠剤に成形して測定用サンプルを作製し、粘弾性測定装置（ＡＲＥＳ－Ｇ２、ＴＡインスツルメント株式会社製）を用いて、昇温温度２℃／ｍｉｎ、周波数１０ｒａｄ／ｓの条件で測定して、最低溶融粘度（Ｐａ・ｓ）、および、（最低溶融温度＋１０℃）の粘度を求めた。

最低溶融粘度は、以下の通り評価した。

Ａ：２０，０００Ｐａ・ｓ以下

Ｂ：２０，０００Ｐａ・ｓ超１００，０００Ｐａ・ｓ以下

Ｃ：１００，０００Ｐａ・ｓ超

また、（最低溶融温度＋１０℃）の粘度÷最低溶融粘度の値を算出した。以下の通り評価した。

Ａ：２０倍以下

Ｂ：２０倍超８０倍以下

Ｃ：８０倍超

[0256] （２）成形性

成形性は、以下の通り評価した。

Ａ：上記最低溶融粘度と（最低溶融粘度＋１０℃）の粘度÷最低溶融粘度の値の評価結果が共にＡである。

Ｂ：上記最低溶融粘度と（最低溶融粘度＋１０℃）の粘度÷最低溶融粘度の値の評価結果がＡまたはＢであり、少なくとも一方はＢである。

Ｃ：上記最低溶融粘度と（最低溶融粘度＋１０℃）の粘度÷最低溶融粘度の値の評価結果にＣが含まれる。

[0257] （３）最低溶融温度

最低溶融粘度に達した時の温度を最低溶融温度とした。

単位は、℃で示した。

[0258] （４）ガラス転移温度

前記硬化板を１２．７ｍｍ×３０ｍｍにダウンサイジングしたサンプルについて、動的粘弾性測定装置を用い、ＪＩＳ　Ｃ６４８１　５．１７．２に準拠して、ＤＭＡ（動的機械分析：Ｄｙｎａｍｉｃ　Ｍｅｃｈａｎｉｃａｌ　Ａｎａｌｙｓｉｓ）曲げ法により測定を行い、得られた損失弾性率のピーク温度をガラス転移温度とした。単位は、℃で示した。

動的粘弾性分析装置は、ＤＭＡ　Ｑ８００、ＴＡインスツルメント株式会社製を用いた。

[0259] （５）比誘電率（Ｄｋ）および誘電正接（Ｄｆ）

前記硬化板を幅１．０ｍｍにダウンサイジングした後に、１２０℃で、６０分間乾燥させた後、摂動法空洞共振器を用いて、周波数１０ＧＨｚにおける乾燥後の比誘電率（Ｄｋ）および誘電正接（Ｄｆ）を測定した。測定温度は２３℃とした。

摂動法空洞共振器は、アジレントテクノロジー社製、Ａｇｉｌｅｎｔ８７２２ＥＳを用いた。

[0260] 実施例２

実施例１において、樹脂（Ａ）の含有量を２５質量部に、ポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）の含有量を５０質量部に、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体（ｖａ）の含有量を２５質量部に変更し、他は同様に行った。

[0261] 比較例１

実施例１において、樹脂（Ａ）および式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体（ｖａ）を用いず、ポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）の含有量を１００質量部に変更し、他は同様に行った。

[0262] 比較例２

実施例１において、樹脂（Ａ）およびポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）を用いず、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体（ｖａ）の含有量を１００質量部に変更し、他は同様に行った。

[0263]

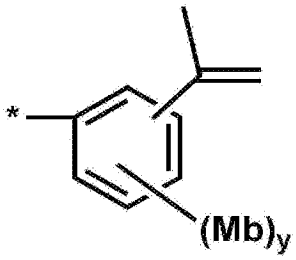
[表1]

	単位	実施例1	実施例2	比較例1	比較例2
最低溶融粘度	Pa・s	1280	2030	22,800	17
	−	A	A	B	A
(最低溶融温度＋10℃)の粘度÷最低溶融粘度の値	−	A	A	A	C
成形性	−	A	A	B	C
最低溶融温度	℃	160	163	169	148
Tg(DMA)	℃	182	167	210	128
Dk @10GHz	−	2.36	2.35	2.42	2.38
Df @10GHz	−	0.0010	0.0012	0.0022	0.0009

