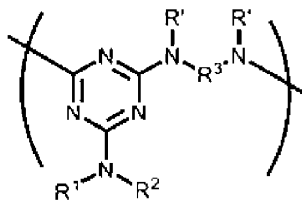


기 식 (1)로 표시되는 반복 단위를 함유하는 중합체를 포함한다.



(1)

[식 (1) 중, $-N(R')-R^3-N(R')$ 는 비치환 또는 치환기에 의해 치환된 다이머 디아민에서 유래하는 구조이고, R' , R^1 및 R^2 는 각각 독립적으로, 수소 원자, 할로겐 원자, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 1 내지 20의 탄화수소기, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 지방족기, 또는 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 방향족기이고, $-NR^1R^2$ 는 R^1 과 R^2 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 질소 함유 복소환기여도 된다.]

(52) CPC특허분류

C08G 73/0638 (2013.01)

(72) 발명자

오카모토, 고이치

일본 1058640 도오교오도 미나또구 히가시신바시
1쥬오메 9반 2고오 제이에스알 가부시끼가이샤 내

니시노, 겐타

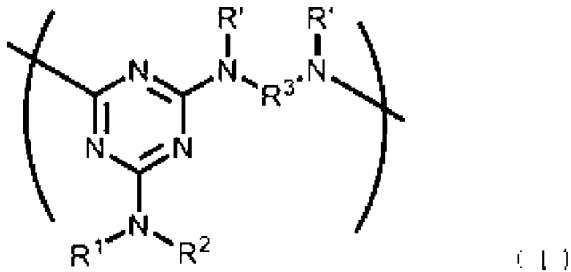
일본 1058640 도오교오도 미나또구 히가시신바시
1쥬오메 9반 2고오 제이에스알 가부시끼가이샤 내

명세서

청구범위

청구항 1

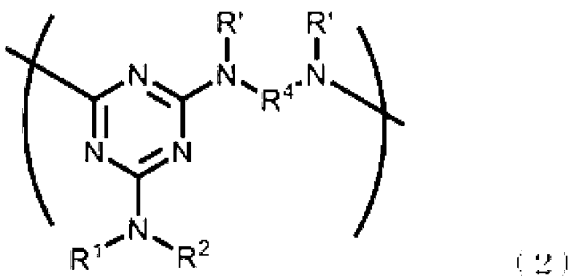
하기 식 (1)로 표시되는 반복 단위를 함유하는 중합체를 포함하는 조성물:



식 (1) 중, $-N(R')-R^3-N(R')$ 는 비치환 또는 치환기에 의해 치환된 다이머 디아민에서 유래하는 구조이고, R' , R^1 및 R^2 는 각각 독립적으로, 수소 원자, 할로젠 원자, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 1 내지 20의 탄화수소기, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 지방족기, 또는 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 방향족기이고, $-NR^1R^2$ 는 R^1 과 R^2 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 질소 함유 복소환기여도 된다.

청구항 2

제1항에 있어서, 상기 중합체가, 하기 식 (2)로 표시되는 반복 단위를 더 함유하는, 조성물:



식 (2) 중, R' , R^1 및 R^2 는 각각 독립적으로, 수소 원자, 할로젠 원자, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 1 내지 20의 탄화수소기, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 지방족기, 또는 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 방향족기이고, R^4 는 탄소수 6 내지 30의 2가의 방향족 탄화수소기, 탄소수 5 내지 20의 2가의 지환식 탄화수소기, 탄소수 1 내지 20의 2가의 쇠상 탄화수소기, $-(R^{41}-O)_m-$ 으로 표시되는 2가의 기, 2가의 규소 함유기, 이들 기에서 선택된 2개 이상이 조합된 기, 이들 기의 적어도 일부가, 산소 원자, 질소 원자 및 황 원자에서 선택된 적어도 하나로 치환된 기, 또는 이들 기의 일부가 치환기에 의해 치환된 기이고, R^{41} 은 독립적으로 탄소수 2 내지 4의 알킬렌이고, m 은 1 내지 70의 정수이고, $-NR^1R^2$ 는 R^1 과 R^2 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 질소 함유 복소환기여도 되고, $-N(R')-R^4-$ 는 R' 와 R^4 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 2가의 단환식 질소 함유 복소환기여도 되고, $-N(R')-R^4-N(R')$ 는 2개의 R' 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 2가의 단환식 질소 함유 복소환기여도 된다.

청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서, 경화성 화합물 (C)를 더 함유하는, 조성물.

청구항 4

제1항 또는 제2항에 있어서, 경화 보조제 (D)를 더 함유하는, 조성물.

청구항 5

제1항 또는 제2항에 있어서, 용제를 더 함유하는, 조성물.

청구항 6

제3항에 있어서, 상기 경화성 화합물 (C)가, 에폭시 화합물, 시아네이트에스테르 화합물, 비닐 화합물, 실리콘 화합물, 옥사진 화합물, 말레이미드 화합물, 알릴 화합물, 옥세탄 화합물, 메틸올 화합물, (메트)아크릴 화합물, 옥사졸린 화합물 및 프로파르길 화합물로 이루어지는 군에서 선택되는 적어도 1종인, 조성물.

청구항 7

제1항 또는 제2항에 기재된 조성물을 경화해서 이루어지는 경화물.

청구항 8

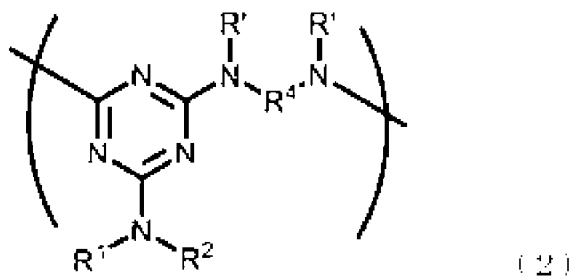
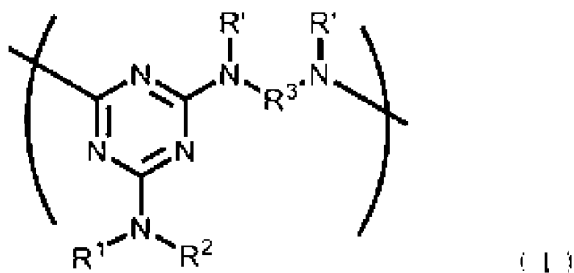
기재와, 제1항 또는 제2항에 기재된 조성물을 사용해서 형성된 경화물층을 갖는 적층체.

청구항 9

제8항에 기재된 적층체를 갖는 전자 부품.

청구항 10

하기 식 (1)로 표시되는 반복 단위, 및 하기 식 (2)로 표시되는 반복 단위를 함유하는 중합체:



식 (1) 및 (2) 중, $-N(R')-R^3-N(R')-$ 는 비치환 또는 치환기에 의해 치환된 다이머 디아민에서 유래하는 구조이고, R^1 , R^2 및 R^3 는 각각 독립적으로, 수소 원자, 할로겐 원자, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 1 내지 20의 탄화수소기, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 지방족기, 또는 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 방향족기이고, R^4 는 탄소수 6 내지 30의 2가의 방향족 탄화수소기, 탄소수 5 내지 20의 2가의 지환식 탄화수소기, 탄소수 1 내지 20의 2가의 쇠상 탄화수소기, $-(R^{41}-O)_m-$ 으로 표시되는 2가의 기, 2가의 규소 함유기, 이들 기에서 선택된 2개 이상이 조합된 기, 이들 기의 적어도 일부가, 산소 원자, 질소 원자 및 황 원자에서 선택된 적어도 하나로 치환된 기, 또는 이들 기의 일부가 치환기

에 의해 치환된 기이고, R^{41} 은 독립적으로 탄소수 2 내지 4의 알킬렌이고, m 은 1 내지 70의 정수이고, $-NR^1R^2$ 는 R^1 과 R^2 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 질소 함유 복소환기여도 되고, $-N(R')-R^4$ 는 R' 와 R^4 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 2개의 단환식 질소 함유 복소환기여도 되고, $-N(R')-R^4-N(R')$ 는 2개의 R' 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 2개의 단환식 질소 함유 복소환기여도 된다.

청구항 11

제10항에 기재된 중합체를 성형하여 이루어지는 성형체.

청구항 12

기재와, 제10항에 기재된 중합체를 사용해서 형성된 층을 갖는 적층체.

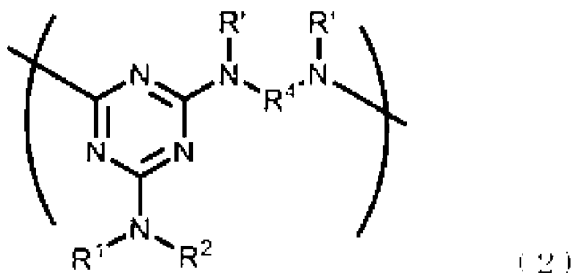
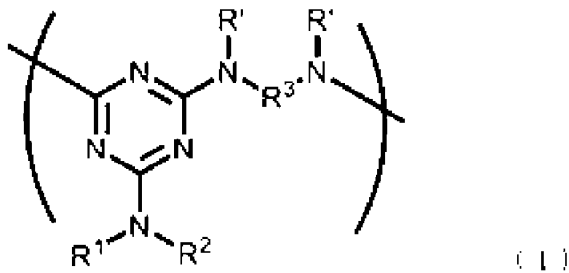
청구항 13

제12항에 기재된 적층체를 갖는 전자 부품.

청구항 14

하기 식 (1)로 표시되는 반복 단위를 함유하는 중합체, 또는 하기 식 (1)로 표시되는 반복 단위 및 하기 식 (2)로 표시되는 반복 단위를 함유하고, 또한,

말단에, 페놀성 수산기, 알릴기, 비닐기, (메트)아크릴로일기, 말레이미드기, 프로파르길기, 에티닐기, 방향족 탄화수소기, 지방족 탄화수소기, 또는 복소환식기에서 선택되는 적어도 1종의 기를 갖는 중합체:



식 (1) 및 (2) 중, $-N(R')-R^3-N(R')$ 는 비치환 또는 치환기에 의해 치환된 다이머 디아민에서 유래하는 구조이고, R' , R^1 및 R^2 는 각각 독립적으로, 수소 원자, 할로젠 원자, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 1 내지 20의 탄화수소기, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 지방족기, 또는 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 방향족기이고, R^4 는 탄소수 6 내지 30의 2개의 방향족 탄화수소기, 탄소수 5 내지 20의 2개의 지환식 탄화수소기, 탄소수 1 내지 20의 2개의 쇠상 탄화수소기, $-(R^{41}-O)_m-$ 으로 표시되는 2개의 기, 2개의 규소 함유기, 이들 기에서 선택된 2개 이상이 조합된 기, 이들 기의 적어도 일부가, 산소 원자, 질소 원자 및 황 원자에서 선택된 적어도 하나로 치환된 기, 또는 이들 기의 일부가 치환기에 의해 치환된 기이고, R^{41} 은 독립적으로 탄소수 2 내지 4의 알킬렌이고, m 은 1 내지 70의 정수이고, $-NR^1R^2$ 는 R^1 과 R^2 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 질소 함유 복소환기여도 되고, $-N(R')-R^4$ 는 R' 와 R^4 가 서로

결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 2가의 단환식 질소 함유 복소환기여도 되고, $-N(R')-R^4-N(R')$ 는 2개의 R'가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 2가의 단환식 질소 함유 복소환기여도 된다.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명의 일 실시 형태는, 중합체, 조성물, 경화물, 적층체 또는 전자 부품에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 전자 기기의 소형화, 다기능화, 통신 고속화 등의 추구에 수반하여, 근년 플렉시블 프린트 배선판에는, 가일층의 박형화, 플렉시블화가 요구되고 있다. 이 때문에, 다층 프린트 배선판의 제조 방법으로서, 수지 필름을 적층해서 다층 프린트 배선판을 구성하는 기술이 주목받고 있다. 수지 필름을 적층하여 이루어지는 다층 프린트 배선판은, 유리 클로스 등을 사용해서 제조되는 프리프레그를 사용하는 경우에 비하여, 기계적 강도나 내열성, 난연성, 열전도성에 약점을 갖는 것이 알려져 있고, 근년 이 약점을 개량하는 기술이 보고되어 있다(예를 들어, 특허문헌 1 내지 3참조).

선행기술문헌

특허문헌

[0003] (특허문헌 0001) 일본 특허공개 평11-129399호 공보

(특허문헌 0002) 국제 공개 제2001/097582호

(특허문헌 0003) 국제 공개 제2005/025857호

발명의 내용

해결하려는 과제

[0004] 상기 기계적 강도나 내열성, 난연성, 열전도성을 개량하기 위해서, 에폭시 화합물, 시아네이트 화합물, 아크릴 화합물 등의 경화제나, 실리카, 알루미늄 등의 무기 필러의 첨가가 시도되고 있지만, 이들 첨가로도 개량의 효과는 충분하지 않았다.

[0005] 또한, 다층 프린트 배선판을 제조하는 공정에서는, 각 전자 부품 재료를, 중합체(를 포함하는 조성물)를 사용해서 접합할 것이 요구되는 경우가 있고, 이 경우, 중합체 또는 중합체를 포함하는 조성물을 기재에 균질하게 도포할 수 있는(도포성이 우수한) 것이나, 해당 중합체나 해당 중합체를 포함하는 조성물에서 얻어지는 층의 기재에 대한 높은 밀착성도 요구되고 있다.

[0006] 그러나, 상기 특허문헌에 기재되어 있는 중합체 등의 종래의 중합체는, 범용 용매에 대한 용해성이 충분하지 않거나, 해당 중합체 또는 해당 중합체를 포함하는 조성물을 기재에 균질하게 도포할 수 없거나(도포성이 떨어져 있거나), 해당 중합체나 해당 중합체를 포함하는 조성물에서 얻어지는 층의 기재에 대한 밀착성(이하 단순히 「기재에 대한 밀착성」이라고도 한다.)이 충분하지 않았다.

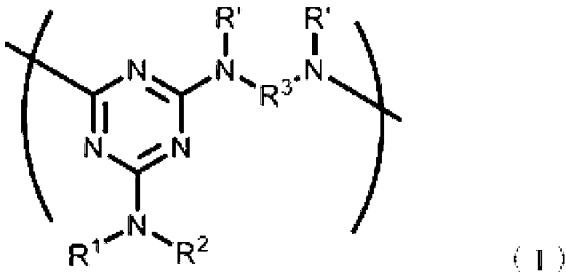
[0007] 본 발명의 일 실시 형태는, 내열성이 우수하고, 범용 용매에 가용이며 기재에 대한 도포성 및 밀착성이 우수한 중합체를 제공하고, 또한 내열성이 우수하고, 기재에 대한 도포성 및 밀착성이 우수한 경화물(경화물층)을 형성 가능한 조성물을 제공한다.

과제의 해결 수단

[0008] 본 발명자는, 하기 구성예에 의하면 상기 과제를 해결할 수 있는 것을 알아냈다.

[0009] 본 발명의 구성예는 이하와 같다.

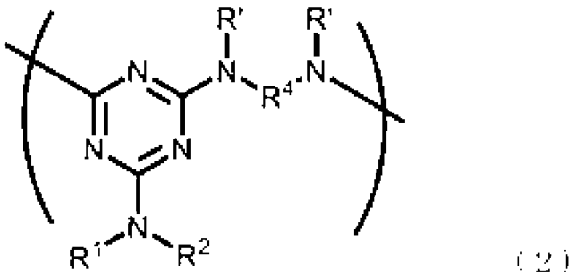
[0010] [1] 하기 식 (1)로 표시되는 반복 단위를 함유하는 중합체를 포함하는 조성물.



[0011]

[0012] [식 (1) 중, $-N(R')-R^3-N(R')$ 는 비치환 또는 치환기에 의해 치환된 다이머 디아민에서 유래하는 구조이고, R' , R^1 및 R^2 는 각각 독립적으로, 수소 원자, 할로겐 원자, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 1 내지 20의 탄화수소기, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 지방족기, 또는 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 방향족기이고, $-NR^1R^2$ 는 R^1 과 R^2 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 질소 함유 복소환기여도 된다.]

[0013] [2] 상기 중합체가, 하기 식 (2)로 표시되는 반복 단위를 더 함유하는, [1]에 기재된 조성물.



[0014]

[0015] [식 (2) 중, R' , R^1 및 R^2 는 각각 독립적으로, 수소 원자, 할로겐 원자, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 1 내지 20의 탄화수소기, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 지방족기, 또는 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 방향족기이고, R^4 는 탄소수 6 내지 30의 2가의 방향족 탄화수소기, 탄소수 5 내지 20의 2가의 치환식 탄화수소기, 탄소수 1 내지 20의 2가의 쇠상 탄화수소기, $-(R^{41}-O)_m$ 으로 표시되는 2가의 기, 2가의 규소 함유기, 이들 기에서 선택된 2개 이상이 조합된 기, 이들 기 중 적어도 일부가, 산소 원자, 질소 원자 및 황 원자에서 선택된 적어도 하나로 치환된 기, 또는 이들 기의 일부가 치환기에 의해 치환된 기이고, R^{41} 은 독립적으로 탄소수 2 내지 4의 알킬렌이고, m 은 1 내지 70의 정수이고, $-NR^1R^2$ 는 R^1 과 R^2 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 질소 함유 복소환기여도 되고, $-N(R')-R^4-$ 는 R' 와 R^4 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 2가의 단환식 질소 함유 복소환기여도 되고, $-N(R')-R^4-N(R')$ 는 2개의 R' 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 2가의 단환식 질소 함유 복소환기여도 된다.]

[0016] [3] 경화성 화합물 (C)를 더 함유하는, [1] 또는 [2]에 기재된 조성물.

[0017] [4] 경화 보조제 (D)를 더 함유하는, [1] 내지 [3]의 어느 것에 기재된 조성물.

[0018] [5] 용제를 더 함유하는, [1] 내지 [4]의 어느 것에 기재된 조성물.

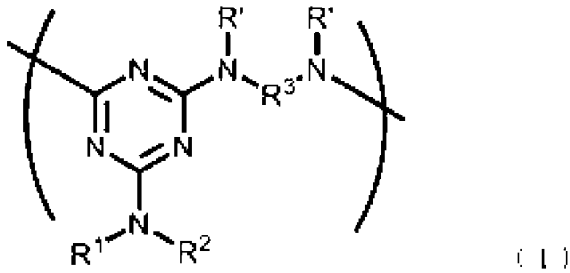
[0019] [6] 상기 경화성 화합물 (C)가, 에폭시 화합물, 시아네이트에스테르 화합물, 비닐 화합물, 실리콘 화합물, 옥사진 화합물, 말레이미드 화합물, 알릴 화합물, 옥세탄 화합물, 메틸올 화합물, (메트)아크릴 화합물, 옥사졸린 화합물 및 프로파르길 화합물로 이루어지는 군에서 선택되는 적어도 1종인, [3]에 기재된 조성물.

[0020] [7] [1] 내지 [6]의 어느 것에 기재된 조성물을 경화해서 이루어지는 경화물.

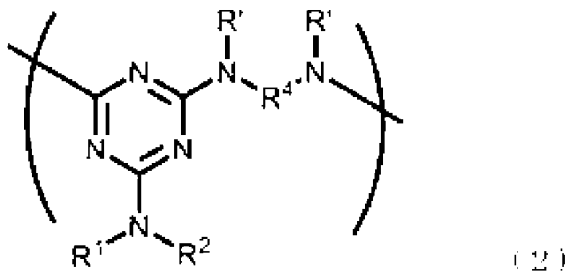
[0021] [8] 기재와, [1] 내지 [6]의 어느 것에 기재된 조성물을 사용해서 형성된 경화물층을 갖는 적층체.

[0022] [9] [8]에 기재된 적층체를 갖는 전자 부품.

[0023] [10] 하기 식 (1)로 표시되는 반복 단위, 및 하기 식 (2)로 표시되는 반복 단위를 함유하는 중합체.



[0024]



[0025]

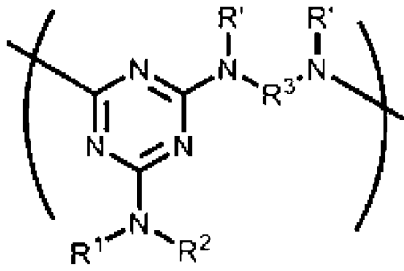
[0026] [식 (1) 및 (2) 중, $-N(R')-R^3-N(R')-$ 는 비치환 또는 치환기에 의해 치환된 다이머 디아민에서 유래하는 구조이고, R' , R^1 및 R^2 는 각각 독립적으로, 수소 원자, 할로겐 원자, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 1 내지 20의 탄화수소기, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 지방족기, 또는 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 방향족기이고, R^4 는 탄소수 6 내지 30의 2가의 방향족 탄화수소기, 탄소수 5 내지 20의 2가의 지환식 탄화수소기, 탄소수 1 내지 20의 2가의 쇠상 탄화수소기, $-(R^{41}-O)_m-$ 으로 표시되는 2가의 기, 2가의 규소 함유기, 이들 기에서 선택된 2개 이상이 조합된 기, 이들 기의 적어도 일부가, 산소 원자, 질소 원자 및 황 원자에서 선택된 적어도 하나로 치환된 기, 또는 이들 기의 일부가 치환기에 의해 치환된 기이고, R^{41} 은 독립적으로 탄소수 2 내지 4의 알킬렌이고, m 은 1 내지 70의 정수이고, $-NR^1R^2$ 는 R^1 과 R^2 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 질소 함유 복소환기여도 되고, $-N(R')-R^4-$ 는 R' 와 R^4 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 2가의 단환식 질소 함유 복소환기여도 되고, $-N(R')-R^4-N(R')-$ 는 2개의 R' 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 2가의 단환식 질소 함유 복소환기여도 된다.]

[0027] [11] [10]에 기재된 중합체를 성형하여 이루어지는 성형체.

[0028] [12] 기재와, [10]에 기재된 중합체를 사용해서 형성된 층을 갖는 적층체.

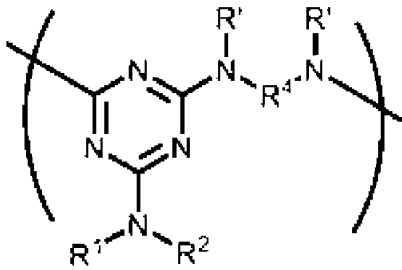
[0029] [13] [12]에 기재된 적층체를 갖는 전자 부품.

[0030] [14] 하기 식 (1)로 표시되는 반복 단위를 함유하는 중합체, 또는 하기 식 (1)로 표시되는 반복 단위 및 하기 식 (2)로 표시되는 반복 단위를 함유하고, 또한 말단에, 페놀성 수산기, 알릴기, 비닐기, (메트)아크릴로일기, 말레이미드기, 프로파르길기, 에틸닐기, 방향족 탄화수소기, 지방족 탄화수소기, 또는 복소환식기에서 선택되는 적어도 1종의 기를 갖는 중합체.



(1)

[0031]



(2)

[0032]

[0033]

[식 (1) 및 (2) 중, $-N(R')-R^3-N(R')$ 는 비치환 또는 치환기에 의해 치환된 다이머 디아민에서 유래하는 구조이고, R' , R^1 및 R^2 는 각각 독립적으로, 수소 원자, 할로젠 원자, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 1 내지 20의 탄화수소기, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 지방족기, 또는 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 방향족기이고, R^4 는 탄소수 6 내지 30의 2가의 방향족 탄화수소기, 탄소수 5 내지 20의 2가의 지환식 탄화수소기, 탄소수 1 내지 20의 2가의 쇠상 탄화수소기, $-(R^{41}-O)_m-$ 으로 표시되는 2가의 기, 2가의 규소 함유기, 이들 기에서 선택된 2개 이상이 조합된 기, 이들 기의 적어도 일부가, 산소 원자, 질소 원자 및 황 원자에서 선택된 적어도 하나로 치환된 기, 또는 이들 기의 일부가 치환기에 의해 치환된 기이고, R^{41} 은 독립적으로 탄소수 2 내지 4의 알킬렌이고, m 은 1 내지 70의 정수이고, $-NR^1R^2$ 는 R^1 과 R^2 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 질소 함유 복소환기여도 되고, $-N(R')-R^4$ 는 R' 와 R^4 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 2가의 단환식 질소 함유 복소환기여도 되고, $-N(R')-R^4-N(R')$ 는 2개의 R' 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 2가의 단환식 질소 함유 복소환기여도 된다.]

발명의 효과

[0034]

본 발명의 일 실시 형태에 따르면, 내열성이 우수하고, 범용 용매에 가용이고, 구리 기재나 금 기재 등의 기재에 대한 도포성 및 밀착성이 우수한 중합체를 제공할 수 있다.

[0035]

또한, 본 발명의 일 실시 형태에 따르면, 내열성이 우수하고, 구리 기재나 금 기재 등의 기재에 대한 도포성 및 밀착성이 우수한 경화물(경화물층)을 형성 가능한 조성물을 제공할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0036]

도 1은 실시예 2에서 얻어진 중합체의 ^1H-NMR 스펙트럼이다.

도 2는 실시예 5에서 얻어진 중합체의 ^1H-NMR 스펙트럼이다.

도 3은 실시예 6에서 얻어진 중합체의 ^1H-NMR 스펙트럼이다.

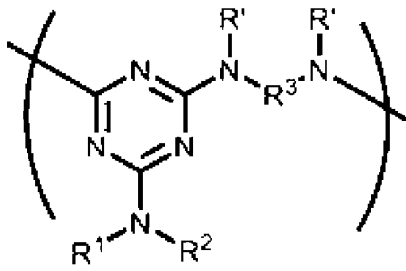
도 4는 실시예 8에서 얻어진 중합체의 ^1H-NMR 스펙트럼이다.

도 5는 실시예 9에서 얻어진 중합체의 ^1H-NMR 스펙트럼이다.

도 6은 실시예 10에서 얻어진 중합체의 ¹H-NMR 스펙트럼이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0037] 이하, 본 발명에 관한 적합한 실시 형태에 대해서 상세하게 설명한다. 또한, 본 발명은 이하에 기재된 실시 형태에만 한정되는 것이 아니고, 본 발명의 요지를 변경하지 않는 범위에 있어서 실시되는 각종 변형에도 포함하는 것으로서 이해되어야 한다.
- [0038] 본 명세서에 있어서, 「내지」를 사용해서 기재된 수치 범위는, 「내지」의 전후에 기재되는 수치를 하한값 및 상한값으로서 포함하는 의미이다.
- [0039] 1. 중합체 및 조성물
- [0040] 본 발명의 일 실시 형태에 따른 조성물(이하 「본 조성물」이라고도 한다.)은, 하기 식 (1)로 표시되는 반복 단위를 갖는 중합체(이하 「중합체 (1)」이라고도 한다.)를 함유한다.
- [0041] 본 조성물 중에 포함되는 중합체 (1)은, 1종이어도 되고, 2종 이상이어도 된다.
- [0042] 본 발명의 일 실시 형태에 따른 중합체(이하 「중합체 (2)」라고도 한다.)는, 하기 식 (1)로 표시되는 반복 단위, 및 하기 식 (2)로 표시되는 반복 단위를 함유한다.
- [0043] 중합체 (2)는, 식 (1)로 표시되는 반복 단위, 및 하기 식 (2)로 표시되는 반복 단위 이외의 다른 구조 단위를 갖고 있어도 된다.
- [0044] 본 발명의 일 실시 형태에 따른 중합체(이하 「중합체 (3)」이라고도 한다.)는, 중합체 (1) 또는 중합체 (2)의 말단에, 페놀성 수산기, 알릴기, 비닐기, (메트)아크릴로일기, 말레이미드기, 프로파르길기, 에틸닐기, 방향족 탄화수소기, 지방족 탄화수소기, 또는 복소환식기에서 선택되는 적어도 1종의 기(이하 「말단기」라고도 한다.)를 갖는 중합체이다.
- [0045] 중합체 (3)은 식 (1)로 표시되는 반복 단위, 하기 식 (2)로 표시되는 반복 단위, 및 말단기 이외의 다른 구조 단위를 갖고 있어도 된다.
- [0046] 또한, 본 발명에 있어서, 「말단」이란, 중합체의 주쇄(가장 긴 쇠)의 적어도 한쪽의 말단을 말하며, 예를 들어 하기 식 (1)에 있어서의 -NR^{1,2}는 말단이라고는 하지 않는다.
- [0047] 이하, 중합체 (1) 내지 (3)을 총칭해서, 「본 중합체」라고도 한다.
- [0048] 하기 식 (1)로 표시되는 반복 단위는, 예를 들어 하기 다른 구조 단위, 또는 말단 구조와 결합한다. 해당 말단 구조로서는, 하기 식 (1)로 표시되는 반복 단위를 구성하는 원료(예: 하기 식 (A) 또는 (B)로 표시되는 화합물) 유래의 구조 또는 하기 말단 밀봉제 유래의 구조를 들 수 있고, 바람직하게는 상기 말단기이다.
- [0049] 하기 식 (2)로 표시되는 반복 단위는, 예를 들어 하기 식 (1)로 표시되는 반복 단위, 또는 말단 구조와 결합한다. 해당 말단 구조로서는, 하기 식 (2)로 표시되는 반복 단위를 구성하는 원료(예: 하기 식 (A) 또는 (C)로 표시되는 화합물) 유래의 구조 또는 하기 말단 밀봉제 유래의 구조를 들 수 있고, 바람직하게는 상기 말단기이다.
- [0050] <<본 중합체>>
- [0051] 본 중합체는, 하기 식 (1)로 표시되는 반복 단위를 갖는 중합체이다. 본 중합체가 하기 식 (1)로 표시되는 반복 단위를 가짐으로써, 용매에 대한 용해성이 우수한 중합체를 얻는 것이 가능하고, 기재에 대한 도포성 등을 향상시키는 것이 가능하다.
- [0052] 본 중합체는, 하기 용제에 대한 용해성이나 다른 성분과의 용해성, 조성물 각종의 각종 물성을 조정할 목적으로 2종 이상을 사용할 수 있다.



(1)

[0053]

[0054]

[식 (1) 중, $-N(R')-R^3-N(R')-$ 는, 비치환 또는 치환기에 의해 치환된 다이머 디아민에서 유래하는 구조이고, R^1 , R^1 및 R^2 는 각각 독립적으로, 수소 원자, 할로겐 원자, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 1 내지 20의 탄화수소기, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 지방족기, 또는 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 방향족기이고, $-NR^1R^2$ 는, R^1 과 R^2 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 질소 함유 복소환기여도 된다.]

[0055]

비치환 또는 치환기에 의해 치환된 다이머 디아민에서 유래하는 구조로서는, 예를 들어, 다이머산형 디아민으로부터 유도되는 2가의 다이머산형 디아민 잔기 또는 해당 2가의 다이머산형 디아민 잔기의 적어도 일부가 치환기에서 치환된 기를 들 수 있다.

