



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2014-0148385
(43) 공개일자 2014년12월31일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C08G 59/40 (2006.01) *C08L 63/00* (2006.01)
C08K 3/00 (2006.01) *C08K 3/10* (2006.01)
C08K 5/16 (2006.01) *C08L 61/14* (2006.01)
C08J 5/24 (2006.01) *B32B 15/08* (2006.01)
B32B 15/092 (2006.01) *H05K 1/05* (2006.01)
 (21) 출원번호 10-2014-7026182
 (22) 출원일자(국제) 2013년03월25일
 심사청구일자 없음
 (85) 번역문제출일자 2014년09월19일
 (86) 국제출원번호 PCT/JP2013/058625
 (87) 국제공개번호 WO 2013/146700
 국제공개일자 2013년10월03일
 (30) 우선권주장
 JP-P-2012-080722 2012년03월30일 일본(JP)

(71) 출원인
미츠비시 가스 가가쿠 가부시카이가이사
 일본 도쿄도 지요다쿠 마루노우치 2초메 5반 2고
 (72) 발명자
사이토 지사토
 일본 도쿄도 가츠시카쿠 니이주쿠 6초메 1방 1고
미츠비시 가스 가가쿠 가부시카이가이사 도쿄테쿠노
파쿠 나이
우에야마 다이스케
 일본 도쿄도 가츠시카쿠 니이주쿠 6초메 1방 1고
미츠비시 가스 가가쿠 가부시카이가이사 도쿄테쿠노
파쿠 나이
 (뒷면에 계속)
 (74) 대리인
특허법인코리아나

전체 청구항 수 : 총 23 항

(54) 발명의 명칭 **수지 조성물, 프리프레그 및 적층판**

(57) 요약

방열 특성이 우수할 뿐만 아니라, 성형성이나 기계적 드릴 가공성이 양호하고, 또한, 외관도 우수한 적층판이나 프리프레그 배선판 등을 간이하게 양호한 재현성으로 실현 가능한 수지 조성물, 이것을 사용한 프리프레그 및 급속박 피복 적층판 등을 제공한다. 시안산에스테르 화합물 (A), 에폭시 수지 (B), 제 1 무기 충전재 (C), 제 2 무기 충전재 (D) 및 몰리브덴 화합물 (E) 를 함유하고, 제 1 무기 충전재 (C) 와 제 2 무기 충전재 (D) 의 평균 입자직경의 비가 1 : 0.02 ~ 1 : 0.2 인 수지 조성물.

(72) 발명자

소가메 마사노부

일본 도쿄도 가즈시카쿠 니이주쿠 6쵸메 1방 1고
미즈비시 가스 가가쿠 가부시키키가이샤 도쿄테쿠노
파쿠 나이

마부치 요시노리

일본 도쿄도 가즈시카쿠 니이주쿠 6쵸메 1방 1고
미즈비시 가스 가가쿠 가부시키키가이샤 도쿄테쿠노
파쿠 나이

가토 요시히로

일본 도쿄도 가즈시카쿠 니이주쿠 6쵸메 1방 1고
미즈비시 가스 가가쿠 가부시키키가이샤 도쿄테쿠노
파쿠 나이

특허청구의 범위

청구항 1

시안산에스테르 화합물 (A), 에폭시 수지 (B), 제 1 무기 충전재 (C), 제 2 무기 충전재 (D) 및 물리브덴 화합물 (E) 를 함유하고, 상기 제 1 무기 충전재 (C) 와 상기 제 2 무기 충전재 (D) 의 평균 입자직경의 비가 1 : 0.02 ~ 1 : 0.2 인 수지 조성물.

청구항 2

제 1 항에 있어서,

상기 제 1 무기 충전재 (C) 와 상기 제 2 무기 충전재 (D) 의 질량비가 1 : 0.03 ~ 1 : 0.5 인 수지 조성물.

청구항 3

제 1 항 또는 제 2 항에 있어서,

상기 제 1 무기 충전재 (C) 및 상기 제 2 무기 충전재 (D) 가, 상기 시안산에스테르 화합물 (A) 와 상기 에폭시 수지 (B) 의 합계 100 질량부에 대하여 합계로 200 ~ 800 질량부 함유되는 수지 조성물.

청구항 4

제 1 항 내지 제 3 항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 물리브덴 화합물 (E) 가 상기 시안산에스테르 화합물 (A) 및 상기 에폭시 수지 (B) 의 합계 100 질량부에 대하여 0.1 ~ 20 질량부 함유되는 수지 조성물.

청구항 5

제 1 항 내지 제 4 항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 제 1 무기 충전재 (C) 가 산화마그네슘 및/또는 베마이트인 수지 조성물.

청구항 6

제 1 항 내지 제 5 항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 제 1 무기 충전재 (C) 가 0.5 ~ 10 μm 의 평균 입자직경을 갖는 수지 조성물.

청구항 7

제 1 항 내지 제 6 항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 제 2 무기 충전재 (D) 가 알루미늄, 산화마그네슘, 질화붕소 및 질화알루미늄으로 이루어지는 군에서 선택되는 적어도 1 종인 수지 조성물.

청구항 8

제 1 항 내지 제 7 항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 제 2 무기 충전재 (D) 가 구형인 수지 조성물.

청구항 9

제 1 항 내지 제 8 항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 제 1 무기 충전재 (C), 상기 제 2 무기 충전재 (D) 및 상기 물리브덴 화합물 (E) 가 수지 조성물의 전체 체적에 대하여 합계로 40 ~ 70 체적% 함유되는 수지 조성물.

청구항 10

제 1 항 내지 제 9 항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 폴리브덴 화합물 (E) 가 폴리브덴 화합물로 이루어지는 코어 입자와 그 코어 입자의 표면의 적어도 일부에 형성된 무기 산화물을 갖는 수지 조성물.

청구항 11

제 1 항 내지 제 10 항 중 어느 한 항에 있어서,

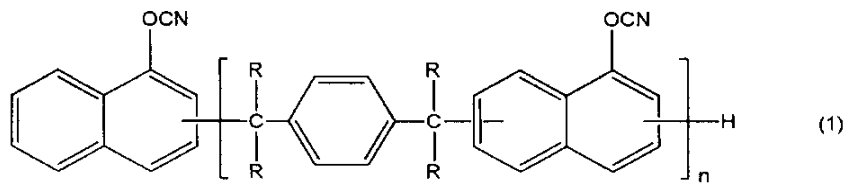
상기 시안산에스테르 화합물 (A) 가 나프톨아르알킬형 시안산에스테르 화합물, 노볼락형 시안산에스테르 화합물 및 비페닐아르알킬형 시안산에스테르 화합물로 이루어지는 군에서 선택되는 적어도 1 종인 수지 조성물.

청구항 12

제 11 항에 있어서,

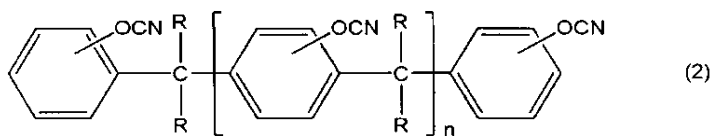
상기 나프톨아르알킬형 시안산에스테르 화합물이 하기 일반식 (1) 로 표시되는 것이고, 상기 노볼락형 시안산에스테르 화합물이 하기 일반식 (2) 로 표시되는 것이고, 상기 비페닐아르알킬형 시안산에스테르 화합물이 하기 일반식 (3) 으로 표시되는 것인 수지 조성물.

[화학식 1]



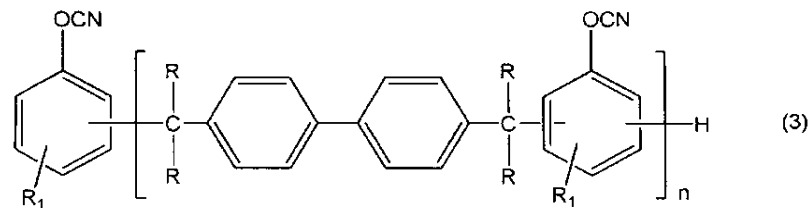
(식 중, R 은 각각 독립적으로 수소 원자 또는 메틸기를 나타내고, n 은 1 ~ 50 의 정수를 나타낸다)

[화학식 2]



(식 중, R 은 각각 독립적으로 수소 원자 또는 메틸기를 나타내고, n 은 1 ~ 50 의 정수를 나타낸다)

[화학식 3]



(식 중, R 은 각각 독립적으로 수소 원자 또는 메틸기를 나타내고, R₁ 은 각각 독립적으로 수소 원자, 탄소수 2 이하의 알킬기 또는 아릴기를 나타내고, n 은 1 ~ 50 의 정수를 나타낸다)

청구항 13

제 1 항 내지 제 12 항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 시안산에스테르 화합물 (A) 가 상기 시안산에스테르 화합물 (A) 및 상기 에폭시 수지 (B) 의 합계 100 질량부에 대하여 10 ~ 90 질량부 함유되는 수지 조성물.

청구항 14

제 1 항 내지 제 13 항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 에폭시 수지 (B) 가 비페닐아르알킬형 에폭시 수지, 폴리옥시나프틸렌형 에폭시 수지, 트리페놀메탄형 에폭시 수지, 비스페놀 A 형 에폭시 수지, 비스페놀 F 형 에폭시 수지, 페놀 노볼락형 에폭시 수지, 크레졸 노볼락형 에폭시 수지, 비스페놀 A 노볼락형 에폭시 수지, 브롬화비스페놀 A 형 에폭시 수지, 브롬화페놀 노볼락형 에폭시 수지, 비페닐형 에폭시 수지, 페놀아르알킬형 에폭시 수지 및 나프톨아르알킬형 에폭시 수지로 이루어지는 군에서 선택되는 적어도 1 종인 수지 조성물.

청구항 15

제 1 항 내지 제 14 항 중 어느 한 항에 있어서,
추가로 실란 커플링제 (F) 를 함유하는 수지 조성물.

청구항 16

제 15 항에 있어서,
상기 실란 커플링제 (F) 가 상기 시안산에스테르 화합물 (A) 및 상기 에폭시 수지 (B) 의 합계 100 질량부에 대하여 3 ~ 30 질량부 함유되는 수지 조성물.

청구항 17

제 1 항 내지 제 16 항 중 어느 한 항에 있어서,
추가로 말레이미드 화합물 (G) 를 함유하는 수지 조성물.

청구항 18

제 17 항에 있어서,
상기 말레이미드 화합물 (G) 가 상기 시안산에스테르 화합물 (A), 상기 에폭시 수지 (B) 및 상기 말레이미드 화합물 (G) 의 합계 100 질량부에 대하여 5 ~ 75 질량부 함유되는 수지 조성물.

