(19)国家知识产权局

(12)发明专利申请

(10)申请公布号 CN 116783230 A
(43)申请公布日 2023.09.19

(21)申请号 202280010156.0
(22)申请日 2022.01.25
(30)优先权数据
2021-016044 2021.02.03 JP
(85)PCT国际申请进入国家阶段日
2023.07.14
(86)PCT国际申请的申请数据
PCT/JP2022/002587 2022.01.25
(87)PCT国际申请的公布数据
WO2022/168666 JA 2022.08.11
(71)申请人 株式会社艾迪科
地址 日本东京都
(72)发明人 远藤刚 森康友纪 玉祖健一
小川亮 上山润二
(74)专利代理机构 永新专利商标代理有限公司 72002
专利代理师 周欣
(51)Int.Cl.
C08G 59/56(2006.01)

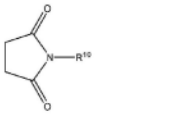
权利要求书1页 说明书17页

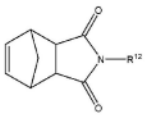
(54)发明名称

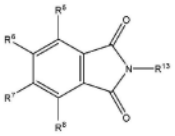
固化性树脂组合物

(57)摘要

本发明的目的在于提供固化性与贮藏稳定性的平衡优异的固化性树脂组合物。本发明为一种固化性树脂组合物，其含有(A)环氧树脂、(B)固化剂、及(C)选自下述式(1-1)、(1-2)及(1-3)所表示的酰亚胺化合物中的至少一种。式中，R^{11}表示可具有取代基的碳原子数1～10的烷基等，R^{1}～R^{4}分别独立地表示氢原子、碳原子数1～10的烷基等，R^{12}及R^{13}分别独立地表示氢原子、可具有取代基的碳原子数1～10的烷基等。

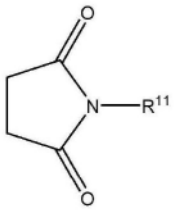

(1-1)


(1-2)

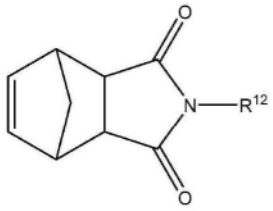

(1-3)

CN 116783230 A

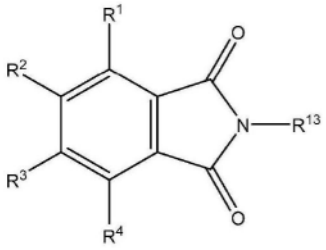
1.一种固化性树脂组合物，其含有(A)环氧树脂、(B)固化剂、及(C)选自下述式(1-1)、(1-2)及(1-3)所表示的酰亚胺化合物中的至少一种，



(1-1)



(1-2)



(1-3)

式中，R^{11}表示可具有取代基的碳原子数1～10的烷基、可具有取代基的碳原子数6～20的芳基、或可具有取代基的碳原子数7～20的芳基烷基，

R^1～R^4分别独立地表示氢原子、碳原子数1～10的烷基、碳原子数1～10的烷氧基、碳原子数1～10的卤代烷基、碳原子数1～10的卤代烷氧基、碳原子数2～10的烷氧基羰基、卤素原子、硝基、腈基、氨基或缩水甘油氧基，

R^{12}及R^{13}分别独立地表示氢原子、可具有取代基的碳原子数1～10的烷基、可具有取代基的碳原子数6～20的芳基、或可具有取代基的碳原子数7～20的芳基烷基，

所述取代基为碳原子数1～10的烷基、碳原子数1～10的烷氧基、碳原子数1～10的卤代烷基、碳原子数1～10的卤代烷氧基、卤素原子、硝基、腈基、氨基或缩水甘油氧基。

2.根据权利要求1所述的固化性树脂组合物，其中，作为(B)成分的固化剂含有咪唑系固化剂。

3.根据权利要求1或2所述的固化性树脂组合物，其中，作为(B)成分的固化剂的含量相对于作为(A)成分的环氧树脂100摩尔为0.01～100摩尔。

4.根据权利要求1～3中任一项所述的固化性树脂组合物，其中，作为(C)成分的酰亚胺化合物的含量相对于作为(B)成分的固化剂100摩尔为1～2000摩尔。

5.权利要求1～4中任一项所述的固化性树脂组合物的固化物。

6.根据权利要求1～4中任一项所述的固化性树脂组合物，其为单液固化型。

固化性树脂组合物

技术领域

[0001] 本发明涉及固化性树脂组合物，详细而言，涉及含有环氧树脂、固化剂、及具有芳香环结构的酰亚胺化合物的固化性树脂组合物。

背景技术

[0002] 环氧树脂作为涂料、粘接剂、各种成形材料等的成分在工业上被广泛使用。

[0003] 在将环氧树脂用于上述用途的情况下，通常与固化剂组合使用，作为该固化剂，已知有酸酐系固化剂、胺系固化剂、酚系固化剂等各种固化剂。

[0004] 上述固化剂根据用途而分开使用，例如咪唑系固化剂与加聚型固化剂不同，由于为阴离子聚合型固化剂，因此通过少量的添加而能够固化，此外为低挥发性且毒性低的方面也是有用的，因此可以适宜用于电气·电子部件。

[0005] 然而，在将环氧树脂固化剂单独使用的情况下，难以取得固化性与贮藏稳定性的平衡。为了提高贮藏稳定性，例如在专利文献1中提出了将咪唑化合物与环氧树脂的反应产物用于环氧基固化系统，在专利文献2中提出了由改性咪唑、改性胺及苯酚化合物形成的环氧树脂用固化剂组合物。

[0006] 然而，在进行这些各种改性的情况下，改性物的粘度上升，操作、作业性受损等，未得到能够令人满意的改性物。

[0007] 现有技术文献

[0008] 专利文献

[0009] 专利文献1:美国专利4066625号

[0010] 专利文献2:日本特开2007-297493号公报

[0011] 非专利文献

[0012] 非专利文献1:JORNAL OF POLYMER SCIENCE,PART A POLYMER CHEMISTRY 2016,54,2680-2688

[0013] 非专利文献2:JORNAL OF POLYMER SCIENCE,PART A POLYMER CHEMISTRY 2018,56,471-474

[0014] 非专利文献3:Composits Part B 17(2019)107380

[0015] 非专利文献4:Materials Leters 234(2019)379-383

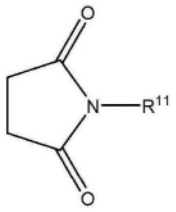
发明内容

[0016] 因此，本发明所要解决的课题是提供固化性与贮藏稳定性的平衡优异的固化性树脂组合物。

[0017] 本发明者们进行了深入研究，结果发现:含有环氧树脂、固化剂、及特定的酰亚胺化合物的固化性树脂组合物的固化性与贮藏稳定性的平衡优异，从而完成了本发明。

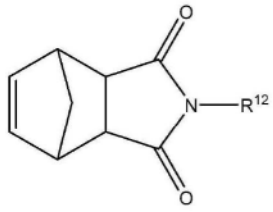
[0018] 即，本发明为一种固化性树脂组合物，其中，含有(A)环氧树脂、(B)固化剂、及(C)选自下述式(1-1)、(1-2)及(1-3)所表示的酰亚胺化合物中的至少一种。

[0019] [化学式1]

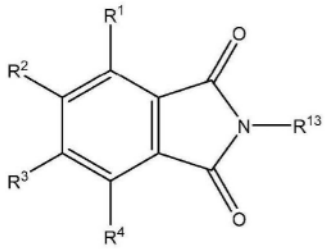


(1-1)

[0020]



(1-2)



(1-3)

[0021] 式中,R^{11}表示可具有取代基的碳原子数1～10的烷基、可具有取代基的碳原子数6～20的芳基、或可具有取代基的碳原子数7～20的芳基烷基,

[0022] R^1～R^4分别独立地表示氢原子、碳原子数1～10的烷基、碳原子数1～10的烷氧基、碳原子数1～10的卤代烷基、碳原子数1～10的卤代烷氧基、碳原子数2～10的烷氧基羰基、卤素原子、硝基、腈基、氨基或缩水甘油氧基,