[0056]

다이머산형 디아민이란, 다이머산(불포화 지방산(탄소수 18)의 이량체로서 얻어지는 환식 및 비환식 다이머산(탄소수 36을 주성분으로 한다.))의 두개의 말단 카르복실산기($-COOH$)가, 1급의 아미노메틸기($-CH_2-NH_2$) 또는 아미노기($-NH_2$) 등으로 치환되어 이루어지는 디아민을 말한다.

[0057]

상기 다이머산형 디아민은, 올레산 등의 불포화 지방산의 이량체인 다이머산으로 유도되는 화합물이며(일본 특허공개 평9-12712호 공보 등 참조), 각종 공지된 다이머 디아민을 특별히 제한없이 사용할 수 있다.

[0058]

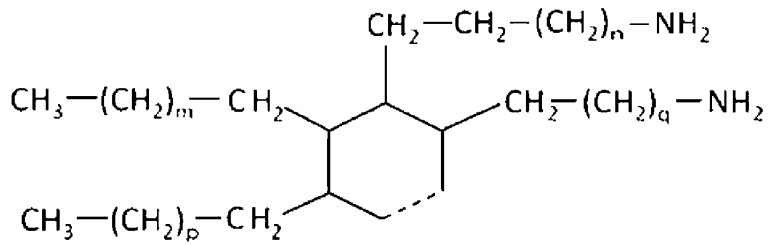
다이머산은, 불포화 지방산의 분자 간 중합 반응에 의해 얻어지는 기지의 이염기산이고, 그 공업적 제조 프로세스는 업계에서 거의 표준화되어 있고, 통상 탄소수가 11 내지 22인 불포화 지방산을 점토 촉매 등으로 이량화해서 얻어진다. 공업적으로 얻어지는 다이머산은, 통상 올레산이나 리놀레산 등의 탄소수 18의 불포화 지방산을 이량화함으로써 얻어지는 탄소수 36의 이염기산이 주성분이지만, 정제의 정도에 따라, 임의량의 모노머산(탄소수 18), 트리머산(탄소수 54), 탄소수 20 내지 54의 다른 중합 지방산을 함유한다. 본 발명의 일 실시 형태에서는, 다이머산은 분자 종류에 의해 다이머산 함유량을 90질량% 이상까지 높인 것을 사용하는 것이 바람직하다. 또한, 상기 이량화 반응 후에 이중 결합이 잔존하는 경우, 본 발명의 일 실시 형태에서는, 추가로 수소 첨가를 통해 이중 결합도를 저하시킨 것도 다이머산에 포함하는 것으로 한다.

[0059]

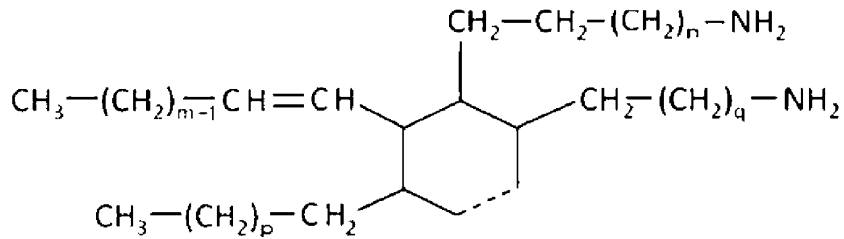
본 중합체가 다이머산형 디아민 유래의 구조를 가짐으로써, 본 중합체에, 다이머산의 골격에서 유래하는 특성, 구체적으로는 이하의 특성을 부여할 수 있다. 다이머산형 디아민은, 분자량 약 500 내지 620의 거대 분자의 복수의 이성체 구조를 포함하는 지방족이므로, 본 중합체의 몰 체적을 크게 하고, 본 중합체 중의 극성기량을 상대적으로 저감시킬 수 있다. 이러한 다이머산형 디아민의 특징에 의해, 본 중합체의 내열성 저하를 억제하면서, 유전 특성을 향상시키는 것에 기여한다고 생각된다. 또한, 다이머산형 디아민이, 2개의 자유롭게 움직이는 탄소수 4 내지 9의 소수쇄와, 탄소수 8 내지 10에 가까운 길이를 갖는 2개의 쇄상의 지방족 아미노기를 갖는 경우, 해당 다이머산형 디아민 유래의 구조는, 본 중합체에 유연성을 부여할 뿐만 아니고, 본 중합체를 비대상적인 화학 구조나 비평면적인 화학 구조와 할 수 있다. 이 때문에, 본 중합체의 용해성을 향상할 수 있는 것으로 생각된다.

[0060]

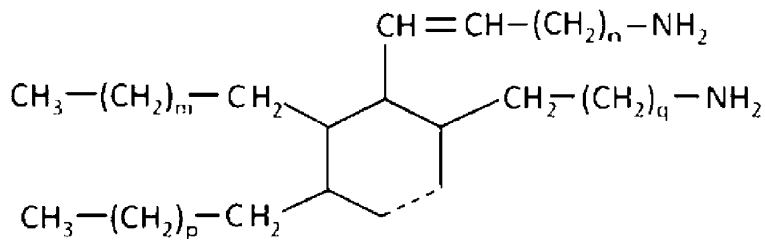
이하, 다이머 디아민의 비한정적인 구조식을 나타낸다. 이하의 각 식에 있어서, $m+n=6$ 내지 17이고, $p+q=8$ 내지 19이고, 파선부는 탄소-탄소 단결합 또는 탄소-탄소 이중 결합을 의미한다.



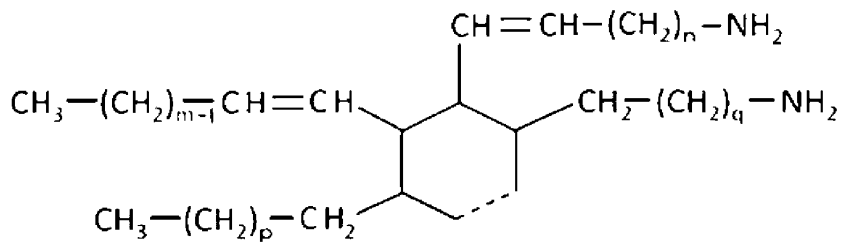
[0061]



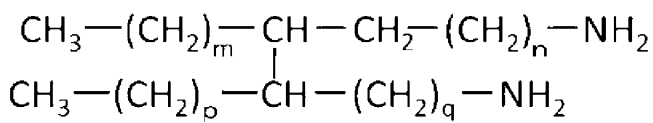
[0062]



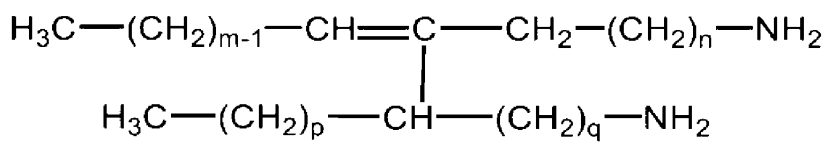
[0063]



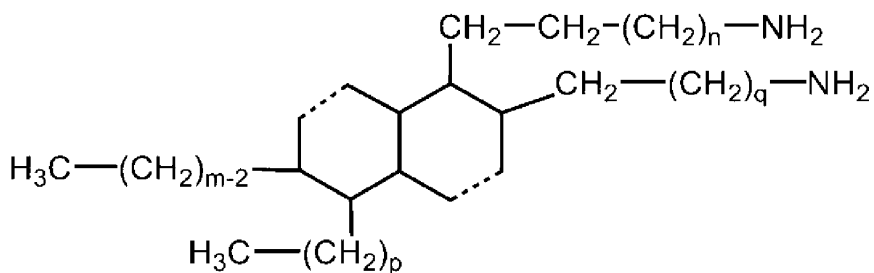
[0064]



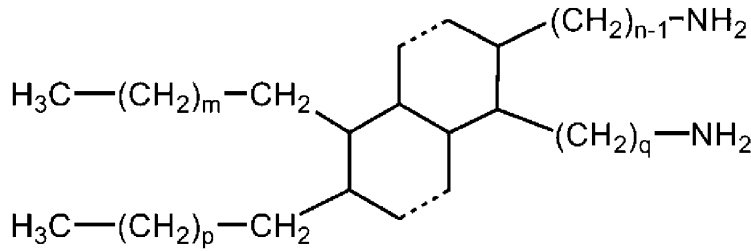
[0065]



[0066]



[0067]



- [0068]
- [0069] 상기 다이머 디아민으로서, 활성 수소 당량이 130 내지 140이고, 아민가가 180 내지 220인 화합물이 바람직하다.
- [0070] 다이머산형 디아민의 시판품으로서, 예를 들어 버사민 551(BASF 재팬(주)제), 버사민 552(코구넥스 재팬(주)제; 버사민 551의 수소 첨가물), Priamine 1075, Priamine 1074(모두 크로다 재팬(주)제)를 들 수 있다.
- [0071] R', R¹ 및 R²에 있어서의 할로겐 원자로서는, 예를 들어 불소 원자, 염소 원자, 브롬 원자, 요오드 원자를 들 수 있다.
- [0072] R', R¹ 및 R²에 있어서의 탄소수 1 내지 20의 탄화수소기로서는, 예를 들어 1가의 쇠상 탄화수소기, 1가의 지환식 탄화수소기, 1가의 방향족 탄화수소기, 또는 이들 기를 조합한 기를 들 수 있다. R', R¹ 및 R²에 있어서의 탄소수 3 내지 20의 복소환식 지방족기로서는, 1가의 복소환식 지방족기를 들 수 있다. R', R¹ 및 R²에 있어서의 탄소수 3 내지 20의 복소환식 방향족기로서는, 1가의 복소환식 방향족기를 들 수 있다. 이들 탄화수소기, 복소환식 지방족기 및 복소환식 방향족기는, 치환기에 의해 치환되어 있어도 된다.
- [0073] 상기 1가의 쇠상 탄화수소기로서는, 예를 들어 메틸기, 에틸기, n-프로필기, 이소프로필기, n-부틸기, 이소부틸기, sec-부틸기, tert-부틸기, n-펜틸기 등의 알킬기; 에테닐기, 프로페닐기, 부테닐기, 펜테닐기 등의 알케닐기; 에틸닐기, 프로피닐기, 부티닐기, 펜티닐기 등의 알킬닐기를 들 수 있다.
- [0074] 상기 1가의 지환식 탄화수소기로서는, 예를 들어 시클로프로필기, 시클로부틸기, 시클로펜틸기, 시클로헥실기 등의 단환의 시클로알킬기; 노르보르닐기, 아다만틸기 등의 다환의 시클로알킬기; 시클로프로페닐기, 시클로부테닐기, 시클로펜테닐기, 시클로헥세닐기 등의 단환의 시클로알케닐기; 노르보르네닐기 등의 다환의 시클로알케닐기를 들 수 있다.
- [0075] 상기 1가의 방향족 탄화수소기로서는, 예를 들어 페닐기, 톨릴기, 크실릴기, 나프틸기, 안트릴기 등의 아릴기를 들 수 있다.
- [0076] 상기 이들 기를 조합한 기로서는, 예를 들어 벤질기, 페네틸기, 페닐프로필기, 나프틸메틸기 등의 아르알킬기를 들 수 있다.
- [0077] 상기 1가의 복소환식 지방족기로서는, 예를 들어 아지리딘, 옥시란, 티이란, 아제티딘, 옥세탄, 티에탄, 피롤리딘, 피롤린, 피페리딘, 피페리데인, 피라졸리딘, 이미다졸리딘, 이미다졸린, 테트라히드로푸란, 디옥솔란, 테트라히드로티오펜, 피페라진, 테트라히드로피란, 디옥산, 모르폴린 등의 복소환 유래의 1가의 복소환식 지방족기를 들 수 있다.
- [0078] 상기 1가의 복소환식 방향족기로서는, 예를 들어 티오펜, 벤조티오펜, 피롤, 이미다졸, 피라졸, 피리딘, 피라진, 피리미딘, 피리다진, 트리아진, 인돌, 이소인돌, 벤즈이미다졸, 퓨린, 인다졸, 퀴놀린, 이소퀴놀린, 퀴녹살린, 퀴나졸린, 신놀린, 푸란, 벤조푸란(1-벤조푸란), 이소벤조푸란(2-벤조푸란), 옥사졸, 이소옥사졸, 티아졸, 벤조옥사졸, 벤조이소옥사졸, 벤조티아졸 등의 복소환 유래의 1가의 복소환식 방향족기를 들 수 있다.
- [0079] 상기 다이머 디아민에서 유래하는 구조에 있어서의 치환기, 그리고 R', R¹ 및 R²에 있어서의 탄소수 1 내지 20의 탄화수소기 및 탄소수 3 내지 20의 복소환식 방향족기에 있어서의 치환기로서는 특별히 제한되지 않지만, 예를 들어 알릴기, 할로겐 원자, 탄소수 1 내지 20의 1가의 탄화수소기, 탄소수 1 내지 20의 1가의 할로겐화 탄화수소기, 탄소수 1 내지 20의 알콕시기, 탄소수 1 내지 20의 알콕시카르보닐기, 탄소수 1 내지 20의 알킬티오기, 니트로기, 시아노기, 카르복시기, 술폰산기, 포스폰산기, 인산기, 히드록시기, 1 내지 3급 아미노기, 카르복시기의 염, 술폰산기의 염, 포스폰산기의 염, 인산기의 염, 히드록시기의 염, 1 내지 3급 아미노기의 염을 들

수 있다.

[0080]

R'로서는 수소 원자가 바람직하다.

[0081]

R¹ 또는 R²가 수소 원자인 경우, 해당 수소 원자와, 이 수소 원자가 결합하고 있는 질소 원자 이외의 헤테로 원자 부위나 트리아진환 부위와의 수소 결합에 의한 상호 작용이 발생하고, 상대적으로 기재에 대한 밀착성이 우수한 중합체가 되기 쉽기 때문에 바람직하다.

[0082]

상기 식 (1)로 표시되는 반복 단위의 반복 단위수는 특별히 제한되지 않지만, 예를 들어 2 내지 10,000이고, 바람직하게는 3 내지 8,000, 보다 바람직하게는 3 내지 5,000이다.

[0083]

본 중합체에 있어서의 상기 식 (1)로 표시되는 반복 단위의 함유 비율의 하한으로서는 5몰%가 바람직하고, 15몰%가 보다 바람직하고, 25몰%가 더욱 바람직하고, 40몰%가 특히 바람직하다. 상기 함유 비율의 상한으로서는 95몰%가 바람직하고, 90몰%가 보다 바람직하고, 85몰%가 더욱 바람직하고, 80몰%가 특히 바람직하다.

[0084]

상기 식 (1)로 표시되는 반복 단위의 함유 비율이 상기 범위에 있는 본 중합체는, 용매에 대한 용해성이 우수하고, 기재에 대한 도포성 등이 우수하다.

[0085]

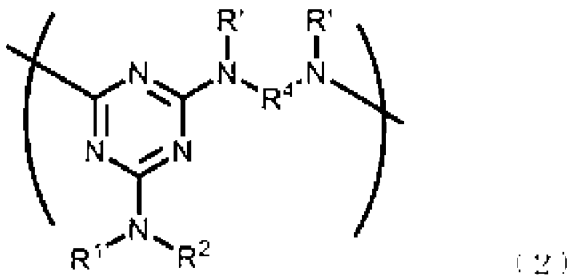
중합체 (1)은, 상기 식 (1)로 표시되는 반복 단위 이외의 다른 구조 단위를 함유하고 있어도 된다.

[0086]

해당 다른 구조 단위는, 본 발명의 효과를 손상시키지 않는 것이면 특별히 한정되지 않지만, 특히 하기 식 (2)로 표시되는 반복 단위를 함유하는 것이 바람직하다.

[0087]

또한, 중합체 (2)는, 상기 식 (1)로 표시되는 반복 단위 및 하기 식 (2)로 표시되는 반복 단위를 함유한다.



[0088]

[0089]

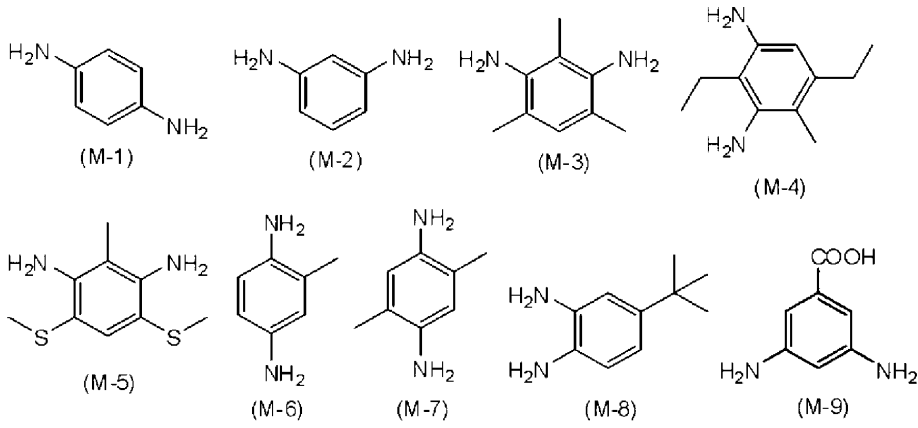
[식 (2) 중, R', R¹ 및 R²는 각각 독립적으로, 수소 원자, 할로젠 원자, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 1 내지 20의 탄화수소기, 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 지방족기, 또는 비치환 혹은 치환기에 의해 치환된 탄소수 3 내지 20의 복소환식 방향족기이고, R⁴는 탄소수 6 내지 30의 2가의 방향족 탄화수소기, 탄소수 5 내지 20의 2가의 지환식 탄화수소기, 탄소수 1 내지 20의 2가의 쇄상 탄화수소기, -(R⁴¹-O)_m-으로 표시되는 2가의 기, 2가의 규소 함유기, 이들 기에서 선택된 2개 이상이 조합된 기, 이들 기의 적어도 일부가, 산소 원자, 질소 원자 및 황 원자에서 선택된 적어도 하나로 치환된 기, 또는 이들 기의 일부가 치환기에 의해 치환된 기이고, R⁴¹은 독립적으로 탄소수 2 내지 4의 알킬렌이고, m은 1 내지 70의 정수이고, -NR¹R²는 R¹과 R²가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 질소 함유 복소환기여도 되고, -N(R')-R⁴-는 R'와 R⁴가 서로 결합한, 환 구성 원자수 5 내지 20의 2가의 단환식 질소 함유 복소환기여도 되고, -N(R')-R⁴-N(R')-는 2개의 R'가 서로 결합한, 환 구성 원자수 5 내지 20의 2가의 단환식 질소 함유 복소환기여도 된다.]

[0090]

식 (2)에 있어서의 R', R¹ 및 R²의 구체예로서는, 상기 식 (1)에 있어서의 R', R¹ 및 R²의 구체예와 마찬가지로이다.

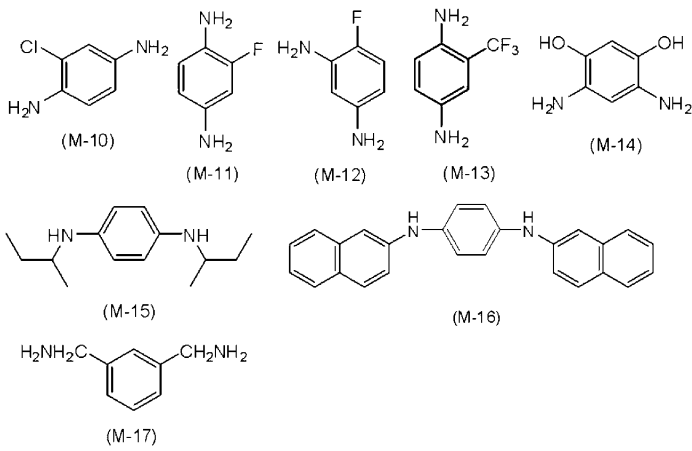
[0091]

R⁴가, 탄소수 6 내지 30의 2가의 방향족 탄화수소기, 해당 방향족 탄화수소기와 1개 이상의 다른 기가 조합된 기, 이들 기의 적어도 일부가, 산소 원자, 질소 원자 및 황 원자에서 선택된 적어도 하나로 치환된 기, 또는 이들 기의 일부가 치환기에 의해 치환된 기인 경우, 식 (2)에 있어서의 -NR'-R⁴-NR'-부분의 구조로서는, 예를 들어 이하에 나타내는 화합물 유래의 구조를 들 수 있다.



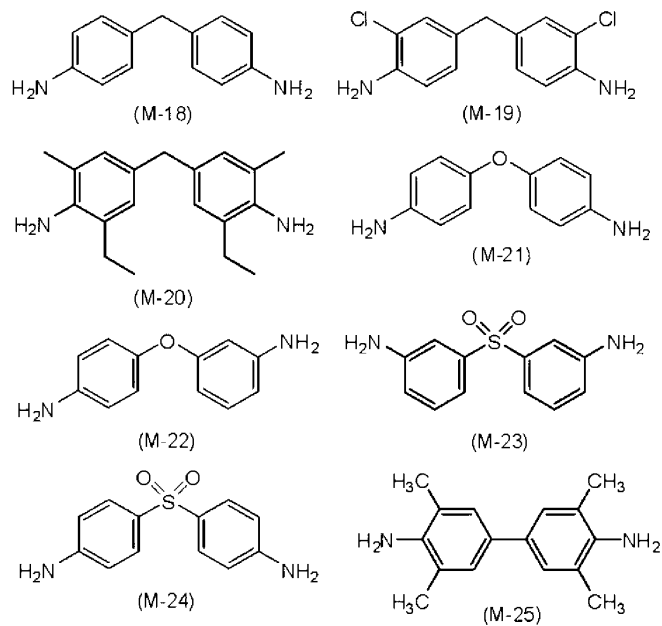
[0092]

[0093] [상기 식 중의 결합처가 기재되어 있지 않은 「-」은 메틸기를 나타낸다.]



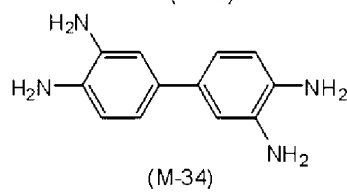
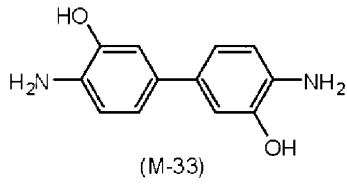
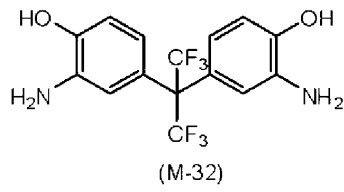
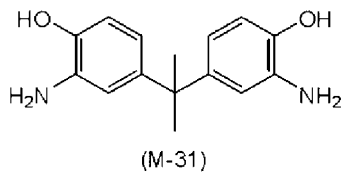
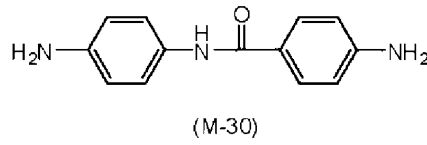
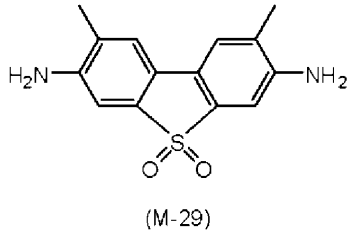
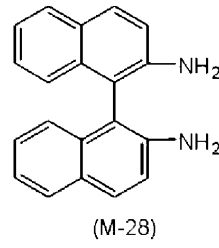
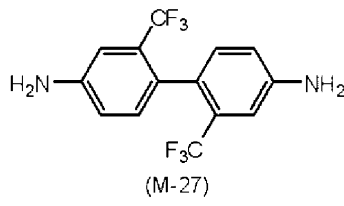
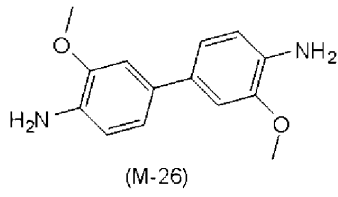
[0094]

[0095] [상기 식 중의 결합처가 기재되어 있지 않은 「-」은 메틸기를 나타낸다.]



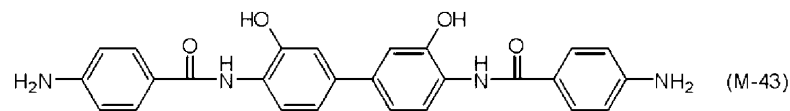
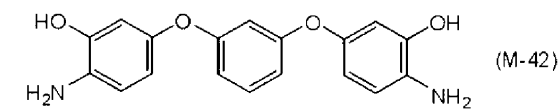
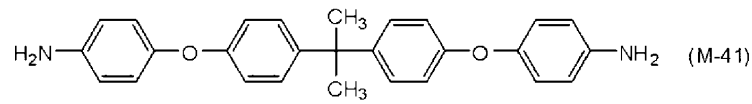
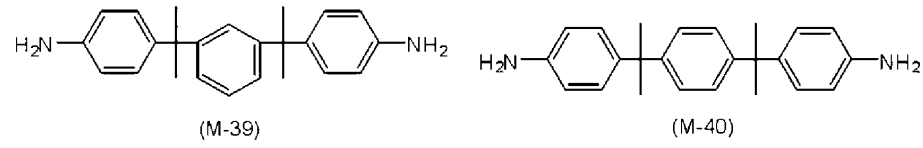
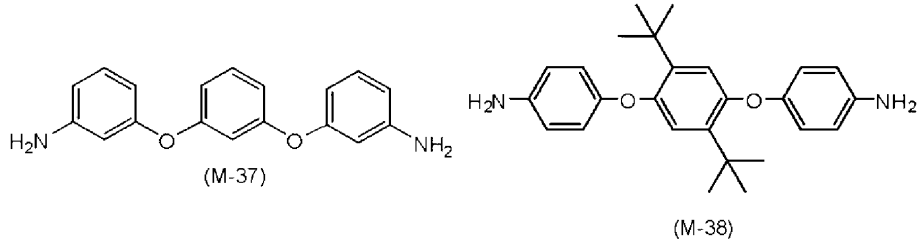
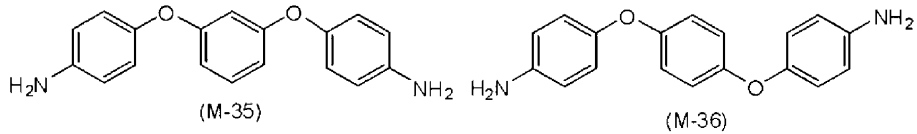
[0096]

[0097] [상기 식 중의 결합처가 기재되어 있지 않은 「-」은 메틸기를 나타낸다.]



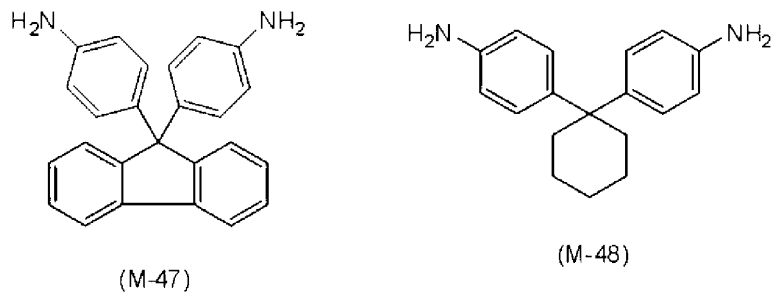
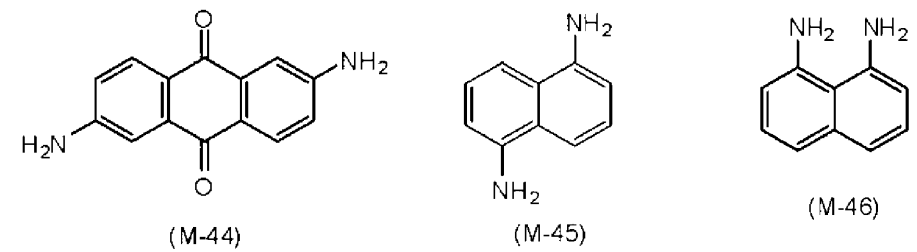
[0098]

[0099] [상기 식 중의 결합처가 기재되어 있지 않은 「-」은 메틸기를 나타낸다.]



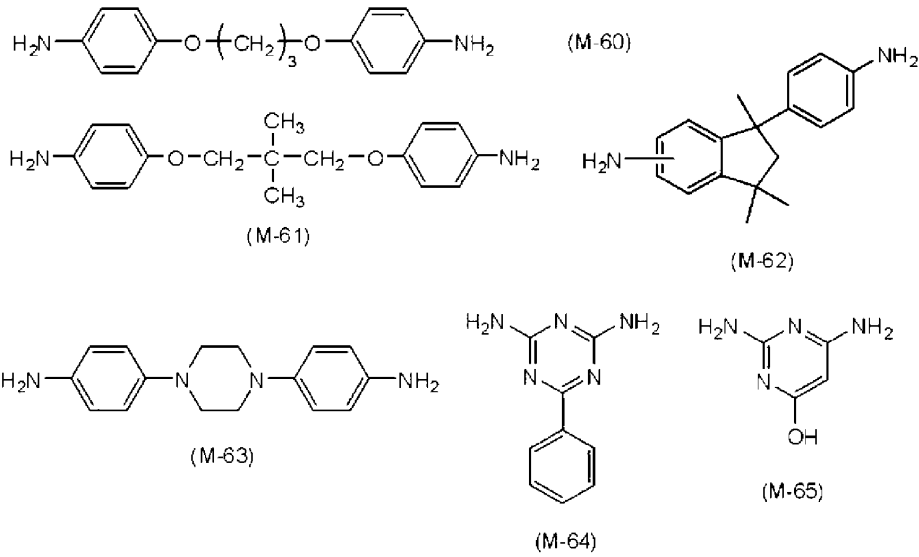
[0100]

[0101] [상기 식 중의 결합처가 기재되어 있지 않은 「-」은 메틸기를 나타낸다.]



[0102]

[0103] [상기 식 중의 결합처가 기재되어 있지 않은 「-」은 메틸기를 나타낸다.]

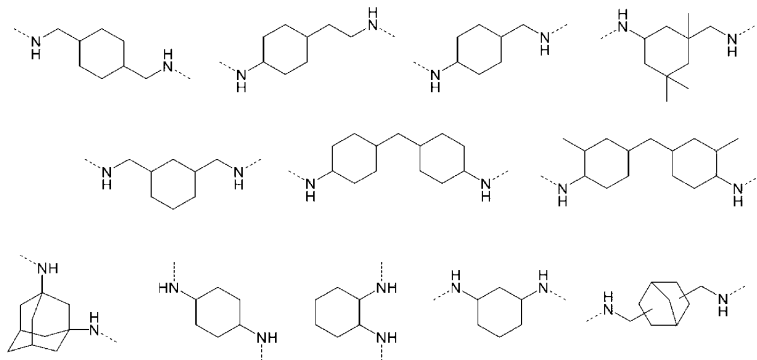


[0104]

[0105] [상기 식 중의 결합처가 기재되어 있지 않은 「-」은 메틸기를 나타낸다.]