청구항 19

제 17 항 또는 제 18 항에 있어서,
상기 말레이미드 화합물 (G) 가 비스(4-말레이미드페닐)메탄, 2,2-비스(4-(4-말레이미드페녹시)-페닐)프로판 및 비스(3-에틸-5-메틸-4-말레이미드페닐)메탄으로 이루어지는 군에서 선택되는 적어도 1 종인 수지 조성물.

청구항 20

제 1 항 내지 제 19 항 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물을 기재에 함침 또는 도포하여 이루어지는 프리프레그.

청구항 21

제 20 항에 기재된 프리프레그를 경화시켜 얻어지는 적층판.

청구항 22

제 20 항에 기재된 프리프레그와 금속박을 적층하고 경화시켜 이루어지는 금속박 피복 적층판.

청구항 23

절연층과, 상기 절연층의 표면에 형성된 도체층을 포함하는 프린트 배선판으로서,
상기 절연층이 제 1 항 내지 제 19 항 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물을 함유하는 프린트 배선판.

명세서

기술분야

본 발명은 수지 조성물, 프리프레그 및 적층판 등에 관한 것으로, 특히, 방열 특성이 우수할 뿐만 아니라 성형

[0001]

성이나 기계니켈 드릴 가공성이 양호하고 외관도 우수한 프린트 배선판용 수지 조성물 등에 관한 것이다.

배경 기술

- [0002] 최근, 전자 기기나 통신기, 퍼스널 컴퓨터 등에 널리 사용되고 있는 반도체의 고집적화·고기능화·고밀도 실장화는 점점 더 가속되고 있으며, 이전보다도 훨씬 더 프린트 배선판에 대한 특성에 대한 요구가 높아지고 있다. 특히, 반도체의 발열에 대한 프린트 배선판의 방열 기술이 요구되고 있다. 이는, 반도체의 고기능화에 수반하여 반도체로부터 발생하는 열량이 커지고 있고, 또한 고집적화·고밀도 실장화의 영향에 의해 열이 내부에 쌓이기 쉬운 구성으로 되고 있기 때문이다.
- [0003] 일반적으로, 프린트 배선판의 절연층에 사용되는 에폭시 수지 등의 열경화성 수지 자체는 열전도율이 낮다. 그래서, 프린트 배선판의 열전도율을 향상시키기 위해, 소정의 입자직경 분포를 갖는 혼합 필러 (무기 충전제)를 열경화성 수지에 80 ~ 95 중량% 배합함으로써 경화물의 열전도율을 3 ~ 10 W/mK 로 하는 열전도성 수지 조성물이 제안되어 있다 (특허문헌 1 참조).

선행기술문헌

특허문헌

- [0004] (특허문헌 0001) 일본 공개특허공보 2001-348488호

발명의 내용

해결하려는 과제

- [0005] 그러나, 상기 특허문헌 1 과 같이 열경화성 수지 조성물에 무기 충전제를 고충전하면, 열전도율을 향상시키는 것은 가능하지만, 열경화성 수지의 체적 비율이 적어지기 때문에 성형성이 악화되고, 수지와 무기 충전제 사이에 크랙이나 보이드가 발생하기 쉬워진다. 또한, 무기 충전제를 고충전시킨 프린트 배선판은 가공성이 나쁘다는 결점이 있으며, 특히 기계니켈 드릴에 의한 구멍 가공시에는, 드릴비트의 마모나 파손이 현저하다는 문제가 있었다.
- [0006] 본 발명은 상기 과제를 감안하여 이루어진 것으로, 그 목적은 방열 특성이 우수할 뿐만 아니라 성형성이나 기계니켈 드릴 가공성이 양호하고, 외관도 우수한 적층판이나 프린트 배선판 등을 간이하게 양호한 재현성으로 실현 가능한 수지 조성물을 제공하는 것에 있다. 또한, 본 발명의 다른 목적은 방열 특성, 성형성, 기계니켈 드릴 가공성 및 유리 전이 온도가 우수한 프리프레그, 적층판, 금속박 피복 적층판 및 프린트 배선판 등을 제공하는 것에 있다.

과제의 해결 수단

- [0007] 본 발명자들은 이러한 문제점의 해결을 위해 예의 검토한 결과, 시안산에스테르 화합물 (A), 에폭시 수지 (B), 제 1 무기 충전제 (C), 제 2 무기 충전제 (D) 및 몰리브덴 화합물 (E) 를 함유하고, 제 1 무기 충전제 (C) 와 제 2 무기 충전제 (D) 의 평균 입자직경의 비가 1 : 0.02 ~ 1 : 0.2 인 수지 조성물을 사용함으로써 상기한 과제가 해결되는 것을 알아내어, 본 발명을 완성하기에 이르렀다.
- [0008] 즉, 본 발명은 이하 <1> ~ <23> 을 제공한다.
- [0009] <1> 시안산에스테르 화합물 (A), 에폭시 수지 (B), 제 1 무기 충전제 (C), 제 2 무기 충전제 (D) 및 몰리브덴 화합물 (E) 를 함유하고, 상기 제 1 무기 충전제 (C) 와 상기 제 2 무기 충전제 (D) 의 평균 입자직경의 비가 1 : 0.02 ~ 1 : 0.2 인 수지 조성물.
- [0010] <2> 상기 제 1 무기 충전제 (C) 와 상기 제 2 무기 충전제 (D) 의 질량비가 1 : 0.03 ~ 1 : 0.5 인 상기 <1> 에 기재된 수지 조성물.
- [0011] <3> 상기 제 1 무기 충전제 (C) 및 상기 제 2 무기 충전제 (D) 가 상기 시안산에스테르 화합물 (A) 와 상기 에폭시 수지 (B) 의 합계 100 질량부에 대하여 합계로 200 ~ 800 질량부 함유되는 상기 <1> 또는 <2> 에 기재된 수지 조성물.

[0012] <4> 상기 폴리브덴 화합물 (E) 가 상기 시안산에스테르 화합물 (A) 및 상기 에폭시 수지 (B) 의 합계 100 질량부에 대하여 0.1 ~ 20 질량부 함유되는 상기 <1> ~ <3> 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.

[0013] <5> 상기 제 1 무기 충전재 (C) 가 산화마그네슘 및/또는 베마이트인 상기 <1> ~ <4> 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.

[0014] <6> 상기 제 1 무기 충전재 (C) 가 0.5 ~ 10 μm 의 평균 입자직경을 갖는 상기 <1> ~ <5> 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.

[0015] <7> 상기 제 2 무기 충전재 (D) 가 알루미늄, 산화마그네슘, 질화붕소 및 질화알루미늄으로 이루어지는 군에서 선택되는 적어도 1 종인 상기 <1> ~ <6> 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.

[0016] <8> 상기 제 2 무기 충전재 (D) 가 구형인 상기 <1> ~ <7> 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.

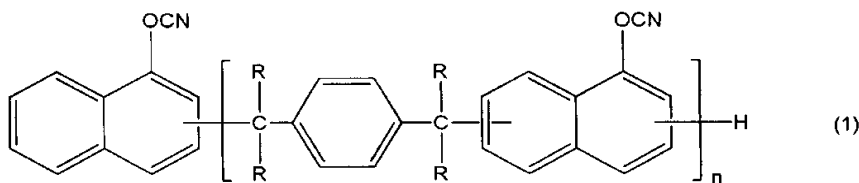
[0017] <9> 상기 제 1 무기 충전재 (C), 상기 제 2 무기 충전재 (D) 및 상기 폴리브덴 화합물 (E) 가 수지 조성물의 전체 체적에 대하여 합계로 40 ~ 70 체적% 함유되는 상기 <1> ~ <8> 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.

[0018] <10> 상기 폴리브덴 화합물 (E) 가 폴리브덴 화합물로 이루어지는 코어 입자와 그 코어 입자의 표면의 적어도 일부에 형성된 무기 산화물을 갖는 상기 <1> ~ <9> 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.

[0019] <11> 상기 시안산에스테르 화합물 (A) 가 나프톨아르알킬형 시안산에스테르 화합물, 노볼락형 시안산에스테르 화합물 및 비페닐아르알킬형 시안산에스테르 화합물로 이루어지는 군에서 선택되는 적어도 1 종인 상기 <1> ~ <10> 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.

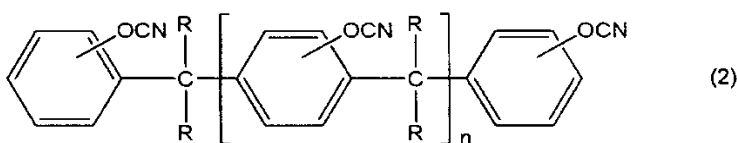
[0020] <12> 상기 나프톨아르알킬형 시안산에스테르 화합물이 하기 일반식 (1) 로 표시되는 것이고, 상기 노볼락형 시안산에스테르 화합물이 하기 일반식 (2) 로 표시되는 것이고, 상기 비페닐아르알킬형 시안산에스테르 화합물이 하기 일반식 (3) 으로 표시되는 것인 상기 <11> 에 기재된 수지 조성물.

[0021] [화학식 1]



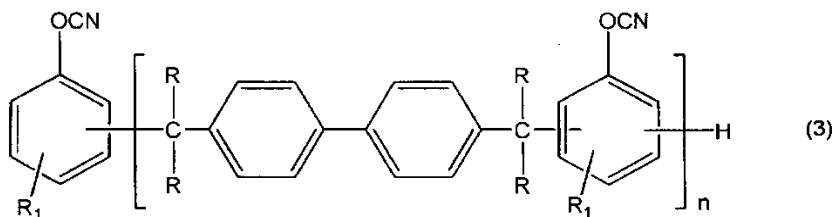
[0022] (식 중, R 은 각각 독립적으로 수소 원자 또는 메틸기를 나타내고, n 은 1 ~ 50 의 정수를 나타낸다)

[0024] [화학식 2]



[0026] (식 중, R 은 각각 독립적으로 수소 원자 또는 메틸기를 나타내고, n 은 1 ~ 50 의 정수를 나타낸다)

[0027] [화학식 3]



[0029] (식 중, R 은 각각 독립적으로 수소 원자 또는 메틸기를 나타내고, R₁ 은 각각 독립적으로 수소 원자, 탄소수 2 이하의 알킬기 또는 아릴기를 나타내고, n 은 1 ~ 50 의 정수를 나타낸다)