[0023] R^{12}及R^{13}分别独立地表示氢原子、可具有取代基的碳原子数1～10的烷基、可具有取代基的碳原子数6～20的芳基、或可具有取代基的碳原子数7～20的芳基烷基,

[0024] 上述取代基为碳原子数1～10的烷基、碳原子数1～10的烷氧基、碳原子数1～10的卤代烷基、碳原子数1～10的卤代烷氧基、卤素原子、硝基、腈基、氨基或缩水甘油氧基。

[0025] 发明效果

[0026] 根据本发明,能够提供固化性优异、并且贮藏稳定性优异的固化性树脂组合物。本发明的固化性树脂组合物可以作为单液固化型的固化性树脂组合物适宜使用。

具体实施方式

[0027] 以下,对本发明的固化性树脂组合物进行说明。

[0028] 本发明的固化性树脂组合物含有(A)环氧树脂、(B)固化剂、及(C)特定的酰亚胺化合物。

[0029] 作为(A)成分的环氧树脂只要是在分子中具有至少2个环氧基即可,可以对分子结构、分子量等没有特别限制地使用。

[0030] 作为上述环氧树脂,可列举出氢醌、间苯二酚、焦儿茶酚及间苯三酚等单核多元酚化合物的聚缩水甘油醚化物;二羟基萘、联苯酚、亚甲基双酚(双酚F)、亚甲基双(邻甲酚)、乙叉基双酚、异丙叉基双酚(双酚A)、异丙叉基双(邻甲酚)、四溴双酚A、1,3-双(4-羟基枯基苯)、1,4-双(4-羟基枯基苯)、1,1,3-三(4-羟基苯基)丁烷、1,1,2,2-四(4-羟基苯基)乙烷、

硫代双酚、磺基双酚、氧代双酚、苯酚酚醛清漆、邻甲酚酚醛清漆、乙基苯酚酚醛清漆、丁基苯酚酚醛清漆、辛基苯酚酚醛清漆、间苯二酚酚醛清漆及萜烯酚等多核多元酚化合物的聚缩水甘油醚化物;乙二醇、丙二醇、丁二醇、己二醇、聚乙二醇、聚丙二醇、硫甘醇、二环戊二烯二甲醇、2,2-双(4-羟基环己基)丙烷(氢化双酚A)、甘油、三羟甲基丙烷、季戊四醇、山梨糖醇及双酚A-环氧烷烃加成物等多元醇化合物的聚缩水甘油醚化物;马来酸、富马酸、衣康酸、琥珀酸、戊二酸、辛二酸、己二酸、壬二酸、癸二酸、二聚物酸、三聚物酸、邻苯二甲酸、间苯二甲酸、对苯二甲酸、偏苯三酸、均苯三甲酸、均苯四甲酸、四氢邻苯二甲酸及桥亚甲基四氢邻苯二甲酸等脂肪族、芳香族或脂环族多元酸的缩水甘油酯化物及甲基丙烯酸缩水甘油酯的均聚物或共聚物;N,N-二缩水甘油基苯胺、双(4-(N-甲基-N-缩水甘油基氨基)苯基)甲烷、二缩水甘油基邻甲苯胺、N,N-双(2,3-环氧基丙基)-4-(2,3-环氧基丙氧基)-2-甲基苯胺、N,N-双(2,3-环氧基丙基)-4-(2,3-环氧基丙氧基)苯胺及N,N,N',N'-四(2,3-环氧基丙基)-4,4-二氨基二苯基甲烷等具有缩水甘油基氨基的环氧化合物;乙烯基环己烯二环氧化物、环戊二烯二环氧化物、3,4-环氧环己基甲基-3,4-环氧环己烷羧酸酯、3,4-环氧基-6-甲基环己基甲基-6-甲基环己烷羧酸酯及双(3,4-环氧基-6-甲基环己基甲基)己二酸酯等环状烯烃化合物的环氧化物;环氧化聚丁二烯及环氧化苯乙烯-丁二烯共聚物等环氧化共轭二烯聚合物;异氰脲酸三缩水甘油酯等杂环化合物。此外,这些环氧树脂也可以以通过末端异氰酸酯的预聚物而内部交联的形式、此外通过多价的活泼氢化合物(多元酚、多胺、含羰基的化合物、多磷酸酯等)而高分子量化的形式来使用。环氧树脂可以单独使用,也可以将2种以上并用。

[0031] 作为环氧树脂,优选多元酚化合物的聚缩水甘油醚化物或其高分子量体,更优选双酚A及双酚F等双酚类的聚缩水甘油醚或其高分子量体。特别是为液状的环氧树脂可得到单液固化型的固化性树脂组合物,因此优选。

[0032] 作为(B)成分即固化剂,例如可列举出酸酐系固化剂、酚系固化剂、胺系固化剂、聚硫醇系固化剂及咪唑系固化剂等。

[0033] 作为上述酸酐系固化剂,例如可列举出降冰片烯二酸酐、邻苯二甲酸酐、马来酸酐、甲基降冰片烯二酸酐、琥珀酸酐、四氢邻苯二甲酸酐、六氢邻苯二甲酸酐、甲基四氢邻苯二甲酸酐、甲基六氢邻苯二甲酸酐、三烷基四氢邻苯二甲酸酐-马来酸酐加成物、二苯甲酮四羧酸酐、偏苯三酸酐、均苯四甲酸酐及氢化甲基纳迪克酸酐等。

[0034] 作为上述酚系固化剂,例如可列举出苯酚酚醛清漆树脂、甲酚酚醛清漆树脂、芳香族烃甲醛树脂改性酚醛树脂、二环戊二烯苯酚加成型树脂、苯酚芳烷基树脂(Xyloc树脂)、萘酚芳烷基树脂、三羟苯基甲烷(trisphenylol methane)树脂、四羟苯基乙烷(tetraphenylol ethane)树脂、萘酚酚醛清漆树脂、萘酚-苯酚共缩合酚醛清漆树脂、萘酚-甲酚共缩合酚醛清漆树脂、联苯改性酚醛树脂(酚核通过双亚甲基连结而成的多元酚化合物)、联苯改性萘酚树脂(酚核通过双亚甲基连结而成的多元萘酚化合物)、氨基三嗪改性酚醛树脂(在分子结构中具有苯酚骨架、三嗪环及伯氨基的化合物)、及含烷氧基的芳香环改性酚醛清漆树脂(酚核及含烷氧基的芳香环通过甲醛连结而成的多元酚化合物)等多元酚化合物。

[0035] 作为上述胺系固化剂,例如可列举出乙二胺、1,2-二氨基丙烷、1,3-二氨基丙烷、1,3-二氨基丁烷、1,4-二氨基丁烷、六亚甲基二胺及间二甲苯二胺等亚烷基二胺类;二亚乙