[0106] R⁴가 탄소수 5 내지 20의 2가의 치환식 탄화수소기, 해당 치환식 탄화수소기와 1개 이상의 다른 기가 조합된 기, 이들 기의 적어도 일부가, 산소 원자, 질소 원자 및 황 원자에서 선택된 적어도 하나로 치환된 기, 또는 이들 기의 일부가 치환기에 의해 치환된 기인 경우, 식 (2)에 있어서의 -NR'-R⁴-NR'-부분의 구조로서는, 예를 들어 이하에 나타내는 구조를 들 수 있다.

[0107] 또한, 하기 구조에 있어서의 점선은, 식 (2)의 -NR'에 있어서의 질소 원자의, R⁴ 및 R'는 다른 기와 결합하는 결합손을 의미한다.

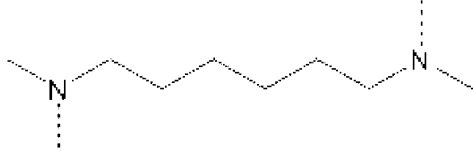
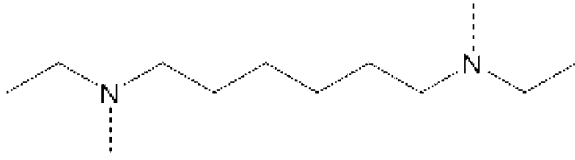


[0108]

[0109] R⁴에 있어서의 탄소수 1 내지 20의 2가의 쇄상 탄화수소기로서는, 예를 들어 상기 1가의 쇄상 탄화수소기로부터 수소 원자를 1개 제거한 2가의 기를 들 수 있다.

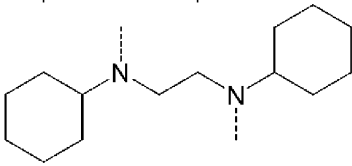
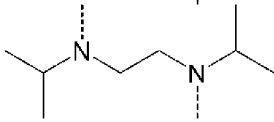
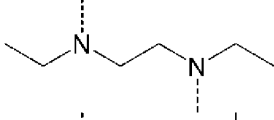
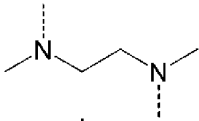
[0110] R⁴가 탄소수 1 내지 20의 2가의 쇄상 탄화수소기, 해당 쇄상 탄화수소기와 1개 이상의 다른 기가 조합된 기, 이들 기의 적어도 일부가, 산소 원자, 질소 원자 및 황 원자에서 선택된 적어도 하나로 치환된 기, 또는 이들 기의 일부가 치환기에 의해 치환된 기인 경우, 식 (2)에 있어서의 -NR'-R⁴-NR'-부분의 구조로서는, 예를 들어 이하에 나타내는 구조를 들 수 있다.

[0111] 또한, 하기 구조에 있어서의 점선은, 식 (2)의 -NR'에 있어서의 질소 원자의, R⁴ 및 R'와는 다른 기와 결합하는 결합손을 의미한다.



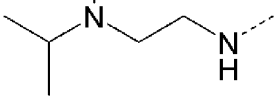
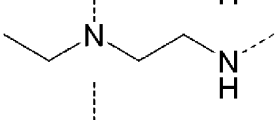
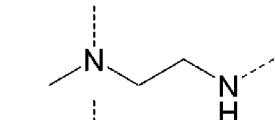
[0112]

[0113] [상기 식 중의 결합처가 기재되어 있지 않은 「-」은 메틸기를 나타낸다.]



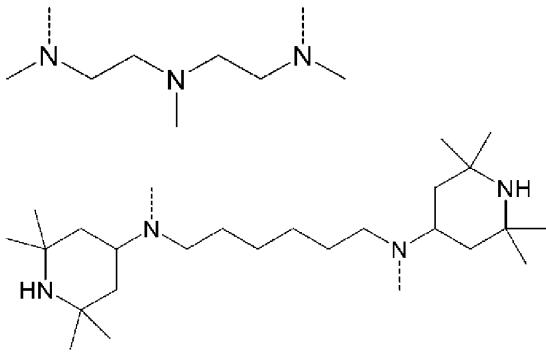
[0114]

[0115] [상기 식 중의 결합처가 기재되어 있지 않은 「-」은 메틸기를 나타낸다.]



[0116]

[0117] [상기 식 중의 결합처가 기재되어 있지 않은 「-」은 메틸기를 나타낸다.]



[0118]

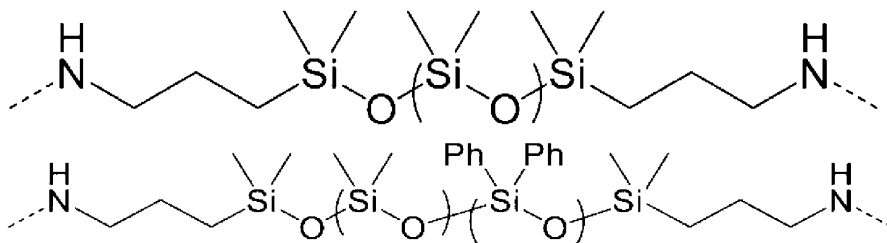
[0119] [상기 식 중의 결합처가 기재되어 있지 않은 「-」은 메틸기를 나타낸다.]

[0120] $-(R^{41}-O)_m-$ 으로 표시되는 2가의 기에 있어서의, R^{41} 은 독립적으로 탄소수 2 내지 4의 알킬렌이고, m 은 1 내지 70의 정수이고, 바람직하게는 1 내지 40의 정수이다.

[0121] R^4 가 2가의 규소 함유기인 경우, 식 (2)에 있어서의 $-NR'-R^4-NR'-$ 부분의 구조로서는, 예를 들어 신에쯔 가가꾸 고교(주)제의, KF-8010, X-22-161A, X-22-161B, KF-8012, KF-8008, X-22-1660B-3, X-22-9409 유래의 구조를 들 수 있다.

[0122] R^4 가 2가의 규소 함유기인 경우, 식 (2)에 있어서의 $-NR'-R^4-NR'-$ 부분의 구조로서는, 예를 들어 이하에 나타내는 구조가 바람직하다.

[0123] 또한, 하기 구조에 있어서의 점선은, 식 (2)의 $-NR'$ 에 있어서의 질소 원자의, R^4 및 R' 와는 다른 기와 결합하는 결합손을 의미한다.



[0124]

[0125] [상기 식 중의 결합처가 기재되어 있지 않은 「-」은 메틸기를 나타낸다.]

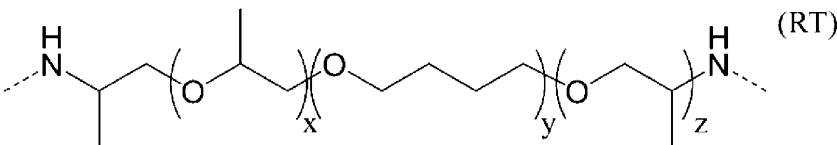
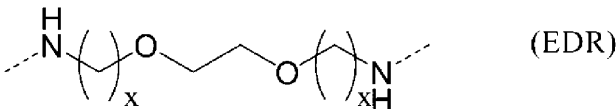
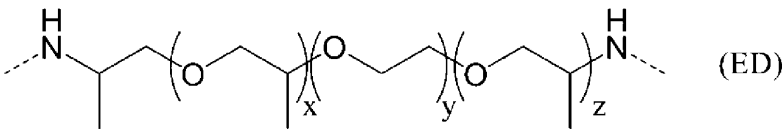
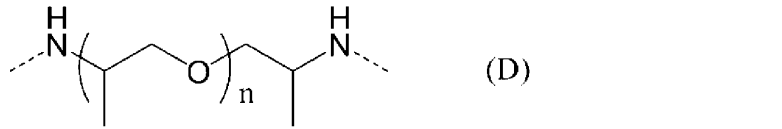
[0126] 상기 식으로 표시되는 규소 함유기를 부여하는 단량체로서 입수 가능한 시판품으로서, X-22-161A, X-22-161B, KF-8010, X-22-1660B-3 및 KF-8012(이상 모두 신에쯔 가가꾸 고교(주)제) 등을 들 수 있다.

[0127] 탄소수 6 내지 30의 2가의 방향족 탄화수소기, 탄소수 5 내지 20의 2가의 지환식 탄화수소기, 탄소수 1 내지 20의 2가의 쇄상 탄화수소기, $-(R^{41}-O)_m-$ 으로 표시되는 2가의 기, 2가의 규소 함유기, 또는 이들 기에서 선택된 2개 이상이 조합된 기의 적어도 일부가 산소 원자, 질소 원자 및 황 원자에서 선택되는 적어도 하나로 치환된 기로서는, 구체적으로는, 상기 방향족 탄화수소기, 지환식 탄화수소기, 쇄상 탄화수소기, 옥시알킬렌기, 규소 함유기의 일부가, $-O-$, $-OO-$, $-C(=O)-$, $-C(=O)-O-$, $-S-$, $-SS-$, $-SO_2-$, $=N-$, $-N-C(=O)-$, 3급 아미노기 등으로 치환된 기를 들 수 있다.

[0128] R^4 가 탄소수 1 내지 20의 2가의 쇄상 탄화수소기의 일부가 $-O-$ 로 치환된 기인 경우 또는 $-(R^{41}-O)_m-$ 으로 표시되는 2가의 기인 경우, 식 (2)에 있어서의 $-NR'-R^4-NR'-$ 부분의 구조로서는, 예를 들어 헨즈맨사제의, JEFFAMINE-D 시리즈, JEFFAMINE-ED 시리즈, JEFFAMINE-EDR 시리즈, JEFFAMINE-RT 시리즈, 등의 폴리옥시알킬렌아민류 유래의 구조를 들 수 있다.

[0129] R^4 가 탄소수 1 내지 20의 2가의 쇄상 탄화수소기의 일부가 -O-로 치환된 기인 경우 또는 $-(R^{41}-O)_m-$ 으로 표시되는 2가의 기인 경우, 식 (2)에 있어서의 $-NR'-R^4-NR'$ -부분의 구조로서는, 예를 들어 이하에 나타내는 구조가 바람직하다.

[0130] 또한, 하기 구조에 있어서의 점선은, 식 (2)의 $-NR'$ 에 있어서의 질소 원자의, R^4 및 R' 와는 다른 기와 결합하는 결합손을 의미한다.



[0131] [상기 식 중의 결합처가 기재되어 있지 않은 「-」은 메틸기를 나타낸다.]

[0132]

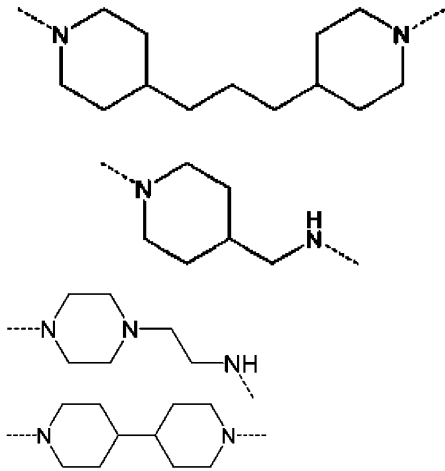
[0133] 상기 식으로 표시되는 탄소수 1 내지 20의 2가의 쇄상 탄화수소기의 일부가 -O-로 치환된 기 또는 $-(R^{41}-O)_m-$ 으로 표시되는 2가의 기를 부여하는 단량체로서는, 헨즈만사제의, JEFFAMINE D-230(n =내지 2.5, M_w =230), 동 D-400(n =내지 6.1, M_w =430), 동 D-2000(n =내지 33, M_w =2000), 동 D-4000(n =내지 68, M_w =4000), 동 ED-600(y =내지 9.0, $x+z$ =내지 3.6, M_w =600), 동 ED-900(y =내지 12.5, $x+z$ =내지 6.0, M_w =900), 동 ED-2003(y =내지 39, $x+z$ =내지 6.0, M_w =2000), 동 EDR-148(x =내지 2.0, M_w =148), 동 RT-1000(M_w =1000) 등을 들 수 있어, 그 중에서 상기 식 (D)로 표시되는 JEFFAMINE D-230, 동 D-400, 동 D-2000, 동 D-4000이 바람직하다.

[0134] 상기 탄소수 6 내지 30의 2가의 방향족 탄화수소기, 탄소수 5 내지 20의 2가의 지환식 탄화수소기, 탄소수 1 내지 20의 2가의 쇄상 탄화수소기, $-(R^{41}-O)_m-$ 으로 표시되는 2가의 기, 2가의 규소 함유기, 이들 기에서 선택된 2개 이상이 조합된 기, 또는 이들 기의 적어도 일부가, 산소 원자, 질소 원자 및 황 원자에서 선택되는 적어도 하나로 치환된 기의 일부가 치환기에 의해 치환된 기에 있어서의 치환기로서는 특별히 제한되지 않지만, 알릴기, 할로젠 원자, 탄소수 1 내지 20의 1가의 탄화수소기, 탄소수 1 내지 20의 1가의 할로겐화 탄화수소기, 탄소수 1 내지 20의 알콕시기, 탄소수 1 내지 20의 알콕시카르보닐기, 탄소수 1 내지 20의 알킬티오기, 니트로기, 시아노기, 카르복시기, 술폰산기, 포스폰산이기, 인산기, 히드록시기, 옥소기, 1 내지 3급 아미노기, 카르복시기의 염, 술폰산기의 염, 포스폰산이기의 염, 인산기의 염, 히드록시기의 염, 1 내지 3급 아미노기의 염 등을 들 수 있다.

[0135] 식 (2)에 있어서, $-N(R')-R^4-$ 는, R' 와 R^4 가 서로 결합한, 환 구성 원자수 5 내지 8의 2가의 단환식 질소 함유 복소환기여도 되고, $-N(R')-R^4-$ 이, 이러한 단환식 질소 함유 복소환기인 경우, 식 (2)에 있어서의 $-NR'-R^4-NR'$ -

부분의 구조로서는, 예를 들어 이하에 나타내는 구조를 들 수 있다.

[0136] 또한, 하기 구조에 있어서의 점선은, 식 (2)의 -NR'에 있어서의 질소 원자의, R⁴ 및 R'와는 다른 기와 결합하는 결합손을 의미한다.



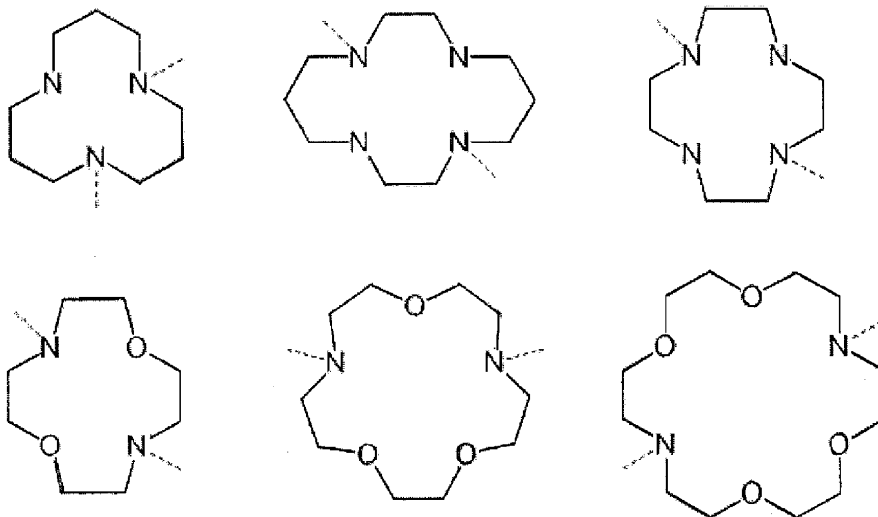
[0137]

[0138] 식 (2)에 있어서, -N(R')-R⁴-N(R')-는, 2개의 R'가 서로 결합한, 환 구성 원자수 5 내지 20의 2가의 단환식 질소 함유 복소환기여도 되고, 이 경우, 식 (2)에 있어서의 -NR'-R⁴-NR'-부분의 구조로서는, 예를 들어 이하에 나타내는 구조를 들 수 있다.

[0139] 또한, 하기 구조에 있어서의 점선은, 식 (2)의 -NR'에 있어서의 질소 원자의, R⁴ 및 R'와는 다른 기와 결합하는 결합손을 의미한다.



[0140]



[0141]

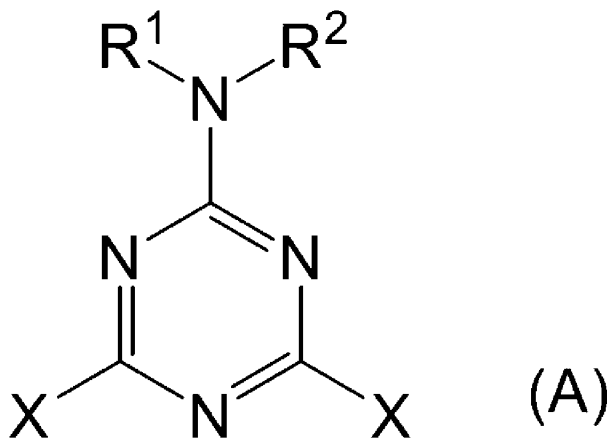
[0142] 상기 식 (2)로 표시되는 반복 단위의 반복 단위수는 특별히 제한되지 않지만, 예를 들어 2 내지 10,000이고, 바람직하게는 3 내지 8,000, 보다 바람직하게는 3 내지 5,000이다.

[0143] 본 중합체에 있어서의 상기 식 (2)로 표시되는 반복 단위의 함유 비율의 하한으로서는 5몰%가 바람직하고, 15몰%가 보다 바람직하고, 25몰%가 더욱 바람직하고, 40몰%가 특히 바람직하다. 상기 함유 비율의 상한으로서는 95

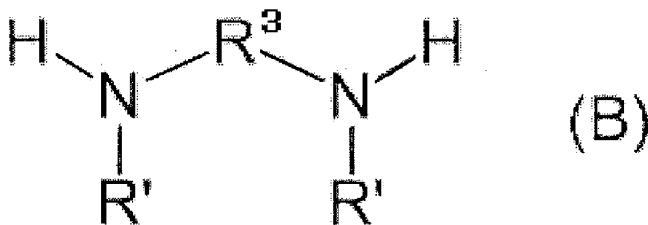
몰%가 바람직하고, 85몰%가 보다 바람직하고, 80몰%가 더욱 바람직하고, 75몰%가 특히 바람직하다.

- [0144] 상기 식 (2)로 표시되는 반복 단위의 함유 비율이 상기 범위에 있는 본 중합체는, 각종 용제에 대한 용해성이나, 또한 후술하는 경화성 화합물 등의 다른 성분과의 상용성을 제어할 수 있다.
- [0145] 중합체 (1) 및 (2)는, 상기 식 (1)로 표시되는 반복 단위 및 상기 식 (2)로 표시되는 반복 단위 이외의 다른 구조 단위를 함유하고 있어도 된다.
- [0146] 해당 다른 구조 단위는, 본 발명의 효과를 손상시키지 않는 것이면 특별히 한정되지 않지만, 예를 들어 상기 말단기를 들 수 있다.
- [0147] 또한, 중합체 (3)은, 중합체 (1) 또는 중합체 (2)의 말단에, 상기 말단기를 갖는다.
- [0148] 상기 말단기로서는, 예를 들어 페놀성 수산기, 알릴기, 비닐기, (메트)아크릴로일기, 말레이미드기, 프로파르길기 및 에틸기에서 선택되는 반응성기, 방향족 탄화수소기, 지방족 탄화수소기, 복소환식기를 들 수 있다.
- [0149] 본 중합체에 있어서의 주쇄 말단의 2개의 기는, 각각 동일하거나, 상이해도 된다.
- [0150] 상기 말단기로서는, 이하에 나타내는 말단 밀봉제 유래의 기를 들 수 있다.
- [0151] 말단 밀봉제로서는, 예를 들어 4-(2-아미노에틸)페놀, 아미노페놀 등의 아미노페놀 화합물; 알릴아민, 디알릴아민, 4-알릴페놀 등의 알릴 화합물; 클로로메틸스티렌, 4-아미노스티렌, 4-비닐페놀, 4-이소프로페닐페놀 등의 비닐 화합물; (메트)아크릴로일클로라이드, 무수 (메트)아크릴산 등의 (메트)아크릴 화합물; 4-히드록시페닐말레이미드 등의 말레이미드 화합물; 프로파르길아민 등의 프로파르길 화합물; 4-에틸아닐린 등의 에틸 화합물; 방향족 탄화수소기 함유 화합물(예: 2-페닐페놀 등의 모노 페놀 화합물, 아닐린, 4-tert-부틸아닐린 등의 방향족 모노 아미노 화합물), 지방족 탄화수소기 함유 화합물(예: 2-에틸헥실아민, 디(2-에틸헥실)아민 등의 지방족 모노 아미노 화합물), 복소환식기 함유 화합물(예: 4-메틸피페리딘, 1-메틸피페라진, 모르폴린 등의 환상 아민 화합물)을 들 수 있다.
- [0152] 상기 말단기로서는, 에폭시 수지 등과 반응할 수 있는 열경화성 조성물을 용이하게 얻을 수 있는 등의 점에서, 아미노페놀 화합물, 알릴 화합물, 비닐 화합물 및 (메트)아크릴 화합물에서 선택되는 말단 밀봉제 유래의 반응성기가 바람직하다.
- [0153] 또한, 상기 말단기로서는, 열가소성 재료로서 사용하는 등의 점에서는, 모노 페놀 화합물, 방향족 모노 아미노 화합물, 지방족 모노 아미노 화합물 및 환상 아민 화합물에서 선택되는 말단 밀봉제 유래의 기가 바람직하다.
- [0154] <본 중합체의 물성 등>
- [0155] 상기 본 중합체는, 내열성이 우수한 중합체가 되는 등의 점에서, 폴리스티렌 환산의 중량 평균 분자량(Mw)은, 바람직하게는 1,000 내지 400,000, 보다 바람직하게는 3,000 내지 200,000이고, 분자량 분포(Mw/Mn)는, 바람직하게는 1.5 내지 12.0, 보다 바람직하게는 1.7 내지 9.0이다.
- [0156] 해당 Mw는, 구체적으로는 하기 실시예에 기재된 방법으로 측정할 수 있다.
- [0157] 본 중합체의 시차 주사 열량계(DSC)에서 측정된 유리 전이 온도(Tg)는, 바람직하게는 -50 내지 200℃, 보다 바람직하게는 -50℃ 내지 150℃이다.
- [0158] 해당 Tg는, 구체적으로는, 하기 실시예에 기재된 방법으로 측정할 수 있다.
- [0159] 본 중합체의 열중량 분석법(TGA)에서 측정된 5% 질량 감소 온도(Td5)는, 바람직하게는 200 내지 600℃, 보다 바람직하게는 250 내지 600℃이다.
- [0160] Td5가 상기 범위에 있는 본 중합체는, 내열성이 우수한 중합체고 할 수 있다.
- [0161] 해당 Td5는, 구체적으로는, 하기 실시예에 기재된 방법으로 측정할 수 있다.
- [0162] 본 중합체는, 범용 용매에 가용이고, 범용 용매에 대한 용해성이 우수하다.
- [0163] 여기서, 해당 범용 용매로서는, 예를 들어 대기압 하에서의 비점이 180℃ 이하인 용매를 들 수 있고, 구체예로서는, 시클로헥사논, 시클로펜타논을 들 수 있다.
- [0164] 또한, 25℃에 있어서, 범용 용매 100g에 대해, 본 중합체가 1g 이상 용해하는 경우, 본 중합체는, 범용 용매에 가용이라고 할 수 있다. 용해하는지의 여부는, 침전물의 유무로 판단할 수 있다.

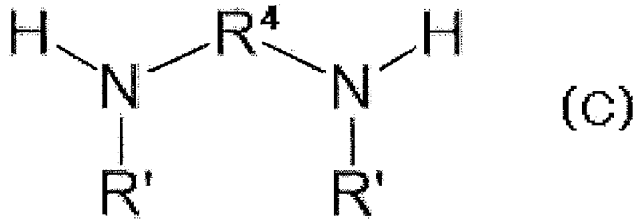
- [0165] 본 중합체가 범용 용매에 가용이면, 해당 범용 용매에 본 중합체를 용해시킨 용액으로 할 수 있고, 해당 용액은 도포성, 건조성이 우수하기 때문에 바람직하다.
- [0166] 본 중합체의 유전 정접($\tan \delta$)은, 본 중합체를 포함하는 조성물로 했을 때의 전송 손실을 저감할 수 있는 등의 점에서, 바람직하게는 0.0060 이하, 보다 바람직하게는 0.0050 이하이고, 그 하한은 특별히 제한되지 않지만, 바람직하게는 0.0005 이상이다.
- [0167] 해당 유전 정접은, 구체적으로는, 하기 실시예에 기재된 방법으로 측정할 수 있다.
- [0168] <본 중합체의 합성 방법>
- [0169] 본 중합체는, 예를 들어 종래 공지된 디할로젠화 트리아진 화합물과, 디아민 화합물에 대표되는 친핵성 관능기를 갖는 화합물의 축합 반응을 이용해서 제조할 수 있다. 구체적으로는 실시예에 기재하는 대로이지만, 그 일례를 이하에 나타낸다.
- [0170] 중합체 (1)은, 예를 들어 하기 식 (A)로 표시되는 화합물과, 하기 식 (B)로 표시되는 다이머 디아민을, 탄산칼륨 등의 알칼리 금속 화합물의 존재 하, 시클로헥사논, N-메틸-2-피롤리돈(NMP)이나 N,N-디메틸아세트아미드(DMAc) 등의 적당한 유기 용매 중에서 가열해서 중합시킴으로써 합성할 수 있다.
- [0171] 중합체 (2)는, 예를 들어 하기 식 (A)로 표시되는 화합물과, 하기 식 (B)로 표시되는 화합물과, 하기 식 (C)로 표시되는 화합물을, 탄산칼륨 등의 알칼리 금속 화합물의 존재 하, 시클로헥사논, N-메틸-2-피롤리돈(NMP)이나 N,N-디메틸아세트아미드(DMAc) 등의 적당한 유기 용매 중에서 가열해서 중합시킴으로써 합성할 수 있다.
- [0172] 또한, 이들 합성 시에는, 상기 말단 밀봉제를 존재시켜서 반응을 행해도 되고, 중합체 (3)은 이들 합성 시에, 상기 말단 밀봉제를 사용함으로써 합성할 수 있다.



- [0173]
- [0174] [식 (A) 중, R^1 및 R^2 는 각각 독립적으로, 식 (1) 중의 R^1 및 R^2 와 동일한 의미이며, X는 할로젠 원자이다. $-NR^1R^2$ 는 R^1 과 R^2 가 서로 결합한 환 구성 원자수 5 내지 20의 질소 함유 복소환기여도 된다.]



- [0175]
- [0176] [식 (B) 중, $-N(R^1)-R^3-N(R^1)-$ 는, 비치환 또는 치환기에 의해 치환된 다이머 디아민에서 유래하는 구조이고, R^1 는 독립적으로, 식 (1) 중의 R^1 와 동일한 의미이다.]



[0177]

[0178] [식 (C) 중, R⁴ 및 R'는 각각 독립적으로, 식 (2) 중의 R⁴ 및 R'와 동일한 의미이고, -N(R')-R⁴-는, R'와 R⁴가 서로 결합한, 환 구성 원자수 5 내지 20의 2가의 단환식 질소 함유 복소환기여도 되고, -N(R')-R⁴-N(R')-는, 2개의 R'가 서로 결합한, 환 구성 원자수 5 내지 20의 2가의 단환식 질소 함유 복소환기여도 된다.]

[0179] 상기 가열의 조건으로서, 중합 반응이 진행되는 한 특별히 제한되지 않지만, 부반응을 억제하는 등의 점에서, 가열 온도는, 바람직하게는 0 내지 150℃, 보다 바람직하게는 10 내지 130℃이고, 가열 시간은, 바람직하게는 0.5 내지 100시간, 보다 바람직하게는 1 내지 24시간이다.

[0180] 특히, 착색이 적은 본 중합체가 얻어지는 등의 점에서, 가열 온도는, 바람직하게는 약 40 내지 110℃, 가열 시간은 4 내지 24시간이고, 추가로 저분자량 성분이 적은 고분자량의 본 중합체가 얻어지는 등의 점에서, 가열 온도는, 보다 바람직하게는 50 내지 100℃이다.

[0181] 상기 식 (A)로 표시되는 화합물과, 상기 식 (B) 및 (C)로 표시되는 화합물의 합계와의 사용 비율은, 식 (A)로 표시되는 화합물, 식 (B)로 표시되는 화합물 및 식 (C)로 표시되는 화합물의 합계를 100몰%로 한 경우에, 식 (A)로 표시되는 화합물이, 바람직하게는 30몰% 이상 70몰% 이하, 보다 바람직하게는 35몰% 이상 60몰% 이하, 더욱 바람직하게는 35몰% 이상 55몰% 이하이고, 식 (B) 및 (C)로 표시되는 화합물이, 바람직하게는 30몰% 이상 70몰% 이하, 보다 바람직하게는 40몰% 이상 65몰% 이하, 더욱 바람직하게는 40몰% 이상 65몰% 미만이다.

[0182] 상기 식 (A)로 표시되는 화합물은, 1종을 사용해도 되고, 2종 이상을 사용해도 된다. 또한, 상기 식 (B)로 표시되는 화합물도, 1종을 사용해도 되고, 2종 이상을 사용해도 되고, 상기 식 (C)로 표시되는 화합물도, 1종을 사용해도 되고, 2종 이상을 사용해도 된다.

[0183] 상기 알칼리 금속 화합물로서는, 예를 들어 리튬, 칼륨, 나트륨 등의 알칼리 금속; 수소화 리튬, 수소화 칼륨, 수소화 나트륨 등의 수소화 알칼리 금속; 수산화리튬, 수산화칼륨, 수산화나트륨 등의 수산화 알칼리 금속; 탄산리튬, 탄산칼륨, 탄산나트륨 등의 알칼리 금속 탄산염; 탄산수소리튬, 탄산수소칼륨, 탄산수소나트륨 등의 알칼리 금속 탄산수소염; 나트륨에톡시드 등의 알칼리 금속 알콕시드; 아세트산 나트륨, 아세트산칼륨 등의 알칼리 금속 아세트산염; 산화리튬 등의 산화 알칼리 금속; 인산삼리튬, 인산삼나트륨, 인산삼칼륨 등의 알칼리 금속 인산염; 불화세슘 등의 알칼리 금속 불화물을 들 수 있다. 이들 중에서도, 탄산칼륨, 수산화칼륨, 탄산나트륨, 수산화나트륨, 탄산수소나트륨, 나트륨에톡시드, 아세트산 나트륨, 탄산리튬, 수산화리튬, 산화리튬, 아세트산칼륨, 인산삼리튬, 인산삼나트륨, 인산삼칼륨, 불화세슘 등이 바람직하다.

