(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3月2日(02.03.2023)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2023/027013 A1

(51) 国際特許分類:
C08F 220/36 (2006.01) *C08F 2/44* (2006.01)
B32B 27/38 (2006.01) *C08F 216/12* (2006.01)
B32B 27/42 (2006.01) *H05K 1/03* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2022/031539

(22) 国際出願日： 2022年8月22日(22.08.2022)

(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 2021-135951 2021年8月23日(23.08.2021) JP

(71) 出願人: 味の素株式会社 (**AJINOMOTO CO., INC.**) [JP/JP]; 〒1048315 東京都中央区京橋一丁目１５番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 藤島 祥平 (**FUJISHIMA, Shohei**); 〒2108681 神奈川県川崎市川崎区鈴木町１－１ 味の素株式会社内 Kanagawa (JP). 池平 秀 (**IKEHIRA, Shu**); 〒2108681 神奈川県川崎市川崎区鈴木町１－１ 味の素株式会社内 Kanagawa (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人酒井国際特許事務所 (**SAKAI INTERNATIONAL PATENT OFFICE**); 〒1000013 東京都千代田区霞が関３丁目８番１号 虎の門三井ビルディング 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, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, 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, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, 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, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：
— 国際調査報告（条約第21条(3)）

WO 2023/027013 A1

(54) **Title:** RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称： 樹脂組成物

(57) **Abstract:** The present invention addresses the problem of providing a resin composition capable of giving cured objects excellent in terms of mechanical strength and plating-film adhesion thereto. This resin composition includes (A) a compound containing a radical-polymerizable group having a carbodiimide structure, and further includes (B) a compound containing a radical-polymerizable group having no carbodiimide structure and/or (C) a heat-curable resin.

(57) 要約：本発明の課題は、優れた機械強度及びめっき密着性を有する硬化物を得ることができる樹脂組成物の提供。本発明は、（Ａ）カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物を含む樹脂組成物であって、（Ｂ）カルボジイミド構造を有さないラジカル重合性基含有化合物、及び（Ｃ）熱硬化性樹脂のうち少なくとも一方をさらに含む樹脂組成物。

明　細　書

発明の名称 ： 樹脂組成物

技術分野

[0001]　本発明は、カルボジイミド化合物を含む樹脂組成物に関する。さらには、当該樹脂組成物を用いて得られる樹脂シート、プリント配線板、及び半導体装置に関する。

背景技術

[0002]　プリント配線板の製造技術として、絶縁層と導体層を交互に積み重ねるビルドアップ方式による製造方法が知られている。ビルドアップ方式による製造方法において、一般に、絶縁層は樹脂組成物を硬化させて形成される。例えば、特許文献１には、カルボジイミド化合物を含む樹脂組成物を硬化させて絶縁層を形成する技術が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開２００６－３３５８３４号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004]　近年、電子部品の機能向上による微細配線化に伴って、絶縁層の機械強度及びめっき密着性のさらなる向上が求められている。

[0005]　本発明の課題は、優れた機械強度及びめっき密着性を有する硬化物を得ることができる樹脂組成物を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0006]　本発明の課題を達成すべく、本発明者らは鋭意検討した結果、（Ａ）カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物を含み、さらに（Ｂ）カルボジイミド構造を有さないラジカル重合性基含有化合物、及び（Ｃ）熱硬化性樹脂のうち少なくとも一方を含む樹脂組成物を用いることにより、意外にも、めっき密着性及び機械強度に優れた硬化物を得ることができること

を見出し、本発明を完成させるに至った。

[0007] すなわち、本発明は以下の内容を含む。

［１］ （Ａ）カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物を含む樹脂組成物であって、

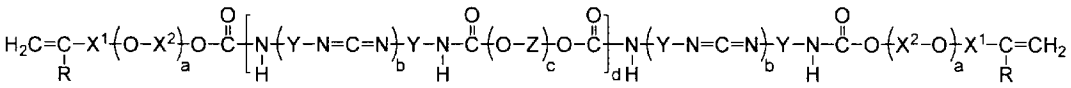
（Ｂ）カルボジイミド構造を有さないラジカル重合性基含有化合物、及び

（Ｃ）熱硬化性樹脂

のうち少なくとも一方をさらに含む樹脂組成物。

［２］ （Ａ）成分が、式（１）：

[0008] [化1]



(1)

[0009] ［式中、

Ｒは、それぞれ独立して、水素原子、又はメチル基を示し；

Ｘ^{1}は、それぞれ独立して、カルボニル基、メチレン基、フェニレン基、又はフェニレン－メチレン基を示し；

Ｘ^{2}は、それぞれ独立して、炭素数２～４の２価の飽和炭化水素基を示し；

Ｙは、それぞれ独立して、置換基を有していてもよい炭素数２～３０の２価の飽和炭化水素基、又は置換基を有していてもよい炭素数２～３０の２価の不飽和炭化水素基を示し；

Ｚは、それぞれ独立して、置換基を有していてもよい炭素数２～３００の２価の飽和炭化水素基、又は置換基を有していてもよい炭素数２～３００の２価の不飽和炭化水素基を示し；

ａは、それぞれ独立して、０、又は１以上の整数を示し；

ｂは、それぞれ独立して、１以上の整数を示し；

ｃは、それぞれ独立して、１以上の整数を示し；

ｄは、０、又は１以上の整数を示す。］

で表されるラジカル重合性基含有化合物を含む、上記［１］に記載の樹脂組

成物。

［３］　（Ａ）成分の含有量が、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、０．０５質量％～１０質量％である、上記［１］又は［２］に記載の樹脂組成物。

［４］　（Ｃ）成分が、エポキシ樹脂を含む、上記［１］～［３］の何れかに記載の樹脂組成物。

［５］　（Ｃ）成分が、活性エステル系硬化剤をさらに含む、上記［４］に記載の樹脂組成物。

［６］　（Ｃ）成分が、フェノール系硬化剤をさらに含む、上記［４］又は［５］に記載の樹脂組成物。

［７］　（Ｄ）無機充填材をさらに含む、上記［１］～［６］の何れかに記載の樹脂組成物。

［８］　（Ｄ）成分が、シリカである、上記［７］に記載の樹脂組成物。

［９］　（Ｄ）成分の含有量が、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、４０質量％以上である、上記［７］又は［８］に記載の樹脂組成物。

［１０］　フェノキシ樹脂をさらに含む、上記［１］～［９］の何れかに記載の樹脂組成物。

［１１］　樹脂組成物の硬化物の誘電正接（Ｄｆ）が、５．８ＧＨｚ、２３℃で測定した場合、０．００６以下である、上記［１］～［１０］の何れかに記載の樹脂組成物。

［１２］　樹脂組成物の硬化物の破断点伸度が、２３℃で測定した場合、１．２％以上である、上記［１］～［１１］の何れかに記載の樹脂組成物。

［１３］　導体層を形成するための絶縁層形成用である、上記［１］～［１２］の何れかに記載の樹脂組成物。

［１４］　プリント配線板の絶縁層形成用である、上記［１］～［１２］の何れかに記載の樹脂組成物。

［１５］　上記［１］～［１４］の何れかに記載の樹脂組成物の硬化物。

［１６］　上記［１］～［１４］の何れかに記載の樹脂組成物を含有する、シート状積層材料。

［１７］　支持体と、当該支持体上に設けられた上記［１］～［１４］の何れかに記載の樹脂組成物から形成される樹脂組成物層と、を有する樹脂シート。

［１８］　上記［１］～［１４］の何れかに記載の樹脂組成物の硬化物からなる絶縁層を備えるプリント配線板。

［１９］　上記［１８］に記載のプリント配線板を含む、半導体装置。

発明の効果

[0010]　本発明の樹脂組成物によれば、優れた機械強度及びめっき密着性を有する硬化物を得ることができる。

発明を実施するための形態

[0011]　以下、本発明をその好適な実施形態に即して詳細に説明する。ただし、本発明は、下記実施形態及び例示物に限定されるものではなく、本発明の請求の範囲及びその均等の範囲を逸脱しない範囲において任意に変更して実施され得る。

[0012] ＜樹脂組成物＞

本発明の樹脂組成物は、（Ａ）カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物を含み、さらに（Ｂ）カルボジイミド構造を有さないラジカル重合性基含有化合物、及び（Ｃ）熱硬化性樹脂のうち少なくとも一方を含む。このような樹脂組成物によれば、優れた機械強度及びめっき密着性を有する硬化物を得ることができる。

[0013]　本発明の樹脂組成物は、（Ａ）カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物、（Ｂ）カルボジイミド構造を有さないラジカル重合性基含有化合物、及び（Ｃ）熱硬化性樹脂の他に、さらに任意の成分を含んでいてもよい。任意の成分としては、例えば、（Ａ’）その他のカルボジイミド化合物、（Ｄ）無機充填材、（Ｅ）熱可塑性樹脂、（Ｆ）応力緩和材、（Ｇ）ラジカル重合開始剤、（Ｈ）硬化促進剤、（Ｉ）その他の添加剤、及び（Ｊ

）有機溶剤が挙げられる。

[0014] 以下、樹脂組成物に含まれる各成分について詳細に説明する。

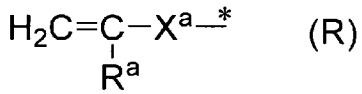
[0015] ＜（Ａ）カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物＞

本発明の樹脂組成物は、（Ａ）カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物を含有する。（Ａ）カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物とは、１分子中に、１個以上（好ましくは２個以上）のカルボジイミド構造（－Ｎ＝Ｃ＝Ｎ－）を有し、且つ１個以上（好ましくは２個以上）のラジカル重合性基を含有する化合物である。（Ａ）成分は、さらに、１分子中に、１個以上（好ましくは２個以上）のウレタン結合（－Ｏ－ＣＯ－ＮＨ－）を有する化合物を含むことが好ましい。（Ａ）成分は、下記で説明する（Ｃ）熱硬化樹脂として（Ｃ１）エポキシ樹脂が含まれる場合に、（Ｃ１）エポキシ樹脂と反応して硬化させる機能を有する場合がある。（Ａ）成分は、１種類単独で用いてもよく、２種類以上を組み合わせて用いてもよい。

[0016] ラジカル重合性基とは、ラジカル重合性のエチレン性不飽和結合を有する基であり、例としては、特に限定されるものではないが、

（１）式（Ｒ）：

[0017] [化2]



(R)

[0018] ［式中、R^aは、それぞれ独立して、水素原子、又はメチル基を示し；X^aは、それぞれ独立して、カルボニル基、メチレン基、又はフェニレン基を示し；＊は、結合部位を示す。］

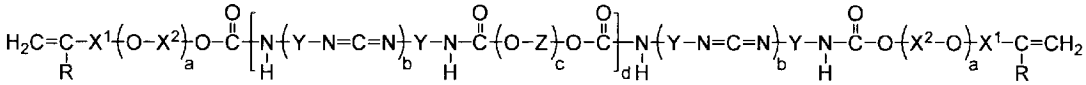
で表される基、

（２）マレイミド基（２，５－ジヒドロ－２，５－ジオキソ－１Ｈ－ピロール－１－イル基）等が挙げられる。

[0019] フェニレン基は、１，２－フェニレン基、１，３－フェニレン基、及び１，４－フェニレン基を含む。

[0020] （Ａ）成分は、一実施形態において、好ましくは、式（１）：

[0021] [化3]



(1)

[0022] ［式中、

Ｒは、それぞれ独立して、水素原子、又はメチル基を示し；

Ｘ[1]は、それぞれ独立して、カルボニル基、メチレン基、フェニレン基、又はフェニレン－メチレン基を示し；

Ｘ[2]は、それぞれ独立して、炭素数２～４の２価の飽和炭化水素基を示し；

Ｙは、それぞれ独立して、置換基を有していてもよい炭素数２～３０の２価の飽和炭化水素基、又は置換基を有していてもよい炭素数２～３０の２価の不飽和炭化水素基を示し；

Ｚは、それぞれ独立して、置換基を有していてもよい炭素数２～３００の２価の飽和炭化水素基、又は置換基を有していてもよい炭素数２～３００の２価の不飽和炭化水素基を示し；

ａは、それぞれ独立して、０、又は１以上の整数を示し；

ｂは、それぞれ独立して、１以上の整数を示し；

ｃは、それぞれ独立して、１以上の整数を示し；

ｄは、０、又は１以上の整数を示す。］

で表されるラジカル重合性基含有化合物を含む。ａ単位、ｂ単位、ｃ単位及びｄ単位は、それぞれ、単位毎に同一であってもよいし、異なっていてもよい。

[0023] Ｒは、それぞれ独立して、水素原子、又はメチル基を示す。

[0024] Ｘ[1]は、それぞれ独立して、カルボニル基、メチレン基、フェニレン基、又はフェニレン－メチレン基（結合方向は特に限定されないが、フェニレン側が「Ｒ－Ｃ」におけるＣと結合していることが好ましい）を示し、一実施形態において、好ましくは、メチレン基、又はカルボニル基である。フェニレ

ン－メチレン基は、１，２－フェニレン－メチレン基、１，３－フェニレン－メチレン基、及び１，４－フェニレン－メチレン基を含む。

[0025] X^2は、それぞれ独立して、炭素数２～４の２価の飽和炭化水素基を示す。２価の飽和炭化水素基は、直鎖、分枝鎖及び／又は環状の２価の飽和炭化水素基を意味する。炭素数２～４の２価の飽和炭化水素基の具体例としては、例えば、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基等の炭素数２～４の直鎖アルキレン基；エチリデン基、プロピリデン基、イソプロピリデン基、エチルメチルメチレン基等の炭素数２～４の分枝鎖アルキレン基等が挙げられる。X^2は、一実施形態において、それぞれ独立して、好ましくは、炭素数２又は３の２価の飽和炭化水素基であり、より好ましくは、エチレン基（－CH_2－CH_2－）を示す。

[0026] Ｙは、それぞれ独立して、置換基を有していてもよい炭素数２～３０の２価の飽和炭化水素基、又は置換基を有していてもよい炭素数２～３０の２価の不飽和炭化水素基を示す。２価の不飽和炭化水素基とは、少なくとも１つの炭素－炭素二重結合又は芳香族炭化水素環を有する直鎖、分枝鎖及び／又は環状の２価の不飽和炭化水素基を意味する。

[0027] ２価の飽和炭化水素基及び２価の不飽和炭化水素基における「置換基」としては、特に限定されるものではないが、例えば、ハロゲン原子、アルキル－オキシ基、アルケニル－オキシ基、アリール－オキシ基、アルキル－オキシ－カルボニル基、アルケニル－オキシ－カルボニル基、アリール－オキシ－カルボニル基、アルキル－カルボニル－オキシ基、アルケニル－カルボニル－オキシ基、アリール－カルボニル－オキシ基等が挙げられる。

[0028] アルキル（基）とは、直鎖、分枝鎖及び／又は環状の１価の脂肪族飽和炭化水素基を意味する。アルキル（基）は、特に指定がない限り、炭素数１～１４のアルキル（基）が好ましく、炭素数１～１０のアルキル（基）がより好ましく、炭素数１～６のアルキル（基）がさらに好ましい。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、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、ペンチ

ル基、イソペンチル基、ｓｅｃ－ペンチル基、ネオペンチル基、ｔｅｒｔ－ペンチル基、ヘキシル基、イソヘキシル基、ヘプチル基、イソヘプチル基、オクチル基、イソオクチル基、ｔｅｒｔ－オクチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

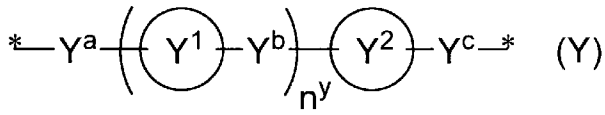
[0029] アルケニル（基）とは、少なくとも１つの炭素－炭素二重結合を有する直鎖、分枝鎖及び／又は環状の１価の脂肪族不飽和炭化水素基を意味する。アルケニル（基）は、特に指定がない限り、炭素数２～１４のアルケニル基が好ましく、炭素数２～１０のアルケニル基がより好ましく、炭素数２～６のアルケニル基がさらに好ましい。アルケニル（基）としては、例えば、ビニル基、プロペニル基（アリル基、１－プロペニル基、イソプロペニル基）、ブテニル基（１－ブテニル基、クロチル基、メタリル基、イソクロチル基等）、ペンテニル基（１－ペンテニル基等）、ヘキセニル基（１－ヘキセニル基等）、ヘプテニル基（１－ヘプテニル基等）、オクテニル基（１－オクテニル基等）、シクロペンテニル基（２－シクロペンテニル基等）、シクロヘキセニル基（３－シクロヘキセニル基等）等が挙げられる。

[0030] アリール（基）とは、芳香族炭素環の１個の水素原子を除いてなる１価の芳香族炭化水素基を意味する。アリール（基）は、特に指定がない限り、炭素数６～１４のアリール（基）が好ましく、炭素数６～１０のアリール（基）がより好ましい。アリール（基）としては、例えば、フェニル基、１－ナフチル基、２－ナフチル基等が挙げられる。ハロゲン原子とは、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、又はヨウ素原子である。

[0031] Ｙは、一実施形態において、それぞれ独立して、好ましくは、置換基を有していてもよく且つ環構造（例えばシクロアルカン環、ベンゼン環、及びナフタレン環から選ばれる環構造）を有する炭素数２～３０の２価の飽和炭化水素基、又は置換基を有していてもよく且つ環構造（例えばシクロアルカン環、ベンゼン環、及びナフタレン環から選ばれる環構造）を有する炭素数２～３０の２価の不飽和炭化水素基であり、より好ましくは、式（Ｙ）：

[0032]

[化4]



[0033] ［式中、

Ｙ^{a}、Ｙ^{b}及びＹ^{c}は、それぞれ独立して、単結合、又はＣ（Ｒ^{y}）$_{2}$を示し；

Ｒ^{y}は、それぞれ独立して、水素原子、又はメチル基を示し；

環Ｙ^{1}及び環Ｙ^{2}は、それぞれ独立して、置換基を有していてもよい炭素数４～１０のシクロアルカン環、置換基を有していてもよいベンゼン環、又は置換基を有していてもよいナフタレン環を示し；

ｎ^{y}は、０又は１を示し；

＊は、結合部位を示す。］

で表される２価の基である。

[0034] 炭素数４～１０のシクロアルカン環としては、例えば、シクロブタン環、シクロペンタン環、シクロヘキサン環、シクロヘプタン環、シクロオクタン環、シクロノナン環、シクロデカン環等の単環系の飽和炭化水素環；ビシクロ［２．２．１］ヘプタン環（ノルボルナン環）、ビシクロ［４．４．０］デカン環（デカリン環）、ビシクロ［５．３．０］デカン環、ビシクロ［４．３．０］ノナン環（ヒドリンダン環）、ビシクロ［３．３．０］オクタン環、ビシクロ［３．３．１］ノナン環等の二環系の飽和炭化水素環；トリシクロ［５．２．１．０^{2,6}］デカン環（テトラヒドロジシクロペンタジエン環）、トリシクロ［３．３．１．１^{3,7}］デカン環（アダマンタン環）等の三環系の飽和炭化水素環等が挙げられる。

[0035] シクロアルカン環、ベンゼン環及びナフタレン環における「置換基」としては、特に限定されるものではないが、例えば、ハロゲン原子、アルキル基、アルケニル基、アリール基、アリール－アルキル基（アリール基で置換されたアルキル基）、アルキル－アリール基（アルキル基で置換されたアリール基）、アルキル－オキシ基、アルケニル－オキシ基、アリール－オキシ基、アルキル－オキシ－カルボニル基、アルケニル－オキシ－カルボニル基、

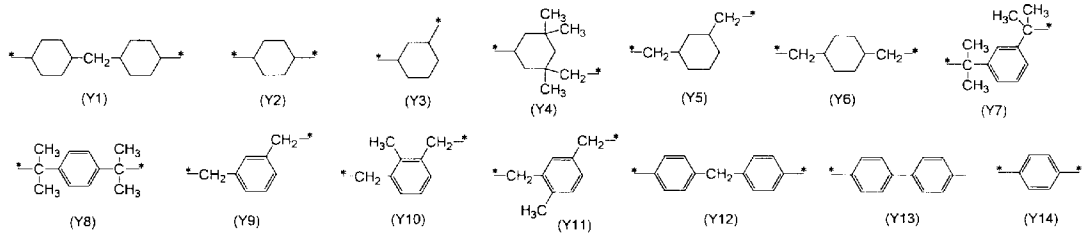
アリール－オキシ－カルボニル基、アルキル－カルボニル－オキシ基、アルケニル－カルボニル－オキシ基、アリール－カルボニル－オキシ基等が挙げられる。

[0036] Y^a、Y^b及びY^cは、それぞれ独立して、単結合、又は$C(R^y)_2$を示し、一実施形態において、好ましくは、Y^a及びY^cが単結合であり且つY^bが$C(R^y)_2$である。R^yは、それぞれ独立して、水素原子、又はメチル基を示し、一実施形態において、好ましくは、水素原子である。

[0037] 環Y^1及び環Y^2は、それぞれ独立して、置換基を有していてもよい炭素数４～１０のシクロアルカン環、置換基を有していてもよいベンゼン環、又は置換基を有していてもよいナフタレン環を示し、一実施形態において、好ましくは、置換基を有していてもよい炭素数４～１０のシクロアルカン環であり、より好ましくは、置換基を有していてもよいシクロヘキサン環であり、特に好ましくは、（無置換の）シクロヘキサン環である。

[0038] Ｙの具体例としては、特に限定されるものではないが、式（Ｙ１）～（Ｙ１４）：

[0039] [化5]

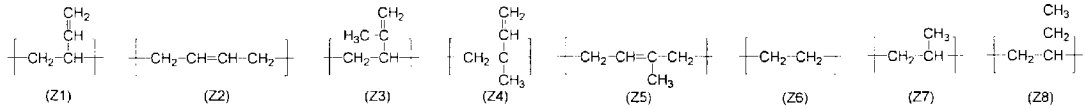


[0040] ［式中、＊は、結合部位を示す。］

で表される２価の基が挙げられ、中でも、式（Ｙ１）で表される２価の基が特に好ましい。

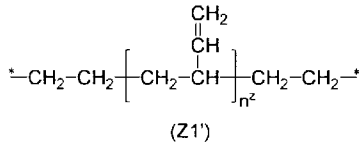
[0041] Ｚは、それぞれ独立して、置換基を有していてもよい炭素数２～３００の２価の飽和炭化水素基、又は置換基を有していてもよい炭素数２～３００の２価の不飽和炭化水素基を示し、一実施形態において、好ましくは、炭素数２～３００の２価の飽和炭化水素基、又は炭素数２～３００の２価の不飽和炭化水素基であり、より好ましくは、式（Ｚ１）～（Ｚ８）：

[0042] [化6]



[0043] から選ばれる構造単位（好ましくは、繰り返し構造単位）を有する炭素数３００以下の２価の炭化水素基（とりわけ好ましくは、式（Ｚ１）～（Ｚ８）から選ばれる構造単位（好ましくは、繰り返し構造単位）からなる炭素数３００以下の２価の炭化水素基）であり、さらに好ましくは、式（Ｚ１）で表される構造単位（好ましくは、繰り返し構造単位）を有する炭素数３００以下の２価の炭化水素基（とりわけ好ましくは、式（Ｚ１）～（Ｚ８）から選ばれる構造単位（好ましくは、繰り返し構造単位）からなり、少なくとも式（Ｚ１）で表される構造単位（好ましくは、繰り返し構造単位）を有する炭素数３００以下の２価の炭化水素基）であり、式（Ｚ１’）：

[0044] [化7]



[0045] ［式中、ｎ^{z}は、１以上の整数を示し；＊は、結合部位を示す。］で表される炭素数３００以下の２価の炭化水素基である。

[0046] ａは、それぞれ独立して、０、又は１以上の整数を示し、一実施形態において、好ましくは、０、又は１～１０の整数であり、より好ましくは、０、又は１である。ｂは、それぞれ独立して、１以上の整数を示し、一実施形態において、好ましくは、１～１００の整数であり、より好ましくは、１～１０の整数である。ｃは、それぞれ独立して、１以上の整数を示し、一実施形態において、好ましくは、１～１００の整数であり、より好ましくは、１～１０の整数であり、さらに好ましくは、１である。ｄは、それぞれ独立して、０、又は１以上の整数を示し、一実施形態において、好ましくは、０、又は１～１００の整数であり、より好ましくは、０、又は１～１０の整数である。

[0047] （Ａ）成分の重量平均分子量は、特に限定されるものではないが、好ましくは５００～１０，０００、より好ましくは１，０００～８，０００、さらに好ましくは２，０００～７，０００、特に好ましくは３，０００～６，０００である。

[0048] （Ａ）成分は、市販品を使用してもよいし、公知の方法を用いて合成してもよい。

[0049] 樹脂組成物中の（Ａ）成分の含有量は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、好ましくは２０質量％以下、より好ましくは１５質量％以下、さらに好ましくは１０質量％以下、さらにより好ましくは７質量％以下、特に好ましくは５質量％以下である。樹脂組成物中の（Ａ）成分の含有量の下限は、特に限定されるものではないが、本発明の所望の効果をより顕著に得る観点から、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、好ましくは０．００１質量％以上、より好ましくは０．０１質量％以上、さらに好ましくは０．０５質量％以上、さらにより好ましくは０．１質量％以上、特に好ましくは０．５質量％以上である。

[0050] ＜（Ａ’）その他のカルボジイミド化合物＞

本発明の樹脂組成物は、任意の成分として（Ａ）成分に加えて（Ａ’）その他のカルボジイミド化合物を含有していてもよい。（Ａ’）その他のカルボジイミド化合物は、１分子中に、１個以上（好ましくは２個以上）のカルボジイミド構造（－Ｎ＝Ｃ＝Ｎ－）を有するが、ラジカル重合性基を含有しない化合物である。（Ａ’）その他のカルボジイミド化合物は、下記で説明する（Ｃ）熱硬化樹脂として（Ｃ１）エポキシ樹脂が含まれる場合に、（Ｃ１）エポキシ樹脂と反応して硬化させる機能を有する場合がある。（Ａ’）その他のカルボジイミド化合物は、１種類単独で用いてもよく、２種類以上を組み合わせて用いてもよい。

[0051] （Ａ’）その他のカルボジイミド化合物としては、例えば、テトラメチレンービス（ｔ－ブチルカルボジイミド）、シクロヘキサンビス（メチレン－

ｔ－ブチルカルボジイミド）等の脂肪族ビスカルボジイミド；フェニレン－ビス（キシリルカルボジイミド）等の芳香族ビスカルボジイミド等のビスカルボジイミド；ポリヘキサメチレンカルボジイミド、ポリトリメチルヘキサメチレンカルボジイミド、ポリシクロヘキシレンカルボジイミド、ポリ（メチレンビスシクロヘキシレンカルボジイミド）、ポリ（イソホロンカルボジイミド）等の脂肪族ポリカルボジイミド；ポリ（フェニレンカルボジイミド）、ポリ（ナフチレンカルボジイミド）、ポリ（トリレンカルボジイミド）、ポリ（メチルジイソプロピルフェニレンカルボジイミド）、ポリ（トリエチルフェニレンカルボジイミド）、ポリ（ジエチルフェニレンカルボジイミド）、ポリ（トリイソプロピルフェニレンカルボジイミド）、ポリ（ジイソプロピルフェニレンカルボジイミド）、ポリ（キシリレンカルボジイミド）、ポリ（テトラメチルキシリレンカルボジイミド）、ポリ（メチレンジフェニレンカルボジイミド）、ポリ［メチレンビス（メチルフェニレン）カルボジイミド］等の芳香族ポリカルボジイミド等のポリカルボジイミドが挙げられる。

[0052] （Ａ’）その他のカルボジイミド化合物の市販品としては、例えば、日清紡ケミカル社製の「カルボジライトＶ－０２Ｂ」、「カルボジライトＶ－０３」、「カルボジライトＶ－０４Ｋ」、「カルボジライトＶ－０７」及び「カルボジライトＶ－０９」；ラインケミー社製の「スタバクゾールＰ」、「スタバクゾールＰ４００」、「ハイカジル５１０」等が挙げられる。