基三胺、三亚乙基三胺及四亚乙基五胺等多烷基多胺类;1,4-二氨基环己烷、1,3-二氨基环己烷、1,3-二氨基甲基环己烷、1,2-二氨基环己烷、1,4-二氨基-3,6-二乙基环己烷、4,4'-二氨基二环己基甲烷、1,3-双(氨基甲基)环己烷、1,4-双(氨基甲基)环己烷、4,4'-二氨基二环己基丙烷、双(4-氨基环己基)砜、4,4'-二氨基二环己基醚、2,2'-二甲基-4,4'-二氨基二环己基甲烷、异佛尔酮二胺及降冰片烯二胺等脂环式多胺类;二氨基二苯基甲烷、二氨基二苯基砜、二乙基甲苯二胺、1-甲基-3,5-二乙基-2,4-二氨基苯、1-甲基-3,5-二乙基-2,6-二氨基苯、1,3,5-三乙基-2,6-二氨基苯、3,3'-二乙基-4,4'-二氨基二苯基甲烷及3,5,3',5'-四甲基-4,4'-二氨基二苯基甲烷等芳香族多胺类;N,N-二甲基氨基乙基胺、N,N-二乙基氨基乙基胺、N,N-二异丙基氨基乙基胺、N,N-二烯丙基氨基乙基胺、N,N-苄基甲基氨基乙基胺、N,N-二苄基氨基乙基胺、N,N-环己基甲基氨基乙基胺、N,N-二环己基氨基乙基胺、N-(2-氨基乙基)吡咯烷、N-(2-氨基乙基)哌啶、N-(2-氨基乙基)吗啉、N-(2-氨基乙基)哌嗪、N-(2-氨基乙基)-N'-甲基哌嗪、N,N-二甲基氨基丙基胺、N,N-二乙基氨基丙基胺、N,N-二异丙基氨基丙基胺、N,N-二烯丙基氨基丙基胺、N,N-苄基甲基氨基丙基胺、N,N-二苄基氨基丙基胺、N,N-环己基甲基氨基丙基胺、N,N-二环己基氨基丙基胺、N-(3-氨基丙基)吡咯烷、N-(3-氨基丙基)哌啶、N-(3-氨基丙基)吗啉、N-(3-氨基丙基)哌嗪、N-(3-氨基丙基)-N'-甲基哌啶、4-(N,N-二甲基氨基)苄基胺、4-(N,N-二乙基氨基)苄基胺、4-(N,N-二异丙基氨基)苄基胺、N,N,-二甲基异佛尔酮二胺、N,N-二甲基双氨基环己烷、N,N,N'-三甲基乙二胺、N'-乙基-N,N-二甲基乙二胺、N,N,N'-三乙基乙二胺、N'-乙基-N,N-二甲基丙烷二胺、N'-乙基-N,N-二苄基氨基丙基胺;N,N-(双氨基丙基)-N-甲基胺、N,N-双氨基丙基乙基胺、N,N-双氨基丙基丙基胺、N,N-双氨基丙基丁基胺、N,N-双氨基丙基戊基胺、N,N-双氨基丙基己基胺、N,N-双氨基丙基-2-乙基己基胺、N,N-双氨基丙基环己基胺、N,N-双氨基丙基苄基胺、N,N-双氨基丙基烯丙基胺、双{3-(N,N-二甲基氨基丙基)}胺、双{3-(N,N-二乙基氨基丙基)}胺、双{3-(N,N-二异丙基氨基丙基)}胺、双{3-(N,N-二丁基氨基丙基)}胺;草酸二酰肼、丙二酸二酰肼、琥珀酸二酰肼、戊二酸二酰肼、己二酸二酰肼、辛二酸二酰肼、壬二酸二酰肼、癸二酸二酰肼及邻苯二甲酸二酰肼等二元酸二酰肼;双氰胺、苯并胍胺及乙酰胍胺等胍化合物;三聚氰胺等。

[0036] 此外,也可以使用将上述胺类改性而得到的改性胺系固化剂。作为改性方法,可列举出与羧酸的脱水缩合、与环氧树脂的加成反应、与异氰酸酯的加成反应、麦克尔加成反应、曼尼希反应、与尿素的缩合反应、及与酮的缩合反应等。

[0037] 作为上述胺类的改性中可使用的羧酸,例如可列举出马来酸、富马酸、衣康酸、琥珀酸、戊二酸、辛二酸、己二酸、壬二酸、癸二酸、二聚物酸、三聚物酸、邻苯二甲酸、间苯二甲酸、对苯二甲酸、偏苯三酸、均苯三甲酸、均苯四甲酸、四氢邻苯二甲酸、六氢邻苯二甲酸及桥亚甲基四氢邻苯二甲酸等脂肪族、芳香族或脂环族多元酸等。

[0038] 作为上述胺类的改性中可使用的环氧化合物,例如可列举出作为上述(A)成分即环氧树脂所例示的环氧化合物。

[0039] 作为上述胺类的改性中可使用的异氰酸酯化合物,例如可列举出2,4-甲苯撑二异氰酸酯、2,6-甲苯撑二异氰酸酯、二苯基甲烷-4,4'-二异氰酸酯、苯二异氰酸酯、苯二甲基二异氰酸酯、四甲基苯二甲基二异氰酸酯、1,5-萘二异氰酸酯、1,5-四氢萘二异氰酸酯、3,3'-二甲基二苯基-4,4'-二异氰酸酯、二茴香胺二异氰酸酯及四甲基苯二甲基二异氰酸酯

等芳香族二异氰酸酯;异佛尔酮二异氰酸酯、二环己基甲烷-4,4'-二异氰酸酯、反式-1,4-环己基二异氰酸酯及降冰片烯二异氰酸酯等脂环式二异氰酸酯;四亚甲基二异氰酸酯、1,6-六亚甲基二异氰酸酯、2,2,4和/或2,4,4-三甲基六亚甲基二异氰酸酯及赖氨酸二异氰酸酯等脂肪族二异氰酸酯;上述例示的二异氰酸酯的异氰脲酸酯三聚物、缩二脲三聚物及三羟甲基丙烷加合物等;三苯基甲烷三异氰酸酯、1-甲基苯-2,4,6-三异氰酸酯及二甲基三苯基甲烷四异氰酸酯等。进而这些异氰酸酯化合物也可以以碳二亚胺改性、异氰脲酸酯改性、缩二脲改性等改性物的形式使用,也可以以通过各种封端剂而封端的封端异氰酸酯的形式使用。

[0040] 作为上述聚硫醇系固化剂,例如可列举出季戊四醇四(3-巯基丙酸酯)、季戊四醇四(巯基乙酸酯)、二季戊四醇六(3-巯基丙酸酯)、二季戊四醇六(3-巯基丁酸酯)、1,3,4,6-四(2-巯基乙基)-1,3,4,6-四氮杂八氢戊搭烯-2,5-二酮、1,3,5-三(3-巯基丙基)-1,3,5-三嗪-2,4,6(1H,3H,5H)-三酮、4-巯基甲基-1,8-二巯基-3,6-二硫杂辛烷、4,8-、4,7-或5,7-二巯基甲基-1,11-二巯基-3,6,9-三硫杂十一烷及1,3,4,6-四(2-巯基乙基)甘脲等。

[0041] 作为上述咪唑系固化剂,例如可列举出2-甲基咪唑、2-乙基-4-甲基咪唑、2-异丙基咪唑、2-十一烷基咪唑、2-十七烷基咪唑、2-苯基咪唑、2-苯基-4-甲基咪唑、2-氨基丙基咪唑、1-苯基甲基-2-咪唑、1-苯基甲基-2-乙基-4-甲基咪唑、1-苯基甲基-2-苯基咪唑、1-丁氧基羰基乙基-2-甲基咪唑、1-丁氧基羰基乙基-2-乙基-4-甲基咪唑、1-丁氧基羰基乙基-2-苯基咪唑、1-(2-乙基己基)羰基乙基-2-甲基咪唑、1-(2-乙基己基)羰基乙基-2-乙基-4-甲基咪唑、1-(2-乙基己基)羰基乙基-2-苯基咪唑、1-辛氧基羰基乙基-2-甲基咪唑、1-辛氧基羰基乙基-2-乙基-4-甲基咪唑、1-辛氧基羰基乙基-2-苯基咪唑、己二醇·双(2-甲基咪唑基乙烷酸)酯、己二醇·双(2-乙基-4-甲基咪唑基乙烷酸)酯、己二醇·双(2-苯基咪唑基乙烷酸)酯、癸二醇·双(2-甲基咪唑基乙烷酸)酯、癸二醇·双(2-乙基-4-甲基咪唑基乙烷酸)酯、癸二醇·双(2-苯基咪唑基乙烷酸)酯、三环戊烷二甲醇·双(2-甲基咪唑基乙烷酸)酯、三环戊烷二甲醇·双(2-乙基-4-甲基咪唑基乙烷酸)酯、三环戊烷二甲醇·双(2-苯基咪唑基乙烷酸)酯、1-(2-羟基萘基甲基)-2-甲基咪唑、1-(2-羟基萘基甲基)-2-乙基-4-甲基咪唑、1-(2-羟基萘基甲基)-2-苯基咪唑及咪唑硅烷(例如四国化成工业制;2MUSIZ)等,它们也可以以与偏苯三酸、异氰脲酸及硼等的盐的形式使用。此外,也可以使用将这些咪唑化合物与上述改性胺系固化剂同样地改性而得到的改性咪唑系固化剂。