[0184] 상기 알칼리 금속 화합물은, 1종을 사용해도 되고, 2종 이상을 사용해도 된다.

[0185] 또한, 상기 반응 시에는, 유기 염기를 사용해도 되고, 구체적으로는, 암모니아, 트리메틸아민, 트리에틸아민, 디이소프로필 메틸아민, 디이소프로필에틸아민, N-메틸피페리딘, 2,2,6,6-테트라메틸-N-메틸피페리딘, 피리딘, 4-디메틸아미노피리딘, N-메틸모르폴린 등을 들 수 있다.

[0186] 해당 유기 염기는, 1종을 사용해도 되고, 2종 이상을 사용해도 된다.

[0187] 알칼리 금속 화합물의 사용량으로서, 상기 식 (B) 및 (C)로 표시되는 화합물중의 1개의 -NH-R'에 대하여, 알칼리 금속 화합물중의 알칼리 금속 원자의 양이, 통상 1 내지 3배 당량, 바람직하게는 1 내지 2.5배 당량, 보다 바람직하게는 1.1 내지 2.0배 당량이 되는 양으로 사용된다.

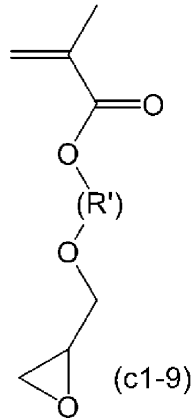
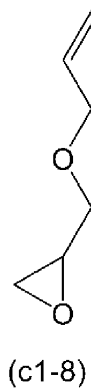
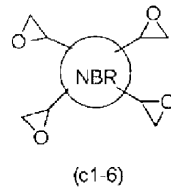
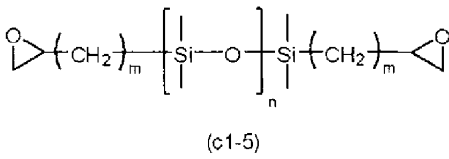
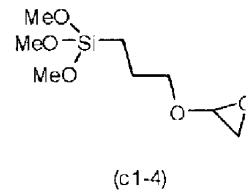
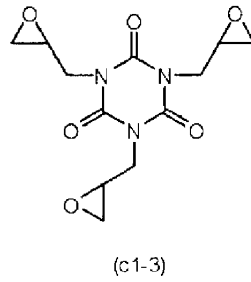
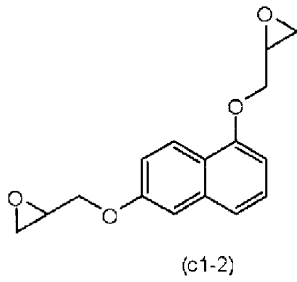
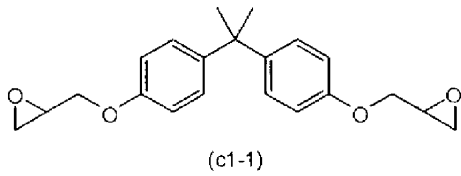
[0188] <<다른 성분>>

[0189] 본 조성물은, 본 발명의 효과를 손상시키지 않는 범위이며, 추가로 중합체 (1) 이외의 다른 성분을 함유하고 있어도 된다.

[0190] 해당 다른 성분으로서, 예를 들어 경화성 화합물 (C), 경화 보조제 (D), 반응성 희석제, 용제, 필러, 산화 방

지제, 강화제, 활제, 난연제, 향균제, 착색제, 이형제, 발포제, 중합체 (1) 및 경화성 화합물 (C) 이외의 기타 중합체(예: 폴리이미드, 폴리아틸렌, 에스테르 수지, 페녹시 수지, 페놀 수지, (메트)아크릴산 에스테르계 수지, 폴리스티렌 수지, 수소 첨가 스티렌부타디엔 스티렌 공중합체, 수소 첨가 스티렌이소프렌 스티렌 공중합체 등의 고무상 수지 등의 공지된 중합체)를 들 수 있다.

- [0191] 이들 다른 성분은 각각, 1종 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 사용해도 된다.
- [0192] <경화성 화합물 (C)>
- [0193] 본 조성물은, 경화성 화합물 (C)(이하 「화합물 (C)」라고도 한다.)를 포함하고 있어도 되고, 내약품성이 우수한 경화물을 용이하게 형성할 수 있는 등의 점에서, 화합물 (C)를 포함하는 것이 바람직하다. 또한, 화합물 (C)는 본 중합체 이외의 화합물이다.
- [0194] 상기 본 중합체는, 화합물 (C)와의 상용성이 우수하기 때문에, 침전이나 상분리가 없는 본 조성물을 용이하게 얻을 수 있다.
- [0195] 본 조성물이 화합물 (C)를 포함하는 경우, 본 조성물 중에 포함되는 화합물 (C)는, 1종이어도 되고, 2종 이상이어도 된다.
- [0196] 경화성 화합물 (C)는, 열이나 광(예: 가시광, 자외선, 근적외선, 원적외선, 전자선)의 조사에 의해 경화하는 화합물이며, 후술하는 경화 보조제 (D)를 필요로 하는 것이어도 된다. 이러한 화합물 (C)로서는, 예를 들어 에폭시 화합물, 시아네이트에스테르 화합물, 비닐 화합물, 실리콘 화합물, 옥사진 화합물, 말레이미드 화합물, 알릴 화합물, 옥세탄 화합물, 메틸올 화합물, (메트)아크릴 화합물, 옥사졸린 화합물, 우레탄 화합물, 프로파르길 화합물을 들 수 있다. 이들 중에서도, 중합체 (1)과의 상용성, 내열성 등의 특성상의 점에서, 특히, 에폭시 화합물, 시아네이트에스테르 화합물, 비닐 화합물, 실리콘 화합물, 옥사진 화합물, 말레이미드 화합물, 알릴 화합물, 옥세탄 화합물, 메틸올 화합물, (메트)아크릴 화합물, 옥사졸린 화합물 및 프로파르길 화합물로 이루어지는 군에서 선택되는 적어도 1종인 것이 바람직하다.
- [0197] 또한, (메트)아크릴 화합물은, 아크릴 화합물 및/또는 메타크릴 화합물을 한다.
- [0198] 상기 에폭시 화합물로서는, 에폭시기를 갖는 화합물이며, 에폭시기를 2개 이상 갖거나, 또는 에폭시기와 다른 반응성기를 합계로 2개 이상 갖는 2관능 이상의 다관능 에폭시 화합물을 들 수 있고, 구체예로서는, 하기 식 (c1-1) 내지 (c1-9)로 표시되는 에폭시 화합물을 들 수 있다. 상기 다른 반응성기로서는, 예를 들어 알콕시실릴기, 프로파르길기, (메트)아크릴기를 들 수 있다.
- [0199] 또한, 하기 식 (c1-6)으로 표시되는 화합물로서는, 예를 들어 JSR(주)제의 에폭시기 함유 NBR 입자 「XER-81」을 들 수 있다.
- [0200] 상기 에폭시 화합물로서는 또한, 디시클로펜타디엔·페놀 중합물의 폴리글리시딜에테르, 페놀노볼락형 액상 에폭시 화합물, 크레졸 노볼락형 에폭시 화합물, 스티렌-부타디엔 블록 공중합체의 에폭시화물, 3',4'-에폭시시클로헥실메틸-3,4-에폭시 시클로헥산카르복실레이트 등도 들 수 있다.



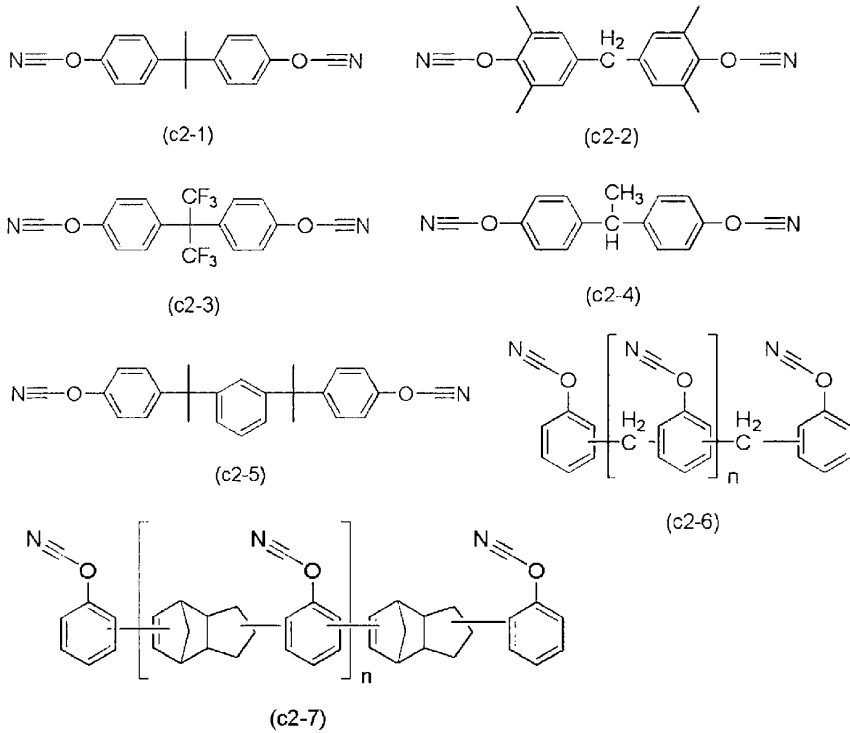
[0201]

[0202]

[식 (c1-5) 중, n은 0 내지 5000이고, m은 독립적으로, 0 내지 5000이다. 식 (c1-9) 중, R'는 탄소수 2 내지 10의 알킬렌기이다.]

[0203]

상기 시아네이트에스테르 화합물로서는, 예를 들어 하기 식 (c2-1) 내지 (c2-7)로 표시되는 화합물을 들 수 있다.



[0204]

[0205]

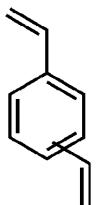
[0206]

[0207]

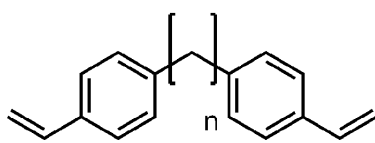
[식 (c2-6) 및 (c2-7) 중, n은 독립적으로, 0 내지 30이다.]

상기 비닐 화합물로서는, 예를 들어 하기 식 (b-1-1) 내지 (b-1-5)로 표시되는 화합물을 들 수 있다.

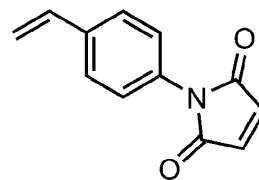
상기 비닐 화합물로서는 또한, 스티렌계 열가소성 엘라스토머로서, 스티렌부타디엔 스티렌 공중합체(SBS), 스티렌이소프렌 스티렌 공중합체(SIS), 스티렌부타디엔엘라스토머(SBR), tert-부틸스티렌, 2-비닐-4,6-디아미노-1,3,5-트리아진 등의 비닐기를 함유하는 화합물, TA100(미쯔비시 가스 가가꾸(주)제), ULL-950S(LONZA사제) 등도 들 수 있다.



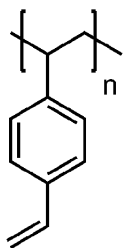
b-1-1



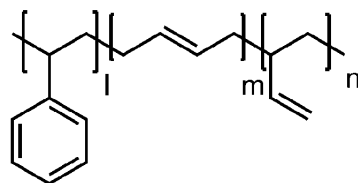
b-1-2



b-1-3



b-1-4



b-1-5

[0208]

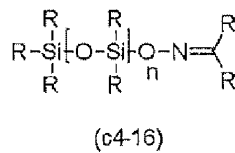
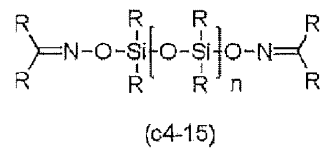
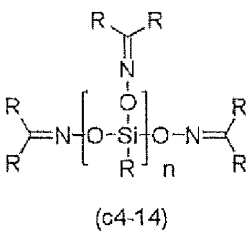
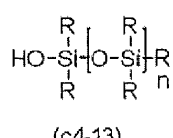
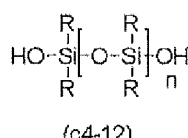
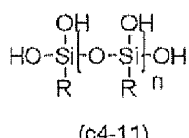
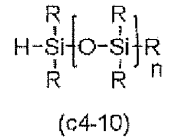
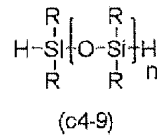
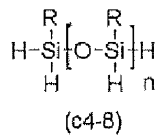
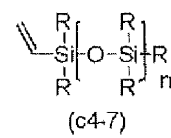
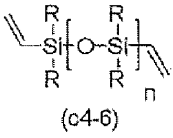
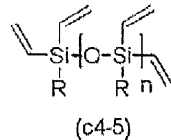
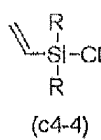
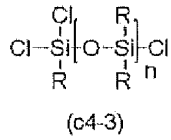
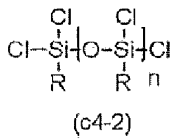
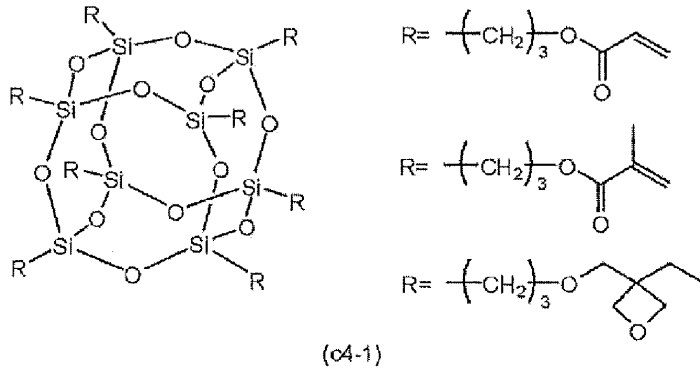
[0209]

[0210]

[식 (b-1-2) 및 (b-1-4) 중, n은 독립적으로, 1 내지 5000이다. 식 (b-1-5) 중, l, m 및 n은 각각 독립적으로, 1 내지 5000이다.]

상기 실리콘 화합물로서는, 예를 들어 하기 식 (c4-1) 내지 (c4-16)으로 표시되는 화합물을 들 수 있다. 또한,

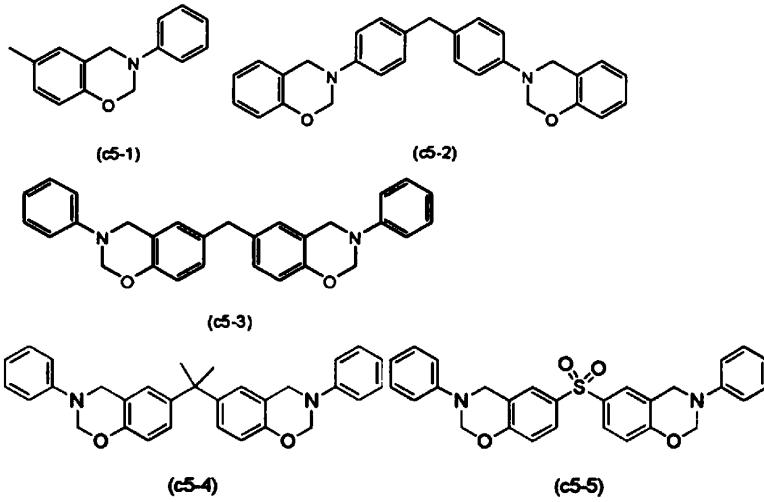
식 (c4-1)에 있어서의 R로서는, 하기의 어느 것이 선택되어, 아크릴로일기를 갖는 기가 선택되는 경우에는, 상기 아크릴 화합물로서 취급할 수도 있고, 메타크릴로일기를 갖는 기가 선택되는 경우에는, 상기 메타크릴 화합물로서 취급할 수도 있고, 옥세탄기를 갖는 기가 선택되는 경우에는, 상기 옥세탄 화합물로서 취급할 수도 있다. 또한, 식 (c4-2) 내지 (c4-16)에 있어서, R은 각각 독립적으로, 알킬기, 지환식 포화 탄화수소기, 아릴기 및 알케닐기에서 선택되는 유기기이고, n은 0 내지 1000의 정수(바람직하게는 0 내지 100의 정수)이다. 상기 알킬기, 지환식 포화 탄화수소기, 아릴기 및 알케닐기로서는, 각각, 상기 식 (1)의 R¹, R¹ 및 R²의 설명에 있어서 예시한 기와 마찬가지로인 기 등을 들 수 있다.



[0211]

[0212]

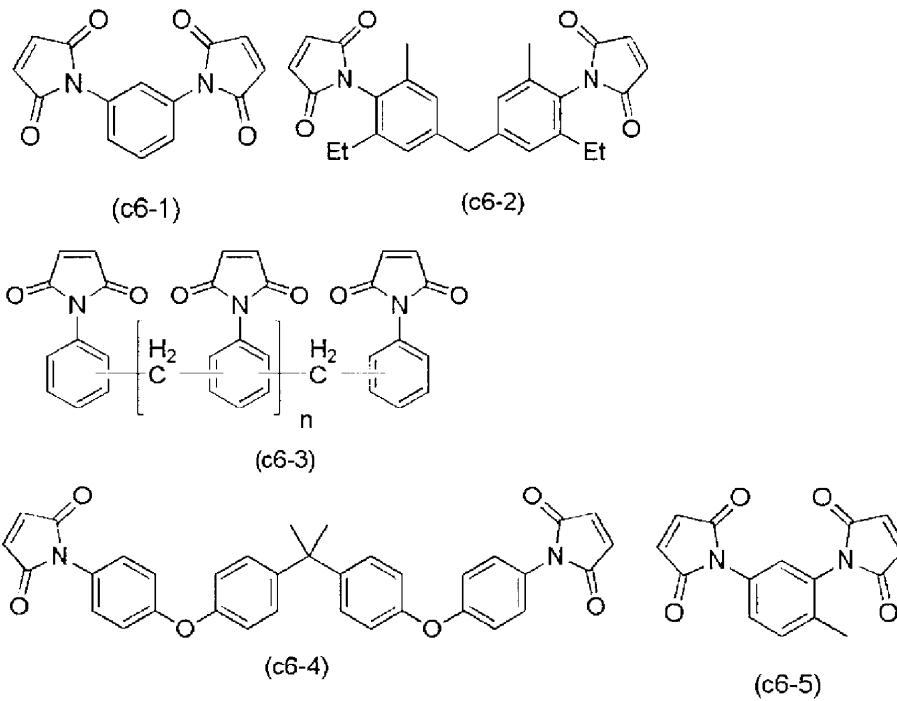
상기 옥사진 화합물로서는, 예를 들어 하기 식 (c5-1) 내지 (c5-5)로 표시되는 화합물, 2,2-비스(3,4-디히드로-3-메틸-2H-1,3-벤조옥사진)프로판을 들 수 있다.



[0213]

[0214]

상기 말레이미드 화합물로서는, 예를 들어 하기 식 (c6-1) 내지 (c6-5)로 표시되는 화합물을 들 수 있다.



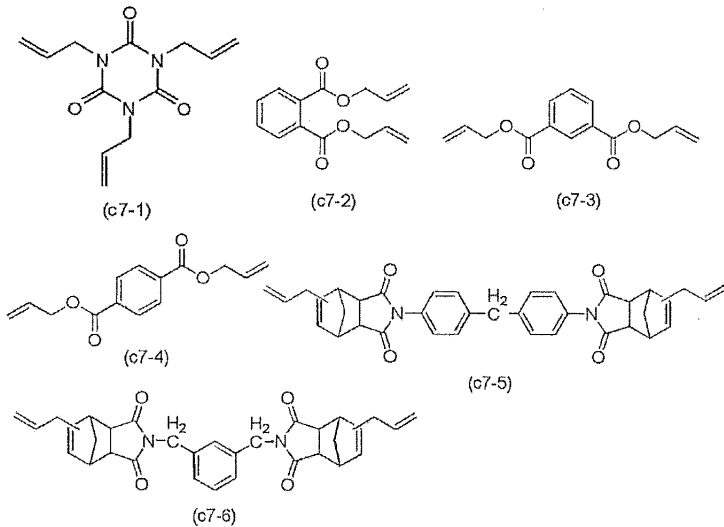
[0215]

[0216]

[식 (c6-2) 중, Et는 에틸기이고, 식 (c6-3) 중, n은 0 내지 30이다.]

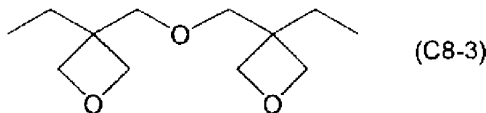
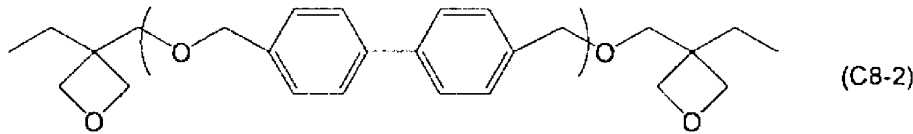
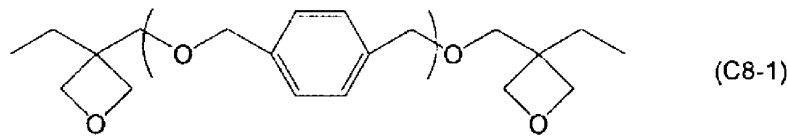
[0217]

상기 알릴 화합물로서는, 예를 들어 하기 식 (c7-1) 내지 (c7-6)으로 표시되는 화합물을 들 수 있다. 특히, 이 알릴화합물로서는, 2개 이상(특히 2 내지 6, 나아가 2 내지 3)의 알릴기를 갖는 화합물이 바람직하다.



[0218]

[0219] 상기 옥세탄 화합물로서는, 예를 들어 하기 식 (c8-1) 내지 (c8-3)으로 표시되는 화합물, 메타크릴산(3-에틸옥세탄-3-일)메틸을 들 수 있다.



[0220]

[0221] [식 (c8-1) 및 (c8-2) 중, 괄호로 묶은 반복 단위의 반복 단위수는 각각 독립적으로, 0 내지 30이다.]

[0222] 상기 메틸올 화합물로서는, 예를 들어 일본 특허공개 제2006-178059호 공보 및 일본 특허공개 제2012-226297호 공보에 기재된 메틸올 화합물을 들 수 있다. 구체적으로는, 예를 들어 폴리메틸올화 멜라민, 2,4,6-트리스[비스(메톡시메틸)아미노]-1,3,5-트리아진, 헥사메톡시메틸멜라민, 헥사프로폭시메틸멜라민, 헥사부톡시메틸멜라민 등의 멜라민계 메틸올 화합물; 폴리메틸올화 글리콜우릴, 테트라메톡시메틸글리콜우릴, 테트라부톡시메틸글리콜우릴 등의 글리콜우릴계 메틸올 화합물; 3,9-비스[2-(3,5-디아미노-2,4,6-트리아자페닐)에틸]-2,4,8,10-테트라옥소스피로[5.5]운데칸, 3,9-비스[2-(3,5-디아미노-2,4,6-트리아자페닐)프로필]-2,4,8,10-테트라옥소스피로[5.5]운데칸 등의 구아나민을 메틸올화한 화합물 및 당해 화합물중의 활성 메틸올기의 전부 또는 일부를 알킬에테르화한 화합물 등의 구아나민계 메틸올 화합물을 들 수 있다.

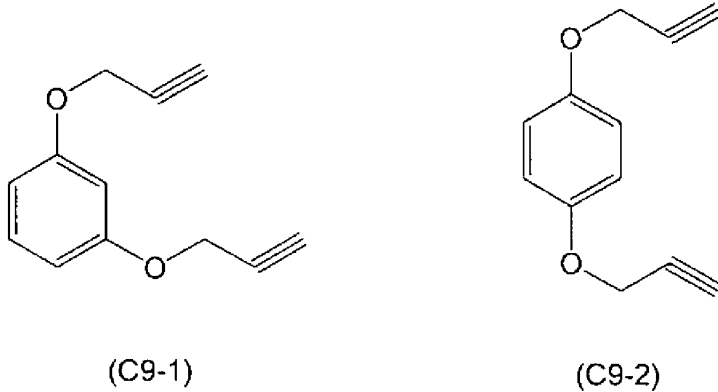
[0223]

상기 (메트)아크릴 화합물로서는, 예를 들어 트리메틸올프로판디(메트)아크릴레이트, 트리메틸올프로판트리(메트)아크릴레이트, 트리메틸올프로판PO(프로필렌 옥사이드) 변성 트리(메트)아크릴레이트, 테트라메틸올프로판테트라(메트)아크릴레이트, 에틸렌글리콜디(메트)아크릴레이트, 테트라에틸렌글리콜디(메트)아크릴레이트, 폴리에틸렌글리콜디(메트)아크릴레이트, 1,4-부탄디올디(메트)아크릴레이트, 1,6-헥산디올디(메트)아크릴레이트, 프로필렌글리콜디(메트)아크릴레이트, 부틸렌글리콜디(메트)아크릴레이트, 네오펜틸글리콜디(메트)아크릴레이트, 트리스(2-히드록시에틸)이소시아누레이트디(메트)아크릴레이트, 트리스(2-히드록시에틸)이소시아누레이트 트리(메트)아크릴레이트, 트리스클로에탄디메탄올디(메트)아크릴레이트, 비스페놀 A의 디글리시딜에테르에 (메트)아크릴산을 부가시킨 에폭시(메트)아크릴레이트, 비스페놀 A 디(메트)아크릴로일옥시에틸에테르, 비스페놀 A 디(메

트)아크릴로일옥시메틸에틸에테르, 비스페놀 A 디(메트)아크릴로일옥시에틸옥시에틸에테르, 펜타에리트리톨트리(메트)아크릴레이트, 펜타에리트리톨테트라(메트)아크릴레이트, 디펜타에리트리톨펜타(메트)아크릴레이트, 디펜타에리트리톨헥사(메트)아크릴레이트, 1,9-비스((메트)아크릴로일옥시)노난, 폴리에스테르(메트)아크릴레이트(3관능 이상)를 들 수 있다.

[0224] 상기 옥사졸린 화합물로서는, 2,2'-비스(2-옥사졸린), 1,4-비스(4,5-디히드로-2-옥사졸린)벤젠, 1,3-비스(4,5-디히드로-2-옥사졸린)벤젠을 들 수 있다.

[0225] 상기 프로파르길 화합물로서는, 예를 들어 하기 식 (c9-1) 내지 (c9-2)로 표시되는 화합물을 들 수 있다.



[0226]

[0227] 본 조성물이 화합물 (C)를 함유하는 경우, 화합물 (C)의 함유 비율은, 화합물 (C) 및 본 중합체의 합계 100질량%에 대하여, 바람직하게는 1질량% 이상, 보다 바람직하게는 5질량% 이상, 더욱 바람직하게는 10질량% 이상이고, 바람직하게는 99질량% 이하, 보다 바람직하게는 95질량% 이하, 더욱 바람직하게는 90질량% 이하이다.

[0228] 화합물 (C)의 함유 비율이 상기 범위에 있으면, 본 조성물의 경화물 인성, 내열성, 내약품성을 보다 향상시킬 수 있는 등의 점에서 바람직하다.

[0229] <경화 보조제 (D)>

[0230] 본 조성물은, 필요에 따라 경화 보조제 (D)를 함유하고 있어도 된다.

[0231] 경화 보조제 (D)로서는, 예를 들어 경화제, 열반응 개시제(예:열 라디칼 발생제, 열산 발생제, 열 염기 발생제), 광반응 개시제(예: 광 라디칼 발생제, 광 산 발생제, 광 염기 발생제) 등의 중합 개시제를 들 수 있다.

[0232] 경화 보조제 (D)는, 1종 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 사용해도 된다.

[0233] 화합물 (C)로서 에폭시 화합물을 사용하는 경우에 있어서의 경화 보조제 (D)로서는, 예를 들어 아민계 경화제, 산계 또는 산 무수물계 경화제, 염기성 활성 수소 화합물, 이미다졸류, 폴리머캡탄계 경화제, 페놀 수지, 우레아 수지, 멜라민 수지, 이소시아네이트계 경화제, 루이스산 등의 경화제를 들 수 있다.

[0234] 상기 아민계 경화제로서는, 예를 들어 에틸렌디아민, 디에틸렌트리아민, 트리에틸렌테트라민, 테트라에틸렌펜타민, 헥사메틸렌디아민, 이미노비스프로필아민, 비스(헥사메틸렌)트리아민, 1,3,6-트리아미노메틸헥산 등의 폴리아민; 벤센디아민(MDA), 이소포론디아민(IPDA), 비스(4-아미노-3-메틸시클로헥실)메탄, 디아미노디시클로헥실메탄, 비스아미노메틸시클로헥산, 3,9-비스(3-아미노프로필)-2,4,8,10-테트라옥사스피로[5.5]운데칸, 미쓰이 가가쿠(주)제의 NBDA에 대표되는 노르보르난 골격의 디아민 등의 환상 지방족 폴리아민; 메타크실릴렌디아민(MXDA) 등의 방향환을 포함하는 지방족 폴리아민; 메타페닐렌디아민, 디아미노디페닐메탄, 디아미노디페닐술폰, 디아미노에틸디페닐메탄 등의 방향족 폴리아민 및 이들의 유도체를 들 수 있다.

[0235] 또한, 다른 아민계 경화제로서, 예를 들어 폴리아민에 알데히드 및/또는 페놀류를 반응시킴으로써 얻어지는 만니히 변성 아민; 아민 어덕트(폴리아민에폭시 수지 어덕트), 폴리아민-에틸렌옥시드 어덕트, 폴리아민-프로필렌옥시드 어덕트, 시아노에틸화 폴리아민, 지방족 폴리아민과 케톤과의 반응물인 케티민; 테트라메틸구아니딘, 트리에탄올아민, 피페리딘, 피리딘, 4-디메틸아미노피리딘, 벤질디메틸아민, 피콜린, 2-(디메틸아미노메틸)페놀, 디메틸시클로헥실아민, 디메틸벤질아민, 디메틸헥실아민, 디메틸아미노페놀, 디메틸아미노-p-크레졸, N,N'-디메틸피페라진, 1,4-디아자비스클로[2.2.2]옥탄, 2,4,6-트리스(디메틸아미노메틸)페놀, 1,8-디아자비스클로[5.4.0]-7-운데센 등의 제2급 아민류 또는 제3급 아민류; 다이머산과, 디에틸렌트리아민, 트리에틸렌테트라민

등의 폴리아민을 반응시켜 이루어지는 액체 폴리아미드를 들 수 있다.