請求の範囲

[請求項1] 式（Ｔ１）で表される末端基を有し、かつ、インダン骨格を有する樹脂（Ａ）１００質量部に対し、末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）１０～３００質量部と、式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体１０～３００質量部とを含む、樹脂組成物。

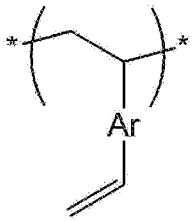
[化1]



(T1)

（式（Ｔ１）中、Ｍｂは、それぞれ独立にハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～１２の炭化水素基を表し、ｙは０～４の整数を表す。＊は他の部位との結合位置を表す。）

[化2]

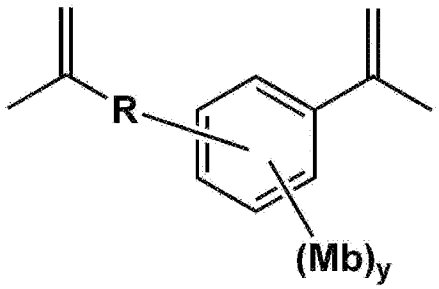


(V)

（式（Ｖ）中、Ａｒは芳香族炭化水素連結基を表す。＊は、結合位置を表す。）

[請求項2] 前記樹脂（Ａ）が、式（Ｔ１－１）で表される樹脂を含む、請求項１に記載の樹脂組成物。

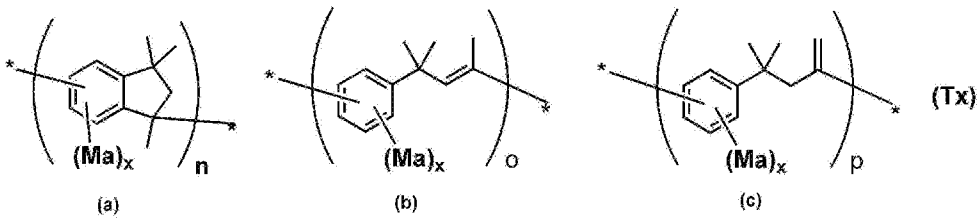
[化3]



(T1-1)

（式（Ｔ１－１）中、Ｒは、式（Ｔｘ）で表される構成単位を含む基である。Ｍｂは、それぞれ独立にハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～１２の炭化水素基を表す。ｙは０～４の整数である。）

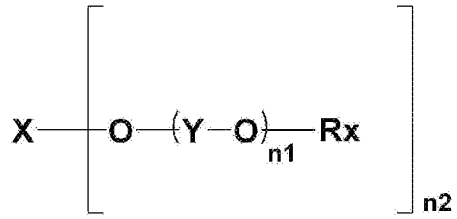
[化4]



（式（Ｔｘ）中、ｎ、ｏ、およびｐは、平均繰り返し単位数であり、ｎは０超２０以下の数を表し、ｏおよびｐは、それぞれ独立して０～２０の数を表し、１．０≦ｎ＋ｏ＋ｐ≦２０．０である。Ｍａは、それぞれ独立にハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～１２の炭化水素基を表す。ｘは０～４の整数を表す。構成単位（ａ）、（ｂ）、（ｃ）は、それぞれ＊で構成単位（ａ）、（ｂ）、（ｃ）、または他の基と結合しており、各構成単位はランダムに結合していてもよい。）

[請求項3] 前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）が、式（ＯＰ）で表されるポリフェニレンエーテル化合物を含む、請求項１または２に記載の樹脂組成物。

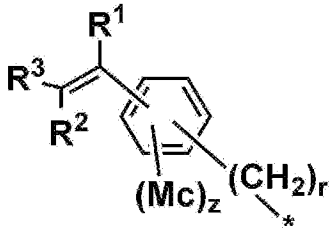
[化5]



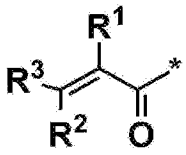
(OP)

（式（ＯＰ）中、Ｘは芳香族基を表し、－（Ｙ－Ｏ）$_{n1}$－はポリフェニレンエーテル構造を表し、ｎ１は１～１００の整数を表し、ｎ２は１～４の整数を表す。Ｒｘは、式（Ｒｘ－１）または式（Ｒｘ－２）で表される基である。）

[化6]



(Rx-1)