[0053] 樹脂組成物中の（Ａ’）その他のカルボジイミド化合物の含有量は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、好ましくは１５質量％以下、より好ましくは１０質量％以下、さらに好ましくは５質量％以下、特に好ましくは２質量％以下である。樹脂組成物中の（Ａ’）その他のカルボジイミド化合物の含有量の下限は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、例えば０質量％以上、０．００１質量％以上、０．０１質量％以上、０．１質量％以上等であり得る。

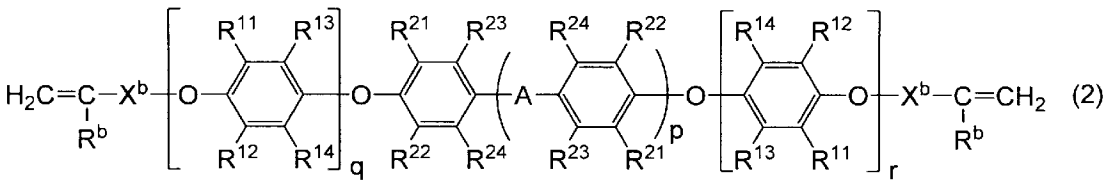
[0054] ＜（Ｂ）カルボジイミド構造を有さないラジカル重合性基含有化合物＞

本発明の樹脂組成物は、（Ｂ）カルボジイミド構造を有さないラジカル重合性基含有化合物を含有することが好ましい。（Ｂ）カルボジイミド構造を有さないラジカル重合性基含有化合物とは、１分子中に、１個以上（好ましくは２個以上）のラジカル重合性基を含有するが、カルボジイミド構造（－Ｎ＝Ｃ＝Ｎ－）を有さない化合物である。（Ｂ）成分は、１種類単独で用いてもよく、２種類以上を組み合わせて用いてもよい。

[0055] （Ｂ）成分は、第一の実施形態において、好ましくは、上記式（Ｒ）で表される基を２個以上有する熱可塑性樹脂（例えば数平均分子量８００以上）を含む。熱可塑性樹脂としては、特に限定されるものではないが、例えば、フェノキシ樹脂、ポリビニルアセタール樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂、ポリブタジエン樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリエーテルエーテルケトン樹脂、ポリエステル樹脂等が挙げられ、（Ｂ）成分は、当該実施形態において、これらの樹脂の上記式（Ｒ）で表される基を２個以上有する変性樹脂を含む。

[0056] （Ｂ）成分は、第一の実施形態において、より好ましくは、上記式（Ｒ）で表される基を２個以上有する変性ポリフェニレンエーテル樹脂、並びに上記式（Ｒ）で表される基を２個以上有する変性ポリスチレン樹脂から選ばれる樹脂を含み、さらに好ましくは、上記式（Ｒ）で表される基を２個以上有する変性ポリフェニレンエーテル樹脂を含み、特に好ましくは、式（２）：

[0057] [化8]



(2)

[0058] ［式中、Ｒ^{b}は、それぞれ独立して、水素原子、又はメチル基を示し；Ｘ^{b}は、それぞれ独立して、カルボニル基、メチレン基、フェニレン基、又はフェ

ニレン－メチレン基（結合方向は特に限定されないが、フェニレン側が「R^b－C」におけるCと結合していることが好ましい）を示し；R^{11}及びR^{12}は、それぞれ独立して、アルキル基を示し；R^{13}、R^{14}、R^{21}、R^{22}、R^{23}及びR^{24}は、それぞれ独立して、水素原子、又はアルキル基を示し；Aは、単結合、－C（R^c）$_2$－、－O－、－CO－、－S－、－SO－、又は－SO_2－を示し；R^cは、それぞれ独立して、水素原子、又はアルキル基を示し；pは、0又は1を示し；q及びrは、それぞれ独立して、1以上の整数を示す。]

で表される樹脂を含む。q単位及びr単位は、それぞれ、単位毎に同一であってもよいし、異なっていてもよい。

[0059] R^bは、それぞれ独立して、水素原子、又はメチル基を示す。X^bは、それぞれ独立して、カルボニル基、メチレン基、フェニレン基、又はフェニレン－メチレン基（結合方向は特に限定されないが、フェニレン側が「R^b－C」におけるCと結合していることが好ましい）を示し、好ましくは、カルボニル基、又はフェニレン－メチレン基である。

[0060] R^{11}及びR^{12}は、それぞれ独立して、アルキル基を示し、好ましくは、メチル基である。R^{13}及びR^{14}は、それぞれ独立して、水素原子、又はアルキル基を示し、好ましくは、水素原子である。R^{21}及びR^{22}は、それぞれ独立して、水素原子、又はアルキル基を示し、好ましくは、水素原子、又はメチル基であり、より好ましくは、メチル基である。R^{23}及びR^{24}は、それぞれ独立して、水素原子、又はアルキル基を示し、好ましくは、水素原子、又はメチル基である。

[0061] Aは、単結合、－C（R^c）$_2$－、－O－、－CO－、－S－、－SO－、又は－SO_2－を示し、好ましくは、単結合、－C（R^c）$_2$－、又は－O－である。R^cは、それぞれ独立して、水素原子、又はアルキル基を示し、好ましくは、水素原子、又はメチル基である。pは、0又は1を示し、好ましくは1である。q及びrは、それぞれ独立して、1以上の整数を示し、好ましくは、1～200の整数であり、より好ましくは、1～100の整数である。

[0062] 第一の実施形態における（Ｂ）成分のラジカル重合性基当量は、好ましくは３００ｇ／ｅｑ．～２５００ｇ／ｅｑ．、より好ましくは４００ｇ／ｅｑ．～２０００ｇ／ｅｑ．である。ラジカル重合性基当量は、ラジカル重合性基１当量当たりの樹脂（化合物）の質量を表す。

[0063] 第一の実施形態における（Ｂ）成分の数平均分子量は、好ましくは８００～１００００、より好ましくは９００～５０００である。樹脂の数平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）法により、ポリスチレン換算の値として測定できる。

[0064] 第一の実施形態における（Ｂ）成分の市販品としては、例えば、三菱ガス化学社製の「ＯＰＥ－２Ｓｔ　１２００」、「ＯＰＥ－２Ｓｔ　２２００」（ビニルベンジル変性ポリフェニレンエーテル樹脂）；ＳＡＢＩＣイノベーティブプラスチックス社製の「ＳＡ９０００」、「ＳＡ９０００－１１１」（メタクリル変性ポリフェニレンエーテル樹脂）等が挙げられる。

[0065] （Ｂ）成分は、第二の実施形態において、上記式（Ｒ）で表される基を２個以上有する低分子量の化合物（例えば分子量８００未満）を含む。このような化合物としては、例えば、分子量８００未満の多官能（メタ）アクリロイル基含有化合物、分子量８００未満の多官能ビニルアリール基含有化合物、分子量８００未満の多官能アリル基含有化合物等が挙げられる。

[0066] 分子量８００未満の多官能（メタ）アクリロイル基含有化合物は、２個以上の（メタ）アクリロイル基を有する化合物である。分子量８００未満の多官能（メタ）アクリロイル基含有化合物としては、例えば、シクロヘキサン－１，４－ジメタノールジ（メタ）アクリレート、シクロヘキサン－１，３－ジメタノールジ（メタ）アクリレート、トリシクロデカンジメタノールジ（メタ）アクリレート、ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、１，４－ブタンジオールジ（メタ）アクリレート、１，６－ヘキサンジオールジ（メタ）アクリレート、１，８－オクタンジオールジ（メタ）アクリレート、１，９－ノナンジオールジ（メタ）アクリレート、１，１０－デカンジオールジ（メタ）アクリレートトリメチロールプロパントリ（メタ）アク

リレート、トリメチロールエタントリ（メタ）アクリレート、グリセリントリ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート等の脂肪族（メタ）アクリル酸エステル化合物；ジオキサングリコールジ（メタ）アクリレート、３，６－ジオキサ－１，８－オクタンジオールジ（メタ）アクリレート、３，６，９－トリオキサウンデカン－１，１１－ジオールジ（メタ）アクリレート、ポリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ポリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、９，９－ビス［４－（２－アクリロイルオキシエトキシ）フェニル］フルオレン、エトキシ化ビスフェノールＡジ（メタ）アクリレート、プロポキシ化ビスフェノールＡジ（メタ）アクリレート等のエーテル含有（メタ）アクリル酸エステル化合物；トリス（３－ヒドロキシプロピル）イソシアヌレートトリ（メタ）アクリレート、トリス（２－ヒドロキシエチル）イソシアヌレートトリ（メタ）アクリレート、エトキシ化イソシアヌル酸トリ（メタ）アクリレート等のイソシアヌレート含有（メタ）アクリル酸エステル化合物等が挙げられる。分子量８００未満の多官能（メタ）アクリロイル基含有化合物の市販品としては、例えば、新中村化学工業社製の「Ａ－ＤＯＧ」（ジオキサングリコールジアクリレート）、共栄社化学社製の「ＤＣＰ－Ａ」（トリシクロデカンジメタノールジアクリレート）、「ＤＣＰ」（トリシクロデカンジメタノールジメタクリレート）、日本化薬株式会社の「ＫＡＹＡＲＡＤ　Ｒ－６８４」（トリシクロデカンジメタノールジアクリレート）、「ＫＡＹＡＲＡＤ　Ｒ－６０４」（ジオキサングリコールジアクリレート）等が挙げられる。

[0067] 分子量８００未満の多官能ビニルアリール基含有化合物は、２個以上のビニルアリール基を有する化合物である。分子量８００未満の多官能ビニルアリール基含有化合物としては、例えば、４，４’－ジビニルビフェニル、１，２－ビス（４－ビニルフェニル）エタン、２，２－ビス（４－ビニルフェニル）プロパン、ビス（４－ビニルフェニル）エーテル等が挙げられる。

[0068] 分子量８００未満の多官能アリル基含有化合物は、２個以上のアリル基を有する化合物である。分子量８００未満の多官能アリル基含有化合物として

は、例えば、ジフェン酸ジアリル、トリメリット酸トリアリル、フタル酸ジアリル、イソフタル酸ジアリル、テレフタル酸ジアリル、２，６－ナフタレンジカルボン酸ジアリル、２，３－ナフタレンカルボン酸ジアリル等の芳香族カルボン酸アリルエステル化合物；１，３，５－トリアリルイソシアヌレート、１，３－ジアリル－５－グリシジルイソシアヌレート等のイソシアヌル酸アリルエステル化合物；２，２－ビス［３－アリル－４－（グリシジルオキシ）フェニル］プロパン等のエポキシ含有芳香族アリル化合物；ビス［３－アリル－４－（３，４－ジヒドロ－２Ｈ－１，３－ベンゾオキサジン－３－イル）フェニル］メタン等のベンゾオキサジン含有芳香族アリル化合物；１，３，５－トリアリルエーテルベンゼン等のエーテル含有芳香族アリル化合物；ジアリルジフェニルシラン等のアリルシラン化合物等が挙げられる。分子量８００未満の多官能アリル基含有化合物の市販品としては、日本化成社製の「ＴＡＩＣ」（１，３，５－トリアリルイソシアヌレート）、日触テクノファインケミカル社製の「ＤＡＤ」（ジフェン酸ジアリル）、和光純薬工業社製の「ＴＲＩＡＭ－７０５」（トリメリット酸トリアリル）、日本蒸留工業社製の商品名「ＤＡＮＤ」（２，３－ナフタレンカルボン酸ジアリル）、四国化成工業社製「ＡＬＰ－ｄ」（ビス［３－アリル－４－（３，４－ジヒドロ－２Ｈ－１，３－ベンゾオキサジン－３－イル）フェニル］メタン）、日本化薬社製の「ＲＥ－８１０ＮＭ」（２，２－ビス［３－アリル－４－（グリシジルオキシ）フェニル］プロパン）、四国化成社製の「ＤＡ－ＭＧＩＣ」（１，３－ジアリル－５－グリシジルイソシアヌレート）等が挙げられる。

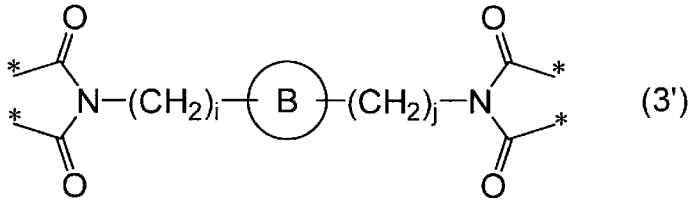
[0069] 第二の実施形態における（Ｂ）成分のラジカル重合性基当量は、好ましくは３０ｇ／ｅｑ．～４００ｇ／ｅｑ．、より好ましくは５０ｇ／ｅｑ．～３００ｇ／ｅｑ．、さらに好ましくは７５ｇ／ｅｑ．～２００ｇ／ｅｑ．である。

[0070] 第二の実施形態における（Ｂ）成分の分子量は、好ましくは１００～７００、より好ましくは２００～４００、さらに好ましくは２５０～５００であ

る。

[0071] （Ｂ）成分は、第三の実施形態において、好ましくは、式（３’）：

[0072] [化9]



(3')

[0073] ［式中、環Ｂは、置換基を有していてもよいモノシクロアルカン環、又は置換基を有していてもよいモノシクロアルケン環を示し；ｉ及びｊは、それぞれ独立して、０又は１以上の整数を示し、且つｉとｊの合計が６以上であり；＊は、結合部位を示す。］

で表される部分構造を有するマレイミド化合物を含む。マレイミド化合物とは、１分子中に少なくとも１個のマレイミド基（２，５－ジヒドロ－２，５－ジオキソ－１Ｈ－ピロール－１－イル基）を含有する化合物を意味する。第三の実施形態におけるマレイミド化合物１分子中におけるマレイミド基の数は、２以上であることが好ましく、２であることが特に好ましい。第三の実施形態におけるマレイミド化合物は、１種単独で用いてもよく、２種以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

[0074] モノシクロアルカン環とは、単環式の脂肪族飽和炭化水素環を意味する。モノシクロアルカン環は、炭素原子数４～１４のモノシクロアルカン環が好ましく、炭素原子数４～１０のモノシクロアルカン環がより好ましく、炭素原子数５又は６のモノシクロアルカン環が特に好ましい。モノシクロアルカン環としては、例えば、シクロブタン環、シクロペンタン環、シクロヘキサン環、シクロヘプタン環、シクロオクタン環等が挙げられる。モノシクロアルケン環とは、少なくとも１つの炭素－炭素二重結合を有する単環式の脂肪族不飽和炭化水素環を意味する。モノシクロアルケン環は、炭素原子数４～１４のモノシクロアルケン環が好ましく、炭素原子数４～１０のモノシクロアルケン環がより好ましく、炭素原子数５又は６のモノシクロアルケン環が

特に好ましい。モノシクロアルケン環としては、例えば、シクロブテン環、シクロペンテン環、シクロヘキセン環、シクロヘプテン環、シクロオクテン環、シクロペンタジエン環、シクロヘキサジエン環等が挙げられる。

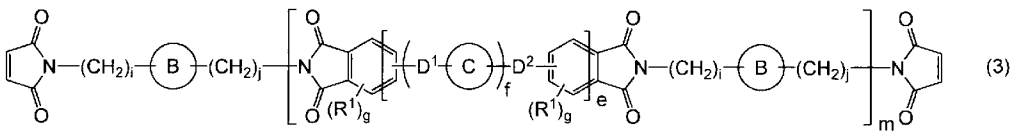
[0075] モノシクロアルカン環及びモノシクロアルケン環の「置換基」としては、上述したシクロアルカン環、ベンゼン環及びナフタレン環における「置換基」と同様のものが挙げられる。

[0076] 環Ｂは、置換基を有していてもよいモノシクロアルカン環、又は置換基を有していてもよいモノシクロアルケン環を示す。環Ｂは、好ましくは、アルキル基及びアルケニル基から選ばれる基で置換されていてもよいモノシクロアルカン環；又はアルキル基及びアルケニル基から選ばれる基で置換されていてもよいモノシクロアルケン環である。環Ｂは、より好ましくは、炭素原子数１～１４のアルキル基及び炭素原子数２～１４のアルケニル基から選ばれる基で置換されていてもよいモノシクロアルカン環；又は炭素原子数１～１４のアルキル基及び炭素原子数２～１４のアルケニル基から選ばれる基で置換されていてもよいモノシクロアルケン環である。

[0077] ｉ及びｊは、それぞれ独立して、０又は１以上の整数を示し、且つｉとｊの合計が６以上（好ましくは８以上、より好ましくは１０以上）である。ｉ及びｊは、好ましくは、それぞれ独立して、０～２０の整数であり、且つｉとｊの合計が６以上（好ましくは８以上、より好ましくは１０以上）である。ｉ及びｊは、より好ましくは、それぞれ独立して、１～２０の整数であり、且つｉとｊの合計が６以上（好ましくは８以上、より好ましくは１０以上）である。ｉ及びｊは、さらに好ましくは、それぞれ独立して、５～１０の整数である。ｉ及びｊは、特に好ましくは、８である。

[0078] （Ｂ）成分は、第三の実施形態において、特に好ましくは、式（３）：

[0079] [化10]



(3)

[0080] ［式中、Ｒ[1]は、それぞれ独立して、置換基を示し；環Ｃは、それぞれ独立し

て、置換基を有していてもよい芳香環を示し；D^1及びD^2は、それぞれ独立して、単結合、－Ｃ（R^x）$_2$－、－Ｏ－、－ＣＯ－、－Ｓ－、－ＳＯ－、－SO_2－、－ＣＯＮＨ－、－ＮＨＣＯ－、－ＣＯＯ－、又は－ＯＣＯ－を示し；R^xは、それぞれ独立して、水素原子、又はアルキル基を示し；ｅは、それぞれ独立して、０又は１を示し；ｆは、それぞれ独立して、０又は１以上の整数を示し；ｇは、それぞれ独立して、０、１又は２を示し；ｍは、０又は１以上の整数を示し；その他の記号は上記と同様である。］

で表されるマレイミド化合物を含む。ｆ単位、ｇ単位及びｍ単位は、それぞれ、単位毎に同一であってもよいし、異なっていてもよい。

[0081] 芳香環とは、環上のπ電子系に含まれる電子数が４ｐ＋２個（ｐは自然数）であるヒュッケル則に従う環を意味する。芳香環は、炭素原子のみを環構成原子とする芳香族炭素環、又は環構成原子として、炭素原子に加えて、酸素原子、窒素原子、硫黄原子等のヘテロ原子を有する芳香族複素環であり得るが、一実施形態において、芳香族炭素環であることが好ましい。芳香環は、一実施形態において、５～１４員の芳香環が好ましく、６～１４員の芳香環がより好ましく、６～１０員の芳香環がさらに好ましい。芳香環の好適な具体例としては、ベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、フェナントレン環等が挙げられ、より好ましくは、ベンゼン環又はナフタレン環であり、特に好ましくはベンゼン環である。

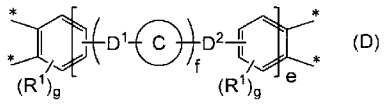
[0082] R^1における「置換基」、及び芳香環の「置換基」としては、上述したシクロアルカン環、ベンゼン環及びナフタレン環における「置換基」と同様のものが挙げられる。

[0083] 環Ｃは、それぞれ独立して、置換基を有していてもよい芳香環を示し、好ましくは、アルキル基から選ばれる基で置換されていてもよいベンゼン環である。D^1及びD^2は、それぞれ独立して、単結合、－Ｃ（R^x）$_2$－、－Ｏ－、－ＣＯ－、－Ｓ－、－ＳＯ－、－SO_2－、－ＣＯＮＨ－、－ＮＨＣＯ－、－ＣＯＯ－、又は－ＯＣＯ－を示し、好ましくは、単結合、－Ｃ（R^x）$_2$－、又は－Ｏ－である。R^xは、それぞれ独立して、水素原子、又はアルキル基

を示し、好ましくは、水素原子、又はメチル基である。ｅは、それぞれ独立して、０又は１を示し、好ましくは０である。ｆは、それぞれ独立して、０又は１以上の整数を示し、好ましくは０、１、２又は３であり、より好ましくは０、１又は２である。ｇは、それぞれ独立して、０、１又は２を示し、好ましくは０である。ｍは、０又は１以上の整数を示し、好ましくは、０である。

[0084] 式（３）中に含まれる式（Ｄ）：

[0085] [化11]

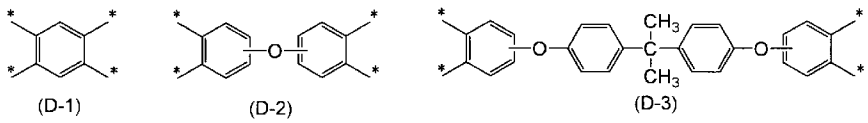


(D)

[0086] ［式中、＊は結合部位を示し；その他の記号は上記と同様である。］

で表される部分構造としては、特に限定されるものではないが、例えば、式（Ｄ－１）～（Ｄ－３）：

[0087] [化12]



(D-1) (D-2) (D-3)

[0088] ［式中、＊は上記と同様である。］

で表される部分構造が挙げられる。

[0089] 第三の実施形態における（Ｂ）成分のラジカル重合性基当量は、好ましくは２００ｇ／ｅｑ．～２５００ｇ／ｅｑ．、より好ましくは２５０ｇ／ｅｑ．～２０００ｇ／ｅｑ．、さらに好ましくは３００ｇ／ｅｑ．～１５００ｇ／ｅｑ．である。（Ｂ）成分のラジカル重合性基当量は、ラジカル重合性基１当量当たりの樹脂の質量を表す。

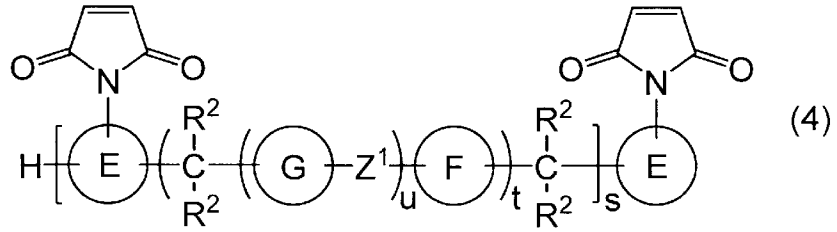
[0090] 第三の実施形態における（Ｂ）成分の重量平均分子量は、好ましくは４００～１０００００、より好ましくは５００～７０００、特に好ましくは６００～５０００である。

[0091] 第三の実施形態における（Ｂ）成分の市販品としては、例えば、デザイナ

ーモレキュールズ社製の「ＢＭＩ－６８９」、「ＢＭＩ－１５００」、「ＢＭＩ－１７００」、「ＢＭＩ－３０００Ｊ」、信越化学工業社製「ＳＬＫ－６８９５－Ｔ９０」等が挙げられる。

[0092] （Ｂ）成分は、第四の実施形態において、好ましくは、式（４）：

[0093] [化13]



(4)

[0094] ［式中、Ｒ^{2}は、それぞれ独立して、水素原子、又はアルキル基を示し；環Ｅ、環Ｆ及び環Ｇは、それぞれ独立して、置換基を有していてもよい芳香環を示し；Ｚ^{1}は、それぞれ独立して、単結合、－Ｃ（Ｒ^{z}）$_{2}$－、－Ｏ－、－ＣＯ－、－Ｓ－、－ＳＯ－、－ＳＯ$_{2}$－、－ＣＯＮＨ－、又は－ＮＨＣＯ－を示し；Ｒ^{z}は、それぞれ独立して、水素原子、又はアルキル基を示し；ｓは、１以上の整数を示し；ｔは、それぞれ独立して、０又は１を示し；ｕは、それぞれ独立して、０、１、２又は３を示す。］

で表されるマレイミド化合物を含む。ｓ単位及びｕ単位は、それぞれ、単位毎に同一であってもよいし、異なっていてもよい。第四の実施形態におけるマレイミド化合物は、１種単独で用いてもよく、２種以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

[0095] Ｒ^{2}は、それぞれ独立して、水素原子、又はアルキル基を示し、好ましくは、水素原子、又はメチル基であり、より好ましくは、水素原子である。環Ｅ、環Ｆ及び環Ｇは、それぞれ独立して、置換基を有していてもよい芳香環を示し、好ましくは、置換基を有していてもよいベンゼン環であり、より好ましくは、アルキル基及びアリール基から選ばれる基で置換されていてもよいベンゼン環であり、特に好ましくは、（無置換の）ベンゼン環である。

[0096] Ｚ^{1}は、それぞれ独立して、単結合、－Ｃ（Ｒ^{z}）$_{2}$－、－Ｏ－、－ＣＯ－、－Ｓ－、－ＳＯ－、－ＳＯ$_{2}$－、－ＣＯＮＨ－、又は－ＮＨＣＯ－を示し、好

ましくは、単結合、－Ｃ（Ｒ^{z}）$_{2}$－、又は－Ｏ－であり、より好ましくは、単結合、又は－Ｃ（Ｒ^{z}）$_{2}$－であり、特に好ましくは、単結合である。Ｒ^{z}は、それぞれ独立して、水素原子、又はアルキル基を示し、好ましくは、水素原子、又はメチル基である。

[0097] ｓは、１以上の整数を示し、好ましくは、１～１０の整数である。ｔは、それぞれ独立して、０又は１を示し、好ましくは、１である。ｕは、それぞれ独立して、０、１、２又は３を示し、好ましくは、０、１又は２であり、より好ましくは、０又は１であり、特に好ましくは１である。

[0098] 第四の実施形態における（Ｂ）成分のラジカル重合性基当量は、好ましくは１５０ｇ／ｅｑ．～１０００ｇ／ｅｑ．、より好ましくは２００ｇ／ｅｑ．～５００ｇ／ｅｑ．である。

[0099] 第四の実施形態における（Ｂ）成分の重量平均分子量は、好ましくは１００～１００００、より好ましくは１５０～５０００、特に好ましくは２００～３０００である。

[0100] 第四の実施形態における（Ｂ）成分の市販品としては、例えば、日本化薬社製の「ＭＩＲ－３０００－７０ＭＴ」、「ＭＩＲ－５０００－６０Ｔ」等が挙げられる。

[0101] （Ｂ）成分は、第一の実施形態における好適な熱可塑性樹脂、第二の実施形態における好適な化合物、第三の実施形態における好適なマレイミド化合物、及び第四の実施形態における好適なマレイミド化合物を、いずれか単独で含んでいてもよいが、これらのうち２種以上を任意の比率で組み合わせて含んでいてもよい。

[0102] （Ｂ）成分のラジカル重合性基当量は、好ましくは３０ｇ／ｅｑ．～２５００ｇ／ｅｑ．、特に好ましくは７５ｇ／ｅｑ．～２０００ｇ／ｅｑ．である。

[0103] 樹脂組成物中の（Ｂ）成分の含有量は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、好ましくは６０質量％以下、より好ましくは５０質量％以下、さらに好ましくは４０質量％以下

、さらにより好ましくは３０質量％以下、特に好ましくは２０質量％以下である。樹脂組成物中の（Ｂ）成分の含有量の下限は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、好ましくは０．０１質量％以上、より好ましくは０．１質量％以上、さらに好ましくは０．５質量％以上、さらにより好ましくは１質量％以上、特に好ましくは２質量％以上である。

[0104] ＜（Ｃ）熱硬化性樹脂＞

本発明の樹脂組成物は、（Ｃ）熱硬化性樹脂を含有することが好ましい。（Ｃ）熱硬化性樹脂としては、例えば、エポキシ樹脂、エポキシアクリレート樹脂、ウレタンアクリレート樹脂、ウレタン樹脂、シアネート樹脂、ポリイミド樹脂、ベンゾオキサジン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、フェノール樹脂、メラミン樹脂、シリコーン樹脂等が挙げられ、それらと反応して硬化させる機能を有し得る硬化剤（例えばエポキシ樹脂硬化剤）等も含み得る。