- [0236] 상기 산계 또는 산 무수물계 경화제로서는, 예를 들어 아디프산, 아젤라산, 데칸디카르복실산 등의 폴리카르복실산; 무수 프탈산, 무수 트리멜리트산, 에틸렌글리콜비스(안히드로트리멜리테이트), 글리세롤트리스(안히드로트리멜리테이트), 무수 피로멜리트산, 3,3',4,4'-벤조페논테트라카르복실산 무수물 등의 방향족 산 무수물; 무수 말레산, 무수 숙신산, 테트라히드로 무수 프탈산, 메틸테트라히드로 무수 프탈산, 무수 메틸나드산, 알케닐 무수 숙신산, 헥사히드로 무수 프탈산, 메틸헥사히드로 무수 프탈산, 메틸시클로헥센 테트라카르복실산 무수물, 무수 메틸하이믹산, 트리알킬 테트라히드로 무수 프탈산, 폴리(페닐헥사데칸이산)무수물 등의 환상 지방족 산 무수물; 폴리아디프산 무수물, 폴리아젤라산 무수물, 폴리세바스산 무수물, 도데세닐 무수 숙신산, 폴리(에틸옥타데칸이산)무수물 등의 지방족 산 무수물; 클로렌드산 무수물, 테트라브로모 무수 프탈산 등의 할로겐화 산 무수물 등을 들 수 있다.
- [0237] 상기 염기성 활성 수소 화합물로서는, 예를 들어 디시안디아미드, 유기산 디히드라지드를 들 수 있다.
- [0238] 상기 이미다졸류로서는, 예를 들어 2-메틸이미다졸, 2-에틸-4-메틸이미다졸, 2-운데실이미다졸, 2-헵타데실이미다졸, 2-페닐이미다졸, 1-벤질-2-메틸이미다졸, 1-시아노에틸-2-메틸이미다졸, 1-시아노에틸-2-에틸-4-메틸이미다졸, 2-메틸이미다졸류이소시아누레이드, 2,4-디아미노-6-[2-메틸이미다졸린(1)]-에틸-S-트리아진, 2,4-디아미노-6-[2-에틸-4-메틸이미다졸린(1)]-에틸-S-트리아진을 들 수 있다.
- [0239] 상기 폴리머캡탄계 경화제로서는, 예를 들어 2,2'-비스머캡토에틸에테르의 부분 에폭시 부가물; 펜타에리트리톨 테트라티오글리콜레이트, 디펜타에리트리톨헥사티오글리콜레이트, 트리메틸올프로판트리스티오글리콜레이트 등의 티오글리콜산의 에스테르; 말단에 머캡토기를 갖는 폴리술퍼드 고무 등의 머캡토기를 포함하는 화합물을 들 수 있다.
- [0240] 상기 이소시아네이트계 경화제로서는, 예를 들어 톨루엔다이소시아네이트, 헥사메틸렌다이소시아네이트, 크실렌다이소시아네이트 등의 이소시아네이트 화합물; 이소시아네이트기를, 페놀, 알코올, 카프로락탐 등의 블록화제와 반응시켜서 마스크해서 이루어지는 블록 이소시아네이트 화합물을 들 수 있다.
- [0241] 상기 루이스산으로서는, 예를 들어 디아릴요도늄염, 트리아릴술포늄염을 들 수 있다.
- [0242] 또한, 화합물 (C)로서 에폭시 화합물을 사용하는 경우에 있어서의 경화 보조제 (D)로서는, 오늄염 화합물, 술폰 화합물, 술폰산 에스테르 화합물, 술폰이미드 화합물, 디술폰닐디아조메탄 화합물, 디술폰닐메탄 화합물, 옥심술포네이트 화합물, 히드라진술포네이트 화합물, 트리아진 화합물, 니트로벤질 화합물 외에, 유기 할로겐화물류, 디술폰 등의 광 산 발생제를 사용할 수도 있다.
- [0243] 또한, 화합물 (C)로서 에폭시 화합물을 사용하는 경우에 있어서의 경화 보조제 (D)로서는, (Z)-{비스(디메틸아미노)메틸리덴}아미노-N-시클로헥실(시클로헥실아미노)메탄아미늄=테트라키스(3-플루오로페닐)보레이트, 1,2-디시클로헥실-4,4,5,5-테트라메틸비구아니딘=n-부틸트리페닐보레이트, 9-안트릴메틸=N,N-디에틸카르바메이트, (E)-1-[3-(2-히드록시페닐)-2-프로페노일]피페리딘, 1-(안트라퀴논-2-일)에틸=이미다졸카르복실레이트, 2-니트로페닐메틸-4-메타크릴로일옥시피페리딘-1-카르복실레이트, 1,2-디이소프로필-3-[비스(디메틸아미노)메틸렌]구아니디늄=2-(3-벤조일페닐)프로피오네이트 등의 광 염기 발생제 등을 사용할 수도 있다.
- [0244] 화합물 (C)로서 시아네이트에스테르 화합물을 사용하는 경우에 있어서의 경화 보조제 (D)로서는, 예를 들어 옥틸산아연, 나프텐산아연, 나프텐산코발트, 나프텐산구리, 아세틸아세톤철, 옥틸산니켈, 옥틸산망간 등의 유기 금속염류, 페놀, 크실레놀, 크레졸, 레조르신, 카테콜, 옥틸페놀, 노닐페놀 등의 페놀 화합물, 1-부탄올, 2-에틸헥산을 등의 알코올류, 2-메틸이미다졸, 2-에틸-4-메틸이미다졸, 2-페닐이미다졸, 1-벤질-2-메틸이미다졸, 1-시아노에틸-2-페닐이미다졸, 1-시아노에틸-2-에틸-4-메틸이미다졸, 2-페닐-4,5-디히드록시메틸이미다졸, 2-페닐-4-메틸-5-히드록시메틸이미다졸 등의 이미다졸류 및 이들 이미다졸류의 카르복실산 혹은 산 무수물류의 부가체 등의 유도체, 벤질디메틸아민, 4-메틸-N,N-디메틸벤질아민 등의 아민류, 포스핀계 화합물, 포스핀옥사이드계 화합물 등의 인 화합물을 사용할 수 있다.
- [0245] 나아가, 상기 에폭시 화합물을 사용하는 경우에 있어서의 경화 보조제 (D)로서 설명한, 광 산 발생제나 광 염기 발생제를 사용할 수도 있다.
- [0246] 화합물 (C)로서 비닐 화합물을 사용하는 경우에 있어서의 경화 보조제 (D)로서는, 양이온 또는 라디칼 활성종을, 열 또는 광에 의해 발생하는 화합물(중합제) 등을 들 수 있다. 양이온 중합제로서는, 예를 들어 디아릴요도늄염, 트리아릴술포늄염을 들 수 있다. 라디칼 중합제로서는, 예를 들어 벤조인 아세토페논 등의 벤

조인계 화합물, 2,2-디메톡시-2-페닐아세토페논 등의 아세토페논계 화합물, 2,4-디에틸티오크산톤 등의 황계 화합물, 아조비스이소부티로니트릴 등의 아조 화합물, 2,5-디메틸-2,5-디(t-부틸퍼옥시)헥산, 디쿠밀퍼옥사이드 등의 유기 과산화물을 들 수 있다.

[0247] 또한, 화합물 (C)로서 비닐 화합물을 사용하는 경우에 있어서의 경화 보조제 (D)로서는, 예를 들어 아세토페논, 프로피오페논, 벤조페논, 크산톤, 벤즈알데히드, 안트라퀴논, 트리페닐아민, 카르바졸, 3-메틸아세토페논, 4-메틸아세토페논, 3-펜틸아세토페논, 4-메톡시아세토펴, 3-브로모아세토페논, 4-알릴아세토페논, p-디아세틸벤젠, 3-메톡시벤조페논, 4-메틸벤조페논, 4-클로로벤조페논, 4,4'-디메톡시벤조페논, 4-클로로-4'-벤질벤조페논, 3-클로로크산톤, 3,9-디클로로크산톤, 3-클로로-8-노닐크산톤, 벤조인, 벤조인메틸에테르, 벤조인부틸에테르, 비스(4-디메틸아미노페닐)케톤, 벤질메톡시케탈, 2-클로로티오크산톤 등의 광 라디칼 발생제를 사용할 수도 있다.

[0248] 화합물 (C)로서 실리콘 화합물을 사용하는 경우에 있어서의 경화 보조제 (D)로서는, 예를 들어 백금족, 염화 제 2백금, 염화백금산, 염화백금산과 1가 알코올의 반응물, 염화백금산과 올레핀류의 착체, 백금 비스아세토아세테이트 등의 백금계 촉매; 팔라듐계 촉매; 로듐계 촉매; 등의 백금족 금속 촉매, 벤조산아연, 옥틸산아연을 사용할 수 있다.

[0249] 또한, 화합물 (C)로서 실리콘 화합물을 사용하는 경우에 있어서의 경화 보조제 (D)로서는, 예를 들어 아세토페논, 프로피오페논, 벤조페논, 크산톤, 벤즈알데히드, 안트라퀴논, 트리페닐아민, 카르바졸, 3-메틸아세토페논, 4-메틸아세토페논, 3-펜틸아세토페논, 4-메톡시아세토펴, 3-브로모아세토페논, 4-알릴아세토페논, p-디아세틸벤젠, 3-메톡시벤조페논, 4-메틸벤조페논, 4-클로로벤조페논, 4,4'-디메톡시벤조페논, 2,2'-디에톡시아세토페논, 4-클로로-4'-벤질벤조페논, 3-클로로크산톤, 3,9-디클로로크산톤, 3-클로로-8-노닐크산톤, 벤조인, 벤조인메틸에테르, 벤조인부틸에테르, 비스(4-디메틸아미노페닐)케톤, 벤질메톡시케탈, 2-클로로티오크산톤, 디에틸아세토펴, 1-히드록시시클로헥실페닐케톤, 2-메틸-1-{4-(메틸티오)페닐}-2-모르폴리노-1-온, 2-벤질-2-디메틸아미노-1-(4-모르폴리노페닐)-부타논-1-온, 1-{4-(2-히드록시에톡시)-페닐}-2-메틸-1-프로판-1-온, 2,2-디메톡시-2-페닐아세토펴, 2-히드록시-2-메틸-1-페닐-프로판-1-온, 시클로헥실페닐케톤 등의 광반응 개시제를 사용할 수도 있다.

[0250] 화합물 (C)로서 옥사진 화합물을 사용하는 경우에 있어서의 경화 보조제 (D)로서는, 예를 들어 페놀 및 그의 유도체, 시안산 에스테르, p-톨루엔술폰산 등의 브뢴스테드산, 아디프산, p-톨루엔술폰산에스테르, 4,4'-디아미노디페닐술폰, 멜라민 등의 방향족 아민 화합물, 2-에틸-4-메틸이미다졸 등의 염기, 삼불화붕소, 루이스산 등의 경화제를 사용할 수 있다.

[0251] 나아가, 상기 예폭시 화합물을 사용하는 경우에 있어서의 경화 보조제 (D)로서 설명한, 광 산 발생제나 광 염기 발생제를 사용할 수도 있다.

[0252] 화합물 (C)로서 말레이미드 화합물을 사용하는 경우에 있어서의 경화 보조제 (D)로서는, 예를 들어 이미다졸, 1-메틸이미다졸, 1-벤질-2-메틸이미다졸, 2-메틸이미다졸린, N,N-디이소프로필에틸아민, 1,4-디메틸피페라진, 퀴놀린, 트리아졸, 벤조트리아졸, DBU 등의 염기, 트리페닐포스핀 등의 인 화합물, 아조비스이소부티로니트릴 등의 경화제, 2,5-디메틸-2,5-디(t-부틸퍼옥시)헥산, 디쿠밀퍼옥사이드 등의 유기 과산화물을 사용할 수 있다.

[0253] 나아가, 상기 예폭시 화합물을 사용하는 경우에 있어서의 경화 보조제 (D)로서 설명한, 광 산 발생제나 광 염기 발생제를 사용할 수도 있다.

[0254] 화합물 (C)로서 알릴 화합물이나 프로파르길 화합물을 사용하는 경우에 있어서의 경화 보조제 (D)로서는, 예를 들어 아조비스이소부티로니트릴, 2,2'-아조비스 이소부티르산디메틸 등의 아조 개시제, 케톤퍼옥사이드, 퍼옥시케탈, 하이드로퍼옥사이드, 디알킬퍼옥사이드, 디아실퍼옥사이드, 퍼옥시디카르보네이트, 퍼옥시에스테르, 2,5-디메틸-2,5-디(t-부틸퍼옥시)헥산, 디쿠밀퍼옥사이드 등의 과산화물, 2-메틸-1-[4-(메틸티오)페닐]-2-모르폴리노프로판-1,1'-히드록시시클로헥실페닐케톤 등의 아세토페논계, 벤조인, 벤조인메틸에테르 등의 벤조인계, 벤조페논 등의 벤조페논계, 아실포스핀옥사이드 등의 인계, 티오크산톤 등의 황계, 벤질, 9,10-페난트렌퀴논 등의 벤질계, 퍼옥시카르보네이트계 등의 경화제를 사용할 수 있다.

[0255] 나아가, 상기 예폭시 화합물을 사용하는 경우에 있어서의 경화 보조제 (D)로서 설명한, 광 산 발생제나 광 염기 발생제를 사용할 수도 있다.

[0256] 화합물 (C)로서 옥세탄 화합물이나 메틸올 화합물을 사용하는 경우에 있어서의 경화 보조제 (D)로서는, 예를 들어 광 또는 열 양이온 발생제를 사용할 수 있다.

- [0257] 광 양이온 발생제로서는, 예를 들어 오늄염 화합물, 할로젠 함유 화합물, 술폰 화합물, 술폰산 화합물, 술폰이미드 화합물, 디아조메탄 화합물을 들 수 있다.
- [0258] 상기 오늄염 화합물, 할로젠 함유 화합물, 술폰 화합물, 술폰산 화합물, 술폰이미드 화합물 및 디아조메탄 화합물의 구체예로서는, 예를 들어 일본 특허공개 제2014-186300호 공보의 단락 [0074] 내지 [0079]에 기재된 화합물을 들 수 있다.
- [0259] 할로젠 함유 화합물에 대해서 구체예를 들면, 예를 들어 할로알킬기 함유 탄화수소 화합물, 할로알킬기 함유 복소환식 화합물을 들 수 있다. 바람직한 할로젠 함유 화합물의 구체예로서는, 1,10-디브로모-n-데칸, 1,1-비스(4-클로로페닐)-2,2,2-트리클로로에탄; 페닐-비스(트리클로로메틸)-s-트리아진, 4-메톡시페닐-비스(트리클로로메틸)-s-트리아진, 스티릴-비스(트리클로로메틸)-s-트리아진, 나프틸-비스(트리클로로메틸)-s-트리아진, 2-[2-(5-메틸푸란-2-일)에테닐]-4,6-비스-(트리클로로메틸)-1,3,5-트리아진 등의 s-트리아진 유도체를 들 수 있다.
- [0260] 상기 열 양이온 발생제로서는, 예를 들어 벤질(4-히드록시페닐)(메틸)술포늄=테트라키스(펜타플루오로페닐)보레이트, (4-히드록시페닐)(디메틸)술포늄=테트라키스(펜타플루오로페닐)보레이트, 4-아세톡시페닐(디메틸)술포늄=테트라키스(펜타플루오로페닐)보레이트, (4-히드록시페닐)메틸(4-메틸벤질)술포늄=테트라키스(펜타플루오로페닐)보레이트, 벤질(4-히드록시페닐)(메틸)술포늄=헥사플루오로포스페이트를 들 수 있다.
- [0261] 본 조성물이 경화 보조제 (D)를 함유하는 경우, 해당 경화 보조제 (D)의 함유 비율은, 본 조성물이 양호하게 경화하여, 경화물이 얻어지는 범위인 것이 바람직하다. 경화 보조제 (D)의 함유 비율은, 구체적으로는, 본 중합체 및 화합물 (C)의 합계 100질량부에 대하여, 통상 0.1질량부 이상 30질량부 이하, 바람직하게는 0.1질량부 이상 20질량부 이하, 보다 바람직하게는 0.1질량부 이상 15질량부 이하이다.
- [0262] <용제>
- [0263] 본 조성물은 필요에 따라 용제를 함유하고 있어도 된다.
- [0264] 상기 용제로서는, 예를 들어 N,N-디메틸아세트아미드, N,N-디메틸포름아미드, N-메틸-2-피롤리돈, N-에틸-2-피롤리돈, 1,3-디메틸-2-이미다졸리디논 등의 아미드계 용제; γ -부티로락톤, 아세트산 부틸 등의 에스테르계 용제; 시클로펜타논, 시클로헥사논, 메틸에틸케톤, 벤조페논 등의 케톤계 용제, 1,2-메톡시에탄, 디페닐에테르, 테트라히드로푸란, 4-메틸테트라히드로피란, 디옥산 등의 에테르계 용제, 1-메톡시-2-프로판올, 프로필렌글리콜 메틸에테르아세테이트 등의 다관능성 용제; 술포란, 디메틸술포사이드, 디에틸술포사이드, 디메틸술폰, 디에틸술폰, 디이소프로필 술폰, 디페닐술폰 등의 술폰계 용제; 염화메틸렌, 벤젠, 톨루엔, 크실렌, 디알콕시벤젠(알콕시기의 탄소수; 1 내지 4), 트리알콕시벤젠(알콕시기의 탄소수; 1 내지 4)을 들 수 있다.
- [0265] 이들의 용제는, 1종 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 사용해도 된다.
- [0266] 본 조성물 중의 용제 함유 비율은 특별히 한정되지 않지만, 예를 들어 본 중합체 및 화합물 (C)의 합계 100질량부에 대하여, 바람직하게는 0질량부 이상 2000질량부 이하, 보다 바람직하게는 0질량부 이상 1000질량부 이하이다.
- [0267] <필러>
- [0268] 본 조성물은, 필요에 따라 필러를 함유하고 있어도 된다.
- [0269] 본 조성물에 포함되는 본 중합체는 트리아진환 구조를 갖기 때문에, 평면적 또한 파이 전자 상호 작용이 강한 구조를 갖는다. 이것에 의해, 본 중합체는 필러 등으로의 배위 능력이 높다고 생각된다. 또한, 주쇄의 일부에 다이머 디아민에서 유래하는 구조를 갖고 있고, 유연한 긴 주쇄가 필러 등의 입자 표면이나 입자 간극에 추종할 수 있는 것으로 생각되기 때문에, 본 조성물이 필러를 포함하는 경우, 해당 필러의 분산성이 우수한 조성물을 용이하게 얻을 수 있을 것으로 생각된다. 이와 같이, 본 중합체는 배위능과 분산성이 우수하고, 분산 안정성도 우수하다고 생각되기 때문에, 양호한 분산제로서도 기능한다고 생각된다.
- [0270] 상기 필러로서는, 종래 공지된 필러를 사용할 수 있고, 본 조성물의 용도에 따라, 종래 공지된 필러로부터 적절히 선택하면 된다.
- [0271] 필러는 1종 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 사용해도 된다.
- [0272] 상기 필러로서는, 예를 들어 금속, 탄소, 금속 탄화물, 금속 산화물 및 금속 질화물 로 이루어지는 군에서 선택

되는 적어도 1종을 들 수 있고, 금속 산화물, 금속 질화물이 바람직하다.

- [0273] 금속 산화물의 예로서는, 산화마그네슘, 산화알루미늄(알루미나), 산화규소(중실 실리카, 중공 실리카), 산화칼슘, 산화아연, 산화이트륨, 산화지르코늄, 산화세륨, 산화이트레튬, 사이알론(규소, 알루미늄, 산소, 질소를 포함하는 세라믹스)을 들 수 있다.
- [0274] 금속 질화물의 예로서는, 질화붕소, 질화알루미늄, 질화규소를 들 수 있다.
- [0275] 필터의 형상에 대해서는 특별히 제한되지 않고, 입자상, 위스커상, 섬유상, 판상, 또는 이들의 응집체여도 된다.
- [0276] 필터의 시판품으로서, (주) 애드마텍스제 애드마파인 SC2500-SQ 등의 말단에 실라놀기(-SiOH)를 갖는 실리카, 동사제 애드마파인 SC2500-SXJ 등의 아미노페닐기를 갖는 실리카, 동사제 애드마파인 SC2500-SPJ 등의 페닐기를 갖는 실리카, 덴카(주)제 XGP, SGP, MGP 등의 질화붕소분, 쇼와 덴코(주)제 UHP-1K, UHP-2K 등의 질화붕소분, 덴카(주)제 DAW-01, DAW-01DC, DAW-03, DAW-05 등의 구상 알루미늄 나노 입자, 쇼와 덴코(주)제 CB-P02, CB-P05, CB-P07 등의 구상 알루미늄 나노 입자를 들 수 있고, 이들 중에서도 애드마파인 SC2500-SQ, 애드마파인 SC2500-SPJ를 바람직하게 사용할 수 있다.
- [0277] 본 조성물이 필터를 함유하는 경우, 해당 필터의 함유 비율은, 본 조성물의 용도에 따라서 적절히 선택하면 되지만, 본 중합체 100질량부에 대하여, 바람직하게는 0.1 내지 10000질량부, 보다 바람직하게는 10 내지 9000질량부이다.
- [0278] <반응성 희석제>
- [0279] 본 조성물은, 필요에 따라 반응성 희석제를 함유하고 있어도 된다. 해당 반응성 희석제로서는, 상기 경화성 화합물 (C)와 반응하는 액상의 화합물이며, 조성물로 했을 때에 다른 성분을 용해하는 것이거나, 또는 균일하게 혼합되는 것이 바람직하다. 이러한 반응성 희석제로서는, 본 조성물의 경화성 화합물 (C)의 종류에 따라, 종래 공지된 반응성 희석제로부터 적절히 선택하면 된다.
- [0280] 반응성 희석제는, 1종 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 사용해도 된다.
- [0281] 상기 반응성 희석제로서는, 예를 들어 경화성 화합물 (C)가 에폭시 화합물이면, 에폭시와 용이하게 반응할 수 있는 단관능의 액상 에폭시 화합물, 액상의 산 무수물 등을 사용할 수 있다.
- [0282] 본 조성물이 반응성 희석제를 함유하는 경우, 해당 반응성 희석제의 함유 비율은, 본 조성물의 용도에 따라서 적절히 선택하면 되지만, 경화성 화합물 (C) 100질량부에 대하여, 바람직하게는 20 내지 150질량부, 보다 바람직하게는 50 내지 120질량부이다.
- [0283] <산화 방지제>
- [0284] 상기 산화 방지제로서는, 예를 들어 힌더드 페놀계 화합물, 인계 화합물, 황계 화합물, 금속계 화합물, 힌더드 아민계 화합물을 들 수 있다. 이들 중에서도, 힌더드 페놀계 화합물이 바람직하다.
- [0285] 산화 방지제는, 1종 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 사용해도 된다.
- [0286] 힌더드 페놀계 화합물로서는, 분자량 500 이상의 화합물이 바람직하다. 분자량 500 이상의 힌더드 페놀계 화합물로서는, 예를 들어 트리에틸렌글리콜-비스[3-(3-t-부틸-5-메틸-4-히드록시페닐)프로피오네이트], 1,6-헥산디올-비스[3-(3,5-디-t-부틸-4-히드록시페닐)프로피오네이트], 2,4-비스-(n-옥틸티오)-6-(4-히드록시-3,5-디-t-부틸아닐리노)-3,5-트리아진, 펜타에리트리톨테트라키스[3-(3,5-t-부틸-4-히드록시페닐)프로피오네이트], 1,1,3-트리스[2-메틸-4-[3-(3,5-디-t-부틸-4-히드록시페닐)프로피오닐옥시]-5-t-부틸페닐]부탄, 2,2-티오-디에틸렌비스[3-(3,5-디-t-부틸-4-히드록시페닐)프로피오네이트], 옥타데실-3-(3,5-디-t-부틸-4-히드록시페닐)프로피오네이트, N,N-헥사메틸렌비스(3,5-디-t-부틸-4-히드록시-히드로신남아미드), 1,3,5-트리메틸-2,4,6-트리스(3,5-디-t-부틸-4-히드록시벤질)벤젠, 트리스-(3,5-디-t-부틸-4-히드록시벤질)-이소시아누레이트, 3,9-비스[2-[3-(3-t-부틸-4-히드록시-5-메틸페닐)프로피오닐옥시]-1,1-디메틸에틸]-2,4,8,10-테트라옥사스피로[5.5]운데칸을 들 수 있다.
- [0287] 본 조성물이 산화 방지제를 함유하는 경우, 해당 산화 방지제의 함유 비율은, 예를 들어 본 중합체 및 화합물 (C)의 합계 100질량부에 대하여, 바람직하게는 0.01질량부 이상 10질량부 이하이다.
- [0288] <<본 조성물의 조제 방법>>

- [0289] 본 조성물의 조제 방법은 특별히 한정되지 않지만, 예를 들어 중합체 (1), 및 필요에 따라서 상기 다른 성분을 균일하게 혼합함으로써 조제할 수 있다. 또한, 본 조성물의 형태는, 액상, 페이스트상 등으로 할 수 있다. 특히, 본 중합체는 화합물 (C)와의 상용성이 우수하기 때문에, 액상의 화합물 (C)에 용해시킴으로써, 무용제계의 조성물로 할 수 있다.
- [0290] 2. 경화물
- [0291] 본 발명의 일 실시 형태에 따른 경화물은, 전술한 본 조성물의 경화물이며, 전술한 본 조성물을 경화시켜서 얻어진다.
- [0292] 해당 경화물의 형상은 특별히 한정되지 않고 용도나 목적 등에 따라서 적당한 형상으로 하면 된다.
- [0293] 본 조성물의 경화 방법은 특별히 한정되지 않지만, 통상 가열에 의해 열경화시키는 방법이나, 광의 조사에 의해 광경화시키는 방법이 사용된다. 또한, 이들 방법은 병용할 수도 있다.
- [0294] 열 경화시킨 경우, 가열 온도는, 바람직하게는 50 내지 350℃, 보다 바람직하게는 100 내지 300℃, 더욱 바람직하게는 100 내지 280℃이다. 가열 시간은, 바람직하게는 0.5 내지 36시간, 보다 바람직하게는 0.5 내지 24시간이다.
- [0295] 광 경화시킨 경우, 조사하는 광으로서는, 예를 들어 가시광, 자외선, 근적외선, 원적외선, 전자선을 들 수 있다.
- [0296] 상기 경화물의 일 실시 형태로서는, 예를 들어 필름을 들 수 있다. 해당 필름은, 예를 들어 본 조성물을 용융 성형 또는 캐스트 성형함으로써 필름 형상의 경화물로서 얻을 수 있다.
- [0297] 상기 필름의 용도는 특별히 한정되지 않지만, 광학 필름으로서 적합하게 사용할 수 있고, 구체적으로는, 액정 표시 소자 기관, 도광판, 편광 필름, 위상차 필름 등으로서 적합하게 사용할 수 있다.
- [0298] 상기 필름의 두께는 특별히 제한되지 않고, 원하는 용도에 따라서 적절히 선택하면 되지만, 예를 들어 0.5 μ m 내지 3mm, 바람직하게는 1 μ m 내지 1mm이다.
- [0299] 3. 성형체
- [0300] 본 발명의 일 실시 형태에 따른 성형체는, 상기 중합체 (2)를 성형하여 이루어진다.
- [0301] 해당 성형체의 일 실시 형태로서는, 예를 들어 필름을 들 수 있다. 해당 필름은, 예를 들어 중합체 (2)를 용융 성형 또는 캐스트 성형함으로써 필름 형상의 성형체로서 얻을 수 있다.
- [0302] 해당 필름의 용도나 두께는, 상기 경화물의 란과 마찬가지로이다.
- [0303] 4. 적층체
- [0304] 본 발명의 일 실시 형태에 따른 적층체는, 기재와, 상기 본 조성물을 사용해서 형성된 경화물층, 또는 기재와, 상기 중합체 (2)를 사용해서 형성된 층(이하 「중합체층」이라고도 한다.)을 갖는다. 해당 적층체는, 2층 이상의 기재를 갖고 있어도 되고, 2층 이상의 경화물층이나 중합체층을 갖고 있어도 되고, 기재와 경화물층이나 중합체층 이외의 종래 공지된 다른 층 등을 갖고 있어도 된다. 해당 적층체가, 2층 이상의 기재, 경화물층이나 중합체층, 다른 층을 갖는 경우, 이들은 각각 동일한 층(판)이어도 되고, 다른 층(판)이어도 된다.
- [0305] 상기 기재로서는, 접착성이나 실용상의 관점에서, 금속 기재, 무기 기재(금속 기재이외의 기재), 수지 기재 등을 들 수 있다.
- [0306] 상기 금속 기재로서는, 예를 들어 구리, 알루미늄, 금, 은, 니켈, 팔라듐 등을 성분으로 해서 갖는 금속 기재를 들 수 있다.
- [0307] 상기 무기 기재로서는, 예를 들어 실리콘, 실리콘 카바이드, 질화 실리콘, 알루미늄, 유리, 질화갈륨 등을 성분으로 해서 갖는 무기 기재를 들 수 있다.
- [0308] 상기 수지 기재로서는, 예를 들어 액정 폴리머, 폴리이미드, 폴리페닐렌술퍼이드, 폴리아미드(나일론), 폴리에틸렌테레프탈레이트, 폴리에틸렌나프탈레이트, 폴리올레핀 등을 성분으로 해서 갖는 수지 기재를 들 수 있다.
- [0309] 상기 경화물층은, 예를 들어 기재 상에 본 조성물을 도포한 후, 해당 조성물을 열경화 및/또는 광경화시킴으로써 형성할 수 있다.

[0310] 상기 중합체층은, 예를 들어 기재 상에 중합체 (2)를 배치한 후, 해당 중합체 (2)를 용융시킴으로써 형성할 수 있다.

[0311] 상기 경화물층이나 중합체층의 두께는 특별히 한정되지 않지만, 예를 들어 1 μ m 내지 3mm이다.