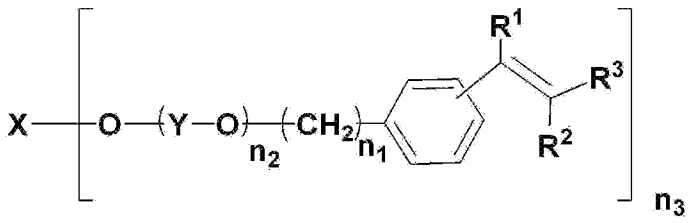


(Rx-2)

（式（Ｒｘ－１）および式（Ｒｘ－２）中、Ｒ^{1}、Ｒ^{2}、および、Ｒ^{3}は、それぞれ独立に、水素原子、アルキル基、アルケニル基、またはアルキニル基を表す。＊は、酸素原子との結合部位である。Ｍｃは、それぞれ独立に炭素数１～１２の炭化水素基を表す。ｚは０～４の整数を表す。ｒは１～６の整数を表す。）

[請求項4] 前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）が、式（ＯＰ－１）で表されるポリフェニレンエーテル化合物を含む、請求項１または２に記載の樹脂組成物。

[化7]



(OP-1)

（式（ＯＰ－１）中、Ｘは芳香族基を表し、－（Ｙ－Ｏ）ｎ$_{2}$－はポ

リフェニレンエーテル構造を表し、R^1、R^2、および、R^3は、それぞれ独立して、水素原子、アルキル基、アルケニル基またはアルキニル基を表し、n_1は１～６の整数を表し、n_2は１～１００の整数を表し、n_3は１～４の整数を表す。）

[請求項5] 前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）の数平均分子量（Ｍｎ）が５００～３０００であり、かつ、重量平均分子量（Ｍｗ）が８００～６０００である、請求項１または２に記載の樹脂組成物。

[請求項6] 前記樹脂（Ａ）の数平均分子量（Ｍｎ）が４００～３０００である、請求項１または２に記載の樹脂組成物。

[請求項7] 前記樹脂（Ａ）と前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）の合計１００質量部に対する、樹脂（Ａ）の質量比率が、１０～５０質量部である、請求項１または２に記載の樹脂組成物。

[請求項8] 重合禁止剤を実質的に含まない、請求項１または２に記載の樹脂組成物。

[請求項9] さらに、前記樹脂（Ａ）、前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）および前記式（Ｖ）で表される構成単位を有する重合体以外の他の化合物（Ｃ）を含む、請求項１または２に記載の樹脂組成物。

[請求項10] 前記他の化合物（Ｃ）が、マレイミド化合物、シアン酸エステル化合物、エポキシ化合物、フェノール化合物、（メタ）アリル基を含む化合物、オキセタン樹脂、ベンゾオキサジン化合物、アリールシクロブテン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ペルフルオロビニルエーテル樹脂、前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）以外のスチレン基を有する化合物、前記インダン骨格を有する樹脂（Ａ）以外のイソプロペニル基を有する化合物、前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレン

エーテル化合物（Ｂ）以外の多官能（メタ）アクリレート化合物、エラストマー、ならびに、石油樹脂からなる群より選択される１種以上を含む、請求項９に記載の樹脂組成物。

[請求項11] 前記樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対する、前記樹脂（Ａ）および前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）の合計含有量が４０質量部以上である、請求項１または２に記載の樹脂組成物。

[請求項12] さらに、充填材（Ｄ）を含む、請求項１または２に記載の樹脂組成物。

[請求項13] 前記樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対する、前記充填材（Ｄ）の含有量が、１０～１０００質量部である、請求項１２に記載の樹脂組成物。

[請求項14] 前記樹脂（Ａ）が、式（Ｔ１－１）で表される樹脂を含み、

前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）が、式（ＯＰ－１）で表されるポリフェニレンエーテル化合物を含み、

前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）の数平均分子量（Ｍｎ）が５００～３０００であり、かつ、重量平均分子量（Ｍｗ）が８００～６０００であり、

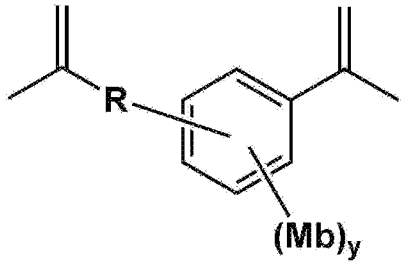
前記樹脂（Ａ）の数平均分子量（Ｍｎ）が４００～３０００であり、

前記樹脂（Ａ）と前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）の合計１００質量部に対する、樹脂（Ａ）の質量比率が、１０～５０質量部であり、

