

(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10月19日(19.10.2023)



(10) 国際公開番号

WO 2023/199738 A1

(51) 国際特許分類:

<i>C08L 21/00</i> (2006.01)	<i>C08L 67/02</i> (2006.01)
<i>C08K 5/09</i> (2006.01)	<i>C08L 71/12</i> (2006.01)
<i>C08K 5/10</i> (2006.01)	<i>C08L 101/12</i> (2006.01)
<i>C08K 5/315</i> (2006.01)	<i>C09J 163/00</i> (2006.01)
<i>C08K 5/34</i> (2006.01)	<i>C09J 167/02</i> (2006.01)
<i>C08K 5/3445</i> (2006.01)	<i>C09J 171/12</i> (2006.01)
<i>C08L 63/00</i> (2006.01)	<i>C09J 201/00</i> (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2023/012441

(22) 国際出願日: 2023年3月28日(28.03.2023)

(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 2022-065315 2022年4月11日(11.04.2022) JP

(71) 出願人: 株式会社 A D E K A (**ADEKA CORPORATION**) [JP/JP]; 〒1168554 東京都荒川区東尾久七丁目2番35号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 松本 拓也 (**MATSUMOTO, Takuya**); 〒1168554 東京都荒川区東尾久七丁目2番35号 株式会社 A D E K A 内 Tokyo (JP).
井上 堯大 (**INOUE, Takahiro**); 〒1168554 東京都荒川区東尾久七丁目2番35号 株式会社 A D E K A 内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人 翔和国際特許事務所 (**SHOWA INTERNATIONAL PATENT FIRM**); 〒1070052 東京都港区赤坂二丁目12番10号 H F 溜池ビルディング2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, MU, 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, 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).

規則4.17に規定する申立て:

— 出願し及び特許を与えられる出願人の資格に関する申立て(規則4.17(ii))

添付公開書類:

— 国際調査報告(条約第21条(3))

(54) Title: COMPOSITION AND CURED PRODUCT

(54) 発明の名称: 組成物及び硬化物

(57) Abstract: [Problem] The purpose of the present invention is to provide a composition that achieves an excellent balance between electrical characteristics and adhesive strength. [Solution] Provided is a composition which contains a cyclic ether component, a latent curing agent, an elastomer component, and an active ester compound and/or a carboxylic anhydride compound, and in which the contained amount of the elastomer component is 30 parts by mass or more with respect to 100 parts by mass of solid content of the composition. In addition, the elastomer component contains a polymer that has, in a side chain, a structural unit having an aromatic ring.

(57) 要約: 【課題】本発明によれば、電気的特性及び接着力のバランスに優れた組成物を提供することを目的とする。【解決手段】環状エーテル成分と、潜在性硬化剤と、エラストマー成分と、活性エステル化合物及び／又はカルボン酸無水物化合物とを含む組成物であって、エラストマー成分の含有量が、組成物の固形分100質量部中、30質量部以上である、組成物を提供する。また、エラストマー成分が、側鎖に芳香環を持つ構成単位を有する重合体を含む。

WO 2023/199738 A1

明 細 書

発明の名称：組成物及び硬化物

技術分野

[0001] 本開示は、組成物及びその硬化物に関する。

背景技術

[0002] 通信のために発信された伝送信号が誘電体において熱変換されることで発生する誘電損失は、誘電体の電気的特性に依存し、周波数と、誘電体の比誘電率の平方根と、誘電体の誘電正接との積によって誘電損失の大きさが決まる。従って、伝送信号の周波数に比例して熱に変わりやすくなるので、高周波数帯で用いられる通信部材には、誘電損失を抑制するために比誘電率及び誘電正接が低い材料が要求されている。

例えば、特許文献1には、環状エーテル成分と、潜在性硬化剤と、エラストマー成分とを含む組成物を硬化させて得られる硬化物は、比誘電率及び誘電正接が低い材料が得られることが示されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2021-155659号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 情報通信分野においては、チャンネル数の増加と伝送される情報の増加に伴って電波の高周波化が進行している。例えば、第五世代移動通信システムの検討が世界的に進められており、使用する周波数帯の候補に約30GHz～70GHzの範囲からいくつか挙げられている。今後、無線通信の主流がこの高周波数帯での通信になることが見込まれており、比誘電率及び誘電正接が低い材料の開発が求められている。

特許文献1の組成物を硬化させた硬化物は、比誘電率及び誘電正接等の電気的特性並びに接着力が未だ満足できるものではなかった。

- [0005] 本開示は、前記問題点に鑑みてなされたものであり、電気的特性及び接着力のバランスに優れた組成物を提供することを主目的とする。
- [0006] 本発明者らは前記課題を解決するために鋭意検討を行った結果、環状エーテル成分と、潜在性硬化剤と、エラストマー成分と、活性エステル化合物及び／又はカルボン酸無水物化合物と、を含み、エラストマー成分の含有量が所定量である組成物は、電気的特性及び接着力のバランスに優れたものとなることを見出し、本開示を完成させるに至った。
- [0007] すなわち、本開示は、環状エーテル成分と、
潜在性硬化剤と、
エラストマー成分と、
活性エステル化合物及び／又はカルボン酸無水物化合物と、
を含む組成物であって、
前記エラストマー成分の含有量が、組成物の固形分 100 質量部中、30 質量部以上である、組成物を提供する。
- [0008] 本開示によれば、前記組成物は、電気的特性及び接着力に優れる硬化物を形成することができる。
- [0009] 本開示においては、前記エラストマー成分が、側鎖に芳香環を持つ構成単位を有する重合体を含むことが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。
- [0010] 本開示においては、前記環状エーテル成分が、芳香族エポキシ化合物及び脂肪族エポキシ化合物からなる群から選択される少なくとも 1 種を含むことが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。
- [0011] 本開示においては、前記潜在性硬化剤が、イオン性化合物であることが好ましい。前記組成物を低粘度とした場合であっても、潜在性硬化剤の沈殿、凝集等が抑制され、前記組成物の保存安定性が向上するからである。
- [0012] 本開示においては、前記イオン性化合物が、含窒素複素環カチオンを含むことが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れ

るものとなるからである。

[0013] 本開示においては、前記イオン性化合物が、ジアルキルイミダゾリウムイオン及びアルキルアルケニルイミダゾリウムイオンからなる群から選択される少なくとも1種であることが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

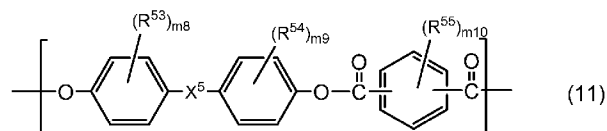
[0014] 本開示においては、前記イオン性化合物が、シアナート系アニオン及びカルボン酸系アニオンからなる群から選択される少なくとも1種を含むことが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0015] 本開示においては、前記シアナート系アニオンはシアノ基を1～2個含有することが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0016] 本開示においては、前記カルボン酸系アニオンは、アルキルカルボン酸アニオン又はフッ化アルキルカルボン酸アニオンであることが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0017] 本開示においては、前記活性エステル化合物が、下記一般式(11)で表される構成単位を有する重合体であることが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0018] [化1]



[0019] 式(11)中、 R^{53} 、 R^{54} 及び R^{55} は、それぞれ独立に、一価の有機基を表し、

X^5 は、二価の有機基を表し、

$m8$ 、 $m9$ 及び $m10$ は、それぞれ独立に、0～4の数を表し、

R^{53} 、 R^{54} 及び R^{55} が、それぞれ複数である場合、複数の R^{53} 、 R^{54} 及び

R⁵⁵が同じであってもよく、異なるものであってもよい。

[0020] 本開示においては、前記活性エステル化合物及びカルボン酸無水物化合物の合計の含有量が、組成物の固形分100質量部中、1質量部以上40質量部以下であることが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0021] 本開示においては、前記組成物がフェニレンエーテル骨格を有する樹脂を含むことが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0022] 本開示においては、前記組成物がさらに、粘着付与樹脂を含むことが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0023] 本開示は、上述の組成物の硬化物を提供する。

[0024] 本開示は、上述の組成物からなる接着剤を提供する。

発明の効果

[0025] 本開示によれば、電気的特性及び接着力に優れる硬化物を形成できる組成物を提供できるという効果を奏する。

発明を実施するための形態

[0026] 本開示は、組成物及びその硬化物に関するものである。

以下、本開示の組成物及び硬化物について詳細に説明する。

[0027] 本明細書において、基の炭素原子数は、基中の水素原子が置換基で置換されている場合、その置換後の基の炭素原子数を規定する。例えば、炭素原子数1～20のアルキル基の水素原子が置換されている場合、炭素原子数1～20とは、水素原子が置換された後の炭素原子数を指し、水素原子が置換される前の炭素原子数を指すのではない。また、本明細書において所定の炭素原子数の基中のメチレン基が二価の基で置き換えられた基に係る炭素原子数の規定は、その置換後の基の炭素原子数を規定するものとする。

[0028] 本明細書において、「組成物の樹脂成分」とは、環状エーテル成分、エラストマー成分、活性エステル化合物、カルボン酸無水物化合物、その他の樹

脂及び粘着付与樹脂の合計の含有量を表す。

[0029] 本明細書において、「組成物の固形分」とは、組成物中の溶剤を除く全成分の含有量を表す。

[0030] 本明細書において、(メタ)アクリレートは、アクリロイル基を有する化合物及びメタクリロイル基を有する化合物の少なくとも一方を表す。

[0031] A. 組成物

まず、本開示の組成物について説明する。

本開示の組成物は、環状エーテル成分と、潜在性硬化剤と、エラストマー成分と、活性エステル化合物及び／又はカルボン酸無水物化合物とを含み、前記エラストマー成分の含有量が、組成物の固形分100質量部中30質量部以上であることを特徴の一つとするものである。

[0032] 本開示によれば、前記組成物によれば電気的特性及び接着性に優れる硬化物を形成することができる。

[0033] 以下、本開示の組成物を構成する各成分について説明する。

[0034] A1. 潜在性硬化剤

本開示に用いられる潜在性硬化剤は、25℃では環状エーテル成分に対し活性を持たないが、加熱等の刺激を加えることにより活性化して前記組成物の硬化を促進する機能を有するものである。本開示においては、潜在性硬化剤として、窒素原子を含有するものを用いることが好ましい。

潜在性硬化剤の活性化温度は25℃より高い温度であればよく、60℃以上250℃以下であることが好ましく、80℃以上200℃以下であるものがより好ましい。前記組成物が硬化性に優れたものとなるからである。

本開示において、潜在性硬化剤は1種を単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0035] 前記潜在性硬化剤としては、例えば、特開2019-038891号公報に記載のジシアンジアミド型潜在性硬化剤、イミダゾール型潜在性硬化剤、イオン性化合物等が挙げられるが、本開示の組成物においては、イオン性化合物を用いることが好ましい。イオン性化合物は環状エーテル成分及び溶剤

との相溶性に優れるため、本開示の組成物中に均一分散又は溶解することが容易であり、その結果、環状エーテル成分の硬化反応を効率的に進行することができるためである。また本開示の組成物を低粘度とした場合でも、潜在性硬化剤の沈殿、凝集等が抑制されるからである。

[0036] 前記ジシアンジアミド型潜在性硬化剤としては、ジシアンジアミド単独、若しくは必要に応じて、後述するエポキシ樹脂硬化促進剤を併用したものが挙げられる。

ジシアンジアミド型潜在性硬化剤の市販品としては、P T I ジャパン株式会社製のオミキュア D D A - 5、三菱化学株式会社製 D I C Y 7、D I C Y 1 5、D I C Y 5 0 等が挙げられる。

[0037] 前記イミダゾール型潜在性硬化剤としては、イミダゾール化合物、イミダゾール化合物とエポキシ化合物との反応物であるエポキシアダクト型イミダゾール化合物等が挙げられる。

[0038] イミダゾール型潜在性硬化剤として用いられるイミダゾール化合物としては、イミダゾール構造とエポキシ構造とが反応して得られる構造を有しないものであり、例えば、2-フェニル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール、2-フェニル-4, 5-ジヒドロキシメチルイミダゾール、2, 4-ジアミノ-6-[2'-エチル-4'-メチルイミダゾリル-(1')] -エチル-スートリアジン、2, 4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1')] -エチル-スートリアジン、2, 4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1')] -エチル-スートリアジンイソシアヌル酸付加物、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾール、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾリウムトリメリテイト、1-シアノエチル-2-ウンデシルイミダゾール、及び2, 4-ジアミノ-6-[2'-ウンデシルイミダゾリル-(1')] -エチル-スートリアジン、1-シアノエチル-2-エチル-4-メチルイミダゾール等が挙げられる。

また、後述するエポキシアダクト型イミダゾール化合物の製造に用いられるイミダゾール化合物も、イミダゾール型潜在性硬化剤として用いることが

できる。

[0039] 前記イミダゾール型潜在性硬化剤として用いられるイミダゾール化合物の市販品としては、例えば、2 P 4 M H Z - P W (2-フェニル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール)、2 P H Z - P W (2-フェニル-4, 5-ジヒドロキシメチルイミダゾール)、C 1 1 Z (2-ウンデシルイミダゾール)、C 1 1 Z - C N (1-シアノエチル-2-ウンデシルイミダゾール)、C 1 7 Z (2-ヘプタデシルイミダゾール)、2 E 4 M Z - C N (1-シアノエチル-2-エチル-4-メチルイミダゾール)、2 P Z - C N (1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾール)、2 M Z - A (2, 4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1')] -エチル-s-トリアジン)、2 E 4 M Z - A (2, 4-ジアミノ-6-[2'-エチル-4'-メチルイミダゾリル-(1')] -エチル-s-トリアジン)、及び、2 M A O K - P W (2, 4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1')] -エチル-s-トリアジンイソシアヌル酸付加物) (いずれも四国化成工業製、商品名) 等が挙げられる。

[0040] エポキシアダクト型イミダゾール化合物の製造に用いられるイミダゾール化合物としては、例えば、2-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール等が挙げられる。

前記エポキシアダクト型イミダゾール化合物の製造に用いられるエポキシ化合物としては、例えば、後述する「2. 環状エーテル成分」の「(1) エポキシ化合物」の項に例示した化合物等が挙げられる。

[0041] イミダゾール型潜在性硬化剤の市販品としては、例えば、アデカハードナー E H - 5 0 1 1 S、アデカハードナー E H - 5 0 4 6 S 等が挙げられる。

[0042] 本開示においては、上述の潜在性硬化剤と共に、必要に応じて公知のエポキシ樹脂硬化促進剤を併用することができる。エポキシ樹脂硬化促進剤としては、例えば、特開 2 0 1 9 - 0 3 8 8 9 1 号公報に記載のもの等が挙げられる。エポキシ樹脂硬化促進剤は、1 種を単独で用いてもよく、2 種以上を

組み合わせて用いてもよい。本開示におけるエポキシ樹脂硬化促進剤の含有量は特に制限なく、本開示の組成物の用途に応じて適宜設定することができる。

[0043] (1) イオン性化合物

イオン性化合物は、カチオンとアニオンの塩である。

前記イオン性化合物は、イオン性液体化合物であってもよく、イオン性固体化合物であってもよいが、イオン性液体化合物であることが好ましい。イオン性化合物がイオン性液体化合物であると、前記組成物の硬化物が電気的特性及び接着力により優れるものとなるからである。イオン性液体化合物とは、25℃、大気圧下で液体であるイオン性の化合物を意味する。イオン性固体化合物は、25℃、大気圧下で固体であるイオン性の化合物を意味する。本開示において、イオン性化合物は1種を単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0044] (2) イオン性化合物のカチオン

イオン性化合物のカチオンとしては、例えば、含窒素複素環カチオンやテトラアルキルアンモニウムカチオン等が挙げられる。本開示においては、イオン性化合物のカチオンが含窒素複素環カチオンであることが好ましい。イオン性化合物のカチオンが含窒素複素環カチオンであると、前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力により優れるものとなるからである。

[0045] 前記含窒素複素環カチオンは、含窒素複素環を有するカチオンを意味する。前記含窒素複素環としては、例えば、環骨格構成原子が窒素原子及び炭素原子からなる環、又は、窒素原子と炭素原子及び酸素原子とからなる環等が挙げられる。本開示においては、含窒素複素環は、環骨格構成原子が窒素原子及び炭素原子からなる環であることが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力により優れるものとなるからである。

[0046] 前記含窒素複素環カチオンの具体例としては、例えば、含窒素芳香族複素環カチオン及び含窒素脂肪族複素環カチオン等が挙げられる。

前記含窒素芳香族複素環カチオンとしては、5員環の含窒素芳香族複素環

カチオン及び6員環の含窒素芳香族複素環カチオンが挙げられる。5員環の含窒素芳香族複素環カチオンとしては、例えば、イミダゾリウムカチオン及びピラゾリウムカチオン等が挙げられる。6員環の含窒素芳香族複素環カチオンとしては、例えば、ピリジニウムカチオン及びピリミジニウムカチオン等が挙げられる。

また、前記含窒素脂肪族複素環カチオンとしては、例えば、ピペリジニウムカチオン、ピロリジニウムカチオン等が挙げられる。

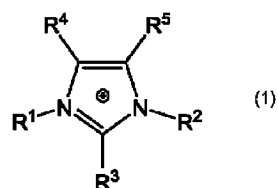
前記含窒素複素環カチオンの環骨格中の窒素原子数に特に制限はないが、1又は2であることが好ましく、2であることがより好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力により優れるものとなるからである。

[0047] 本開示においては、前記イオン性化合物が含窒素複素環カチオンを含むことが好ましく、含窒素芳香族複素環カチオンを含むことがより好ましく、環骨格中に窒素原子を2つ含有する含窒素芳香族複素環カチオン又は5員環である含窒素芳香族複素環のカチオンを含むことが更に好ましく、環上に窒素原子を2つ含有し、且つ5員環である含窒素芳香族複素環を含むことが特に好ましく、イミダゾリウムカチオン又はその誘導体を含むことが最も好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力により優れるものとなるからである。

[0048] イミダゾリウムカチオンの誘導体とは、イミダゾリウムカチオンの環骨格構成原子に結合している水素原子が置換基で置換されたカチオンを意味する。

イミダゾリウムカチオン及びその誘導体としては、例えば、下記一般式(1)で表されるカチオンが挙げられる。

[0049] [化2]



[0050] 式(1)中、R¹及びR²は、それぞれ独立に、水素原子、炭素原子数1～

12のアルキル基又は炭素原子数2～12のアルケニル基を表し、

R³、R⁴、及びR⁵は、それぞれ独立に、水素原子又は炭素原子数1～12のアルキル基を表す。

[0051] 前記式(1)中のR¹、R²、R³、R⁴及びR⁵で表される炭素原子数1～12のアルキル基としては、鎖状又は環状のアルキル基が挙げられる。

前記鎖状のアルキル基としては、直鎖状であってもよく、分岐を有していてもよい。直鎖状のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、アミル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ウンデシル基及びドデシル基が挙げられる。分岐を有するアルキル基としては、イソプロピル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、イソアミル基、tert-アミル基、イソオクチル基、2-エチルヘキシル基、tert-オクチル基、イソノニル基及びイソデシル基が挙げられる。

[0052] 前記環状のアルキル基としては、例えば、シクロアルキル基又はシクロアルキルアルキル基等が挙げられる。

[0053] 前記シクロアルキル基としては、例えば、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基、シクロノニル基、シクロデシル基、アダマンチル基、デカヒドロナフチル基、オクタヒドロペンタレン基、ビスクロ[1.1.1]ペンタニル基等が挙げられる。

[0054] 前記シクロアルキルアルキル基としては、例えば、シクロプロピルメチル、シクロブチルメチル、シクロペンチルメチル、シクロヘキシルメチル、シクロヘプチルメチル、シクロオクチルメチル、シクロノニルメチル、シクロデシルメチル、2-シクロブチルエチル、2-シクロペンチルエチル、2-シクロヘキシルエチル、2-シクロヘプチルエチル、2-シクロオクチルエチル、2-シクロノニルエチル、2-シクロデシルエチル、3-シクロブチルプロピル、3-シクロペンチルプロピル、3-シクロヘキシルプロピル、3-シクロヘプチルプロピル、3-シクロオクチルプロピル、3-シクロノ

ニルプロピル、3-シクロデシルプロピル、4-シクロブチルブチル、4-シクロペンチルブチル等が挙げられる。

[0055] R^1 及び R^2 に用いられる炭素原子数 2 ～ 12 のアルケニル基は、鎖状であってもよく、環状であってもよい。鎖状のアルケニル基は末端に不飽和結合を有する末端アルケニル基であってもよく、末端の炭素原子以外の炭素原子が不飽和結合を有する内部アルケニル基であってもよい。末端アルケニル基としては、例えば、ビニル基、アリル基、3-ブテニル基、4-ペンテニル基及び5-ヘキセニル基等が挙げられる。内部アルケニル基としては、例えば、2-ブテニル基、3-ペンテニル基、2-ヘキセニル基、3-ヘキセニル基、2-ヘプテニル基、3-ヘプテニル基、4-ヘプテニル基、3-オクテニル基、3-ノネニル基、4-デセニル基、3-ウンデセニル基及び4-ドデセニル基が挙げられる。環状のアルケニル基としては、例えば、3-シクロヘキセニル基、2, 5-シクロヘキサジエニル-1-メチル基及び4, 8, 12-テトラデカトリエニルアリル基等が挙げられる。本開示においては、 R^1 及び R^2 に用いられる炭素原子数 2 ～ 12 のアルケニル基は鎖状のアルケニル基が好ましく、末端アルケニル基であることがより好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0056] 本開示においては、 R^1 が、炭素原子数 1 ～ 12 のアルキル基であることが好ましく、炭素原子数 1 ～ 6 のアルキル基であることがより好ましく、炭素原子数 1 ～ 3 のアルキル基であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0057] 本開示においては、 R^2 が、炭素原子数 1 ～ 8 のアルキル基又は炭素原子数 2 ～ 8 のアルケニル基であることが好ましく、炭素原子数 2 ～ 6 のアルキル基又は炭素原子数 2 ～ 6 のアルケニル基であることがより好ましく、炭素原子数 2 ～ 5 のアルキル基又は炭素原子数 2 ～ 4 のアルケニル基であることが更に好ましく、炭素原子数 2 ～ 5 のアルキル基又はアリル基であることが特に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるも

のとなるからである。

[0058] 本開示においては、 R^4 及び R^5 が、水素原子であることが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0059] 本開示においては、 R^3 が水素原子又は炭素原子数1～3のアルキル基であることが好ましく、水素原子であることがより好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0060] 本開示においては、 $R^1 \sim R^5$ のいずれかがアルキル基である場合、該アルキル基は、鎖状のアルキル基であることが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0061] 前記イミダゾリウムカチオン及びその誘導体としては、例えば、1, 3-ジメチルイミダゾリウムカチオン、1, 3-ジエチルイミダゾリウムカチオン、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムカチオン、1-プロピル-3-メチルイミダゾリウムイオン、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムカチオン、1-ヘキシル-3-メチルイミダゾリウムカチオン、1-オクチル-3-メチルイミダゾリウムカチオン、1-デシル-3-メチルイミダゾリウムカチオン、1-ドデシル-3-メチルイミダゾリウムカチオン、1-テトラデシル-3-メチルイミダゾリウムカチオン、1, 2-ジメチル-3-プロピルイミダゾリウムカチオン、1-エチル-2, 3-ジメチルイミダゾリウムカチオン、1-ブチル-2, 3-ジメチルイミダゾリウムカチオン、1-ヘキシル-2, 3-ジメチルイミダゾリウムカチオン、1-アリル-3-メチルイミダゾリウムカチオン等が挙げられる。

上述のイミダゾリウムカチオン及びその誘導体のなかでも、1, 3-ジメチルイミダゾリウムカチオン、1, 3-ジエチルイミダゾリウムカチオン、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムカチオン、1-プロピル-3-メチルイミダゾリウムイオン及び1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムカチオン等のジアルキルイミダゾリウムイオン、並びに1-アリル-3-メチルイミダゾリウムカチオン等のアルキルアルケニルイミダゾリウムイオンからな

る群から選択される少なくとも1種であることが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。同様の観点から、ジアルキルイミダゾリウムイオンは1, 3-ジアルキルイミダゾリウムイオンが好ましい。

[0062] 前記ピラゾリウムカチオン及びその誘導体としては、例えば、1-メチルピラゾリウムカチオン、3-メチルピラゾリウムカチオン等が挙げられる。

[0063] 前記ピリジニウムカチオン及びその誘導体としては、例えば、1-エチルピリジニウムカチオン、1-ブチルピリジニウムカチオン、1-(3-ヒドロキシプロピル)ピリジニウムカチオン、1-エチル-3-メチルピリジニウムカチオン、1-ブチル-3-メチルピリジニウムカチオン、1-ブチル-4-メチルピリジニウムカチオン、1-(3-シアノプロピル)ピリジニウムカチオン、1, 3-ジメチル-1, 4, 5, 6-テトラヒドロピリミジニウムカチオン、1, 2, 3-トリメチル-1, 4, 5, 6-テトラヒドロピリミジニウムカチオン、1, 2, 3, 4-テトラメチル-1, 4, 5, 6-テトラヒドロピリミジニウムカチオン、1, 2, 3, 5-テトラメチル-1, 4, 5, 6-テトラヒドロピリミジニウムカチオン等が挙げられる。

[0064] 前記ピリミジニウムカチオン及びその誘導体としては、例えば、1, 3-ジメチル-1, 4-ジヒドロピリミジニウムカチオン、1, 3-ジメチル-1, 6-ジヒドロピリミジニウムカチオン、1, 2, 3-トリメチル-1, 4-ジヒドロピリミジニウムカチオン、1, 2, 3-トリメチル-1, 6-ジヒドロピリミジニウムカチオン、1, 2, 3, 4-テトラメチル-1, 4-ジヒドロピリミジニウムカチオン、1, 2, 3, 4-テトラメチル-1, 6-ジヒドロピリミジニウムカチオン等が挙げられる。

[0065] 前記ピペリジニウムカチオン及びその誘導体としては、例えば、1-ブチル-1-メチルピペリジニウムカチオン、1-メチル-1-プロピルピペリジニウムカチオン等が挙げられる。

[0066] 前記ピロリジニウムカチオン及びその誘導体としては、例えば、1, 1-ジメチルピロリジニウムカチオン、1-メチル-1-エチルピロリジニウム

カチオン、1-メチル-1-プロピルピロリジニウムカチオン、1-メチル-1-ブチルピロリジニウムカチオン、1-メチル-1-ペンチルピロリジニウムカチオン、1-メチル-1-ヘキシルピロリジニウムカチオン、1-メチル-1-ヘプチルピロリジニウムカチオン、1-エチル-1-プロピルピロリジニウムカチオン、1-エチル-1-ブチルピロリジニウムカチオン、1-エチル-1-ペンチルピロリジニウムカチオン等が挙げられる。

[0067] 前記テトラアルキルアンモニウムカチオンとしては、例えば、テトラメチルアンモニウムカチオン、テトラエチルアンモニウムカチオン、テトラブチルアンモニウムカチオン、テトラヘキシルアンモニウムカチオン、トリエチルメチルアンモニウムカチオン、トリブチルエチルアンモニウムカチオン、トリメチルデシルアンモニウムカチオン、トリヘキシルテトラデシルアンモニウムカチオン、(2-ヒドロキシエチル)トリメチルアンモニウムカチオン、N, N-ジエチル-N-(2-メトキシエチル)-N-メチルアンモニウム [DEME] カチオン、トリス(2-ヒドロキシエチル)メチルアンモニウムカチオン、N, N-トリメチル-N-プロピルアンモニウム [TMPA] カチオン、トリメチル(1H, 1H, 2H, 2H-ヘプタデカフルオロデシル)アンモニウムカチオン、トリメチル-(4-ビニルベンジル)アンモニウムカチオン、2-(メタクリロイルオキシ)エチルトリメチルアンモニウム等が挙げられる。

[0068] (3) イオン性化合物のアニオン

イオン性化合物のアニオンとしては、例えば、ハロゲン化物イオン、金属塩化物アニオン、シアナート系アニオン、カルボン酸系アニオン、スルホン酸系アニオン、スルホニル系アニオン、その他のフッ化物系アニオンや ClO_4^- 、 NO_3^- 等が挙げられる。

[0069] 本開示においては、前記イオン性化合物のアニオンが、シアナート系アニオン及びカルボン酸系アニオンからなる群から選択される少なくとも1種を含むことが好ましく、カルボン酸系アニオンを含むことが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである

。

[0070] 前記シアナート系アニオンとは、シアノ基を有するアニオンを意味する。
シアナート系アニオンとしては、例えば、 CNS^- （チオシアナートアニオン）、 $(\text{CN})_2\text{N}^-$ （ジシアナミドアニオン）、 $\text{B}(\text{CN})_4^-$ （テトラシアノボレートアニオン）、 NCS^- （イソチオシアナートアニオン）、 $\text{C}(\text{CN})_3^-$ （トリシアノメタニド）等が挙げられる。

[0071] 前記シアナート系アニオンは、シアノ基を1～2個含有することが好ましく、 $(\text{CN})_2\text{N}^-$ 又は CNS^- であることがより好ましく、 $(\text{CN})_2\text{N}^-$ であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0072] 前記カルボン酸系アニオンとは、カルボン酸アニオン（ *COO^- 、*は結合手を表す。）を有するアニオンを意味する。

カルボン酸系アニオンが1分子中に有するカルボン酸アニオンの数は1以上であればよく、1以上3以下であることが好ましく、1以上2以下であることがより好ましく、1であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

カルボン酸系アニオンとしては、 *COO^- が炭化水素基に結合した炭化水素カルボン酸のアニオンであることが好ましく、脂肪族炭化水素基にカルボン酸アニオンが結合した、脂肪族カルボン酸のアニオンであることがより好ましく、一価の脂肪族カルボン酸のアニオンであることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0073] 前記カルボン酸系アニオンは、炭化水素カルボン酸のアニオンにおける1又は2以上の水素原子が、ハロゲン原子に置換されていてもよい。

前記カルボン酸系アニオンの具体例としては、例えば、 CH_3COO^- 、 $\text{C}_2\text{H}_5\text{COO}^-$ 、 $\text{C}_3\text{H}_7\text{COO}^-$ 、 $\text{C}_4\text{H}_9\text{COO}^-$ 、 $\text{C}_5\text{H}_{11}\text{COO}^-$ 、 $\text{C}_6\text{H}_{13}\text{COO}^-$ 、 $\text{C}_7\text{H}_{15}\text{COO}^-$ 、 $\text{C}_8\text{H}_{17}\text{COO}^-$ 、 $\text{C}_9\text{H}_{19}\text{COO}^-$ 、 $\text{C}_{10}\text{H}_{21}\text{COO}^-$ 、 $\text{C}_{11}\text{H}_{23}\text{COO}^-$ 、 $(\text{CH}_3)_2\text{CHCOO}^-$ 、 $(\text{CH}_3)_3\text{CCOO}^-$ 及

び $C_6H_5COO^-$ 等のアルキルカルボン酸アニオン、並びに CF_3COO^- 、 $C_2F_5COO^-$ 、 $C_3F_7COO^-$ 、 $C_4F_9COO^-$ 、 $C_5F_{11}COO^-$ 、 $C_6F_{13}COO^-$ 、 $C_7F_{15}COO^-$ 、 $C_8F_{17}COO^-$ 、 $C_9F_{19}COO^-$ 、 $C_{10}F_{21}COO^-$ 及び $C_{11}F_{23}COO^-$ 等のフッ化アルキルカルボン酸アニオンが挙げられる。

[0074] 前記カルボン酸系アニオンは、炭素原子数が2以上20以下であることが好ましく、2以上10以下であることがより好ましく、2以上5以下であることが更に好ましく、2以上3以下であることが特に好ましく、2であること、すなわち、カルボン酸系アニオンがアセテート系アニオンであることが最も好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

前記アセテート系アニオンは酢酸アニオン又は酢酸アニオンの1若しくは2以上の水素原子がハロゲン原子に置換されたアニオンを表し、例えば、 CH_3COO^- 、 CF_3COO^- 等が挙げられる。

[0075] 前記ハロゲン化物イオンとはハロゲン原子のアニオンを意味する。ハロゲン化物イオンとしては、例えば、 Cl^- 、 Br^- 、 I^- 等が挙げられる。

[0076] 前記金属塩化物アニオンとは金属原子を含むアニオンを意味する。金属塩化物アニオンとしては、例えば、 $AlCl_4^-$ 及び $Al_2Cl_7^-$ 等の塩化アルミニウムアニオンが挙げられる。

[0077] 前記スルホン酸系アニオンとは、スルホン酸アニオン（* SO_3^- 、*は結合手を表す。）を含むアニオンを意味する。スルホン酸系アニオンとしては、例えば、 $CH_3SO_3^-$ 、 $CF_3SO_3^-$ 、 $C_4F_9SO_3^-$ 、 $-O_3S(CF_2)_3SO_3^-$ 及び $-O_3S(CF_2)_lSO_3^-$ （但し、 l は1～10の整数を表す。）等が挙げられる。

[0078] 前記スルホニル系アニオンとは、スルホニルアニオン（* SO_2^- 、*は結合手を表す。）を含むアニオンを意味する。スルホニル系アニオンとしては、例えば、 $(CF_3SO_2)_3C^-$ 、 $(CF_3SO_2)(CF_3CO)N^-$ や下記一般式（ α ）乃至（ γ ）等が挙げられる。

(α) $(C_n F_{2n+1} S O_2)_2 N^-$ (但し、 n は1～10の整数を表す。)

(β) $C F_2 (C_m F_{2m} S O_2)_2 N^-$ (但し、 m は1～10の整数を表す。)

(γ) $(C_p F_{2p+1} S O_2) N^- (C_q F_{2q+1} S O_2)$ (但し、 p 、 q は1～10の整数を表す。)

[0079] その他のフッ化物系アニオンとしては、例えば、 $B F_4^-$ 、 $P F_6^-$ 、 $A s F_6^-$ 、 $S b F_6^-$ 、 $N b F_6^-$ 及び $T a F_6^-$ 等が挙げられる。

[0080] (4) イオン性化合物の例示

イオン性化合物としては、特開2020-007568号公報にイオン性液体として記載の化合物が挙げられる。また、イオン性化合物の合成方法としても、例えば、特開2020-007568号公報に記載の方法を用いることができる。

イオン性化合物としては、具体的には、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムジシアナミド、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムアセタート、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムトリフルオロアセテート、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムジシアナミド、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムトリフルオロアセテート、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムチオシアナート、3-シアノプロピルイミダゾリウムジシアナミド、1-アリル-3-メチルイミダゾリウムジシアナミド、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムエチルスルファート、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムメタンスルフォネート、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムトリフルオロメタンスルフォネート、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムテトラフルオロボレート、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムジメチルホスフェート、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムエチルホスフェート、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムメチルホスホネート等が挙げられる。

[0081] イオン性化合物の市販品としては、IL-P11、IL-P14、IL-IM1、IL-C1、IL-C3、IL-C5、IL-A1、IL-A2、IL-A3、IL-A4、IL-A5、IL-MA1、IL-MA2、IL-MA3、IL-OH1、IL-OH2、ILA21-9、ILP14-2

(以上、広栄化学(株)製) 及びエレクトセル A S - 1 1 0 (第一工業製薬(株)製) 等が挙げられる。

[0082] 本開示においては、イオン性化合物が、含窒素芳香族複素環カチオンとシアナート系アニオンとの組み合わせ、又は、含窒素芳香族複素環カチオンとカルボン酸系アニオンとの組み合わせを含むことがより好ましく、含窒素芳香族複素環カチオンとアルキルカルボン酸アニオン又はフッ化アルキルカルボン酸アニオンとの組み合わせを含むことがより好ましく、含窒素芳香族複素環カチオンとアセテート系アニオンとの組み合わせを含むことが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0083] (5) 潜在性硬化剤の含有量

潜在性硬化剤の含有量は、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであれば、特に制限されるものではないが、前記組成物の樹脂成分 1 0 0 質量部中、0. 1 質量部以上 1 5 質量部以下であることが好ましく、0. 3 質量部以上 1 0 質量部以下であることがより好ましく、0. 5 質量部以上 5 質量部以下であることが更に好ましく、特に 0. 7 質量部以上 3 質量部以下であることが特に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0084] 潜在性硬化剤の含有量は、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであれば、特に制限されるものではないが、前記組成物の固形分 1 0 0 質量部中、0. 1 質量部以上 3 0 質量部以下であることが好ましく、0. 3 質量部以上 2 0 質量部以下であることがより好ましく、0. 5 質量部以上 1 5 質量部以下であることが更に好ましく、0. 6 質量部以上 5 質量部以下であることが特に好ましく、0. 7 質量部以上 3 質量部以下であることが最も好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0085] 潜在性硬化剤の含有量は、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであれば、特に制限されるものではないが、前記組成物 1 0 0 質量

部中、0.01質量部以上15質量部以下であることが好ましく、0.05質量部以上5質量部以下であることがより好ましく、0.1質量部以上1質量部以下であることが更に好ましく、0.15質量部以上0.5質量部以下であることが特に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0086] 本開示の組成物においては、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られる範囲で、イオン性化合物と、イオン性化合物以外の他の潜在性硬化剤とを組み合わせ、潜在性硬化剤として用いることができる。

前記イオン性化合物以外の潜在性硬化剤の含有量としては、イオン性化合物100質量部に対して、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更に好ましく、1質量部以下であることが特に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0087] 前記組成物における潜在性硬化剤の含有量は、LC/MS法(Liquid Chromatography Mass Spectrometry)によって測定することができる。

[0088] A2. 環状エーテル成分

環状エーテル成分は、環状エーテル基を有する化合物（以下、「環状エーテル化合物」と称する場合がある。）の1種又は2種以上を含むものである。環状エーテル成分には、イオン性化合物は含まれない。

前記環状エーテル基としては、環構造の中にエーテル結合を少なくとも1種を有するものであればよく、例えば、エポキシ基、オキセタニル基等が挙げられる。すなわち、環状エーテル成分として、エポキシ化合物又はオキセタン化合物等の1種を単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0089] なお、環状エーテル基及びエチレン性不飽和基を有する化合物は、環状エーテル化合物に含まれるものとする。

前記エチレン性不飽和基としては、アクリロイル基、メタクリロイル基、

ビニル基等が挙げられる。

また、環状エーテル基と共にアルコキシシリル基を有する化合物は、通常、シランカップリング剤に分類されるものであり、前記環状エーテル化合物には該当しないものとする。例えば γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、 β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン等のエポキシ基と共にアルコキシシリル基を有する化合物は、通常、シランカップリング剤に分類されるものであり、環状エーテル成分としてのエポキシ化合物に該当しないものとする。

なお、後述する「エラストマー成分」であって環状エーテル基を有する化合物は、環状エーテル化合物に該当せず、「エラストマー成分」に該当するものとする。従って、後述するゴム変性エポキシ化合物は、環状エーテル成分としてのエポキシ化合物に該当しない。

更に、後述する「活性エステル化合物」であって、環状エーテル基を有するものは、環状エーテル成分に該当しないものとする。従って、「活性エステル化合物」がエポキシ基を有していても環状エーテル成分としてのエポキシ化合物に該当しない。

また、後述する、「カルボン酸無水物化合物」であって、環状エーテル基を有するものは、環状エーテル成分に該当しないものとする。従って、「カルボン酸無水物化合物」がエポキシ基を有していても環状エーテル成分としてのエポキシ化合物に該当しない。

また、後述するその他の樹脂として記載する「フェニレンエーテル骨格を有する樹脂」であって、環状エーテル基を有するものは、環状エーテル成分に該当しないものとする。従って「フェニレンエーテル骨格を有する樹脂」がエポキシ基を有していても環状エーテル成分としてのエポキシ化合物に該当しない。

[0090] (1) エポキシ化合物

前記エポキシ化合物には、アルコキシシリル基を有する化合物、後述する

エラストマー成分、活性エステル化合物、カルボン酸無水物化合物及び後述するフェニレンエーテル骨格を有する樹脂を除く、エポキシ基を含む全ての化合物を含まれるものとする。例えば、エポキシ基及びオキセタン基の両者を含む化合物は、エポキシ化合物に該当するものとする。

このようなエポキシ化合物としては、例えば、芳香族エポキシ化合物、脂肪族エポキシ化合物及び複素環含有エポキシ化合物等が挙げられる。

[0091] (1) - 1. 芳香族エポキシ化合物

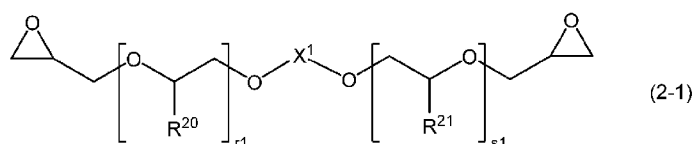
前記芳香族エポキシ化合物とは、芳香環及びエポキシ基を有し、複素環を含有しない化合物を意味する。芳香環及び脂環を有する化合物は、芳香族エポキシ化合物に該当するものとする。

前記芳香環としては、芳香性を有する環であれば特に制限されるものではなく、例えば、ベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピレン環等が挙げられる。本開示においては、芳香環がベンゼン環であることが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0092] このような芳香族エポキシ化合物としては、例えば、フェノール、クレゾール、ブチルフェノール等の一価のフェノール類又はそのアルキレンオキサイド付加物のグリシジルエーテル化物；少なくとも1個の芳香環を有する多価フェノール又はそのアルキレンオキサイド付加物のポリグリシジルエーテル；フェノールノボラック型エポキシ化合物；レゾルシノール、ハイドロキノン、カテコール等の2個以上のフェノール性水酸基を有するフェノール類のグリシジルエーテル；ベンゼンジメタノール、ベンゼンジエタノール、ベンゼンジブタノール等のアルコール性水酸基を2個以上有する芳香族化合物のポリグリシジルエーテル；フタル酸、テレフタル酸、トリメリット酸等の2個以上のカルボン酸を有する多塩基酸芳香族化合物のポリグリシジルエステル；安息香酸、トルイル酸、ナフトエ酸等の安息香酸類のグリシジルエステル；スチレンオキサイド又はジビニルベンゼンのエポキシ化物等が挙げられる。

[0093] 本開示においては、芳香族エポキシ化合物が、少なくとも1個の芳香環を有する多価フェノール又はそのアルキレンオキサイド付加物のポリグリシジルエーテルであることが好ましく、例えば、下記一般式(2-1)又は(2-2)で表される化合物を含むことが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0094] [化3]



式(2-1)中、 R^{20} 及び R^{21} は、それぞれ独立に、水素原子又は炭素原子数1～4のアルキル基を表し、

r_1 及び s_1 は、それぞれ独立に、0～5の数を表し、

X^1 は二価の芳香環含有基を表す。

[0095] 前記一般式(2-1)中の R^{20} 及び R^{21} で表される炭素原子数1～4のアルキル基としては、前記一般式(1)中の R^1 等で表される炭素原子数1～12のアルキル基のうち、所定の炭素原子数を有する基が挙げられる。

[0096] 前記一般式(2-1)中 X^1 で表される二価の芳香環含有基は、下記の芳香環から2個の水素原子を除いた芳香環基、該芳香環基と二価の連結基とが連結した基等が挙げられる。

[0097] 前記芳香環としては、単環構造の芳香環又は縮合多環構造の芳香環が挙げられる。

単環構造の芳香環としては、例えば、ベンゼン、トルエン、エチルベンゼン、2,4,6-トリメチルベンゼン等が挙げられる。

縮合多環構造の芳香環は、芳香環を含む縮合環を表し、例えば、芳香環で形成される縮合環と、芳香環と脂環とで形成される縮合環を表す。前記縮合多環構造の芳香環の具体例としては、例えば、ペンタレン環、インデン環、ナフタレン環、アズレン環、ヘプタレン環、ビフェニレン環、フルオレン環、フェナレン環、フェナントレン環、アントラセン環、テトラセン環、トリ

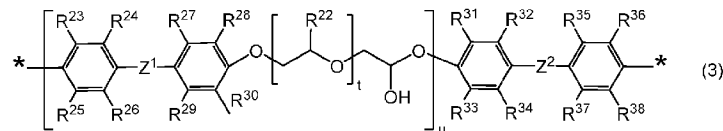
フェニレン環、ピレン環等が挙げられる。

[0098] 前記芳香環基と連結する二価の連結基としては、例えば、 $-S-$ 、 $-O-$ 、カルボニル基、炭素原子数 1～4 のアルキレン基若しくはこれらの組み合わせからなる基が挙げられる。

[0099] 前記二価の芳香環含有基において、芳香環を 2 個以上有していてもよい。芳香環を 2 個以上有する芳香環含有基としては、例えば、ビフェニレン基、ジフェニルスルフィドから 2 個の水素原子を引き抜いた基、ベンゾイルフェニレン基等が挙げられる。