[0312] <용도>

[0313] 본 중합체, 본 조성물, 상기 경화물, 상기 성형체 및 상기 적층체는, 항공기 산업이나 자동차 산업 등의 수송기 산업으로 사용되는 구조용 재료, 전기 전자 산업으로 사용되는 전기 전자 재료 등에 적합하게 사용할 수 있다. 구체적으로는, 예를 들어 전기 전자 부품의 밀봉재, 층간 절연막, 응력 완화·접착·접착·절연 등 각종 프라이머; 적층판(예: 프린트 배선 기관, 층간 접착제, 솔더 레지스트, 솔더 페이스트); 접착제(예: 열전도성 접착제, 접착 시트); 점착제(예: 절연 테이프, 도전 테이프); 각종 구조 재료에 사용하는 구조 접착제·프리프레그; 각종 코팅제; 광학 부품(예: 파장판, 위상차판 등의 광학 필름, 원추 렌즈, 구면 렌즈, 원통 렌즈 등의 각종 특수 렌즈, 렌즈 어레이); 프린트 배선판용 절연성 필름 등에 적합하게 이용할 수 있다.

[0314] 5. 전자 부품

[0315] 본 발명의 일 실시 형태에 따른 전자 부품은, 전술한 적층체를 갖는다. 해당 전자 부품은, 2개 이상의 적층체를 갖고 있어도 된다. 2개 이상의 적층체를 갖는 경우, 이들은 각각 동일해도 되고, 상이해도 된다.

[0316] 상기 전자 부품으로서, 회로 기관, 반도체 패키지 또는 표시기관 등을 들 수 있다.

[0317] 상기 적층체에 있어서의 경화물층이나 중합체층은, 이들 전자 부품의, 표면 보호막, 재배선층 또는 평탄화막으로서 사용할 수 있다. 상기 경화물층이나 중합체층은 고온 고습 하에서 있어도 절연성을 유지할 수 있는 것으로부터, 상기 전자 부품은, 먼지, 열, 습기 등의 외부 환경으로부터 회로 패턴을 보호할 수 있음과 함께 회로 패턴간의 절연 신뢰성이 우수하고, 오랜 세월에 걸쳐 안정되게 동작시키는 것이 가능해진다.

[0318] 예를 들어, 상기 경화물층이나 중합체층의 패턴간에 도금 등에 의해 금속을 충전하고, 필요에 따라, 추가로 경화물층이나 중합체층을 적층하고, 금속을 충전하는 것을 반복해서 재배선층을 형성할 수 있고, 이에 의해, 기재와, 금속 배선 및 절연막을 포함하는 재배선층을 갖는 전자 부품을 제조할 수 있다.

[0319] 실시예

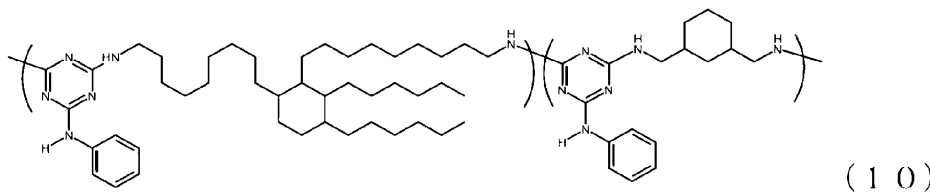
[0320] 이하, 본 발명의 일 실시 형태를 실시예에 기초하여 구체적으로 설명하지만, 본 발명은 이하의 실시예에 한정되지 않는다.

[0321] [1] 중합체의 합성

[0322] (실시예 1)

[0323] 교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AnDCT)(19.0g), 다이머디아민(Priamine 1075(크로다 재팬(주)제))(21.1g), 1,3-비스아미노메틸시클로헥산(5.6g), 및 탄산칼륨(12.0g)을 재서 넣고, 거기에, 시클로헥사논(74.7g) 및 물(32.0g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 100℃에서 20시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 수상 부분을 분액 깔때기로 분리하고, 유기상을 탈이온수로 중성이 될 때까지 세정 후, 용매를 농축함으로써, 고형분량 30질량%의 하기 식 (10)으로 표시되는 중합체 (10)의 용액을 얻었다.

[0324] 또한, 다이머디아민은 전술한 바와 같이, 단일 물질이 아니기 때문에, 하기 식 중에서 나타나는 다이머디아민에서 유래하는 구조는, 그 대표적인 구조를 나타낸다. 이하의 실시예에 기재된 식도 마찬가지이다.



[0325]

[0326] (실시예 2)

[0327] 실시예 1에서 사용한 각 성분을, 하기와 같이 변경한 것 이외에는 실시예 1과 마찬가지로 방법으로, 고형분량 30질량%의 목적의 중합체 (11)의 용액을 얻었다.

[0328] 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(24.8g), Priamine 1075(11.0g), 1,3-비스아미노메틸시클로헥산(11.7g), 탄산칼륨(15.6g), 시클로헥사논(88.7g), 물(22.1g)

[0329] 얻어진 중합체 (11)의 ¹H-NMR 스펙트럼을 도 1에 나타낸다.

[0330] 해당 ¹H-NMR 스펙트럼의 1.5ppm 및 0.5ppm 부근의 피크로부터, 얻어진 중합체 (11)이, 상기 식 (10)으로 표시되는 구조를 갖는 중합체인 것을 확인했다.

[0331] 또한, ¹H-NMR은, 이하와 같이 해서 측정했다. 이하의 중합체의 ¹H-NMR에 대해서도 마찬가지로 하여 측정했다.

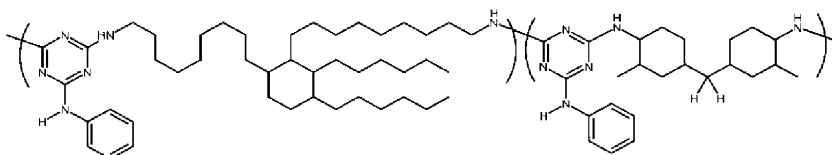
[0332] <¹H-NMR 측정>

[0333] 중합체의 ¹H-NMR 측정은, 핵자기 공명 장치(니혼덴시(주)제의 「ECX400P」)을 사용하고, 측정 용매로서 증류로포름을 사용해서 행하였다.

[0334] (실시에 3)

[0335] 실시예 1에서 사용한 각 성분을, 하기와 같이 변경한 것 이외에는 실시예 1과 마찬가지로 방법으로, 고형분량 30 질량%의 하기 식 (12)로 표시되는 목적의 중합체 (12)의 용액을 얻었다.

[0336] 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(17.4g), Priamine 1075(19.3g), 4,4'-메틸렌비스(2-메틸시클로헥실아민)(이성체 혼합물)(8.6g), 탄산칼륨(11.0g), 시클로헥사논(73.9g), 물(31.7g)



(1 2)

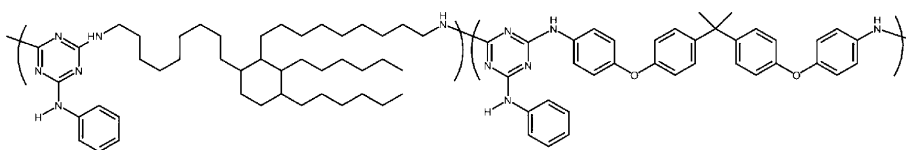
[0337]

[0338] ¹H-NMR 스펙트럼으로부터, 얻어진 중합체 (12)가, 상기 식 (12)로 표시되는 구조를 갖는 중합체인 것을 확인했다.

[0339] (실시에 4)

[0340] 실시예 1에서 사용한 각 성분을, 하기와 같이 변경한 것 이외에는 실시예 1과 마찬가지로 방법으로, 고형분량 30 질량%의 하기 식 (13)으로 표시되는 목적의 중합체 (13)의 용액을 얻었다.

[0341] 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(15.0g), Priamine 1075(16.7g), 2,2-비스[4-(4-아미노페녹시)페닐]프로판(12.8g), 탄산칼륨(17.3g), 시클로헥사논(117.6g), 물(60.6g)



(1 3)

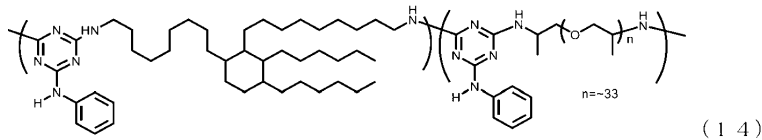
[0342]

[0343] ¹H-NMR 스펙트럼으로부터, 얻어진 중합체 (13)이, 상기 식 (13)으로 표시되는 구조를 갖는 중합체인 것을 확인했다.

[0344] (실시에 5)

[0345] 실시예 1에서 사용한 각 성분을, 하기와 같이 변경한 것 이외에는 실시예 1과 마찬가지로 방법으로, 고형분량 30 질량%의 하기 식 (14)로 표시되는 목적의 중합체 (14)의 용액을 얻었다.

[0346] 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(8.4g), Priamine 1075(13.1g), 폴리(프로필렌글리콜)디아민(JEFFAMINE-D2000 [헌츠만사제])(21.0g), 탄산칼륨(5.3g), 시클로헥사논(69.5g), 물(29.8g)



[0347]

[0348] 얻어진 중합체 (14)의 ¹H-NMR 스펙트럼을 도 2에 나타낸다.

[0349] 해당 ¹H-NMR 스펙트럼으로부터, 얻어진 중합체 (14)가, 상기 식 (14)로 표시되는 구조를 갖는 중합체인 것을 확인했다.

[0350] (실시예 6)

[0351] 실시예 5에서 사용한 각 성분을, 하기와 같이 변경한 것 이외에는 실시예 5와 마찬가지로 방법으로, 고형분량 30 질량%의 목적의 중합체 (15)의 용액을 얻었다.

[0352] 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(6.6g), Priamine 1075(7.5g), 폴리(프로필렌글리콜)디아민(JEFFAMINE-D2000)(27.9g), 탄산칼륨(4.2g), 시클로헥사논(68.6g), 물(29.4g)

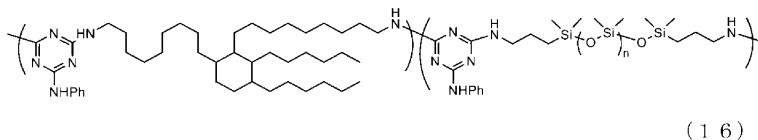
[0353] 얻어진 중합체 (15)의 ¹H-NMR 스펙트럼을 도 3에 나타낸다.

[0354] 해당 ¹H-NMR 스펙트럼으로부터, 얻어진 중합체 (15)이, 상기 식 (14)로 표시되는 구조를 갖는 중합체인 것을 확인했다.

[0355] (실시예 7)

[0356] 실시예 1에서 사용한 각 성분을, 하기와 같이 변경한 것 이외에는 실시예 1과 마찬가지로 방법으로, 고형분량 30 질량%의 하기 식 (16)으로 표시되는 목적의 중합체 (16)의 용액을 얻었다.

[0357] 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(10.2g), Priamine 1075(20.3g), 양쪽 말단 아미노 변성 실리콘 오일(X-22-161B [신에쯔 가가꾸 고교(주)제])(12.6g), 탄산칼륨(6.4g), 시클로헥사논(70.4g), 물(30.2g)



[0358]

[0359] (실시예 8)

[0360] 실시예 7에서 사용한 각 성분을, 하기와 같이 변경한 것 이외에는 실시예 7과 마찬가지로 방법으로, 고형분량 30 질량%의 목적의 중합체 (17)의 용액을 얻었다.

[0361] 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(8.1g), Priamine 1075(14.3g), 양쪽 말단 아미노 변성 실리콘 오일(X-22-161B)(20.1g), 탄산칼륨(5.1g), 시클로헥사논(69.3g), 물(29.7g)

[0362] 얻어진 중합체 (17)의 ¹H-NMR 스펙트럼을 도 4에 나타낸다.

[0363] 해당 ¹H-NMR 스펙트럼의, 0ppm 부근(-Si-CH₃, 0.13ppm, 국립 연구 개발 법인 산업 기술 종합연구소: 유기 화합물의 스펙트럼 데이터베이스 참조)의 피크로부터, 얻어진 중합체 (17)이, 상기 식 (16)으로 표시되는 구조를 갖는 중합체인 것을 확인했다.

[0364] (실시예 9)

[0365] 실시예 7에서 사용한 각 성분을, 하기와 같이 변경한 것 이외에는 실시예 7과 마찬가지로 방법으로, 고형분량 30 질량%의 목적의 중합체 (18)의 용액을 얻었다.

[0366] 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(10.0g), Priamine 1075(16.5g), 양쪽 말단 아미노 변성 실리콘 오일(X-22-161A[신에쯔 가가꾸 고교(주)제])(16.5g), 탄산칼륨(6.3g), 시클로헥사논(70.3g), 물(30.1g)

[0367] 얻어진 중합체 (18)의 ¹H-NMR 스펙트럼을 도 5에 나타낸다.

[0368] 해당 ¹H-NMR 스펙트럼의, 0ppm 부근(-Si-CH₃, 0.13ppm, 국립 연구 개발 법인 산업 기술 종합연구소: 유기 화합물의 스펙트럼 데이터베이스 참조)의 피크로부터, 얻어진 중합체 (18)의 구조를 확인했다.

[0369] (실시예 10)

[0370] 실시예 7에서 사용한 각 성분을, 하기와 같이 변경한 것 이외에는 실시예 7과 마찬가지로 방법으로, 고형분량 30 질량%의 목적의 중합체 (19)의 용액을 얻었다.

[0371] 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(11.6g), Priamine 1075(15.4g), 양 말단 아미노 변성 실리콘 오일(KF-8010[신에프 가가꾸 고교(주)제])(16.5g), 탄산칼륨(7.3g), 시클로헥사논(71.1g), 물(30.4g)

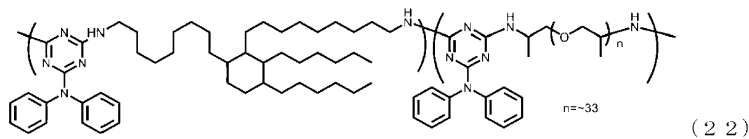
[0372] 얻어진 중합체 (19)의 ¹H-NMR 스펙트럼을 도 6에 나타낸다.

[0373] 해당 ¹H-NMR 스펙트럼의, 0ppm 부근(-Si-CH₃, 0.13ppm, 국립 연구 개발 법인 산업 기술 종합연구소: 유기 화합물의 스펙트럼 데이터베이스 참조)의 피크로부터, 얻어진 중합체 (19)의 구조를 확인했다.

[0374] (실시예 11)

[0375] 실시예 5에서 사용한 각 성분을, 하기와 같이 변경한 것 이외에는 실시예 5와 마찬가지로 방법으로, 고형분량 30 질량%의 하기 식 (22)로 표시되는 목적의 중합체 (22)의 용액을 얻었다.

[0376] 4,6-디클로로-N,N-디페닐-1,3,5-트리아진-2-아민(PDCT)(10.4g), Priamine 1075(12.3g), 폴리(프로필렌글리콜)디아민(JEFFAMINE-D2000)(19.7g), 탄산칼륨(5.0g), 시클로헥사논(69.2g), 물(29.7g)

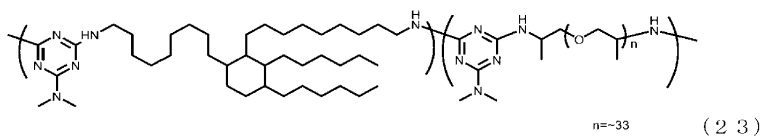


[0377]

[0378] (실시예 12)

[0379] 실시예 5에서 사용한 각 성분을, 하기와 같이 변경한 것 이외에는 실시예 5와 마찬가지로 방법으로, 고형분량 30 질량%의 하기 식 (23)으로 표시되는 목적의 중합체 (23)의 용액을 얻었다.

[0380] 4,6-디클로로-N,N-디메틸-1,3,5-트리아진-2-아민(MDCT)(7.1g), Priamine 1075(13.7g), 폴리(프로필렌글리콜)디아민(JEFFAMINE-D2000)(21.9g), 탄산칼륨(5.6g), 시클로헥사논(69.7g), 물(29.9g)

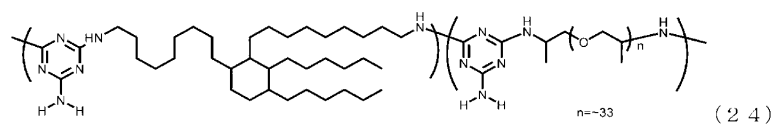


[0381]

[0382] (실시예 13)

[0383] 실시예 5에서 사용한 각 성분을, 하기와 같이 변경한 것 이외에는 실시예 5와 마찬가지로 방법으로, 고형분량 30 질량%의 하기 식 (24)로 표시되는 목적의 중합체 (24)의 용액을 얻었다.

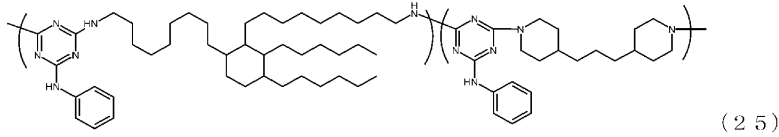
[0384] 4,6-디클로로-1,3,5-트리아진-2-아민(ADCT)(6.2g), Priamine 1075(14.0g), 폴리(프로필렌글리콜)디아민(JEFFAMINE-D2000)(22.5g), 탄산칼륨(5.7g), 시클로헥사논(69.8g), 물(29.9g)



[0385]

[0386] (실시예 80)

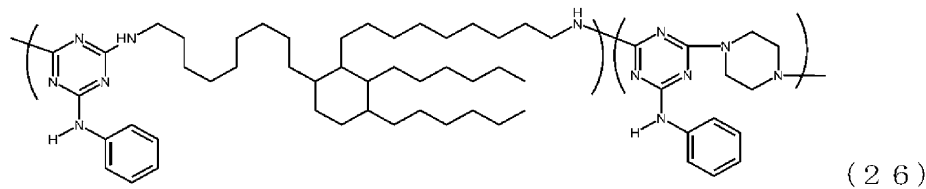
[0387] 교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AnDCT)(17.8g), 다이머디아민(Priamine 1075)(19.8g), 1,3-비스(4-피페리딜)프로판(7.8g), 및 탄산칼륨(10.4g)을 재서 넣고, 거기에, 시클로헥사논(60.0g) 및 물(25.7g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 100℃에서 20시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 수상 부분을 분액 깔때기로 분리하고, 유기상을 탈이온수로 중성이 될 때까지 세정 후, 용매를 농축함으로써, 고형분량 30질량%의 하기 식 (25)로 표시되는 중합체 (25)의 용액을 얻었다.



[0388]

[0389] (실시예 81)

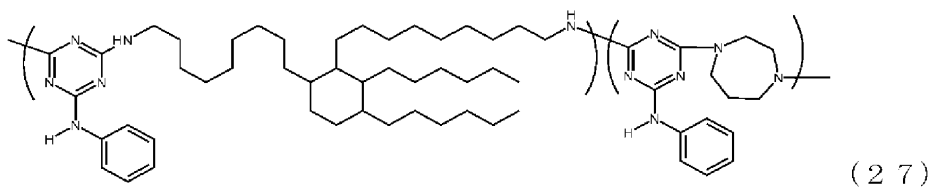
[0390] 교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AnDCT)(20.1g), 다이머디아민(Priamine 1075)(22.4g), 피페라진(3.6g), 및 탄산칼륨(11.8g)을 재서 넣고, 거기에, 시클로헥사논(60.0g) 및 물(25.7g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 100℃에서 20시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 수상 부분을 분액 깔때기로 분리하고, 유기상을 탈이온수로 중성이 될 때까지 세정 후, 용매를 농축함으로써, 고형분량 30질량%의 하기 식 (26)으로 표시되는 중합체 (26)의 용액을 얻었다.



[0391]

[0392] (실시예 82)

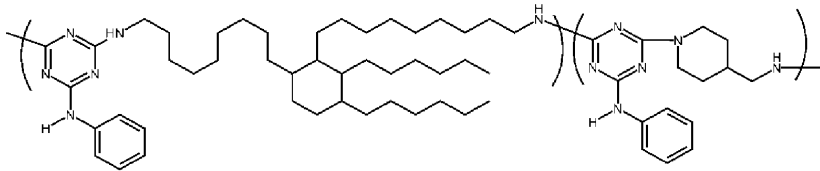
[0393] 교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AnDCT)(19.9g), 다이머디아민(Priamine 1075)(22.0g), 호모 피페라진(4.1g), 및 탄산칼륨(11.6g)을 재서 넣고, 거기에, 시클로헥사논(60.0g) 및 물(25.7g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 100℃에서 20시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 수상 부분을 분액 깔때기로 분리하고, 유기상을 탈이온수로 중성이 될 때까지 세정 후, 용매를 농축함으로써, 고형분량 30질량%의 하기 식 (27)로 표시되는 중합체 (27)의 용액을 얻었다.



[0394]

[0395] (실시예 83)

[0396] 교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AnDCT)(19.6g), 다이머디아민(Priamine 1075)(21.7g), 4-(아미노메틸)피페리딘(4.6g), 및 탄산칼륨(11.4g)을 재서 넣고, 거기에, 시클로헥사논(60.0g) 및 물(25.7g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 100℃에서 20시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 수상 부분을 분액 깔때기로 분리하고, 유기상을 탈이온수로 중성이 될 때까지 세정 후, 용매를 농축함으로써, 고형분량 30질량%의 하기 식 (28)로 표시되는 중합체 (28)의 용액을 얻었다.



(2 8)

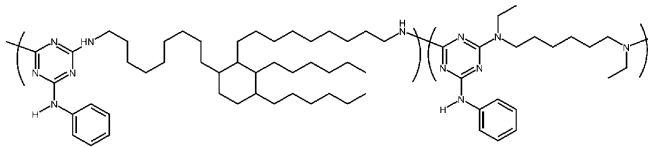
[0397]

[0398]

(실시예 84)

[0399]

교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AnDCT)(18.5g), 다이머 디아민(Priamine 1075)(20.5g), N,N'-디에틸-1,6-디아미노헥산(6.6g), 및 탄산칼륨(10.8g)을 재서 넣고, 거기에, 시클로헥사논(60.0g) 및 물(25.7g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 100℃에서 20시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 수상 부분을 분액 깔때기로 분리하고, 유기상을 탈이온수로 중성이 될 때까지 세정 후, 용매를 농축함으로써, 고형분량 30질량%의 하기 식 (29)로 표시되는 중합체 (29)의 용액을 얻었다.



(2 9)

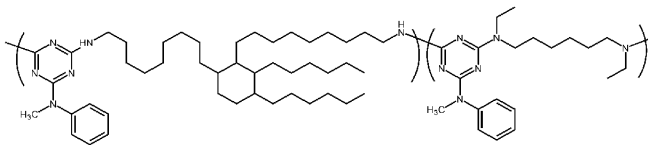
[0400]

[0401]

(실시예 85)

[0402]

교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 2-메틸-2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AMDCT)(19.0g), 다이머 디아민(Priamine 1075)(20.0g), N,N'-디에틸-1,6-디아미노헥산(6.4g), 및 탄산칼륨(10.5g)을 재서 넣고, 거기에, 시클로헥사논(60.0g) 및 물(25.7g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 100℃에서 20시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 수상 부분을 분액 깔때기로 분리하고, 유기상을 탈이온수로 중성이 될 때까지 세정 후, 용매를 농축함으로써, 고형분량 30질량%의 하기 식 (50)으로 표시되는 중합체 (50)의 용액을 얻었다.



(5 0)

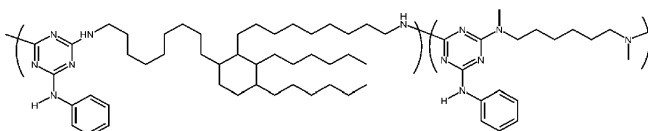
[0403]

[0404]

(실시예 86)

[0405]

교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AnDCT)(19.0g), 다이머 디아민(Priamine 1075)(21.1g), N,N'-디메틸-1,6-디아미노헥산(5.9g), 및 탄산칼륨(11.1g)을 재서 넣고, 거기에, 시클로헥사논(60.0g) 및 물(25.7g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 100℃에서 20시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 수상 부분을 분액 깔때기로 분리하고, 유기상을 탈이온수로 중성이 될 때까지 세정 후, 용매를 농축함으로써, 고형분량 30질량%의 하기 식 (51)로 표시되는 중합체 (51)의 용액을 얻었다.



(5 1)

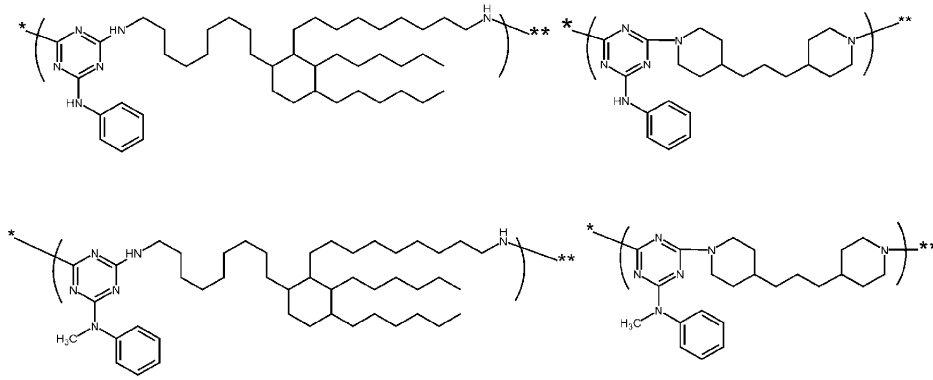
[0406]

[0407]

(실시예 87)

[0408]

교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AnDCT)(8.8g), 2-메틸-2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AMDCT)(9.3g), 다이머 디아민(Priamine 1075)(19.5g), 1,3-비스(4-피페리딜)프로판(7.7g), 및 탄산칼륨(11.1g)을 재서 넣고, 거기에, 시클로헥사논(60.0g) 및 물(25.7g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 100℃에서 20시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 수상 부분을 분액 깔때기로 분리하고, 유기상을 탈이온수로 중성이 될 때까지 세정 후, 용매를 농축함으로써, 고형분량 30질량%의 하기 식 (52)로 표시되는 각 구조 단위를 갖는 중합체 (52)의 용액을 얻었다.



(52)

[0409]

[0410]

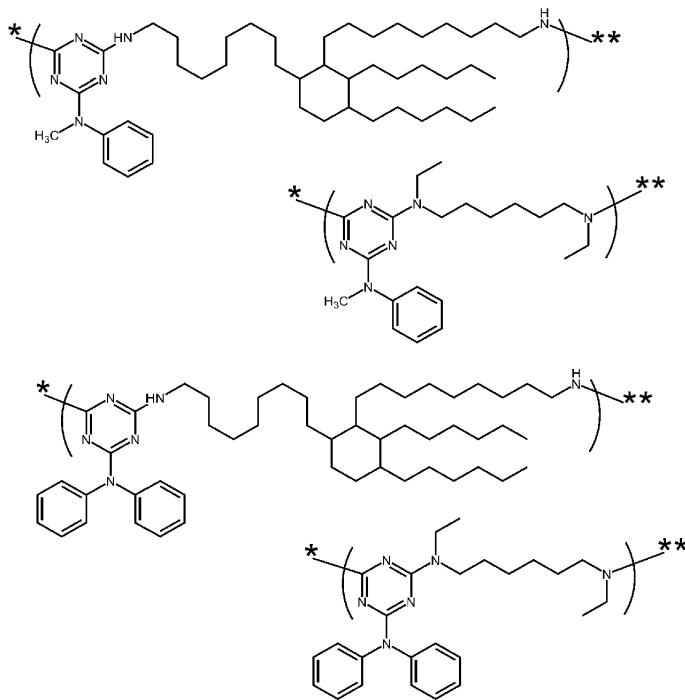
[식 (52) 중, *은 **과 결합하고 있는 것을 나타낸다.]

[0411]

(실시예 88)

[0412]

교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 4,6-디클로로-N,N-디페닐-1,3,5-트리아진-2-아민(PDCT)(11.2g), 2-메틸-2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AMDCT)(9.0g), 다이머 디아민(Priamine 1075)(18.9g), N,N'-디에틸-1,6-디아미노헥산(6.1g), 및 탄산칼륨(10.7g)을 재서 넣고, 거기에, 시클로헥사논(60.0g) 및 물(25.7g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 100℃에서 20시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 수상 부분을 분액 깔때기로 분리하고, 유기상을 탈이온수로 중성이 될 때까지 세정 후, 용매를 농축함으로써, 고형분량 30질량%의 하기 식 (53)으로 표시되는 각 구조 단위를 갖는 중합체 (53)의 용액을 얻었다.



(53)

[0413]

[0414]

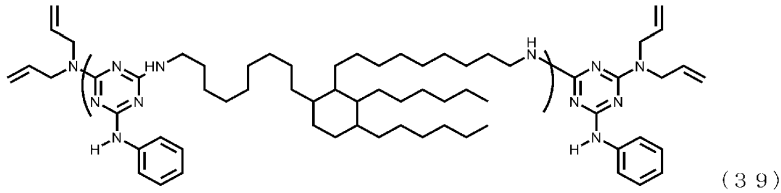
[식 (53) 중, *은 **과 결합하고 있는 것을 나타낸다.]

[0415]

(실시예 A1)

[0416]

교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AnDCT)(13.6g), 다이머 디아민(Priamine 1075)(30.1g), 디알틸아민(0.44g), 및 탄산칼륨(7.9g)을 재서 넣고, 거기에, 시클로헥사논(60.0g) 및 물(25.7g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 100℃에서 20시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 수상 부분을 분액 깔때기로 분리하고, 유기상을 탈이온수로 중성이 될 때까지 세정 후, 용매를 농축함으로써, 고형분량 30질량%의 하기 식 (39)로 표시되는 중합체 (39)의 용액을 얻었다.

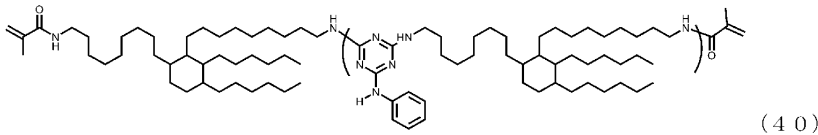


[0417]

[0418] (실시예 A2)

[0419] 실시예 A1에서 사용한 각 성분을, 하기와 같이 변경한 것 이외에는 실시예 A1과 마찬가지로 방법으로, 고형분량 30질량%의 하기 식 (40)으로 표시되는 목적의 중합체 (40)의 용액을 얻었다.

[0420] 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AnDCT)(13.5g), 다이머 디아민(Priamine 1075)(29.9g), 무수 메타크릴산(0.69g), 탄산칼륨(7.9g)

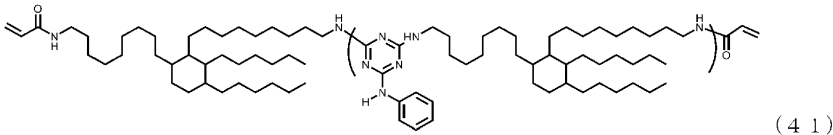


[0421]

[0422] (실시예 A3)

[0423] 실시예 A1에서 사용한 각 성분을, 하기와 같이 변경한 것 이외에는 실시예 A1과 마찬가지로 방법으로, 고형분량 30질량%의 하기 식 (41)로 표시되는 목적의 중합체 (41)의 용액을 얻었다.