[0042] 作为可作为(B)成分使用的固化剂的市售品,例如可列举出Adeka Hardener EH-3636AS、Adeka Hardener EH-4351S(ADEKA制;双氰胺型潜伏性固化剂)、Adeka Hardener EH-5011S、Adeka Hardener EH-5046S(ADEKA制;咪唑型潜伏性固化剂)、Adeka Hardener EH-4357S、Adeka Hardener EH-5057P、Adeka Hardener EH-5057PK(ADEKA制;多胺型潜伏性固化剂)、Amicure PN-23、Amicure PN-40(Ajinomoto Finetechno制;胺加合系潜伏性固化剂)、Amicure VDH(Ajinomoto Finetechno制;酰肼系潜伏性固化剂)、Fujicure FXR-1020(T&K TOKA制;潜伏性固化剂)、CUREZOL(四国化成工业制;咪唑系固化剂)、TS-G(四国化成工业制;聚硫醇系固化剂)、DPMP、PEMP(SC有机化学制;聚硫醇系固化剂)及PETG(淀化学制;聚硫醇系固化剂)等。

[0043] 固化剂可以单独使用,也可以将2种以上并用。

[0044] 本发明中优选咪唑系固化剂,尤其是2-甲基咪唑、2-乙基-4-甲基咪唑等未改性化

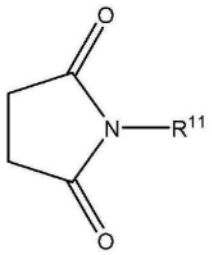
合物能够以比较少量的使用而固化，并且在与其他的固化剂组合的情况下还能够发挥作为固化促进剂的效果，因此优选。

[0045] (B)成分即固化剂的配合量没有特别限定，但相对于作为(A)成分的环氧树脂100摩尔优选为1～70摩尔，更优选为1～50摩尔，特别优选为3～30摩尔。需要说明的是，在(A)成分和/或(B)成分为具有分子量分布的物质的情况下，上述摩尔比是指基于通过GPC而测定的重均分子量而算出的摩尔比。

[0046] 本发明中，可以根据需要将上述固化剂与公知的环氧树脂固化促进剂并用。作为固化促进剂，例如可列举出三苯基膦等膦类；四苯基溴化鏻等鏻盐；苄基二甲基胺及2,4,6-三(二甲基氨基甲基)苯酚等胺类；三甲基氯化铵等季铵盐类；3-(对氯苯基)-1,1-二甲基脲、3-(3,4-二氯苯基)-1,1-二甲基脲、3-苯基-1,1-二甲基脲、异佛尔酮二异氰酸酯-二甲基脲及甲苯撑二异氰酸酯-二甲基脲等脲类；三氟化硼与胺类的络合物、及三氟化硼与醚化合物的络合物等。这些固化促进剂可以单独使用，也可以将2种以上并用。环氧树脂固化促进剂的含量可以没有特别限制地根据固化性树脂组合物的用途而适当设定。

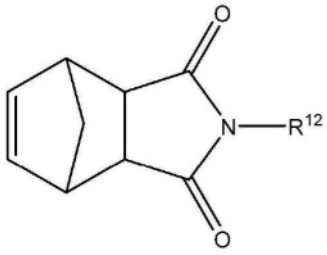
[0047] (C)成分即酰亚胺化合物为选自下述式(1-1)、(1-2)及(1-3)所表示的酰亚胺化合物中的至少一种，通过使用这样的结构的酰亚胺化合物，能够提供固化性和贮藏稳定性优异的固化性树脂组合物。

[0048] [化学式2]

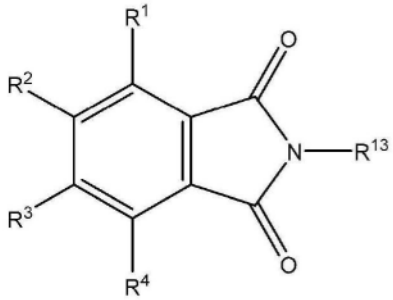


(1-1)

[0049]



(1-2)



(1-3)

[0050] 式中，R^{11}表示可具有取代基的碳原子数1～10的烷基、可具有取代基的碳原子数6～20的芳基、或可具有取代基的碳原子数7～20的芳基烷基，

[0051] R^1～R^4分别独立地表示氢原子、碳原子数1～10的烷基、碳原子数1～10的烷氧基、

碳原子数1～10的卤代烷基、碳原子数1～10的卤代烷氧基、碳原子数2～10的烷氧基羰基、卤素原子、硝基、腈基、氨基或缩水甘油氧基，

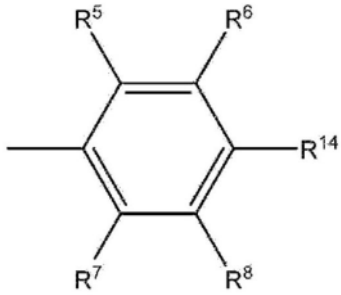
[0052] R^{12}及R^{13}分别独立地表示氢原子、可具有取代基的碳原子数1～10的烷基、可具有取代基的碳原子数6～20的芳基、或可具有取代基的碳原子数7～20的芳基烷基，

[0053] 上述取代基为碳原子数1～10的烷基、碳原子数1～10的烷氧基、碳原子数1～10的卤代烷基、碳原子数1～10的卤代烷氧基、卤素原子、硝基、腈基、氨基或缩水甘油氧基。

[0054] 作为上述式(1-1)、(1-2)及(1-3)中的碳原子数1～10的烷基，例如可列举出甲基、乙基、丙基、异丙基、丁基、异丁基、仲丁基、叔丁基、戊基、异戊基、仲戊基、叔戊基、己基、庚基、辛基、异辛基、叔辛基、2-乙基己基、壬基、异壬基、癸基及异癸基等，作为上述碳原子数1～10的烷氧基，例如可列举出甲氧基、乙氧基、丙氧基、异丙氧基、丁氧基、戊氧基、己氧基、庚氧基、辛氧基及2-乙基己氧基等，作为上述碳原子数6～20的芳基，例如可列举出苯基、萘基及蒽基等，作为卤素原子，例如可列举出氟、氯、溴及碘等。此外，作为碳原子数7～20的芳基烷基，可列举出作为烷基所例示的上述基团的氢原子中的1个以上被作为芳基所例示的上述基团取代而得到的结构的碳原子数7～20的基团等，作为碳原子数1～10的卤代烷基及卤代烷氧基，可列举出作为碳原子数1～10的烷基及烷氧基所例示的上述基团的氢原子的一部分或全部被上述卤素原子取代而得到的结构的基团等，作为碳原子数2～10的烷氧基羰基，可列举出在作为碳原子数1～10的烷氧基所例示的上述基团的氧原子上键合有羰基的结构的基团等。

[0055] 上述式(1-1)所表示的化合物中，优选R^{11}为下述式(A)所表示的基团的化合物。

[0056] [化学式3]

[0057] 

(A)

[0058] 式中，R^5～R^8分别独立地表示氢原子、碳原子数1～10的烷基、碳原子数1～10的烷氧基、碳原子数1～10的卤代烷基、碳原子数1～10的卤代烷氧基、卤素原子、硝基、腈基、氨基或缩水甘油氧基，R^{14}表示氢原子、可具有取代基的碳原子数1～10的烷基、可具有取代基的碳原子数6～20的芳基、或可具有取代基的碳原子数7～20的芳基烷基。

[0059] 上述取代基为碳原子数1～10的烷基、碳原子数1～10的烷氧基、碳原子数1～10的卤代烷基、碳原子数1～10的卤代烷氧基、卤素原子、硝基、腈基、氨基或缩水甘油氧基。