[0100] X^1 で表される二価の芳香環含有基の具体的な構造式としては、例えば、下記一般式 (3) で表されるものが挙げられる。

[0101] [化4]



[0102] 式 (3) 中、 R^{22} 、 R^{23} 、 R^{24} 、 R^{25} 、 R^{26} 、 R^{27} 、 R^{28} 、 R^{29} 、 R^{30} 、 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 、 R^{34} 、 R^{35} 、 R^{36} 、 R^{37} 及び R^{38} は、それぞれ独立に、水素原子又は炭素原子数 1～4 のアルキル基を表し、

Z^1 及び Z^2 は、それぞれ独立に、直接結合又は炭素原子数 1～4 のアルキレン基を表し、アルキレン基中の水素原子はハロゲン原子で置換されてもよく、

t は、0～5 の整数を表し、

u は、0～30 の整数を表し、

$*$ は、結合箇所を表す。

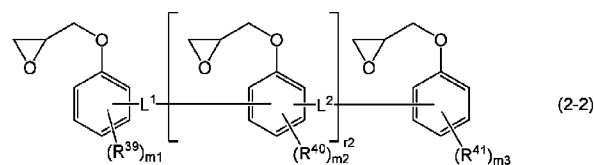
[0103] 前記一般式 (3) 中の R^{22} 、 R^{23} 、 R^{24} 、 R^{25} 、 R^{26} 、 R^{27} 、 R^{28} 、 R^{29} 、 R^{30} 、 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 、 R^{34} 、 R^{35} 、 R^{36} 、 R^{37} 及び R^{38} で表される炭素原子数 1～4 のアルキル基としては、例えば、前記一般式 (2-1) 中の R^{20} 等で表される炭素原子数 1～4 のアルキル基と同様の基が挙げられる。

- [0104] 前記一般式(3)中の Z^1 及び Z^2 で表される炭素原子数1～4のアルキレン基としては、例えば、メチレン基、メチリデン基、エチレン基、エチリデン基、トリメチレン基、プロピリデン基、イソプロピリデン基、メチルエチレン基、テトラメチレン基、1, 1-ジメチルエチレン基、1, 2-ジメチルエチレン基、1-メチルプロピレン基、2-メチルプロピレン基等が挙げられる。
- [0105] 前記一般式(3)中の Z^1 及び Z^2 で表される炭素原子数1～4のアルキレン基中の水素原子を置換するハロゲン原子としては、例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等が挙げられる。
- [0106] 前記一般式(2-1)において、 r_1 及び s_1 は、それぞれ独立に、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、0～1の整数であることが更に好ましく、0であることが特に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。
- [0107] 前記一般式(3)において、 R^{22} 、 R^{23} 、 R^{24} 、 R^{25} 、 R^{26} 、 R^{27} 、 R^{28} 、 R^{29} 、 R^{30} 、 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 、 R^{34} 、 R^{35} 、 R^{36} 、 R^{37} 及び R^{38} は、水素原子又は炭素原子数1～2のアルキル基、すなわち、水素原子、メチル基又はエチル基であることが好ましく、水素原子であることがより好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。
- [0108] 前記一般式(3)において、 Z^1 及び Z^2 が、それぞれ独立に、直接結合又は炭素原子数1～4のアルキレン基であることが好ましく、直接結合又は炭素原子数2～4のアルキレン基であることがより好ましく、直接結合、又はエチレン基、エチリデン基、プロピレン基、プロピリデン基及びイソプロピリデン基等の炭素原子数2～3のアルキレン基であることがより好ましく、直接結合、エチリデン基、又はイソプロピリデン基であることが更に好ましく、直接結合又はエチリデン基であること、すなわち、前記芳香族エポキシ化合物が、ビフェニル構造又はビスフェノールE型構造を有する化合物であ

ることが特に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0109] 前記一般式(3)において、 t が0～3であることが好ましく、0～1であることがより好ましい。また、 u が0～10であることが好ましく、0～5であることがより好ましく、0～2であることが更に好ましく、0であることが特に好ましい。 t 及び u が前記範囲であることで、前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0110] [化5]



[0111] 式(2-2)中、 L^1 及び L^2 は二価の炭化水素基を表し、 R^{39} 、 R^{40} 及び R^{41} は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子又は炭素原子数1～4のアルキル基を表し、

m_1 及び m_3 は、それぞれ独立に0～4の数を表し、

m_2 は、0～3の数を表し、 R^{39} 、 R^{40} 及び R^{41} がそれぞれ複数存在する場合、互いに同一であっても異なってもよい。

r_2 は、0以上の数である。

[0112] 前記一般式(2-2)中の R^{39} 、 R^{40} 及び R^{41} で表される炭素原子数1～4のアルキル基としては、前記一般式(1)中の R^1 等で表される炭素原子数1～12のアルキル基のうち、所定の炭素原子数を有する基が挙げられる。

[0113] 前記一般式(2-2)中の L^1 及び L^2 で表される二価の炭化水素基としては、例えば、二価の脂肪族炭化水素基及び二価の芳香環含有基が挙げられる。

[0114] 前記二価の脂肪族炭化水素基としては、直鎖又は分岐を有する炭素原子数1～30のアルキレン基及び炭素原子数3～30の二価の脂環含有基が挙げられる。

前記直鎖又は分岐を有する炭素原子数1～30のアルキレン基としては、

例えば、メチレン基、エチリデン基、プロピリデン基、イソプロピリデン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、イソブチレン基、*sec*-ブチレン基、*tert*-ブチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、ヘプチレン基、オクチレン基、ノニレン基、デシレン基等が挙げられる。

[0115] 前記炭素原子数3～30の二価の脂環含有基における脂環は、環骨格構成原子が炭素原子のみからなり、且つ、芳香族性を有しないものであればよい。また、シクロヘキセン等のように脂環の環中に炭素-炭素間の不飽和結合を有していてもよい。

前記脂環は、単環式脂環であってもよく、多環式脂環であってもよい。

前記単環式脂環としては、例えば、シクロブタン、シクロペンタン、シクロペンテン、シクロヘキサン、シクロヘキセン、シクロオクタン、シクロオクテン等が挙げられる。

前記多環式脂環としては、ビスシクロヘプタン、トリメチルビスシクロ[2.2.1]ヘプタン、イソボルナン、アダマンタン、トリシクロデカン、テトラシクロドデカン、デカリン、シクロペンタジエン、ジシクロペンタジエン、テトラヒドロジシクロペンタジエン等が挙げられる。

前記二価の脂環含有基としては、上述の脂環から水素原子を2つ除いた脂環基、又は該脂環基と1以上の炭素原子数1～4のアルキレン基と、が連結した基等が挙げられる。

[0116] 前記脂環基と連結する炭素原子数1～4のアルキレン基としては、前記式(3)中の Z^1 及び Z^2 で表される炭素原子数1～4のアルキレン基と同様の基が挙げられる。

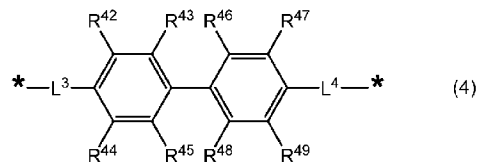
[0117] 前記一般式(2-2)中の L^1 及び L^2 で表される、前記二価の芳香環含有基としては、前記一般式(2-1)中の X^1 で表される二価の芳香環含有基と同様の基が挙げられる。

[0118] 本開示においては、 L^1 及び L^2 が、二価の芳香環含有基であることが好ましく、単環構造の芳香環を含む二価の芳香環含有基であることがより好ましく、単環構造の芳香環を2個以上が連結した基を含む二価の芳香環含有基で

あることが更に好ましく、ビフェニレン基を含む基であることが特に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0119] 本開示においては、前記ビフェニレン基を含む基が、下記一般式（４）で表される基であることが好ましい。

[0120] [化6]



[0121] 式（４）中、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{47} 、 R^{48} 及び R^{49} は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子又は炭素原子数１～４のアルキル基を表し、

L^3 及び L^4 は、それぞれ独立に直接結合又は炭素原子数１～４のアルキレン基を表し、

*は、結合箇所を表す。

[0122] 前記一般式（４）中の R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{47} 、 R^{48} 及び R^{49} で表される炭素原子数１～４のアルキル基としては、例えば、前記一般式（２－１）中の R^{20} 等で表される炭素原子数１～４のアルキル基と同様の基が挙げられる。

前記一般式（４）中の L^3 及び L^4 で表される炭素原子数１～４のアルキレン基としては、前記一般式（３）の Z^1 等で表される炭素原子数１～４のアルキレン基と同様の基とすることができる。

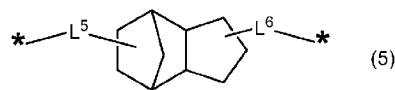
[0123] 本開示においては、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{47} 、 R^{48} 及び R^{49} が、水素原子又は炭素原子数１～２のアルキル基であることが好ましく、水素原子であることがより好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

本開示においては、 L^3 及び L^4 が、直接結合又は炭素原子数１～２のアルキレン基であることが好ましく、炭素原子数１～２のアルキレン基であるこ

とがより好ましく、メチレン基であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0124] また本開示においては、 L^1 及び L^2 が、炭素原子数8～18の二価の脂環含有基であることが好ましく、炭素原子数8～18の多環式脂環を含む二価の脂環含有基であることがより好ましく、下記一般式(5)で表される基であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0125] [化7]



[0126] 式(5)中、 L^5 及び L^6 は、それぞれ独立に、直接結合又は炭素原子数1～4のアルキレン基を表し、

*は、結合箇所を表す。

[0127] 一般式(5)中、 L^5 及び L^6 で表される炭素原子数1～4のアルキレン基としては、前記一般式(3)の Z^1 等で表される炭素原子数1～4のアルキレン基と同様の基とすることができる。

[0128] 本開示においては、前記一般式(2-2)中の L^1 及び L^2 が、前記一般式(5)で表される基である場合、特に L^5 及び L^6 の少なくとも一方が直接結合であることが好ましく、 L^5 及び L^6 が直接結合であることがより好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0129] 本開示においては、前記一般式(2-2)中の m_1 及び m_3 が、それぞれ独立に、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、0～1の整数であることが更に好ましく、0であることが特に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

m_2 は、0～2の整数であることが好ましく、0～1の整数であることがより好ましく、0であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気

的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0130] 本開示においては、前記一般式(2-2)中の r_2 が、0~10であることが好ましく、1~8であることがより好ましく、1~4であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0131] 前記芳香族エポキシ化合物として好適に使用できる市販品としては、例えば、国際公開13/172145号、特開2020-55993号公報等に記載されるものを挙げることができる。

[0132] 前記芳香族エポキシ化合物の含有量は、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであればよい。本開示の組成物において、エポキシ化合物として芳香族エポキシ化合物を含む場合、芳香族エポキシ化合物の含有量は、エポキシ化合物100質量部中、50質量部以上であることが好ましく、70質量部以上であることがより好ましく、90質量部以上であることが更に好ましい。前記含有量が上述の範囲内であることで、前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

組成物における芳香族エポキシ化合物の含有量は、LC/MS法によって測定することができる。

[0133] (1)-2. 脂肪族エポキシ化合物

前記脂肪族エポキシ化合物は、エポキシ基を有し、芳香環及び複素環を含まない化合物を表す。

前記脂肪族エポキシ化合物としては、例えば、脂環式エポキシ化合物及び鎖状エポキシ化合物等が挙げられる。

前記脂環式エポキシ化合物とは、脂環を有する脂肪族エポキシ化合物を意味する。

前記鎖状エポキシ化合物とは、脂環を含まない脂肪族エポキシ化合物を意味する。

本開示の組成物においては、脂肪族エポキシ化合物が脂環式エポキシ化合物であることが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に

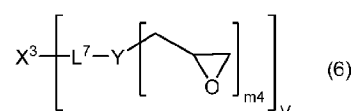
一層優れるものとなるからである。

[0134] (1) 脂環式エポキシ化合物

脂環式エポキシ化合物は、脂環を有する脂肪族エポキシ化合物である。前記脂環としては、「(1) - 1. 芳香族エポキシ化合物」の項で記載した脂環と同様の内容とすることができる。

[0135] 前記脂環式エポキシ化合物としては、例えば、下記一般式(6)で表される化合物が挙げられる。

[0136] [化8]



[0137] 式(6)中、 X^3 は脂環基を表し、

L^7 は、直接結合又は炭素原子数1～12のアルキレン基を表し、該アルキレン基のメチレン基が、 $-O-$ で置換されていてもよく、アルキレン基の1又は2以上の水素原子がヒドロキシ基で置換されていてもよく、

Y は、 $-CH_2-$ 、 $-O-$ 又は窒素原子を表し、

Y が窒素原子である場合、 $m4$ は2を表し、

Y が $-CH_2-$ 又は $-O-$ である場合、 $m4$ は1を表し、

V は1～4の数を表す。

[0138] 前記一般式(6)中、 X^3 で表される脂環基は、脂環から V の数の水素原子を引き抜いた基を表し、該脂環は、前記一般式(2-2)中の L^1 等で表される二価の炭化水素基としての、炭素原子数3～30の二価の脂環含有基における脂環と同様の内容とすることができる。

[0139] 前記一般式(6)中、 L^7 で表される炭素原子数1～12のアルキレン基は、前記一般式(2-2)中の L^1 等で表される、二価の炭化水素基としての、直鎖又は分岐を有する炭素原子数1～30のアルキレン基において、所定の炭素原子数を有する基が挙げられる。

本開示においては、 L^7 が、炭素原子数1～10のアルキレン基であること

が好ましく、炭素原子数 1～8 のアルキレン基であることがより好ましく、炭素原子数 1～4 のアルキレン基であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

また、本開示においては、 L^7 が炭素原子数 1～10 のアルキレン基、且つ、 Y が $-O-$ 又は窒素原子であることが好ましく、 L^7 が炭素原子数 1～4 のアルキレン基であり、且つ、 Y が $-O-$ 又は窒素原子であることが好ましく、 L^7 がメチレン基であり、且つ、 Y が $-O-$ 又は窒素原子であることがより好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0140] 本開示においては、前記一般式 (6) 中の X^3 が、炭素原子数 5～20 の脂環基であることが好ましく、炭素原子数 6～15 の脂環基であることがより好ましく、炭素原子数 6～12 の脂環基であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0141] また、前記脂環式エポキシ化合物は、シクロアルケンオキサイド構造を有するエポキシ化合物であってもよい。

前記シクロアルケンオキサイド構造は、シクロヘキセン環含有化合物やシクロペンテン環含有化合物を酸化剤でエポキシ化することによって得られる、シクロヘキセンオキサイド構造やシクロペンテンオキサイド構造のように、脂肪族環とエポキシ環とが環構造の一部を共有する構造である。また、このようなシクロアルケンオキサイド構造のシクロアルカン中の水素原子を 1 つ除いた基を「エポキシシクロアルキル基」と称する場合がある。

[0142] 前記脂環式エポキシ化合物として、より具体的には、3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル-3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート、3, 4-エポキシ-1-メチルシクロヘキシル-3, 4-エポキシ-1-メチルヘキサンカルボキシレート、6-メチル-3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル-6-メチル-3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート、3, 4-エポキシ-3-メチルシクロヘキシルメチル-3, 4-エポキ

シー 3-メチルシクロヘキサンカルボキシレート、3, 4-エポキシ-5-メチルシクロヘキシルメチル-3, 4-エポキシ-5-メチルシクロヘキサンカルボキシレート、2-(3, 4-エポキシシクロヘキシル-5, 5-スピロ-3, 4-エポキシ)シクロヘキサン-メタジオキサン、ビス(3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル)アジペート、3, 4-エポキシ-6-メチルシクロヘキシルカルボキシレート、メチレンビス(3, 4-エポキシシクロヘキサン)、ジシクロペンタジエンジエポキサイド、エチレンビス(3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート)、エポキシヘキサヒドロフタル酸ジオクチル、エポキシヘキサヒドロフタル酸ジ-2-エチルヘキシル、1-エポキシエチル-3, 4-エポキシシクロヘキサン、1, 2-エポキシ-2-エポキシエチルシクロヘキサン、3, 4-エポキシシクロヘキシルメチルアクリレート、3, 4-エポキシシクロヘキシルメチルメタクリレート、N, N, N', N'-テトラキス(オキシラニルメチル)-1, 3-シクロヘキサンジメタンアミン、ジグリシジル-オクタヒドロ-4, 7-メタノー 1 H-インデン等を挙げることができる。

[0143] (I I) 鎖状エポキシ化合物

鎖状エポキシ化合物は、脂環を含まない脂肪族エポキシ化合物である。

前記鎖状エポキシ化合物としては、例えば、脂肪族多価アルコール又はそのアルキレンオキサイド付加物のポリグリシジルエーテル；脂肪族長鎖多塩基酸のポリグリシジルエステル；グリシジルアクリレート又はグリシジルメタクリレートのビニル重合により合成したホモポリマー；グリシジルアクリレート又はグリシジルメタクリレートとその他のビニルモノマーとのビニル重合により合成したコポリマー、等が挙げられる。

代表的な化合物として、ジオールのジグリシジルエーテル、グリセリンのトリグリシジルエーテル、トリメチロールプロパンのトリグリシジルエーテル、ソルビトールのテトラグリシジルエーテル、ジペンタエリスリトールのヘキサグリシジルエーテル等の、多価アルコールのグリシジルエーテル、プロピレングリコール、トリメチロールプロパン、グリセリン等の脂肪族多価

アルコールに 1 種、又は、2 種以上のアルキレンオキサイドを付加することによって得られるポリエーテルポリオールのパリグリシジルエーテル、及び脂肪族長鎖二塩基酸のジグリシジルエステルが挙げられる。

更に、脂肪族高級アルコールのモノグリシジルエーテル、又はこれらにアルキレンオキサイドを付加することによって得られるポリエーテルアルコールのモノグリシジルエーテル、高級脂肪酸のグリシジルエステル、エポキシ化大豆油、エポキシステアリン酸オクチル、エポキシステアリン酸ブチル及びエポキシ化ポリブタジエン等が挙げられる。

[0144] (111) 脂肪族エポキシ化合物

前記脂肪族エポキシ化合物として好適に使用できる市販品としては、例えば、国際公開 2019/177134 号、特許第 6103653 号公報等に記載のものを挙げることができる。

[0145] 前記脂肪族エポキシ化合物の含有量は、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであればよい。本開示の組成物において、エポキシ化合物として脂肪族エポキシ化合物を含む場合、脂肪族エポキシ化合物の含有量は、エポキシ化合物 100 質量部中、50 質量部以上であることが好ましく、70 質量部以上であることがより好ましく、90 質量部以上であることが更に好ましい。脂肪族エポキシ化合物の含有量が上述の範囲内であることで、前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

組成物における脂肪族エポキシ化合物の含有量は、例えば、LC/MS 法によって測定することができる。

[0146] (1) - 3. 複素環含有エポキシ化合物

前記複素環含有エポキシ化合物は、複素環を含有するエポキシ化合物を表す。芳香環及び複素環を含有するエポキシ化合物は、複素環含有エポキシ化合物に該当するものとする。

前記複素環としては、環を構成する原子が炭素原子以外の原子を含み、芳香族性を有しないものであればよい。このような複素環としては、例えば、

環骨格構成原子中のヘテロ原子が窒素のみである複素環、環骨格構成原子のヘテロ原子が酸素のみである複素環、環骨格構成原子のヘテロ原子が窒素及び酸素のみである複素環、及び環骨格構成原子のヘテロ原子が硫黄のみである複素環等が挙げられる。

環骨格構成原子中のヘテロ原子が窒素のみである複素環としては、例えば、ピロリジン環、ピペリジン環、ピペラジン環、ホモピペリジン環、ホモピペラジン環、テトラヒドロピリジン環、テトラヒドロキノリン環、テトラヒドロイソキノリン環、テトラヒドロカルバゾール環、カプロラクタム環、イソシアヌル環及びヒダントイン環等が挙げられる。本開示においては、環骨格構成原子中のヘテロ原子が窒素のみである複素環がカルボニル基を有するもの、具体的には、カプロラクタム環、イソシアヌル環及びヒダントイン環等であることが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

環骨格構成原子のヘテロ原子が酸素のみである複素環としては、例えば、テトラヒドロフラン環、ジヒドロベンゾフラン環及びテトラヒドロピラン環等が挙げられる。

環骨格構成原子のヘテロ原子が窒素及び酸素のみである複素環としては、例えば、モルホリン環等が挙げられる。

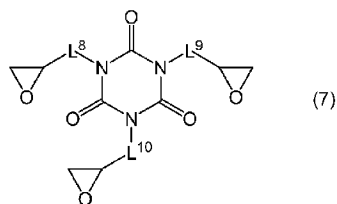
環骨格構成原子のヘテロ原子が窒素及び硫黄のみである複素環としては、例えば、チオモルホリン環等が挙げられる。

本開示においては、複素環が、環骨格構成原子中のヘテロ原子が窒素のみである複素環であることが好ましく、カルボニル基を有し且つ環骨格構成原子中のヘテロ原子が窒素のみである複素環であることがより好ましく、イソシアヌル環であることが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0147] 複素環含有エポキシ化合物としては、例えば、下記一般式（7）で表される化合物が挙げられる。

[0148]

[化9]



[0149] 式(7)中、 L^8 、 L^9 及び L^{10} は、それぞれ独立に、炭素原子数1～20のアルキレン基を表し、該アルキレン基のメチレン基が、 $-O-$ で置換されていてもよく、アルキレン基の1又は2以上の水素原子が、ヒドロキシ基で置換されていてもよい。

[0150] 前記一般式(7)中の、 L^8 、 L^9 及び L^{10} で表される炭素原子数1～20のアルキレン基は、前記一般式(2-2)中の L^1 等で表される、二価の脂肪族炭化水素基としての直鎖又は分岐を有する炭素原子数1～30のアルキレン基において、所定の炭素原子数を有する基が挙げられる。

[0151] 本開示においては、前記一般式(7)中の L^8 、 L^9 及び L^{10} が同一の基である場合、 L^8 、 L^9 及び L^{10} が、炭素原子数1～12のアルキレン基であることが好ましく、炭素原子数1～8のアルキレン基であることがより好ましく、炭素原子数1～6のアルキレン基であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