[0105] 樹脂組成物中の（Ｃ）熱硬化性樹脂の含有量は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、好ましくは５０質量％以下、より好ましくは４０質量％以下、さらに好ましくは３０質量％以下、特に好ましくは２５質量％以下である。また、樹脂組成物中の（Ｃ）熱硬化性樹脂の含有量の下限は、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、例えば、好ましくは０質量％以上、好ましくは０．１質量％以上、より好ましくは１質量％以上、さらに好ましくは１０質量％以上、特に好ましくは２０質量％以上である。

[0106] ＜（Ｃ１）エポキシ樹脂＞

本発明の樹脂組成物は、（Ｃ）熱硬化樹脂として（Ｃ１）エポキシ樹脂を含有することが好ましい。（Ｃ１）エポキシ樹脂とは、エポキシ基を有するエポキシ当量５，０００ｇ／ｅｑ．以下の硬化性樹脂である。ここで説明する（Ｃ１）エポキシ樹脂は、下記で説明する（Ｆ）成分に該当するもの以外の成分である。

[0107] （Ｃ１）エポキシ樹脂としては、例えば、ビキシレノール型エポキシ樹脂

、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＳ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＡＦ型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、トリスフェノール型エポキシ樹脂、ナフトールノボラック型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、ｔｅｒｔ－ブチル－カテコール型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、ナフトール型エポキシ樹脂、アントラセン型エポキシ樹脂、グリシジルアミン型エポキシ樹脂、グリシジルエステル型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、フェノールアラルキル型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、線状脂肪族エポキシ樹脂、ブタジエン構造を有するエポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、複素環式エポキシ樹脂、スピロ環含有エポキシ樹脂、シクロヘキサン型エポキシ樹脂、シクロヘキサンジメタノール型エポキシ樹脂、ナフチレンエーテル型エポキシ樹脂、トリメチロール型エポキシ樹脂、テトラフェニルエタン型エポキシ樹脂、イソシアヌラート型エポキシ樹脂、フェノールフタルイミジン型エポキシ樹脂等が挙げられる。（Ｃ１）エポキシ樹脂は、１種類単独で用いてもよく、２種類以上を組み合わせて用いてもよい。

[0108] 本発明の樹脂組成物は、（Ｃ１）エポキシ樹脂として、１分子中に２個以上のエポキシ基を有するエポキシ樹脂を含むことが好ましい。（Ｃ１）エポキシ樹脂の不揮発成分１００質量％に対して、１分子中に２個以上のエポキシ基を有するエポキシ樹脂の割合は、好ましくは５０質量％以上、より好ましくは６０質量％以上、特に好ましくは７０質量％以上である。

[0109] エポキシ樹脂には、温度２０℃で液状のエポキシ樹脂（以下「液状エポキシ樹脂」ということがある。）と、温度２０℃で固体状のエポキシ樹脂（以下「固体状エポキシ樹脂」ということがある。）とがある。本発明の樹脂組成物は、エポキシ樹脂として、液状エポキシ樹脂のみを含んでいてもよく、或いは固体状エポキシ樹脂のみを含んでいてもよく、或いは液状エポキシ樹脂と固体状エポキシ樹脂との両方を含んでいてもよいが、液状エポキシ樹脂と固体状エポキシ樹脂との両方を含んでいることが特に好ましい。

[0110] 液状エポキシ樹脂としては、１分子中に２個以上のエポキシ基を有する液状エポキシ樹脂が好ましい。

[0111] 液状エポキシ樹脂としては、グリシロール型エポキシ樹脂、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＡＦ型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、グリシジルエステル型エポキシ樹脂、グリシジルアミン型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、エステル骨格を有する脂環式エポキシ樹脂、シクロヘキサンジメタノール型エポキシ樹脂、環状脂肪族グリシジルエーテル、及びブタジエン構造を有するエポキシ樹脂が好ましい。

[0112] 液状エポキシ樹脂の具体例としては、ナガセケムテックス社製の「ＥＸ－９９２Ｌ」、三菱ケミカル社製の「ＹＸ７４００」、ＤＩＣ社製の「ＨＰ４０３２」、「ＨＰ４０３２Ｄ」、「ＨＰ４０３２ＳＳ」（ナフタレン型エポキシ樹脂）；三菱ケミカル社製の「８２８ＵＳ」、「８２８ＥＬ」、「８２５」、「エピコート８２８ＥＬ」（ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂）；三菱ケミカル社製の「ｊＥＲ８０７」、「１７５０」（ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂）；三菱ケミカル社製の「ｊＥＲ１５２」（フェノールノボラック型エポキシ樹脂）；三菱ケミカル社製の「６３０」、「６３０ＬＳＤ」、「６０４」（グリシジルアミン型エポキシ樹脂）；ＡＤＥＫＡ社製の「ＥＤ－５２３Ｔ」（グリシロール型エポキシ樹脂）；ＡＤＥＫＡ社製の「ＥＰ－３９５０Ｌ」、「ＥＰ－３９８０Ｓ」（グリシジルアミン型エポキシ樹脂）；ＡＤＥＫＡ社製の「ＥＰ－４０８８Ｓ」（ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂）；日鉄ケミカル＆マテリアル社製の「ＺＸ１０５９」（ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂とビスフェノールＦ型エポキシ樹脂の混合品）；ナガセケムテックス社製の「ＥＸ－７２１」（グリシジルエステル型エポキシ樹脂）；ナガセケムテックス社製の「ＥＸ－９９１Ｌ」（アルキレンオキシ骨格及びブタジエン骨格含有エポキシ樹脂）；ダイセル社製の「セロキサイド２０２１Ｐ」（エステル骨格を有する脂環式エポキシ樹脂）；日鉄ケミカル＆マテリアル社製の「ＺＸ１６５８」、「ＺＸ１６５８ＧＳ」（液状１，４

－グリシジルシクロヘキサン型エポキシ樹脂）；大阪ガスケミカル社製の「ＥＧ－２８０」（フルオレン構造含有エポキシ樹脂）；ナガセケムテックス社製「ＥＸ－２０１」（環状脂肪族グリシジルエーテル）等が挙げられる。

[0113] 固体状エポキシ樹脂としては、１分子中に３個以上のエポキシ基を有する固体状エポキシ樹脂が好ましく、１分子中に３個以上のエポキシ基を有する芳香族系の固体状エポキシ樹脂がより好ましい。

[0114] 固体状エポキシ樹脂としては、ビキシレノール型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、ナフタレン型４官能エポキシ樹脂、ナフトールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、トリスフェノール型エポキシ樹脂、ナフトール型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、ナフチレンエーテル型エポキシ樹脂、アントラセン型エポキシ樹脂、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＡＦ型エポキシ樹脂、フェノールアラルキル型エポキシ樹脂、テトラフェニルエタン型エポキシ樹脂、フェノールフタルイミジン型エポキシ樹脂が好ましい。

[0115] 固体状エポキシ樹脂の具体例としては、ＤＩＣ社製の「ＨＰ４０３２Ｈ」（ナフタレン型エポキシ樹脂）；ＤＩＣ社製の「ＨＰ－４７００」、「ＨＰ－４７１０」（ナフタレン型４官能エポキシ樹脂）；ＤＩＣ社製の「Ｎ－６９０」（クレゾールノボラック型エポキシ樹脂）；ＤＩＣ社製の「Ｎ－６９５」（クレゾールノボラック型エポキシ樹脂）；ＤＩＣ社製の「ＨＰ－７２００」、「ＨＰ－７２００ＨＨ」、「ＨＰ－７２００Ｈ」、「ＨＰ－７２００Ｌ」（ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂）；ＤＩＣ社製の「ＥＸＡ－７３１１」、「ＥＸＡ－７３１１－Ｇ３」、「ＥＸＡ－７３１１－Ｇ４」、「ＥＸＡ－７３１１－Ｇ４Ｓ」、「ＨＰ６０００」、「ＨＰ６０００Ｌ」（ナフチレンエーテル型エポキシ樹脂）；日本化薬社製の「ＥＰＰＮ－５０２Ｈ」（トリスフェノール型エポキシ樹脂）；日本化薬社製の「ＮＣ７０００Ｌ」（ナフトールノボラック型エポキシ樹脂）；日本化薬社製の「ＮＣ３０００Ｈ」、「ＮＣ３０００」、「ＮＣ３０００Ｌ」、「ＮＣ３０００ＦＨ」

、「ＮＣ３１００」（ビフェニル型エポキシ樹脂）；日鉄ケミカル＆マテリアル社製の「ＥＳＮ４７５Ｖ」、「ＥＳＮ４１００Ｖ」（ナフタレン型エポキシ樹脂）；日鉄ケミカル＆マテリアル社製の「ＥＳＮ４８５」（ナフトール型エポキシ樹脂）；日鉄ケミカル＆マテリアル社製の「ＥＳＮ３７５」（ジヒドロキシナフタレン型エポキシ樹脂）；三菱ケミカル社製の「ＹＸ４０００Ｈ」、「ＹＸ４０００」、「ＹＸ４０００ＨＫ」、「ＹＬ７８９０」（ビキシレノール型エポキシ樹脂）；三菱ケミカル社製の「ＹＬ６１２１」（ビフェニル型エポキシ樹脂）；三菱ケミカル社製の「ＹＸ８８００」（アントラセン型エポキシ樹脂）；三菱ケミカル社製の「ＹＸ７７００」（フェノールアラルキル型エポキシ樹脂）；大阪ガスケミカル社製の「ＰＧ－１００」、「ＣＧ－５００」；三菱ケミカル社製の「ＹＸ７７６０」（ビスフェノールＡＦ型エポキシ樹脂）；三菱ケミカル社製の「ＹＬ７８００」（フルオレン型エポキシ樹脂）；三菱ケミカル社製の「ｊＥＲ１０１０」（ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂）；三菱ケミカル社製の「ｊＥＲ１０３１Ｓ」（テトラフェニルエタン型エポキシ樹脂）；日本化薬社製の「ＷＨＲ９９１Ｓ」（フェノールフタルイミジン型エポキシ樹脂）等が挙げられる。これらは、１種類単独で用いてもよく、２種類以上を組み合わせて用いてもよい。

[0116] （Ｃ１）エポキシ樹脂として、固体状エポキシ樹脂と液状エポキシ樹脂とを組み合わせて用いる場合、それらの質量比（固体状エポキシ樹脂：液状エポキシ樹脂）は、好ましくは１０：１～１：５０、より好ましくは５：１～１：２０、特に好ましくは２：１～１：１０である。

[0117] （Ｃ１）エポキシ樹脂のエポキシ当量は、好ましくは５０ｇ／ｅｑ．～５，０００ｇ／ｅｑ．、より好ましくは６０ｇ／ｅｑ．～２，０００ｇ／ｅｑ．、さらに好ましくは７０ｇ／ｅｑ．～１，０００ｇ／ｅｑ．、さらにより好ましくは８０ｇ／ｅｑ．～５００ｇ／ｅｑ．である。エポキシ当量は、エポキシ基１当量あたりの樹脂の質量である。このエポキシ当量は、ＪＩＳＫ７２３６に従って測定することができる。

[0118] （Ｃ１）エポキシ樹脂の重量平均分子量（Ｍｗ）は、好ましくは１００～

５，０００、より好ましくは２５０～３，０００、さらに好ましくは４００～１，５００である。樹脂の重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）法により、ポリスチレン換算の値として測定できる。

[0119] 樹脂組成物中の（Ｃ１）エポキシ樹脂の含有量は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、好ましくは４０質量％以下、より好ましくは３０質量％以下、さらに好ましくは２５質量％以下、さらにより好ましくは２０質量％以下、特に好ましくは１５質量％以下である。樹脂組成物中の（Ｃ１）エポキシ樹脂の含有量の下限は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、例えば、０質量％以上、好ましくは０．１質量％以上、より好ましくは０．５質量％以上、さらに好ましくは１質量％以上、さらにより好ましくは５質量％以上、特に好ましくは１０質量％以上である。

[0120] ＜（Ｃ２）エポキシ樹脂硬化剤＞

本発明の樹脂組成物は、（Ｃ）熱硬化樹脂として（Ｃ１）を含む場合、任意成分としてさらに（Ｃ２）エポキシ樹脂硬化剤を含有していてもよい。（Ｃ２）エポキシ樹脂硬化剤は、１種類単独で用いてもよく、２種類以上を任意に組み合わせて用いてもよい。（Ｃ２）エポキシ樹脂硬化剤は、（Ｃ）熱硬化樹脂として（Ｃ１）エポキシ樹脂が含まれる場合に、（Ｃ１）エポキシ樹脂と反応して硬化させる機能を有し得る。ここで説明する（Ｃ２）エポキシ樹脂硬化剤は、上記で説明した（Ａ）及び（Ａ’）成分、下記で説明する（Ｆ）成分に該当するもの以外の成分である。

[0121] （Ｃ２）エポキシ樹脂硬化剤としては、特に限定されるものではないが、例えば、活性エステル系硬化剤、フェノール系硬化剤、酸無水物系硬化剤、アミン系硬化剤、ベンゾオキサジン系硬化剤、シアネートエステル系硬化剤、及びチオール系硬化剤等が挙げられる。本発明の樹脂組成物は、（Ｃ２）エポキシ樹脂硬化剤（（Ｃ）成分）は、一実施形態において、活性エステル系硬化剤、フェノール系硬化剤、及びシアネートエステル系硬化剤から選ば

れる１種以上のエポキシ樹脂硬化剤を含むことが好ましく、活性エステル系硬化剤、及びフェノール系硬化剤から選ばれる１種以上のエポキシ樹脂硬化剤を含むことがより好ましい。（Ｃ２）エポキシ樹脂硬化剤（（Ｃ）成分）は、一実施形態において、誘電正接をより低く抑える観点から、活性エステル系硬化剤を含むことが特に好ましい。また、（Ｃ２）エポキシ樹脂硬化剤（（Ｃ）成分）は、一実施形態において、硬化性をより向上させる観点から、フェノール系硬化剤を含むことが特に好ましい。

[0122] 活性エステル系硬化剤としては、一般にフェノールエステル類、チオフェノールエステル類、Ｎ－ヒドロキシアミンエステル類、複素環ヒドロキシ化合物のエステル類等の、反応活性の高いエステル基を１分子中に２個以上有する化合物が好ましく用いられる。当該活性エステル化合物は、カルボン酸化合物及び／又はチオカルボン酸化合物とヒドロキシ化合物及び／又はチオール化合物との縮合反応によって得られるものが好ましい。特に耐熱性向上の観点から、カルボン酸化合物とヒドロキシ化合物とから得られる活性エステル化合物が好ましく、カルボン酸化合物とフェノール化合物及び／又はナフトール化合物とから得られる活性エステル化合物がより好ましい。カルボン酸化合物としては、例えば安息香酸、酢酸、コハク酸、マレイン酸、イタコン酸、フタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、ピロメリット酸等が挙げられる。フェノール化合物又はナフトール化合物としては、例えば、ハイドロキノン、レゾルシン、ビスフェノールＡ、ビスフェノールＦ、ビスフェノールＳ、フェノールフタリン、メチル化ビスフェノールＡ、メチル化ビスフェノールＦ、メチル化ビスフェノールＳ、フェノール、ｏ－クレゾール、ｍ－クレゾール、ｐ－クレゾール、カテコール、α－ナフトール、β－ナフトール、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、ジヒドロキシベンゾフェノン、トリヒドロキシベンゾフェノン、テトラヒドロキシベンゾフェノン、フロログルシン、ベンゼントリオール、ジシクロペンタジエン型ジフェノール化合物、フェノールノボラック等が挙げられる。ここで、「ジシクロペンタジエン型ジ

フェノール化合物」とは、ジシクロペンタジエン１分子にフェノール２分子が縮合して得られるジフェノール化合物をいう。

[0123] 活性エステル系硬化剤としては、具体的には、ジシクロペンタジエン型活性エステル化合物、ナフタレン構造を含むナフタレン型活性エステル化合物、フェノールノボラックのアセチル化物を含む活性エステル化合物、フェノールノボラックのベンゾイル化物を含む活性エステル化合物が好ましく、中でもジシクロペンタジエン型活性エステル化合物、及びナフタレン型活性エステル化合物から選ばれる少なくとも１種であることがより好ましい。ジシクロペンタジエン型活性エステル化合物としては、ジシクロペンタジエン型ジフェノール構造を含む活性エステル化合物が好ましい。

[0124] 活性エステル系硬化剤の市販品としては、ジシクロペンタジエン型ジフェノール構造を含む活性エステル化合物として、「ＥＸＢ９４５１」、「ＥＸＢ９４６０」、「ＥＸＢ９４６０Ｓ」、「ＨＰＣ－８０００Ｌ－６５ＴＭ」、「ＨＰＣ－８０００－６５Ｔ」、「ＨＰＣ－８０００Ｈ」、「ＨＰＣ－８０００Ｈ－６５ＴＭ」（ＤＩＣ社製）；ナフタレン構造を含む活性エステル化合物として「ＨＰ－Ｂ－８１５１－６２Ｔ」、「ＥＸＢ－８１００Ｌ－６５Ｔ」、「ＥＸＢ－９４１６－７０ＢＫ」、「ＨＰＣ－８１５０－６２Ｔ」、「ＥＸＢ－８」（ＤＩＣ社製）；りん含有活性エステル化合物として、「ＥＸＢ９４０１」（ＤＩＣ社製）、フェノールノボラックのアセチル化物である活性エステル化合物として「ＤＣ８０８」（三菱ケミカル社製）、フェノールノボラックのベンゾイル化物である活性エステル化合物として「ＹＬＨ１０２６」、「ＹＬＨ１０３０」、「ＹＬＨ１０４８」（三菱ケミカル社製）、スチリル基及びナフタレン構造を含む活性エステル化合物として「ＰＣ１３００－０２－６５ＭＡ」（エア・ウォーター社製）等が挙げられる。

[0125] フェノール系硬化剤としては、耐熱性及び耐水性の観点から、ノボラック構造を有するフェノール系硬化剤が好ましい。また、被着体に対する密着性の観点から、含窒素フェノール系硬化剤が好ましく、トリアジン骨格含有フェノール系硬化剤がより好ましい。中でも、耐熱性、耐水性、及び密着性を

高度に満足させる観点から、トリアジン骨格含有フェノールノボラック樹脂が好ましい。フェノール系硬化剤の具体例としては、例えば、明和化成社製の「ＭＥＨ－７７００」、「ＭＥＨ－７８１０」、「ＭＥＨ－７８５１」、日本化薬社製の「ＮＨＮ」、「ＣＢＮ」、「ＧＰＨ」、日鉄ケミカル＆マテリアル社製の「ＳＮ－１７０」、「ＳＮ－１８０」、「ＳＮ－１９０」、「ＳＮ－４７５」、「ＳＮ－４８５」、「ＳＮ－４９５」、「ＳＮ－３７５」、「ＳＮ－３９５」、ＤＩＣ社製の「ＬＡ－７０５２」、「ＬＡ－７０５４」、「ＬＡ－３０１８」、「ＬＡ－３０１８－５０Ｐ」、「ＬＡ－１３５６」、「ＴＤ２０９０」、「ＫＡ－１１６０」等が挙げられる。

[0126] 酸無水物系硬化剤としては、１分子内中に１個以上の酸無水物基を有する硬化剤が挙げられ、１分子内中に２個以上の酸無水物基を有する硬化剤が好ましい。酸無水物系硬化剤の具体例としては、無水フタル酸、テトラヒドロ無水フタル酸、ヘキサヒドロ無水フタル酸、メチルテトラヒドロ無水フタル酸、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸、メチルナジック酸無水物、水素化メチルナジック酸無水物、トリアルキルテトラヒドロ無水フタル酸、ドデセニル無水コハク酸、５－（２，５－ジオキソテトラヒドロ－３－フラニル）－３－メチル－３－シクロヘキセン－１，２－ジカルボン酸無水物、無水トリメリット酸、無水ピロメリット酸、ベンソフェノンテトラカルボン酸二無水物、ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、オキシジフタル酸二無水物、３，３’－４，４’－ジフェニルスルホンテトラカルボン酸二無水物、１，３，３ａ，４，５，９ｂ－ヘキサヒドロ－５－（テトラヒドロ－２，５－ジオキソ－３－フラニル）－ナフト［１，２－Ｃ］フラン－１，３－ジオン、エチレングリコールビス（アンヒドロトリメリテート）、スチレンとマレイン酸とが共重合したスチレン・マレイン酸樹脂などのポリマー型の酸無水物などが挙げられる。酸無水物系硬化剤の市販品としては、新日本理化社製の「ＨＮＡ－１００」、「ＭＨ－７００」、「ＭＴＡ－１５」、「ＤＤＳＡ」、「ＯＳＡ」、三菱ケミカル社製の「ＹＨ－３０６」、「ＹＨ－３０７」、日立化成社製の「ＨＮ－２２００」、

「ＨＮ－５５００」、クレイバレイ社製「ＥＦ－３０」、「ＥＦ－４０」「ＥＦ－６０」、「ＥＦ－８０」等が挙げられる。

[0127] アミン系硬化剤としては、１分子内中に１個以上、好ましくは２個以上のアミノ基を有する硬化剤が挙げられ、例えば、脂肪族アミン類、ポリエーテルアミン類、脂環式アミン類、芳香族アミン類等が挙げられ、中でも、本発明の所望の効果を奏する観点から、芳香族アミン類が好ましい。アミン系硬化剤は、第１級アミン又は第２級アミンが好ましく、第１級アミンがより好ましい。アミン系硬化剤の具体例としては、４，４’－メチレンビス（２，６－ジメチルアニリン）、４，４’－ジアミノジフェニルメタン、４，４’－ジアミノジフェニルスルホン、３，３’－ジアミノジフェニルスルホン、ｍ－フェニレンジアミン、ｍ－キシリレンジアミン、ジエチルトルエンジアミン、４，４’－ジアミノジフェニルエーテル、３，３’－ジメチル－４，４’－ジアミノビフェニル、２，２’－ジメチル－４，４’－ジアミノビフェニル、３，３’－ジヒドロキシベンジジン、２，２－ビス（３－アミノ－４－ヒドロキシフェニル）プロパン、３，３－ジメチル－５，５－ジエチル－４，４－ジフェニルメタンジアミン、２，２－ビス（４－アミノフェニル）プロパン、２，２－ビス（４－（４－アミノフェノキシ）フェニル）プロパン、１，３－ビス（３－アミノフェノキシ）ベンゼン、１，３－ビス（４－アミノフェノキシ）ベンゼン、１，４－ビス（４－アミノフェノキシ）ベンゼン、４，４’－ビス（４－アミノフェノキシ）ビフェニル、ビス（４－（４－アミノフェノキシ）フェニル）スルホン、ビス（４－（３－アミノフェノキシ）フェニル）スルホン、等が挙げられる。アミン系硬化剤は市販品を用いてもよく、例えば、セイカ社製「ＳＥＩＫＡＣＵＲＥ－Ｓ」、日本化薬社製の「ＫＡＹＡＢＯＮＤ　Ｃ－２００Ｓ」、「ＫＡＹＡＢＯＮＤ　Ｃ－１００」、「カヤハードＡ－Ａ」、「カヤハードＡ－Ｂ」、「カヤハードＡ－Ｓ」、三菱ケミカル社製の「エピキュアW」等が挙げられる。

[0128] ベンゾオキサジン系硬化剤の具体例としては、ＪＦＥケミカル社製の「ＪＢＺ－ＯＰ１００Ｄ」、「ＯＤＡ－ＢＯＺ」；昭和高分子社製の「ＨＦＢ２

００６Ｍ」；四国化成工業社製の「Ｐ－ｄ」、「Ｆ－ａ」などが挙げられる。

[0129] シアネートエステル系硬化剤としては、例えば、ビスフェノールＡジシアネート、ポリフェノールシアネート（オリゴ（３－メチレン－１，５－フェニレンシアネート））、４，４’－メチレンビス（２，６－ジメチルフェニルシアネート）、４，４’－エチリデンジフェニルジシアネート、ヘキサフルオロビスフェノールＡジシアネート、２，２－ビス（４－シアネート）フェニルプロパン、１，１－ビス（４－シアネートフェニルメタン）、ビス（４－シアネート－３，５－ジメチルフェニル）メタン、１，３－ビス（４－シアネートフェニル－１－（メチルエチリデン））ベンゼン、ビス（４－シアネートフェニル）チオエーテル、及びビス（４－シアネートフェニル）エーテル等の２官能シアネート樹脂、フェノールノボラック及びクレゾールノボラック等から誘導される多官能シアネート樹脂、これらシアネート樹脂が一部トリアジン化したプレポリマーなどが挙げられる。シアネートエステル系硬化剤の具体例としては、ロンザジャパン社製の「ＰＴ３０」及び「ＰＴ６０」（いずれもフェノールノボラック型多官能シアネートエステル樹脂）、「ＢＡ２３０」、「ＢＡ２３０Ｓ７５」（ビスフェノールＡジシアネートの一部又は全部がトリアジン化され三量体となったプレポリマー）等が挙げられる。

[0130] チオール系硬化剤としては、例えば、トリメチロールプロパントリス（３－メルカプトプロピオネート）、ペンタエリスリトールテトラキス（３－メルカプトブチレート）、トリス（３－メルカプトプロピル）イソシアヌレート等が挙げられる。

[0131] （Ｃ２）エポキシ樹脂硬化剤の反応基当量は、好ましくは５０ｇ／ｅｑ．～３０００ｇ／ｅｑ．、より好ましくは１００ｇ／ｅｑ．～１０００ｇ／ｅｑ．、さらに好ましくは１００ｇ／ｅｑ．～５００ｇ／ｅｑ．、特に好ましくは１００ｇ／ｅｑ．～３００ｇ／ｅｑ．である。反応基当量は、反応基１当量あたりの（Ｃ２）エポキシ樹脂硬化剤の質量である。

[0132] （Ｃ２）エポキシ樹脂硬化剤として活性エステル系硬化剤が含まれる場合、樹脂組成物中の活性エステル系硬化剤の含有量は、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、誘電正接をより低く抑える観点から、好ましくは１質量％以上、より好ましくは３質量％以上、さらに好ましくは５質量％以上、特に好ましくは６．５質量％以上である。また、樹脂組成物中の活性エステル系硬化剤の含有量は、樹脂組成物中の（Ｃ２）エポキシ樹脂硬化剤を１００質量％とした場合、誘電正接をより低く抑える観点から、好ましくは１０質量％以上、より好ましくは３０質量％以上、さらに好ましくは４０質量％以上、特に好ましくは５０質量％以上である。

[0133] （Ｃ２）エポキシ樹脂硬化剤としてフェノール系硬化剤が含まれる場合、樹脂組成物中のフェノール系硬化剤の含有量は、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、硬化性をより向上させる観点から、好ましくは０．５質量％以上、より好ましくは１質量％以上、特に好ましくは１．５質量％以上である。

[0134] 樹脂組成物中の（Ｃ２）エポキシ樹脂硬化剤の含有量は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、好ましくは３０質量％以下、より好ましくは２０質量％以下、さらに好ましくは１５質量％以下、特に好ましくは１０質量％以下である。樹脂組成物中の（Ｃ２）エポキシ樹脂硬化剤の含有量の下限は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、例えば、０質量％以上、０．０１質量％以上であり得、好ましくは０．１質量％以上、より好ましくは１質量％以上、さらに好ましくは３質量％以上、特に好ましくは５質量％以上であり得る。