- [0030] <13> 상기 시안산에스테르 화합물 (A) 가 상기 시안산에스테르 화합물 (A) 및 상기 에폭시 수지 (B) 의 합계 100 질량부에 대하여 10 ~ 90 질량부 함유되는 상기 <1> ~ <12> 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.
- [0031] <14> 상기 에폭시 수지 (B) 가 비페닐아르알킬형 에폭시 수지, 폴리옥시나프틸렌형 에폭시 수지, 트리페놀메탄형 에폭시 수지, 비스페놀 A 형 에폭시 수지, 비스페놀 F 형 에폭시 수지, 페놀 노볼락형 에폭시 수지, 크레졸 노볼락형 에폭시 수지, 비스페놀 A 노볼락형 에폭시 수지, 브롬화비스페놀 A 형 에폭시 수지, 브롬화페놀 노볼락형 에폭시 수지, 비페닐형 에폭시 수지, 페놀아르알킬형 에폭시 수지 및 나프톨아르알킬형 에폭시 수지로 이루어지는 군에서 선택되는 적어도 1 종인 상기 <1> ~ <13> 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.
- [0032] <15> 추가로 실란 커플링제 (F) 를 함유하는 상기 <1> ~ <14> 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.
- [0033] <16> 상기 실란 커플링제 (F) 가 상기 시안산에스테르 화합물 (A) 및 상기 에폭시 수지 (B) 의 합계 100 질량부에 대하여 3 ~ 30 질량부 함유되는 상기 <15> 에 기재된 수지 조성물.
- [0034] <17> 추가로 말레이미드 화합물 (G) 를 함유하는 상기 <1> ~ <16> 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.
- [0035] <18> 상기 말레이미드 화합물 (G) 가 상기 시안산에스테르 화합물 (A), 상기 에폭시 수지 (B) 및 상기 말레이미드 화합물 (G) 의 합계 100 질량부에 대하여 5 ~ 75 질량부 함유되는 상기 <17> 에 기재된 수지 조성물.
- [0036] <19> 상기 말레이미드 화합물 (G) 가 비스(4-말레이미드페닐)메탄, 2,2-비스(4-(4-말레이미드페녹시)-페닐)프로판 및 비스(3-에틸-5-메틸-4-말레이미드페닐)메탄으로 이루어지는 군에서 선택되는 적어도 1 종인 상기 <17> 또는 <18> 에 기재된 수지 조성물.
- [0037] <20> 상기 <1> ~ <19> 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물을 기재에 함침 또는 도포하여 이루어지는 프리프레그.
- [0038] <21> 상기 <20> 에 기재된 프리프레그를 경화시켜 얻어지는 적층판.
- [0039] <22> 상기 <20> 에 기재된 프리프레그와 금속박을 적층하고 경화시켜 이루어지는 금속박 피복 적층판.
- [0040] <23> 절연층과, 상기 절연층의 표면에 형성된 도체층을 포함하는 프린트 배선판으로서, 상기 절연층이 상기 <1> ~ <19> 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물을 함유하는 프린트 배선판.

발명의 효과

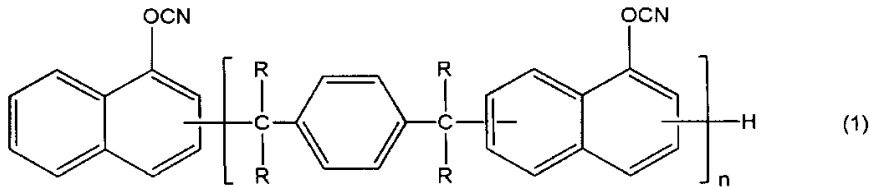
- [0041] 본 발명에 의하면, 방열 특성이 우수할 뿐만 아니라, 성형성이나 기계적 드릴 가공성이 양호하고, 또한, 외관도 우수한 적층판이나 프린트 배선판 등을 간단하게 양호한 재현성으로 실현 가능한 수지 조성물이 실현된다.
본 발명의 수지 조성물을 사용함으로써, 방열 특성, 성형성, 기계적 드릴 가공성 및 유리 전이 온도가 우수한 프린트 배선판이나 금속박 피복 적층판 등을 실현할 수 있다. 또한 본 발명의 바람직한 양태에 의하면, 상기 서술한 각종 성능에 더하여 추가로 경화성이 우수한 수지 조성물을 실현할 수 있고, 그리고 또한, 본 발명의 바람직한 양태의 수지 조성물을 사용함으로써 상기 서술한 각종 성능에 더하여, 필 강도, 땀납 내열성, 흡습 내열성 또는 흡수율 등도 우수한 프린트 배선판이나 금속박 피복 적층판 등을 실현할 수 있다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0042] 이하, 본 발명의 실시형태에 대해서 설명한다. 또, 이하의 실시형태는 본 발명을 설명하기 위한 예시로, 본 발명은 그 실시형태에만 한정되지 않는다.
- [0043] 본 실시형태의 수지 조성물은 시안산에스테르 화합물 (A), 에폭시 수지 (B), 제 1 무기 충전제 (C), 제 2 무기 충전제 (D) 및 물리브렌 화합물 (E) 를 함유하고, 제 1 무기 충전제 (C) 와 제 2 무기 충전제 (D) 의 평균 입자 직경의 비가 1 : 0.02 ~ 1 : 0.2 인 것을 특징으로 하는 것이다.
- [0044] 본 실시형태의 수지 조성물에 있어서 사용되는 시안산에스테르 화합물 (A) 로는 일반적으로 공지된 것을 적절히 사용할 수 있으며, 그 종류는 특별히 한정되지 않는다. 그 구체예로는, 나프톨아르알킬형 시안산에스테르 화합물, 노볼락형 시안산에스테르, 비페닐아르알킬형 시안산에스테르, 1,3-디시아나토벤젠, 1,4-디시아나토벤젠, 1,3,5-트리시아나토벤젠, 비스(3,5-디메틸-4-시아나토페닐)메탄, 1,3-디시아나토나프탈렌, 1,4-디시아나토나프탈렌, 1,6-디시아나토나프탈렌, 1,8-디시아나토나프탈렌, 2,6-디시아나토나프탈렌, 2,7-디시아나토나프탈렌, 1,3,6-트리시아나토나프탈렌, 4,4'-디시아나토비페닐, 비스(4-시아나토페닐)메탄, 비스(4-시아나토페닐)프로판, 비스(4-시아나토페닐)에테르, 비스(4-시아나토페닐)티오에테르, 비스(4-시아나토페닐)술폰,

2,2'-비스(4-시아나토펜일)프로판, 비스(3,5-디메틸, 4-시아나토펜일)메탄 등을 들 수 있다. 이 중에서도, 난연성이 우수하고, 경화성이 높으며, 또한 경화물의 열팽창 계수가 낮은 등의 관점에서, 나프톨아르알킬형 시안산에스테르 화합물, 노볼락형 시안산에스테르 화합물, 비페닐아르알킬형 시안산에스테르 화합물이 바람직하다. 특히, 하기 일반식 (1) 로 표시되는 나프톨아르알킬형 시안산에스테르 화합물, 하기 일반식 (2) 로 표시되는 노볼락형 시안산에스테르 화합물, 하기 일반식 (3) 으로 표시되는 비페닐아르알킬형 시안산에스테르 화합물이 보다 바람직하다.

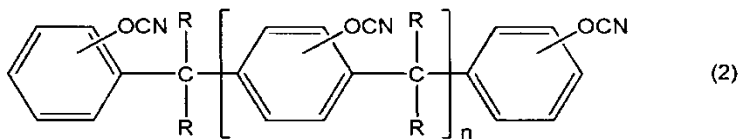
[0045] [화학식 4]



[0046]

[0047] (식 중, R 은 각각 독립적으로 수소 원자 또는 메틸기를 나타내고, n 은 1 ~ 50 의 정수를 나타낸다)

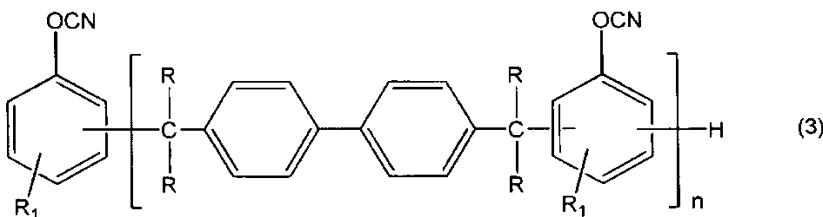
[0048] [화학식 5]



[0049]

[0050] (식 중, R 은 각각 독립적으로 수소 원자 또는 메틸기를 나타내고, n 은 1 ~ 50 의 정수를 나타낸다)

[0051] [화학식 6]



[0052]

[0053] (식 중, R 은 각각 독립적으로 수소 원자 또는 메틸기를 나타내고, R₁ 은 각각 독립적으로 수소 원자, 탄소수 2 이하의 알킬기 또는 아릴기를 나타내고, n 은 1 ~ 50 의 정수를 나타낸다)

[0054] 상기 일반식 (1) ~ (3) 중에서도, 치환기 R 이 수소인 α-나프톨아르알킬형의 시안산에스테르 화합물은 내열성이 우수할 뿐만 아니라, 흡수성이나 흡습 내열성 등의 특성도 우수하기 때문에, 바람직하게 사용할 수 있다.

또한, 상기 일반식 (3) 에 있어서, R₁ 의 탄소수 2 이하의 알킬기로는, 예를 들어, 메틸기 및 에틸기를 들 수 있고, R₁ 의 아릴기로는, 예를 들어 페닐기 및 나프틸기를 들 수 있다. 또, 시안산에스테르 화합물은 1 종을 단독으로 또는 2 종 이상을 적절히 조합하여 사용할 수 있다. 또한, 상기 일반식 (1) ~ (3) 으로 표시되는 시안산에스테르 화합물로서, 각 일반식 (1) ~ (3) 중의 n 이 상이한 2 종 이상의 시안산에스테르 화합물 (A) 를 적절히 혼합하여 사용할 수도 있다.

[0055] 본 실시형태의 수지 조성물 중의 시안산에스테르 화합물 (A) 의 함유량은 목적으로 하는 용도나 성능에 따라서 적절히 설정할 수 있고, 특별히 한정되지 않는다. 수지 조성물의 용제 용해성 및 경화성, 나아가 그 수지 조성물을 사용하여 얻어지는 적층판의 내열성 등의 관점에서, 시안산에스테르 화합물 (A) 의 함유량은 시안산에스테르 화합물 (A) 및 에폭시 수지 (B) 의 합계 100 질량부에 대하여 10 ~ 90 질량부인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 30 ~ 70 질량부, 더욱 바람직하게는 30 ~ 55 질량부이다.