前記一般式(7)中の L^8 、 L^9 及び L^{10} のいずれかが異なる基である場合、 L^8 、 L^9 及び L^{10} は、メチレン基の一部が $-O-$ で置換された炭素原子数1～20のアルキレン基と、メチレン基に $-O-$ を有しない炭素原子数1～20のアルキレン基とから選択される基であることが好ましく、メチレン基の一部が $-O-$ で置換された炭素原子数1～20のアルキレン基と、メチレン基に $-O-$ を有しない炭素原子数1～3のアルキレン基とから選択される基であることがより好ましく、メチレン基の一部が $-O-$ で置換された分岐を有する炭素原子数1～20のアルキレン基とメチレン基とから選択される基であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0152] 前記複素環含有エポキシ化合物として好適に使用できる市販品としては、例えば、特開2022-018893号公報、特開2016-141799号公報に記載のものを挙げることができる。

[0153] (1) - 4. エポキシ化合物の含有量

本開示の組成物において前記環状エーテル成分として、前記エポキシ化合物を含む場合、前記エポキシ化合物の含有量は、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであればよいが、例えば、環状エーテル成分100質量部中、60質量部以上であることが好ましく、90質量部以上であることがより好ましく、95質量部以上であることが更に好ましく、100質量部であること、すなわち、環状エーテル成分として、エポキシ化合物のみを含むことが特に好ましい。前記含有量が上述の範囲内であることで、前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

組成物におけるエポキシ化合物の含有量は、例えば、LC/MS法によって測定することができる。

[0154] (2) オキセタン化合物

前記オキセタン化合物は、オキセタン環を有し、エポキシ基を有しない化合物である。

このようなオキセタン化合物としては、例えば、3-エチル-3-ヒドロキシメチルオキセタン、3-(メタ)アリルオキシメチル-3-エチルオキセタン、(3-エチル-3-オキセタニルメトキシ)メチルベンゼン、4-フルオロ-[1-(3-エチル-3-オキセタニルメトキシ)メチル]ベンゼン、4-メトキシ-[1-(3-エチル-3-オキセタニルメトキシ)メチル]ベンゼン、[1-(3-エチル-3-オキセタニルメトキシ)エチル]フェニルエーテル、イソブトキシメチル(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル、イソボルニルオキシエチル(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル、イソボルニル(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル、2-エチルヘキシル(3-エチル-3-オキセタニルメチル)

）エーテル、エチルジエチレングリコール（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、ジシクロペンタジエン（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、ジシクロペンテニルオキシエチル（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、ジシクロペンテニル（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、テトラヒドロフルフリル（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、テトラブROMフェニル（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、２－テトラブROMフェノキシエチル（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、トリブROMフェニル（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、２－トリブROMフェノキシエチル（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、２－ヒドロキシエチル（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、２－ヒドロキシプロピル（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、ブトキシエチル（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、ペンタクロロフェニル（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、ペンタブROMフェニル（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、ボルニル（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、３， ７－ビス（３－オキセタニル）－５－オキサノナン、３， ３’－（１， ３－（２－メチレニル）プロパンジイルビス（オキシメチレン））ビス－（３－エチルオキセタン）、１， ４－ビス〔（３－エチル－３－オキセタニルメトキシ）メチル〕ベンゼン、１， ２－ビス〔（３－エチル－３－オキセタニルメトキシ）メチル〕エタン、１， ３－ビス〔（３－エチル－３－オキセタニルメトキシ）メチル〕プロパン、エチレングリコールビス（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、ジシクロペンテニルビス（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、トリエチレングリコールビス（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、テトラエチレングリコールビス（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、トリシクロデカンジイルジメチレン（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、トリメチロールプロパントリス（３－エチル－３－オキセタニルメチル）エーテル、１， ４－ビス（３－エチル－３－

オキセタニルメトキシ)ブタン、1,6-ビス(3-エチル-3-オキセタニルメトキシ)ヘキサン、ペンタエリスリトールトリス(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル、ペンタエリスリトールテトラキス(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル、ポリエチレングリコールビス(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル、ジペンタエリスリトールヘキサキス(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル、ジペンタエリスリトールペンタキス(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル、ジペンタエリスリトールテトラキス(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル、カプロラクトン変性ジペンタエリスリトールヘキサキス(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル、カプロラクトン変性ジペンタエリスリトールペンタキス(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル、ジトリメチロールプロパンテトラキス(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル、EO変性ビスフェノールAビス(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル、PO変性ビスフェノールAビス(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル、EO変性水添ビスフェノールAビス(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル、PO変性水添ビスフェノールAビス(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル、EO変性ビスフェノールF(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル等を挙げることができる。

[0155] (3) 環状エーテル成分の含有量

前記環状エーテル成分の含有量は、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであればよいが、例えば、前記組成物の樹脂成分100質量部中、1質量部以上60質量部以下であることが好ましく、3質量部以上40質量部以下であることがより好ましく、5質量部以上20質量部以下であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力がより優れるものとなるからである。

[0156] 前記環状エーテル成分の含有量は、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであればよいが、例えば、前記組成物の固形分100質量

部中、1質量部以上60質量部以下であることが好ましく、3質量部以上40質量部以下であることがより好ましく、5質量部以上20質量部以下であることが更に好ましい。前記含有量が上述の範囲内であることで、前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力がより優れるものとなるからである。

また、前記環状エーテル成分の含有量は、前記組成物の固形分100質量部中、6質量部以上20質量部以下であることが特に好ましく、14.5質量部以上16.0質量部以下であることが最も好ましい。前記組成物の硬化物が、接着力により優れたものとなるからである。

[0157] 前記環状エーテル成分の含有量は、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであればよいが、例えば、前記組成物100質量部中、0.1質量部以上50質量部以下であることが好ましく、0.5質量部以上30質量部以下であることがより好ましく、1質量部以上10質量部以下であることが更に好ましく、1質量部以上5質量部以下であることが特に好ましい。前記含有量が上述の範囲内であることで、前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力がより優れるものとなるからである。

また、前記環状エーテル成分の含有量は、前記組成物100質量部中、1.50質量部以上5質量部以下であることが更に一層好ましく、3.72質量部以上4.20質量部以下であることが最も好ましい。前記組成物の硬化物が、接着力により優れたものとなるからである。

[0158] 組成物における環状エーテル成分の含有量は、例えば、LC/MS法によって測定することができる。

[0159] A3. エラストマー成分

エラストマー成分は、一般に常温（25℃）でゴム弾性体の性能を示す無定形で軟質な重量平均分子量（M_w）が少なくとも1万以上の重合体を表す。ゴム弾性体とは、常温でのヤング率が約1～100MPa程度と、小さな応力で破断することなく大きく伸び、しかも外力を除くとほとんど瞬間的に元に戻るというゴム弾性を示す物体を意味する。

但し、後述する「活性エステル基」を1分子中に2個以上有するエラスト

マーは、エラストマー成分に該当しないものとする。

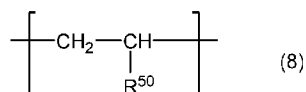
なお、ゴム変性エポキシ化合物のように、エラストマー成分と、エポキシ基等の環状エーテル基とを有する化合物は、エラストマー成分に該当するものとする。

[0160] 前記エラストマー成分としては、例えば、スチレン系エラストマー、オレフィン系エラストマー、ウレタン系エラストマー、ポリエステル系エラストマー、ポリアミド系エラストマー、アクリル系エラストマー、シリコーン系エラストマーの他に、ポリオキシメチレン、ポリイソブチレン、ポリオキシエチレン、ポリ塩化ビニル、ポリウレタン、ポリウレア、ポリビニルアルコール、ポリアクリロニトリル、ポリエーテルスルホン、ポリエチレンイミン等の単独又は共重合の重合体が挙げられるが、本開示においては、エラストマー成分が、側鎖に芳香環を持つ構成単位を有する重合体であることが好ましく、スチレン系エラストマーがより好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0161] (1) 側鎖に芳香環を持つ構成単位を有する重合体

前記側鎖に芳香環を持つ構成単位を有する重合体としては、例えば、下記一般式(8)で表される構成単位をもつビニルポリマーが挙げられる。

[0162] [化10]



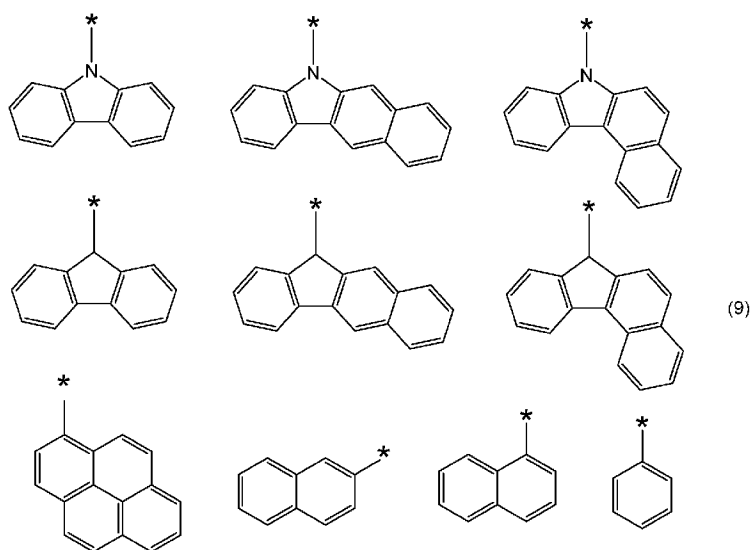
(式(8)中、 R^{50} は、炭素原子数6～30の無置換又は置換基を有する芳香族基を表す。)

[0163] 前記一般式(8)中の R^{50} で表される炭素原子数6～30の無置換又は置換基を有する芳香族基としては、芳香環を含む基であって、1個の芳香環のみ、又は、芳香環と、芳香環、脂環及び複素環から選択される少なくとも1種の環とで縮合環を形成したものから、一個の水素原子を引き抜いた基が挙げられる。

前記炭素原子数 6 ～ 30 の芳香族基を置換する置換基としては、例えば、炭素原子数 1 ～ 4 のアルキル基、ヒドロキシ基、ニトロ基、カルボキシ基、アミノ基、アセチル基等が挙げられる。前記 R^{50} で表される芳香族基の置換基は、1 つ、又は、2 つ以上有していてもよい。該アルキル基としては、前記一般式 (2-1) 中の R^{20} 等で表される炭素原子数 1 ～ 4 のアルキル基と同様の基が挙げられる。

[0164] 前記 R^{50} で表される無置換の炭素原子数 6 ～ 30 の芳香族基としては、例えば、下記式 (9) に記載の基が挙げられる。

[化11]



(式 (9) 中、* は、結合位置を表す。)

[0165] 本開示においては、 R^{50} が、芳香環のみで形成された基であることが好ましく、芳香環が 1 個のみの基であることがより好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0166] 本開示においては、前記エラストマー成分は、前記一般式 (8) で表される構成単位を有する重合体であるが好ましく、前記一般式 (8) 中の R^{50} がベンゼン環である、いわゆるスチレン構成単位（以下、「スチレンユニット」ともいう。）を持つ重合体、すなわち、スチレン系エラストマーを含むことがより好ましい。

[0167] 前記スチレン系エラストマーは、前記スチレンユニット以外に他のモノマ

一単位を含んでいてもよい。他のモノマー単位と対応するモノマーとしては、例えば、ビニル系モノマー、カルボキシ含有モノマー、酸無水物モノマー、スルホン酸基含有モノマー、シアノ系モノマー、アミド系モノマー、マレイミド系モノマー、イタコンイミド系モノマー、オレフィン等が挙げられる。

[0168] 前記ビニル系モノマーとしては、例えば、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、N-ビニルピロリドン、メチルビニルピロリドン、ビニルピリジン、ビニルピペリドン、ビニルピリミジン、ビニルピペラジン、ビニルピラジン、ビニルピロール、ビニルイミダゾール、ビニルオキサゾール、ビニルモルホリン、N-ビニルカルボン酸アミド類、N-ビニルカプロラクタム等が挙げられる。

[0169] 前記カルボキシ含有モノマーとしては、例えば、アクリル酸、メタクリル酸、カルボキシエチルアクリレート、イタコン酸、マレイン酸、フマル酸、クロトン酸等が挙げられる。

[0170] 前記酸無水物モノマーとしては、例えば、無水マレイン酸、無水イタコン酸等が挙げられる。

[0171] 前記スルホン酸基含有モノマーとしては、例えば、スチレンスルホン酸、アリルスルホン酸、2-(メタ)アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸、(メタ)アクリルアミドプロパンスルホン酸、スルホプロピル(メタ)アクリレート、(メタ)アクリロイルオキシナフタレンスルホン酸等が挙げられる。

[0172] 前記シアノ系モノマーとしては、例えば、アクリロニトリル、メタクリロニトリル等が挙げられる。

[0173] 前記アミド系モノマーとしては、例えば、(メタ)アクリルアミド、N,N-ジメチル(メタ)アクリルアミド、N-ブチル(メタ)アクリルアミド、N-メチロール(メタ)アクリルアミド、N-メチロールプロパン(メタ)アクリルアミド等が挙げられる。

[0174] 前記マレイミド系モノマーとしては、例えば、N-シクロヘキシルマレイ

ミド、N-イソプロピルマレイミド、N-ラウリルマレイミド、及びN-フェニルマレイミド等のマレイミド系モノマー等が挙げられる。

[0175] 前記イタコンイミド系モノマーとしては、例えば、N-メチルイタコンイミド、N-エチルイタコンイミド、N-ブチルイタコンイミド、N-オクチルイタコンイミド、N-2-エチルヘキシルイタコンイミド、N-シクロヘキシルイタコンイミド、N-ラウリルイタコンイミド等が挙げられる。

[0176] 前記オレフィンとしては、例えば、エタン、エチレン、プロピレン、ブタン、ブチレン、ブタジエン、水添ブタジエン、イソプレン、水添イソプレン又はその他の α -オレフィンからそれぞれ水素原子を2つ除いた二価の基が挙げられる。

[0177] 本開示においては、スチレン系エラストマーが、前記スチレンユニットが1以上配列されたブロック（以下、「スチレンブロック」ともいう。）と、オレフィンが1以上配列されたブロック（以下、「オレフィンブロック」ともいう。）とが配列されたブロック共重合体であることが好ましく、スチレンブロックと、オレフィンブロックと、スチレンユニットの芳香環を水添したもの（以下、「水添スチレンユニット」ともいう。）が1以上配列されたブロック（以下、「水添スチレンブロック」ともいう。）とが、配列されたブロック共重合体であることがより好ましい。前記組成物は、電気的特性及び接着力が更に優れる硬化物を形成することができるからである。

[0178] 前記スチレン系エラストマーが、スチレンブロックとオレフィンブロックとを有するブロック共重合体である場合、スチレン系エラストマー中の、スチレンユニットとオレフィンユニットは合計で50質量%以上を占めることが好ましく、80質量%以上を占めることがより好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0179] 前記スチレン系エラストマーが、スチレンブロックと、オレフィンブロックと、水添スチレンブロックとを有するブロック共重合体である場合、スチレン系エラストマー中の、スチレンユニットと、オレフィンユニットと、水添スチレンユニットとが合計で50質量%以上を占めることが好ましく、8

0質量%以上を占めることがより好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0180] 本開示においては、前記スチレン系エラストマー中のスチレンユニットは、30質量%以上80質量%以下を占めることが好ましく、40質量%以上75質量%以下を占めることがより好ましく、特に、50質量%以上75質量%以下を占めることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0181] 前記スチレン系エラストマーの具体例としては、ブロック共重合体として、アクリロニトリル-ブタジエンスチレン（ABS）樹脂、メタクリル酸メチル-ブタジエンスチレン（MBS）樹脂、耐熱ABS樹脂、スチレン-ブタジエンスチレン（SBS）樹脂、スチレン-イソプレンスチレン（SIS）樹脂、スチレン-ブタジエン-ブチレンスチレン（SBBS）樹脂、メチルメタクリレート-アクリロニトリル-ブタジエンスチレン（MABS）樹脂等の熱可塑性樹脂、並びに、これらのブタジエンあるいはイソプレンの二重結合を水素添加したスチレン-エチレン-ブチレンスチレン（SEBS）樹脂、スチレン-エチレン-プロピレンスチレン（SEPS）樹脂、スチレン-エチレン-プロピレン（SEP）樹脂、スチレン-エチレン-エチレン-プロピレンスチレン（SEEPS）樹脂等の水素添加スチレン系エラストマー樹脂が挙げられる。これらは単独でも複数の混合物でも使用可能である。

SBSは「ポリスチレン-ポリブタジエン」と呼ばれることがあり、SEBSは「ポリスチレン-ポリ（エチレン／ブチレン）ブロック-ポリスチレン」と呼ばれることがあり、SEPSは「（ポリスチレン-ポリ（エチレン／プロピレン）ブロック-ポリスチレン）」と呼ばれることがあり、SEEPSは「（ポリスチレン-ポリ（エチレン-エチレン／プロピレン）ブロック-ポリスチレン）」と呼ばれることがあり、SBBSは「（ポリスチレン-ポリ（ブタジエン-ブチレン）ブロック-ポリスチレン）」と呼ばれることがある。

本開示においては、前記エラストマー成分として、SBS、SEBS、SEPS、SEEPSを含むことが好ましく、SEBS、SEPS、SEEPSを含むことがより好ましく、SEBSを含むことが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0182] 本開示においては、エラストマー成分として、側鎖に芳香環を持つ構成単位を有する重合体を含むことが好ましく、前記一般式(8)で表される構成単位を有する重合体を含むことがより好ましく、スチレン系エラストマーを含むことが更に好ましく、SEBSを含むことが特に好ましい。前記組成物は、電気的特性及び接着力が更に優れる硬化物を形成することができるからである。

[0183] (2) 側鎖に芳香環を持つ構成単位を有する重合体の市販品

本開示の組成物におけるエラストマー成分として、側鎖に芳香環を持つ構成単位を有する重合体として好適に使用することができる市販品としては、例えば以下のものが挙げられる。

タフプレン(登録商標)シリーズ:A、125、126S(スチレン含量40%)、アサプレン(登録商標)シリーズ:T-411、T-432、T-437(同30%)、T-438(同35%)、T-439(同45%)、(以上SBS)、タフテック(登録商標)Hシリーズ:H1221(同12%)、H1062、H1521(同18%)、H1052(同20%)、H1053(同29%)、H1051(同42%)、H1517(同43%)、H1043(同67%)、(以上SEBS)、タフテックPシリーズ:P1083(同20%)、P1500(同30%)、P5051(同47%)、P2000(同50%)、(以上SBBS)、タフテックMシリーズ:M1943(同20%)、M1913、M1911、MP10(同30%)、(以上、変性SEBS)(以上、旭化成工業株式会社製)；

エラストマーARシリーズ(SEBS、アロン化成株式会社製)；

クレイトン(登録商標)Dシリーズ:D0243、D0246、D110

1、D1102、D1116、D1118、D1152、D1155、D1184、D1189、D1191、D1192、D4150、D4153、D4270、DX1000（以上SBS）、D1111、D1113、D1114D1117、D1119、D1124、D1126、D1161、D1162、D1163、D1164、D1170、D1171、D1173、D1183、D1193（以上SIS）、クレイトン（登録商標）Gシリーズ：A1535、A1536、G1633、G1640、G1641、G1642、G1643、G1645、G1650、G1651、G1652、G1654、G1657、G1660、G1701、G1702、G1726、G1730、G1740、G1765、G2705、G2708、G2806、G2832、G2836、G2874、G4609、G4610、G7705、G7720、G7723、G7820（以上SEBS又はSEPS）（以上、クレイトンポリマージャパン株式会社製）；

TRシリーズ：TR2000（同40%）、TR2001（同40%）、TR2003（同43%）、TR2250（同52%）、2500（同35%）、TR2601（同30%）、TR2787（同30%）、TR2827（同24%）、TR2086（同45%）、（以上SBS）、SISシリーズ：SIS5002（同22%）、SIS5229（同15%）、SIS5250（同20%）、SIS5403（同15%）、SIS5506（同16%）（以上SIS）、ダイナロン（登録商標）シリーズ：8600P（同15%）、8300P（同9%）、8903P（同35%）、9901P（同53%）（以上、SEBS）（以上、JSR株式会社製）；

デンカSTR（SBS、電気化学工業株式会社製）；

クインタック（登録商標）シリーズ：3421（同14%）、3450（同19%）、3270（同24%）、3280（同25%）、3190（同30%）、3390（同48%）、3620（同14%）、3433N（同16.5%）、3520（同15%）（以上、SIS）、ゼオフィットシリーズ：ZFT1330（SBS、同30%）（以上日本ゼオン株式会社製）

;

T P E - S B シリーズ (S E B S 、 住友化学株式会社製) ;

ラバロン (登録商標) シリーズ (S E B S 、 三菱化学株式会社製) ;

セプトン (登録商標) シリーズ : 1 0 2 0 (S E P 、 同 3 6 %) 、 2 0 0 2 (同 3 0 %) 、 2 0 0 4 F (同 1 8 %) 、 2 0 0 5 (同 2 0 %) 、 2 0 0 6 (同 3 5 %) 、 2 0 6 3 (同 1 3 %) 、 2 1 0 4 (同 6 5 %) 、 (以上 S E P S) 、 4 0 3 3 (同 3 0 %) 、 4 0 4 4 (同 3 2 %) 、 4 0 5 5 (同 3 0 %) 、 4 0 7 7 (同 3 0 %) 、 4 0 9 9 (同 3 0 %) (以上 S E E P S) 、 8 0 0 4 (同 3 1 %) 、 8 0 0 6 (同 3 3 %) 、 8 0 0 7 L (同 3 0 %) 、 (以上 S E B S) 、 H G 2 5 2 (同 2 8 % 、 S E E P S - O H) 、 ハイブラー (登録商標) シリーズ : 5 1 2 5 (同 2 0 %) 、 5 1 2 7 (同 2 0 %) (以上、 S I S) 、 7 1 2 5 F (同 2 0 % 、 S E P S) 、 7 3 1 1 F (同 1 2 % 、 S E E P S) (以上、 株式会社クラレ製) ;

レオストマー、アクティマー (以上、リケンテクノス株式会社製) 等。

[0184] (3) その他のエラストマー

本開示においては、エラストマー成分として、前記側鎖に芳香環を持つ構成単位を有する重合体以外のその他のエラストマーを含むことができる。その他のエラストマーとしては、例えば、オレフィン系エラストマー、ウレタン系エラストマー、ポリエステル系エラストマー、ポリアミド系エラストマー、アクリル系エラストマー、シリコン系エラストマー、ゴム変性エポキシ化合物等が挙げられる。