[0060] 特别优选R^5～R^8为氢原子、R^{14}为碳原子数1～10的烷基、苯乙基、或具有甲氧基作为取代基的苯基的化合物。

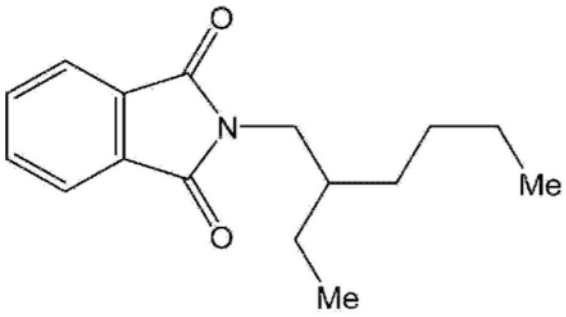
[0061] 作为上述式(A)中的碳原子数1～10的烷基、碳原子数1～10的烷氧基、碳原子数1～10的卤代烷基、碳原子数1～10的卤代烷氧基、碳原子数6～20的芳基、及可具有取代基的碳原子数7～20的芳基烷基，例如可列举出作为上述式(1-1)、(1-2)及(1-3)中的这些基团所例示的基团。

[0062] 上述式(1-2)所表示的化合物中，优选R^{12}为碳原子数1～10的烷基、具有三氟甲基或甲氧基作为取代基的苯基的化合物。

[0063] 上述式(1-3)所表示的化合物中，优选R^{1}～R^{4}为氢原子、甲基、卤素原子、硝基或丁氧基羰基、R^{13}为碳原子数1～10的烷基、或具有甲氧基作为取代基的苯基的化合物。

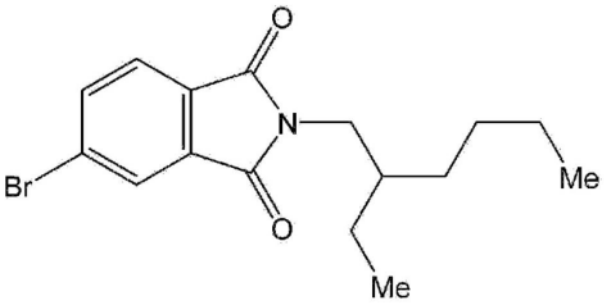
[0064] 以下示出上述式(1-1)、(1-2)及(1-3)所表示的酰亚胺化合物的更具体的化合物。

[0065] [化学式4]

[0066] 

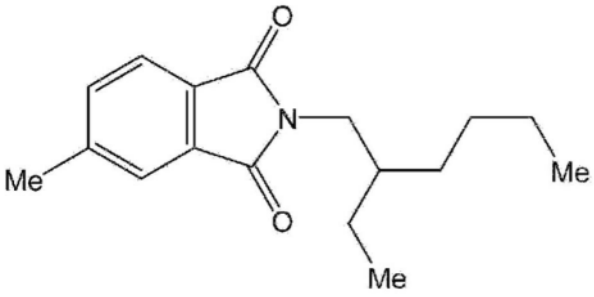
EHPI

[0067] [化学式5]

[0068] 

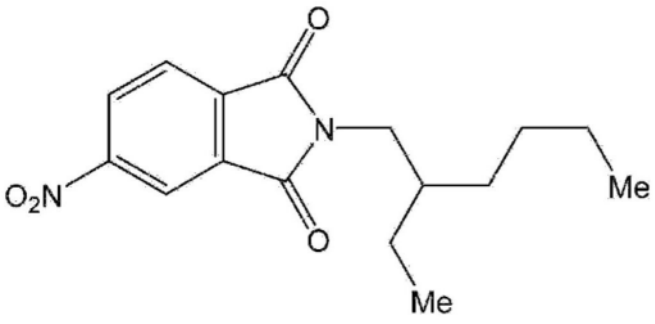
EHBPI

[0069] [化学式6]

[0070] 

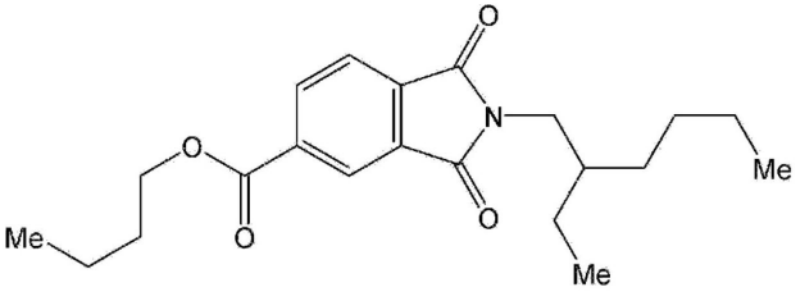
EHMPI

[0071] [化学式7]

[0072] 

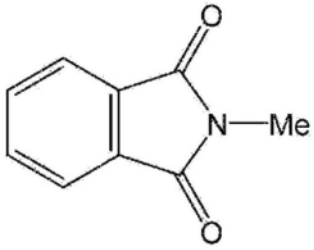
EHNPI

[0073] [化学式8]

[0074] 

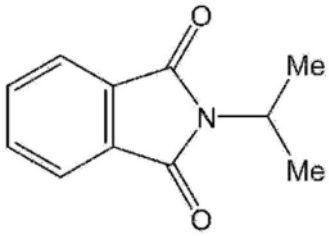
EHPI-BEST

[0075] [化学式9]

[0076] 

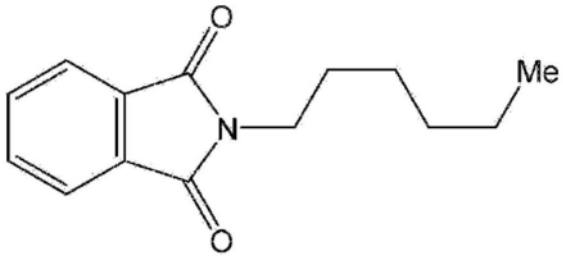
MPI

[0077] [化学式10]

[0078] 

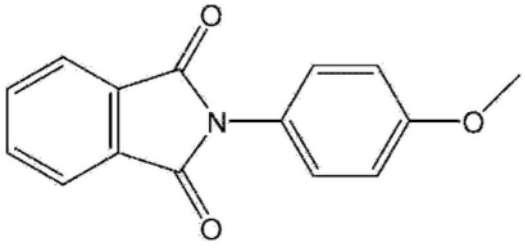
PPI

[0079] [化学式11]

[0080] 

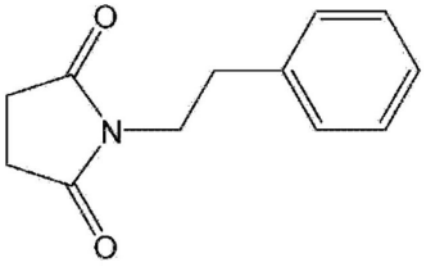
HPI

[0081] [化学式12]

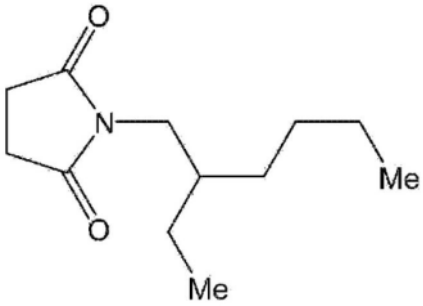
[0082] 

MPPI

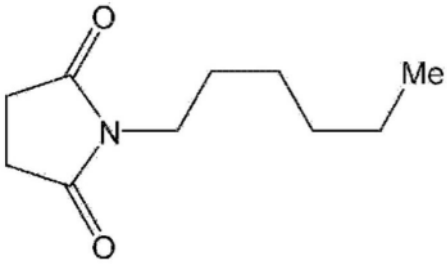
[0083] [化学式13]

[0084]  PESI

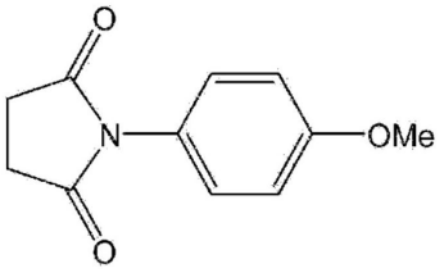
[0085] [化学式14]