[0424] 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AnDCT)(13.6g), 다이머 디아민(Priamine 1075)(30.1g), 아크릴로일클로라이드(0.41g), 탄산칼륨(7.9g)

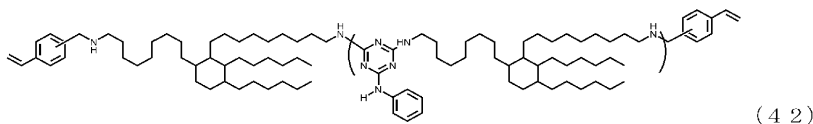


[0425]

[0426] (실시예 A4)

[0427] 실시예 A1에서 사용한 각 성분을, 하기와 같이 변경한 것 이외에는 실시예 A1과 마찬가지로 방법으로, 고형분량 30질량%의 하기 식 (42)로 표시되는 목적의 중합체 (42)의 용액을 얻었다.

[0428] 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AnDCT)(13.6g), 다이머 디아민(Priamine 1075)(30.1g), 클로로메틸스티렌(m-,p-혼합물)(0.43g), 탄산칼륨(7.9g)

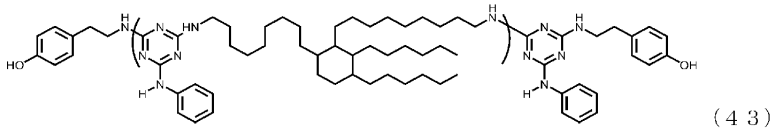


[0429]

[0430] (실시예 A5)

[0431] 실시예 A1에서 사용한 각 성분을, 하기와 같이 변경한 것 이외에는 실시예 A1과 마찬가지로 방법으로, 고형분량 30질량%의 하기 식 (43)으로 표시되는 목적의 중합체 (43)의 용액을 얻었다.

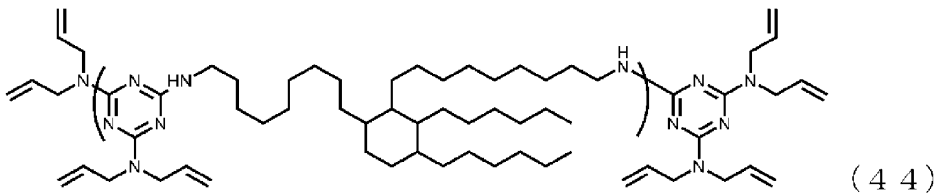
[0432] 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AnDCT)(13.9g), 다이머 디아민(Priamine 1075)(30.2g), 4-(2-아미노에틸)페놀(0.16g), 탄산칼륨(8.1g)



[0433]

[0434] (실시예 A6)

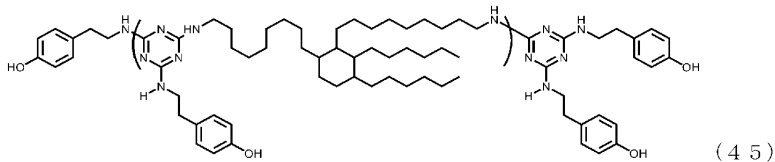
[0435] 교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 트리클로로 트리아진(11.0g), 다이머 디아민(Priamine 1075)(30.1g), 및 탄산칼륨(7.9g)을 재서 넣고, 거기에, 시클로헥사논(60.0g) 및 물(25.7g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 60℃에서 2시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 디알릴아민(9.0g), 4-히드록시-2,2,6,6-테트라메틸피페리딘1-옥실의 1질량% 시클로헥산 용액(5.2g)을 첨가하고, 추가로 100℃에서 13시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 수상 부분을 분액 깔때기로 분리하고, 유기상을 탈이온수로 중성이 될 때까지 세정 후, 용매를 농축함으로써, 고형분량 30질량%의 하기 식 (44)로 표시되는 중합체 (44)의 용액을 얻었다.



[0436]

[0437] (실시예 A7)

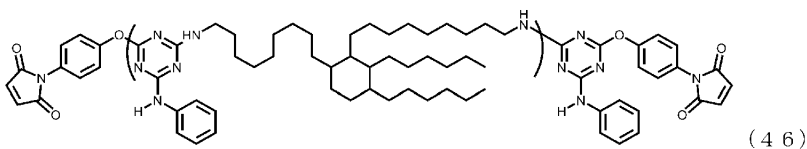
[0438] 교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 트리클로로 트리아진(10.0g), 다이머 디아민(Priamine 1075)(24.8g), 및 탄산칼륨(11.5g)을 재서 넣고, 거기에, 시클로헥사논(60.0g) 및 물(25.7g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 60℃에서 2시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 4-(2-아미노에틸)페놀(11.7g), 4-히드록시-2,2,6,6-테트라메틸피페리딘1-옥실의 1질량% 시클로헥산 용액(5.2g)을 첨가하고, 추가로 100℃에서 13시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 수상 부분을 분액 깔때기로 분리하고, 유기상을 탈이온수로 중성이 될 때까지 세정 후, 용매를 농축함으로써, 고형분량 30질량%의 하기 식 (45)로 표시되는 중합체 (45)의 용액을 얻었다.



[0439]

[0440] (실시예 A8)

[0441] 교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AndCT)(13.4g), 다이머 디아민(Priamine 1075)(29.8g), 4-히드록시페닐말레이미드(0.84g), 및 탄산칼륨(8.5g)을 재서 넣고, 거기에, 시클로헥사논(40.0g) 및 물(25.7g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 100℃에서 20시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 수상 부분을 분액 깔때기로 분리하고, 유기상을 탈이온수로 중성이 될 때까지 세정 후, 용매를 농축함으로써, 고형분량 30질량%의 하기 식 (46)으로 표시되는 중합체 (46)의 용액을 얻었다.



[0442]

[0443] (비교예 1)

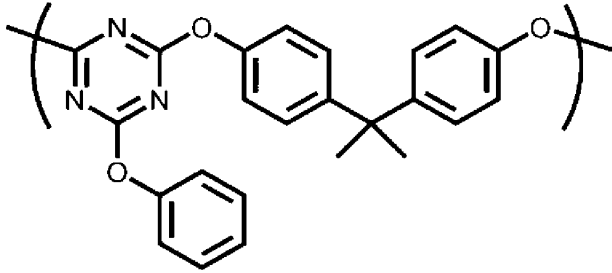
[0444] 유연성이 있는 비스말레이미드 올리고머인, 시판 중인 ULTIMID3000A (ABC Nanotech.,LTD.제)을 비교예 1(중합체 (30))로 하였다.

[0445] (비교예 2)

[0446] 유연성이 있는 비스페놀 A형 에폭시 수지인, 시판 중인 jER872(미쓰비시케미칼(주)제)을 비교예 2(중합체 (31))로 하였다.

[0447] (비교예 3)

[0448] 교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 2,4-디클로로-6-페녹시-1,3,5-트리아진(24.3g), 2,2-비스(4-히드록시페닐)프로판(23.0g), 및 탄산칼륨(15.3g)을 채서 넣고, 거기에, N-메틸-2-피롤리돈(77.3g) 및 물(33.1g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 100℃에서 20시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 메탄올 응고, 여과, 메탄올 세정을 행하여, 하기 식 (32)로 표시되는 반복 단위를 포함하는 목적의 중합체 (32) 31g(수량 78%)을 얻었다.

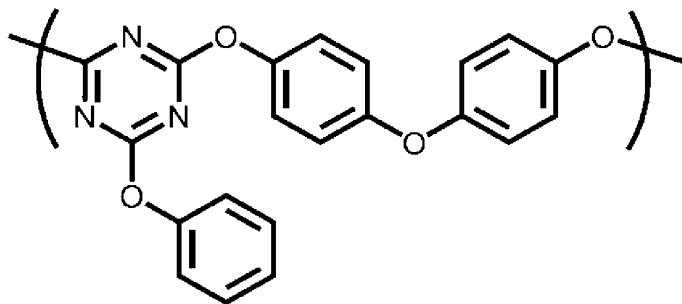


(3 2)

[0449]

[0450] (비교예 4)

[0451] 교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 2,4-디클로로-6-페녹시-1,3,5-트리아진(26.1g), 비스(4-히드록시페닐)에테르(21.8g), 및 탄산칼륨(16.4g)을 채서 넣고, 거기에, N-메틸-2-피롤리돈(78.1g) 및 물(33.5g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 100℃에서 20시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 메탄올 응고, 여과, 메탄올 세정을 행하여, 하기 식 (33)으로 표시되는 반복 단위를 포함하는 목적의 중합체 (33) 30g(수량 75%)을 얻었다.

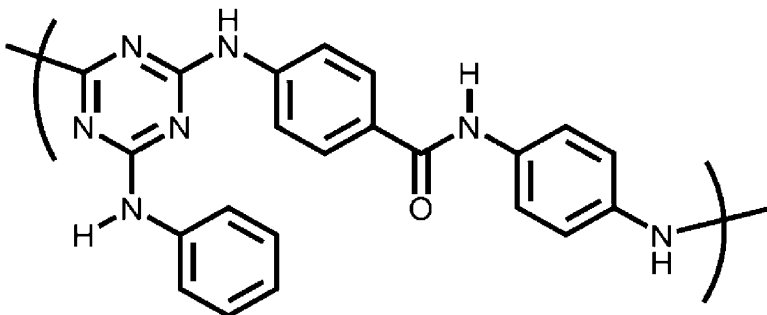


(3 3)

[0452]

[0453] (비교예 5)

[0454] 교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AnDCT)(24.4g), 4,4'-디아미노벤즈아닐리드(23.0g), 및 탄산칼륨(15.4g)을 채서 넣고, 거기에, N-메틸-2-피롤리돈(77.4g) 및 물(33.2g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 100℃에서 20시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 메탄올 응고, 여과, 메탄올 세정을 행하여, 하기 식 (34)로 표시되는 반복 단위를 포함하는 목적의 중합체 (34) 30g(수량 75%)을 얻었다.

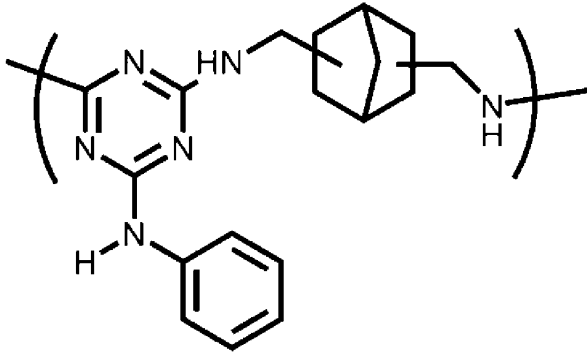


(3 4)

[0455]

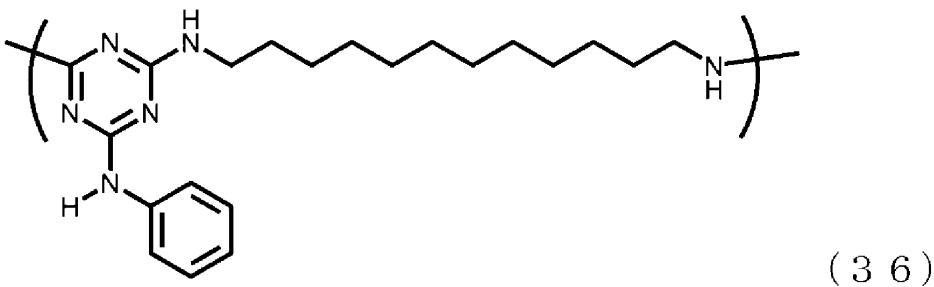
[0456] (비교예 6)

[0457] 교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AnDCT)(29.9g), 비스(아미노메틸)노르보르난(19.1g), 및 탄산칼륨(18.9g)을 채서 넣고, 거기에, N-메틸-2-피롤리돈(80.1g) 및 물(34.3g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 100℃에서 20시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 메탄올 응고, 여과, 메탄올 세정을 행하여, 하기 식 (35)로 표시되는 반복 단위를 포함하는 목적의 중합체 (35) 29g(수량 73%)을 얻었다.



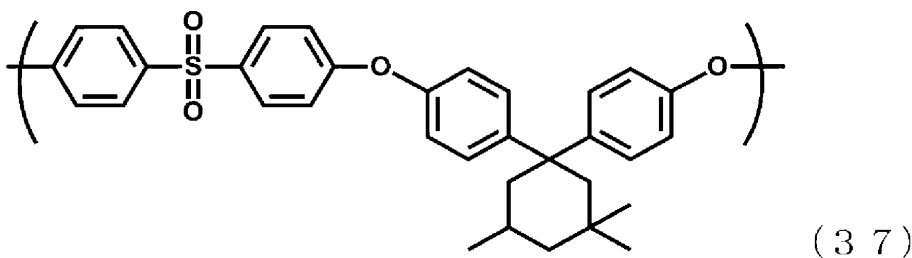
[0458] (비교예 7)

[0460] 교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(26.2g), 1,12-디아미노도데칸(21.7g), 및 탄산칼륨(16.5g)을 채서 넣고, 거기에, N-메틸-2-피롤리돈(78.3g) 및 물(33.5g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 100℃에서 20시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 메탄올 응고, 여과, 메탄올 세정을 행하여, 하기 식 (36)으로 표시되는 반복 단위를 포함하는 목적의 중합체 (36) 31g(수량 78%)을 얻었다.



[0461] (비교예 8)

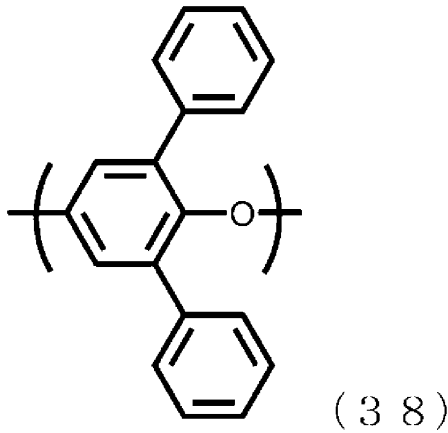
[0463] 교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 1,1-비스(4-히드록시페닐)-3,3,5-트리메틸시클로헥산(15.5g), 4,4'-디클로로디페닐술폰(14.4g), 및 탄산칼륨(9.3g)을 채서 넣고, 거기에, N-메틸피롤리돈(128g) 및 톨루엔(50g)을 첨가해서 교반했다. 질소 하에서 톨루엔을 수 시간 환류시킨 후, 톨루엔을 증류 제거하고, 추가로 190℃에서 6시간 반응시켰다. 반응 종료 후, N-메틸피롤리돈(398g)을 첨가해서 희석하고, 여과지로 염을 여과한 후, 여액을 메탄올 10.5kg으로 응고했다. 응고한 분체를 여과 분별하고, 해당 분체를 소량의 메탄올로 재세정한 후, 여과 분별하고, 여과물을 진공 건조기를 사용해서 감압 하 120℃에서 12시간 건조시키는 것으로, 하기 식 (37)로 표시되는 반복 단위를 포함하는 목적의 중합체 (37) 23g(수량 89%)을 얻었다.



[0464]

[0465] (비교예 9)

[0466] Macromolecules, 3, 533-535(1970)에 기재된 방법에 따라, 하기 식 (38)로 표시되는 반복 단위를 포함하는 목적의 중합체 (38)을 얻었다.



[0467]

[0468] [2] 중합체의 물성 평가

[0469] 상기와 같이 해서 얻어진 각 중합체를 사용하여, 하기 방법에 따라, 중량 평균 분자량(Mw), 유리 전이 온도(Tg) 또는 연화점, 5% 질량 감소 온도(Td5), 유전 정접(Df), 시클로헥사논에 대한 용해성, 도포성, 기재에 대한 밀착성(구리박 밀착성 및 금 기재 밀착성), 및 실온 점착성을 평가했다. 또한, 각 중합체를 용액 상태에서 얻은 경우(실시에 1 내지 13, 실시에 80 내지 88 및 실시에 A1 내지 A8)에 있어서의 Mw, Tg, 연화점 및 Td5는, 하기 방법에 따라 단독막을 얻고 나서 하기 평가를 행하였다. 이들 평가 결과를 표 1에 나타낸다.

[0470] 또한, 표 중에 있어서의 「-」은, 해당하는 평가 항목에 대해서 측정하지 않고 있는 것을 의미한다.

[0471] <중합체 단독막의 제작>

[0472] 각 중합체의 용액을 구리박(CF-T9DA-SV[후쿠다 키조쿠 하쿠혼 고교(주)제])에 도포 후, 70℃에서 3분간, 이어서 130℃에서 3분간 예비 건조하고, 추가로 150℃에서 30분간, 이어서 250℃에서 3시간, 질소 분위기 하에서 용매를 증발시킴으로써 도막을 형성했다. 형성한 구리박 구비 도막을, 40% 염화철(III) 용액에 침지함으로써 구리박을 제거하고, 순수로 세정한 후, 80℃에서 건조함으로써 중합체 단독막을 제작했다.

[0473] <중량 평균 분자량(Mw)>

[0474] 각 중합체의 중량 평균 분자량(Mw)은, GPC 장치(도소(주)제의 「HLC-8320형, 8420형」)를 사용하고, 얻어진 중합체가 테트라히드로푸란(THF)에 용해하는 경우 (실시에 1 내지 13, 실시에 80 내지 88 및 실시에 A1 내지 A8)에는, 하기 THF 조건에 기초하여 측정하고, 얻어진 중합체가 THF에 불용의 경우(비교예 3 내지 9)는, 하기 N-메틸-2-피롤리돈 조건에 기초하여 측정했다. 또한, 비교예 7에 대해서는, 일부N-메틸-2-피롤리돈에 불용이었지만, 가용부를 사용해서 Mw의 측정을 행하였다.

[0475] · THF 조건

[0476] 칼럼: 도소(주)제의 「TSKgel α-M」 과, 도소(주)제의 「TSKgel guardcolumn α」를 연결한 것

[0477] 전개 용매: THF

[0478] 칼럼 온도: 40℃

[0479] 유속: 1.0mL/분

[0480] 시료 농도: 0.75질량%

[0481] 시료 주입량: 50 μL

[0482] 검출기: 시차 굴절계

[0483] 표준 물질: 단분산 폴리스티렌

- [0484] · N-메틸-2-피롤리돈 조건
- [0485] 전개 용매: N-메틸-2-피롤리돈(LiBr 10mM 첨가)
- [0486] 칼럼 온도: 40℃
- [0487] 유속: 1.0mL/분
- [0488] 시료 농도: 0.75질량%
- [0489] 시료 주입량: 50 μ L
- [0490] 검출기: 시차 굴절계
- [0491] 표준 물질: 단분산 폴리스티렌
- [0492] <유리 전이 온도(Tg)>
- [0493] 각 중합체의 유리 전이 온도(Tg)는, 시차 주사 열량 측정 장치((주)리가쿠제의 DSC 장치 「Thermo Plus DSC8230」)를 사용하여, 질소 분위기 하에서, 승온 속도 20℃/분에서 얻어진 온도 기록도의 DSC 승온 곡선에 있어서, 베이스 라인과 변곡점에서의 접선과의 교점에 대응하는 온도로 하였다. 상기 변곡점은, DSC 승온 곡선의 미분 곡선인 DDSC 곡선에 있어서의 피크에 대응하는 온도로 하였다. 또한, DSC의 베이스 라인의 확인에는, 적절히 DDSC 곡선을 참조했다.
- [0494] <연화점: TMA 변곡점>
- [0495] 상기 유리 전이 온도(Tg)에 의한 측정이 곤란하거나, 또는 유리 전이 온도가 불명료했던 중합체에 대해서는, TMA 변곡점보다 연화점을 구했다. 연화점은, 열 기계 분석 장치((주)히타치 하이테크 사이언스제의 「TMA7100」)를 사용하여, 승온 속도 5℃/분에서 얻어진 온도 기록도의 열 변위 곡선에 있어서, 베이스 라인의 접선과 중합체가 있는 온도에서 크게 변형한 후의 그래프가 나타내는 라인(변곡 후 라인)의 접선과의 교점에 대응하는 온도로 하였다.
- [0496] <5% 질량 감소 온도(Td5)>
- [0497] 각 중합체의 5% 질량 감소 온도(Td5)는, 차동형 시차 열천칭(NETZSCH사제의 「G209 F1 Libra」)을 사용하여, 질소 분위기 하에서, 승온 속도 10℃/분의 조건에서 얻어진 열 질량 곡선으로부터, 중합체의 질량이 무게로 5질량% 감소했을 때의 온도로 하였다.
- [0498] 또한, Td5는 내열성의 지표 중 하나이며, 그 값이 클수록 내열성이 우수하다고 평가할 수 있다.
- [0499] <유전 정접(Df)>
- [0500] 제작한 중합체 단독막으로부터 시험편(폭: 6cm×길이: 6cm)을 잘라내고, 공동 공진기법((주)AET제, 유전을 측정 시스템 TE 모드 공진기)을 사용하여, 해당 시험편의 10GHz에 있어서의 유전 정접(Df)을 측정했다.
- [0501] <용해성>
- [0502] 실시예 1 내지 13, 실시예 80 내지 88 및 실시예 A1 내지 A8에서 얻어진 중합체의 시클로헥사논 용액을 눈으로 보아 확인하고, 침전물을 확인할 수 없었던 경우를 「A」, 눈으로 보아 침전물이 확인된 경우를 「B」로서 평가했다.
- [0503] 비교예 1 내지 9의 각 중합체의 시클로헥사논에 대한 용해성은, 시클로헥사논에, 각 중합체를 각각 농도가 1질량%가 되도록 더하여, 교반한 후, 눈으로 보아 침전물을 확인할 수 없었던 경우를 「A」, 눈으로 보아 침전물이 확인된 경우를 「B」로서 평가했다.
- [0504] <도포성>
- [0505] 실시예 1 내지 13, 실시예 80 내지 88 및 실시예 A1 내지 A8에서 얻어진 중합체의 시클로헥사논 용액을, 얻어지는 도막의 두께가 20 내지 30 μ m가 되도록 애플리케이션으로 구리박(CF-T9DA-SV[후쿠다 킨조쿠 하쿠혼 고교(주)제])에 도포하고, 70℃에서 3분간, 이어서 130℃에서 3분간 예비 건조하고, 도포 불균일을 눈으로 보아 확인하는 것으로 평가했다.
- [0506] 비교예 1 내지 9의 각 중합체는, N-메틸피롤리돈에 농도가 표 1의 「중합체 용액의 농도」에 나타내는 농도가

되도록 용해시킨 용액을, 얻어지는 도막의 두께가 20 내지 30 μm 가 되도록 애플리케이터로 구리박(CF-T9DA-SV[후쿠다 킨조쿠 하쿠훈 고교(주)제])에 도포하고, 70 $^{\circ}\text{C}$ 에서 3분간, 이어서 130 $^{\circ}\text{C}$ 에서 3분간 예비 건조했을 때의 도포 불균일을 눈으로 보아 확인하고 하기의 기준으로 평가했다.

- [0507] 「A」: 구리박 상에서 크레이터링이 없고, 두께의 불균일이 없고 균일한 막이 형성되고, 구리박으로부터의 박리가 없는 도막을 형성할 수 있다
- [0508] 「B」: 구리박 상에서 크레이터링이 발생하는, 구리박으로부터 도막이 박리하고 있거나, 및/또는 두께의 불균일이 있는 등 불균일한 도막이 형성되어 있다
- [0509] <구리박 밀착성>
- [0510] 실시예 1 내지 13, 실시예 80 내지 88 및 실시예 A1 내지 A8에서 얻어진 중합체의 시클로헥사논 용액을, 얻어지는 중합체층의 두께가 20 내지 30 μm 가 되도록 구리박(CF-T9DA-SV[후쿠다 킨조쿠 하쿠훈 고교(주)제])에 도포하고, 70 $^{\circ}\text{C}$ 에서 3분간, 이어서 130 $^{\circ}\text{C}$ 에서 3분간 예비 건조하고, 추가로 150 $^{\circ}\text{C}$ 에서 30분간, 이어서 250 $^{\circ}\text{C}$ 에서 3시간, 질소 분위기 하에서 용매를 증발시킴으로써, 중합체층과 구리박을 포함하는 적층체를 얻었다.
- [0511] 비교예 1 내지 9의 각 중합체 2g을 N-메틸피롤리돈 8g에 용해한 용액을, 얻어지는 중합체층의 두께가 20 내지 30 μm 가 되도록 구리박(CF-T9DA-SV[후쿠다 킨조쿠 하쿠훈 고교(주)제])에 도포 후, 70 $^{\circ}\text{C}$ 에서 3분간, 이어서 130 $^{\circ}\text{C}$ 에서 3분간 예비 건조하고, 추가로 150 $^{\circ}\text{C}$ 에서 30분간, 이어서 250 $^{\circ}\text{C}$ 에서 3시간, 질소 분위기 하에서 용매를 증발시킴으로써, 중합체층과 구리박을 포함하는 적층체를 얻었다.
- [0512] 얻어진 적층체를 폭 5mm×길이 10cm로 잘라내고, 인스트론사제 「Instron5567」을 사용하여, 500mm/분의 조건에서 90도 방향으로 인장하고, 「IPC-TM-6502.4.9」에 준거하여, 중합체층과 구리박 사이의 밀착 강도를 평가했다. 밀착 강도가 0.2N/mm 이상인 경우를 「A」, 0.2N/mm 미만인 경우를 「B」로서 평가했다.
- [0513] <금 기재 밀착성>
- [0514] 실시예 1 내지 13, 실시예 80 내지 88 및 실시예 A1 내지 A8에서 얻어진 중합체의 시클로헥사논 용액을, 얻어지는 도막의 두께가 10 내지 20 μm 가 되도록 금 스퍼터 웨이퍼 상에 스핀 코트하고, 70 $^{\circ}\text{C}$ 에서 5분간, 이어서 150 $^{\circ}\text{C}$ 에서 5분간 예비 건조하고, 추가로 250 $^{\circ}\text{C}$ 에서 1시간, 질소 분위기 하에서 용매를 증발시킴으로써 도막을 형성했다.
- [0515] 비교예 1 내지 9의 각 중합체 2g을 N-메틸-2-피롤리돈 8g에 용해한 용액을, 얻어지는 도막의 두께가 10 내지 20 μm 가 되도록 금 스퍼터 웨이퍼 상에 스핀 코트하고, 70 $^{\circ}\text{C}$ 에서 5분간, 150 $^{\circ}\text{C}$ 에서 5분간 예비 건조하고, 추가로 250 $^{\circ}\text{C}$ 에서 1시간, 질소 분위기 하에서 용매를 증발시킴으로써 도막을 형성했다.
- [0516] 해당 도막 표면에, 에폭시 수지를 부착시킨 스티드핀을, 형성한 도막과 에폭시 수지가 접하도록 고정하고, 160 $^{\circ}\text{C}$ 에서 1시간 경화하고, 박막 밀착 강도 측정기(QuadGroup사제)를 사용해서 20N/s의 측정 조건에서, 금 스퍼터 웨이퍼와 형성한 도막과의 밀착성을 평가했다. 스티드 핀의 에폭시 수지가 파괴한 경우를 「A」, 도막이 금 스퍼터 웨이퍼와의 계면에서 박리한 경우를 「B」로서 평가했다.
- [0517] <실온 점착성>
- [0518] 실시예 5, 6, 11, 12, A6 및 A7에서 얻어진 중합체의 시클로헥사논 용액을, 얻어지는 도막의 두께가 10 내지 20 μm 가 되도록 폴리이미드 필름에 도포하고, 70 $^{\circ}\text{C}$ 에서 5분간, 이어서 150 $^{\circ}\text{C}$ 에서 5분간 예비 건조하고, 추가로 250 $^{\circ}\text{C}$ 에서 1시간, 질소 분위기 하에서 용매를 증발시킴으로써, 도막 구비 폴리이미드 필름 적층체를 형성했다.
- [0519] 비교예 1 내지 9의 각 중합체 2g을 N-메틸-2-피롤리돈 8g에 용해한 용액을, 얻어지는 도막의 두께가 10 내지 20 μm 가 되도록 폴리이미드 필름 상에 애플리케이터로 도포하고, 70 $^{\circ}\text{C}$ 에서 5분간, 이어서 150 $^{\circ}\text{C}$ 에서 5분간 예비 건조하고, 추가로 250 $^{\circ}\text{C}$ 에서 1시간, 질소 분위기 하에서 용매를 증발시킴으로써, 도막 구비 폴리이미드 필름 적층체를 형성했다.
- [0520] 각 도막 구비 폴리이미드 필름 적층체의 해당 도막면이 SUS판에 접하도록, 도막 구비 폴리이미드 필름과 SUS판을 배치한 적층체를, 수동의 롤러를 사용해서 압착함으로써 샘플을 제작했다. 도막 구비 폴리이미드 필름이 SUS판에 점착 할지의 여부를 눈으로 보아 판단하여, SUS판에 점착한 경우를 「A」, 점착하지 않은 경우를 「B」로서 평가했다.