[0185] 前記オレフィン系エラストマーとしては、例えば、エチレン、プロピレン、1-ブテン等の炭素数2~20の α -オレフィンの共重合体が挙げられる。ジシクロペンタジエン等の炭素数2~20の非共役ジエンと α -オレフィンとの共重合体や、ブタジエン-アクリロニトリル共重合体にメタクリル酸を共重合したカルボキシ変性NBR等も含まれる。

[0186] 前記ウレタン系エラストマーとしては、例えば、低分子のエチレングリコールとジイソシアネートからなるハードセグメントと高分子 (長鎖) ジオー

ルとジイソシアネートからなるソフトセグメントとの構成単位からなるエラストマーが挙げられる。

[0187] 前記ポリエステル系エラストマーとしては、例えば、ジカルボン酸又はその誘導体とジオール化合物又はその誘導体を重縮合して得られるエラストマーが挙げられる。

但し、ジカルボン酸のカルボキシ基と、フェノール性水酸基とが、エステル化したエステル結合を2個以上有するものは、活性エステル化合物であり、ポリエステル系エラストマーに該当しないものとする。

[0188] 前記ポリアミド系エラストマーとしては、例えば、ハードセグメントとしてポリアミドを、ソフトセグメントとしてポリエーテルやポリエステルを用いたポリエーテルブロックアミド型エラストマーやポリエーテルエステルブロックアミド型エラストマーが挙げられる。

[0189] 前記アクリル系エラストマーとしては、例えば、アクリロニトリルブチルアクリレート共重合体、アクリロニトリルブチルアクリレートーエチルアクリレート共重合体、アクリロニトリルブチルアクリレートーグリシジルメタクリレート共重合体等が挙げられる。

[0190] 前記シリコン系エラストマーとしては、例えば、オルガノポリシロキサンを主成分したもので、ポリジメチルシロキサン系、ポリメチルフェニルシロキサン系、ポリジフェニルシロキサン系等が挙げられる。

[0191] 前記ゴム変性エポキシ化合物としては、例えば、エポキシ化ブタジエーンスチレン共重合体、ポリジメチルシロキサンのエポキシ化合物等が挙げられる。また、上述の「A2. 環状エーテル成分」で挙げた各種エポキシ化合物の一部又は全部のエポキシ基を、両末端カルボン酸変性ブタジエーンアクリロニトリルゴム、末端アミノ変性シリコンゴム等で変性することによって得られる化合物を用いることもできる。

[0192] (4) 物性値

(4) - 1. 物性1: Melt Flow Rate (以下、「MFR」と記載)

本開示において、エラストマー成分のMFR（2.16kg）は0.5g／10min以上15g／10min以下であることが好ましく、1.0g／10min以上10g／10min以下であることがより好ましく、1.5g／10min以上5g／10min以下であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

MFRは、ISO 1133に準拠して測定される。

[0193] (4) - 2. 物性 2 : 密度及び比重

本開示においては、エラストマー成分の密度は、 0.9 g/cm^3 以上 1.5 g/cm^3 以下であることが好ましく、 0.95 g/cm^3 以上 1.2 g/cm^3 以下であることがより好ましく、 0.96 g/cm^3 以上 1.0 g/cm^3 以下であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

エラストマー成分の比重の好ましい範囲としては、前記の密度の範囲から「 g/cm^3 」の単位を除いた同様の数値範囲が挙げられる。エラストマーの密度及び比重は、ISO 1183に準拠して測定できる。

[0194] (5) エラストマー成分の含有量

前記エラストマー成分の含有量は、前記組成物の固形分１００質量部中、３０質量部以上である。エラストマー成分の含有量が、３０質量部以上であることで、組成物中の潜在性硬化剤等の含有量の調整が容易となり、前記組成物の硬化性と、前記組成物を硬化して得られる硬化物の電気的特性とのバランスが優れたものとなるからである。また、エラストマー成分の含有量を前記所定量以上にすることで、接着力が向上するので好ましい。

これらの観点から、エラストマー成分の含有量は、前記組成物の固形分 100 質量部中、30 質量部以上 95 質量部以下であることが好ましく、33 質量部以上 80 質量部以下であることがより好ましく、35 質量部以上 80 質量部以下であることが更に好ましく、35 質量部以上 77 質量部以下であることが更により好ましく、38 質量部以上 73 質量部以下であることが更

により好ましく、40質量部以上73質量部以下であることが一層好ましく、43質量部以上73質量部以下であることが最も好ましい。前記組成物は、電気的特性及び接着力が更に優れる硬化物を形成することができるからである。

また、本開示においては、前記エラストマー成分の含有量は、前記組成物の固形分100質量部中、38質量部以上51質量部以下であることが好ましく、38質量部以上45質量部以下であることが最も好ましい。前記組成物は、より接着力に優れた硬化物を形成することができるからである。

[0195] 前記と同様の観点から、前記組成物100質量部中、エラストマー成分の含有量は、1質量部以上95質量部以下であることが好ましく、1質量部以上70質量部以下であることがより好ましく、5質量部以上50質量部以下であることが更に好ましく、8質量部以上20質量部以下であることが更に好ましい。前記組成物は、電気的特性及び接着力が更に優れる硬化物を形成することができるからである。

本開示においては、前記エラストマー成分の含有量は、前記組成物100質量部中、8質量部以上13.5質量部以下であることが好ましく、8質量部以上12質量部以下であることが特に一層好ましく、11質量部以上13.5質量部以下であることが最も好ましい。前記組成物は、より接着力に優れた硬化物を形成することができるからである。

[0196] A4. 活性エステル化合物及び／又はカルボン酸無水物化合物

本開示の組成物は、活性エステル化合物又はカルボン酸無水物化合物を含有することで、硬化物の物性を良好に維持したまま、比誘電率及び誘電正接を低くすることができる。

本開示の組成物は、活性エステル化合物のみを含む場合、カルボン酸無水物化合物を含む場合、活性エステル化合物及びカルボン酸無水物化合物の両方を含む場合のいずれかであってもよいが、活性エステル化合物を含む場合が好ましく、活性エステル化合物のみを含む場合がより好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性と接着力とのバランスに優れるものとなるからで

ある。

[0197] 本開示の組成物は、活性エステル化合物及びカルボン酸無水物化合物の合計の含有量が、組成物の固形分100質量部中、1質量部以上40質量部以下であることが好ましく、3質量部以上35質量部以下であることがより好ましく、5質量部以上30質量部以下であることが更に好ましく、7質量部以上25以下であることが特に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性と接着力とのバランスに優れるものとなるからである。

[0198] (1) 活性エステル化合物

前記活性エステル化合物は、1分子中に2個以上の活性エステル基を有する化合物である。活性エステル基は、多価カルボン酸化合物のカルボキシ基と、フェノール性水酸基を有する化合物のフェノール性水酸基とがエステル化反応（縮合反応）をすることで形成されるエステル結合である。但し、上述のイオン性化合物は、活性エステル化合物から除くものとする。

本開示の組成物において、活性エステル化合物は、1種を単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0199] 前記多価カルボン酸化合物としては、カルボキシ基を2個以上有する脂肪族カルボン酸化合物、カルボキシ基を2個以上有する芳香族カルボン酸化合物等が挙げられる。

前記カルボキシ基を2個以上有する脂肪族カルボン酸化合物としては、例えば、シュウ酸、マロン酸、マレイン酸、フマル酸、シトラコン酸、イタコン酸、グルタコン酸、コハク酸、アジピン酸、ドデカン二酸若しくはこれらのアルキルエステル（例えば、炭素原子数1～3以下のアルキル基とエステル結合したもの）等が挙げられる。

前記カルボキシ基を2個以上有する芳香族カルボン酸化合物としては、例えば、フタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、トリメシン酸、ピロメリット酸若しくはこれらのアルキルエステル（例えば、炭素原子数1～3以下のアルキル基とエステル結合したもの）等が挙げられる。

[0200] 本開示においては、前記多価カルボン酸化合物が、芳香族カルボン酸化合

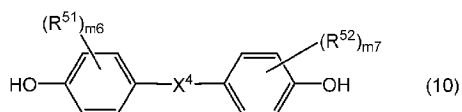
物であることが好ましく、フタル酸、イソフタル酸又はテレフタル酸であることがより好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0201] 前記フェノール性水酸基を有する化合物としては、ヒドロキシ基を2個以上有するフェノール性水酸基あることが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0202] 前記ヒドロキシ基を2個以上有するフェノール性水酸基としては、例えば、ハイドロキノン、レゾルシン、カテコール等のジヒドロキシベンゼン類；ビスフェノールA、ビスフェノールE、ビスフェノールF、ビスフェノールS、メチル化ビスフェノールA、メチル化ビスフェノールE、メチル化ビスフェノールF、メチル化ビスフェノールS等のビスフェノール類、1,5-ジヒドロキシナフタレン、1,6-ジヒドロキシナフタレン、2,6-ジヒドロキシナフタレン等のジヒドロキシナフタレン類；フェノールフタリン、ヒドロキシ基を2個以上有するジシクロペンタジエン型フェノール樹脂；トリヒドロキシベンゾフェノン、ベンゼントリオール、テトラヒドロキシベンゾフェノン、フェノールノボラック樹脂、フェノールアララルキル樹脂等が挙げられる。

[0203] 本開示の組成物においては、前記フェノール性水酸基を有する化合物は、ビスフェノール類、ジヒドロキシナフタレン類、ヒドロキシ基を2個以上有するジシクロペンタジエン型フェノール樹脂、フェノールノボラック樹脂であることが好ましく、ビスフェノール類であることがより好ましく、下記一般式(10)で表される化合物が更に好ましい。前記組成物は、電気的特性及び接着力が優れる硬化物を形成することができるからである。

[0204] [化12]



(式(10)中、 R^{51} 及び R^{52} は、各々独立に、一価の有機基を表し、

X⁴は、二価の有機基を表し、

m₆ 及び m₇ は、それぞれ独立に、0～4の数を表す。）

[0205] 前記一般式(10)中のR⁵¹及びR⁵²で表される、一価の有機基としては、例えば、炭素原子数1～10のアルキル基、炭素原子数2～10のアルケニル基、炭素原子数2～10のアルキニル基、及び炭素原子数6～20の一価の芳香環含有基等が挙げられる。一価の有機基の1つ、又は、2つ以上の水素原子が、ハロゲン原子で置換されていてもよい。

[0206] 前記一般式(10)中のR⁵¹及びR⁵²で表される炭素原子数1～10のアルキル基としては、前記一般式(1)中のR¹等で表される炭素原子数1～12のアルキル基において、所定の炭素原子数を有する基が挙げられる。

[0207] 前記一般式(10)中のR⁵¹及びR⁵²で表される炭素原子数2～10のアルケニル基としては、例えば、ビニル基、プロペニル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、1,3-ブタジエニル基、1-メチルビニル基、スチリル基、2,2-ジフェニルビニル基、1,2-ジフェニルビニル基、1-メチルアリル基、1,1-ジメチルアリル基、2-メチルアリル基、1-フェニルアリル基、2-フェニルアリル基、3-フェニルアリル基、3,3-ジフェニルアリル基、1,2-ジメチルアリル基、1-フェニル-1-ブテニル基、3-フェニル-1-ブテニル基、シクロペンテニル基、シクロペンタジエニル基、シクロヘキセニル基、シクロヘプテニル基、シクロヘプタトリエニル基、シクロオクテニル基、ノルボルニルアルケニル基等が挙げられる。

[0208] 前記一般式(10)中のR⁵¹及びR⁵²で表される炭素原子数2～10のアルキニル基としては、例えば、エチニル基、プロピニル基、プロパルギル基、1-ブチニル基、2-ブチニル基、3-ブチニル基、1-ペンチニル基、2-ペンチニル基、3,3-ジメチル-1-ブチニル基、3-エチル-3-メチル-1-ペンチニル基、3,3-ジイソプロピル-1-ペンチニル基、フェニルエチニル基、フェニルプロピニル基等が挙げられる。

[0209] 前記一般式(10)中のR⁵¹及びR⁵²で表される炭素原子数6～20の一

価の芳香環含有基としては、芳香環から1個の水素原子を引き抜いた一価の芳香環基、又は該一価の芳香環基と炭素原子数1～4のアルキル基とが連結した基を表す。

前記芳香環としては、「(1) - 1. 芳香族エポキシ化合物」の項で記載した芳香環と同様とすることができる。

[0210] 前記一般式(10)中の X^4 で表される二価の有機基としては、炭素原子数1～10のアルキレン基、炭素原子数2～10のアルケニレン基、炭素原子数2～10のアルキニレン基等、炭素原子数6～12の二価の芳香環含有基等が挙げられる。二価の有機基の1つ、又は、2つ以上の水素原子が、ハロゲン原子で置換されていてもよい。

[0211] 前記一般式(10)中の X^4 で表される炭素原子数1～10のアルキレン基としては、前記一般式(2-2)中の L^1 等で表される直鎖又は分岐を有する炭素原子数1～30のアルキレン基において、所定の炭素原子数を有する基が挙げられる。

[0212] 前記一般式(10)中の X^4 で表される炭素原子数2～10のアルケニレン基としては、例えば、エチレニレン基、メチルエチニレン基、シクロヘキセニレン基、ペンテニレン基、ヘキセニレン基、ヘプテニレン基、オクテニレン基等が挙げられる。

[0213] 前記一般式(10)中の X^4 で表される炭素原子数2～10のアルキニレン基としては、例えば、エチニレン基、メチルエチニレン基、シクロヘキシニレン基、ペンチニレン基、ヘキシニレン基、ヘプチニレン基、オクチニレン基等が挙げられる。

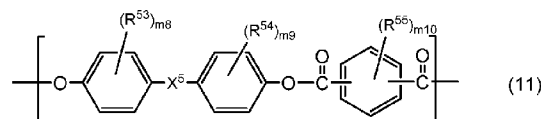
[0214] 前記一般式(10)中の X^4 で表される炭素原子数6～12の二価の芳香環含有基としては、前記一般式(2-1)中の X^1 で表される、二価の芳香環含有基において、所定の炭素原子数を有する基が挙げられる。

[0215] 本開示においては、 m_6 及び m_7 の少なくとも一方が、0超であることが好ましく、また、少なくとも一方が2以下であることが好ましく、少なくとも一方が2であることがより好ましく、両方が2であることが更に好ましい

。前記組成物は、電気的特性及び接着力が優れる硬化物を形成することができるからである。

[0216] また、前記活性エステル化合物としては、芳香族カルボン酸化合物と、フェノール性水酸基を有する化合物とがエステル化反応した化合物であることが好ましく、カルボキシ基を2個以上有する芳香族カルボン酸化合物と、ヒドロキシ基を2個以上有するフェノール性水酸基を有する化合物とがエステル化反応した化合物であることがより好ましく、下記一般式(11)で表される構成単位を有する重合体であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0217] [化13]



(式(11)中、 R^{53} 、 R^{54} 及び R^{55} は、それぞれ独立に、一価の有機基を表し、

X^5 は、二価の有機基を表し、

$m8$ 、 $m9$ 及び $m10$ は、それぞれ独立に、0～4の数を表し、

R^{53} 、 R^{54} 及び R^{55} が、それぞれ複数である場合、複数の R^{53} 、 R^{54} 及び R^{55} が同じであってもよく、異なるものであってもよい。)

[0218] 前記一般式(11)中の R^{53} 、 R^{54} 及び R^{55} で表される一価の有機基としては、前記一般式(10)中の R^{51} 等で表される一価の有機基と同様の基とすることができる。

X^5 で表される二価の有機基は、前記一般式(10)中の X^4 で表される二価の有機基と同様の基とすることができる。

[0219] 前記一般式(11)で表される構成単位を有する重合体として、好適に使用することができる市販品としては、ユニチカ(株)製の「Uポリマー(登録商標)」、「ユニファイナー(登録商標)」シリーズ、住友化学社「エコノール」シリーズ、セラニーズ社(米国)製の「デュレル」シリーズ、デュ

ポン社製「アリロン」シリーズ等が挙げられる。

[0220] 前記活性エステル化合物の分子量としては、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）で測定したポリスチレン換算の数平均分子量が、500以上30,000以下であることが好ましく、800以上10,000以下であることがより好ましく、1,000以上4,000以下であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0221] ポリスチレン換算の数平均分子量は、具体的には、GPCを用いて、溶媒としてクロロホルムを用い、カラム温度40℃の条件で、予め同条件で測定された標準ポリスチレンの検出時間－分子量の曲線より求める。このとき、活性エステル化合物のクロロホルム溶液の濃度は、1g／リットルの濃度である。また、検出器は、紫外線吸収検出器を用いて280nm程度で測定することが好ましい

[0222] 本開示の組成物が、活性エステル化合物を含有する場合、活性エステル化合物の含有量としては、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであれば、特に制限されるものではないが、前記組成物の樹脂成分100質量部中、0.1質量部以上50質量部以下であることが好ましく、1質量部以上40質量部以下であることがより好ましく、3質量部以上30質量部以下であることが更に好ましく、5質量部以上25質量部以下であることが特に好ましい。前記組成物は、電気的特性及び接着力が優れる硬化物を形成することができるからである。

[0223] 本開示の組成物が、活性エステル化合物を含有する場合、活性エステル化合物の含有量としては、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであれば、特に制限されるものではないが、前記組成物の固形分100質量部中、0.1質量部以上50質量部以下であることが好ましく、1質量部以上40質量部以下であることがより好ましく、3質量部以上30質量部以下であることが更に好ましく、5質量部以上25質量部以下であることが特に好ましい。前記組成物は、電気的特性及び接着力が優れる硬化物を形成

することができるからである。

[0224] 本開示の組成物が、活性エステル化合物を含有する場合、活性エステル化合物の含有量としては、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであれば、特に制限されるものではないが、前記組成物 100 質量部中、0.1 質量部以上 30 質量部以下であることが好ましく、0.5 質量部以上 15 質量部以下であることがより好ましく、0.8 質量部以上 7 質量部以下であることが更に好ましい。前記組成物は、電気的特性及び接着力が優れる硬化物を形成することができるからである。

[0225] (2) カルボン酸無水物化合物

前記カルボン酸無水物化合物とは、2 分子のカルボン酸を脱水縮合して環状構造を形成した化合物を意味する。前記カルボン酸無水物化合物としては、例えば、脂環を含み、芳香環を含まない脂環式カルボン酸無水物化合物や、芳香環を含む芳香族カルボン酸無水物化合物が挙げられる。

[0226] 前記脂環式カルボン酸無水物化合物とは、2 分子のカルボン酸を脱水縮合して脂環の環状構造を有する構造の化合物を意味する。この脂環は、環構造中に炭素-炭素不飽和結合を一部有していてもよい。また、脂環は橋かけ構造を有していてもよい。橋かけ構造の脂環としては、例えば、ビスクロ環が挙げられる。

前記脂環は、単環であってもよく、多環構造であってもよい。また、前記脂環は、5 員環～10 員環であることが好ましく、5 員環～8 員環であることが好ましく、6 員環又は 8 員環であることが好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0227] 前記脂環は、1 つ又は 2 つ以上の置換基を有していてもよい。

前記脂環が有していてもよい置換基としては、例えば、炭素原子数 1～10 のアルキル基、炭素原子数 1～10 のアルコキシ基、炭素原子数 2～10 のアシル基、炭素原子数 2～10 のアルコシカルボニル基、炭素原子数 6～20 のアリール基及びカルボキシ基等が挙げられる。

[0228] 前記脂環の置換基としての炭素原子数 1～10 のアルキル基としては、前

記一般式（１）中の R^1 等で表される炭素原子数１～１２のアルキル基において、所定の炭素原子数を有する基が挙げられる。

[0229] 前記脂環の置換基としての炭素原子数１～１０のアルコキシ基としては、前記炭素原子数１～１０のアルキル基とエーテル結合が結合した基を表し、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基等が挙げられる。

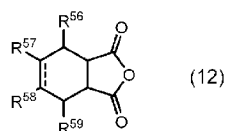
[0230] 前記炭素原子数２～１０のアシル基は、脂肪族のアシル基を表し、例えば、アセチル基、プロピオニル基、ブチリル基、イソブチリル基、メタクリロイル基、オクタノイル基等が挙げられる。

[0231] 前記炭素原子数２～１０のアルコキシカルボニル基としては、例えば、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、プロポキシカルボニル基、ブトキシカルボニル基等が挙げられる。

[0232] 前記炭素原子数６～２０のアリール基としては、例えば、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、トリフェニレニル基、テトラフェニル基、ナフチル基、アントラセニル基、フェナレニル基、フェナントレニル基、フルオレニル基、ピレニル基、クリセニル基、アズレニル基等が挙げられる。

[0233] 本開示においては、前記カルボン酸無水物化合物が、脂環式カルボン酸無水物化合物であることが好ましく、下記一般式（１２）で表される化合物であることがより好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0234] [化14]



（式（１２）中、 R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 及び R^{59} は、それぞれ独立に一価の有機基を表し、 R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 及び R^{59} から選択される２つが結合してなる炭素原子数１～４のアルキレン基を形成してもよい。また、脂環式骨格の４位と５位との間の結合は、単結合又は二重結合を表す。）

[0235] R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 及び R^{59} で表される一価の有機基としては、前記一般式(10)中の R^{51} 等で表される一価の有機基と同様の基とすることができる。

R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 及び R^{59} から選択される2つが結合してなる炭素原子数1～4のアルキレン基を形成とは、脂環に橋かけ構造が形成され、脂環が複数形成されることを意味する。

[0236] 前記一般式(12)で表される化合物の具体例としては、4-シクロヘキセン-1,2-ジカルボン酸無水物、シクロヘキサン-1,2-ジカルボン酸無水物、3-メチル-4-シクロヘキセン-1,2-ジカルボン酸無水物、4-メチル-4-シクロヘキセン-1,2-ジカルボン酸無水物、ヘキサヒドロイソベンゾフラン-1,3-ジオン、ヘキサヒドロ-5-メチルイソベンゾフラン-1,3-ジオン、ビスクロ[2.2.1]ヘプタン-2,3-ジカルボン酸無水物、5-メチルヘキサヒドロ-4,7-メタノイソベンゾフラン-2,3-ジオン、5-ノルボルネン-2,3-ジカルボン酸無水物、ノルボルナン-2,3-ジカルボン酸無水物、メチル-5-ノルボルネン-2,3-ジカルボン酸無水物、メチルノルボルナン-2,3-ジカルボン酸無水物等が挙げられる。

[0237] 前記脂環式カルボン酸無水物化合物として好適に使用することができる市販品としては、例えば、リカシッド(登録商標)MH、MH-700、MH-700G、MH-T、MTA-15、HNA-100(以上、新日本理化(株)製)、HN-2200、HN-2000、HN-5500、MHAC-P(以上、昭和電工マテリアルズ(株)製)等が挙げられる。