[0086]  EHSI

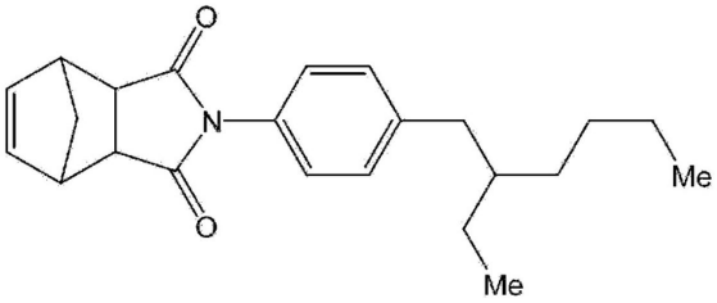
[0087] [化学式15]

[0088]  HSI

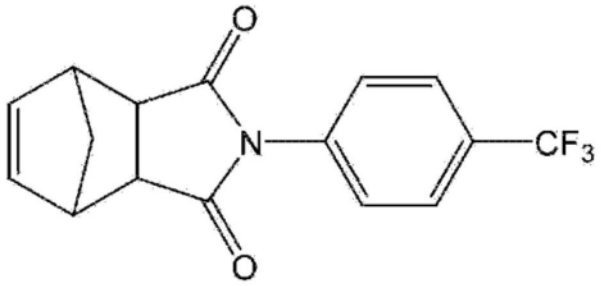
[0089] [化学式16]

[0090]  MPSI

[0091] [化学式17]

[0092]  EHPNI

[0093] [化学式18]

[0094]  TFMPNI

[0095] (C)成分即酰亚胺化合物的制造方法没有特别限制，但例如有通过以下而反应的方法。

[0096] (1)使酸酐与含氨基的化合物在150℃以下的低温、具体而言0～120℃、优选40～100℃下合成酰胺酸化合物，接着将温度提高至100～200℃而进行酰亚胺化反应的方法(热酰亚胺化)

[0097] (2)与上述(1)同样地合成酰胺酸化合物，接着使用醋酸酐等酰亚胺化剂在化学上进行酰亚胺化反应的方法(化学酰亚胺化)

[0098] (3)与上述(1)同样地合成酰胺酸化合物，接着在催化剂的存在下或不存在下、在共沸脱水用溶剂中进行加热回流而进行酰亚胺化反应的方法(共沸脱水闭环法)

[0099] 这些方法中优选(1)的方法。

[0100] 作为为了制造上述酰亚胺化合物而使用的酸酐，可列举出琥珀酸酐、邻苯二甲酸酐、3-溴邻苯二甲酸酐、3-甲基邻苯二甲酸酐、3-次氮基邻苯二甲酸酐、降冰片烯-2,3-二羧酸酐及甲基降冰片烯-2,3-二羧酸酐等，作为含氨基的化合物，例如可列举出甲基胺、乙基胺、丙基胺、异丙基胺、丁基胺、异丁基胺、戊基胺、己基胺、庚基胺、辛基胺、2-乙基己基胺、壬基胺、癸基胺、苄基胺、2-苯基乙基胺、苯胺、对甲氧基苯胺及对三氟甲基苯胺等。

[0101] 上述酰亚胺化反应优选在有机溶剂中进行。作为所使用的有机溶剂，没有特别限制，但例如可列举出戊烷、己烷、庚烷、环己烷等饱和烃类；苯、甲苯、二甲苯、乙基苯等芳香族烃类；二氯甲烷、氯仿、四氯化碳、二氯乙烷、氯苯、二氯苯等卤代烃类；二乙基醚、二异丙基醚、1,2-二甲氧基乙烷、双(2-甲氧基乙基)醚、1,2-双(2-甲氧基乙氧基)乙烷、双〔2-(2-甲氧基乙氧基)乙基〕醚、四氢呋喃、1,3-二噁烷、1,4-二噁烷、茴香醚等醚类；苯酚、邻氯苯酚、间氯苯酚、对氯苯酚、邻甲酚、间甲酚、对甲酚、2,3-二甲苯酚、2,4-二甲苯酚、2,5-二甲苯酚、2,6-二甲苯酚、3,4-二甲苯酚、3,5-二甲苯酚等酚类；N,N-二甲基甲酰胺、N,N-二甲基乙酰胺、N,N-二乙基乙酰胺、N,N-二甲基甲氧基乙酰胺、六甲基磷酰胺等酰胺类；N-甲基-2-吡咯烷酮、N-甲基己内酰胺等内酰胺类；二甲基亚砜、二苯基亚砜、二甲基砜、二苯基砜、环丁砜等含硫溶剂类、1,3-二甲基-2-咪唑烷酮等。这些有机溶剂可以单独使用，也可以将2种以上混合使用。

[0102] 有机溶剂的使用量没有特别限制，但相对于酸酐和含氨基的化合物的合计1质量份为1～10000质量份，优选为10～500质量份。上述酰亚胺化反应优选将原料溶解于有机溶剂中后在溶液中进行，但也可以以浆料状态进行。

[0103] 酰亚胺化反应也可以在有机碱催化剂或酸催化剂的存在下进行。

[0104] 作为上述有机碱催化剂，例如可列举出三乙基胺、三丁基胺、三戊基胺、N,N-二甲基苯胺、N,N-二乙基苯胺、吡啶、α-皮考啉、β-皮考啉、γ-皮考啉、2,4-二甲基吡啶、2,6-二甲基吡啶、喹啉及异喹啉等，但优选吡啶及γ-皮考啉。这些有机碱催化剂可以单独使用，也

可以将2种以上组合使用。

[0105] 作为上述酸催化剂，例如可列举出盐酸、氢溴酸、氢碘酸、硫酸、无水硫酸、硝酸、磷酸、亚磷酸、磷钨酸、磷钼酸等无机酸类；甲烷磺酸、乙烷磺酸、三氟甲烷磺酸、苯磺酸、对甲苯磺酸等磺酸类；醋酸、草酸等羧酸类；氯醋酸、二氯醋酸、三氯醋酸、氟醋酸、二氟醋酸、三氟醋酸等卤代羧酸类；二氧化硅、氧化铝、活性白土等固体酸类；阳离子型离子交换树脂等。特别是硫酸、磷酸及对甲苯磺酸是适宜的。这些酸催化剂可以单独使用，也可以将2种以上组合使用。此外这些酸催化剂也可以为与二胺化合物的盐。

[0106] 催化剂的使用量只要反应速度实质上提高则没有特别限制，但相对于酸酐及含氨基的化合物的合计1摩尔为0.001～10摩尔，优选为0.005～5摩尔，进一步优选为0.01～1摩尔。

[0107] 得到酰胺酸化合物的反应与酰亚胺化反应的合计的反应时间根据所使用的原料的种类、有机溶剂的种类、催化剂的种类、共沸脱水用溶剂的种类、量、及反应温度等而不同，但作为标准，为1～24小时，通常为数小时。在直接进行热酰亚胺化时，作为标准，将反应进行至馏出的水基本达到理论量为止。

[0108] 得到酰胺酸化合物的反应及酰亚胺化反应中的反应压力没有特别限制，但通常设定为大气压即可。反应气氛没有特别限制，但通常为空气、氮、氦、氖或氩气氛，优选作为不活泼气体的氮及氩气氛。

[0109] 由酸酐与含氨基的化合物的反应混合物来离析作为目标物的酰亚胺化合物的方法没有特别限定，但在目标物从反应溶剂析出的情况下，只要通过过滤或离心分离进行离析即可。另一方面，在目标物溶解于反应溶剂中的情况下，只要在减压下将溶剂蒸馏除去、或在反应混合物中添加适当的不良溶剂、或将反应混合物排出到不良溶剂中等而使其析出，通过过滤或离心分离进行离析即可。

[0110] 在需要将离析的酰亚胺化合物进一步纯化的情况下，只要采用作为常规方法而已知的方法进行纯化即可，作为该方法，可列举出蒸馏纯化法、再结晶法、柱色谱法、淤泥处理(sludge treatment)及活性炭处理等。

[0111] (C)成分即酰亚胺化合物的含量相对于(B)成分100摩尔，优选为1～2000摩尔，更优选为10～1000摩尔，进一步优选为20～800摩尔。酰亚胺化合物的含量低于1摩尔时，有时无法得到固化性树脂组合物的稳定性赋予效果，在超过2000摩尔的情况下有可能对固化性造成不良影响。