[0135] ＜（Ｄ）無機充填材＞

本発明の樹脂組成物は、任意の成分として（Ｄ）無機充填材を含有していてもよい。（Ｄ）無機充填材は、粒子の状態で樹脂組成物に含まれる。

[0136] （Ｄ）無機充填材の材料としては、無機化合物を用いる。（Ｄ）無機充填材の材料としては、例えば、シリカ、アルミナ、ガラス、コーディエライト

、シリコン酸化物、硫酸バリウム、炭酸バリウム、タルク、クレー、雲母粉、酸化亜鉛、ハイドロタルサイト、ベーマイト、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、酸化マグネシウム、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、窒化マンガン、ホウ酸アルミニウム、炭酸ストロンチウム、チタン酸ストロンチウム、チタン酸カルシウム、チタン酸マグネシウム、チタン酸ビスマス、酸化チタン、酸化ジルコニウム、チタン酸バリウム、チタン酸ジルコン酸バリウム、ジルコン酸バリウム、ジルコン酸カルシウム、リン酸ジルコニウム、及びリン酸タングステン酸ジルコニウム等が挙げられる。これらの中でも、シリカが特に好適である。シリカとしては、例えば、無定形シリカ、溶融シリカ、結晶シリカ、合成シリカ、中空シリカ等が挙げられる。また、シリカとしては球形シリカが好ましい。（Ｄ）無機充填材は、１種類単独で用いてもよく、２種以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

[0137] （Ｄ）無機充填材の市販品としては、例えば、日鉄ケミカル＆マテリアル社製の「ＳＰ６０－０５」、「ＳＰ５０７－０５」；アドマテックス社製の「ＹＣ１００Ｃ」、「ＹＡ０５０Ｃ」、「ＹＡ０５０Ｃ－ＭＪＥ」、「ＹＡ０１０Ｃ」；デンカ社製の「ＵＦＰ－３０」；トクヤマ社製の「シルフィルＮＳＳ－３Ｎ」、「シルフィルＮＳＳ－４Ｎ」、「シルフィルＮＳＳ－５Ｎ」；アドマテックス社製の「ＳＣ２５００ＳＱ」、「ＳＯ－Ｃ４」、「ＳＯ－Ｃ２」、「ＳＯ－Ｃ１」；デンカ社製の「ＤＡＷ－０３」、「ＦＢ－１０５ＦＤ」などが挙げられる。

[0138] （Ｄ）無機充填材の平均粒径は、特に限定されるものではないが、好ましくは１０μｍ以下、より好ましくは５μｍ以下、さらに好ましくは２μｍ以下、さらにより好ましくは１μｍ以下、特に好ましくは０．７μｍ以下である。（Ｄ）無機充填材の平均粒径の下限は、特に限定されるものではないが、好ましくは０．０１μｍ以上、より好ましくは０．０５μｍ以上、さらに好ましくは０．１μｍ以上、特に好ましくは０．２μｍ以上である。（Ｄ）無機充填材の平均粒径は、ミー（Ｍｉｅ）散乱理論に基づくレーザー回折・

散乱法により測定することができる。具体的には、レーザー回折散乱式粒径分布測定装置により、無機充填材の粒径分布を体積基準で作成し、そのメディアン径を平均粒径とすることで測定することができる。測定サンプルは、無機充填材１００ｍｇ、メチルエチルケトン１０ｇをバイアル瓶に秤取り、超音波にて１０分間分散させたものを使用することができる。測定サンプルを、レーザー回折式粒径分布測定装置を使用して、使用光源波長を青色及び赤色とし、フローセル方式で無機充填材の体積基準の粒径分布を測定し、得られた粒径分布からメディアン径として平均粒径を算出した。レーザー回折式粒径分布測定装置としては、例えば堀場製作所社製「ＬＡ－９６０」等が挙げられる。

[0139] （Ｄ）無機充填材の比表面積は、特に限定されるものではないが、好ましくは０．１m^2／ｇ以上、より好ましくは０．５m^2／ｇ以上、さらに好ましくは１m^2／ｇ以上、特に好ましくは３m^2／ｇ以上である。（Ｄ）無機充填材の比表面積の上限は、特に限定されるものではないが、好ましくは１００m^2／ｇ以下、より好ましくは７０m^2／ｇ以下、さらに好ましくは５０m^2／ｇ以下、特に好ましくは４０m^2／ｇ以下である。無機充填材の比表面積は、ＢＥＴ法に従って、比表面積測定装置（マウンテック社製Ｍａｃｓｏｒｂ ＨＭ－１２１０）を使用して試料表面に窒素ガスを吸着させ、ＢＥＴ多点法を用いて比表面積を算出することで得られる。

[0140] （Ｄ）無機充填材は、耐湿性及び分散性を高める観点から、表面処理剤で処理されていることが好ましい。表面処理剤としては、例えば、フッ素含有シランカップリング剤、アミノシラン系カップリング剤、エポキシシラン系カップリング剤、メルカプトシラン系カップリング剤、シラン系カップリング剤、アルコキシシラン、オルガノシラザン化合物、チタネート系カップリング剤等が挙げられる。また、表面処理剤は、１種類単独で用いてもよく、２種類以上を任意に組み合わせて用いてもよい。

[0141] 表面処理剤の市販品としては、例えば、信越化学工業社製「ＫＢＭ４０３」（３－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン）、信越化学工業社製「

ＫＢＭ８０３」（３－メルカプトプロピルトリメトキシシラン）、信越化学工業社製「ＫＢＥ９０３」（３－アミノプロピルトリエトキシシラン）、信越化学工業社製「ＫＢＭ５７３」（Ｎ－フェニル－３－アミノプロピルトリメトキシシラン）、信越化学工業社製「ＳＺ－３１」（ヘキサメチルジシラザン）、信越化学工業社製「ＫＢＭ１０３」（フェニルトリメトキシシラン）、信越化学工業社製「ＫＢＭ－４８０３」（長鎖エポキシ型シランカップリング剤）、信越化学工業社製「ＫＢＭ－７１０３」（３，３，３－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン）等が挙げられる。

[0142] 表面処理剤による表面処理の程度は、無機充填材の分散性向上の観点から、所定の範囲に収まることが好ましい。具体的には、無機充填材１００質量％は、０．２質量％～５質量％の表面処理剤で表面処理されていることが好ましく、０．２質量％～３質量％で表面処理されていることがより好ましく、０．３質量％～２質量％で表面処理されていることがさらに好ましい。

[0143] 表面処理剤による表面処理の程度は、無機充填材の単位表面積当たりのカーボン量によって評価することができる。無機充填材の単位表面積当たりのカーボン量は、無機充填材の分散性向上の観点から、０．０２ｍｇ／ｍ^{2}以上が好ましく、０．１ｍｇ／ｍ^{2}以上がより好ましく、０．２ｍｇ／ｍ^{2}以上がさらに好ましい。一方、樹脂組成物の溶融粘度やシート形態での溶融粘度の上昇を防止する観点から、１．０ｍｇ／ｍ^{2}以下が好ましく、０．８ｍｇ／ｍ^{2}以下がより好ましく、０．５ｍｇ／ｍ^{2}以下がさらに好ましい。

[0144] （Ｄ）無機充填材の単位表面積当たりのカーボン量は、表面処理後の無機充填材を溶剤（例えば、メチルエチルケトン（ＭＥＫ））により洗浄処理した後に測定することができる。具体的には、溶剤として十分な量のＭＥＫを表面処理剤で表面処理された無機充填材に加えて、２５℃で５分間超音波洗浄する。上澄液を除去し、固形分を乾燥させた後、カーボン分析計を用いて無機充填材の単位表面積当たりのカーボン量を測定することができる。カーボン分析計としては、堀場製作所社製「ＥＭＩＡ－３２０Ｖ」等を使用することができる。

[0145] 樹脂組成物中の（Ｄ）無機充填材の含有量は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、好ましくは９０質量％以下、より好ましくは８５質量％以下、さらに好ましくは８０質量％以下、特に好ましくは７５質量％以下であり得る。樹脂組成物中の（Ｄ）無機充填材の含有量の下限は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、例えば、０質量％以上、１質量％以上、１０質量％以上、２０質量％以上であり得、好ましくは３０質量％以上、より好ましくは４０質量％以上、さらに好ましくは５０質量％以上、さらにより好ましくは５５質量％以上、特に好ましくは６０質量％以上、又は６５質量％以上である。

[0146] ＜（Ｅ）熱可塑性樹脂＞

本発明の樹脂組成物は、さらに任意成分として（Ｅ）熱可塑性樹脂を含んでいてもよい。ここで説明する（Ｅ）熱可塑性樹脂は、上記で説明した（Ａ）～（Ｃ）成分、下記で説明する（Ｆ）成分に該当するもの以外の成分である。

[0147] （Ｅ）熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリイミド樹脂、フェノキシ樹脂、ポリビニルアセタール樹脂、ポリオレフィン樹脂、ポリブタジエン樹脂、ポリアミドイミド樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリエーテルエーテルケトン樹脂、ポリエステル樹脂等が挙げられる。本発明の樹脂組成物は、一実施形態において、（Ｅ）熱可塑性樹脂として、ポリイミド樹脂及びフェノキシ樹脂からなる群から選ばれる熱可塑性樹脂を含むことが好ましく、フェノキシ樹脂を含むことがより好ましい。また、熱可塑性樹脂は、１種類単独で用いてもよく、又は２種類以上を組み合わせて用いてもよい。

[0148] ポリイミド樹脂の具体例としては、信越化学工業社製「ＳＬＫ－６１００」、新日本理化社製の「リカコートＳＮ２０」及び「リカコートＰＮ２０」等が挙げられる。

[0149] フェノキシ樹脂としては、例えば、ビスフェノールＡ骨格、ビスフェノールＦ骨格、ビスフェノールＳ骨格、ビスフェノールアセトフェノン骨格、ノボラック骨格、ビフェニル骨格、フルオレン骨格、ジシクロペンタジエン骨格、ノルボルネン骨格、ナフタレン骨格、アントラセン骨格、アダマンタン骨格、テルペン骨格、及びトリメチルシクロヘキサン骨格からなる群から選択される１種類以上の骨格を有するフェノキシ樹脂が挙げられる。フェノキシ樹脂の末端は、フェノール性水酸基、エポキシ基等のいずれの官能基でもよい。

[0150] フェノキシ樹脂の具体例としては、三菱ケミカル社製の「１２５６」及び「４２５０」（いずれもビスフェノールＡ骨格含有フェノキシ樹脂）；三菱ケミカル社製の「ＹＸ８１００」（ビスフェノールＳ骨格含有フェノキシ樹脂）；三菱ケミカル社製の「ＹＸ６９５４」（ビスフェノールアセトフェノン骨格含有フェノキシ樹脂）、日鉄ケミカル＆マテリアル社製の「ＦＸ２８０」及び「ＦＸ２９３」；三菱ケミカル社製の「ＹＸ７２００Ｂ３５」、「ＹＬ７５００ＢＨ３０」、「ＹＸ６９５４ＢＨ３０」、「ＹＸ７５５３ＢＨ３０」、「ＹＬ７７６９ＢＨ３０」、「ＹＬ６７９４」、「ＹＬ７２１３」、「ＹＬ７２９０」及び「ＹＬ７４８２」等が挙げられる。

[0151] ポリビニルアセタール樹脂としては、例えば、ポリビニルホルマール樹脂、ポリビニルブチラール樹脂が挙げられ、ポリビニルブチラール樹脂が好ましい。ポリビニルアセタール樹脂の具体例としては、電気化学工業社製の「電化ブチラール４０００－２」、「電化ブチラール５０００－Ａ」、「電化ブチラール６０００－Ｃ」、「電化ブチラール６０００－ＥＰ」；積水化学工業社製のエスレックＢＨシリーズ、ＢＸシリーズ（例えばＢＸ－５Ｚ）、ＫＳシリーズ（例えばＫＳ－１）、ＢＬシリーズ、ＢＭシリーズ；等が挙げられる。

[0152] ポリオレフィン樹脂としては、例えば低密度ポリエチレン、超低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、エチレン－酢酸ビニル共重合体、エチレン－アクリル酸エチル共重合体、エチレン－アクリル酸メチル共重合体等のエ

チレン系共重合樹脂；ポリプロピレン、エチレン－プロピレンブロック共重合体等のポリオレフィン系重合体等が挙げられる。

[0153] ポリブタジエン樹脂としては、例えば、水素化ポリブタジエン骨格含有樹脂、ヒドロキシ基含有ポリブタジエン樹脂、フェノール性水酸基含有ポリブタジエン樹脂、カルボキシ基含有ポリブタジエン樹脂、酸無水物基含有ポリブタジエン樹脂、エポキシ基含有ポリブタジエン樹脂、イソシアネート基含有ポリブタジエン樹脂、ウレタン基含有ポリブタジエン樹脂、ポリフェニレンエーテル－ポリブタジエン樹脂等が挙げられる。

[0154] ポリアミドイミド樹脂の具体例としては、東洋紡社製の「バイロマックスＨＲ１１ＮＮ」及び「バイロマックスＨＲ１６ＮＮ」が挙げられる。ポリアミドイミド樹脂の具体例としてはまた、日立化成社製の「ＫＳ９１００」、「ＫＳ９３００」（ポリシロキサン骨格含有ポリアミドイミド）等の変性ポリアミドイミドが挙げられる。

[0155] ポリエーテルスルホン樹脂の具体例としては、住友化学社製の「ＰＥＳ５００３Ｐ」等が挙げられる。

[0156] ポリスルホン樹脂の具体例としては、ソルベイアドバンストポリマーズ社製のポリスルホン「Ｐ１７００」、「Ｐ３５００」等が挙げられる。

[0157] ポリフェニレンエーテル樹脂の具体例としては、ＳＡＢＩＣ製「ＮＯＲＹＬ　ＳＡ９０」等が挙げられる。ポリエーテルイミド樹脂の具体例としては、ＧＥ社製の「ウルテム」等が挙げられる。

[0158] ポリカーボネート樹脂としては、ヒドロキシ基含有カーボネート樹脂、フェノール性水酸基含有カーボネート樹脂、カルボキシ基含有カーボネート樹脂、酸無水物基含有カーボネート樹脂、イソシアネート基含有カーボネート樹脂、ウレタン基含有カーボネート樹脂等が挙げられる。ポリカーボネート樹脂の具体例としては、三菱瓦斯化学社製の「ＦＰＣ０２２０」、旭化成ケミカルズ社製の「Ｔ６００２」、「Ｔ６００１」（ポリカーボネートジオール）、クラレ社製の「Ｃ－１０９０」、「Ｃ－２０９０」、「Ｃ－３０９０」（ポリカーボネートジオール）等が挙げられる。ポリエーテルエーテルケ

トン樹脂の具体例としては、住友化学社製の「スミプロイＫ」等が挙げられる。

[0159] ポリエステル樹脂としては、例えばポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリエチレンナフタレート樹脂、ポリブチレンテレフタレート樹脂、ポリブチレンナフタレート樹脂、ポリトリメチレンテレフタレート樹脂、ポリトリメチレンナフタレート樹脂、ポリシクロヘキサンジメチルテレフタレート樹脂等が挙げられる。

[0160] （Ｅ）熱可塑性樹脂の重量平均分子量（Ｍｗ）は、本発明の効果を顕著に得る観点から好ましくは５，０００以上、より好ましくは８，０００以上、さらに好ましくは１０，０００以上、特に好ましくは２０，０００以上であり、好ましくは１００，０００以下、より好ましくは７０，０００以下、さらに好ましくは６０，０００以下、特に好ましくは５０，０００以下である。

[0161] 樹脂組成物中の（Ｅ）熱可塑性樹脂の含有量は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、好ましくは２０質量％以下、より好ましくは１５質量％以下、さらに好ましくは１０質量％以下、さらにより好ましくは７質量％以下、特に好ましくは５質量％以下であり得る。樹脂組成物中の（Ｅ）熱可塑性樹脂の含有量の下限は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、例えば、０質量％以上、０．０１質量％以上、０．１質量％以上、０．５質量％以上、１質量％以上等であり得る。

[0162] ＜（Ｆ）応力緩和材＞

本発明の樹脂組成物は、（Ｆ）応力緩和材を含有する。（Ｆ）応力緩和材は、柔軟性を有する樹脂を意味し、樹脂組成物中で粒子の形態を維持する粒子状樹脂成分（粒子状の応力緩和材）、或いは樹脂組成物に混和又は溶解する傾向のある非粒子状樹脂成分（非粒子状の応力緩和材）であり得、それらの一方のみが含まれていても又はそれらの両方が含まれていてもよく、それらを形成する樹脂成分は、樹脂そのものがゴム弾性を示す樹脂、又は他の成

分と反応することによりゴム弾性を示す樹脂であり得る。ゴム弾性を示す樹脂としては、例えば、日本工業規格（ＪＩＳ　Ｋ７１６１）に準拠し、温度２５℃、湿度４０％ＲＨにて、引っ張り試験を行った場合に、１ＧＰａ以下の弾性率を示す樹脂が挙げられる。

[0163] 粒子状の応力緩和材は、球状であることが好ましい。また、粒子状の応力緩和材は、粒子内部に空孔を有する中空粒子であっても、粒子内部に空孔を有さない非中空粒子であってもよい。中空粒子は、粒子内部に空孔を１個のみ有する単中空粒子であっても、粒子内部に複数の空孔を有する多中空粒子であってもよい。

[0164] 粒子状の応力緩和材は、例えば、ゴム成分を含むゴム粒子であり、ポリジメチルシロキサン等のシリコーン系エラストマー；ポリブタジエン、ポリイソプレン、ポリクロロブタジエン、エチレン－酢酸ビニル共重合体、スチレン－ブタジエン共重合体、スチレン－イソプレン共重合体、スチレン－イソブチレン共重合体、アクリロニトリル－ブタジエン共重合体、イソプレン－イソブチレン共重合体、イソブチレン－ブタジエン共重合体、エチレン－プロピレン－ブタジエン三元共重合体、エチレン－プロピレン－ブテン三元共重合体等のオレフィン系熱可塑性エラストマー；ポリ（メタ）アクリル酸プロピル、ポリ（メタ）アクリル酸ブチル、ポリ（メタ）アクリル酸シクロヘキシル、ポリ（メタ）アクリル酸オクチル等のアクリル系熱可塑性エラストマー等の熱可塑性エラストマー等をゴム成分として含むゴム粒子であることが好ましい。さらにゴム成分には、ポリオルガノシロキサンゴム等のシリコーン系ゴムを混合してもよい。ゴム粒子に含まれるゴム成分は、ガラス転移温度が例えば０℃以下であり、－１０℃以下が好ましく、－２０℃以下がより好ましく、－３０℃以下がさらに好ましい。

[0165] 粒子状の応力緩和材は、コア－シェル型ゴム粒子を含むことが好ましい。コア－シェル型ゴム粒子とは、上記で挙げたようなゴム成分を含むコア粒子と、それを覆う１層以上のシェル部からなる粒子状の応力緩和材である。さらに、コア－シェル型ゴム粒子は、上記で挙げたようなゴム成分を含むコア

粒子と、コア粒子に含まれるゴム成分と共重合可能なモノマー成分をグラフト共重合させたシェル部からなるコアーシェル型グラフト共重合体ゴム粒子であることが好ましい。ここでいうコアーシェル型とは、必ずしもコア粒子とシェル部が明確に区別できるもののみを指しているわけではなく、コア粒子とシェル部の境界が不明瞭なものも含み、コア粒子はシェル部で完全に被覆されていなくてもよい。

[0166] ゴム成分は、コアーシェル型ゴム粒子中に、４０質量％以上含有することが好ましく、５０質量％以上含有することがより好ましく、６０質量％以上含有することがさらに好ましい。コアーシェル型ゴム粒子中のゴム成分の含有量の上限は、特に限定されるものではないが、コア粒子をシェル部で十分に被覆する観点から、例えば、９５質量％以下、９０質量％であることが好ましい。

[0167] コアーシェル型ゴム粒子のシェル部を形成するモノマー成分は、例えば、（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸エチル、（メタ）アクリル酸ブチル、（メタ）アクリル酸シクロヘキシル、（メタ）アクリル酸オクチル、（メタ）アクリル酸グリシジル等の（メタ）アクリル酸エステル；（メタ）アクリル酸；Ｎ－メチルマレイミド、Ｎ－フェニルマレイミド等のＮ－置換マレイミド；マレイミド；マレイン酸、イタコン酸等のα，β－不飽和カルボン酸；スチレン、４－ビニルトルエン、α－メチルスチレン等の芳香族ビニル化合物；（メタ）アクリロニトリル等を含み、中でも、（メタ）アクリル酸エステルを含むことが好ましく、（メタ）アクリル酸メチルを含むことがより好ましい。なお、「（メタ）アクリル酸」とは、メタクリル酸又はアクリル酸である。

[0168] コアーシェル型ゴム粒子の市販品としては、例えば、チェイルインダストリーズ社製の「ＣＨＴ」；ＵＭＧＡＢＳ社製の「Ｂ６０２」；ダウ・ケミカル日本社製の「パラロイドＥＸＬ－２６０２」、「パラロイドＥＸＬ－２６０３」、「パラロイドＥＸＬ－２６５５」、「パラロイドＥＸＬ－２３１１」、「パラロイド－ＥＸＬ２３１３」、「パラロイドＥＸＬ－２３１５」、

「パラロイドＫＭ－３３０」、「パラロイドＫＭ－３３６Ｐ」、「パラロイドＫＣＺ－２０１」、三菱レイヨン社製の「メタブレンＣ－２２３Ａ」、「メタブレンＥ－９０１」、「メタブレンＳ－２００１」、「メタブレンＷ－４５０Ａ」「メタブレンＳＲＫ－２００」、カネカ社製の「カネエースＭ－５１１」、「カネエースＭ－６００」、「カネエースＭ－４００」、「カネエースＭ－５８０」、「カネエースＭＲ－０１」；ガンツ化成製の「ＡＣ３４０１Ｎ」、「ＡＣ３８１６Ｎ」等が挙げられる。

[0169] 粒子状の応力緩和材の平均粒径（平均一次粒子径）は、特に限定されるものではないが、好ましくは２０ｎｍ以上、より好ましくは３０ｎｍ以上、さらに好ましくは５０ｎｍ以上である。粒子状の応力緩和材の平均粒径（平均一次粒子径）の上限は、特に限定されるものではないが、好ましくは１０，０００ｎｍ以下、より好ましくは５，０００ｎｍ以下、さらに好ましくは１，０００ｎｍ以下である。粒子状の応力緩和材の平均粒径（平均一次粒子径）は、ゼータ電位粒度分布測定装置等を用いて測定できる。

[0170] 非粒子状の応力緩和材は、分子内にポリブタジエン構造、ポリシロキサン構造、ポリ（メタ）アクリレート構造、ポリアルキレン構造、ポリアルキレンオキシ構造、ポリイソプレン構造、ポリイソブチレン構造、及びポリカーボネート構造から選択される１種以上の構造を有する樹脂を含むことが好ましく、ポリブタジエン構造及びポリカーボネート構造から選ばれる１種以上の構造を有する樹脂を含むことがより好ましく、ポリブタジエン構造及びフェノール性水酸基を有する樹脂（フェノール性水酸基含有ポリブタジエン樹脂）又はポリカーボネート構造を有する樹脂（ポリカーボネート樹脂）を含むことが特に好ましい。なお、「（メタ）アクリレート」とは、メタクリレート及びアクリレートを指す。

[0171] ポリブタジエン構造は、ブタジエンを重合して形成される構造だけでなく、当該構造に水素添加して形成される構造も含む。また、ポリブタジエン構造は、その一部のみが水素添加されていてもよく、その全てが水素添加されていてもよい。さらに、ポリブタジエン構造は、応力緩和材分子において、

主鎖に含まれていてもよく、側鎖に含まれていてもよい。

[0172] ポリブタジエン樹脂の好ましい例としては、水素化ポリブタジエン骨格含有樹脂、ヒドロキシ基含有ポリブタジエン樹脂、フェノール性水酸基含有ポリブタジエン樹脂、カルボキシ基含有ポリブタジエン樹脂、酸無水物基含有ポリブタジエン樹脂、エポキシ基含有ポリブタジエン樹脂、イソシアネート基含有ポリブタジエン樹脂、ウレタン基含有ポリブタジエン樹脂等が挙げられる。中でも、フェノール性水酸基含有ポリブタジエン樹脂、及びエポキシ基含有ポリブタジエン樹脂が更に好ましく、フェノール性水酸基含有ポリブタジエン樹脂が特に好ましい。ここで、「水素化ポリブタジエン骨格含有樹脂」とは、ポリブタジエン骨格の少なくとも一部が水素化された樹脂をいい、必ずしもポリブタジエン骨格が完全に水素化された樹脂である必要はない。水素化ポリブタジエン骨格含有樹脂としては、例えば、水素化ポリブタジエン骨格含有エポキシ樹脂等が挙げられる。好ましいフェノール性水酸基含有ポリブタジエン樹脂の例としては、例えば、ヒドロキシル基末端ポリブタジエン、ジイソシアネート化合物及びフェノール性水酸基含有樹脂を原料とするものが挙げられる。ここで、ヒドロキシル基末端ポリブタジエン及びジイソシアネート化合物は下記の例示のものと同様のものが挙げられる。フェノール性水酸基含有樹脂としては、例えば、クレゾールノボラック樹脂等が挙げられる。

[0173] ポリブタジエン樹脂の具体例としては、ダイセル社製の「ＰＢ－３６００」（エポキシ基含有ポリブタジエン）、日本曹達社製の「ＪＰ－１００」、「ＪＰ－２００」（エポキシ基含有ポリブタジエン）、クレイバレー社製の「Ｒｉｃｏｎ　６５７」（エポキシ基含有ポリブタジエン）、「Ｒｉｃｏｎ　１３０ＭＡ８」、「Ｒｉｃｏｎ　１３０ＭＡ１３」、「Ｒｉｃｏｎ　１３０ＭＡ２０」、「Ｒｉｃｏｎ　１３１ＭＡ５」、「Ｒｉｃｏｎ　１３１ＭＡ１０」、「Ｒｉｃｏｎ　１３１ＭＡ１７」、「Ｒｉｃｏｎ　１３１ＭＡ２０」、「Ｒｉｃｏｎ　１８４ＭＡ６」（酸無水物基含有ポリブタジエン）、「ＧＱ－１０００」（水酸基、カルボキシル基導入ポリブタジエン）、日本曹

達社製の「Ｇ－１０００」、「Ｇ－２０００」、「Ｇ－３０００」（両末端水酸基ポリブタジエン）、「ＧＩ－１０００」、「ＧＩ－２０００」、「ＧＩ－３０００」（両末端水酸基水素化ポリブタジエン）、ダイセル社製の「ＰＢ３６００」、「ＰＢ４７００」（ポリブタジエン骨格エポキシ化合物）、「エポフレンドＡ１００５」、「エポフレンドＡ１０１０」、「エポフレンドＡ１０２０」（スチレンとブタジエンとスチレンブロック共重合体のエポキシ化合物）、ナガセケムテックス社製の「ＦＣＡ－０６１Ｌ」（水素化ポリブタジエン骨格エポキシ化合物）、「Ｒ－４５ＥＰＴ」（ポリブタジエン骨格エポキシ化合物）等が挙げられる。

[0174] また、好ましいポリブタジエン樹脂の例としては、ヒドロキシル基末端ポリブタジエン、ジイソシアネート化合物及び多塩基酸またはその無水物を原料とする線状ポリイミド（特開２００６－３７０８３号公報、国際公開第２００８／１５３２０８号に記載のポリイミド）も挙げられる。該ポリイミド樹脂のポリブタジエン構造の含有率は、好ましくは６０質量％～９５質量％、より好ましくは７５質量％～８５質量％である。該ポリイミド樹脂の詳細は、特開２００６－３７０８３号公報、国際公開第２００８／１５３２０８号の記載を参酌することができ、この内容は本明細書に組み込まれる。

[0175] ヒドロキシル基末端ポリブタジエンの数平均分子量は、好ましくは５００～５，０００、より好ましくは８００～３，５００である。ヒドロキシル基末端ポリブタジエンの水酸基当量は、好ましくは２５０～５，０００ｇ／ｅｑ．、より好ましくは１，０００～３，０００ｇ／ｅｑ．である。

[0176] ジイソシアネート化合物としては、例えば、トルエン－２，４－ジイソシアネート、トルエン－２，６－ジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、ジフェニルメタンジイソシアネート等の芳香族ジイソシアネート；ヘキサメチレンジイソシアネート等の脂肪族ジイソシアネート；イソホロンジイソシアネート等の脂環式ジイソシアネートが挙げられる。これらの中で芳香族ジイソシアネートが好ましく、トルエン－２，４－ジイソシアネートがより好ましい。