[0238] 本開示の組成物において、カルボン酸無水物化合物として脂環式カルボン酸無水物化合物を含む場合、脂環式カルボン酸無水物化合物の含有量は、カルボン酸無水物化合物100質量部中、50質量部以上であることが好ましく、70質量部以上であることがより好ましく、90質量部以上であることが更に好ましく、100質量部、すなわち、脂環式カルボン酸無水物化合物のみを含むことが特に好ましい。脂環式カルボン酸無水物化合物の含有量が

上述の範囲内であることで、前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0239] 前記芳香族カルボン酸無水物化合物は、2分子のカルボン酸を脱水縮合して芳香環の環状構造を有する化合物を表す。この芳香環は、1つ、又は、2つ以上の置換基を有していてもよい。

前記芳香環が有していてもよい置換基としては、例えば、炭素原子数1～10のアルキル基、炭素原子数1～10のアルコキシ基、炭素原子数2～10のアシル基、炭素原子数2～10のアルコシカルボニル基、炭素原子数6～20のアリール基及びカルボキシ基等が挙げられる。これらの置換基は、脂環式カルボン酸無水物化合物の置換基と同様とすることができる。

[0240] 前記芳香族カルボン酸無水物化合物としては、例えば、フタル酸無水物、トリメリット酸無水物、ピロメリット酸無水物、3, 3', 4, 4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、4, 4'-オキシジフタル酸二無水物、2, 3, 6, 7-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、1, 2, 5, 6-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、エチレングリコールビストリメリテート酸二無水物、2, 2', 3, 3'-ジフェニルテトラカルボン酸二無水物、2, 2', 3, 3'-ジフェニルスルホンテトラカルボン酸無水物、チオフェン-2, 3, 4, 5-テトラカルボン酸二無水物等が挙げられる。

[0241] 前記芳香族カルボン酸無水物化合物として好適に使用することができる市販品としては、例えば、リカシッド（登録商標）TMEG-S、TMEG-100、TMEG-200、TMEG-500、TECG-600、TMTA-C、TDA-100、MTA-15（以上、新日本理化（株）製）等が挙げられる。

[0242] 本開示の組成物が、カルボン酸無水物化合物を含有する場合、カルボン酸無水物化合物の含有量としては、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであれば、特に制限されるものではないが、前記組成物の樹脂成分100質量部中、0.1質量部以上50質量部以下であることが好ましく、1質量部以上40質量部以下であることがより好ましく、3質量部以上

30質量部以下であることが更に好ましく、5質量部以上25質量部以下であることが特に好ましい。前記組成物は、電気的特性及び接着力が優れる硬化物を形成することができるからである。

本開示においては、前記カルボン酸無水物化合物の含有量は、前記組成物の樹脂成分100質量部中、9質量部以上15質量部以下であることが特に好ましく、11質量部以上15質量部以下であることが最も好ましい。前記組成物は、誘電性正接がより抑制された硬化物を形成することができるからである。

[0243] 本開示の組成物が、カルボン酸無水物化合物を含有する場合、カルボン酸無水物化合物の含有量としては、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであれば、特に制限されるものではないが、前記組成物の固形分100質量部中、0.1質量部以上50質量部以下であることが好ましく、1質量部以上40質量部以下であることがより好ましく、3質量部以上30質量部以下であることが更に好ましく、5質量部以上25質量部以下であることが特に好ましい。前記組成物は、電気的特性及び接着力が優れる硬化物を形成することができるからである。

本開示においては、前記カルボン酸無水物化合物の含有量は、前記組成物の固形分100質量部中、8.5質量部以上11質量部以下であることが最も好ましい。前記組成物は、誘電性正接がより抑制された硬化物を形成することができるからである。

[0244] 本開示の組成物が、カルボン酸無水物化合物を含有する場合、カルボン酸無水物化合物の含有量としては、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであれば、特に制限されるものではないが、前記組成物100質量部中、0.1質量部以上30質量部以下であることが好ましく、0.5質量部以上30質量部以下であることがより好ましく、0.8質量部以上7質量部以下であることが更に好ましい。前記組成物は、電気的特性及び接着力が優れる硬化物を形成することができるからである。

本開示においては、前記カルボン酸無水物化合物の含有量は、前記組成物

100質量部中、2.1質量部以上3質量部以下であることが特に好ましい。前記組成物は、誘電性正接がより抑制された硬化物を形成することができるからである。

[0245] 組成物におけるカルボン酸無水物化合物の含有量は、例えば、LC/MS法によって測定することができる。

[0246] A5. その他の成分

本開示の組成物は、環状エーテル成分と、潜在性硬化剤と、エラストマー成分と、活性エステル化合物及び／又はカルボン酸無水物化合物とを含むことに加え、更に必要に応じて、その他の成分を含むことができる。

前記その他の成分としては、前記環状エーテル成分、前記エラストマー成分、前記活性エステル化合物及び前記カルボン酸無水物化合物以外のその他の樹脂；前記潜在性硬化剤以外の硬化剤、硬化促進剤、重合開始剤；増感剤；溶剤；レベリング剤；無機フィラー、有機フィラー等の充填剤；顔料、染料等の着色剤；シランカップリング剤；消泡剤；増粘剤；チクソ剤；界面活性剤、分散剤、難燃剤；可塑剤；酸化防止剤；安定剤；重合禁止剤；紫外線吸収剤；、静電防止剤；流動調整剤；接着促進剤等の各種添加剤が挙げられる。

[0247] (1) その他の樹脂

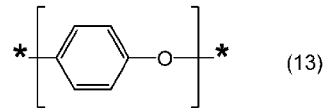
前記その他の樹脂としては、前記環状エーテル成分、前記エラストマー成分、前記活性エステル化合物及び前記カルボン酸無水物化合物以外の樹脂を表す。

前記その他の樹脂としては、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られる樹脂であればよく、フェニレンエーテル骨格を有する樹脂が好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力がより優れるものとなるからである。

[0248] ここで、フェニレンエーテル骨格とは、下記(13)で表される構造を重合体の主鎖を構成する構成単位として有するものをいう。

[0249]

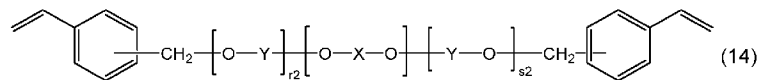
[化15]



(式(13)中、*は結合箇所を表す。)

[0250] フェニレンエーテル骨格を有する樹脂としては、水酸基を末端に有するもの、グリシジルエーテル基を末端に有するもの、並びにアクリレート基及びビニル基等のエチレン性不飽和基を末端に有するもの等の各種反応性基を有するもの等も用いることができるが、末端にエチレン性不飽和基を有するものが好ましく、末端にスチレン基を有するものがより好ましく、下記一般式(14)で表されるものが特に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0251] [化16]



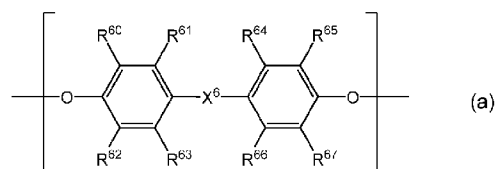
(式(14)中、 $-(\text{O}-\text{X}-\text{O})-$ は下記一般式(a)を表し、

$-(\text{Y}-\text{O})-$ は下記一般式(b)を表し、

複数存在するYは同一であってもよく、異なるものであってもよく、

r_2 及び s_2 は0~100の整数を示し、 r_2 及び s_2 の少なくともいずれか一方が0超である。)

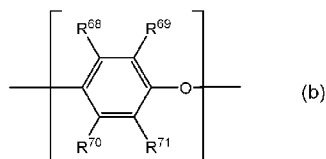
[0252] [化17]



(式(a)中、 R^{60} 、 R^{61} 、 R^{62} 、 R^{63} 、 R^{64} 、 R^{65} 、 R^{66} 及び R^{67} は、それぞれ独立に、水素原子、炭素原子数1~6のアルキル基又はフェニル基を表し、

X^6 は、直接結合又は二価の有機基を表す。)

[0253] [化18]



(式 (b) 中、 R^{68} 及び R^{70} は、それぞれ独立に、水素原子、炭素原子数 1 ～ 6 のアルキル基又はフェニル基を表し、

R^{69} 及び R^{71} は、それぞれ独立に、炭素原子数 1 ～ 6 のアルキル基又はフェニル基を表す。)

[0254] 一般式 (a) の R^{60} 、 R^{61} 、 R^{62} 、 R^{63} 、 R^{64} 、 R^{65} 、 R^{66} 及び R^{67} 並びに一般式 (b) の R^{68} 、 R^{69} 、 R^{70} 及び R^{71} で表される炭素原子数 1 ～ 6 のアルキル基としては、一般式 (1) 中の R^1 等で表される炭素原子数 1 ～ 12 のアルキル基において、所定の炭素原子数を有する基が挙げられるが、炭素原子数 1 ～ 3 のアルキル基が好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0255] 前記一般式 (a) における X^6 で表される二価の有機基としては、前記一般式 (10) 中の X^4 と同様の基とすることができる。具体的には、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が挙げられる。

[0256] 前記一般式 (14) で表される化合物としては、 X が一般式 (a) において R^{60} 、 R^{61} 、 R^{62} 、 R^{65} 、 R^{66} 及び R^{67} が炭素原子数 1 ～ 3 のアルキル基であり、 R^{63} 及び R^{64} が、水素原子又は炭素原子数 1 ～ 3 のアルキル基のいずれかであるものが好ましく、 R^{60} 、 R^{61} 、 R^{62} 、 R^{65} 、 R^{66} 及び R^{67} が炭素原子数 1 ～ 3 のアルキル基であり、 R^{63} 及び R^{64} が水素原子であるものがより好ましく、 R^{60} 、 R^{61} 、 R^{62} 、 R^{65} 、 R^{66} 及び R^{67} がメチル基であり、 R^{63} 及び R^{64} が水素原子である化合物が更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力がより優れるものとなるからである。

- [0257] $-(Y-O)-$ としての一般式 (b) は、 R^{69} 及び R^{71} が炭素原子数 1 ～ 3 のアルキル基であり、且つ R^{68} 及び R^{70} が水素原子又は炭素原子数 1 ～ 3 のアルキル基であることが好ましく、 R^{69} 及び R^{71} がメチル基であり、且つ R^{68} 及び R^{70} が水素原子又は炭素原子数 1 ～ 3 のアルキル基であるものがより好ましく、 R^{69} 及び R^{71} がメチル基であり且つ、 R^{68} 及び R^{70} が水素原子であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力がより優れるものとなるからである。
- [0258] 前記一般式 (a) 中の X^6 は、直接結合又は炭素原子数 1 ～ 12 のアルキリデン基であることが好ましく、直接結合又は 1 ～ 5 のアルキリデン基であることがより好ましく、直接結合であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力がより優れるものとなるからである。
- [0259] フェニレンエーテル骨格を有する樹脂として好適に使用することができる市販品としては、例えば、三菱瓦斯化学社製 OPE-2Gly、OPE-2St、OPE-2EA、OPE1200st 等の OPE (二官能ポリフェニレンエーテルオリゴマー) シリーズ、SABIC ジャパン合同会社製ノリル (登録商標) PPO640、SA120、SA90、SA9000 等が挙げられる。
- [0260] 前記その他の樹脂の分子量としては、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) で測定したポリスチレン換算の数平均分子量が、500 以上 3,000 以下であることが好ましく、800 以上 2,000 以下であることがより好ましく、1,000 以上 1,500 以下であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力がより優れるものとなるからである。
- [0261] 本開示の組成物が前記その他の樹脂を含有する場合、その他の樹脂の含有量としては、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであれば特に制限されるものではないが、前記組成物の樹脂成分 100 質量部中、3 質量部以上 75 質量部以下であることが好ましく、5 質量部以上 50 質量部以下であることがより好ましく、15 質量部以上 40 質量部以下であるこ

とが更に好ましく、15質量部以上30質量部以下であることが特に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力がより優れるものとなるからである。

[0262] 本開示の組成物が前記その他の樹脂を含有する場合、その他の樹脂の含有量としては、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであれば、特に制限されるものではないが、前記組成物の固形分100質量部中、5質量部以上50質量部以下であることが好ましく、10質量部以上40質量部以下であることがより好ましく、15質量部以上30質量部以下であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力がより優れるものとなるからである。

[0263] 本開示の組成物がその他の樹脂を含有する場合、その他の樹脂の含有量としては、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであれば、特に制限されるものではないが、前記組成物100質量部中、0.1質量部以上30質量部以下であることが好ましく、1質量部以上20質量部以下であることが更に好ましく、3質量部以上8質量部以下であることが更に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力がより優れるものとなるからである。

[0264] (2) 硬化剤、硬化促進剤及び重合開始剤

前記組成物は、潜在性硬化剤以外に環状エーテル成分を硬化させる成分として、他の硬化剤、硬化促進剤又は重合開始剤を含むことができる。

前記他の硬化剤、硬化促進剤、重合開始剤としては、例えば、一級及び二級アミン系硬化剤、酸無水物系硬化剤、フェノール系硬化剤、チオール系硬化剤、有機ホスフィン系硬化剤、ホスホニウム塩系硬化剤、ルイス酸硬化促進剤、三級アミン系硬化促進剤及びカチオン重合開始剤等が挙げられる。これらを、1種を単独で用いてもよく、2種以上組み合わせて用いてもよい。

[0265] 前記一級及び二級アミン系硬化剤、酸無水物系硬化剤、フェノール系硬化剤、チオール系硬化剤、有機ホスフィン系硬化剤、ホスホニウム塩系硬化剤、ルイス酸硬化促進剤、三級アミン系硬化促進剤及びカチオン重合開始剤に

については、特開2021-181381号公報に記載のものが挙げられる。

[0266] 前記他の硬化剤、硬化促進剤及び重合開始剤の含有量は、本開示の組成物の効果を損なわない範囲で適宜調整して用いればよい。

[0267] (3) 溶剤

本開示の組成物は、必要に応じて溶剤を含むことができる。

前記溶剤は、常温（25℃）大気圧下で液状であり、組成物中の各成分を分散又は溶解可能なものであり、前記環状エーテル成分、潜在性硬化剤、エラストマー成分、活性エステル化合物及びカルボン酸無水物化合物と反応しないものである。

従って、常温（25℃）大気圧下で液状であっても、前記「A1. 潜在性硬化剤」の項に記載した潜在性硬化剤は、前記溶剤には含まれない。

また、前記溶剤は、前記組成物の各成分を分散又は溶解するために用いられるものであるため、前記「A2. 環状エーテル成分」の項に記載の環状エーテル成分、「A3. エラストマー成分」の項に記載のエラストマー成分、「A4. 活性エステル化合物及び／又はカルボン酸無水物化合物」の項に記載のカルボン酸無水物化合物、「A5. その他の成分」に記載のその他の樹脂等は、常温（25℃）大気圧下で液状であっても、前記溶剤には含まれない。

[0268] このような溶剤としては、水、有機溶剤のいずれも用いることができるが、有機溶剤を好ましく用いることができる。

[0269] 前記有機溶剤としては、メチルエチルケトン、メチルアミルケトン、ジエチルケトン、アセトン、メチルイソプロピルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン、2-ヘプタノン等のケトン類；エチルエーテル、ジオキサン、テトラヒドロフラン、1,2-ジメトキシエタン、1,2-ジエトキシエタン、ジプロピレングリコールジメチルエーテル等のエーテル系溶剤；酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸-n-プロピル、酢酸イソプロピル、酢酸n-ブチル、酢酸シクロヘキシル、乳酸エチル、コハク酸ジメチル、テキサノール等のエステル系溶剤；エチレングリコールモノメチルエーテル、エ

チレングリコールモノエチルエーテル等のセロソルブ系溶剤；メタノール、エタノール、イソー又はn-プロパノール、イソー又はn-ブタノール、アミルアルコール、ジアセトンアルコール等のアルコール系溶剤；エチレングリコールモノメチルアセテート、エチレングリコールモノエチルアセテート、プロピレングリコール-1-モノメチルエーテル-2-アセテート（PGMEA）、ジプロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、3-メトキシブチルアセテート、エトキシエチルプロピオネート、1-t-ブトキシ-2-プロパノール、シクロヘキサノールアセテート等のエーテルエステル系溶剤；ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族系溶剤；ヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサン等の脂肪族炭化水素系溶剤；テレピン油、D-リモネン、ピネン等のテルペン系炭化水素油；ミネラルスピリット、スワゾール#310（コスモ松山石油（株））、ソルベッソ#100（エクソン化学（株））等のパラフィン系溶剤；四塩化炭素、クロロホルム、トリクロロエチレン、塩化メチレン、1,2-ジクロロエタン等のハロゲン化脂肪族炭化水素系溶剤；クロロベンゼン等のハロゲン化芳香族炭化水素系溶剤；カルビトール系溶剤、アニリン、トリエチルアミン、ピリジン、酢酸、アセトニトリル、二硫化炭素、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、N-メチルピロリドン、ジメチルスルホキシド、水等が挙げられ、これらの溶剤は1種を単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせる混合溶剤として使用してもよい。

前記有機溶剤の中でも、ケトン類、アルコール系溶剤、エーテルエステル系溶剤又は芳香族系溶剤等であることが好ましく、ケトン類又は芳香族系溶剤であることがより好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力がより優れるものとなるからである。

[0270] 前記溶剤の含有量は、前記組成物が、電気的特性及び接着力がより優れる硬化物を形成することができるものであればよく、例えば、前記組成物の固形分100質量部中、1質量部以上1,000質量部以下であることが好ましく、10質量部以上800質量部以下であることがより好ましく、100

質量部以上400質量部以下であることが更に好ましく、250質量部以上350質量部以下であることが特に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力がより優れるものとなるからである。

[0271] (4) 粘着付与樹脂

前記組成物は、接着力を向上させる成分として、粘着付与樹脂を含むことができる。本発明において粘着付与樹脂とは、粘着性の乏しい組成物に配合することで、当該組成物の粘着性を向上させる樹脂成分である。

前記粘着付与樹脂としては、組成物の粘着性を付与することができれば特に制限はないが、重量平均分子量(M_w)が100~5,000のオリゴマーを用いることが好ましい。粘着付与樹脂の重量平均分子量の測定は、ゲル・パーミエーション・クロマトグラフィー(GPC)により、標準ポリスチレン換算値として求めることができる。

[0272] 前記粘着付与樹脂の具体例としては、例えば、石油樹脂、水添石油樹脂、ロジン樹脂、水添ロジン樹脂、テルペン樹脂、テルペンフェノール樹脂、芳香族変性テルペン樹脂、水添テルペン樹脂、スチレン樹脂、水添ポリスチレン樹脂、アルキルフェノール樹脂及びキシレン樹脂等が挙げられる。前記粘着付与樹脂は、1種を単独で又は2種以上を組み合わせ用いてもよい。

本開示の組成物においては、前記粘着付与樹脂が、石油樹脂、水添石油樹脂又は芳香族変性テルペン樹脂であることが好ましく、石油樹脂又は水添石油樹脂であることが特に好ましい。前記組成物の硬化物が、接着力に一層優れるものとなるからである。

[0273] 前記石油樹脂としては、石油系成分を共重合して得られる炭化水素系樹脂が挙げられる。前記石油系成分は、石油類のスチームクラッキングによるエチレンプラントから分解油留分に含まれるものが挙げられ、例えば、イソブレン、ピペリレン及び2-メチルブテン-1、2-メチルブテン-2等のC5系留分；並びにスチレン、ビニルトルエン、 α -メチルスチレン及びインデン等のC9系留分等が挙げられる。

前記石油樹脂は、アビエチン酸、パラストリン酸、イソピマール酸及びモ

ノテルペン等の天然樹脂由来のモノマーと、石油系成分とを共重合して得られるものであってもよい。

[0274] 前記水添石油樹脂としては、前記石油樹脂の一部が水添されている樹脂、及び前記石油樹脂が完全に水添されている樹脂が挙げられる。

[0275] ロジン樹脂としては、例えば、ガムロジン、ウッドロジン、トール油ロジン、ロジン変性マレイン酸樹脂、重合ロジン、ロジンフェノール及びロジンエステルが挙げられる。

[0276] 水添ロジン樹脂としては、前記ロジン樹脂の一部が水添されている樹脂、及び前記ロジン樹脂が完全に水添されている樹脂が挙げられる。

[0277] テルペン樹脂とは、 α -ピネン、 β -ピネン、及びジペンテン（リモネン）のいずれかを単独で重合、又は混合物を共重合したものが挙げられる。

[0278] テルペンフェノール樹脂は、テルペンとフェノールの共重合体であり、例えば、 α -ピネンフェノール樹脂、ジペンテンフェノール樹脂、テルペンビスフェノール樹脂が挙げられる。

[0279] 芳香族変性テルペン樹脂は、テルペンモノマーと芳香族モノマーを共重合したものである。

[0280] 水添テルペン樹脂としては、テルペン樹脂、テルペンフェノール樹脂、芳香族変性テルペン樹脂を水素添加したものが挙げられる。

[0281] スチレン樹脂としては、例えば、ポリスチレン、スチレン-アクリロニトリル樹脂、アクリロニトリル-ブタジエンスチレン樹脂及びメタクリル酸メチル-スチレン樹脂（MS樹脂）等が挙げられる。

[0282] 水添ポリスチレン樹脂は、ポリスチレン樹脂を水素添加したものが挙げられる。

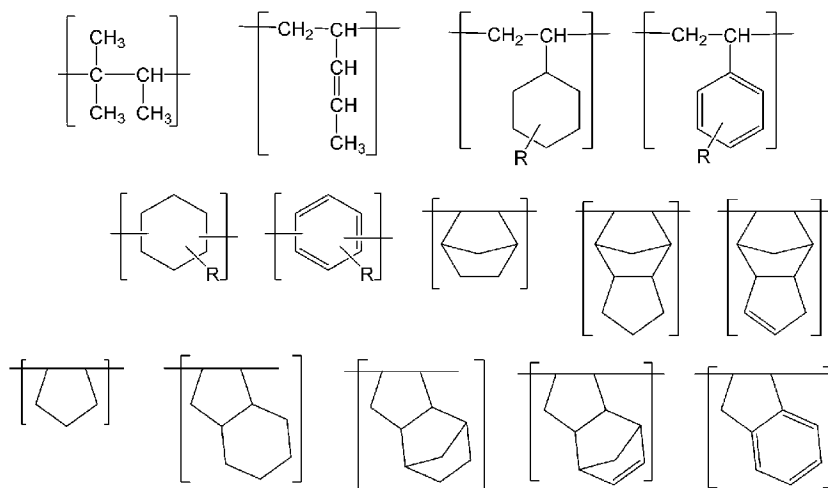
[0283] アルキルフェノール樹脂としては、例えば、アルキルフェノールと、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、フルフラールなどのアルデヒド類とを酸又はアルカリ触媒で反応させることにより得られるアルキルフェノールアルデヒド縮合樹脂；アルキルフェノールと、アセチレンなどのアルキンとを反応させて得られるアルキルフェノールアルキン縮合樹脂；これらの樹脂を、