[0112] 在本发明的固化性树脂组合物中，可以含有磷系抗氧化剂、酚系抗氧化剂及硫系抗氧化剂等抗氧化剂。

[0113] 作为上述磷系抗氧化剂，例如可列举出亚磷酸三苯酯、亚磷酸三(2,4-二叔丁基苯基)酯、亚磷酸三(壬基苯基)酯、亚磷酸三(二壬基苯基)酯、亚磷酸三(单、二混合壬基苯基)酯、亚磷酸双(2-叔丁基-4,6-二甲基苯基)·乙酯、酸式亚磷酸二苯基酯、亚磷酸2,2'-亚甲基双(4,6-二叔丁基苯基)辛基酯、亚磷酸二苯基癸基酯、亚磷酸苯基二异癸基酯、亚磷酸三丁酯、亚磷酸三(2-乙基己基)酯、亚磷酸三癸基酯、亚磷酸三月桂酯、酸式亚磷酸二丁酯、酸式亚磷酸二月桂酯、三硫代亚磷酸三月桂酯、双(新戊二醇)·1,4-环己烷二甲基二亚磷酸酯、双(2,4-二叔丁基苯基)季戊四醇二亚磷酸酯、双(2,6-二叔丁基-4-甲基苯基)季戊四醇二亚磷酸酯、二硬脂基季戊四醇二亚磷酸酯、苯基-4,4'-异丙叉基二苯酚·季戊四醇二亚

磷酸酯、四(C12-15混合烷基)-4,4'-异丙叉基二苯基亚磷酸酯、双[2,2'-亚甲基双(4,6-二戊基苯基)]·异丙叉基二苯基亚磷酸酯、氢化-4,4'-异丙叉基二苯酚聚亚磷酸酯、双(辛基苯基)·双[4,4'-正丁叉基双(2-叔丁基-5-甲基苯酚)]·1,6-己二醇·二亚磷酸酯、四(十三烷基)·4,4'-丁叉基双(2-叔丁基-5-甲基苯酚)二亚磷酸酯、六(十三烷基)·1,1,3-三(2-甲基-5-叔丁基-4-羟基苯基)丁烷·三亚膦酸酯、9,10-二氢-9-氧杂-10-磷杂菲-10-氧化物及2-丁基-2-乙基丙二醇·2,4,6-三叔丁基苯酚单亚磷酸酯等。

[0114] 作为上述酚系抗氧化剂,例如可列举出2,6-二叔丁基-对甲酚、2,6-二苯基-4-十八烷氧基苯酚、硬脂基(3,5-二叔丁基-4-羟基苯基)丙酸酯、二硬脂基(3,5-二叔丁基-4-羟基苄基)膦酸酯、十三烷基·3,5-二叔丁基-4-羟基苄基硫代乙酸酯、硫代二亚乙基双[(3,5-二叔丁基-4-羟基苯基)丙酸酯]、4,4'-硫代双(6-叔丁基-间甲酚)、2-辛基硫基-4,6-二(3,5-二叔丁基-4-羟基苯氧基)-s-三嗪、2,2'-亚甲基双(4-甲基-6-叔丁基苯酚)、双[3,3-双(4-羟基-3-叔丁基苯基)丁酸]乙二醇酯、4,4'-丁叉基双(4,6-二叔丁基苯酚)、2,2'-乙叉基双(4,6-二叔丁基苯酚)、1,1,3-三(2-甲基-4-羟基-5-叔丁基苯基)丁烷、双[2-叔丁基-4-甲基-6-(2-羟基-3-叔丁基-5-甲基苄基)苯基]对苯二甲酸酯、1,3,5-三(2,6-二甲基-3-羟基-4-叔丁基苄基)异氰脲酸酯、1,3,5-三(3,5-二叔丁基-4-羟基苄基)异氰脲酸酯、1,3,5-三(3,5-二叔丁基-4-羟基苄基)-2,4,6-三甲基苯、1,3,5-三[(3,5-二叔丁基-4-羟基苯基)丙酰氧基乙基]异氰脲酸酯、四[亚甲基-3-(3,5-二叔丁基-4-羟基苯基)丙酸酯]甲烷、2-叔丁基-4-甲基-6-(2-丙烯酰氧基-3-叔丁基-5-甲基苄基)苯酚、3,9-双[2-(3-叔丁基-4-羟基-5-甲基氢化肉桂酰氧基)-1,1-二甲基乙基]-2,4,8,10-四氧杂螺[5.5]十一烷]及三乙二醇双[β-(3-叔丁基-4-羟基-5-甲基苯基)丙酸酯]等。

[0115] 作为上述硫系抗氧化剂,例如可列举出硫代二丙酸的二月桂酯、二肉豆蔻酯、肉豆蔻基硬脂酯、二硬脂酯等二烷基硫代二丙酸酯类、及季戊四醇四(β-十二烷基巯基丙酸酯)等多元醇的β-烷基巯基丙酸酯类等。

[0116] 在本发明的固化性树脂组合物中,可以含有紫外线吸收剂及受阻胺系光稳定剂等光稳定剂。

[0117] 作为上述紫外线吸收剂,例如可列举出2,4-二羟基二苯甲酮、2-羟基-4-甲氧基二苯甲酮、2-羟基-4-辛氧基二苯甲酮、2-羟基-4-叔丁基-4'-(2-甲基丙烯酰氧基乙氧基乙氧基)二苯甲酮及5,5'-亚甲基双(2-羟基-4-甲氧基二苯甲酮)等2-羟基二苯甲酮类;2-(2-羟基-5-甲基苯基)苯并三唑、2-(2-羟基-5-叔辛基苯基)苯并三唑、2-(2-羟基-3,5-二叔丁基苯基)-5-氯苯并三唑、2-(2-羟基-3-叔丁基-5-甲基苯基)-5-氯苯并三唑、2-(2-羟基-3-十二烷基-5-甲基苯基)苯并三唑、2-(2-羟基-3-叔丁基-5-C7～9混合烷氧基羰基乙基苯基)三唑、2-(2-羟基-3,5-二枯基苯基)苯并三唑、2,2'-亚甲基双(4-叔辛基-6-苯并三唑基苯酚)及2-(2-羟基-3-叔丁基-5-羧基苯基)苯并三唑的聚乙二醇酯等2-(2-羟基苯基)苯并三唑类;2-(2-羟基-4-己氧基苯基)-4,6-二苯基-1,3,5-三嗪、2-(2-羟基-4-甲氧基苯基)-4,6-二苯基-1,3,5-三嗪及2-(2-羟基-4-辛氧基苯基)-4,6-双(2,4-二甲基苯基)-1,3,5-三嗪等2-(2-羟基苯基)-1,3,5-三嗪类;水杨酸苯酯、间苯二酚单苯甲酸酯、2,4-二叔丁基苯基-3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲酸酯、2,4-二叔戊基苯基-3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲酸酯及十六烷基-3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲酸酯等苯甲酸酯类;2-乙基-2'-乙氧基草酰苯胺及2-乙氧基-4'-十二烷基草酰苯胺等取代草酰苯胺类;乙基-α-氰基-β,β-二苯基丙烯酸酯及甲

基-2-氰基-3-甲基-3-(对甲氧基苯基)丙烯酸酯等氰基丙烯酸酯类等。

[0118] 作为上述受阻胺系光稳定剂,例如可列举出2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基硬脂酸酯、1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基硬脂酸酯、2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基苯甲酸酯、双(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)癸二酸酯、双(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)癸二酸酯、四(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-1,2,3,4-丁烷四羧酸酯、四(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)-1,2,3,4-丁烷四羧酸酯、双(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)·双(十三烷基)-1,2,3,4-丁烷四羧酸酯、双(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)·双(十三烷基)-1,2,3,4-丁烷四羧酸酯、双(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)-2-丁基-2-(3,5-二叔丁基-4-羟基苄基)丙二酸酯、1-(2-羟基乙基)-2,2,6,6-四甲基-4-哌啶醇/琥珀酸二乙酯缩聚物、1,6-双(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基氨基)己烷/二溴乙烷缩聚物、1,6-双(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基氨基)己烷/2,4-二氯-6-吗啉代-s-三嗪缩聚物、1,6-双(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基氨基)己烷/2,4-二氯-6-叔辛基氨基-s-三嗪缩聚物、1,5,8,12-四[2,4-双(N-丁基-N-(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)氨基)-s-三嗪-6-基]-1,5,8,12-四氮杂十二烷、1,5,8,12-四[2,4-双(N-丁基-N-(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)氨基)-s-三嗪-6-基]-1,5,8,12-四氮杂十二烷、1,6,11-三[2,4-双(N-丁基-N-(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)氨基-s-三嗪-6-基氨基]十一烷及1,6,11-三[2,4-双(N-丁基-N-(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)氨基-s-三嗪-6-基氨基)]十一烷等。