[0056] 본 실시형태의 수지 조성물에 있어서 사용되는 에폭시 수지 (B) 는 1 분자 중에 2 개 이상의 에폭시기를 갖는 화합물이면 공지의 것을 사용할 수 있고, 그 종류는 특별히 한정되지 않는다. 예를 들어, 비페닐아르알킬형 에폭시 수지, 폴리옥시나프틸렌형 에폭시 수지, 트리페놀메탄형 에폭시 수지, 비스페놀 A 형 에폭시 수지, 비스

페놀 E 형 에폭시 수지, 비스페놀 F 형 에폭시 수지, 비스페놀 S 형 에폭시 수지, 페놀 노볼락형 에폭시 수지, 크레졸 노볼락형 에폭시 수지, 안트라센형 에폭시 수지, 비스페놀 A 노볼락형 에폭시 수지, 글리시딜에스테르형 에폭시 수지, 아르알킬 노볼락형 에폭시 수지, 디시클로펜타디엔형 에폭시 수지, 브롬화비스페놀 A 형 에폭시 수지, 브롬화페놀 노볼락형 에폭시 수지, 3관능 페놀형 에폭시 수지, 4관능 페놀형 에폭시 수지, 나프탈렌형 에폭시 수지, 비페닐형 에폭시 수지, 페놀아르알킬형 에폭시 수지, 나프톨아르알킬형 에폭시 수지, 지환식 에폭시 수지, 폴리올형 에폭시 수지, 인 함유 에폭시 수지, 글리시딜아민, 글리시딜에스테르, 부타디엔 등의 2 중 결합을 에폭시화한 화합물, 수산기 함유 실리콘 수지류와 에피클로로히드린과의 반응에 의해 얻어지는 화합물 등을 들 수 있다. 이들 중에서도 내열성이 우수하고, 흡수성이나 흡습 내열성 등의 특성이 우수하다는 관점에서, 비페닐아르알킬형 에폭시 수지, 폴리옥시나프틸렌형 에폭시 수지, 트리페놀메탄형 에폭시 수지, 비스페놀 A 형 에폭시 수지, 비스페놀 F 형 에폭시 수지, 페놀 노볼락형 에폭시 수지, 크레졸 노볼락형 에폭시 수지, 비스페놀 A 노볼락형 에폭시 수지, 브롬화비스페놀 A 형 에폭시 수지, 브롬화페놀 노볼락형 에폭시 수지, 비페닐형 에폭시 수지, 페놀아르알킬형 에폭시 수지, 나프톨아르알킬형 에폭시 수지가 바람직하다. 또, 이들 에폭시 수지는 1 종을 단독으로 또는 2 종 이상을 적절히 조합하여 사용할 수 있다.

[0057] 본 실시형태의 수지 조성물 중의 에폭시 수지 (B) 의 함유량은 목적으로 하는 용도나 성능에 따라 적절히 설정할 수 있고, 특별히 한정되지 않는다. 수지 조성물 및 그 경화물의 내열성, 열전도성 및 흡수성의 관점에서, 에폭시 수지 (B) 의 함유량은 시안산에스테르 화합물 (A) 및 에폭시 수지 (B) 의 합계 100 질량부에 대하여 10 ~ 90 질량부인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 30 ~ 80 질량부, 더욱 바람직하게는 55 ~ 75 질량부이다.

[0058] 본 실시형태의 수지 조성물은 평균 입자직경 (D50) 이 상이한 적어도 2 종류의 무기 충전재, 즉 평균 입자직경이 큰 제 1 무기 충전재 (C) 와, 이것에 대하여 평균 입자직경이 작은 제 2 무기 충전재 (D) 를 함유한다.

[0059] 여기서 본 실시형태의 수지 조성물에 있어서는, 열전도율을 높이고, 무기 충전재의 충전율을 향상시키는 것과 함께 수지 조성물의 성형성을 높이는 관점에서, 제 1 무기 충전재 (C) 와 제 2 무기 충전재 (D) 의 평균 입자직경 (D50) 의 비가 1 : 0.02 ~ 1 : 0.2 인 것이 필요하다. 그 이유는, 평균 입자직경이 작은 쪽의 무기 충전재가 큰 무기 충전재 입자의 간극으로 들어감으로써, 수지 조성물 중의 무기 충전재의 체적 함유율 (이하, 간단히 「충전율」이라고도 한다) 을 높일 수 있어 열전도율을 향상시킬 수 있고, 또한, 작은 입자의 물리 효과에 의해서, 미케니컬 드릴에 의한 구멍 가공시에 드릴비트의 파손을 막을 수 있기 때문이다. 여기서 제 1 무기 충전재 (C) 와 제 2 무기 충전재 (D) 의 평균 입자직경의 비는 충전율을 보다 향상시키는 관점에서 1 : 0.025 ~ 1 : 0.18 이 바람직하고, 1 : 0.05 ~ 1 : 0.16 이 바람직하다.

[0060] 또, 본 명세서에 있어서, 평균 입자직경 (D50) 이란 매디안직경을 의미하고, 측정된 분체의 입도 분포를 둘로 나누었을 때의 큰 측과 작은 측이 등량이 되는 직경이다. 보다 구체적으로는, 본 명세서 중에 있어서의 평균 입자직경 (D50) 은, 레이저 회절 산란식의 입도 분포 측정 장치에 의해 후술하는 실시예의 조건하에서 메틸 에틸케톤 중에 분산시킨 분체의 입도 분포를 측정했을 때의, 작은 입자에서부터 체적 적산하여 전체 체적의 50 % 에 도달했을 때의 값을 의미한다.

[0061] 본 실시형태의 수지 조성물에 있어서 사용되는 제 1 무기 충전재 (C) 는 제 2 무기 충전재 (D) 보다 평균 입자직경이 큰 것으로, 경화물의 열전도성을 높이는 것이다. 그 구체예로는, 산화마그네슘, 베마이트, 수산화마그네슘 등의 금속 수화물, 주석산아연, 클레이, 카올린, 탭크, 소성 클레이, 소성 카올린, 소성 탭크, 천연 운모, 합성 운모, E-유리, A-유리, NE-유리, C-유리, L-유리, D-유리, S-유리, M-유리 G20, 유리 단섬유 (E 유리, T 유리, D 유리, S 유리, Q 유리 등의 유리 미분말류를 포함한다), 중공 유리, 구상 유리 등을 들 수 있다. 이들 중에서도 경화물의 열전도율 및 경도의 관점에서, 제 1 무기 충전재 (C) 는 산화마그네슘과 베마이트가 바람직하다. 또한 이들은, 제 2 무기 충전재 (D) 와의 평균 입자직경의 비가 1 : 0.02 ~ 1 : 0.2 인 것을 만족하는 한, 1 종을 단독으로 또는 2 종 이상을 적절히 조합하여 사용할 수 있다.

[0062] 제 1 무기 충전재 (C) 의 평균 입자직경 (D50) 은 특별히 한정되지 않지만, 분산성 및 충전율의 관점에서 0.5 ~ 10 μm 인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 1.5 ~ 7 μm 이고, 더욱 바람직하게는 2 ~ 5 μm 이다. 또, 제 1 무기 충전재 (C) 의 형상은 특별히 한정되지 않지만, 비표면적을 작게 하는 관점에서 구상인 것이 바람직하다.

[0063] 본 실시형태의 수지 조성물에 있어서 사용되는 제 2 무기 충전재 (D) 는 제 1 무기 충전재 (C) 보다 평균 입자직경이 작은 것이다. 그 구체예로는, 일반적으로 프린트 배선판이나 적층판용의 절연성 수지에 사용되는 것이면 특별히 한정되지 않지만, 예를 들어, 천연 실리카, 용융 실리카, 합성 실리카, 아모르퍼스 실리카, 중공

실리카 등의 실리카류, 알루미늄, 산화아연, 산화마그네슘, 산화지르코늄, 수산화알루미늄, 베마이트, 질화붕소, 응집 질화붕소, 질화규소, 질화알루미늄, 산화몰리브덴, 몰리브덴산아연 등의 몰리브덴 화합물, 붕산아연, 질화알루미늄, 황산바륨, 수산화알루미늄 가열 처리품 (수산화알루미늄을 가열 처리하여, 결정수의 일부를 감소시킨 것), 수산화마그네슘 등의 금속 수화물, 주석산아연, 클레이, 카올린, 텔크, 소성 클레이, 소성 카올린, 소성 텔크, 천연 운모, 합성 운모, E-유리, A-유리, NE-유리, C-유리, L-유리, D-유리, S-유리, M-유리 G20, 유리 단섬유 (E 유리, T 유리, D 유리, S 유리, Q 유리 등의 유리 미분말류를 포함한다), 증공 유리, 구상 유리 등을 들 수 있다. 이들 중에서도 열전도율 및 충전율의 관점에서, 알루미늄, 산화마그네슘, 수산화알루미늄, 질화붕소, 응집 질화붕소, 질화규소, 몰리브덴 화합물, 붕산아연, 질화알루미늄이 바람직하고, 보다 바람직하게는 알루미늄, 산화마그네슘, 질화붕소, 질화알루미늄이다. 또한 이들은, 제 1 무기 충전재 (C) 와의 평균 입자직경의 비가 1 : 0.02 ~ 1 : 0.2 인 것을 만족하는 한, 1 종을 단독으로 또는 2 종 이상을 적절히 조합하여 사용할 수 있다.

[0064] 제 2 무기 충전재 (D) 의 평균 입자직경 (D50) 은 특별히 한정되지 않지만, 분산성 및 충전율의 관점에서 0.01 ~ 2 μm 인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 0.1 ~ 1.0 μm 이다. 또, 제 2 무기 충전재 (D) 의 형상은 특별히 한정되지 않지만, 충전율을 높이는 관점에서 구상인 것이 바람직하다.

[0065] 본 실시형태의 수지 조성물에 있어서는, 제 1 무기 충전재 (C) 와 제 2 무기 충전재 (D) 의 함유량은 적절히 설정할 수 있고 특별히 한정되지 않지만, 열전도율 및 성형성의 밸런스의 관점에서, 시안산에스테르 화합물 (A) 와 에폭시 수지 (B) 의 합계 100 질량부에 대하여 합계로 200 ~ 800 질량부인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 250 ~ 750 질량부이고, 더욱 바람직하게는 300 ~ 700 질량부이다.

[0066] 또한 열전도율의 관점에서, 본 실시형태의 수지 조성물 중, 제 1 무기 충전재 (C) 및 제 2 무기 충전재 (D) 의 합계의 체적 비율이 수지 조성물의 전체 체적에 대하여 40 체적% 이상 70 체적% 이하인 것이 바람직하다.