カシューナッツオイル、トールオイル、アマニ油、各種動植物油、不飽和脂肪酸、ロジン、アルキルベンゼン樹脂、アニリン、メラミンなどの化合物を用いて変性した変性アルキルフェノール樹脂等が挙げられる。アルキルフェノール樹脂を構成するアルキルフェノールとしては、クレゾール、キシレノール、*tert*-ブチルフェノール、オクチルフェノール、ノニルフェノール等が挙げられる。

[0284] キシレン樹脂としては、例えば、キシレンとホルムアルデヒドの反応物；メシチレンとホルムアルデヒドの反応物；キシレンとフェノールとホルムアルデヒドの反応物；等を挙げることができる。これらは必要に応じてフェノールやパラ-*tert*-ブチルフェノールのような2官能性フェノール等のフェノール類によって、変性した樹脂も使用することができる。

[0285] 前記粘着付与樹脂の構成単位としては、例えば、下記記載の構成単位が挙げられる。

[0286] [化18A]



[0287] 上記式中のRは、水素原子、メチル基又は水酸基を表す。

[0288] 前記粘着付与樹脂の市販品としては、例えば、T-REZ Hシリーズ（HA085、HA103、HA105、HA125、HB123、HB125）、T-REZ-Rシリーズ（RA100、RB093、RB100、RC093、RC100、RC115、RD104、RE100）、以上、E

NEOS(株)製商品；アルコンP-90、P-100、P-115、P-125、P-140、M-90、M-100、M-115、M-135、以上、荒川化学工業(株)製商品；及びYSレジンSX100（ヤスハラケミカル(株)製商品）等が挙げられる。

[0289] 本開示においては、前記粘着付与樹脂の軟化点が、60℃～160℃の範囲であることが好ましく、70℃～150℃の範囲であることがより好ましく、75℃～130℃の範囲であることが更に好ましく、80℃～120℃の範囲であることが特に好ましい。前記組成物の硬化物が、接着力に一層優れるものとなるからである。

軟化点は、JIS-K2207記載の環球法により測定することができる。

[0290] 本開示の組成物が粘着性付与樹脂を含む場合、粘着付与樹脂の含有量は、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであれば、特に制限されるものではないが、例えば、前記組成物の樹脂成分100質量部中、粘着性付与樹脂の含有量が、5質量部以上40質量部以下であることが好ましく、10質量部以上33質量部以下であることがより好ましく、15質量部以上28質量部以下であることが更に好ましく、20質量部以上25質量部以下であることが特に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0291] 本開示の組成物が粘着性付与樹脂を含む場合、前記粘着付与樹脂の含有量は、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであれば、特に制限されるものではないが、例えば、前記組成物の固形分100質量部中、粘着性付与樹脂の含有量が、5質量部以上40質量部以下であることが好ましく、10質量部以上30質量部以下であることがより好ましく、15質量部以上25質量部以下であることが更に好ましく、18質量部以上23質量部以下であることが特に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0292] 本開示の組成物が粘着性付与樹脂を含む場合、前記粘着付与樹脂の含有量

は、所望の電気的特性及び接着力のバランスが得られるものであれば、特に制限されるものではないが、例えば、前記組成物の組成物100質量部中、粘着性付与樹脂の含有量が、1質量部以上30質量部以下であることが好ましく、2質量部以上15質量部以下であることがより好ましく、4質量部以上10質量部以下であることが更に好ましく、4.5質量部以上6質量部以下であることが特に好ましい。前記組成物の硬化物が、電気的特性及び接着力に一層優れるものとなるからである。

[0293] A 6. 組成物

前記組成物の製造方法としては、前記各成分を均一に混合できる方法であれば特に限定されるものではなく、例えば、環状エーテル成分に対して、潜在性硬化剤と、エラストマー成分と、活性エステル化合物及び／又はカルボン酸無水物化合物と、を添加して混合する方法等が挙げられる。なお、混合方法については、公知の混合装置を用いる方法を採用でき、例えば、3本ロール、サンドミル、ボールミル等を用いる方法が挙げられる。

[0294] 前記組成物の用途としては、電気的特性及び接着力のバランスが要求される用途であれば特に限定されるものではないが、例えば、接着剤、プリント配線基板のレジスト材料の他、レジストインキ、カーフィルター用顔料レジストインキ、半導体封止剤、インキ、プラスチック塗料、紙印刷、フィルムコーティング、ガラスコーティング、飛散防止塗料、家具塗装等の種々のコーティング分野、FRP、ライニング、更にエレクトロニクス分野における絶縁ワニス、絶縁シート、積層版、プラズマディスプレイパネル、ディスプレイ素子等の表示媒体や、位相差板、偏光板、光偏光プリズム、各種光フィルター等の光学異方体、接着剤、絶縁材、構造材、光導波路クラッド等を挙げることができる。

[0295] 本開示においては、前記用途が、接着剤であることが好ましく、導電性材料と絶縁性材料との接着用、又は絶縁性材料と絶縁性材料との接着用であることがより好ましい。接着力及び電気的特性に優れるとの効果を効果的に発揮できるからである。

前記組成物が接着剤に用いられる場合、接着対象として用いられる絶縁性材料としては、回路基板において絶縁性基材に用いられる材料を挙げることができる。絶縁性材料としては、例えば、誘電正接（ 10GHz ）が 0.01 以下の材料とすることができる。

このような絶縁性材料としては、例えば、ポリイミド（PI）、ポリエチレンテレフタレート（PET）やポリエチレンナフタレート（PEN）、フッ素樹脂（PTFE等）、ポリフェニレンエーテル、液晶ポリマー（LCP）等の有機絶縁性材料、ガラス等の無機酸化物材料等が挙げられる。

導電性材料と、絶縁性材料との組み合わせとしては、液晶ポリマーのフィルムと、銅箔とを張り合わせた積層体等のように、金属材料又は炭素材料等の導電性材料と、有機絶縁性材料との組み合わせを挙げることができる。

絶縁性材料と、絶縁性材料との組み合わせとしては、液晶ポリマーのフィルムと、液晶ポリマーのフィルムとを張り合わせた積層体等のように、有機絶縁性材料と有機絶縁性材料との組み合わせ、液晶ポリマー等の有機絶縁性材料とガラス等の無機酸化物材料との組み合わせを挙げることができる。

[0296] B. 硬化物

次に、本開示の硬化物について説明する。

本開示の硬化物は、前記本開示の組成物の硬化物である。

[0297] 本開示によれば、上述の組成物を用いているため、電気的特性及び接着力のバランスに優れた硬化物を提供することができる。

なお、本開示の組成物については、前記「A. 組成物」の項に記載の内容と同様であるため、ここでの説明は省略する。

[0298] 本開示の硬化物の用途等については、前記「A. 組成物」の項に記載の内容と同様とすることができる。

[0299] 本開示の硬化物の製造方法としては、本開示の組成物を硬化させることができる方法であればよい。本開示の硬化物の製造方法としては、後述する「C. 硬化物の製造方法」に記載の方法を用いることができる。

[0300] C. 硬化物の製造方法

次に、本開示の硬化物の製造方法について説明する。

本開示の硬化物の製造方法は、上述の組成物中の前記環状エーテル成分同士を硬化に加えて、環状エーテル成分と活性エステル化合物との硬化、又は環状エーテル成分とカルボン酸無水物化合物との硬化による硬化工程を有することを特徴とするものである。

[0301] 本開示によれば、上述の組成物を用いているため、電気的特性及び接着力のバランスに優れた硬化物を容易に得ることができる。

[0302] 1. 硬化工程

本開示における硬化工程は、前記組成物中の前記環状エーテル成分同士を硬化する工程である。

本工程において、硬化する方法としては、環状エーテル成分同士を硬化できる方法であればよく、加熱処理を行う方法等が挙げられる。

[0303] 加熱処理における加熱温度としては、前記組成物を安定的に硬化できるものであればよく、前記潜在性硬化剤の種類等に応じて適宜設定されるものであるが、例えば、50℃以上250℃以下とすることができ、100℃以上200℃以下であることがより好ましく、100℃以上190℃以下であることが更に好ましい。また、加熱時間は、1分以上2時間以下とすることができ、3分以上1時間30分以下であることが好ましく、5分以上70分以下であることがより好ましい。前記組成物から、電気的特性及び接着力に優れた硬化物を形成することが容易になるからである。

なお、前記組成物については「A. 組成物」の項に記載の内容と同様とすることができるので、ここでの説明は省略する。

[0304] 2. その他の工程

本開示の硬化物の製造方法は、必要に応じてその他の工程を有するものであってもよい。このような工程としては、硬化工程前に、前記組成物を加熱処理して組成物中の溶剤を除去するプリバーク工程、硬化工程前に、本開示の組成物の塗膜を形成する工程等を挙げることができる。

[0305] プリバーク工程における加熱条件としては、前記組成物中の溶剤を除去で

きるものであればよく、例えば、70℃以上150℃以下で30秒～300秒間とすることができる。

[0306] 塗膜を形成する工程で、前記組成物を塗布する方法としては、スピンコーター、ロールコーター、バーコーター、ダイコーター、カーテンコーター、各種の印刷、浸漬等の公知の方法を用いることができる。このような塗膜は、基材上に形成することができる。

[0307] 基材としては、硬化物の用途等に応じて適宜設定することができ、前記「A. 組成物」の項に記載の硬化物が形成される対象等を挙げることができる。また、本開示の硬化物は、基材上で形成された後、基材から剥離して用いても、基材から他の被着体に転写して用いてもよい。

[0308] 本開示は、前記実施形態に限定されるものではない。前記実施形態は、例示であり、本開示の特許請求の範囲に記載された技術的思想と実質的に同一な構成を有し、同様な作用効果を奏するものは、いかなるものであっても本開示の技術的範囲に包含される。

実施例

[0309] 以下、本発明の組成物を具体的に示して本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例等に限定されるものではない。

[0310] [実施例1～60及び比較例1～8]

下記表1～5の配合に従って、各成分を配合して組成物を得た。

また、各成分は以下の材料を用いた。

なお、表中の配合量は各成分の質量部を表すものである。

[0311] (潜在性硬化剤)

A1-1: 1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムジシアナミド (含窒素複素環カチオン、シアナート系アニオン)

A1-2: 1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムトリフルオロアセテート (含窒素複素環カチオン、カルボン酸系アニオン)

A1-3: 1-エチル-3-メチルイミダゾリウムジシアナミド (含窒素複

素環カチオン、シアナート系アニオン)

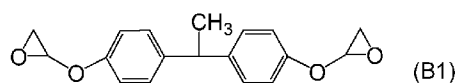
A 1 - 4 : 1 - エチル - 3 - メチルイミダゾリウムトリフルオロアセテート
(含窒素複素環カチオン、カルボン酸系アニオン)

A 1 - 5 : 1 - アリル - 3 - メチルイミダゾリウムジシアナミド (含窒素複
素環カチオン、シアナート系アニオン)

[0312] (環状エーテル成分)

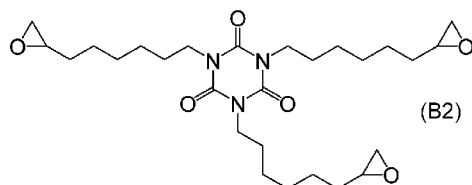
A 2 - 1 : 下記 (B 1) で表される化合物 (芳香族エポキシ化合物、(株)
プリンテック製「EPOX (登録商標) MK R 7 1 0」)

[0313] [化19]



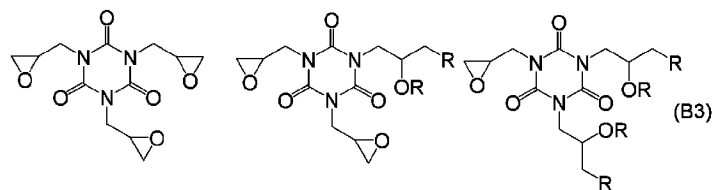
[0314] A 2 - 2 : 下記 (B 2) で表される化合物 (複素環含有エポキシ化合物)

[0315] [化20]



[0316] A 2 - 3 : 下記 (B 3) で表される化合物の混合物 (複素環含有エポキシ化
合物、日産化学工業 (株) 製「TEPIC (登録商標) - PAS B 2 2」
)

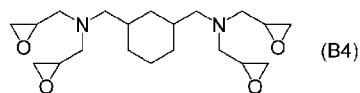
[0317] [化21]



[0318] A 2 - 4 : 下記 (B 4) で表される化合物 (脂肪族エポキシ化合物、脂環式
エポキシ化合物、三菱瓦斯化学 (株) 製「テトラッド (登録商標) C」)

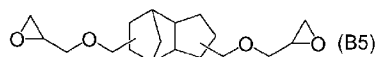
[0319]

[化22]



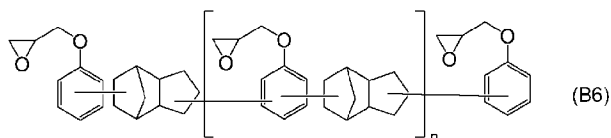
[0320] A 2-5 : 下記 (B 5) で表される化合物 (脂肪族エポキシ化合物、脂環式エポキシ化合物)

[0321] [化23]



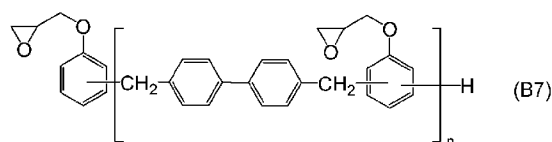
[0322] A 2-6 : 下記 (B 6) で表される化合物 (芳香族エポキシ化合物、日本化薬 (株) 製「XD-1000」)

[0323] [化24]



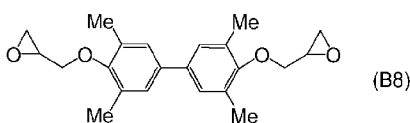
[0324] A 2-7 : 下記 (B 7) で表される化合物 (芳香族エポキシ化合物、日本化薬 (株) 製「NC-3000」)

[0325] [化25]



[0326] A 2-8 : 下記 (B 8) で表される化合物 (芳香族エポキシ化合物、三菱ケミカル (株) 製「YX-4000H」)

[0327] [化26]



[0328] (エラストマー成分)

A 3-1 : DYNARON9901P (JSR (株) 製SEBS、スチレン

ユニット含量 53 質量%、MFR 230℃、2.16 kgf : 3.3 g / 10 min、比重 0.97) A3-2 : タフテック H1043 (旭化成 (株) 製 SEBS、スチレンユニット含量 67 質量%、MFR 230℃、2.16 kgf : 2.0 g / 10 min、密度 0.97 g / cm³)
 A3-3 : タフテック P2000 (旭化成 (株) 製 SEBS、スチレンユニット含量 67 質量%、MFR 230℃、2.16 kgf : 3.0 g / 10 min、密度 0.98 g / cm³)

[0329] (活性エステル化合物)

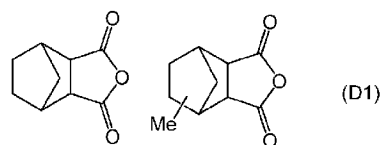
A4-1 : ユニファイナー W-575 (一般式 (11) で表される構成単位を有する重合体 : ユニチカ (株) 製 ポリアリレート樹脂、数平均分子量 : 3300)

A4-2 : ユニファイナー V-575 (一般式 (11) で表される構成単位を有する重合体 : ユニチカ (株) 製 ポリアリレート樹脂、数平均分子量 : 3500)

[0330] (カルボン酸無水物化合物)

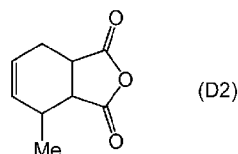
A5-1 : 下記 (D1) で表される化合物の混合物 (脂環式カルボン酸無水物化合物 ; 新日本理化 (株) 製「リカシッド HNA-100」)

[0331] [化27]



[0332] A5-2 : 下記式 (D2) で表される化合物 (脂環式カルボン酸無水物化合物)

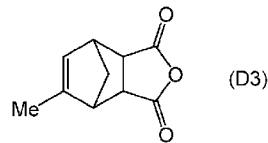
[化28]



[0333] A5-3 : 下記式 (D3) で表される化合物 (脂環式カルボン酸無水物化合物)

物)

[化29]



[0334] (その他の樹脂)

B 1 - 1 : フェニレンエーテル樹脂 (フェニレンエーテル骨格を有する樹脂、(前記一般式 (14)) で示される変性ポリフェニレンエーテル (一般式 (a)) における R^{60} 、 R^{61} 、 R^{62} 、 R^{65} 、 R^{66} 、 R^{67} がメチル基であり、 R^{63} 及び R^{64} が水素原子であり、 X^6 が直接結合であり、一般式 (b) における R^{69} 、 R^{71} がメチル基であり、 R^{68} 、 R^{70} が水素原子である樹脂、 $M_n = 1200$)、**「OPE1200st」**、三菱瓦斯化学株式会社製)

[0335] (粘着付与樹脂)

B 1 - 2 : T-REZ HA085 (ENEOS (株) 製、水添石油樹脂、軟化点 $85^{\circ}\text{C} \pm 5^{\circ}\text{C}$ 、 $M_n : 330$ 、 $M_w : 480$)

B 1 - 3 : T-REZ HA103 (ENEOS (株) 製、水添石油樹脂、軟化点 $103^{\circ}\text{C} \pm 3^{\circ}\text{C}$ 、 $M_n : 370$ 、 $M_w : 560$)

B 1 - 4 : T-REZ RB100 (ENEOS (株) 製、石油樹脂、軟化点 $100^{\circ}\text{C} \pm 5^{\circ}\text{C}$ 、 $M_n : 1,230$ 、 $M_w : 3,070$)

B 1 - 5 : T-REZ RD104 (ENEOS (株) 製、石油樹脂、軟化点 $104^{\circ}\text{C} \pm 5^{\circ}\text{C}$ 、 $M_n : 830$ 、 $M_w : 2,460$)

B 1 - 6 : アルコン P-90 (荒川化学工業 (株) 製、水添石油樹脂、軟化点 $90^{\circ}\text{C} \pm 5^{\circ}\text{C}$ 、 $M_n : 570$ 、 $M_w : 890$)

B 1 - 7 : アルコン M-90 (荒川化学工業 (株) 製、水添石油樹脂、軟化点 $90^{\circ}\text{C} \pm 5^{\circ}\text{C}$ 、 $M_n : 580$ 、 $M_w : 950$)

B 1 - 8 : YSレジン SX100 (ヤスハラケミカル (株) 製、スチレン系樹脂、軟化点 $100^{\circ}\text{C} \pm 5^{\circ}\text{C}$ 、 $M_w : 2,500$)

B 1 - 9 : HSR-7 (YSレジン SX100 の水添品、水添ポリスチレン

、軟化点 116℃、 M_n : 800、 M_w : 1,500)

B1-10 : YS レジン T0125 (ヤスハラケミカル (株) 製、芳香族変性テルペン樹脂、軟化点 : 125℃、 M_n : 800、 M_w : 1,500)

[0336] (溶剤)

B2-1 : MEK (メチルエチルケトン)

[0337] [評価]

得られた各組成物につき、電気的特性及び接着力を、下記の手順に従って評価した。結果を表 1～表 9 に示す。

[0338] 1. 接着力

実施例及び比較例で得られた組成物を、第 1 の基材であるポリイミドフィルム (東レ・デュポン (株) 製「カプトン 100H」) 上に、硬化後の厚み (接着層の厚み) が 25 μ m となるようにバーコーターで塗布し、次いで、80℃で 3 分間加熱することで、溶剤を除去した。

次いで、乾燥後の塗膜上に第 2 の基材である銅箔 (福田金属箔工業製「CF-T49A-DS-HD2-12」) を重ね合わせたあと、真空加圧ラミネーター (ニッコー・マテリアルズ社製「V130」) を用いてラミネート処理 (30 秒かけて 2.0 hPa 以下に減圧した後、100℃で、0.5 MPa の圧力で 30 秒間圧着) を行い、0.01 MPa をかけながら、180℃で 60 分間加熱処理を行い、評価用サンプルを得た。

この評価用サンプルを用いて、ISO 規格 29862 に準拠して、90 度ピール試験を行った。測定装置として、卓上荷重測定器 FTN1-13A (アイコーエンジニアリング (株) 製) を用い、測定温度 25℃、引張速度 5 mm/min の条件で、第 1 の基材のポリイミドを 90° 方向に引っ張り、ポリイミドフィルムが第 2 の基材から剥離する際の最大強度を剥離強度 (N/25 mm) として評価を行った。結果を表 1～表 5 に示す。

[0339] <評価基準>

(剥離強度)

(接着力)

++++ : 20 N / 25 mm 以上。

+++ : 10 N / 25 mm 以上 25 N / 25 mm 未満。

++ : 4 N / 25 mm 以上 10 N / 25 mm 未満。

+ : 1 N / 25 mm 以上 4 N / 25 mm 未満。

- : 1 N / 25 mm 未満。

なお、剥離強度 (N / 25 mm) が大きいほど、接着力に優れると判断できる。

[0340] 2. 電気的特性

剥離処理されたスクリー管 (20 cc) 内に、実施例及び比較例で得られた組成物を、2 g 入れ、60℃ 12 時間加熱して溶媒を除去して、樹脂膜を得た。

樹脂膜の厚みは、500 μm であった。得られた樹脂膜を 180℃ で 60 分間加熱処理を行い、評価用サンプルを作成した。

[0341] 前記評価用サンプルについて、AET 社製 同軸共振器を用いて、周波数 10 GHz の条件で比誘電率及び誘電正接を測定し、以下の基準で評価を行った。結果を、表 1 ～ 表 5 に示す。

[0342] <評価基準>

(比誘電率)

++ : 2.3 以下。

+ : 2.3 超 2.5 以下。

- : 2.5 超。

なお、比誘電率が小さいほど、電気的特性に優れると判断できる。

[0343] (誘電正接)