[0177] 多塩基酸またはその無水物としては、例えば、エチレングリコールビストリメリット酸、ピロメリット酸、ベンゾフェノンテトラカルボン酸、ビフェニルテトラカルボン酸、ナフタレンテトラカルボン酸、５－（２，５－ジオキソテトラヒドロフリル）－３－メチル－シクロヘキセン－１，２－ジカルボン酸、３，３’－４，４’－ジフェニルスルホンテトラカルボン酸等の四塩基酸およびこれらの無水物、トリメリット酸、シクロヘキサントリカルボン酸等の三塩基酸およびこれらの無水物、１，３，３ａ，４，５，９ｂ－ヘキサヒドロ－５－（テトラヒドロ－２，５－ジオキソ－３－フラニル）－ナフト（１，２－Ｃ）フラン－１，３－ジオン等が挙げられる。

[0178] また、ポリブタジエン樹脂には、スチレンを重合して得られる構造を有するポリスチレン構造が含まれ得る。

[0179] ポリスチレン構造を分子内に有する樹脂であるポリスチレン樹脂の具体例としては、スチレン－ブタジエン－スチレンブロック共重合体（ＳＢＳ）、スチレン－イソプレン－スチレンブロック共重合体（ＳＩＳ）、スチレン－エチレン－ブチレン－スチレンブロック共重合体（ＳＥＢＳ）、スチレン－エチレン－プロピレン－スチレンブロック共重合体（ＳＥＰＳ）、スチレン－エチレン－エチレン－プロピレン-スチレンブロック共重合体（ＳＥＥＰＳ）、スチレン－ブタジエン－ブチレン－スチレンブロック共重合体（ＳＢＢＳ）、スチレン－ブタジエンジブロックコポリマー、水添スチレン－ブタジエンブロック共重合体、水素添加スチレン－イソプレンブロック共重合体、水添スチレン－ブタジエンランダム共重合体等が挙げられる。

[0180] ポリスチレン樹脂は、市販品を用いてもよく、例えば、水添スチレン系熱可塑性エラストマー「Ｈ１０４１」、「タフテックＨ１０４３」、「タフテックＰ２０００」、「タフテックＭＰ１０」（旭化成社製）；エポキシ化スチレン－ブタジエン熱可塑性エラストマー「エポフレンドＡＴ５０１」、「ＣＴ３１０」（ダイセル社製）；ヒドロキシル基を有する変成スチレン系エラストマー「セプトンＨＧ２５２」（クラレ社製）；カルボキシル基を有する変性スチレン系エラストマー「タフテックＮ５０３Ｍ」、アミノ基を有す

る変性スチレン系エラストマー「タフテックＮ５０１」、酸無水物基を有する変性スチレン系エラストマー「タフテックＭ１９１３」（旭化成ケミカルズ社製）；未変性スチレン系エラストマー「セプトンＳ８１０４」（クラレ社製）等を挙げることができる。（Ｃ）成分は、１種類単独で用いてもよく、２種類以上を組み合わせて用いてもよい。

[0181] ポリシロキサン構造は、シロキサン結合を含む構造であり、例えばシリコーンゴムに含まれる。ポリシロキサン構造は、応力緩和材分子において、主鎖に含まれていてもよく、側鎖に含まれていてもよい。

[0182] ポリシロキサン構造を分子内に有する樹脂であるポリシロキサン樹脂の具体例としては、信越シリコーン社製の「ＳＭＰ－２００６」、「ＳＭＰ－２００３ＰＧＭＥＡ」、「ＳＭＰ－５００５ＰＧＭＥＡ」、アミン基末端ポリシロキサン、四塩基酸無水物を原料とする線状ポリイミド（国際公開第２０１０／０５３１８５号）等が挙げられる。

[0183] ポリ（メタ）アクリレート構造は、アクリル酸又はアクリル酸エステルを重合して形成される構造であり、メタクリル酸又はメタクリル酸エステルを重合して形成される構造も含む。（メタ）アクリレート構造は、応力緩和材分子において、主鎖に含まれていてもよく、側鎖に含まれていてもよい。

[0184] ポリ（メタ）アクリレート構造を分子内に有する樹脂であるポリ（メタ）アクリレート樹脂の好ましい例としては、ヒドロキシ基含有ポリ（メタ）アクリレート樹脂、フェノール性水酸基含有ポリ（メタ）アクリレート樹脂、カルボキシ基含有ポリ（メタ）アクリレート樹脂、酸無水物基含有ポリ（メタ）アクリレート樹脂、エポキシ基含有ポリ（メタ）アクリレート樹脂、イソシアネート基含有ポリ（メタ）アクリレート樹脂、ウレタン基含有ポリ（メタ）アクリレート樹脂等が挙げられる。

[0185] ポリ（メタ）アクリレート樹脂の具体例としては、ナガセケムテックス社製のテイサンレジン「ＳＧ－７０Ｌ」、「ＳＧ－７０８－６」、「ＷＳ－０２３」、「ＳＧ－７００ＡＳ」、「ＳＧ－２８０ＴＥＡ」（カルボキシ基含有アクリル酸エステル共重合体樹脂、酸価５～３４ｍｇＫＯＨ／ｇ、重量平

均分子量４０万～９０万、Ｔｇ－３０℃～５℃）、「ＳＧ－８０Ｈ」、「ＳＧ－８０Ｈ－３」、「ＳＧ－Ｐ３」（エポキシ基含有アクリル酸エステル共重合体樹脂、エポキシ当量４７６１～１４２８５ｇ／ｅｑ、重量平均分子量３５万～８５万、Ｔｇ１１℃～１２℃）、「ＳＧ－６００ＴＥＡ」、「ＳＧ－７９０」」（ヒドロキシ基含有アクリル酸エステル共重合体樹脂、水酸基価２０～４０ｍｇＫＯＨ／ｇ、重量平均分子量５０万～１２０万、Ｔｇ－３７℃～－３２℃）、根上工業社製の「ＭＥ－２０００」、「Ｗ－１１６．３」（カルボキシ基含有アクリル酸エステル共重合体樹脂）、「Ｗ－１９７Ｃ」（水酸基含有アクリル酸エステル共重合体樹脂）、「ＫＧ－２５」、「ＫＧ－３０００」（エポキシ基含有アクリル酸エステル共重合体樹脂）等が挙げられる。

[0186] ポリアルキレン構造は、所定の炭素原子数を有することが好ましい。ポリアルキレン構造の具体的な炭素原子数は、好ましくは２以上、より好ましくは３以上、特に好ましくは５以上であり、好ましくは１５以下、より好ましくは１０以下、特に好ましくは６以下である。また、ポリアルキレン構造は、応力緩和材分子において、主鎖に含まれていてもよく、側鎖に含まれていてもよい。

[0187] ポリアルキレンオキシ構造は、所定の炭素原子数を有することが好ましい。ポリアルキレンオキシ構造の具体的な炭素原子数は、好ましくは２以上、好ましくは３以上、より好ましくは５以上であり、好ましくは１５以下、より好ましくは１０以下、特に好ましくは６以下である。ポリアルキレンオキシ構造は、応力緩和材分子において、主鎖に含まれていてもよく、側鎖に含まれていてもよい。

[0188] ポリアルキレン構造を分子内に有する樹脂であるポリアルキレン樹脂及びポリアルキレンオキシ構造を分子内に有する樹脂であるポリアルキレンオキシ樹脂の具体例としては、旭化成せんい社製の「ＰＴＸＧ－１０００」、「ＰＴＸＧ－１８００」、三菱ケミカル社製の「ＹＸ－７１８０」（エーテル結合を有するアルキレン構造を含有する樹脂）、ＤＩＣ　Ｃｏｒｐｏｒａｔ

ｉｏｎ社製の「ＥＸＡ－４８５０－１５０」、「ＥＸＡ－４８１６」、「ＥＸＡ－４８２２」、ＡＤＥＫＡ社製の「ＥＰ－４０００」、「ＥＰ－４００３」、「ＥＰ－４０１０」、「ＥＰ－４０１１」、新日本理化社製の「ＢＥＯ－６０Ｅ」、「ＢＰＯ－２０Ｅ」、三菱ケミカル社製の「ＹＬ７１７５」、「ＹＬ７４１０」等が挙げられる。

[0189] ポリイソプレン構造は、応力緩和材分子において、主鎖に含まれていてもよく、側鎖に含まれていてもよい。ポリイソプレン構造を分子内に有する樹脂であるポリイソプレン樹脂の具体例としては、クラレ社製の「ＫＬ－６１０」、「ＫＬ－６１３」等が挙げられる。

[0190] ポリイソブチレン構造は、応力緩和材分子において、主鎖に含まれていてもよく、側鎖に含まれていてもよい。ポリイソブチレン構造を分子内に有する樹脂であるポリイソブチレン樹脂の具体例としては、カネカ社製の「ＳＩＢＳＴＡＲ－０７３Ｔ」（スチレン－イソブチレン－スチレントリブロック共重合体）、「ＳＩＢＳＴＡＲ－０４２Ｄ」（スチレン－イソブチレンジブロック共重合体）等が挙げられる。

[0191] ポリカーボネート構造は、応力緩和材分子において、主鎖に含まれていてもよく、側鎖に含まれていてもよい。

[0192] ポリカーボネート構造を分子内に有する樹脂であるポリカーボネート樹脂の好ましい例としては、ヒドロキシ基含有ポリカーボネート樹脂、フェノール性水酸基含有ポリカーボネート樹脂、カルボキシ基含有ポリカーボネート樹脂、酸無水物基含有ポリカーボネート樹脂、エポキシ基含有ポリカーボネート樹脂、イソシアネート基含有ポリカーボネート樹脂、ウレタン基含有ポリカーボネート樹脂等が挙げられる。

[0193] ポリカーボネート樹脂の具体例としては、旭化成ケミカルズ社製の「Ｔ６００２」、「Ｔ６００１」（ポリカーボネートジオール）、クラレ社製の「Ｃ－１０９０」、「Ｃ－２０９０」、「Ｃ－３０９０」（ポリカーボネートジオール）等が挙げられる。

[0194] また、好ましいポリカーボネート樹脂の例としては、ヒドロキシル基末端

ポリカーボネート、ジイソシアネート化合物及び多塩基酸またはその無水物を原料とする線状ポリイミドも挙げられる。該線状ポリイミドは、ウレタン構造およびポリカーボネート構造を有する。該ポリイミド樹脂のポリカーボネート構造の含有率は、好ましくは６０質量％～９５質量％、より好ましくは７５質量％～８５質量％である。該ポリイミド樹脂の詳細は、国際公開第２０１６／１２９５４１号の記載を参酌することができ、この内容は本明細書に組み込まれる。

[0195] ヒドロキシル基末端ポリカーボネートの数平均分子量は、好ましくは５００～５，０００、より好ましくは１，０００～３，０００である。ヒドロキシル基末端ポリカーボネートの水酸基当量は、好ましくは２５０～１，２５０である。

[0196] 非粒子状の応力緩和材は、さらにイミド構造を有することが好ましい。イミド構造を有することにより、非粒子状の応力緩和材の耐熱性を高めクラック耐性を効果的に高めることができる。

[0197] 非粒子状の応力緩和材の化学構造は、直鎖状、分枝状、及び環状のいずれの構造であってもよいが、直鎖状であることが好ましい。

[0198] 非粒子状の応力緩和材は、さらにエポキシ樹脂と反応できる官能基を有することが好ましい。この官能基には、加熱によって現れる反応基も含まれる。非粒子状の応力緩和材が官能基を有することにより、樹脂組成物の硬化物の機械的強度を向上させることができる。

[0199] 官能基としては、カルボキシ基、ヒドロキシ基、酸無水物基、フェノール性水酸基、エポキシ基、イソシアネート基、およびウレタン基などが挙げられる。中でも、本発明の効果を顕著に得る観点から、官能基としては、ヒドロキシル基、酸無水物基、フェノール性水酸基、エポキシ基、イソシアネート基及びウレタン基から選択される１種以上の官能基を有することが好ましく、フェノール性水酸基が特に好ましい。

[0200] 非粒子状の応力緩和材は、１種類単独で用いてもよく、２種類以上を組み合わせて用いてもよい。

[0201] 非粒子状の応力緩和材の具体的な数平均分子量Ｍｎは、好ましくは５００以上、より好ましくは８００以上、更に好ましくは１，０００以上、特に好ましくは１，２００以上であり、好ましくは１００，０００以下、より好ましくは５０，０００以下、特に好ましくは１０，０００以下である。非粒子状の応力緩和材の数平均分子量Ｍｎは、ＧＰＣ（ゲル浸透クロマトグラフィー）を使用して測定されるポリスチレン換算の数平均分子量である。

[0202] 非粒子状の応力緩和材が官能基を有する場合、非粒子状の応力緩和材の官能基当量は、好ましくは１００ｇ／ｅｑ．以上、より好ましくは２００ｇ／ｅｑ．以上、更に好ましくは１，０００ｇ／ｅｑ．以上、特に好ましくは２，５００ｇ／ｅｑ．以上であり、好ましくは５０，０００ｇ／ｅｑ．以下、より好ましくは３０，０００ｇ／ｅｑ．以下、更に好ましくは１０，０００ｇ／ｅｑ．以下、特に好ましくは５，０００ｇ／ｅｑ．以下である。官能基当量は、１グラム当量の官能基を含む樹脂のグラム数である。例えば、エポキシ基当量は、ＪＩＳ　Ｋ７２３６に従って測定することができる。また、例えば、水酸基当量はＪＩＳ　Ｋ１５５７－１に従って測定した水酸基価でＫＯＨの分子量を割ることで算出することができる。

[0203] （Ｆ）応力緩和材のガラス転移温度（Ｔｇ）は、好ましくは２０℃以下、より好ましくは１０℃以下、さらに好ましくは０℃以下である。

[0204] 樹脂組成物中の（Ｆ）応力緩和材の含有量は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、好ましくは５０質量％以下、より好ましくは３０質量％以下、さらに好ましくは２０質量％以下、さらにより好ましくは１０質量％以下、特に好ましくは５質量％以下である。樹脂組成物中の（Ｆ）応力緩和材の含有量の下限は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、好ましくは０．０１質量％以上、より好ましくは０．０５質量％以上、さらに好ましくは０．１質量％以上、さらにより好ましくは０．３質量％以上、特に好ましくは０．５質量％以上である。

[0205] ＜（Ｇ）ラジカル重合開始剤＞

本発明の樹脂組成物は、任意成分として（Ｇ）ラジカル重合開始剤を含んでいてもよい。（Ｇ）ラジカル重合開始剤は、例えば、加熱時にフリーラジカルを発生させる熱重合開始剤であり得る。（Ｇ）ラジカル重合開始剤は、（Ａ）及び（Ｂ）成分に含まれるラジカル重合性基の重合開始剤であり得る。（Ｇ）ラジカル重合開始剤は、１種類単独で用いてもよく、２種類以上を任意に組み合わせて用いてもよい。

[0206] （Ｇ）ラジカル重合開始剤としては、例えば、過酸化物系ラジカル重合開始剤、アゾ系ラジカル重合開始剤等が挙げられる。中でも、過酸化物系ラジカル重合開始剤が好ましい。

[0207] 過酸化物系ラジカル重合開始剤としては、例えば、１，１，３，３－テトラメチルブチルハイドロパーオキサイド等のハイドロパーオキサイド化合物；ｔｅｒｔ－ブチルクミルパーオキサイド、ジ－ｔｅｒｔ－ブチルパーオキサイド、ジ－ｔｅｒｔ－ヘキシルパーオキサイド、ジクミルパーオキサイド、１，４－ビス（１－ｔｅｒｔ－ブチルパーオキシ－１－メチルエチル）ベンゼン、２，５－ジメチル－２，５－ビス（ｔｅｒｔ－ブチルパーオキシ）ヘキサン等のジアルキルパーオキサイド化合物；ジラウロイルパーオキサイド、ジデカノイルパーオキサイド、ジシクロヘキシルパーオキシジカーボネート、ビス（４－ｔｅｒｔ－ブチルシクロヘキシル）パーオキシジカーボネート等のジアシルパーオキサイド化合物；ｔｅｒｔ－ブチルパーオキシアセテート、ｔｅｒｔ－ブチルパーオキシベンゾエート、ｔｅｒｔ－ブチルパーオキシイソプロピルモノカーボネート、ｔｅｒｔ－ブチルパーオキシ－２－エチルヘキサノエート、ｔｅｒｔ－ブチルパーオキシネオデカノエート、ｔｅｒｔ－ヘキシルパーオキシイソプロピルモノカーボネート、ｔｅｒｔ－ブチルパーオキシラウレート、（１，１－ジメチルプロピル）２－エチルパーヘキサノエート、ｔｅｒｔ－ブチル２－エチルパーヘキサノエート、ｔｅｒｔ－ブチル３，５，５－トリメチルパーヘキサノエート、ｔｅｒｔ－ブチルパーオキシ－２－エチルヘキシルモノカーボネート、ｔｅｒｔ－ブチルパーオキシマレイン酸等のパーオキシエステル化合物；等が挙げられる。

[0208] アゾ系ラジカル重合開始剤としては、例えば、２，２’－アゾビス（４－メトキシ－２，４－ジメチルバレロニトリル）、２，２’－アゾビス（２，４－ジメチルバレロニトリル）、２，２’－アゾビスイソブチロニトリル、２，２’－アゾビス（２－メチルブチロニトリル）、１，１’－アゾビス（シクロヘキサン－１－カルボニトリル）、１－［（１－シアノ－１－メチルエチル）アゾ］ホルムアミド、２－フェニルアゾ－４－メトキシ－２，４－ジメチル－バレロニトリル等のアゾニトリル化合物；２，２’－アゾビス［２－メチル－Ｎ－［１，１－ビス（ヒドロキシメチル）－２－ヒドロキシエチル］プロピオンアミド］、２，２’－アゾビス［２－メチル－Ｎ－［１，１－ビス（ヒドロキシメチル）エチル］プロピオンアミド］、２，２’－アゾビス［２－メチル－Ｎ－［２－（１－ヒドロキシブチル）］－プロピオンアミド］、２，２’－アゾビス［２－メチル－Ｎ－（２－ヒドロキシエチル）－プロピオンアミド］、２，２’－アゾビス（２－メチルプロピオンアミド）ジハイドレート、２，２’－アゾビス［Ｎ－（２－プロペニル）－２－メチルプロピオンアミド］、２，２’－アゾビス（Ｎ－ブチル－２－メチルプロピオンアミド）、２，２’－アゾビス（Ｎ－シクロヘキシル－２－メチルプロピオンアミド）等のアゾアミド化合物；２，２’－アゾビス（２，４，４－トリメチルペンタン）、２，２’－アゾビス（２－メチルプロパン）等のアルキルアゾ化合物；等が挙げられる。

[0209] （Ｇ）ラジカル重合開始剤の市販品としては、例えば、日油社製の「パーブチルＣ」、「パーブチルＡ」、「パーブチルＰ」、「パーブチルＬ」、「パーブチルＯ」、「パーブチルＮＤ」、「パーブチルＺ」、「パーブチルＩ」、「パークミルＰ」、「パークミルＤ」、「パーヘキシルＤ」、「パーヘキシルＡ」、「パーヘキシルＩ」、「パーヘキシルＺ」、「パーヘキシルＮＤ」、「パーヘキシルＯ」、「パーヘキシルＰＶ」等が挙げられる。

[0210] 樹脂組成物中の（Ｇ）ラジカル重合開始剤の含有量は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、好ましくは５質量％以下、より好ましくは２質量％以下、さらに好ましくは１．

５質量％以下、特に好ましくは１質量％以下であり得る。樹脂組成物中の（Ｇ）ラジカル重合開始剤の含有量の下限は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、例えば、０質量％以上、０．０００１質量％以上であり、好ましくは０．００１質量％以上、より好ましくは０．０１質量％以上、さらに好ましくは０．０５質量％以上、特に好ましくは０．１質量％以上等であり得る。

[0211] ＜（Ｈ）硬化促進剤＞

本発明の樹脂組成物は、任意の成分として（Ｈ）硬化促進剤を含んでいてもよい。（Ｈ）硬化促進剤は、（Ｃ）熱硬化性樹脂として（Ｃ１）エポキシ樹脂が含まれる場合に、（Ｃ１）エポキシ樹脂の硬化を促進させる硬化触媒としての機能を有する。

[0212] （Ｈ）硬化促進剤としては、例えば、リン系硬化促進剤、ウレア系硬化促進剤、グアニジン系硬化促進剤、イミダゾール系硬化促進剤、金属系硬化促進剤、アミン系硬化促進剤等が挙げられる。中でも、アミン系硬化促進剤、及び金属系硬化促進剤から選ばれる硬化促進剤が好ましく、アミン系硬化促進剤が特に好ましい。（Ｈ）硬化促進剤は、１種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。

[0213] リン系硬化促進剤としては、例えば、テトラブチルホスホニウムブロマイド、テトラブチルホスホニウムクロライド、テトラブチルホスホニウムアセテート、テトラブチルホスホニウムデカノエート、テトラブチルホスホニウムラウレート、ビス（テトラブチルホスホニウム）ピロメリテート、テトラブチルホスホニウムハイドロジェンヘキサヒドロフタレート、テトラブチルホスホニウム２，６－ビス［（２－ヒドロキシ－５－メチルフェニル）メチル］－４－メチルフェノラート、ジ－ｔｅｒｔ－ブチルジメチルホスホニウムテトラフェニルボレート等の脂肪族ホスホニウム塩；メチルトリフェニルホスホニウムブロマイド、エチルトリフェニルホスホニウムブロマイド、プロピルトリフェニルホスホニウムブロマイド、ブチルトリフェニルホスホニウムブロマイド、ベンジルトリフェニルホスホニウムクロライド、テトラフ

ェニルホスホニウムブロマイド、ｐ－トリルトリフェニルホスホニウムテトラ－ｐ－トリルボレート、テトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート、テトラフェニルホスホニウムテトラｐ－トリルボレート、トリフェニルエチルホスホニウムテトラフェニルボレート、トリス（３－メチルフェニル）エチルホスホニウムテトラフェニルボレート、トリス（２－メトキシフェニル）エチルホスホニウムテトラフェニルボレート、（４－メチルフェニル）トリフェニルホスホニウムチオシアネート、テトラフェニルホスホニウムチオシアネート、ブチルトリフェニルホスホニウムチオシアネート等の芳香族ホスホニウム塩；トリフェニルホスフィン・トリフェニルボラン等の芳香族ホスフィン・ボラン複合体；トリフェニルホスフィン・ｐ－ベンゾキノン付加反応物等の芳香族ホスフィン・キノン付加反応物；トリブチルホスフィン、トリ－ｔｅｒｔ－ブチルホスフィン、トリオクチルホスフィン、ジ－ｔｅｒｔ－ブチル（２－ブテニル）ホスフィン、ジ－ｔｅｒｔ－ブチル（３－メチル－２－ブテニル）ホスフィン、トリシクロヘキシルホスフィン等の脂肪族ホスフィン；ジブチルフェニルホスフィン、ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニルホスフィン、メチルジフェニルホスフィン、エチルジフェニルホスフィン、ブチルジフェニルホスフィン、ジフェニルシクロヘキシルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリ－ｏ－トリルホスフィン、トリ－ｍ－トリルホスフィン、トリ－ｐ－トリルホスフィン、トリス（４－エチルフェニル）ホスフィン、トリス（４－プロピルフェニル）ホスフィン、トリス（４－イソプロピルフェニル）ホスフィン、トリス（４－ブチルフェニル）ホスフィン、トリス（４－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）ホスフィン、トリス（２，４－ジメチルフェニル）ホスフィン、トリス（２，５－ジメチルフェニル）ホスフィン、トリス（２，６－ジメチルフェニル）ホスフィン、トリス（３，５－ジメチルフェニル）ホスフィン、トリス（２，４，６－トリメチルフェニル）ホスフィン、トリス（２，６－ジメチル－４－エトキシフェニル）ホスフィン、トリス（２－メトキシフェニル）ホスフィン、トリス（４－メトキシフェニル）ホスフィン、トリス（４－エトキシフェニル）ホスフィン

、トリス（４－ｔｅｒｔ－ブトキシフェニル）ホスフィン、ジフェニル－２－ピリジルホスフィン、１，２－ビス（ジフェニルホスフィノ）エタン、１，３－ビス（ジフェニルホスフィノ）プロパン、１，４－ビス（ジフェニルホスフィノ）ブタン、１，２－ビス（ジフェニルホスフィノ）アセチレン、２，２’－ビス（ジフェニルホスフィノ）ジフェニルエーテル等の芳香族ホスフィン等が挙げられる。

[0214] ウレア系硬化促進剤としては、例えば、１，１－ジメチル尿素；１，１，３－トリメチル尿素、３－エチル－１，１－ジメチル尿素、３－シクロヘキシル－１，１－ジメチル尿素、３－シクロオクチル－１，１－ジメチル尿素等の脂肪族ジメチルウレア；３－フェニル－１，１－ジメチル尿素、３－（４－クロロフェニル）－１，１－ジメチル尿素、３－（３，４－ジクロロフェニル）－１，１－ジメチル尿素、３－（３－クロロ－４－メチルフェニル）－１，１－ジメチル尿素、３－（２－メチルフェニル）－１，１－ジメチル尿素、３－（４－メチルフェニル）－１，１－ジメチル尿素、３－（３，４－ジメチルフェニル）－１，１－ジメチル尿素、３－（４－イソプロピルフェニル）－１，１－ジメチル尿素、３－（４－メトキシフェニル）－１，１－ジメチル尿素、３－（４－ニトロフェニル）－１，１－ジメチル尿素、３－［４－（４－メトキシフェノキシ）フェニル］－１，１－ジメチル尿素、３－［４－（４－クロロフェノキシ）フェニル］－１，１－ジメチル尿素、３－［３－（トリフルオロメチル）フェニル］－１，１－ジメチル尿素、Ｎ，Ｎ－（１，４－フェニレン）ビス（Ｎ’，Ｎ’－ジメチル尿素）、Ｎ，Ｎ－（４－メチル－１，３－フェニレン）ビス（Ｎ’，Ｎ’－ジメチル尿素）〔トルエンビスジメチルウレア〕等の芳香族ジメチルウレア等が挙げられる。

[0215] グアニジン系硬化促進剤としては、例えば、ジシアンジアミド、１－メチルグアニジン、１－エチルグアニジン、１－シクロヘキシルグアニジン、１－フェニルグアニジン、１－（ｏ－トリル）グアニジン、ジメチルグアニジン、ジフェニルグアニジン、トリメチルグアニジン、テトラメチルグアニジ

ン、ペンタメチルグアニジン、１，５，７－トリアザビシクロ［４．４．０］デカ－５－エン、７－メチル－１，５，７－トリアザビシクロ［４．４．０］デカ－５－エン、１－メチルビグアニド、１－エチルビグアニド、１－ｎ－ブチルビグアニド、１－ｎ－オクタデシルビグアニド、１，１－ジメチルビグアニド、１，１－ジエチルビグアニド、１－シクロヘキシルビグアニド、１－アリルビグアニド、１－フェニルビグアニド、１－（ｏ－トリル）ビグアニド等が挙げられる。

[0216] イミダゾール系硬化促進剤としては、例えば、２－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、１，２－ジメチルイミダゾール、２－エチル－４－メチルイミダゾール、１，２－ジメチルイミダゾール、２－エチル－４－メチルイミダゾール、２－フェニルイミダゾール、２－フェニル－４－メチルイミダゾール、１－ベンジル－２－メチルイミダゾール、１－ベンジル－２－フェニルイミダゾール、１－シアノエチル－２－メチルイミダゾール、１－シアノエチル－２－ウンデシルイミダゾール、１－シアノエチル－２－エチル－４－メチルイミダゾール、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－ウンデシルイミダゾリウムトリメリテイト、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、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、２，４－ジアミノ－６－［２’－ウンデシルイミダゾリル－（１’）］－エチル－ｓ－トリアジン、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、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、２－フェニルイミダゾールイソシアヌル酸付加物、２－フェニル－４，５－ジヒドロキシメチルイミダゾール、２－フェニル－４－メチル－５－ヒドロキシメチルイミダゾール、２，３－ジヒドロ－１Ｈ－ピロロ［１，２－ａ］ベンズイミダゾール、１－ドデシル－２－メチル－３－ベンジルイミダゾリウムクロライド、２－メチルイミダゾリン、２－フェニルイミダゾリン等