[0119] 在本发明的固化性树脂组合物中,可以含有硅烷偶联剂。

[0120] 作为上述硅烷偶联剂,例如可列举出γ-氨基丙基三乙氧基硅烷、N-β-(氨基乙基)-γ-氨基丙基三乙氧基硅烷、N-β-(氨基乙基)-N'-β-(氨基乙基)-γ-氨基丙基三乙氧基硅烷、γ-苯胺基丙基三乙氧基硅烷、γ-环氧丙氧基丙基三乙氧基硅烷、β-(3,4-环氧环己基)乙基三乙氧基硅烷、乙烯基三乙氧基硅烷、N-β-(N-乙烯基苄基氨基乙基)-γ-氨基丙基三乙氧基硅烷、γ-甲基丙烯酰氧基丙基三甲氧基硅烷、γ-氯丙基三甲氧基硅烷及γ-巯基丙基三甲氧基硅烷等。

[0121] 在本发明的固化性树脂组合物中,可以含有填充剂。

[0122] 作为上述填充剂,例如可列举出熔融二氧化硅及结晶二氧化硅等二氧化硅;氢氧化镁、氢氧化铝、钼酸锌、碳酸钙、碳酸硅、硅酸钙、钛酸钾、氧化铍、二氧化锆、锆石、镁橄榄石、块滑石、尖晶石、莫来石及二氧化钛等粉体、以及将它们球形化而得到的珠;玻璃纤维、纸浆纤维、合成纤维及陶瓷纤维等纤维等。

[0123] 在本发明的固化性树脂组合物中,可以含有各种溶剂、优选有机溶剂。

[0124] 作为上述有机溶剂,例如可列举出四氢呋喃、1,2-二甲氧基乙烷及1,2-二乙氧基乙烷等醚类;异丁醇、正丁醇、异丙醇、正丙醇、戊基醇、苄基醇、糠醇及四氢糠醇等醇类;甲乙酮、甲基异丙基酮及甲基丁基酮等酮类;苯、甲苯及二甲苯等芳香族烃;三乙基胺、吡啶、二噁烷及乙腈等。

[0125] 在本发明的固化性树脂组合物中,可以根据需要含有其他的各种添加剂。

[0126] 作为上述添加剂,可列举出联苯酚等苯酚化合物;单烷基缩水甘油醚等反应性稀释剂;邻苯二甲酸二辛酯、邻苯二甲酸二丁酯、苄基醇及煤焦油等非反应性的稀释剂(增塑剂);玻璃布、芳纶布、碳纤维等增强材料;颜料;小烛树蜡、巴西棕榈蜡、木蜡、白蜡、蜂蜡、羊毛脂、鲸蜡、褐煤蜡、石油蜡、脂肪族蜡、脂肪族酯、脂肪族醚、芳香族酯及芳香族醚等润滑剂;增稠剂;触变剂;消泡剂;防锈剂;胶体二氧化硅及胶体氧化铝等常用的添加剂。本发明

中，也可以进一步并用氰酸酯树脂、二甲苯树脂及石油树脂等粘合性的树脂类。

[0127] 本发明的固化性树脂组合物由于可以调整固化性、贮藏稳定性的平衡，因此可以作为单液固化型的固化性树脂组合物来使用。作为本发明的固化性树脂组合物的用途，没有特别限制，但例如可列举出电子部件粘接剂、电子部件密封材料、铸塑材料、涂料及结构粘接剂等。

[0128] 实施例

[0129] 接着，对本发明通过实施例及比较例进一步进行详细说明，但本发明不受这些实施例的任何限定。

[0130] 〔实施例1～17〕

[0131] 将作为(A)成分的环氧树脂的双酚A型环氧树脂(BISAEP)、作为(B)成分的固化剂的2-乙基-4-甲基咪唑(2E4MZ)、及作为(C)成分的作为上述式(1-1)、(1-2)及(1-3)所表示的酰亚胺化合物的具体例子所例示的酰亚胺化合物按照成为表1中所示的摩尔比的方式使用来制造固化性树脂组合物。在酰亚胺化合物为高熔点的情况下，将BISAEP和符合的酰亚胺化合物以记载的配合量进行混合，加热至成为完全均匀的液状的温度为止，冷却至室温后配合规定量的2E4MZ，由此制造固化性树脂组合物。使用所得到的固化性树脂组合物来实施固化性及贮藏稳定性的评价。将结果示于表1中。

[0132] 〔比较例1〕

[0133] 除了未配合酰亚胺化合物以外，与实施例1～17同样地操作来制造固化性树脂组合物，实施固化性及贮藏稳定性的评价。将结果示于表1中。

[0134] 〔苯基马来酰亚胺低聚物(PMI)的制造〕

[0135] 向2口烧瓶中加入苯基马来酰亚胺522.1g、AIBN(偶氮双异丁腈)14.8g，进行N_2置换后，添加DMF3ml进行5次脱气。之后在60℃下加热24小时而进行反应。反应结束后，添加甲醇，将沉淀物过滤而进行减压干燥(60℃、6h)，由此得到作为目标物的PMI(收量:0.2865g、收率:55％)。

[0136] GPC(溶剂DMF(10mM LiBr))：$Mn=3.5\times10^3$、$Mw=5.6\times10^3$、$Mw/Mn=1.58$

[0137] 〔比较例2〕

[0138] 除了配合PMI来代替酰亚胺化合物以外，与实施例1～17同样地操作来制造固化性树脂组合物，实施固化性及贮藏稳定性的评价。将结果示于表1中。

[0139] 〈固化性〉

[0140] 将固化性树脂组合物放入玻璃瓶中，在150℃、加热固化1小时，将确认没有粘性、完全为固体状的组合物设定为○，将不是这样的组合物设定为×。

[0141] 〈贮藏稳定性〉

[0142] 将固化性树脂组合物以从下起成为五分之一的量加入到直径13mm、长度40mm的玻璃瓶中并盖上盖子。使其在平台上倾斜90°，观察1分钟后的状态，确认是否具有流动性。固化性树脂组合物的形状见到变化的情况设定为具有流动性，没有变化的情况设定为无流动性。每放置1天进行评价，在流动性消失的时刻结束评价。将能够维持流动性的天数示于表1中。在能够维持3天以上流动性的情况下，判断贮藏稳定性为合格(○)，不满足其的情况判断为贮藏稳定性不合格(×)。

[0143]

表 1

			实施例																比较例	
			1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	1	2
配合	(A)	BISAEP	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	(B)	2E4MZ	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10
	(C)	EHPI	10														5	20	30		
		EHBPI		10																	
		EHMPI			10																
		EHNPI				10															
		EHPI-BEST					10														
		MPI						10													
		PPI							10												
		HPI								10											
		MPPI									10										
		PESI										10									
		EHSI											10								
		HSI												10							
		MPSI													10						
		EHPNI														10					
		PMI																			10
评价结果	固化性		○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
	贮藏稳定性（天）		5	5	4	4	6	5	5	5	5	3	3	3	5	4	4	6	7	2	2
	是否合格判定		○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	×	×

[0144] 如表1中所示的那样，显然含有特定的酰亚胺化合物的本申请发明的固化性树脂组合物的固化性及贮藏稳定性优异。

[0145] 产业上的可利用性

[0146] 根据本发明，特别是由于固化性、贮藏稳定性优异，因此能够提供单液固化性树脂组合物，例如可以适宜用于电子部件粘接剂、电子部件密封材料、铸塑材料、涂料、结构粘接剂等。