重合禁止剤を実質的に含まず、

前記樹脂組成物中の樹脂固形分１００質量部に対する、前記樹脂（Ａ）および前記末端に炭素－炭素不飽和二重結合を有するポリフェニレンエーテル化合物（Ｂ）の合計含有量が４０質量部以上である、請求項１に記載の樹脂組成物。

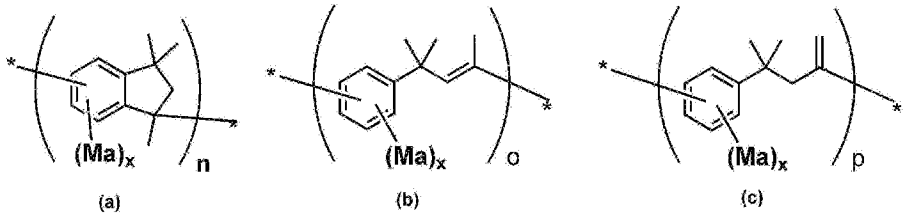
[化8]



(T1-1)

（式（Ｔ１－１）中、Ｒは、式（Ｔｘ）で表される構成単位を含む基である。Ｍｂは、それぞれ独立にハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～１２の炭化水素基を表す。ｙは０～４の整数である。）

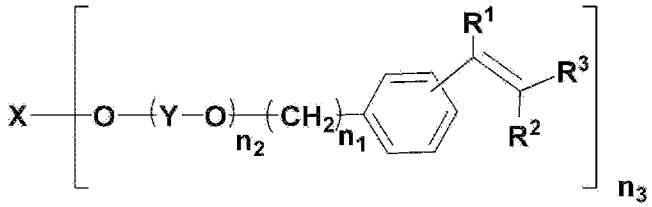
[化9]



(Tx)

（式（Ｔｘ）中、ｎ、ｏ、およびｐは、平均繰り返し単位数であり、ｎは０超２０以下の数を表し、ｏおよびｐは、それぞれ独立して０～２０の数を表し、１．０≦ｎ＋ｏ＋ｐ≦２０．０である。Ｍａは、それぞれ独立にハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～１２の炭化水素基を表す。ｘは０～４の整数を表す。構成単位（ａ）、（ｂ）、（ｃ）は、それぞれ＊で構成単位（ａ）、（ｂ）、（ｃ）、または他の基と結合しており、各構成単位はランダムに結合していてもよい。）

[化10]



(OP-1)

（式（ＯＰ－１）中、Ｘは芳香族基を表し、－（Ｙ－Ｏ）$_{n2}$－はポ

リフェニレンエーテル構造を表し、R^1、R^2、および、R^3は、それぞれ独立して、水素原子、アルキル基、アルケニル基またはアルキニル基を表し、n_1は１～６の整数を表し、n_2は１～１００の整数を表し、n_3は１～４の整数を表す。）