[0067] 한편, 본 실시형태의 수지 조성물에 있어서 제 1 무기 충전재 (C) 와 제 2 무기 충전재 (D) 의 질량비는 적절히 설정할 수 있고 특별히 한정되지 않지만, 충전율을 높이는 관점에서 1 : 0.03 ~ 1 : 0.5 인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 1 : 0.2 ~ 1 : 0.45 이다. 이러한 함유 비율로 함으로써, 큰 입자 사이를 작은 입자가 충분히 메울 수 있기 때문에, 크고 작은 입자가 서로 조밀하게 충전되는 경향이 있다. 또한, 이러한 질량비로 함으로써, 수지 조성물의 유동성이 향상되어 프레스 성형시의 보이드 등의 성형 불량을 저감하는 경향이 있으며, 나아가 미케니컬 드릴에 의한 구멍 가공성이 향상되는 경향이 있다.

[0068] 본 실시형태의 수지 조성물은, 추가로 몰리브덴 화합물 (E) 를 함유한다. 몰리브덴 화합물 (E) 를 배합함으로써, 본 실시형태의 수지 조성물을 사용하여 얻어지는 프리프레그나 적층판 등의 난연성이 높아지고, 또한 드릴 가공성이 향상되는 경향이 있다. 몰리브덴 화합물 (E) 로는 몰리브덴을 분자 내에 함유하는 것이면 특별히 한정되지 않고, 예를 들어, 몰리브덴산아연 (예를 들어, ZnMoO_4 , $\text{Zn}_3\text{Mo}_2\text{O}_9$ 등), 몰리브덴산암모늄, 몰리브덴산나트륨, 몰리브덴산칼슘, 몰리브덴산칼륨, 3산화몰리브덴, 2황화몰리브덴 등의 몰리브덴 화합물을 들 수 있다. 또 이들은 1 종을 단독으로 또는 2 종 이상을 적절히 조합하여 사용할 수 있다. 유기 금속 촉매로서 작용하지 않는다는 점에서, 그리고 상기 서술한 드릴 가공성 및 내열성의 양립이란 관점에서, 몰리브덴산아연, 몰리브덴산암모늄, 3산화몰리브덴이 바람직하다.

[0069] 또한 상기 서술한 몰리브덴 화합물 (E) 는 몰리브덴 화합물로 이루어지는 코어 입자의 표면의 적어도 일부에 무기 산화물이 형성된 표면 처리 몰리브덴 입자이어도 된다. 구체적으로는, 상업적으로 입수 가능한 몰리브덴 화합물의 입자를, 실란 커플링제를 사용한 표면 처리하여 얻어지는 것, 또는 졸겔법 또는 액상 석출법 등의 수법으로 그 표면을 무기 산화물로 처리하여 얻어지는 것을 들 수 있다. 표면이 무기 산화물로 처리된 표면 처리 몰리브덴 입자는, 열에 대해서는 무기 산화물이, 드릴 가공에 대해서는 몰리브덴 화합물이 유효하게 작용하여, 드릴 가공성과 내열성이라는 두 개의 상반되는 특성을 고도로 양립시키는 것이 가능해지기 때문에 특히 바람직하다.

[0070] 여기서, 몰리브덴 화합물의 표면에 형성되는 무기 산화물로는 특별히 한정되지 않지만, 예를 들어, 실리카, 티타니아, 알루미늄, 실록사이드 등을 들 수 있다. 내열성, 절연 특성, 비용 등의 관점에서 실리카가 바람직하다.

[0071] 또한, 몰리브덴 화합물의 표면에 형성되는 무기 산화물의 두께는 특별히 한정되지 않지만, 내열성의 관점, 및 몰리브덴 화합물의 입자의 표면에 무기 산화물을 부여할 때에 발생하는 크랙을 적게 할 수 있는 관점에서 15 ~ 50 nm 인 것이 바람직하다.

[0072] 또, 표면 처리 몰리브덴 입자의 제조 방법으로는 이하의 방법이 간편하다. 먼저, 규소알루미늄나트륨 또는 알루미늄나트륨

콕사이드 등의 금속 알콕사이드를 용해한 알코올 용액에 몰리브덴 화합물의 입자를 분산하고, 교반시키면서 물과 알코올 및 촉매를 함유하는 혼합 용액을 적하하여, 알콕사이드를 가수분해함으로써, 입자 표면에 산화규소 또는 산화알루미늄 등의 피막을 형성한다. 그 후, 입자를 고액 분리하고, 진공 건조 후, 열처리를 실시한다. 이러한 조작들에 의해, 몰리브덴 화합물 입자의 표면에 무기 산화물의 피막을 갖는 표면 처리 몰리브덴 입자가 간편하게 얻어진다.

[0073] 몰리브덴 화합물 (E) 의 평균 입자직경 (D50) 은 특별히 한정되지 않지만, 분산성 및 충전율의 관점에서 0.1 ~ 10 μm 인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 0.3 ~ 7 μm 이고, 더욱 바람직하게는 0.5 ~ 5 μm 이다. 또, 몰리브덴 화합물 (E) 의 형상은 특별히 한정되지 않지만, 비표면적을 작게 하는 관점에서 구상인 것이 바람직하다.

[0074] 본 실시형태의 수지 조성물에 있어서, 몰리브덴 화합물 (E) 의 함유량은 적절히 설정할 수 있고 특별히 한정되지 않지만, 시안산에스테르 화합물 (A) 와 에폭시 수지 (B) 의 합계 100 질량부에 대하여 0.1 ~ 20 질량부인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 1 ~ 10 질량부이고, 더욱 바람직하게는 1 ~ 5 질량부이다.

[0075] 또한, 열전도율의 관점에서, 본 실시형태의 수지 조성물 중 제 1 무기 충전재 (C), 제 2 무기 충전재 (D) 및 상기 몰리브덴 화합물 (E) 의 합계의 체적 비율이 수지 조성물의 전체 체적에 대하여 합계로 40 체적% 이상 70 체적% 이하인 것이 바람직하다.

[0076] 본 실시형태의 수지 조성물은 필요에 따라서, 추가로 실란 커플링제 (F) 를 함유하고 있어도 된다. 실란 커플링제가 갖는 실라놀기는, 표면에 수산기를 갖는 소재와 특히 친화성 및 반응성이 우수하기 때문에, 유기물-무기물의 결합에 효과가 있고, 무기 충전재의 입자 표면이 실란 커플링제와 반응하는 경우에는 열경화성 수지와 무기 충전재의 밀착성이 높아진다. 그 때문에, 실란 커플링제 (F) 를 병용함으로써, 얻어지는 금속박이 부착된 적층판이나 프린트 배선판 등의 필 강도, 탄성률, 흡습 내열성, 및 경화물의 외관이 향상되는 경향이 있다. 여기서 사용되는 실란 커플링제 (F) 로는 일반적으로 무기물의 표면 처리에 사용되고 있는 것을 바람직하게 사용할 수 있고, 그 종류는 특별히 한정되지 않는다. 그 구체예로는, γ -아미노프로필트리에톡시실란, N- β -(아미노에틸)- γ -아미노프로필트리메톡시실란 등의 아미노실란계, γ -글리시독시프로필트리메톡시실란 등의 에폭시실란계, γ -메타아크릴록시프로필트리메톡시실란 등의 비닐실란계, N- β -(N-비닐벤질아미노에틸)- γ -아미노프로필트리메톡시실란염산염 등의 카티온실란계, 페닐실란계 등을 들 수 있다. 이들은 1 종을 단독으로 또는 2 종 이상을 적절히 조합하여 사용할 수 있다.

[0077] 본 실시형태의 수지 조성물 중의 실란 커플링제 (F) 의 함유량은 적절히 설정할 수 있고 특별히 한정되지 않지만, 수지와 무기 충전재와의 밀착성 및 유리 전이 온도의 관점에서, 시안산에스테르 화합물 (A) 와 에폭시 수지 (B) 의 합계 100 질량부에 대하여 3 ~ 30 질량부인 것이 바람직하다.

[0078] 또한, 본 실시형태의 수지 조성물은 필요에 따라서, 추가로 습윤 분산제를 함유하고 있어도 된다. 습윤 분산제를 함유함으로써, 무기 충전재의 분산성이 높아지는 경향이 있다. 습윤 분산제로는 일반적으로 도료용으로 사용되고 있는 것을 바람직하게 사용할 수 있으며, 그 종류는 특별히 한정되지 않는다. 바람직하게는, 공중합체 베이스의 습윤 분산제가 사용된다. 그 구체예로는, 빅케미·재팬 (주) 제조의 고분자 습윤 분산제, 예를 들어, BYK-W903, BYK-W940, BYK-W996, BYK-W9010, Disper-BYK110, Disper-BYK111, Disper-BYK-110, 111, 161, 180 등을 들 수 있지만, 이들에 특별히 한정되지 않는다. 또, 습윤 분산제는 1 종을 단독으로 또는 2 종 이상을 적절히 조합하여 사용할 수 있다.

[0079] 본 실시형태의 수지 조성물 중의 습윤 분산제의 함유량은 적절히 설정할 수 있고 특별히 한정되지 않지만, 분산성을 높이는 관점에서, 상기 시안산에스테르 화합물 (A) 와 상기 에폭시 수지 (B) 의 합계 100 질량부에 대하여 1 ~ 10 질량부인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 5 ~ 9 질량부이다.

[0080] 그리고 또한 본 실시형태의 수지 조성물은 필요에 따라서, 추가로 말레이미드 화합물 (G) 를 함유하고 있어도 된다. 말레이미드 화합물 (G) 를 함유함으로써, 시안산에스테르 화합물 (A) 와 말레이미드가 반응하여 가교 밀도가 높아지고, 얻어지는 금속박이 부착된 적층판이나 프린트 배선판 등의 내열성이나 탄성률이 높아지는 경향이 있다. 말레이미드 화합물 (G) 로는, 1 분자 중에 1 개 이상의 말레이미드기를 갖는 화합물이면 공지된 것을 적절히 사용할 수 있고, 그 종류는 특별히 한정되지 않는다. 그 구체예로는, 비스(4-말레이미드페닐)메탄, 2,2-비스(4-(4-말레이미드페녹시)-페닐)프로판, 비스(3,5-디메틸-4-말레이미드페닐)메탄, 비스(3-에틸-5-메틸-4-말레이미드페닐)메탄, 비스(3,5-디에틸-4-말레이미드페닐)메탄, 트리스(4-말레이미드페닐)메탄 등을 들 수 있다. 또, 이들 말레이미드 화합물은 1 종을 단독으로 또는 2 종 이상을 적절히 조합하여 사용할 수

있다. 또한, 말레이미드 화합물 (G) 는 모노머 형태인 것에 한정되지 않고, 프리폴리머의 형태이어도 되고, 또는 비스말레이미드 화합물과 아민 화합물 등의 프리폴리머의 형태이어도 된다. 이들 중에서도 내열성의 관점에서, 비스(4-말레이미드페닐)메탄, 2,2-비스(4-(4-말레이미드페녹시)-페닐)프로판, 비스(3-에틸-5-메틸-4-말레이미드페닐)메탄이 바람직하다.