のイミダゾール化合物及びイミダゾール化合物とエポキシ樹脂とのアダクト体が挙げられる。

[0217] イミダゾール系硬化促進剤としては、市販品を用いてもよく、例えば、四国化成工業社製の「１Ｂ２ＰＺ」、「２ＭＺＡ－ＰＷ」、「２ＰＨＺ－ＰＷ」、「Ｃ１１Ｚ－Ａ」、三菱ケミカル社製の「Ｐ２００－Ｈ５０」等が挙げられる。

[0218] 金属系硬化促進剤としては、例えば、コバルト、銅、亜鉛、鉄、ニッケル、マンガン、スズ等の金属の、有機金属錯体又は有機金属塩が挙げられる。有機金属錯体の具体例としては、コバルト（ＩＩ）アセチルアセトナート、コバルト（ＩＩＩ）アセチルアセトナート等の有機コバルト錯体、銅（ＩＩ）アセチルアセトナート等の有機銅錯体、亜鉛（ＩＩ）アセチルアセトナート等の有機亜鉛錯体、鉄（ＩＩＩ）アセチルアセトナート等の有機鉄錯体、ニッケル（ＩＩ）アセチルアセトナート等の有機ニッケル錯体、マンガン（ＩＩ）アセチルアセトナート等の有機マンガン錯体等が挙げられる。有機金属塩としては、例えば、オクチル酸亜鉛、オクチル酸錫、ナフテン酸亜鉛、ナフテン酸コバルト、ステアリン酸スズ、ステアリン酸亜鉛等が挙げられる。

[0219] アミン系硬化促進剤としては、例えば、トリエチルアミン、トリブチルアミン等のトリアルキルアミン、４－ジメチルアミノピリジン、ベンジルジメチルアミン、２，４，６，－トリス（ジメチルアミノメチル）フェノール、１，８－ジアザビシクロ（５，４，０）－ウンデセン等が挙げられる。

[0220] アミン系硬化促進剤としては、市販品を用いてもよく、例えば、味の素ファインテクノ社製の「ＭＹ－２５」等が挙げられる。

[0221] 樹脂組成物中の（Ｈ）硬化促進剤の含有量は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、好ましくは１５質量％以下、より好ましくは１０質量％以下、さらに好ましくは５質量％以下、特に好ましくは２質量％以下である。樹脂組成物中の（Ｈ）硬化促進剤の含有量の下限は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の不揮

発成分を１００質量％とした場合、例えば、０質量％以上、０．００１質量％以上、０．０１質量％以上等であり得る。

[0222] ＜（Ｉ）その他の添加剤＞

本発明の樹脂組成物は、さらに任意の添加剤を含んでいてもよい。このような添加剤としては、例えば、有機銅化合物、有機亜鉛化合物、有機コバルト化合物等の有機金属化合物；フタロシアニンブルー、フタロシアニングリーン、アイオディングリーン、ジアゾイエロー、クリスタルバイオレット、酸化チタン、カーボンブラック等の着色剤；ハイドロキノン、カテコール、ピロガロール、フェノチアジン等の重合禁止剤；シリコーン系レベリング剤、アクリルポリマー系レベリング剤等のレベリング剤；ベントン、モンモリロナイト等の増粘剤；シリコーン系消泡剤、アクリル系消泡剤、フッ素系消泡剤、ビニル樹脂系消泡剤等の消泡剤；ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤等の紫外線吸収剤；尿素シラン等の接着性向上剤；トリアゾール系密着性付与剤、テトラゾール系密着性付与剤、トリアジン系密着性付与剤等の密着性付与剤；ヒンダードフェノール系酸化防止剤等の酸化防止剤；スチルベン誘導体等の蛍光増白剤；フッ素系界面活性剤、シリコーン系界面活性剤等の界面活性剤；リン系難燃剤（例えばリン酸エステル化合物、ホスファゼン化合物、ホスフィン酸化合物、赤リン）、窒素系難燃剤（例えば硫酸メラミン）、ハロゲン系難燃剤、無機系難燃剤（例えば三酸化アンチモン）等の難燃剤；リン酸エステル系分散剤、ポリオキシアルキレン系分散剤、アセチレン系分散剤、シリコーン系分散剤、アニオン性分散剤、カチオン性分散剤等の分散剤；ボレート系安定剤、チタネート系安定剤、アルミネート系安定剤、ジルコネート系安定剤、イソシアネート系安定剤、カルボン酸系安定剤、カルボン酸無水物系安定剤等の安定剤等が挙げられる。（Ｉ）その他の添加剤は、１種を単独で用いてもよく、２種以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。（Ｉ）その他の添加剤の含有量は当業者であれば適宜設定できる。

[0223] ＜（Ｊ）有機溶剤＞

本発明の樹脂組成物は、さらに任意の有機溶剤を含有する場合がある。（

Ｊ）有機溶剤としては、公知のものを適宜用いることができ、その種類は特に限定されるものではない。（Ｊ）有機溶剤としては、例えば、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン系溶剤；酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸イソブチル、酢酸イソアミル、プロピオン酸メチル、プロピオン酸エチル、γ-ブチロラクトン等のエステル系溶剤；テトラヒドロピラン、テトラヒドロフラン、１，４－ジオキサン、ジエチルエーテル、ジイソプロピルエーテル、ジブチルエーテル、ジフェニルエーテル、アニソール等のエーテル系溶剤；メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール、エチレングリコール等のアルコール系溶剤；酢酸２－エトキシエチル、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、ジエチレングリコールモノエチルエーテルアセテート、エチルジグリコールアセテート、γ－ブチロラクトン、メトキシプロピオン酸メチル等のエーテルエステル系溶剤；乳酸メチル、乳酸エチル、２－ヒドロキシイソ酪酸メチル等のエステルアルコール系溶剤；２－メトキシプロパノール、２－メトキシエタノール、２－エトキシエタノール、プロピレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールモノブチルエーテル（ブチルカルビトール）等のエーテルアルコール系溶剤；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－２－ピロリドン等のアミド系溶剤；ジメチルスルホキシド等のスルホキシド系溶剤；アセトニトリル、プロピオニトリル等のニトリル系溶剤；ヘキサン、シクロペンタン、シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン等の脂肪族炭化水素系溶剤；ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、トリメチルベンゼン等の芳香族炭化水素系溶剤等を挙げることができる。（Ｊ）有機溶剤は、１種単独で用いてもよく、２種以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

[0224] 乾燥前のワニス状の樹脂組成物中の（Ｊ）有機溶剤の含有量は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の全成分を１００質量％とした場合、例えば、４０質量％以下、３０質量％以下、好ましく２０質量％以下、より好ましくは１０質量％以下、さらに好ましくは８質量％以下、特に好ましく

は６質量％以下である。樹脂シートにおける乾燥後の樹脂組成物層を形成する樹脂組成物中の（Ｊ）有機溶剤の含有量は、特に限定されるものではないが、樹脂組成物中の全成分を１００質量％とした場合、好ましく５質量％以下、より好ましくは３質量％以下、さらに好ましくは２質量％以下、特に好ましくは１質量％以下である。

[0225] ＜樹脂組成物の製造方法＞

本発明の樹脂組成物は、例えば、任意の調製容器に（Ａ）カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物、（Ｂ）カルボジイミド構造を有さないラジカル重合性基含有化合物と（Ｃ）熱硬化性樹脂の少なくとも一方、必要に応じて（Ａ’）その他のカルボジイミド化合物、必要に応じて（Ｄ）無機充填材、必要に応じて（Ｅ）熱可塑性樹脂、必要に応じて（Ｆ）応力緩和材、必要に応じて（Ｇ）ラジカル重合開始剤、必要に応じて（Ｈ）硬化促進剤、必要に応じて（Ｉ）その他の添加剤、及び必要に応じて（Ｊ）有機溶剤を、任意の順で及び／又は一部若しくは全部同時に加えて混合することによって、製造することができる。また、各成分を加えて混合する過程で、温度を適宜設定することができ、一時的に又は終始にわたって、加熱及び／又は冷却してもよい。また、加えて混合する過程において又はその後に、樹脂組成物を、例えば、ミキサーなどの撹拌装置又は振盪装置を用いて撹拌又は振盪し、均一に分散させてもよい。また、撹拌又は振盪と同時に、真空下等の低圧条件下で脱泡を行ってもよい。

[0226] ＜樹脂組成物の特性＞

本発明の樹脂組成物は、（Ａ）カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物を含み、さらに（Ｂ）カルボジイミド構造を有さないラジカル重合性基含有化合物、及び（Ｃ）熱硬化性樹脂のうち少なくとも一方を含む。このような樹脂組成物を用いることにより、優れた機械強度及びめっき密着性を有する硬化物を得ることができる。また、一実施形態において、本発明の樹脂組成物の硬化物は、クラック耐性に優れるという特徴を有し得る。また、一実施形態において、本発明の樹脂組成物の硬化物は、誘電正接が

低いという特徴を有し得る。

[0227] 本発明の樹脂組成物の硬化物は、めっき密着性に優れているという特徴を有し得る。特に本発明の樹脂組成物の硬化物は、一実施形態において、めっき長期安定密着性に優れているという特徴を有し得る。したがって、一実施形態において、例えば、下記試験例１のように硬化物に銅めっき導体層の形成し、それを、温度１３０℃、湿度８５％ＲＨの環境に１００時間置く超加速高温高湿寿命試験（ＨＡＳＴ試験）を行った後における、垂直方向に銅めっき導体層を引き剥がした時の荷重から算出される銅めっきピール強度が、好ましくは０．１０ｋｇｆ／ｃｍ以上、より好ましくは０．１５ｋｇｆ／ｃｍ以上、さらに好ましくは０．１８ｋｇｆ／ｃｍ以上、又は０．２０ｋｇｆ／ｃｍ以上、特に好ましくは０．２１ｋｇｆ／ｃｍ以上、又は０．２４ｋｇｆ／ｃｍ以上であり得る。上限については特に限定されるものではないが、例えば、１０ｋｇｆ／ｃｍ以下等であり得る。

[0228] 本発明の樹脂組成物の硬化物は、機械強度に優れているという特徴を有し得る。したがって、一実施形態において、下記試験例２のように測定した硬化物の破断点伸度は、２３℃で測定した場合、好ましくは０．２％以上、より好ましくは０．５％以上、さらに好ましくは０．８％以上、さらにより好ましくは１．０％以上、特に好ましくは１．２％以上、１．５％以上、１．８％以上、又は２．０％以上であり得る。破断点伸度の上限は、特に限定されないが、通常、１０．０％以下、５．０％以下等とし得る。

[0229] 一実施形態において、本発明の樹脂組成物の硬化物は、誘電正接（Ｄｆ）が低いという特徴を有し得る。したがって、一実施形態において、下記試験例３のように５．８ＧＨｚ、２３℃で測定した場合の樹脂組成物の硬化物の誘電正接（Ｄｆ）は、好ましくは０．０１０以下、より好ましくは０．００８以下、さらに好ましくは０．００７以下、特に好ましくは０．００６以下、０．００５以下、又は０．００４以下となり得る。

[0230] 一実施形態において、本発明の樹脂組成物の硬化物は、デスミア処理（粗化処理）後のクラックの発生を抑えることができるという特徴を有し得る。

したがって、一実施形態において、下記試験例４のように回路基板を作製及びデスミア処理した後、回路基板の銅パッド部を１００個観察した場合にクラックが好ましくは１５個未満（１５％未満）、より好ましくは５個未満（５％未満）であり得る。

[0231] ＜樹脂組成物の用途＞

本発明の樹脂組成物は、絶縁用途の樹脂組成物、特に、絶縁層を形成するための樹脂組成物として好適に使用することができる。具体的には、絶縁層上に形成される導体層（再配線層を含む）を形成するための当該絶縁層を形成するための樹脂組成物（導体層を形成するための絶縁層形成用樹脂組成物）として好適に使用することができる。また、後述するプリント配線板において、プリント配線板の絶縁層を形成するための樹脂組成物（プリント配線板の絶縁層形成用樹脂組成物）として好適に使用することができる。本発明の樹脂組成物はまた、樹脂シート、プリプレグ等のシート状積層材料、ソルダーレジスト、アンダーフィル材、ダイボンディング材、半導体封止材、穴埋め樹脂、部品埋め込み樹脂等、樹脂組成物が必要とされる用途で広範囲に使用できる。

[0232] また、例えば、以下の（１）～（６）工程を経て半導体チップパッケージが製造される場合、本発明の樹脂組成物は、再配線層を形成するための絶縁層としての再配線形成層用の樹脂組成物（再配線形成層形成用の樹脂組成物）、及び半導体チップを封止するための樹脂組成物（半導体チップ封止用の樹脂組成物）としても好適に使用することができる。半導体チップパッケージが製造される際、封止層上に更に再配線層を形成してもよい。

（１）基材に仮固定フィルムを積層する工程、

（２）半導体チップを、仮固定フィルム上に仮固定する工程、

（３）半導体チップ上に封止層を形成する工程、

（４）基材及び仮固定フィルムを半導体チップから剥離する工程、

（５）半導体チップの基材及び仮固定フィルムを剥離した面に、絶縁層としての再配線形成層を形成する工程、及び

（６）再配線形成層上に、導体層としての再配線層を形成する工程

[0233] また、本発明の樹脂組成物は、部品埋め込み性に良好な絶縁層をもたらすことから、プリント配線板が部品内蔵回路板である場合にも好適に使用することができる。

[0234] ＜シート状積層材料＞

本発明の樹脂組成物は、ワニス状態で塗布して使用することもできるが、工業的には一般に、該樹脂組成物を含有するシート状積層材料の形態で用いることが好適である。

[0235] シート状積層材料としては、以下に示す樹脂シート、プリプレグが好ましい。

[0236] 一実施形態において、樹脂シートは、支持体と、該支持体上に設けられた樹脂組成物層とを含んでなり、樹脂組成物層は本発明の樹脂組成物から形成される。

[0237] 樹脂組成物層の厚さは、プリント配線板の薄型化、及び当該樹脂組成物の硬化物が薄膜であっても絶縁性に優れた硬化物を提供できるという観点から、好ましくは５０μｍ以下、より好ましくは４０μｍ以下である。樹脂組成物層の厚さの下限は、特に限定されないが、通常、５μｍ以上、１０μｍ以上等とし得る。

[0238] 支持体としては、例えば、プラスチック材料からなるフィルム、金属箔、離型紙が挙げられ、プラスチック材料からなるフィルム、金属箔が好ましい。

[0239] 支持体としてプラスチック材料からなるフィルムを使用する場合、プラスチック材料としては、例えば、ポリエチレンテレフタレート（以下「ＰＥＴ」と略称することがある。）、ポリエチレンナフタレート（以下「ＰＥＮ」と略称することがある。）等のポリエステル、ポリカーボネート（以下「ＰＣ」と略称することがある。）、ポリメチルメタクリレート（ＰＭＭＡ）等のアクリル、環状ポリオレフィン、トリアセチルセルロース（ＴＡＣ）、ポリエーテルサルファイド（ＰＥＳ）、ポリエーテルケトン、ポリイミド等が

挙げられる。中でも、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレートが好ましく、安価なポリエチレンテレフタレートが特に好ましい。

[0240] 支持体として金属箔を使用する場合、金属箔としては、例えば、銅箔、アルミニウム箔等が挙げられ、銅箔が好ましい。銅箔としては、銅の単金属からなる箔を用いてもよく、銅と他の金属（例えば、スズ、クロム、銀、マグネシウム、ニッケル、ジルコニウム、ケイ素、チタン等）との合金からなる箔を用いてもよい。

[0241] 支持体は、樹脂組成物層と接合する面にマット処理、コロナ処理、帯電防止処理を施してあってもよい。

[0242] また、支持体としては、樹脂組成物層と接合する面に離型層を有する離型層付き支持体を使用してもよい。離型層付き支持体の離型層に使用する離型剤としては、例えば、アルキド樹脂、ポリオレフィン樹脂、ウレタン樹脂、及びシリコーン樹脂からなる群から選択される１種以上の離型剤が挙げられる。離型層付き支持体は、市販品を用いてもよく、例えば、アルキド樹脂系離型剤を主成分とする離型層を有するＰＥＴフィルムである、リンテック社製の「ＳＫ－１」、「ＡＬ－５」、「ＡＬ－７」、東レ社製の「ルミラーＴ６０」、帝人社製の「ピューレックス」、ユニチカ社製の「ユニピール」等が挙げられる。

[0243] 支持体の厚さは、特に限定されないが、５μｍ～７５μｍの範囲が好ましく、１０μｍ～６０μｍの範囲がより好ましい。なお、離型層付き支持体を使用する場合、離型層付き支持体全体の厚さが上記範囲であることが好ましい。

[0244] 一実施形態において、樹脂シートは、さらに必要に応じて、任意の層を含んでいてもよい。斯かる任意の層としては、例えば、樹脂組成物層の支持体と接合していない面（即ち、支持体とは反対側の面）に設けられた、支持体に準じた保護フィルム等が挙げられる。保護フィルムの厚さは、特に限定されるものではないが、例えば、１μｍ～４０μｍである。保護フィルムを積層することにより、樹脂組成物層の表面へのゴミ等の付着やキズを抑制する

ことができる。

[0245] 樹脂シートは、例えば、液状（ワニス状）の樹脂組成物をそのまま、或いは有機溶剤に樹脂組成物を溶解して液状（ワニス状）の樹脂組成物を調製し、これを、ダイコーター等を用いて支持体上に塗布し、更に乾燥させて樹脂組成物層を形成させることにより製造することができる。

[0246] 有機溶剤としては、樹脂組成物の成分として説明した有機溶剤と同様のものが挙げられる。有機溶剤は１種単独で使用してもよく、２種以上を組み合わせて使用してもよい。

[0247] 乾燥は、加熱、熱風吹きつけ等の公知の方法により実施してよい。乾燥条件は特に限定されないが、樹脂組成物層中の有機溶剤の含有量が１０質量％以下、好ましくは５質量％以下となるように乾燥させる。樹脂組成物中の有機溶剤の沸点によっても異なるが、例えば３０質量％～６０質量％の有機溶剤を含む樹脂組成物を用いる場合、５０℃～１５０℃で３分間～１０分間乾燥させることにより、樹脂組成物層を形成することができる。

[0248] 樹脂シートは、ロール状に巻きとって保存することが可能である。樹脂シートが保護フィルムを有する場合、保護フィルムを剥がすことによって使用可能となる。

[0249] 一実施形態において、プリプレグは、シート状繊維基材に本発明の樹脂組成物を含浸させて形成される。

[0250] プリプレグに用いるシート状繊維基材は特に限定されず、ガラスクロス、アラミド不織布、液晶ポリマー不織布等のプリプレグ用基材として常用されているものを用いることができる。プリント配線板の薄型化の観点から、シート状繊維基材の厚さは、好ましくは５０μｍ以下、より好ましくは４０μｍ以下、さらに好ましくは３０μｍ以下、特に好ましくは２０μｍ以下である。シート状繊維基材の厚さの下限は特に限定されない。通常、１０μｍ以上である。

[0251] プリプレグは、ホットメルト法、ソルベント法等の公知の方法により製造することができる。

[0252] プリプレグの厚さは、上述の樹脂シートにおける樹脂組成物層と同様の範囲とし得る。

[0253] 本発明のシート状積層材料は、プリント配線板の絶縁層を形成するため（プリント配線板の絶縁層用）に好適に使用することができ、プリント配線板の層間絶縁層を形成するため（プリント配線板の層間絶縁層用）により好適に使用することができる。

[0254] ＜プリント配線板＞

本発明のプリント配線板は、本発明の樹脂組成物を硬化して得られる硬化物からなる絶縁層を含む。

[0255] プリント配線板は、例えば、上述の樹脂シートを用いて、下記（Ｉ）及び（ＩＩ）の工程を含む方法により製造することができる。

（Ｉ）内層基板上に、樹脂シートを、樹脂シートの樹脂組成物層が内層基板と接合するように積層する工程

（ＩＩ）樹脂組成物層を硬化（例えば熱硬化）して絶縁層を形成する工程

[0256] 工程（Ｉ）で用いる「内層基板」とは、プリント配線板の基板となる部材であって、例えば、ガラスエポキシ基板、金属基板、ポリエステル基板、ポリイミド基板、ＢＴレジン基板、熱硬化型ポリフェニレンエーテル基板等が挙げられる。また、該基板は、その片面又は両面に導体層を有していてもよく、この導体層はパターン加工されていてもよい。基板の片面または両面に導体層（回路）が形成された内層基板は「内層回路基板」ということがある。またプリント配線板を製造する際に、さらに絶縁層及び／又は導体層が形成されるべき中間製造物も本発明でいう「内層基板」に含まれる。プリント配線板が部品内蔵回路板である場合、部品を内蔵した内層基板を使用してもよい。

[0257] 内層基板と樹脂シートの積層は、例えば、支持体側から樹脂シートを内層基板に加熱圧着することにより行うことができる。樹脂シートを内層基板に加熱圧着する部材（以下、「加熱圧着部材」ともいう。）としては、例えば、加熱された金属板（ＳＵＳ鏡板等）又は金属ロール（ＳＵＳロール）等が

挙げられる。なお、加熱圧着部材を樹脂シートに直接プレスするのではなく、内層基板の表面凹凸に樹脂シートが十分に追随するよう、耐熱ゴム等の弾性材を介してプレスするのが好ましい。

[0258] 内層基板と樹脂シートの積層は、真空ラミネート法により実施してよい。真空ラミネート法において、加熱圧着温度は、好ましくは６０℃～１６０℃、より好ましくは８０℃～１４０℃の範囲であり、加熱圧着圧力は、好ましくは０．０９８ＭＰａ～１．７７ＭＰａ、より好ましくは０．２９ＭＰａ～１．４７ＭＰａの範囲であり、加熱圧着時間は、好ましくは２０秒間～４００秒間、より好ましくは３０秒間～３００秒間の範囲である。積層は、好ましくは圧力２６．７ｈＰａ以下の減圧条件下で実施され得る。

[0259] 積層は、市販の真空ラミネーターによって行うことができる。市販の真空ラミネーターとしては、例えば、名機製作所社製の真空加圧式ラミネーター、ニッコー・マテリアルズ社製のバキュームアップリケーター、バッチ式真空加圧ラミネーター等が挙げられる。

[0260] 積層の後に、常圧下（大気圧下）、例えば、加熱圧着部材を支持体側からプレスすることにより、積層された樹脂シートの平滑化処理を行ってもよい。平滑化処理のプレス条件は、上記積層の加熱圧着条件と同様の条件とすることができる。平滑化処理は、市販のラミネーターによって行うことができる。なお、積層と平滑化処理は、上記の市販の真空ラミネーターを用いて連続的に行ってもよい。

[0261] 支持体は、工程（ｉ）と工程（ｉｉ）の間に除去してもよく、工程（ｉｉ）の後に除去してもよい。

[0262] 工程（ｉｉ）において、樹脂組成物層を硬化（例えば熱硬化）して、樹脂組成物の硬化物からなる絶縁層を形成する。樹脂組成物層の硬化条件は特に限定されず、プリント配線板の絶縁層を形成するに際して通常採用される条件を使用してよい。

[0263] 例えば、樹脂組成物層の熱硬化条件は、樹脂組成物の種類等によっても異なるが、一実施形態において、硬化温度は好ましくは１２０℃～２４０℃、

より好ましくは１５０℃～２２０℃、さらに好ましくは１７０℃～２１０℃である。硬化時間は好ましくは５分間～１２０分間、より好ましくは１０分間～１００分間、さらに好ましくは１５分間～１００分間とすることができる。

[0264] 樹脂組成物層を熱硬化させる前に、樹脂組成物層を硬化温度よりも低い温度にて予備加熱してもよい。例えば、樹脂組成物層を熱硬化させるのに先立ち、５０℃～１２０℃、好ましくは６０℃～１１５℃、より好ましくは７０℃～１１０℃の温度にて、樹脂組成物層を５分間以上、好ましくは５分間～１５０分間、より好ましくは１５分間～１２０分間、さらに好ましくは１５分間～１００分間予備加熱してもよい。

[0265] プリント配線板を製造するに際しては、（ＩＩＩ）絶縁層に穴あけする工程、（ＩＶ）絶縁層を粗化処理する工程、（Ｖ）導体層を形成する工程をさらに実施してもよい。これらの工程（ＩＩＩ）乃至工程（Ｖ）は、プリント配線板の製造に用いられる、当業者に公知の各種方法に従って実施してよい。なお、支持体を工程（ＩＩ）の後に除去する場合、該支持体の除去は、工程（ＩＩ）と工程（ＩＩＩ）との間、工程（ＩＩＩ）と工程（ＩＶ）の間、又は工程（ＩＶ）と工程（Ｖ）との間に実施してよい。また、必要に応じて、工程（ＩＩ）～工程（Ｖ）の絶縁層及び導体層の形成を繰り返して実施し、多層配線板を形成してもよい。

[0266] 他の実施形態において、本発明のプリント配線板は、上述のプリプレグを用いて製造することができる。製造方法は基本的に樹脂シートを用いる場合と同様である。

[0267] 工程（ＩＩＩ）は、絶縁層に穴あけする工程であり、これにより絶縁層にビアホール、スルーホール等のホールを形成することができる。工程（ＩＩＩ）は、絶縁層の形成に使用した樹脂組成物の組成等に応じて、例えば、ドリル、レーザー、プラズマ等を使用して実施してよい。ホールの寸法や形状は、プリント配線板のデザインに応じて適宜決定してよい。

[0268] 工程（ＩＶ）は、絶縁層を粗化処理する工程である。通常、この工程（Ｉ

Ｖ）において、スミアの除去も行われる。粗化処理の手順、条件は特に限定されず、プリント配線板の絶縁層を形成するに際して通常使用される公知の手順、条件を採用することができる。例えば、膨潤液による膨潤処理、酸化剤による粗化処理、中和液による中和処理をこの順に実施して絶縁層を粗化処理することができる。

[0269] 粗化処理に用いる膨潤液としては特に限定されないが、アルカリ溶液、界面活性剤溶液等が挙げられ、好ましくはアルカリ溶液であり、該アルカリ溶液としては、水酸化ナトリウム溶液、水酸化カリウム溶液がより好ましい。市販されている膨潤液としては、例えば、アトテックジャパン社製の「スウェリング・ディップ・セキュリガンスＰ」、「スウェリング・ディップ・セキュリガンスＳＢＵ」等が挙げられる。膨潤液による膨潤処理は、特に限定されないが、例えば、３０℃～９０℃の膨潤液に絶縁層を１分間～２０分間浸漬することにより行うことができる。絶縁層の樹脂の膨潤を適度なレベルに抑える観点から、４０℃～８０℃の膨潤液に絶縁層を５分間～１５分間浸漬させることが好ましい。

[0270] 粗化処理に用いる酸化剤としては、特に限定されないが、例えば、水酸化ナトリウムの水溶液に過マンガン酸カリウム又は過マンガン酸ナトリウムを溶解したアルカリ性過マンガン酸溶液が挙げられる。アルカリ性過マンガン酸溶液等の酸化剤による粗化処理は、６０℃～１００℃に加熱した酸化剤溶液に絶縁層を１０分間～３０分間浸漬させて行うことが好ましい。また、アルカリ性過マンガン酸溶液における過マンガン酸塩の濃度は５質量％～１０質量％が好ましい。市販されている酸化剤としては、例えば、アトテックジャパン社製の「コンセントレート・コンパクトＣＰ」、「ドージングソリューション・セキュリガンスＰ」等のアルカリ性過マンガン酸溶液が挙げられる。