[請求項15] 請求項１、２または１４に記載の樹脂組成物の硬化物。

[請求項16] 基材と、請求項１、２または１４に記載の樹脂組成物とから形成された、プリプレグ。

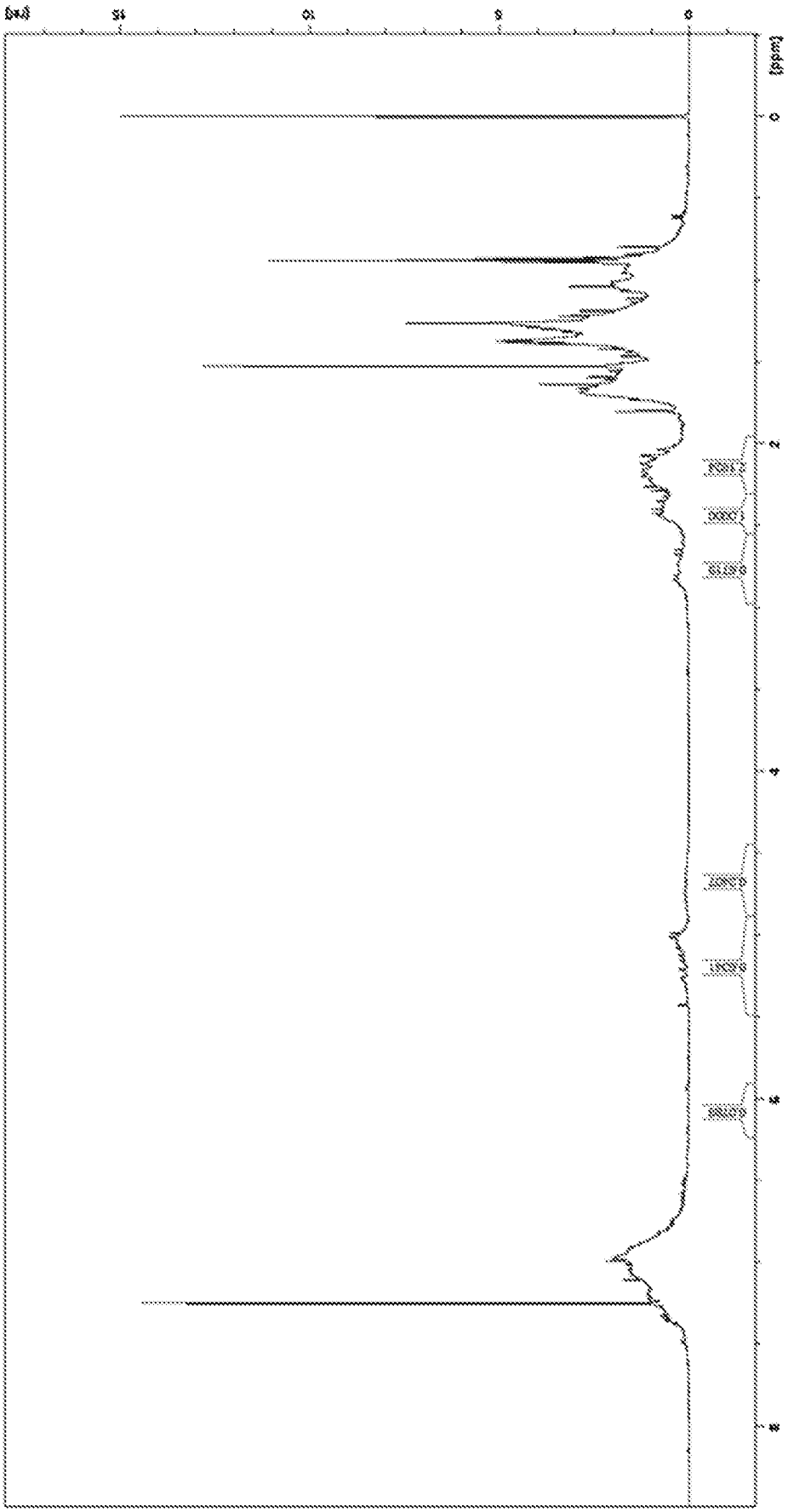
[請求項17] 請求項１６に記載のプリプレグから形成された少なくとも１つの層と、前記プリプレグから形成された層の片面または両面に配置された金属箔とを含む、金属箔張積層板。

[請求項18] 支持体と、前記支持体の表面に配置された請求項１、２または１４に記載の樹脂組成物から形成された層とを含む、樹脂複合シート。

[請求項19] 絶縁層と、前記絶縁層の表面に配置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、２または１４に記載の樹脂組成物から形成された層を含む、プリント配線板。

[請求項20] 請求項１９に記載のプリント配線板を含む半導体装置。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2023/009586

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08F 290/06(2006.01)i; ***B32B 15/08***(2006.01)i; ***C08J 5/24***(2006.01)i; ***H05K 1/03***(2006.01)i
FI: C08F290/06; B32B15/08 Z; C08J5/24 CER; H05K1/03 610H

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C08F290/06; B32B15/08; C08J5/24; H05K1/03

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2023
Registered utility model specifications of Japan 1996-2023
Published registered utility model applications of Japan 1994-2023

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2021-143333 A (NIPPON KAYAKU COMPANY, LIMITED) 24 September 2021 (2021-09-24) entire text	1-20
A	JP 6-87962 A (KAYAKU AKZO KABUSHIKI KAISHA) 29 March 1994 (1994-03-29) entire text	1-20
A	JP 59-145207 A (MITSUI TOATSU KAGAKU KABUSHIKI KAISHA) 20 August 1984 (1984-08-20) entire text	1-20
A	JP 59-207905 A (THE GOODYEAR TIRE & RUBBER COMPANY) 26 November 1984 (1984-11-26) entire text	1-20
A	US 2006/0270815 A1 (E I DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY) 30 November 2006 (2006-11-30) entire text	1-20

☑ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☑ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
08 May 2023	**16 May 2023**
Name and mailing address of the ISA/JP **Japan Patent Office (ISA/JP)** **3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915** **Japan**	Authorized officer Telephone No.