[0081] 본 실시형태의 수지 조성물 중의 말레이미드 화합물 (G) 의 함유량은 적절히 설정할 수 있고 특별히 한정되지 않지만, 내열성 및 탄성률의 관점에서, 시안산에스테르 화합물 (A), 에폭시 수지 (B) 및 말레이미드 화합물 (G) 의 합계 100 질량부에 대하여 5 ~ 75 질량부인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 10 ~ 70 질량부이고, 더욱 바람직하게는 12 ~ 40 질량부이다.

[0082] 그리고 본 실시형태의 수지 조성물은 필요에 따라서, 경화 속도를 적절히 조절하기 위한 경화 촉진제를 함유하고 있어도 된다. 경화 촉진제로는, 시안산에스테르 화합물 (A) 나 에폭시 수지 (B) 의 경화 촉진제로서 일반적으로 사용되고 있는 것을 바람직하게 사용할 수 있고, 그 종류는 특별히 한정되지 않는다. 예를 들어, 구리, 아연, 코발트, 니켈, 망간 등의 유기 금속염류, 이미다졸류 및 그 유도체, 제3급 아민 등을 들 수 있다. 경화 촉진제는 1 종을 단독으로 또는 2 종 이상을 적절히 조합하여 사용할 수 있다. 또 경화 촉진제의 함유량은 수지의 경화도나 수지 조성물의 점도 등의 관점에서 적절히 조정할 수 있고 특별히 한정되지 않지만, 통상은, 상기 서술한 (A), (B) 및 (F) 성분의 합계 100 질량부에 대하여 0.01 ~ 15 질량부 정도이고, 바람직하게는 0.02 ~ 3 질량부 정도이다.

[0083] 또 본 실시형태의 수지 조성물은, 소기의 특성이 손상되지 않는 범위에 있어서, 필요에 따라서 상기 서술한 성분 이외의 성분을 함유하고 있어도 된다. 이러한 임의의 배합물로는, 예를 들어, 상기 이외의 열경화성 수지, 열가소성 수지 및 이들의 올리고머나 엘라스토머류 등의 여러 가지 고분자 화합물, 난연성 화합물, 각종 첨가제 등을 들 수 있다. 이들은 일반적으로 사용되고 있는 것이면, 특별히 제한없이 사용할 수 있다. 예를 들어, 난연성 화합물로는, 4,4'-디브로모비페닐 등의 브롬 화합물, 인산에스테르, 인산멜라민, 인 함유 에폭시 수지 등의 인 화합물, 멜라민이나 벤조구아나민 등의 질소 함유 화합물, 옥사진 고리 함유 화합물, 실리콘계 화합물 등을 들 수 있다. 난연성 화합물은 1 종을 단독으로 또는 2 종 이상을 적절히 조합하여 사용할 수 있다. 각종 첨가제로는, 예를 들어, 자외선 흡수제, 산화 방지제, 광중합 개시제, 형광 증백제, 광 증감제, 염료, 안료, 증점제, 활제, 소포제, 분산제, 레벨링제, 광택제, 중합 금지제 등을 들 수 있다. 이들 임의의 첨가물은 1 종을 단독으로 또는 2 종 이상을 적절히 조합하여 사용할 수 있다.

[0084] 본 실시형태의 수지 조성물은 필요에 따라서, 유기 용제를 함유하고 있어도 된다. 즉, 본 실시형태의 수지 조성물은 상기 서술한 시안산에스테르 화합물 (A) 및 에폭시 수지 (B), 추가로 필요에 따라서 함유되는 말레이미드 화합물 (G) 의 적어도 일부, 바람직하게는 전부가 유기 용제에 용해 또는 상용된 양태 (수지 바니시) 로서 사용할 수 있다. 유기 용제를 함유함으로써 수지 조성물의 점도가 낮아지기 때문에, 핸들링성이 향상되는 것과 함께 글라스 클로스에 대한 함침성이 높아지는 경향이 있다. 유기 용제의 종류는, 시안산에스테르 화합물 (A) 및 에폭시 수지 (B), 추가로 필요에 따라서 함유되는 말레이미드 화합물 (G) 의 혼합물을 용해 또는 상용 가능한 것이면, 특별히 한정되지 않는다. 예를 들어, 아세톤, 메틸에틸케톤, 메틸이소부틸케톤, 시클로헥산 등의 케톤류, 벤젠, 톨루엔, 자일렌 등의 방향족 탄화수소류, 디메틸포름아미드나 디메틸아세트아미드 등의 아미드류 등을 들 수 있다. 또 이들 유기 용제는 1 종을 단독으로 또는 2 종 이상을 적절히 조합하여 사용할 수 있다.

[0085] 본 실시형태의 수지 조성물은 통상적인 방법에 따라서 상기 서술한 시안산에스테르 화합물 (A), 에폭시 수지 (B), 제 1 무기 충전제 (C), 제 2 무기 충전제 (D) 및 물리브덴 화합물 (E) 를 교반·혼합함으로써 조제할 수 있고, 그 조제 방법은, 특별히 한정되지 않는다. 예를 들어, 에폭시 수지 (B) 에 제 1 무기 충전제 (C), 제 2 무기 충전제 (D) 및 물리브덴 화합물 (E) 를 배합하여, 호모 믹서 등으로 분산시키고, 거기에 시안산에스테르 화합물 (A) 를 배합하는 방법 등을 들 수 있다. 수지 조성물의 조제시에는, 점도를 낮춰 핸들링성을 향상시키는 것과 함께 글라스 클로스에 대한 함침성을 높이기 위해, 유기 용매를 첨가하는 것이 바람직하다.

[0086] 한편, 본 실시형태의 프리프레그는 상기한 본 실시형태의 수지 조성물을 기재에 함침 또는 도포시킨 것이다. 본 실시형태의 프리프레그에 있어서 사용되는 기재는 특별히 한정되는 것이 아니라, 예를 들어 각종 프린트 배선판 재료에 사용되고 있는 공지된 것 중에서 목적으로 하는 용도나 성능에 따라 적절히 선택하여 사용할 수 있다. 그 구체적으로는, E 유리, T 유리, L 유리, D 유리, S 유리, NE 유리, Q 유리, UN 유리, 구상 유리 등의 유리 섬유, 퀴츠 등의 유리 이외의 무기 섬유, 폴리이미드, 폴리아미드, 폴리에스테르 등의 유기 섬유, 액정 폴리에스테르 등의 직포 등을 들 수 있다. 이들은 1 종을 단독으로 또는 2 종 이상을 적절히 조합하여 사용

할 수 있다.

- [0087] 기재의 형상으로는, 직포, 부직포, 로빙, 톱드스트랜드 매트, 서페이싱 매트 등이 알려져 있고, 또한 직포의 직조 방식으로는, 평직, 수자직, 능직 등이 알려져 있지만, 어느 것이든 상관없다. 또한, 기재의 두께는 특별히 한정되지 않지만, 통상은 0.01 ~ 0.3 mm 정도이다. 예를 들어 적층판 용도이면 0.01 ~ 0.2 mm 의 범위가 바람직하다. 이들 기재 중에서도, 적층판 용도에 있어서는 면방향의 팽창률과 가공성의 밸런스로부터, 특히 E 유리의 유리 섬유를 사용하는 것이 바람직하다.
- [0088] 상기한 기재는 수지와의 밀착성이나 흡습 내열성의 관점에서 표면 처리가 실시되어 있어도 된다. 예를 들어, 기재의 표면을 실란 커플링제 등으로 표면 처리할 수 있다. 또한, 기재로서 직포를 사용하는 경우, 수지와의 밀착성의 관점에서 물리적으로 개선했던 것이 바람직하다. 그리고, 기재로서 필름을 사용하는 경우, 수지와의 밀착성의 관점에서 플라즈마 처리 등으로 표면 처리된 것이 바람직하다.
- [0089] 본 실시형태의 프리프레그는 통상적인 방법에 따라서 제조할 수 있고, 그 제조 방법은 특별히 한정되지 않는다. 프리프레그의 제조 방법으로는, 상기한 수지 조성물을 기재에 함침시키거나 또는 도포하는 방법이 일반적으로 알려져 있다. 보다 구체적으로는, 예를 들어, 상기한 수지 조성물에 유기 용제를 첨가한 수지 바니시를 기재에 함침시키거나 또는 도포한 후, 100 ~ 200 °C 의 건조기 중에서, 1 ~ 60 분 가열시키거나 하여 반경화 (B 스테이지화) 시킴으로써 본 실시형태의 프리프레그를 제조할 수 있다. 이 때, 기재에 대한 수지 조성물의 부착량, 즉 반경화 후의 프리프레그의 총량에 대한 수지 조성물량 (제 1 무기 충전제 (C), 제 2 무기 충전제 (D) 및 몰리브덴 화합물 (E) 를 함유한다) 은 40 ~ 95 질량% 의 범위가 바람직하다.
- [0090] 한편 본 실시형태의 적층판은 상기 서술한 프리프레그를 사용하여 적층 성형한 것이다. 또한 본 실시형태의 금속박 피복 적층판은 상기 서술한 프리프레그와 금속박을 적층 성형한 것이다. 구체적으로는, 본 실시형태의 금속박 피복 적층판은 전술한 프리프레그를 1 장 또는 복수 장 이상을 겹치고, 원한다면 그 편면 또는 양면에 구리나 알루미늄 등의 금속박을 배치하여, 적층 성형함으로써 제조할 수 있다. 여기서 사용하는 금속박은 프린트 배선판 재료에 사용되는 것이면 특별히 한정되지 않는다. 일반적으로는, 압연 동박이나 전해 동박 등의 동박이 바람직하고, 고주파 영역에 있어서의 도체 손실을 고려하면, 매트면의 조도가 작은 전해 동박이 보다 바람직하다. 또한, 금속박의 두께는 특별히 한정되지 않지만, 2 ~ 70 μm 가 바람직하고, 보다 바람직하게는 2 ~ 35 μm 이다. 성형 조건으로는, 통상적인 프린트 배선판용 적층판 및 다층판의 수법을 적용할 수 있다. 예를 들어, 다단 프레스기, 다단 진공 프레스기, 연속 성형기, 오토클레이브 성형기 등을 사용하여, 온도는 100 ~ 300 °C, 압력은 면압 2 ~ 100 kgf/cm², 가열 시간은 0.05 ~ 5 시간의 범위가 일반적이다. 또한, 상기한 프리프레그와 별도 제조한 내층용의 배선판을 조합하여 적층 성형함으로써, 다층판으로 하는 것도 가능하다.
- [0091] 상기한 본 실시형태의 금속박 피복 적층판은 소정의 배선 패턴을 형성함으로써 프린트 배선판으로서 바람직하게 사용할 수 있다. 본 실시형태의 금속박 피복 적층판은, 성형성이나 기계적 드릴 가공성이 양호하며, 또한 외관도 우수하고, 나아가 필 강도, 땀내열성, 흡습 내열성 또는 흡수율 등에 있어서도 높은 성능을 가질 수 있기 때문에, 그와 같은 성능이 요구되는 고집적·고밀도화 대응의 프린트 배선판 재료로서 특히 유효하게 사용할 수 있다.
- [0092] 그리고, 본 실시형태의 금속박 피복 적층판은 프린트 배선판으로서 바람직하게 사용할 수 있다. 프린트 배선판은 통상적인 방법에 따라서 제조할 수 있고, 그 제조 방법은 특별히 한정되지 않는다. 이하, 프린트 배선판의 제조 방법의 일례를 나타낸다. 먼저, 상기 서술한 구리 피복 적층판 등의 금속박 피복 적층판을 준비한다. 다음으로, 금속박 피복 적층판의 표면에 에칭 처리를 실시하여 내층 회로를 형성하고, 내층 기판을 제조한다. 이 내층 기판의 내층 회로 표면에 필요에 따라서 접착 강도를 높이기 위한 표면 처리를 실시하고, 이어서 그 내층 회로 표면에 상기 서술한 프리프레그를 필요한 장수 겹치고, 또한 그 외측에 외층 회로용의 금속박을 적층하고, 가열 가압하여 일체 성형한다. 이렇게 해서, 내층 회로와 외층 회로용의 금속박 사이에 기재 및 열경화성 수지 조성물의 경화물로 이루어지는 절연층이 형성된 다층의 적층판이 제조된다. 이어서, 이 다층의 적층판에 스루홀이나 비아홀용의 구멍 형성 가공을 실시한 후, 이 구멍의 벽면에 내층 회로와 외층 회로용의 금속박을 도통시키는 도금 금속 피막을 형성하고, 또한 외층 회로용의 금속박에 에칭 처리를 실시하여 외층 회로를 형성함으로써, 프린트 배선판이 제조된다.
- [0093] 상기한 제조예에서 얻어지는 프린트 배선판은, 절연층과, 이 절연층의 표면에 형성된 도체층을 갖고, 절연층이 상기 서술한 본 실시형태의 수지 조성물을 함유하는 구성이 된다. 즉, 상기 서술한 본 실시형태의 프리프레그 (기재 및 이것에 함침 또는 도포된 본 실시형태의 수지 조성물), 상기 서술한 본 실시형태의 금속박 피복 적