[0271] また、粗化処理に用いる中和液としては、酸性の水溶液が好ましく、市販品としては、例えば、アトテックジャパン社製の「リダクションソリューション・セキュリガントＰ」が挙げられる。

[0272] 中和液による処理は、酸化剤による粗化処理がなされた処理面を３０℃～８０℃の中和液に５分間～３０分間浸漬させることにより行うことができる。作業性等の点から、酸化剤による粗化処理がなされた対象物を、４０℃～７０℃の中和液に５分間～２０分間浸漬する方法が好ましい。

[0273] 一実施形態において、粗化処理後の絶縁層表面の算術平均粗さ（Ｒａ）は、特に限定されるものではないが、好ましくは５００ｎｍ以下、より好ましくは４００ｎｍ以下、さらに好ましくは３００ｎｍ以下である。下限については特に限定されるものではなく、例えば、１ｎｍ以上、２ｎｍ以上等とし得る。また、粗化処理後の絶縁層表面の二乗平均平方根粗さ（Ｒｑ）は、好ましくは５００ｎｍ以下、より好ましくは４００ｎｍ以下、さらに好ましくは３００ｎｍ以下である。下限については特に限定されるものではなく、例えば、１ｎｍ以上、２ｎｍ以上等とし得る。絶縁層表面の算術平均粗さ（Ｒａ）及び二乗平均平方根粗さ（Ｒｑ）は、非接触型表面粗さ計を用いて測定することができる。

[0274] 工程（Ｖ）は、導体層を形成する工程であり、絶縁層上に導体層を形成する。導体層に使用する導体材料は特に限定されない。好適な実施形態では、導体層は、金、白金、パラジウム、銀、銅、アルミニウム、コバルト、クロム、亜鉛、ニッケル、チタン、タングステン、鉄、スズ及びインジウムからなる群から選択される１種以上の金属を含む。導体層は、単金属層であっても合金層であってもよく、合金層としては、例えば、上記の群から選択される２種以上の金属の合金（例えば、ニッケル・クロム合金、銅・ニッケル合金及び銅・チタン合金）から形成された層が挙げられる。中でも、導体層形成の汎用性、コスト、パターニングの容易性等の観点から、クロム、ニッケル、チタン、アルミニウム、亜鉛、金、パラジウム、銀若しくは銅の単金属層、又はニッケル・クロム合金、銅・ニッケル合金、銅・チタン合金の合金層が好ましく、クロム、ニッケル、チタン、アルミニウム、亜鉛、金、パラジウム、銀若しくは銅の単金属層、又はニッケル・クロム合金の合金層がより好ましく、銅の単金属層が更に好ましい。

[0275] 導体層は、単層構造であっても、異なる種類の金属若しくは合金からなる単金属層又は合金層が２層以上積層した複層構造であってもよい。導体層が複層構造である場合、絶縁層と接する層は、クロム、亜鉛若しくはチタンの単金属層、又はニッケル・クロム合金の合金層であることが好ましい。

[0276] 導体層の厚さは、所望のプリント配線板のデザインによるが、一般に３μｍ～３５μｍ、好ましくは５μｍ～３０μｍである。

[0277] 一実施形態において、導体層は、メッキにより形成してよい。例えば、セミアディティブ法、フルアディティブ法等の従来公知の技術により絶縁層の表面にメッキして、所望の配線パターンを有する導体層を形成することができ、製造の簡便性の観点から、セミアディティブ法により形成することが好ましい。以下、導体層をセミアディティブ法により形成する例を示す。

[0278] まず、絶縁層の表面に、無電解メッキによりメッキシード層を形成する。次いで、形成されたメッキシード層上に、所望の配線パターンに対応してメッキシード層の一部を露出させるマスクパターンを形成する。露出したメッキシード層上に、電解メッキにより金属層を形成した後、マスクパターンを除去する。その後、不要なメッキシード層をエッチング等により除去して、所望の配線パターンを有する導体層を形成することができる。

[0279] 他の実施形態において、導体層は、金属箔を使用して形成してよい。金属箔を使用して導体層を形成する場合、工程（Ｖ）は、工程（Ｉ）と工程（ＩＩ）の間に実施することが好適である。例えば、工程（Ｉ）の後、支持体を除去し、露出した樹脂組成物層の表面に金属箔を積層する。樹脂組成物層と金属箔との積層は、真空ラミネート法により実施してよい。積層の条件は、工程（Ｉ）について説明した条件と同様としてよい。次いで、工程（ＩＩ）を実施して絶縁層を形成する。その後、絶縁層上の金属箔を利用して、サブトラクティブ法、モディファイドセミアディティブ法等の従来の公知の技術により、所望の配線パターンを有する導体層を形成することができる。

[0280] 金属箔は、例えば、電解法、圧延法等の公知の方法により製造することができる。金属箔の市販品としては、例えば、ＪＸ日鉱日石金属社製のＨＬＰ

箔、ＪＸＵＴ－ＩＩＩ箔、三井金属鉱山社製の３ＥＣ－ＩＩＩ箔、ＴＰ－ＩＩＩ箔等が挙げられる。

[0281] ＜半導体装置＞

本発明の半導体装置は、本発明のプリント配線板を含む。本発明の半導体装置は、本発明のプリント配線板を用いて製造することができる。

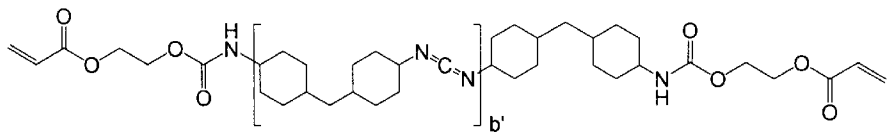
[0282] 半導体装置としては、電気製品（例えば、コンピューター、携帯電話、デジタルカメラ及びテレビ等）及び乗物（例えば、自動二輪車、自動車、電車、船舶及び航空機等）等に供される各種半導体装置が挙げられる。

実施例

[0283] 以下、本発明を実施例により具体的に説明する。本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。なお、以下において、量を表す「部」及び「％」は、別途明示のない限り、それぞれ「質量部」及び「質量％」を意味する。特に温度の指定が無い場合の温度条件は、室温（２３℃）であり、特に圧力の指定が無い場合の圧力条件は、大気圧（１ａｔｍ）である。

[0284] ＜合成例１＞

[0285] [化14]



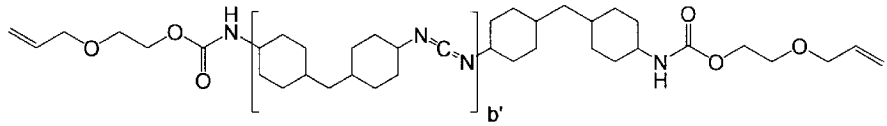
(S1)

[0286] ジシクロヘキシルメタン－４，４’－ジイソシアネート（ＨＭＤＩ）１００質量部、及びカルボジイミド化触媒として３－メチル－１－フェニル－２－ホスホレン－１－オキシド０．５質量部を、還流管及び撹拌機付き反応容器に入れ、窒素気流下、１８５℃で２４時間撹拌混合し、カルボジイミド化反応を行い、イソシアネート末端ポリカルボジイミドを得た。得られたイソシアネート末端ポリカルボジイミドについて、ＩＲスペクトル測定にて、波長２１５０ｃｍ$^{-1}$前後におけるカルボジイミド基による吸収ピークが確認された。また、末端ＮＣＯ量は８．１９質量％であり、上記測定方法により求められたカルボジイミド基の平均重合度は３．５であった。

[0287] 次いで、前記イソシアネート末端ポリカルボジイミドに、窒素気流下、１５０℃で、エチレングリコールモノアクリレート８．８質量部を添加し、１８０℃まで加熱して２時間撹拌混合して反応させた。ＩＲスペクトル測定にて、波長２２００～２３００ｃｍ$^{-1}$のイソシアネート基の吸収ピークが消失したことを確認した後、反応容器から反応生成物を取り出し、室温まで冷却して、淡黄色透明な固形状のポリカルボジイミド化合物（カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物；主成分は上記式（Ｓ１）の化合物；ｂ’はカルボジイミド基の平均重合度を意味する。）を得た。

[0288] ＜合成例２＞

[0289] [化15]

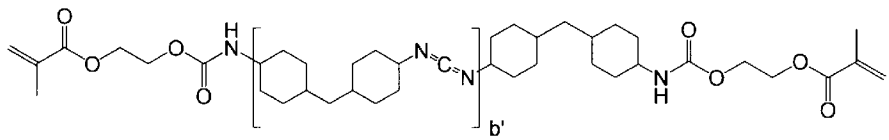


(S2)

[0290] エチレングリコールモノアクリレートの代わりにエチレングリコールモノアリルエーテルを使用した以外は、合成例１と同様にして、固形状のポリカルボジイミド化合物（カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物；主成分は上記式（Ｓ２）の化合物；ｂ’は上記同様である。）を得た。

[0291] ＜合成例３＞

[0292] [化16]

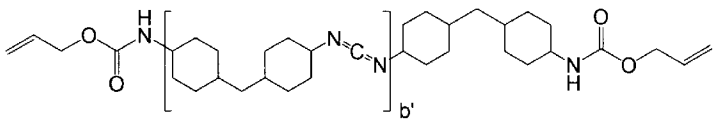


(S3)

[0293] エチレングリコールモノアクリレートの代わりにエチレングリコールメタクリレートを使用した以外は、合成例１と同様にして、固形状のポリカルボジイミド化合物（カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物；主成分は上記式（Ｓ３）の化合物；ｂ’は上記同様である。）を得た。

[0294] ＜合成例４＞

[0295] [化17]

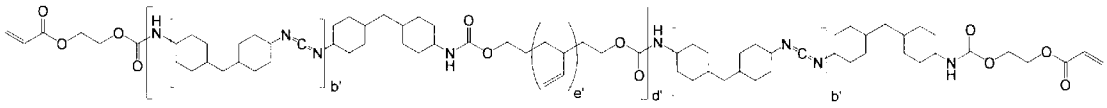


(S4)

[0296] エチレングリコールモノアクリレートをアリルアルコールに変更し、それ以外は合成例１と同様にして、固形状のポリカルボジイミド化合物（カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物；主成分は上記式（Ｓ４）の化合物；ｂ’は上記同様である。）を得た。

[0297] ＜合成例５＞

[0298] [化18]



(S5)

[0299] 合成例１と同様の方法で得られたイソシアネート末端ポリカルボジイミドに、エチレングリコールモノアクリレート８．８質量部および両末端水酸基ポリブタジエン（日本曹達社製「Ｇ－１０００」、数平均分子量１４００、１，２－付加構造単位８５％以上、ｔｒａｎｓ－１，４－付加構造単位１５％以下）４質量部を添加し、１８０℃まで加熱して２時間撹拌混合して反応させた。ＩＲスペクトル測定にて、波長２２００～２３００ｃｍ$^{-1}$のイソシアネート基の吸収ピークが消失したことを確認した後、反応容器から反応生成物を取り出し、室温まで冷却して、淡黄色透明な固形状のポリカルボジイミド化合物（カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物；主成分は上記式（Ｓ５）の化合物；ｂ’は上記同様である。ｄ’はポリブタジエンとポリカルボジイミドの組み合わせ単位の平均重合度を意味する。ｅ’は上記数平均分子量に相当するブタジエン単位の平均重合度を意味する。ｅ’単位として、１，２－付加構造単位のみを表記しているが、１，４－付加構造単位（ｃｉｓ、ｔｒａｎｓ）も含む。）を得た。

[0300] ＜実施例１＞

多官能アクリル酸エステル樹脂（新中村化学工業社製「Ａ－ＤＯＧ」、アクリル当量約１６３ｇ／ｅｑ．）３０部を、ソルベントナフサ２０部に室温で撹拌しながら均一に混合させた。その混合溶液に、アミノシラン系カップリング剤（信越化学工業社製「ＫＢＭ５７３」）で表面処理された球形シリカ（平均粒径０．５μｍ、アドマテックス社製「ＳＯ－Ｃ２」）１１０部を添加し、３本ロールで混練して均一に分散させた。そのロール分散物へ、フェノキシ樹脂（三菱化学社製「ＹＸ６９５４ＢＨ３０」、固形分３０％のＭＥＫとシクロヘキサノンとの混合溶液）２０部、スチレン変性ポリフェニレンエーテル樹脂（三菱瓦斯化学社製「ＯＰＥ－２Ｓｔ　１２００（数平均分子量１２００）」、固形分６５％のトルエン溶液）４６部、ポリカルボジイミド化合物（合成例１で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部、有機過酸化物（日油社製「パーブチルＣ」、固形分２０％のＭＥＫ溶液）５部を混合し、高速回転ミキサーで均一に分散して、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0301] ＜比較例１＞

ポリカルボジイミド化合物（合成例１で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部の代わりにポリカルボジイミド化合物（日清紡ケミカル社製「Ｖ－０３」、固形分５０％のトルエン溶液）１２部を使用した以外は、実施例１と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0302] ＜試験例１：ＨＡＳＴ試験後の銅めっきピール強度の測定＞

（１）樹脂シートの作製

支持体としてアルキド樹脂系離型層付きＰＥＴフィルム（リンテック社製「ＡＬ５」、厚さ３８μｍ）を用意した。該支持体の離型層上に、乾燥後の樹脂組成物層の厚さが４０μｍとなるように実施例及び比較例で調製した樹脂組成物を均一に塗布し、８０～１２０℃（平均１００℃）で５分間乾燥させて、樹脂シートを作製した。

[0303] （２）内層回路基板の下地処理

内層回路を形成したガラス布基材エポキシ樹脂両面銅張積層板（銅箔の厚

さ１８μｍ、基板の厚さ０．８ｍｍ、パナソニック社製「Ｒ１７６６」）の両面をメック社製「ＣＺ８１０１」にて１．０μｍエッチングして銅表面の粗化処理を行った。

[0304] （３）樹脂シートの積層

上記（１）で作製した厚さ４０μｍの樹脂シートを、バッチ式真空加圧ラミネーター（ニッコー・マテリアルズ社製、２ステージビルドアップラミネーター、ＣＶＰ７００）を用いて、樹脂組成物層が内層回路基板と接合するように、上記（２）で処理した内層回路基板の両面にラミネート処理した。ラミネート処理は、３０秒間減圧して気圧を１３ｈＰａ以下とした後、１００℃、圧力０．７４ＭＰａにて３０秒間圧着することにより実施した。次いで、１００℃、圧力０．５ＭＰａにて６０秒間熱プレスを行った。

[0305] （４）樹脂組成物の硬化

厚さ４０μｍの樹脂シートを積層した後、１００℃で３０分間、次いで１８０℃で３０分間の条件で樹脂組成物層を熱硬化して絶縁層を形成した。その後、支持体を剥離して絶縁層を露出させた。

[0306] （５）粗化処理

絶縁層の露出した内層回路基板を、膨潤液（アトテックジャパン社製「スエリングディップ・セキュリガントＰ」、ジエチレングリコールモノブチルエーテル含有の水酸化ナトリウム水溶液）に６０℃で１０分間浸漬し、次いで酸化剤（アトテックジャパン社製「コンセントレート・コンパクトＣＰ」、過マンガン酸カリウム濃度約６質量％、水酸化ナトリウム濃度約４質量％の水溶液）に８０℃で２０分間浸漬し、最後に中和液（アトテックジャパン社製「リダクションソリューション・セキュリガントＰ」、硫酸ヒドロキシルアミン水溶液）に４０℃で５分間浸漬した。その後、８０℃で１５分間乾燥させた。得られた基板を「評価基板ａ」と称する。

[0307] （６）導体層の形成

セミアディティブ法に従って、評価基板ａの絶縁層の粗化面に導体層を形成した。すなわち、下記１～６の工程を含むめっき工程（アトテックジャパ

ン社製の薬液を使用した銅めっき工程）を行って導体層を形成した。

１．アルカリクリーニング（ビアホールが設けられた絶縁層の表面の洗浄と電荷調整）

商品名：Ｃｌｅａｎｉｎｇ　Ｃｌｅａｎｅｒ　Ｓｅｃｕｒｉｇａｎｔｈ９０２（商品名）を用いて６０℃で５分間洗浄した。

２．ソフトエッチング（ビアホール内の洗浄）

硫酸酸性ペルオキソ二硫酸ナトリウム水溶液を用いて、３０℃で１分間処理した。

３．プレディップ（Ｐｄ付与のための絶縁層の表面の電荷の調整）

Ｐｒｅ．　Ｄｉｐ　Ｎｅｏｇａｎｔｈ　Ｂ（商品名）を用い、室温で１分間処理した。

４．アクティヴェーター付与（絶縁層の表面へのＰｄの付与）

Ａｃｔｉｖａｔｏｒ　Ｎｅｏｇａｎｔｈ　８３４（商品名）を用い、３５℃で５分間処理した。

５．還元（絶縁層に付与されたＰｄを還元）

Ｒｅｄｕｃｅｒ　Ｎｅｏｇａｎｔｈ　ＷＡ（商品名）とＲｅｄｕｃｅｒ　Ａｃｃｅｒａｌａｔｏｒ　８１０　ｍｏｄ．（商品名）との混合液を用い、３０℃で５分間処理した。

６．無電解銅めっき工程（Ｃｕを絶縁層の表面（Ｐｄ表面）に析出）

Ｂａｓｉｃ　Ｓｏｌｕｔｉｏｎ　Ｐｒｉｎｔｇａｎｔｈ　ＭＳＫ－ＤＫ（商品名）と、Ｃｏｐｐｅｒ　ｓｏｌｕｔｉｏｎ　Ｐｒｉｎｔｇａｎｔｈ　ＭＳＫ（商品名）と、Ｓｔａｂｉｌｉｚｅｒ　Ｐｒｉｎｔｇａｎｔｈ　ＭＳＫ－ＤＫ（商品名）と、Ｒｅｄｕｃｅｒ　Ｃｕ（商品名）との混合液を用いて、３５℃で３０分間処理した。形成された無電解銅めっき層の厚さは１μｍであった。

[0308] （７）アニール処理及びＨＡＳＴ試験

次いで、１５０℃にて３０分間加熱してアニール処理を行った後に、エッチングレジストを形成し、エッチングによりパターン形成した。その後、ア

トテックジャパン社製の薬液を使用して、硫酸銅電解メッキを行い、厚さ２５μｍの導体層を形成し、アニール処理を２００℃にて６０分間行った。その後、評価基板ａを、温度１３０℃、湿度８５％ＲＨの環境に１００時間置く超加速高温高湿寿命試験（ＨＡＳＴ試験）を行った。得られた基板を「評価基板ｂ」と称する。

[0309] （８）銅めっきピール強度の測定

絶縁層と導体層のＨＡＳＴ後めっきピール強度の測定は、ＨＡＳＴ試験後の評価基板ｂについて、日本工業規格（ＪＩＳ　Ｃ６４８１）に準拠して行った。具体的には、評価基板ｂの導体層に、幅１０ｍｍ、長さ１００ｍｍの部分の切込みをいれ、この一端を剥がしてつかみ具で掴み、室温中にて、５０ｍｍ／分の速度で垂直方向に３５ｍｍを引き剥がした時の荷重（ｋｇｆ／ｃｍ）を測定し、剥離強度（銅めっきピール強度）を求めた。測定には、引っ張り試験機（（株）ＴＳＥ製「ＡＣ－５０Ｃ－ＳＬ」）を使用した。

[0310] ＜試験例２：破断点伸度の測定＞

上記試験例１（１）と同様の方法で作製した厚さ４０μｍの樹脂シートを２００℃にて９０分間加熱して樹脂組成物層を熱硬化させた後、支持体を剥離した。得られた硬化物を「評価用硬化物ｃ」と称する。評価用硬化物ｃについて、日本工業規格（ＪＩＳ　Ｋ７１２７）に準拠して、テンシロン万能試験機（（株）オリエンテック製「ＲＴＣ－１２５０Ａ」）により引っ張り試験を行い、破断点伸度（％）を測定した。

[0311] ＜試験例３：誘電正接の測定＞

上記試験例２と同様の方法で得た評価用硬化物ｃを、幅２ｍｍ、長さ８０ｍｍの試験片に切断した。該試験片について、アジレントテクノロジーズ社製「ＨＰ８３６２Ｂ」を用いて、空洞共振摂動法により測定周波数５．８ＧＨｚ、測定温度２３℃にて誘電正接を測定した。２本の試験片について測定を行い、平均値を算出した。

[0312] 実施例１及び比較例１の樹脂組成物について上記試験例１～３に示す方法で銅めっきピール強度、破断点伸度及び誘電正接の測定を行った。実施例１

及び比較例１の樹脂組成物の不揮発成分の含有量、上記試験例１～３の測定結果を下記表１にまとめる。

[0313] [表1]

			実施例 1	比較例 1
不揮発成分量（質量部）	(A)	カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物 合成例1	6	
		合成例2		
		合成例3		
		合成例4		
		合成例5		
	(A')	その他のカルボジイミド化合物 V-03		6
	(B)	カルボジイミド構造を有さないラジカル重合性基含有化合物 OPE-2St 1200	30	30
		A-DOG	30	30
		SLK-6895-T90		
		MIR-3000-70MT		
	(C1)	エポキシ樹脂 828US		
		NC3000H		
		ESN475V		
		YX4000HK		
	(C2)	エポキシ樹脂硬化剤 HPC-8000-65T		
		LA3018-50P		
		BA230S75		
		PT30		
	(D)	無機充填材 SO-C2	110	110
	(E)	熱可塑性樹脂 YX6954BH30	6	6
	(F)	応力緩和材 EXL-2655		
		PB3600		
	(G)	ラジカル重合開始剤 パープチルC	1	1
	(H)	硬化促進剤 DMAP		
		Co(acac)3		
	全不揮発成分合計		183	183
樹脂組成物中各成分含有量	(A)成分／全不揮発成分（質量%）		3.3	
	(B)成分／全不揮発成分（質量%）		32.8	32.8
	(C1)成分／全不揮発成分（質量%）			
	(C2)成分／全不揮発成分（質量%）			
	(D)成分／全不揮発成分（質量%）		60.1	60.1
評価結果	破断点伸度（%）		1.2	0.7
	HAST試験後めっきピール強度（kgf/cm）		0.21	0.15
	誘電正接		0.0035	0.0035

[0314] 上記表１に示される結果から、（Ａ）カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物、及び（Ｂ）カルボジイミド構造を有さないラジカル重合性基含有化合物を含む樹脂組成物を使用した場合、（Ａ）成分を含まないものと比較して、より優れた機械強度及びめっき密着性を有する硬化物を得ることができることがわかる。

[0315] ＜実施例２＞

ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（三菱ケミカル社製「８２８ＵＳ」、エポキシ当量約１８０ｇ／ｅｑ．）２５部、ビフェニル型エポキシ樹脂（日本

化薬社製「ＮＣ３０００Ｈ」、エポキシ当量約２６９ｇ／ｅｑ．）２５部を、ソルベントナフサ５０部に撹拌しながら加熱溶解させ、その後室温にまで冷却した。その混合溶液に、アミノシラン系カップリング剤（信越化学工業社製「ＫＢＭ５７３」）で表面処理された球形シリカ（平均粒径０．５μｍ、アドマテックス社製「ＳＯ－Ｃ２」）２７０部を添加し、３本ロールで混練して均一に分散させた。そのロール分散物へ、トリアジン骨格含有フェノール系硬化剤（ＤＩＣ社製「ＬＡ－３０１８－５０Ｐ」、水酸基当量約１５１ｇ／ｅｑ．、固形分５０％の１－メトキシ－２－プロパノール溶液）１４部、活性エステル化合物（ＤＩＣ社製「ＨＰＣ－８０００－６５Ｔ」、活性基当量約２２３ｇ／ｅｑ．、不揮発成分６５質量％のトルエン溶液）４０部、フェノキシ樹脂（三菱化学社製「ＹＸ６９５４ＢＨ３０」、固形分３０％のＭＥＫとシクロヘキサノンとの混合溶液）２０部、スチレン変性ポリフェニレンエーテル樹脂（三菱瓦斯化学社製「ＯＰＥ－２Ｓｔ　１２００（数平均分子量１２００）」、固形分６５％のトルエン溶液）１５．４部、ポリカルボジイミド化合物（合成例１で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部、硬化促進剤（「ＤＭＡＰ」、４－ジメチルアミノピリジン、固形分５質量％のＭＥＫ溶液）６部、有機過酸化物（日油社製「パーブチルＣ」、固形分２０％のＭＥＫ溶液）５部を混合し、高速回転ミキサーで均一に分散して、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0316] ＜実施例３＞

ポリカルボジイミド化合物（合成例１で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部の代わりにポリカルボジイミド化合物（合成例２で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部を使用した以外は、実施例２と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0317] ＜実施例４＞

ポリカルボジイミド化合物（合成例１で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部の代わりにポリカルボジイミド化合物（合成例３で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部を使用した以外は、実施例

２と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0318] ＜実施例５＞

ポリカルボジイミド化合物（合成例１で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部の代わりにポリカルボジイミド化合物（合成例４で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部を使用した以外は、実施例２と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0319] ＜実施例６＞

ポリカルボジイミド化合物（合成例１で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部の代わりにポリカルボジイミド化合物（合成例５で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部を使用した以外は、実施例２と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0320] ＜実施例７＞

ポリカルボジイミド化合物（合成例１で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）の使用量を１２部から６部に変更し、さらにポリカルボジイミド化合物（日清紡ケミカル社製「Ｖ－０３」、固形分５０％のトルエン溶液）６部を使用した以外は、実施例２と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0321] ＜実施例８＞

ビフェニル型エポキシ樹脂（日本化薬社製「ＮＣ３０００Ｈ」、エポキシ当量約２６９ｇ／ｅｑ．）２５部の代わりにナフトール型エポキシ樹脂（日鉄ケミカル＆マテリアル社製「ＥＳＮ４７５Ｖ」、エポキシ当量３３２ｇ／ｅｑ．）２５部を使用した以外は、実施例２と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0322] ＜実施例９＞

ビフェニル型エポキシ樹脂（日本化薬社製「ＮＣ３０００Ｈ」、エポキシ当量約２６９ｇ／ｅｑ．）２５部の代わりにビキシレノール型エポキシ樹脂（三菱ケミカル社製「ＹＸ４０００ＨＫ」、エポキシ当量約１８５ｇ／ｅｑ．）２５部を使用した以外は、実施例２と同様にして、ワニス状の樹脂組成

物を調製した。

[0323] ＜実施例１０＞

スチレン変性ポリフェニレンエーテル樹脂（三菱瓦斯化学社製「ＯＰＥ－２Ｓｔ　１２００（数平均分子量１２００）」、固形分６５％のトルエン溶液）１５．４部の代わりに多官能アクリル酸エステル樹脂（新中村化学工業社製「Ａ－ＤＯＧ」、アクリル当量約１６３ｇ／ｅｑ．）１０部を使用した以外は、実施例２と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0324] ＜実施例１１＞

スチレン変性ポリフェニレンエーテル樹脂（三菱瓦斯化学社製「ＯＰＥ－２Ｓｔ　１２００（数平均分子量１２００）」、固形分６５％のトルエン溶液）１５．４部の代わりにビスマレイミド樹脂（信越化学工業社製「ＳＬＫ－６８９５－Ｔ９０」、マレイミド当量約３４５ｇ／ｅｑ．、固形分９０％のトルエン溶液）１１．１部を使用した以外は、実施例２と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0325] ＜実施例１２＞

スチレン変性ポリフェニレンエーテル樹脂（三菱瓦斯化学社製「ＯＰＥ－２Ｓｔ　１２００（数平均分子量１２００）」、固形分６５％のトルエン溶液）１５．４部の代わりにビフェニルアラルキル型多官能マレイミド樹脂（日本化薬社製「ＭＩＲ－３０００－７０ＭＴ」、マレイミド当量約３９３ｇ／ｅｑ．、固形分７０％のＭＥＫおよびトルエンの混合溶液）１４．３部を使用した以外は、実施例２と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0326] ＜比較例２＞