+++ : 0.003 以下。

++ : 0.003 超 0.004 以下。

+ : 0.004 超 0.006 以下。

- : 0.006 超。

なお、誘電正接が小さいほど、電気的特性に優れると判断できる。

[0344] [表1]

	成分	実施例							
		1	2	3	4	5	6	7	8
潜在性硬化剤	A1-1	1	1	1	1	1	1	1	1
	A1-2								
	A1-3								
	A1-4								
	A1-5								
環状エーテル成分	A2-1	7	7	7	7	10	15		
	A2-2							10	
	A2-3								10
	A2-4								
	A2-5								
	A2-6								
	A2-7								
	A2-8								
エラストマー成分	A3-1	60	60			55	45	60	60
	A3-2			60					
	A3-3				60				
活水エステル化合物	A4-1	10		10	10	15	20	10	10
	A4-2		10						
カルボン酸無水物化合物	A5-1								
	A5-2								
	A5-3								
その他の樹脂	B1-1	20	20	20	20	20	15	20	20
溶剤	B2-1	300	300	300	300	300	300	300	300
評価	接着力	++	++	+	+	++	+++	++	++
	電気的特性 1 (比誘電率)	++	+	+	+	++	+	++	++
	電気的特性 2 (誘電正接)	++	+	++	++	++	+	++	++

[0345] [表2]

	成分	実施例							
		9	10	11	12	13	14	15	16
潜在性硬化剤	A1-1	1	1	1	1	1			
	A1-2						1		
	A1-3							1	
	A1-4								1
	A1-5								
環状エーテル成分	A2-1						15	15	15
	A2-2								
	A2-3								
	A2-4	5							
	A2-5		7						
	A2-6			12					
	A2-7				10				
	A2-8					15			
エラストマー成分	A3-1	60	60	60	60	55	45	45	45
	A3-2								
	A3-3								
活水エステル化合物	A4-1	10	10	10	8	15	20	20	20
	A4-2								
カルボン酸無水物化合物	A5-1								
	A5-2								
	A5-3								
その他の樹脂	B1-1	20	20	20	20	20	15	15	15
溶剤	B2-1	300	300	300	300	300	300	300	300
評価	接着力	++	++	++	++	+	+++	+++	+++
	電気的特性 1 (比誘電率)	++	++	++	++	++	++	++	++
	電気的特性 2 (誘電正接)	++	++	++	++	++	++	++	++

[0346] [表3]

	成分	実施例							
		17	18	19	20	21	22	23	24
潜在性硬化剤	A1-1		1	1	1	1	1	1	1
	A1-2								
	A1-3								
	A1-4								
	A1-5	1							
環状エーテル成分	A2-1	15						5	20
	A2-2		10	10	10				
	A2-3								
	A2-4					7			
	A2-5								
	A2-6								
	A2-7						12		
	A2-8								
エラストマー成分	A3-1	45	60	60	60	60	60	60	60
	A3-2								
	A3-3								
活水エステル化合物	A4-1	20						8	25
	A4-2								
カルボン酸無水物化合物	A5-1		10			13	8		
	A5-2			10					
	A5-3				10				
その他の樹脂	B1-1	15	20	20	20	20	20	20	20
溶剤	B2-1	300	300	300	300	300	300	300	375
評価	接着力	+++	+	++	+	++	++	+	+++
	電気的特性 1 (比誘電率)	++	+	+	+	+	+	++	+
	電気的特性 2 (誘電正接)	++	++	++	++	+	+	++	+

[0347]

[表4]

	成分	実施例		
		25	26	27
潜在性硬化剤	A1-1	1	1	1
	A1-2			
	A1-3			
	A1-4			
	A1-5			
環状エーテル成分	A2-1	7	7	14
	A2-2			
	A2-3			
	A2-4			
	A2-5			
	A2-6			
	A2-7			
	A2-8			
エラストマー成分	A3-1	30	80	60
	A3-2			
	A3-3			
活水エステル化合物	A4-1	10	10	20
	A4-2			
カルボン酸無水物化合物	A5-1			
	A5-2			
	A5-3			
その他の樹脂	B1-1	20	20	
溶剤	B2-1	210	350	280
評価	接着力	++	+	++
	電気的特性 1 (比誘電率)	+	++	+
	電気的特性 2 (誘電正接)	+	++	+

[0348]

[表5]

	成分	実施例							
		28	29	30	31	32	33	34	35
潜在性硬化剤	A 1-5	1	1	1	1	1	1	1	1
環状エーテル成分	A 2-1	20	20	20	20	20	20	20	20
	A 2-2								
	A 2-3								
	A 2-4								
	A 2-5								
	A 2-6								
	A 2-7								
	A 2-8								
エラストマー成分	A 3-1	60	40	40	40	40	40	40	40
活性エステル化合物	A 4-1								
その他の樹脂	B 1-1	20	20	20	20	20	20	20	20
粘着付与樹脂	B 1-2		20						
	B 1-3			20					
	B 1-4				20				
	B 1-5					20			
	B 1-6						20		
	B 1-7							20	
	B 1-8								20
	B 1-9								
	B 1-10								
溶剤	B 2-1	300	300	300	300	300	300	300	300
評価	接着力	+++	++++	+++	++++	++++	+++	+++	+++
	電気的特性1 (比誘電率)	+	++	++	++	++	++	++	++
	電気的特性2 (誘電正接)	++	++	++	++	++	++	++	++

[0349]

[表6]

	成分	実施例							
		3 6	3 7	3 8	3 9	4 0	4 1	4 2	4 3
潜在性硬化剤	A 1 - 5	1	1	1	1	1	1	1	1
環状エーテル成分	A 2 - 1	20	20	20	15	10	20	15	10
	A 2 - 2								
	A 2 - 3								
	A 2 - 4								
	A 2 - 5								
	A 2 - 6								
	A 2 - 7								
	A 2 - 8								
エラストマー成分	A 3 - 1	40	40	40	40	40	40	40	40
活性エステル化合物	A 4 - 1								
その他の樹脂	B 1 - 1	20	20	20	20	20	20	20	20
粘着付与樹脂	B 1 - 2			20	20	20			
	B 1 - 3								
	B 1 - 4						20	20	20
	B 1 - 5								
	B 1 - 6								
	B 1 - 7								
	B 1 - 8								
	B 1 - 9	20							
	B 1 - 1 0		20						
溶剤	B 2 - 1	300	300	300	300	300	300	300	300
評価	接着力	+++	+++	++++	++++	+++	++++	++++	+++
	電気的特性1 (比誘電率)	++	++	++	++	++	++	++	++
	電気的特性2 (誘電正接)	++	++	++	++	++	++	++	++

[0350]

[表7]

	成分	実施例							
		44	45	46	47	48	49	50	51
潜在性硬化剤	A 1-5	1	1	1	1	1	1	1	1
環状エーテル成分	A 2-1	20	15	10	6.5	4.3	6.5	4.3	6.5
	A 2-2								
	A 2-3								
	A 2-4								
	A 2-5								
	A 2-6								
	A 2-7								
	A 2-8								
エラストマー成分	A 3-1	40	40	40	40	40	40	40	40
活性エステル化合物	A 4-1				8.5	5.7	8.5	5.7	8.5
その他の樹脂	B 1-1	20	20	20	20	20	20	20	20
粘着付与樹脂	B 1-2				20	20			
	B 1-3								
	B 1-4						20	20	
	B 1-5	20	20	20					20
	B 1-6								
	B 1-7								
	B 1-8								
	B 1-9								
	B 1-10								
溶剤	B 2-1	300	300	300	300	300	300	300	300
評価	接着力	++++	++++	+++	+++	++	+++	++	+++
	電気的特性1 (比誘電率)	++	++	++	++	++	++	++	++
	電気的特性2 (誘電正接)	++	++	++	++	+++	++	+++	++

[0351]

[表8]

		成分	実 施 例								
			5 2	5 3	5 4	5 5	5 6	5 7	5 8	5 9	6 0
潜在性硬化剤		A 1－5	1	1	1	1	1	1	1	1	1
環状エーテル成分		A 2－1	4.3	6.5							
		A 2－2			6.5						
		A 2－3				6.5					
		A 2－4					6.5				
		A 2－5						6.5			
		A 2－6							6.5		
		A 2－7								6.5	
		A 2－8									6.5
エラストマー成分		A 3－1	40	40	40	40	40	40	40	40	40
活性エステル化合物		A 4－1	5.7	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5
その他の樹脂		B 1－1	20	20	20	20	20	20	20	20	20
粘着付与樹脂		B 1－2		20	20	20	20	20	20	20	20
		B 1－3									
		B 1－4									
		B 1－5	20								
		B 1－6									
		B 1－7									
		B 1－8									
		B 1－9									
		B 1－10									
溶 剤		B 2－1	300	300	300	300	300	300	300	300	300
評 価	接着力		++	+++	++++	+++	+++	++	++++	++++	++
	電気的特性 1 (比誘電率)		++	++	++	++	++	++	++	++	++
	電気的特性 2 (誘電正接)		+++	++	+++	++	+++	++	+++	+++	+++

[0352]

[表9]

	成分	比較例						
		1	2	3	4	5	6	7
潜在性硬化剤	A1-1	1	1	1		1	1	
	A1-2							
	A1-3							
	A1-4							
	A1-5							
環状エーテル成分	A2-1	20		20	7			
	A2-2						20	10
	A2-3							
	A2-4							
	A2-5							
	A2-6							
	A2-7							
	A2-8							
エラストマー成分	A3-1	60	60	25	60	60	25	60
	A3-2							
	A3-3							
活水エステル化合物	A4-1		20	25	10			
	A4-2							
カルボン酸無水物化合物	A5-1					20	20	10
	A5-2							
	A5-3							
その他の樹脂	B1-1	20	20	30	20	20	30	20
溶剤	B2-1	300	300	300	300	300	300	300
評価	接着力	+	−	+	−	−	+	−
	電気的特性 1 (比誘電率)	+	+	−	−	−	−	−
	電気的特性 2 (誘電正接)	−	+	−	−	−	−	−

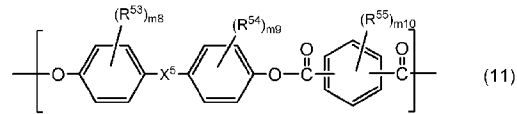
[0353] 表 1 ～表 9 の結果より、実施例の組成物によれば、電気的特性及び接着力が優れる硬化物を形成することが確認できた。

請求の範囲

- [請求項1] 環状エーテル成分と、
潜在性硬化剤と、
エラストマー成分と、
活性エステル化合物及び／又はカルボン酸無水物化合物と、
を含む組成物であって、
前記エラストマー成分の含有量が、組成物の固形分 100 質量部中、30 質量部以上である、組成物。
- [請求項2] 前記エラストマー成分が、側鎖に芳香環を持つ構成単位を有する重合体を含む、請求項 1 に記載の組成物。
- [請求項3] 前記環状エーテル成分が、芳香族エポキシ化合物及び脂肪族エポキシ化合物からなる群から選択される少なくとも 1 種を含む、請求項 1 に記載の組成物。
- [請求項4] 前記潜在性硬化剤がイオン性化合物である、請求項 1 に記載の組成物。
- [請求項5] 前記イオン性化合物が含窒素複素環カチオンを含む、請求項 4 に記載の組成物。
- [請求項6] 前記イオン性化合物が、ジアルキルイミダゾリウムイオン及びアルキルアルケニルイミダゾリウムイオンからなる群から選択される少なくとも 1 種である、請求項 5 に記載の組成物。
- [請求項7] 前記イオン性化合物が、シアナート系アニオン及びカルボン酸系アニオンからなる群から選択される少なくとも 1 種を含む、請求項 4 に記載の組成物。
- [請求項8] 前記シアナート系アニオンはシアノ基を 1 ～ 2 個含有する、請求項 7 に記載の組成物。
- [請求項9] 前記カルボン酸系アニオンは、アルキルカルボン酸アニオン又はフッ化アルキルカルボン酸アニオンである、請求項 7 に記載の組成物。
- [請求項10] 前記活性エステル化合物が、下記一般式 (11) で表される構成単

位を有する重合体である、請求項 1 に記載の組成物。

[化1]



(式 (11) 中、 R^{53} 、 R^{54} 及び R^{55} は、それぞれ独立に、一価の有機基を表し、

X^5 は、二価の有機基を表し、

$m8$ 、 $m9$ 及び $m10$ は、それぞれ独立に、0～4 の数を表し、

R^{53} 、 R^{54} 及び R^{55} が、それぞれ複数である場合、複数の R^{53} 、 R^{54} 及び R^{55} が同じであってもよく、異なるものであってもよい。

)

[請求項11] 前記活性エステル化合物及びカルボン酸無水物化合物の合計の含有量が、組成物の固形分 100 質量部中、1 質量部以上 40 質量部以下である、請求項 1 に記載の組成物。

[請求項12] フェニレンエーテル骨格を有する樹脂を更に含む、請求項 1 に記載の組成物。

[請求項13] さらに粘着付与樹脂を含む、請求項 1 に記載の組成物。

[請求項14] 請求項 1～13 の何れか一項に記載の組成物の硬化物。

[請求項15] 請求項 1～13 の何れか一項に記載の組成物からなる接着剤。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/012441

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L 21/00(2006.01)i; *C08K 5/09*(2006.01)i; *C08K 5/10*(2006.01)i; *C08K 5/315*(2006.01)i; *C08K 5/34*(2006.01)i; *C08K 5/3445*(2006.01)i; *C08L 63/00*(2006.01)i; *C08L 67/02*(2006.01)i; *C08L 71/12*(2006.01)i; *C08L 101/12*(2006.01)i; *C09J 163/00*(2006.01)i; *C09J 167/02*(2006.01)i; *C09J 171/12*(2006.01)i; *C09J 201/00*(2006.01)i
 FI: C08L21/00; C08K5/09; C08K5/10; C08K5/315; C08K5/34; C08K5/3445; C08L63/00 Z; C08L67/02; C08L71/12; C08L101/12; C09J163/00; C09J167/02; C09J171/12; C09J201/00

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)

C08L1/00-101/14; C08K5/00-5/59; C09J1/00-5/10; C09J9/00-201/10

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.
X	WO 2020/071154 A1 (NAMICS CORP.) 09 April 2020 (2020-04-09) claims 1-6, paragraph [0001], example 10	1-3, 10-11, 13-15
A		4-9, 12
X	JP 2017-538800 A (LG CHEM, LTD.) 28 December 2017 (2017-12-28) claims 1-20, paragraph [0030], examples 1-2	1-3, 10-11, 13-15
Y		1-15
Y	JP 2021-155659 A (ADEKA CORP.) 07 October 2021 (2021-10-07) claims 1-9, paragraphs [0005], [0020], [0026]-[0053], [0145], [0154], [0159], [0161]-[0162], examples 1-26	1-15
Y	JP 2019-135280 A (DEXERIALS CORP.) 15 August 2019 (2019-08-15) claims 1-9, paragraphs [0005], [0025], [0027], examples 1-13	1-15

☒ 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

06 June 2023

Date of mailing of the international search report

20 June 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.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/012441**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2016-156019 A (AJINOMOTO CO., INC.) 01 September 2016 (2016-09-01) paragraphs [0015], [0020]	1-15
Y	JP 2021-11512 A (SHOWA DENKO MATERIALS CO., LTD.) 04 February 2021 (2021-02-04) paragraph [0034]	1-15
Y	WO 2015/001764 A1 (PANASONIC INTELLECTUAL PROPERTY MANAGEMENT CO., LTD.) 08 January 2015 (2015-01-08) paragraph [0019]	1-15
A	JP 2011-39447 A (YAMAMOTO KOGAKU CO., LTD.) 24 February 2011 (2011-02-24) paragraph [0054]	1-15

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2023/012441

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO	2020/071154	A1	09 April 2020	EP 3862390 A1 claims 1-10, paragraph [0001] CN 112771110 A KR 10-2021-0069636 A	
JP	2017-538800	A	28 December 2017	US 2017/0313916 A1 claims 1-20, paragraph [0031], examples 1-2 WO 2016/093593 A1 KR 10-2016-0069248 A CN 107001886 A	
JP	2021-155659	A	07 October 2021	(Family: none)	
JP	2019-135280	A	15 August 2019	US 2021/0040360 A1 claims 1-20, paragraphs [0006], [0034], [0037], examples 1-13 WO 2019/151014 A1 EP 3750966 A1 KR 10-2020-0093028 A CN 111742029 A	
JP	2016-156019	A	01 September 2016	KR 10-2013-0135107 A	
JP	2021-11512	A	04 February 2021	WO 2021/002248 A1	
WO	2015/001764	A1	08 January 2015	US 2016/0369042 A1 paragraph [0024] CN 105358624 A	
JP	2011-39447	A	24 February 2011	US 2011/0043902 A1 paragraph [0136] EP 2287222 A1 CN 102023332 A	

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））</p> <p>C08L 21/00(2006.01)i; C08K 5/09(2006.01)i; C08K 5/10(2006.01)i; C08K 5/315(2006.01)i; C08K 5/34(2006.01)i; C08K 5/3445(2006.01)i; C08L 63/00(2006.01)i; C08L 67/02(2006.01)i; C08L 71/12(2006.01)i; C08L 101/12(2006.01)i; C09J 163/00(2006.01)i; C09J 167/02(2006.01)i; C09J 171/12(2006.01)i; C09J 201/00(2006.01)i FI: C08L21/00; C08K5/09; C08K5/10; C08K5/315; C08K5/34; C08K5/3445; C08L63/00 Z; C08L67/02; C08L71/12; C08L101/12; C09J163/00; C09J167/02; C09J171/12; C09J201/00</p>																							
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））</p> <p>C08L1/00-101/14; C08K5/00-5/59; C09J1/00-5/10; C09J9/00-201/10</p> <p>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</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2023年</td> </tr> </table> <p>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）</p>			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													
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																						
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>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</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>WO 2020/071154 A1（ナミックス株式会社）09.04.2020（2020-04-09） 請求項1-6, [0001], 実施例10</td> <td>1-3, 10-11, 13-15</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td></td> <td>4-9, 12</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>JP 2017-538800 A（エルジー・ケム・リミテッド）28.12.2017（2017-12-28） 請求項1-20, [0030], 実施例1-2</td> <td>1-3, 10-11, 13-15</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td></td> <td>1-15</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>JP 2021-155659 A（株式会社ADEKA）07.10.2021（2021-10-07） 請求項1-9, [0005], [0020], [0026]-[0053], [0145], [0154], [0159], [0161]- [0162], 実施例1-26</td> <td>1-15</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>JP 2019-135280 A（デクセリアルズ株式会社）15.08.2019（2019-08-15） 請求項1-9, [0005], [0025], [0027], 実施例1-13</td> <td>1-15</td> </tr> </tbody> </table>			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	X	WO 2020/071154 A1（ナミックス株式会社）09.04.2020（2020-04-09） 請求項1-6, [0001], 実施例10	1-3, 10-11, 13-15	A		4-9, 12	X	JP 2017-538800 A（エルジー・ケム・リミテッド）28.12.2017（2017-12-28） 請求項1-20, [0030], 実施例1-2	1-3, 10-11, 13-15	Y		1-15	Y	JP 2021-155659 A（株式会社ADEKA）07.10.2021（2021-10-07） 請求項1-9, [0005], [0020], [0026]-[0053], [0145], [0154], [0159], [0161]- [0162], 実施例1-26	1-15	Y	JP 2019-135280 A（デクセリアルズ株式会社）15.08.2019（2019-08-15） 請求項1-9, [0005], [0025], [0027], 実施例1-13	1-15
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																					
X	WO 2020/071154 A1（ナミックス株式会社）09.04.2020（2020-04-09） 請求項1-6, [0001], 実施例10	1-3, 10-11, 13-15																					
A		4-9, 12																					
X	JP 2017-538800 A（エルジー・ケム・リミテッド）28.12.2017（2017-12-28） 請求項1-20, [0030], 実施例1-2	1-3, 10-11, 13-15																					
Y		1-15																					
Y	JP 2021-155659 A（株式会社ADEKA）07.10.2021（2021-10-07） 請求項1-9, [0005], [0020], [0026]-[0053], [0145], [0154], [0159], [0161]- [0162], 実施例1-26	1-15																					
Y	JP 2019-135280 A（デクセリアルズ株式会社）15.08.2019（2019-08-15） 請求項1-9, [0005], [0025], [0027], 実施例1-13	1-15																					
<p>☒ 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。</p>																							
<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの</p> <p>“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</p> <p>“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）</p> <p>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“&” 同一パテントファミリー文献</p>																							
<p>国際調査を完了した日</p> <p>06.06.2023</p>		<p>国際調査報告の発送日</p> <p>20.06.2023</p>																					
<p>名称及びあて先</p> <p>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</p>		<p>権限のある職員（特許庁審査官）</p> <p>長岡 真 4J 5277</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3457</p>																					

C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリ*	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
Y	JP 2016-156019 A (味の素株式会社) 01.09.2016 (2016 - 09 - 01) [0015], [0020]	1-15
Y	JP 2021-11512 A (昭和電工マテリアルズ株式会社) 04.02.2021 (2021 - 02 - 04) [0034]	1-15
Y	WO 2015/001764 A1 (パナソニック I P マネジメント株式会社) 08.01.2015 (2015 - 01 - 08) [0019]	1-15
A	JP 2011-39447 A (山本光学株式会社) 24.02.2011 (2011 - 02 - 24) [0054]	1-15

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/JP2023/012441

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2020/071154	A1	09.04.2020	EP	3862390	A1	
				Claims1-10, [0001]			
				CN	112771110	A	
				KR	10-2021-0069636	A	
JP	2017-538800	A	28.12.2017	US	2017/0313916	A1	
				Claims1-20, [0031],			
				Examples1-2			
				WO	2016/093593	A1	
				KR	10-2016-0069248	A	
				CN	107001886	A	
JP	2021-155659	A	07.10.2021	(ファミリーなし)			
JP	2019-135280	A	15.08.2019	US	2021/0040360	A1	
				Claims1-20, [0006],			
				[0034], [0037],			
				Examples1-13			
				WO	2019/151014	A1	
				EP	3750966	A1	
				KR	10-2020-0093028	A	
				CN	111742029	A	
JP	2016-156019	A	01.09.2016	KR	10-2013-0135107	A	
JP	2021-11512	A	04.02.2021	WO	2021/002248	A1	
WO	2015/001764	A1	08.01.2015	US	2016/0369042	A1	
				[0024]			
				CN	105358624	A	
JP	2011-39447	A	24.02.2011	US	2011/0043902	A1	
				[0136]			
				EP	2287222	A1	
				CN	102023332	A	