층판의 수지 조성물의 층 (본 실시형태의 수지 조성물로 이루어지는 층) 이, 본 실시형태의 수지 조성물을 함유하는 절연층으로 구성되게 된다.

[0094] **실시예**

[0095] 이하에, 실시예 및 비교예를 나타내어 본 발명을 더욱 구체적으로 설명하지만, 본 발명은 이들에 한정되는 것은 아니다. 또, 이하에 있어서 특별히 기재하지 않는 한, 「부」는 「질량부」를 나타낸다.

[0096] (합성예 1)

[0097] 반응기 내에서, α-나프톨아르알킬 수지 (SN495V, OH 기 당량 : 236 g/eq., 신닛테츠 화학 (주) 제조 : 나프톨아르알킬의 반복 단위수 n 은 1 ~ 5 인 것이 포함된다) 0.47 몰 (OH 기 환산) 을 클로로포름 500 ml 에 용해시키고, 이 용액에 트리에틸아민 0.7 몰을 첨가하였다. 온도를 -10 °C 로 유지하면서 반응기 내에 0.93 몰의 염화시아나의 클로로포름 용액 300 g 을 1.5 시간에 걸쳐 적하하고, 적하 종료 후, 30 분 교반하였다. 그 후 추가로 0.1 몰의 트리에틸아민과 클로로포름 30 g 의 혼합 용액을 반응기 내에 적하하고, 30 분 교반하여 반응을 완결시켰다. 부생된 트리에틸아민의 염산염을 반응액으로부터 여과 분리한 후, 얻어진 여과액을 0.1 N 염산 500 ml 로 세정한 후, 물 500 ml 에 의한 세정을 4 회 반복하였다. 이것을 황산나트륨에 의해 건조시킨 후, 75 °C 에서 이베퍼레이트하고, 다시 90 °C 에서 감압 탈기함으로써, 갈색 고형의 상기 일반식 (1) 로 표시되는 α-나프톨아르알킬형 시안산에스테르 화합물 (식 중의 R 은 모두 수소 원자이다) 을 얻었다. 얻어진 α-나프톨아르알킬형 시안산에스테르 화합물을 적외 흡수 스펙트럼에 의해 분석한 결과, 2264 cm⁻¹ 부근에 시안산에스테르기의 흡수가 확인되었다.

[0098] (실시예 1)

[0099] 합성예 1 에서 얻은 α-나프톨아르알킬형 시안산에스테르 화합물 40 질량부와, 비스(3-에틸-5-메틸-4-말레이미드페닐)메탄 (BMI-70, 케이·아이 화성 (주) 제조) 20 질량부와, 비페닐아르알킬형 에폭시 수지 (NC-3000-FH, 닛폰 화약 (주) 제조) 40 질량부와, 실란 커플링제 (Z6040, 도레이 다우코닝 (주) 제조) 5 질량부와, 산기를 함유하는 습윤 분산제 (BYK-W903, 빅케이·재팬 (주) 제조) 5 질량부를 메틸에틸케톤으로 용해 혼합하고, 이것에, 평균 입자직경 3 μm 의 베마이트 (BMT33W, 가와이 석회 (주) 제조) 240 질량부와, 평균 입자직경 0.3 μm 의 구상 알루미늄 나 (ASFP-20, 덴키 화학 공업 (주) 제조) 60 질량부와, 몰리브덴산아연 (닛폰 무기 화학 공업 (주) 제조) 3 질량부와, 닛카 옥티스 망간 (Mn 8 %) (닛폰 합성 화학 공업 (주) 제조) 0.01 질량부, 2,4,5-트리페닐이미다졸 (도쿄 화성 공업 (주) 제조) 0.5 질량부를 혼합하여, 수지 바니시를 얻었다. 또, 평균 입자직경 (D50) 은, 각각의 무기 충전제를 메틸에틸케톤으로 분산시키고, 그 후 초음파 호모지나이저로 3분간 분산 처리를 실시한 후, 레이저 회절 산란식의 입도 분포 측정 장치 ((주) 시마즈 제작소 제조) 를 사용하여 측정된 값이다. 얻어진 수지 바니시를 다시 메틸에틸케톤으로 희석하고, 이것을 질량 47.2 g/m³ 의 E 유리 클로스 (야사히 가세이 이마테리알즈 (주) 제조) 에 함침 도공하고, 160 °C 에서 3 분간 가열 건조함으로써, 0.1 mmmt 에서 수지 함유량 84 질량% 의 프리프레그를 얻었다. 다음으로, 얻어진 프리프레그를 2 장 겹치고, 얻어진 적층체의 상하면에 12 μm 두께의 전해 동박 (3EC-III, 미즈이 금속 광업 (주) 제조) 을 배치하여, 압력 30 kgf/cm² 및 온도 220 °C 에서 120 분간 진공 프레스를 실시하여 적층 성형함으로써, 두께 0.2 mm 의 금속박 피복 적층판 (양면 구리 피복 적층판) 을 제조하였다. 또한, 얻어진 프리프레그를 8 장 겹치는 것 이외에는 동일하게 실시하고, 두께 0.8 mm 의 금속박 피복 적층판 (양면 구리 피복 적층판) 을 제조하였다.

[0100] 얻어진 금속박 피복 적층판을 사용하여, 외관 평가, 열전도율 및 유리 전이 온도의 측정, 그리고 드릴비트 라이프 및 구멍 위치 정밀도의 평가를 실시하였다.

[0101] (측정 방법 및 평가 방법)

[0102] 1) 외관 평가 : 두께 0.2 mm 의 금속박 피복 적층판을 330 mm × 330 mm 사이즈로 절단 후, 양면의 동박을 전부 에칭 제거하여, 표면의 동박이 전부 제거된 샘플 (적층판) 을 얻었다. 이 적층판을 육안으로 관찰하여, 보이드가 발생하지 않은 것을 「○」, 보이드가 발생한 것을 「×」로 평가하였다.

[0103] 2) 열전도율 : 두께 0.8 mm 의 금속박 피복 적층판의 밀도를 측정하고, 또한 비열을 DSC (TA Instrumen Q100 형) 에 의해 측정하고, 또한 크세논 플래시 애널라이저 (Bruker : LFA447 Nanoflash) 에 의해 열확산율을 측정하였다. 그리고, 열전도율을 이하의 식에서 산출하였다.