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2016-190899 A (NIPPON STEEL & SUMIKIN CHEMICAL COMPANY, LIMITED) 10 November 2016 (2016-11-10) entire text	1-20
A	JP 2018-39995 A (NIPPON STEEL & SUMIKIN CHEMICAL COMPANY, LIMITED) 15 March 2018 (2018-03-15) entire text	1-20
A	JP 2020-105352 A (NIPPON STEEL CHEMICAL & MATERIAL COMPANY, LIMITED) 09 July 2020 (2020-07-09) entire text	1-20
A	US 2006/0177666 A1 (KAWABE, Masanao) 10 August 2006 (2006-08-10) entire text	1-20
A	JP 2006-89683 A (NIPPON STEEL CHEM. COMPANY, LIMITED) 06 April 2006 (2006-04-06) entire text	1-20

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2023/009586

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2021-143333 A	24 September 2021	(Family: none)	
JP 6-87962 A	29 March 1994	(Family: none)	
JP 59-145207 A	20 August 1984	(Family: none)	
JP 59-207905 A	26 November 1984	US 4499248 A entire text EP 128851 A2	
US 2006/0270815 A1	30 November 2006	(Family: none)	
JP 2016-190899 A	10 November 2016	(Family: none)	
JP 2018-39995 A	15 March 2018	(Family: none)	
JP 2020-105352 A	09 July 2020	(Family: none)	
US 2006/0177666 A1	10 August 2006	(Family: none)	
JP 2006-89683 A	06 April 2006	(Family: none)	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2023/009586

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08F 290/06(2006.01)i; B32B 15/08(2006.01)i; C08J 5/24(2006.01)i; H05K 1/03(2006.01)i
FI: C08F290/06; B32B15/08 Z; C08J5/24 CER; H05K1/03 610H

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08F290/06; B32B15/08; C08J5/24; H05K1/03

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０２３年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２３年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２３年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	JP 2021-143333 A (日本化薬株式会社) 24.09.2021 (2021-09-24) 全文	1-20
A	JP 6-87962 A (化薬アクゾ株式会社) 29.03.1994 (1994-03-29) 全文	1-20
A	JP 59-145207 A (三井東圧化学株式会社) 20.08.1984 (1984-08-20) 全文	1-20
A	JP 59-207905 A (ザ・グッドイヤー・タイヤ・アンド・ラバー・カンパニー) 26.11.1984 (1984-11-26) 全文	1-20
A	US 2006/0270815 A1 (E I DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY) 30.11.2006 (2006-11-30) 全文	1-20
A	JP 2016-190899 A (新日鉄住金化学株式会社) 10.11.2016 (2016-11-10) 全文	1-20

☑ Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
“&” 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
08.05.2023	16.05.2023

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）
飛彈　浩一　4J 5815
電話番号 03-3581-1101 内線 3457

C.　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	JP 2018-39995 A (新日鉄住金化学株式会社) 15.03.2018 (2018-03-15) 全文	1-20
A	JP 2020-105352 A (日鉄ケミカル＆マテリアル株式会社) 09.07.2020 (2020-07-09) 全文	1-20
A	US 2006/0177666 A1 (KAWABE Masanao) 10.08.2006 (2006-08-10) 全文	1-20
A	JP 2006-89683 A (新日鐵化学株式会社) 06.04.2006 (2006-04-06) 全文	1-20

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2023/009586

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2021-143333 A	24.09.2021	（ファミリーなし）	
JP 6-87962 A	29.03.1994	（ファミリーなし）	
JP 59-145207 A	20.08.1984	（ファミリーなし）	
JP 59-207905 A	26.11.1984	US 4499248 A 全文 EP 128851 A2	
US 2006/0270815 A1	30.11.2006	（ファミリーなし）	
JP 2016-190899 A	10.11.2016	（ファミリーなし）	
JP 2018-39995 A	15.03.2018	（ファミリーなし）	
JP 2020-105352 A	09.07.2020	（ファミリーなし）	
US 2006/0177666 A1	10.08.2006	（ファミリーなし）	
JP 2006-89683 A	06.04.2006	（ファミリーなし）	