ポリカルボジイミド化合物（合成例１で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部の代わりにポリカルボジイミド化合物（日清紡ケミカル社製「Ｖ－０３」、固形分５０％のトルエン溶液）１２部を使用した以外は、実施例２と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0327] 実施例２～１２及び比較例２の樹脂組成物について上記試験例１～３に示

す方法で銅めっきピール強度、破断点伸度及び誘電正接の測定を行った。実施例２～１２及び比較例２の樹脂組成物の不揮発成分の含有量、上記試験例１～３の測定結果を下記表２にまとめる。

[0328]

[表2]

			実施例												比較例
			2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	2
不揮発成分（質量部）	(A)	カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物	合成例1 6					3	6	6	6	6	6	
			合成例2	6										
			合成例3		6									
			合成例4			6								
			合成例5				6							
	(A')	その他のカルボジイミド化合物	V-03					3						6
	(B)	カルボジイミド構造を有さないラジカル重合性基含有化合物	OPE-2St 1200	10	10	10	10	10	10	10				10
			A-DOG								10			
			SLK-6895-T90									10		
			MIR-3000-70MT										10	
	(C1)	エポキシ樹脂	828US	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25
			NC3000H	25	25	25	25	25			25	25	25	25
			ESN475V						25					
			YX4000HK							25				
	(C2)	エポキシ樹脂硬化剤	HPC-8000-65T	26	26	26	26	26	26	26	26	26	26	26
			LA3018-50P	7	7	7	7	7	7	7	7	7	7	7
			BA230S75											
			PT30											
	(D)	無機充填材	SO-C2	270	270	270	270	270	270	270	270	270	270	270
	(E)	熱可塑性樹脂	YX6954BH30	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6
	(F)	応力緩和材	EXL-2655											
			PB3600											
	(G)	ラジカル重合開始剤	パープチルC	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
	(H)	硬化促進剤	DMAP	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
			Co(acac)3											
	全不揮発成分合計			376.3	376.3	376.3	376.3	376.3	376.3	376.3	376.3	376.3	376.3	376.3
樹脂組成物中各成分含有量	(A)成分/全不揮発成分（質量%）			1.6	1.6	1.6	1.6	1.6	0.8	1.6	1.6	1.6	1.6	1.6	
	(B)成分/全不揮発成分（質量%）			2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7
	(C1)成分/全不揮発成分（質量%）			13.3	13.3	13.3	13.3	13.3	13.3	13.3	13.3	13.3	13.3	13.3	13.3
	(C2)成分/全不揮発成分（質量%）			8.8	8.8	8.8	8.8	8.8	8.8	8.8	8.8	8.8	8.8	8.8	8.8
	(D)成分/全不揮発成分（質量%）			71.8	71.8	71.8	71.8	71.8	71.8	71.8	71.8	71.8	71.8	71.8	71.8
評価結果	破断点伸度（%）			2.2	2.3	2.2	2.3	2.5	2.0	2.0	2.2	1.8	3.0	2.4	1.4
	HAST試験後めっきピール強度（kgf/cm）			0.31	0.30	0.31	0.30	0.33	0.28	0.24	0.35	0.29	0.43	0.35	0.18
	誘電正接			0.0054	0.0053	0.0054	0.0053	0.0053	0.0053	0.0047	0.0057	0.0059	0.0050	0.0056	0.0053

[0329] 上記表２に示される結果から、（Ａ）カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物、及び（Ｂ）カルボジイミド構造を有さないラジカル重合性基含有化合物、或いは（Ｃ）熱硬化性樹脂を含む樹脂組成物を使用した場合、（Ａ）成分を含まないものと比較して、より優れた機械強度及びめっき密着性を有する硬化物を得ることができることがわかる。

[0330] ＜実施例１３＞

ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（三菱ケミカル社製「８２８ＵＳ」、エポキシ当量約１８０ｇ／ｅｑ．）２５部、ビフェニル型エポキシ樹脂（日本化薬社製「ＮＣ３０００Ｈ」、エポキシ当量約２６９ｇ／ｅｑ．）２５部を、ソルベントナフサ５０部に撹拌しながら加熱溶解させ、その後室温にまで冷却した。その混合溶液に、アミノシラン系カップリング剤（信越化学工業社製「ＫＢＭ５７３」）で表面処理された球形シリカ（平均粒径０．５μｍ、アドマテックス社製「ＳＯ－Ｃ２」）２７０部、メタクリルブタジエンスチレンゴム粒子（ダウ・ケミカル日本社製「ＥＸＬ－２６５５」）３部を添加し、３本ロールで混練して均一に分散させた。そのロール分散物へ、トリアジン骨格含有フェノール系硬化剤（ＤＩＣ社製「ＬＡ－３０１８－５０Ｐ」、水酸基当量約１５１ｇ／ｅｑ．、固形分５０％の１－メトキシ－２－プロパノール溶液）１４部、活性エステル化合物（ＤＩＣ社製「ＨＰＣ－８０００－６５Ｔ」、活性基当量約２２３ｇ／ｅｑ．、不揮発成分６５質量％のトルエン溶液）４０部、フェノキシ樹脂（三菱化学社製「ＹＸ６９５４ＢＨ３０」、固形分３０％のＭＥＫとシクロヘキサノンとの混合溶液）２０部、スチレン変性ポリフェニレンエーテル樹脂（三菱瓦斯化学社製「ＯＰＥ－２Ｓｔ　１２００（数平均分子量１２００）」、固形分６５％のトルエン溶液）１５．４部、ポリカルボジイミド化合物（合成例１で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部、硬化促進剤（「ＤＭＡＰ」、４－ジメチルアミノピリジン、固形分５質量％のＭＥＫ溶液）６部、有機過酸化物（日油社製「パーブチルＣ」、固形分２０％のＭＥＫ溶液）５部を混合し、高速回転ミキサーで均一に分散して、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0331] ＜実施例１４＞

ポリカルボジイミド化合物（合成例１で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部の代わりにポリカルボジイミド化合物（合成例２で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部を使用した以外は、実施例１３と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0332] ＜実施例１５＞

ポリカルボジイミド化合物（合成例１で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部の代わりにポリカルボジイミド化合物（合成例３で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部を使用した以外は、実施例１３と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0333] ＜実施例１６＞

ポリカルボジイミド化合物（合成例１で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部の代わりにポリカルボジイミド化合物（合成例４で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部を使用した以外は、実施例１３と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0334] ＜実施例１７＞

ポリカルボジイミド化合物（合成例１で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部の代わりにポリカルボジイミド化合物（合成例５で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部を使用した以外は、実施例１３と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0335] ＜実施例１８＞

ポリカルボジイミド化合物（合成例１で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）の使用量を６部から１２部に変更し、さらにポリカルボジイミド化合物（日清紡ケミカル社製「Ｖ－０３」、固形分５０％のトルエン溶液）６部を使用した以外は、実施例１３と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0336] ＜実施例１９＞

ビフェニル型エポキシ樹脂（日本化薬社製「ＮＣ３０００Ｈ」、エポキシ

当量約２６９ｇ／ｅｑ．）２５部の代わりにナフトール型エポキシ樹脂（日鉄ケミカル＆マテリアル社製「ＥＳＮ４７５Ｖ」、エポキシ当量３３２ｇ／ｅｑ．）２５部を使用した以外は、実施例１３と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0337] ＜実施例２０＞

ビフェニル型エポキシ樹脂（日本化薬社製「ＮＣ３０００Ｈ」、エポキシ当量約２６９ｇ／ｅｑ．）２５部の代わりにビキシレノール型エポキシ樹脂（三菱ケミカル社製「ＹＸ４０００ＨＫ」、エポキシ当量約１８５ｇ／ｅｑ．）２５部を使用した以外は、実施例１３と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0338] ＜実施例２１＞

メタクリルブタジエンスチレンゴム粒子（ダウ・ケミカル日本社製「ＥＸＬ－２６５５」）３部を添加せずにロール分散物を調製し、そのロール分散物へエポキシ化ポリブタジエン樹脂（ダイセル社製「ＰＢ３６００」、エポキシ当量約１９３ｇ／ｅｑ．）３部を添加した以外は、実施例１３と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0339] ＜実施例２２＞

トリアジン骨格含有フェノール系硬化剤（ＤＩＣ社製「ＬＡ－３０１８－５０Ｐ」、水酸基当量約１５１ｇ／ｅｑ．、固形分５０％の１－メトキシ－２－プロパノール溶液）の使用量を１４部から５０部に変更し、活性エステル化合物（ＤＩＣ社製「ＨＰＣ－８０００－６５Ｔ」、活性基当量約２２３ｇ／ｅｑ．、不揮発成分６５質量％のトルエン溶液）４０部を使用しなかった以外は、実施例１３と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0340] ＜実施例２３＞

ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（三菱ケミカル社製「８２８ＵＳ」、エポキシ当量約１８０ｇ／ｅｑ．）２５部、ビフェニル型エポキシ樹脂（日本化薬社製「ＮＣ３０００Ｈ」、エポキシ当量約２６９ｇ／ｅｑ．）２５部を、ソルベントナフサ５０部に撹拌しながら加熱溶解させ、その後室温にまで

冷却した。その混合溶液に、アミノシラン系カップリング剤（信越化学工業社製「ＫＢＭ５７３」）で表面処理された球形シリカ（平均粒径０．５μｍ、アドマテックス社製「ＳＯ－Ｃ２」）２７０部、メタクリルブタジエンスチレンゴム粒子（ダウ・ケミカル日本社製「ＥＸＬ－２６５５」）３部を添加し、３本ロールで混練して均一に分散させた。そのロール分散物へ、活性エステル化合物（ＤＩＣ社製「ＨＰＣ－８０００－６５Ｔ」、活性基当量約２２３ｇ／ｅｑ．、不揮発成分６５質量％のトルエン溶液）２１．５部、ビスフェノールＡジシアネートのプレポリマー（ロンザジャパン社製「ＢＡ２３０Ｓ７５」、シアネート当量約２３５ｇ／ｅｑ．、固形分７５％のＭＥＫ溶液）１２部、フェノールノボラック型多官能シアネートエステル樹脂（ロンザジャパン社製「ＰＴ３０」、シアネート当量約１２４ｇ／ｅｑ．、固形分８０％のＭＥＫ溶液）５部、フェノキシ樹脂（三菱化学社製「ＹＸ６９５４ＢＨ３０」、固形分３０％のＭＥＫとシクロヘキサノンとの混合溶液）２０部、スチレン変性ポリフェニレンエーテル樹脂（三菱瓦斯化学社製「ＯＰＥ－２Ｓｔ　１２００（数平均分子量１２００）」、固形分６５％のトルエン溶液）１５．４部、ポリカルボジイミド化合物（合成例１で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部、硬化促進剤（「ＤＭＡＰ」、４－ジメチルアミノピリジン、固形分５質量％のＭＥＫ溶液）０．４部、有機過酸化物（日油社製「パーブチルＣ」、固形分２０％のＭＥＫ溶液）５部、有機金属触媒（東京化成社製「コバルト（ＩＩＩ）アセチルアセトナート」、固形分１％のＭＥＫ溶液）４部を混合し、高速回転ミキサーで均一に分散して、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0341] ＜実施例２４＞

スチレン変性ポリフェニレンエーテル樹脂（三菱瓦斯化学社製「ＯＰＥ－２Ｓｔ　１２００（数平均分子量１２００）」、固形分６５％のトルエン溶液）１５．４部の代わりにビスマレイミド樹脂（信越化学工業社製「ＳＬＫ－６８９５－Ｔ９０」、マレイミド当量約３４５ｇ／ｅｑ．、固形分９０％のトルエン溶液）１１．１部を使用した以外は、実施例１３と同様にして、

ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0342] ＜実施例２５＞

スチレン変性ポリフェニレンエーテル樹脂（三菱瓦斯化学社製「ＯＰＥ－２Ｓｔ　１２００（数平均分子量１２００）」、固形分６５％のトルエン溶液）１５．４部の代わりにビフェニルアラルキル型多官能マレイミド樹脂（日本化薬社製「ＭＩＲ－３０００－７０ＭＴ」、マレイミド当量約３９３ｇ／ｅｑ．）１４．３部を使用した以外は、実施例１３と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0343] ＜比較例３＞

ポリカルボジイミド化合物（合成例１で得られたもの、固形分５０％のトルエン溶液）１２部の代わりにポリカルボジイミド化合物（日清紡ケミカル社製「Ｖ－０３」、固形分５０％のトルエン溶液）１２部を使用した以外は、実施例１３と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0344] ＜比較例４＞

スチレン変性ポリフェニレンエーテル樹脂（三菱瓦斯化学社製「ＯＰＥ－２Ｓｔ　１２００（数平均分子量１２００）」を使用しなかった以外は、比較例３と同様にして、ワニス状の樹脂組成物を調製した。

[0345] ＜試験例４：クラック耐性の評価＞

ＪＩＳ　Ｋ　５６００－５－６に従って、試験例１（５）と同様の方法で得られた粗化処理後の評価基板ａに碁盤目状に切れ込みを入れ、硬化塗膜のクラックの有無を光学顕微鏡で観察して評価した。具体的には、評価基板ａの硬化塗膜に１ｍｍ間隔で格子状に切れ込みを入れて、縦方向に１０個、横方向に１０個、合計１００個の塗膜片を形成した。ここで塗膜片とは、切れ込みで区画された硬化塗膜の各部分を表す。これら１００個の塗膜片を光学顕微鏡で観察して、クラックがある塗膜片の数をカウントした。塗膜片の合計数１００個に対する、クラックがある塗膜片の数の割合に基づいて、下記の評価基準で耐クラック性を評価した。

評価基準

「〇」：硬化塗膜にクラックほぼ無し（５％未満）

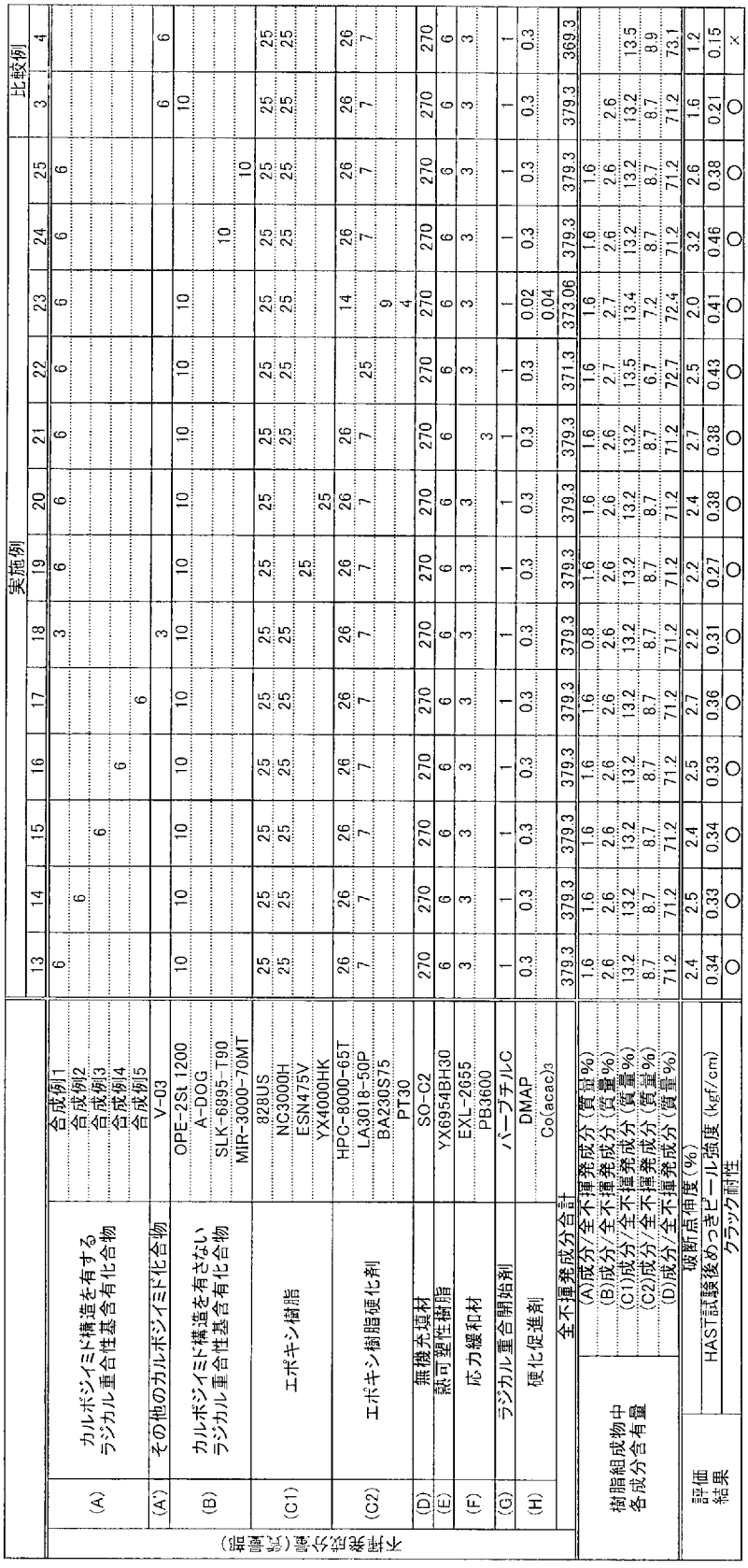
「△」：硬化塗膜にわずかにクラック有り（５％以上１５％未満）

「×」：硬化塗膜に多数のクラック有り（１５％以上）

[0346] 実施例１３～２５並びに比較例３及び４の樹脂組成物について上記試験例１、２及び４に示す方法で銅めっきピール強度、破断点伸度の測定、及びクラック耐性の評価を行った。実施例１３～２５並びに比較例３及び４の樹脂組成物の不揮発成分の含有量、上記試験例１、２及び４の測定結果及び評価結果を下記表３にまとめる。

[0347]

[表3]



			実施例																比較例	
			13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	3	4
樹脂組成物(質量%)	(A)	カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物	合成例1 6					3	6	6	6	6	6	6	6		
			合成例2	6													
			合成例3		6												
			合成例4			6											
			合成例5				6										
	(A')	その他のカルボジイミド化合物	V-03					3								6	6
	(B)	カルボジイミド構造を有さないラジカル重合性基含有化合物	OPE-2St 1200	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10			10	
			A-DOG														
			SLK-6895-T90											10			
			MIR-3000-70MT												10		
	(C1)	エポキシ樹脂	828US	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25
			NC3000H	25	25	25	25	25			25	25	25	25	25	25	25
			ESN475V						25								
			YX4000HK							25							
	(C2)	エポキシ樹脂硬化剤	HPC-8000-65T	26	26	26	26	26	26	26	26		14	26	26	26	26
			LA3018-50P	7	7	7	7	7	7	7	7	25		7	7	7	7
			BA230S75										9				
			PT30										4				
	(D)	無機充填材	SO-C2	270	270	270	270	270	270	270	270	270	270	270	270	270	270
	(E)	熱可塑性樹脂	YX6954BH30	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6
	(F)	応力緩和材	EXL-2655	3	3	3	3	3	3	3		3	3	3	3	3	3
			PB3600								3						
	(G)	ラジカル重合開始剤	パープチルC	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
	(H)	硬化促進剤	DMAP	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.02	0.3	0.3	0.3	0.3
			Co(acac)3										0.04				
	全不揮発成分合計		379.3	379.3	379.3	379.3	379.3	379.3	379.3	379.3	379.3	371.3	373.06	379.3	379.3	379.3	369.3
樹脂組成物中各成分含有量	(A)成分/全不揮発成分(質量%)		1.6	1.6	1.6	1.6	1.6	0.8	1.6	1.6	1.6	1.6	1.6	1.6	1.6		
	(B)成分/全不揮発成分(質量%)		2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.7	2.7	2.6	2.6	2.6	
	(C1)成分/全不揮発成分(質量%)		13.2	13.2	13.2	13.2	13.2	13.2	13.2	13.2	13.2	13.5	13.4	13.2	13.2	13.2	13.5
	(C2)成分/全不揮発成分(質量%)		8.7	8.7	8.7	8.7	8.7	8.7	8.7	8.7	8.7	6.7	7.2	8.7	8.7	8.7	8.9
	(D)成分/全不揮発成分(質量%)		71.2	71.2	71.2	71.2	71.2	71.2	71.2	71.2	71.2	72.7	72.4	71.2	71.2	71.2	73.1
評価結果	破断点伸度(%)		2.4	2.5	2.4	2.5	2.7	2.2	2.2	2.4	2.7	2.5	2.0	3.2	2.6	1.6	1.2
	HAST試験後めっきピール強度(kgf/cm)		0.34	0.33	0.34	0.33	0.36	0.31	0.27	0.38	0.38	0.43	0.41	0.46	0.38	0.21	0.15
	クラック耐性		○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	×

[0348] 上記表３に示される結果から、（Ａ）カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物、及び（Ｂ）カルボジイミド構造を有さないラジカル重合性基含有化合物を使用した場合、（Ａ）成分及び（Ｂ）成分を含まないものと比較して、より優れたクラック耐性を示し、（Ａ）成分を含まないものと比較して、より優れた機械強度及びめっき密着性を有する硬化物を得ることができることがわかる。

[0349] 本願は、日本国特許庁に出願された特願２０２１－１３５９５１（出願日２０２１年８月２３日）を基礎としており、その内容はすべて本明細書に包含されるものとする。

請求の範囲

[請求項1] （Ａ）カルボジイミド構造を有するラジカル重合性基含有化合物を含む樹脂組成物であって、

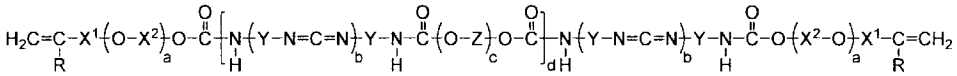
（Ｂ）カルボジイミド構造を有さないラジカル重合性基含有化合物、及び

（Ｃ）熱硬化性樹脂

のうち少なくとも一方をさらに含む樹脂組成物。

[請求項2] （Ａ）成分が、式（１）：

[化1]



(1)

[式中、

Ｒは、それぞれ独立して、水素原子、又はメチル基を示し；

Ｘ[1]は、それぞれ独立して、カルボニル基、メチレン基、フェニレン基、又はフェニレン－メチレン基を示し；

Ｘ[2]は、それぞれ独立して、炭素数２～４の２価の飽和炭化水素基を示し；

Ｙは、それぞれ独立して、置換基を有していてもよい炭素数２～３０の２価の飽和炭化水素基、又は置換基を有していてもよい炭素数２～３０の２価の不飽和炭化水素基を示し；

Ｚは、それぞれ独立して、置換基を有していてもよい炭素数２～３００の２価の飽和炭化水素基、又は置換基を有していてもよい炭素数２～３００の２価の不飽和炭化水素基を示し；

ａは、それぞれ独立して、０、又は１以上の整数を示し；

ｂは、それぞれ独立して、１以上の整数を示し；

ｃは、それぞれ独立して、１以上の整数を示し；

ｄは、０、又は１以上の整数を示す。]

で表されるラジカル重合性基含有化合物を含む、請求項１に記載の樹脂組成物。

[請求項3] （Ａ）成分の含有量が、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、０．０５質量％～１０質量％である、請求項１に記載の樹脂組成物。

[請求項4] （Ｃ）成分が、エポキシ樹脂を含む、請求項１に記載の樹脂組成物。

[請求項5] （Ｃ）成分が、活性エステル系硬化剤をさらに含む、請求項４に記載の樹脂組成物。

[請求項6] （Ｃ）成分が、フェノール系硬化剤をさらに含む、請求項４に記載の樹脂組成物。

[請求項7] （Ｄ）無機充填材をさらに含む、請求項１に記載の樹脂組成物。

[請求項8] （Ｄ）成分が、シリカである、請求項７に記載の樹脂組成物。

[請求項9] （Ｄ）成分の含有量が、樹脂組成物中の不揮発成分を１００質量％とした場合、４０質量％以上である、請求項７に記載の樹脂組成物。

[請求項10] フェノキシ樹脂をさらに含む、請求項１に記載の樹脂組成物。

[請求項11] 樹脂組成物の硬化物の誘電正接（Ｄｆ）が、５．８ＧＨｚ、２３℃で測定した場合、０．００６以下である、請求項１に記載の樹脂組成物。

[請求項12] 樹脂組成物の硬化物の破断点伸度が、２３℃で測定した場合、１．２％以上である、請求項１に記載の樹脂組成物。

[請求項13] 導体層を形成するための絶縁層形成用である、請求項１に記載の樹脂組成物。

[請求項14] プリント配線板の絶縁層形成用である、請求項１に記載の樹脂組成物。

[請求項15] 請求項１～１４の何れか１項に記載の樹脂組成物の硬化物。

[請求項16] 請求項１～１４の何れか１項に記載の樹脂組成物を含有する、シート状積層材料。

[請求項17] 支持体と、当該支持体上に設けられた請求項１～１４の何れか１項に記載の樹脂組成物から形成される樹脂組成物層と、を有する樹脂シート。

[請求項18] 請求項１～１４の何れか１項に記載の樹脂組成物の硬化物からなる絶縁層を備えるプリント配線板。

[請求項19] 請求項１８に記載のプリント配線板を含む、半導体装置。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2022/031539

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08F 220/36(2006.01)i; ***B32B 27/38***(2006.01)i; ***B32B 27/42***(2006.01)i; ***C08F 2/44***(2006.01)i; ***C08F 216/12***(2006.01)i; ***H05K 1/03***(2006.01)i

FI: C08F220/36; B32B27/38; B32B27/42 101; C08F2/44 Z; C08F216/12; H05K1/03 610K; H05K1/03 610L; H05K1/03 610M; H05K1/03 610P; H05K1/03 610R; H05K1/03 630H

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)

C08F220/36; B32B27/38; B32B27/42; C08F2/44; C08F216/12; H05K1/03

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

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2022
Registered utility model specifications of Japan 1996-2022
Published registered utility model applications of Japan 1994-2022

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

CAplus/REGISTRY(STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 9-309871 A (NISSHINBO INDUSTRIES, INC.) 02 December 1997 (1997-12-02) claims, paragraph [0029], examples	1-3, 7-8, 15
A	entire text	4-6, 9-14, 16-19
A	JP 2019-156909 A (AJINOMOTO CO., INC.) 19 September 2019 (2019-09-19) entire text	1-19

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

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

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
26 October 2022	**08 November 2022**
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
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2022/031539

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 9-309871 A	02 December 1997	EP 808828 A2 claims, p. 4, lines 43-52, examples	
JP 2019-156909 A	19 September 2019	US 2019/0276585 A1 entire text	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2022/031539

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08F 220/36(2006.01)i; B32B 27/38(2006.01)i; B32B 27/42(2006.01)i; C08F 2/44(2006.01)i; C08F 216/12(2006.01)i; H05K 1/03(2006.01)i
FI: C08F220/36; B32B27/38; B32B27/42 101; C08F2/44 Z; C08F216/12; H05K1/03 610K; H05K1/03 610L; H05K1/03 610M; H05K1/03 610P; H05K1/03 610R; H05K1/03 630H

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08F220/36; B32B27/38; B32B27/42; C08F2/44; C08F216/12; H05K1/03

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０２２年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２２年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２２年

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

CAplus/REGISTRY(STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	JP 9-309871 A (日清紡績株式会社) 02.12.1997 (1997-12-02) 特許請求の範囲、段落[0029]、実施例	1-3,7-8,15
A	全文	4-6,9-14,16-19
A	JP 2019-156909 A (味の素株式会社) 19.09.2019 (2019-09-19) 全文	1-19

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

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

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
26.10.2022	08.11.2022

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

権限のある職員（特許庁審査官）
牟田　博一　4J 2588
電話番号 03-3581-1101 内線 3457

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/JP2022/031539

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 9-309871 A	02.12.1997	EP 808828 A2 Claims、4ページ43行-52行、Examples	
JP 2019-156909 A	19.09.2019	US 2019/0276585 A1 全文	