[0104] 열전도율 (W/m·K) = 밀도 (kg/m³) × 비열 (kJ/kg·K) × 열확산율 (m²/S) × 1000

- [0105] 3) 유리 전이 온도 (Tg) : 두께 0.8 mm 의 금속박 피복 적층판을 다이싱 소우로 40 mm × 20 mm 사이즈로 절단하여 얻은 샘플을 사용하여, JIS C6481 에 준거하여 동적 점탄성 분석 장치 (TA 인스트루먼트즈 제조) 를 사용하여 측정하였다.
- [0106] 4) 드릴비트 라이프 (드릴비트 파손 구멍수) : 하기 드릴 구멍 가공 조건으로 5000 hit 가공 후, 3 세트 중첩한 금속박 피복 적층판의 최하판의 이면을 홀 애널라이저 (히타치 비아메카닉스 제조) 로 측정하여, 통계 구멍수를 카운트하였다 (표 1 에 나타내는 수치는 가공 2 회 (n = 2) 의 평균값이다).
- [0107] 가공기 ; 히타치 비아메카닉스 (주) ND-1 V212
- [0108] 대상 샘플 ; 두께 0.2 mm 의 금속박 피복 적층판을 3 세트 중첩한 것
- [0109] 엔트리 시트 ; 미즈비시 가스 화학 (주) 제조 LE900
- [0110] 백업 보드 ; 닛폰 테코락스 (주) 제조 SPB-W
- [0111] 드릴비트 ; 유니온 툴 (주) 제조, KMC L518A 0.105 × 1.8
- [0112] 5) 구멍 위치 정밀도 : 상기 4) 와 같은 드릴 구멍 가공 조건으로 5000 hit 가공 후, 두께 0.2 mm 의 금속박 피복 적층판을 3 세트 중첩한 적층체의 최하판의 이면에 있어서의 구멍 위치와 지정 좌표와의 위치 어긋남량을, 홀 애널라이저 (히타치 비아메카닉스 제조) 로 측정하였다. 여기서는, 드릴 1 개분 당 가공 구멍에 대하여 위치 어긋남량을 전체 수 측정하고, 그 평균값과 표준편차 (σ) 를 계산하여, 위치 어긋남량의 평균값+3 σ 를 산출하였다 (표 1 에 나타내는 수치는 가공 2 회 (n = 2) 의 평균값이다).
- [0113] (실시예 2)
- [0114] α -나프톨아르알킬형 시안산에스테르 화합물의 배합량을 30 질량부로 변경하고, 비스(3-에틸-5-메틸-4-말레이미드페닐)메탄 대신에 말레이미드 화합물 (BMI-2300, 야마토 화성 공업 (주) 제조) 30 질량부를, 비페닐아르알킬형 에폭시 수지 대신에 폴리옥시나프틸렌형 에폭시 수지 (HP6000, DIC (주) 제조) 40 질량부를 각각 사용하는 것 이외에는, 실시예 1 과 동일하게 실시하였다. 얻어진 금속박 피복 적층판의 각종 물성값을 표 1 에 나타낸다.
- [0115] (실시예 3)
- [0116] 평균 입자직경 3 μ m 의 베마이트 (BMT33W, 가와이 석회 (주) 제조) 대신에 평균 입자직경 3 μ m 의 베마이트 (BM5009, (주) 에드머텍 제조) 280 질량부를 사용하는 것과 함께, 평균 입자직경 0.3 μ m 의 구상 알루미늄의 배합량을 70 질량부로, 실란 커플링제의 배합량을 10 질량부로 각각 변경하는 것 이외에는, 실시예 2 와 동일하게 실시하였다. 얻어진 금속박 피복 적층판의 각종 물성값을 표 1 에 나타낸다.
- [0117] (실시예 4)
- [0118] 폴리옥시나프틸렌형 에폭시 수지 대신에 실시예 1 에서 사용한 비페닐아르알킬형 에폭시 수지 40 질량부를 사용하는 것 이외에는, 실시예 3 과 동일하게 실시하였다. 얻어진 금속박 피복 적층판의 각종 물성값을 표 1 에 나타낸다.
- [0119] (실시예 5)
- [0120] 말레이미드 화합물 (BMI-2300) 의 배합량을 15 질량부로, 폴리옥시나프틸렌형 에폭시 수지의 배합량을 20 질량부로, 몰리브덴산아연의 배합량을 1 질량부로, 실란 커플링제의 배합량을 15 질량부로 각각 변경하는 것과 함께, 실시예 1 에서 사용한 비스(3-에틸-5-메틸-4-말레이미드페닐)메탄 15 질량부와, 실시예 1 에서 사용한 비페닐아르알킬형 에폭시 수지 20 질량부를 배합하는 것 이외에는, 실시예 3 과 동일하게 실시하였다. 얻어진 금속박 피복 적층판의 각종 물성값을 표 1 에 나타낸다.
- [0121] (실시예 6)
- [0122] α -나프톨아르알킬형 시안산에스테르 화합물의 배합량을 25 질량부로, 말레이미드 화합물 (BMI-2300) 의 배합량을 25 질량부로, 몰리브덴산아연의 배합량을 2 질량부로 각각 변경하는 것과 함께, 트리페닐메탄형 에폭시 수지 (EPPN-501H, 닛폰 화학 (주) 제조) 10 질량부를 배합하는 것 이외에는, 실시예 4 와 동일하게 실시하였다. 얻어진 금속박 피복 적층판의 각종 물성값을 표 1 에 나타낸다.
- [0123] (실시예 7)

- [0124] 평균 입자직경 3 μm 의 베마이트 (BM5009, (주) 애드머텍 제조) 대신에 평균 입자직경 2.1 μm 의 베마이트 (MM010, (주) 가와이 석회 제조) 320 질량부를 사용하는 것과 함께, 평균 입자직경 0.3 μm 의 구상 알루미늄의 배합량을 80 질량부로, 실란 커플링제의 배합량을 20 질량부로, 비페닐아르알킬형 에폭시 수지의 배합량을 15 질량부로 각각 변경하고, 트리페놀메탄형 에폭시 수지 (EPPN-501H, 닛폰 화약 (주) 제조) 5 질량부를 배합하는 것 이외에는, 실시예 5 와 동일하게 실시하였다. 얻어진 금속박 피복 적층판의 각종 물성값을 표 2 에 나타낸다.
- [0125] (실시예 8)
- [0126] 평균 입자직경 2.1 μm 의 베마이트 (MM010, (주) 가와이 석회 제조) 대신에 평균 입자직경 2.8 μm 의 베마이트 (MM011, (주) 가와이 석회 제조) 를 사용하는 것 이외에는, 실시예 7 과 동일하게 실시하였다. 얻어진 금속박 피복 적층판의 각종 물성값을 표 2 에 나타낸다.
- [0127] (실시예 9)
- [0128] 평균 입자직경 2.1 μm 의 베마이트 (MM010, (주) 가와이 석회 제조) 대신에 평균 입자직경 2.8 μm 의 베마이트 (MM011, (주) 가와이 석회 제조) 280 질량부를 사용하는 것과 함께, 평균 입자직경 0.3 μm 의 구상 알루미늄의 배합량을 120 질량부로 하는 것 이외에는, 실시예 7 과 동일하게 실시하였다. 얻어진 금속박 피복 적층판의 각종 물성값을 표 2 에 나타낸다.
- [0129] (실시예 10)
- [0130] 평균 입자직경 2.1 μm 의 베마이트 (MM010, (주) 가와이 석회 제조) 대신에 평균 입자직경 3.4 μm 의 베마이트 (MM012, (주) 가와이 석회 제조) 를 사용하고, 트리페놀메탄형 에폭시 수지 (EPPN-501H, 닛폰 화약 (주) 제조) 대신에 나프탈렌형 에폭시 수지 (EXA4700, (주) DIC 제조) 를 사용하고, 말레이미드 화합물 (BMI-2300, 야마토 화성 공업 (주) 제조) 의 배합량을 20 질량부로, 비스(3-에틸-5-메틸-4-말레이미드페닐)메탄 (BMI-70, 케이·아이 화성 (주) 제조) 의 배합량을 10 질량부로 각각 변경하는 것 이외에는, 실시예 7 과 동일하게 실시하였다. 얻어진 금속박 피복 적층판의 각종 물성값을 표 2 에 나타낸다.
- [0131] (비교예 1)
- [0132] 평균 입자직경 0.3 μm 의 구상 알루미늄의 배합을 생략하고, 평균 입자직경 3 μm 의 베마이트 (BMT33W, 가와이 석회 (주) 제조) 의 배합량을 300 질량부로 변경하는 것 이외에는, 실시예 1 과 동일하게 실시하였다. 그러나, 보이드가 발생하여 판 외관이 나빴기 때문에, 특성 평가에는 이르지 못하였다.
- [0133] (비교예 2)
- [0134] 평균 입자직경 0.3 μm 의 구상 알루미늄의 배합을 생략하고, 평균 입자직경 3 μm 의 베마이트 (BMT33W, 가와이 석회 (주) 제조) 대신에 평균 입자직경 3 μm 의 베마이트 (BM5009, (주) 애드머텍 제조) 300 질량부를 사용하는 것 이외에는, 실시예 1 과 동일하게 실시하였다. 얻어진 금속박 피복 적층판의 각종 물성값을 표 3 에 나타낸다.
- [0135] (비교예 3)
- [0136] 평균 입자직경 0.3 μm 의 알루미늄 대신에 진구상의 3 μm 알루미늄 (AX3-15, 신닛테츠 마테리얼즈 (주) 마이클론사 제조) 490 질량부를 사용하고, 닛카 옥티스 망간 (Mn 8 %) 의 배합량을 0.05 질량부로, 2,4,5-트리페닐이미다졸의 배합량을 1 질량부로 각각 변경하고, 몰리브덴산아연의 배합을 생략하는 것 이외에는, 실시예 1 과 동일하게 실시하였다. 얻어진 금속박 피복 적층판의 각종 물성값을 표 3 에 나타낸다.

표 1

		실시예 1	실시예 2	실시예 3	실시예 4	실시예 5	실시예 6
평가항목	외관	○	○	○	○	○	○
	열 전도를 xy-axis[W/m·K]	1.2	1.2	1.5	1.7	1.6	1.5
	유리 전이 온도 [°C]	254	284	286	283	281	270
	구멍 가공성 드릴비트 라이프	5000<	5000<	5000<	5000<	5000<	5000<
	구멍 위치 정밀도 (편차량ave.+3 σ)[μm]	36	40	27	22	25	23

[0137]

표 2

		실시에 7	실시에 8	실시에 9	실시에 10
평가항목	외관	○	○	○	○
	열 전도율 xy-axis[W/m·K]	1.8	1.9	1.7	2.0
	유리 전이 온도 [°C]	283	284	287	286
	구멍 가공성 드릴비트 라이프	5000<	5000<	5000<	5000<
	구멍 위치 정밀도 (편차량ave.+3σ)[um]	26	24	30	27

[0138]

표 3

		비교예 1	비교예 2	비교예 3
평가항목	외관	×	○	○
	열 전도율 xy-axis[W/m·K]	-	1.1	1.7
	유리 전이 온도 [°C]	-	238	251
	구멍 가공성 드릴비트 라이프	-	1600	100
	구멍 위치 정밀도 (편차량ave.+3σ)[um]	-	41	-

[0139]

[0140] 또, 본 출원은 2012년 3월 30일에 일본 특허청에 출원된 일본특허출원 (특원 2012-080722호) 에 기초하는 우선권을 주장하고 있고, 그 내용은 여기에 참조로서 받아들인다.

[0141] **산업상 이용가능성**

[0142] 이상 설명한 바와 같이, 본 발명의 수지 조성물은, 전기·전자 재료, 공작 기계 재료, 항공 재료 등의 각종 용도에 있어서, 예를 들어 전기 절연 재료, 반도체 플라스틱 패키지, 밀봉 재료, 접착제, 적층 재료, 레지스트, 빌드업 적층판 재료 등으로서 널리 또한 유효하게 이용 가능하고, 특히, 최근의 정보 단말기나 통신 기기 등의 고집적·고밀도화 대응의 프린트 배선판 재료로서 특히 유효하게 이용 가능하다. 또한, 본 발명의 적층판 및 금속박 피복 적층판 등은 방열 특성이 우수할 뿐만 아니라, 성형성이나 미세니켈 드릴 가공성이 양호하고, 또한, 외관도 우수하기 때문에, 그 공업적인 실용성은 매우 높은 것이 된다.