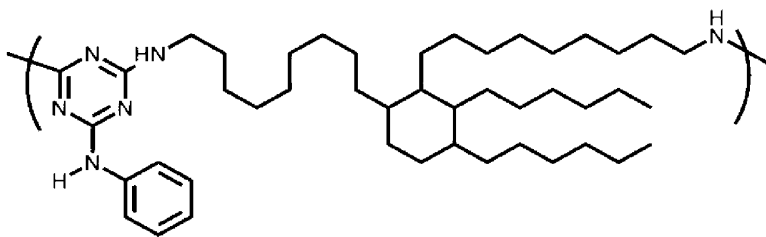
표 1

	중합체 종	중합체 용액의 농도 [wt%]	Mw	T _g [°C]	연화점 [°C]	Td5 [°C]	Df [10GHz]	용해성	도포성	구리박 밀착성	금기재 밀착성	실온 접착성
실시예 1	(10)	30	47,000	—	60	430	0.0025	A	A	A	A	—
실시예 2	(11)	30	20,000	—	110	—	0.0031	A	A	A	A	—
실시예 3	(12)	30	27,000	—	90	410	0.0027	A	A	A	A	—
실시예 4	(13)	30	20,000	—	85	—	0.0045	A	A	A	A	—
실시예 5	(14)	30	23,000	-36	—	340	0.0121	A	A	A	A	A
실시예 6	(15)	30	19,000	-48	—	370	0.0132	A	A	A	A	A
실시예 7	(16)	30	14,000	14	—	420	0.0141	A	A	A	A	—
실시예 8	(17)	30	23,000	30, -50	—	405	0.0136	A	A	A	A	—
실시예 9	(18)	30	6,100	12, -35	—	380	0.0152	A	A	A	A	—
실시예 10	(19)	30	5,200	11, -37	—	410	0.0123	A	A	A	A	—
실시예 11	(22)	30	18,000	-34	—	430	0.0119	A	A	A	A	A
실시예 12	(23)	30	16,000	-18	—	425	0.0105	A	A	A	A	A
실시예 13	(24)	30	10,000	-1	—	440	0.0184	A	A	A	A	—
실시예 20	(25)	30	28,000	83	—	451	0.0026	A	A	A	A	—
실시예 21	(26)	30	26,000	54	—	420	0.0032	A	A	A	A	—
실시예 22	(27)	30	21,000	62	—	425	0.0035	A	A	A	A	—
실시예 23	(28)	30	24,000	59	—	430	0.0042	A	A	A	A	—
실시예 24	(29)	30	19,000	62	—	440	0.0025	A	A	A	A	—
실시예 25	(50)	30	20,000	50	—	430	0.0021	A	A	A	A	—
실시예 26	(51)	30	21,000	55	—	425	0.0027	A	A	A	A	—
실시예 27	(52)	30	18,000	73	—	423	0.0029	A	A	A	A	—
실시예 28	(53)	30	15,000	62	—	431	0.0024	A	A	A	A	—
실시예 A1	(39)	30	26,000	18	—	420	0.0036	A	A	A	A	—
실시예 A2	(40)	30	10,000	21	—	421	0.0029	A	A	A	A	—
실시예 A3	(41)	30	17,000	25	—	414	0.0032	A	A	A	A	—
실시예 A4	(42)	30	13,000	23	—	410	0.0027	A	A	A	A	—
실시예 A5	(43)	30	16,000	22	—	413	0.0032	A	A	A	A	—
실시예 A6	(44)	30	11,000	-15	—	430	0.0041	A	A	A	A	A
실시예 A7	(45)	30	12,000	-10	—	423	0.0039	A	A	A	A	A
실시예 A8	(46)	30	21,000	29	—	421	0.0029	A	A	A	A	—
비교예 1	(30)	30	가교 때문에 측정 불가	—	38	410	0.0023	A	B	B	B	B
비교예 2	(31)	30	가교 때문에 측정 불가	—	35	370	0.0170	A	B	B	A	B
비교예 3	(32)	15	57,000	198	—	367	0.0061	B	B	—	—	B
비교예 4	(33)	15	38,000	181	—	—	0.0073	B	B	—	—	B
비교예 5	(34)	15	63000	241	—	426	0.0125	B	A	—	A	B
비교예 6	(35)	15	17,000	185	—	411	—	B	B	—	—	B
비교예 7	(36)	15	26000(가용부)	—	—	—	—	B	B	—	—	B
비교예 8	(37)	30	43,000	233	—	475	—	B	A	B	B	B
비교예 9	(38)	10	157,000	240	—	519	—	B	B	B	B	B

[0521]

[0522] (합성예 1)

[0523] 교반 장치를 구비한 4구 세퍼러블 플라스크에, 2-페닐아미노-4,6-디클로로-s-트리아진(AnDCT)(13.2g), 다이머디아민(Priamine 1075)(30.8g), 및 탄산칼륨(8.7g)을 채서 넣고, 거기에, N-메틸-2-피롤리돈(71.9g) 및 물(30.8g)을 첨가하고, 질소 분위기 하에서, 100°C에서 20시간 반응시켰다. 반응 종료 후, 메탄올 응고, 여과, 메탄올 세정을 행하여, 하기 식 (21)로 표시되는 반복 단위를 포함하는 목적의 중합체 (21) 31g(수량 76%)을 얻었다.



(2 1)

[0524]

[0525] [2] 조성물 (I)

[0526] (실시예 20)

[0527] 유리병 중에, 고형분 농도가 30질량%가 되도록 중합체 (21)과 시클로헥사논을 넣고, 중합체 (21)을 용해했다. 얻어진 중합체 용액을 16.7g(중합체 (21)의 양: 5g), 경화성 화합물로서 2,2-비스(4-시아나토펜일)프로판(도교가세이 고교(주)제)을 5g, 경화 보조제로서 옥틸산아연(후지 필름 와코준야쿠(주)제) 0.5g, 추가 용제로서 고형분 농도가 35질량%가 되도록 시클로헥사논을 첨가하여, 믹스 로터로 충분히 교반함으로써, 상분리 없이 균일하게 혼합한 조성물을 조제했다.

- [0528] 조제한 조성물을 바 코터로 구리박(CF-T9DA-SV[후쿠다 킨조쿠 하쿠훈 고교(주)제]) 상에 도포하고, 오븐을 사용하여, 250℃에서 3시간, 질소 하에서 가열함으로써, 경화물 구비 구리박을 얻었다. 얻어진 경화물 구비 구리박을, 염화철(III) 40% 수용액에 침지함으로써 구리박을 제거하고, 얻어진 경화물을 이온 교환수로 4회 세정하고, 두께 30±5 μ m의 평가용 필름 샘플을 제작했다.
- [0529] (실시에 21 내지 33, 40 내지 43 및 비교예 20 내지 23)
- [0530] 표 2에 나타내는 각 성분을, 표 2에 나타내는 질량비(중합체와 경화성 화합물과의 질량비)로 사용한 것 이외에는, 실시예 20과 마찬가지로 방법으로 조성물을 조제하고, 평가용 필름 샘플을 제작했다.
- [0531] 또한, 실시예 25 및 비교예 23에서는, 경화성 화합물로서, 시아네이트 화합물 A와 에폭시 화합물 D를 50:50의 질량비로 사용했다.
- [0532] (실시에 34)
- [0533] 유리병 중에, 실시예 1에서 얻어진 중합체 (10)의 중합체 용액을 16.7g(중합체 (10)의 양: 5g), 경화성 화합물로서 2,2-비스(4-시아나토펜일)프로판(도쿄 가세이 고교(주)제)을 5g, 경화 보조제로서 옥틸산아연(후지 필름 와코준야쿠(주)제) 0.5g, 추가 용제로서 고휘분 농도가 35질량%가 되도록 시클로헥사논을 첨가하여, 믹스 로터로 충분히 교반함으로써, 상분리 없고 균일하게 혼합한 조성물을 조제했다.
- [0534] 조제한 조성물을 바 코터로 구리박(CF-T9DA-SV[후쿠다 킨조쿠 하쿠훈 고교(주)제]) 상에 도포하고, 오븐을 사용하여, 250℃에서 3시간, 질소 하에서 가열함으로써, 경화물 구비 구리박을 얻었다. 얻어진 경화물 구비 구리박을, 염화철(III) 40% 수용액에 침지함으로써 구리박을 제거하고, 얻어진 경화물을 이온 교환수로 4회 세정하고, 두께 30±5 μ m의 평가용 필름 샘플을 제작했다.
- [0535] (실시에 35 내지 39, 실시예 44 내지 49 및 실시예 90 내지 109)
- [0536] 표 2에 나타내는 각 성분을, 표 2에 나타내는 질량비(중합체와 경화성 화합물과의 질량비)로 사용한 것 이외에는, 실시예 34와 마찬가지로 방법으로 조성물을 조제하고, 평가용 필름 샘플을 제작했다.
- [0537] [3] 조성물 (II)
- [0538] (실시에 50)
- [0539] 유리병 중에, 고휘분 농도가 30질량%가 되도록 중합체 (21)과 시클로헥사논을 넣고, 중합체 (21)을 용해했다. 얻어진 중합체 용액을 9.3g(중합체 (21)의 양: 2.79g), 필러로서, 애드마파인 SC2500-SQ((주)애드마텍스제)을 1.2g, 추가 용제로서 고휘분 농도가 35질량%가 되도록 시클로헥사논을 첨가하여, 믹스 로터로 충분히 교반함으로써, 상분리 없고 균일하게 혼합한 조성물을 조제했다.
- [0540] 조제한 조성물을 바 코터로 구리박(CF-T9DA-SV[후쿠다 킨조쿠 하쿠훈 고교(주)제]) 상에 도포하고, 오븐을 사용하여, 250℃에서 3시간, 질소 하에서 가열함으로써, 경화물 구비 구리박을 얻었다. 얻어진 경화물 구비 구리박을, 염화철(III) 40% 수용액에 침지함으로써 구리박을 제거하고, 얻어진 경화물을 이온 교환수로 4회 세정하고, 두께 30±5 μ m의 평가용 필름 샘플을 제작했다.
- [0541] (실시에 51 내지 59 및 비교예 30 내지 34)
- [0542] 표 4에 나타내는 각 성분을, 표 4에 나타내는 질량비로 사용한 것 이외에는, 실시예 50과 마찬가지로 방법으로 조성물을 조제하고, 평가용 필름 샘플을 제작했다.
- [0543] (실시에 60)
- [0544] 유리병 중에, 실시예 5에서 얻어진 중합체 (14)의 용액을 9.3g(중합체 (14)의 양: 2.79g), 필러로서, 애드마파인 SC2500-SQ((주)애드마텍스제)를 1.2g, 추가 용제로서 고휘분 농도가 35질량%가 되도록 시클로헥사논을 첨가하여, 믹스 로터로 충분히 교반함으로써, 상분리 없고 균일하게 혼합한 조성물을 조제했다.
- [0545] 조제한 조성물을 바 코터로 구리박(CF-T9DA-SV[후쿠다 킨조쿠 하쿠훈 고교(주)제]) 상에 도포하고, 오븐을 사용하여, 250℃에서 3시간, 질소 하에서 가열함으로써, 경화물 구비 구리박을 얻었다. 얻어진 경화물 구비 구리박을, 염화철(III) 40% 수용액에 침지함으로써 구리박을 제거하고, 얻어진 경화물을 이온 교환수로 4회 세정하고, 두께 30±5 μ m의 평가용 필름 샘플을 제작했다.
- [0546] (실시에 61 내지 72)

- [0547] 표 4에 나타내는 각 성분을, 표 4에 나타내는 질량비(중합체와 필러와의 질량비)로 사용한 것 이외에는, 실시예 60과 마찬가지로 방법으로 조성물을 조제하고, 평가용 필름 샘플을 제작했다.
- [0548] [4] 조성물 (III)
- [0549] (실시예 B1)
- [0550] 유리병 중에, 고형분 농도가 30질량%가 되도록, 중합체 (21) 및 시클로헥사논을 넣고, 중합체 (21)을 용해함으로써, 중합체 (21)의 용액을 얻었다. 중합체 (21)의 용액(0.63g, 중합체 (21) 0.19g), 및 경화성 화합물로서 2,2-비스(4-글리시딜옥시페닐)프로판(도표 가세이 고교(주)제)(10.1g)을 유리병 중에서 믹스 로터를 사용해서 충분히 교반함으로써, 용액 X를 얻었다.
- [0551] 또한, 반응성 희석제로서 4-메틸시클로헥산-1,2-디카르복실산 무수물(cis-, trans-혼합물)(8.9g)과, 경화 보조제로서 1-벤질-2-메틸이미다졸(도표 가세이 고교(주)제)(0.10g)을 유리병 중에서 믹스 로터를 사용해서 충분히 교반함으로써, 용액 Y를 얻었다.
- [0552] 얻어진 용액 X와 용액 Y를 믹스 로터로 혼합하고 조성물 Z를 조제했다.
- [0553] 조제한 조성물 Z를 바 코터로 구리박(CF-T9DA-SV[후쿠다 킨조쿠 하쿠혼 고교(주)제]) 상에 도포하고, 오븐을 사용하여, 200℃에서 3시간, 질소 하에서 가열함으로써, 경화막 구비 구리박을 얻었다. 얻어진 경화막 구비 구리박을, 염화철(III) 40% 수용액에 침지함으로써 구리박을 제거하고, 얻어진 경화막을 이온 교환수로 4회 세정하고, 두께 30±5μm의 평가용 필름 샘플을 제작했다.
- [0554] (실시예 B2 내지 B3)
- [0555] 각 성분을, 표 5에 나타내는 종류와 질량비(중합체/경화성 화합물/반응성 희석제/경화 보조제의 질량비)로 사용한 것 이외에는, 실시예 B1과 마찬가지로 방법으로 조성물을 조제하고, 평가용 필름 샘플을 제작했다.
- [0556] (실시예 B4)
- [0557] 중합체 (39)의 용액(0.63g) 및 경화성 화합물로서 2,2-비스(4-글리시딜옥시페닐)프로판(도표 가세이 고교(주)제)(10.1g)을 유리병 중에서 믹스 로터를 사용해서 충분히 교반함으로써, 용액 X를 얻었다.
- [0558] 또한, 반응성 희석제로서 4-메틸시클로헥산-1,2-디카르복실산 무수물(cis-, trans-혼합물)(8.9g)과, 경화 보조제로서 1-벤질-2-메틸이미다졸(도표 가세이 고교(주)제)(0.10g)을 유리병 중에서 믹스 로터를 사용해서 충분히 교반함으로써, 용액 Y를 얻었다.
- [0559] 얻어진 용액 X와 용액 Y를 믹스 로터로 혼합해 조성물 Z를 조제했다.
- [0560] 조제한 조성물 Z를 바 코터로 구리박(CF-T9DA-SV[후쿠다 킨조쿠 하쿠혼 고교(주)제]) 상에 도포하고, 오븐을 사용하여, 200℃에서 3시간, 질소 하에서 가열함으로써, 경화막 구비 구리박을 얻었다. 얻어진 경화막 구비 구리박을, 염화철(III) 40% 수용액에 침지함으로써 구리박을 제거하고, 얻어진 경화막을 이온 교환수로 4회 세정하고, 두께 30±5μm의 평가용 필름 샘플을 제작했다.
- [0561] (실시예 B5 내지 B8)
- [0562] 각 성분을, 표 5에 나타내는 종류와 질량비(중합체/경화성 화합물/반응성 희석제/경화 보조제의 질량비)로 사용한 것 이외에는, 실시예 B4와 마찬가지로 방법으로 조성물을 조제하고, 평가용 필름 샘플을 제작했다.
- [0563] (실시예 B9)
- [0564] 중합체 (43)(0.26g), 경화성 화합물로서 2,2-비스(4-글리시딜옥시페닐)프로판(도표 가세이 고교(주)제)(4.18g), 및 DAW-01DC(덴카(주)제)(12.0g)을 유리병 중에서 믹스 로터를 사용해서 충분히 교반함으로써, 용액 X를 얻었다.
- [0565] 또한, 반응성 희석제로서 4-메틸시클로헥산-1,2-디카르복실산 무수물(cis-, trans-혼합물)(3.7g)과, 경화 보조제로서 1-벤질-2-메틸이미다졸(도표 가세이 고교(주)제)(0.042g)을 유리병 중에서 믹스 로터를 사용해서 충분히 교반함으로써, 용액 Y를 얻었다.
- [0566] 얻어진 용액 X와 용액 Y를 믹스 로터로 혼합해 조성물 Z를 조제했다.
- [0567] 조제한 조성물 Z를 바 코터로 구리박(CF-T9DA-SV[후쿠다 킨조쿠 하쿠혼 고교(주)제]) 상에 도포하고, 오븐을 사

용하여, 200℃에서 3시간, 질소 하에서 가열함으로써, 경화막 구비 구리박을 얻었다. 얻어진 경화막 구비 구리박을, 염화철(III) 40% 수용액에 침지함으로써 구리박을 제거하고, 얻어진 경화막을 이온 교환수로 4회 세정하고, 두께 30±5 μ m의 평가용 필름 샘플을 제작했다.

[0568] (실시예 B10)

[0569] 각 성분을, 표 5에 나타내는 종류와 질량비(중합체/경화성 화합물/반응성 희석제/경화 보조제/필러의 질량비)로 사용한 것 이외에는, 실시예 B9와 마찬가지로 방법으로 조성물을 조제하고, 평가용 필름 샘플을 제작했다.

[0570] [5] 조성물 (IV)

[0571] (실시예 D1)

[0572] 유리병 중에, 중합체 (21), 경화성 화합물, 필러, 경화 보조제, 및 기타 중합체를 표 5에 기재된 질량비가 되도록 넣고, 추가 용제로서 고형분 농도가 65질량%가 되도록 톨루엔/메틸에틸케톤=1/1(질량비)을 첨가하고, 믹스 로터로 충분히 혼합 교반함으로써, 조성물을 조제했다.

[0573] 조제한 조성물을 바 코터로 구리박(CF-T9DA-SV[후쿠다 킨조쿠 하쿠훈 고교(주)제]) 상에 도포하고, 오븐을 사용하여, 200℃에서 3시간, 질소 하에서 가열함으로써, 경화막 구비 구리박을 얻었다. 얻어진 경화막 구비 구리박을, 염화철(III) 40% 수용액에 침지함으로써 구리박을 제거하고, 얻어진 경화막을 이온 교환수로 4회 세정하고, 두께 30±5 μ m의 평가용 필름 샘플을 제작했다.

[0574] (실시예 D2 내지 D20 및 비교예 35 내지 36)

[0575] 표 5에 나타내는 각 성분을, 표 5에 나타내는 질량비(중합체와, 경화성 화합물과, 경화 보조제와, 필러와, 기타 중합체와의 질량비)로 사용한 것 이외에는, 실시예D1과 마찬가지로 방법으로 조성물을 조제하고, 평가용 필름 샘플을 제작했다.

[0576] <조성물 외관>

[0577] 상기 조성물 (I)로 조제한 조성물의 외관을 눈으로 보아 관찰했다. 조성물의 조제에 사용한 각 성분이 상용하고 있어, 침전이나 상분리가 관찰되지 않은 경우를 「A」, 침전이나 상분리가 관찰되었을 경우를 「B」로서 평가했다. 결과를 표 2에 나타낸다.

[0578] <반응성>

[0579] 상기 조성물 (I) 및 조성물 (III)로 조제한 조성물을, 얻어지는 경화막의 두께가 20 내지 30 μ m가 되도록 베이커 식 애플리케이션(간극: 125 μ m)로 구리박(CF-T9DA-SV[후쿠다 킨조쿠 하쿠훈 고교(주)제]) 상에 도공한 후, 70℃에서 3분간, 이어서 130℃에서 3분간 예비 건조하고, 추가로 150℃에서 30분간, 이어서 250℃에서 3시간, 질소 분위기 하에서 용매를 증발시킴으로써 구리박 구비 경화막을 얻었다. 얻어진 구리박 구비 경화막을, 메틸에틸케톤(MEK) 1.5L 중에 실온에서 10분간 침지한 후, 120℃에서 3시간 진공 건조시켰다. 이하의 식에 의해, 질량 변화율을 산출하고, 해당 질량 변화율이 80% 이상인 경우를 「A」, 질량 변화율이 80% 미만인 경우를 「B」로 하였다. 중합체와 경화성 화합물과의 반응이 진행될수록 상기 질량 변화율은 큰 값을 나타낸다. 결과를 표 2 및 표 6에 나타낸다.

[0580] 질량 변화율(%)=진공 건조 후의 구리박 구비 경화막의 질량/MEK에 침지 전의 구리박 구비 경화막의 질량×100

[0581] <5% 질량 감소 온도(Td5)>

[0582] 상기 조성물 (I) 및 조성물 (III)에서 제작한 각 평가용 필름 샘플의 5% 질량 감소 온도(Td5)은, 차동형 시차 열분석(DSC) 장치의 「G209 F1 Libra」)를 사용하여, 질소 분위기 하에서, 승온 속도 10℃/분의 조건에서 얻어진 열 질량 곡선으로부터, 평가용 필름 샘플의 질량이 무게에서 5질량% 감소했을 때가 온도로 하였다. 결과를 표 2 예비 표 4에 나타낸다.

[0583] <인장 신율>

[0584] 인장 신율은 상기 조성물 (I) 및 조성물 (II)에서 제작한 평가용 필름 샘플을, JIS K 6251:2017에 기재된 덤벨 상 7호 형에 잘라내고, 소형 탁상 시험기 ((주)시마즈 세이사쿠쇼제, 「EZ-LX」)를 사용하여, 실온, 5.0mm/min의 조건에서 인장 시험을 실시해서 측정했다. 결과를 표 2 예비 표 4에 나타낸다.

[0585] 또한, 비교예 30 및 31에서 얻어진 평가용 필름 샘플을 사용한 경우에는, 인장 신율의 측정중에 막이 붕괴(막

붕괴)되어버려, 인장 신율의 측정을 할 수 없었다.

[0586] <금 기재 밀착성>

[0587] 상기 조성물 (I)로 조제한 조성물을, 얻어지는 도막의 두께가 10 내지 20 μm 가 되도록 금 스퍼터 웨이퍼 상에 스펀 코트로 제막하고, 70 $^{\circ}\text{C}$ 에서 5분간, 이어서 150 $^{\circ}\text{C}$ 에서 5분간 예비 건조하고, 추가로 250 $^{\circ}\text{C}$ 에서 1시간, 질소 분위기 하에서 용매를 증발시킴으로써 도막을 형성했다. 해당 도막 표면에, 에폭시 수지를 부착시킨 스테르드 핀을, 형성한 도막과 에폭시 수지가 접하도록 고정하고, 160 $^{\circ}\text{C}$ 에서 1시간 경화하고, 박막 밀착 강도 측정기 (QuadGroup사제)을 사용해서 20N/s의 측정 조건에서, 금 스퍼터 웨이퍼와 형성한 도막과의 밀착성을 평가했다. 스테르드 핀의 에폭시 수지가 파괴 한 경우를 「A」, 도막이 금 스퍼터 웨이퍼와의 계면에서 박리 한 경우를 「B」로서 평가했다. 결과를 표 2에 나타낸다.

[0588] <접착성>

[0589] 상기 조성물 (I)로 조제한 조성물 중, 실시예 38 내지 39, 실시예 44 내지 45, 실시예 104 내지 106 및 비교예 21 내지 22에서 얻어진 조성물을, 얻어지는 도막의 두께가 20 내지 30 μm 가 되도록, 구리박(CF-T9DA-SV[후쿠다킨조쿠 하쿠혼 고교(주)제]) 상에 애플리케이션을 사용해서 도포하고, 70 $^{\circ}\text{C}$ 에서 5분간, 이어서 150 $^{\circ}\text{C}$ 에서 5분간 예비 건조하고, 추가로 220 $^{\circ}\text{C}$ 에서 1시간, 질소 분위기 하에서 용매를 증발시킴으로써 도막을 형성했다. 도막 구비 구리박의 도막측에, 두께 50 μm 의 폴리이미드 필름(도레이·듀퐁(주)제, 「캡톤 200H」)을, 수지제 수동 롤러로 실온(실시예 38 내지 39, 실시예 44 내지 45, 실시예 104 내지 105) 또는 80 $^{\circ}\text{C}$ (실시예 106, 비교예 21, 22)에서 라미네이트해서 샘플을 제작했다. 그 후, 제작한 샘플로부터 폴리이미드 필름을 박리함으로써 접착성을 평가했다. 라미네이트에 의해 접착성을 갖는, 즉 접착성이 있고 점착 테이프와 같이 가접착 가능한 경우를 「A」, 접착성이 없고, 가접착할 수 없고 박리한 경우를 「B」로서 평가했다. 결과를 표 3에 나타낸다.

[0590] <분산성>

[0591] 상기 조성물 (II) 내지 (IV)를, 해당 조성물을 조제하고 나서 3시간 정치하고, 눈으로 보아 필터의 침전이 보이지 않았던 경우를 「A」, 필터의 침전이 보였을 경우를 「B」로서 분산성을 평가했다. 결과를 표 4 예비 표 6에 나타낸다.

[0592] 또한, 비교예 33 및 34에서는, 조성물을 조제 할 때에 중합체가 시클로헥사논에 용해하지 않고, 불용(중합체 불용)이었다.

[0593] <자립막>

[0594] 상기 조성물 (II)를 사용해서 얻어진 경화물 구비 구리박으로부터 평가용 필름 샘플을 제작할 때에, 경화물 구비 구리박으로부터 구리박을 제거함으로써 얻어진 평가용 필름 샘플이, 핸들링 가능한 막이었던 경우를 「A」, 해당 평가용 필름 샘플이 무르게 무너지기 쉬운 막이었던 경우를 「B」, 해당 평가용 필름 샘플이 붕괴되어서 막이 얻어지지 않은 경우를 「막붕괴」로서 평가했다. 결과를 표 4에 나타낸다.

[0595] 또한, 비교예 33 및 34에서 조제한 조성물을 사용한 경우에는, 제막이 생길수 없고(제막 불가), 경화물 구비 구리박 자체를 얻을 수 없었다.

[0596] <구리박 밀착성>

[0597] 조제한 조성물 (II)를 구리박(CF-T9DA-SV[후쿠다킨조쿠 하쿠혼 고교(주)제])에 도포 후, 70 $^{\circ}\text{C}$ 에서 3분간, 이어서 130 $^{\circ}\text{C}$ 에서 3분간 예비 건조하고, 추가로 150 $^{\circ}\text{C}$ 에서 30분간, 이어서 250 $^{\circ}\text{C}$ 에서 3시간, 질소 분위기 하에서 용매를 증발시킴으로써, 중합체층(두께: 30 \pm 5 μm)과 구리박을 포함하는 적층체를 얻었다. 얻어진 적층체를, 폭 5mm \times 길이 10cm로 잘라내고, 인스트론사제 「Instron5567」을 사용하고, 500mm/분의 조건에서 90도 방향으로 인장하고, 「IPC-TM-6502.4.9」에 준거하여, 중합체층과 구리박 사이의 밀착 강도를 평가했다. 밀착 강도가 0.2N/mm 이상인 경우를 「A」, 0.2N/mm 미만인 경우를 「B」로서 평가했다.

[0598] <분산 안정성>

[0599] 실시예 B9 및 B10에서 조제한 조성물, 그리고, 조성물 (IV)를, 3일 정치 후, 눈으로 보아 필터의 침전이 보이지 않고 용액에 유동성이 있는 경우를 「A」, 필터의 침전이 보이고, 용액에 유동성이 없는 경우를 「B」로서 분산 안정성을 평가했다.

표 2

	중합체 종	경화성 화합물	경화보조제	중합체와 경화성 화합물 의 질량비	조성물 외관	반응 성	Td5 [°C]	인장 신율 [%]	구리박 밀착성
실시에 20	(21)	시아네이트 화합물 A	옥틸산 아연	50/50	A	A	343	24	A
실시에 21	(21)	시아네이트 화합물 B	옥틸산 아연	50/50	A	A	351	30	A
실시에 22	(21)	에폭시 화합물 A	이미다졸	50/50	A	A	343	11	A
실시에 23	(21)	에폭시 화합물 B	이미다졸	50/50	A	A	347	16	A
실시에 24	(21)	에폭시 화합물 C	이미다졸	50/50	A	A	370	8	A
실시에 25	(21)	시아네이트 화합물 A/ 에폭시 화합물 D (질량비 =50/50)	이미다졸	50/50	A	A	347	100	A
실시에 26	(21)	말레이미드 화합물	유기 과산화물	50/50	A	A	352	9	A
실시에 27	(21)	아크릴 화합물	유기 과산화물	50/50	A	A	340	12	A
실시에 28	(21)	알릴 화합물	유기 과산화물	50/50	A	A	346	9	A
실시에 29	(21)	비닐 화합물	유기 과산화물	50/50	A	A	360	5	A
실시에 30	(21)	메틸올 화합물	보레이트염	50/50	A	A	371	7	A
실시에 31	(21)	옥사졸린 화합물	-	50/50	A	A	353	8	A
실시에 32	(21)	옥사진 화합물	-	50/50	A	A	358	7	A
실시에 33	(21)	옥세탄 화합물	보레이트염	50/50	A	A	370	6	A
실시에 34	(10)	시아네이트 화합물 A	옥틸산 아연	50/50	A	A	342	31	A
실시에 35	(11)	시아네이트 화합물 A	옥틸산 아연	50/50	A	A	354	28	A
실시에 36	(12)	시아네이트 화합물 A	옥틸산 아연	50/50	A	A	348	5	A
실시에 37	(14)	시아네이트 화합물 A	옥틸산 아연	50/50	A	A	352	13	A
실시에 38	(14)	에폭시 화합물 A	이미다졸	50/50	A	A	361	15	A
실시에 39	(14)	말레이미드 화합물 A	유기 과산화물	50/50	A	A	352	27	A
실시에 40	(21)	에폭시 화합물 A	이미다졸	90/10	A	A	353	21	A
실시에 41	(21)	에폭시 화합물 A	이미다졸	70/30	A	A	343	16	A
실시에 42	(21)	에폭시 화합물 A	이미다졸	30/70	A	A	332	9	A
실시에 43	(21)	에폭시 화합물 A	이미다졸	10/90	A	A	337	8	A
실시에 44	(14)	에폭시 화합물 A	이미다졸	90/10	A	A	351	27	A
실시에 45	(14)	에폭시 화합물 A	이미다졸	10/90	A	A	361	7	A
실시에 46	(13)	에폭시 화합물 B	이미다졸	80/20	A	A	356	10	A
실시에 47	(13)	시아네이트 화합물 A	옥틸산 아연	90/10	A	A	373	5	A
실시에 48	(16)	에폭시 화합물 B	이미다졸	80/20	A	A	355	23	A
실시에 49	(16)	시아네이트 화합물 A	옥틸산 아연	90/10	A	A	381	11	A
실시에 90	(39)	에폭시 화합물 A	이미다졸	80/20	A	A	361	15	-
실시에 91	(39)	말레이미드 화합물 A	-	80/20	A	A	385	14	-
실시에 92	(40)	에폭시 화합물 A	이미다졸	80/20	A	A	356	15	-
실시에 93	(40)	말레이미드 화합물 A	-	80/20	A	A	369	8	-
실시에 94	(40)	아크릴 화합물	-	80/20	A	A	370	15	-
실시에 95	(41)	에폭시 화합물 A	이미다졸	80/20	A	A	386	7	-
실시에 96	(41)	말레이미드 화합물 A	-	80/20	A	A	356	13	-
실시에 97	(41)	아크릴 화합물	-	80/20	A	A	361	13	-
실시에 98	(42)	말레이미드 화합물 A	유기 과산화물	80/20	A	A	378	12	-
실시에 99	(42)	아크릴 화합물	유기 과산화물	80/20	A	A	360	13	-
실시에 100	(42)	알릴 화합물	유기 과산화물	80/20	A	A	363	13	-
실시에 101	(42)	비닐 화합물 A	유기 과산화물	80/20	A	A	365	14	-
실시에 102	(43)	에폭시 화합물 A	이미다졸	80/20	A	A	358	15	-
실시에 103	(43)	메틸올 화합물	보레이트염	80/20	A	A	354	9	-
실시에 104	(44)	에폭시 화합물 A	이미다졸	80/20	A	A	375	14	-
실시에 105	(44)	말레이미드 화합물 A	-	80/20	A	A	375	8	-
실시에 106	(45)	에폭시 화합물 A	이미다졸	80/20	A	A	358	14	-
실시에 107	(45)	메틸올 화합물	보레이트염	80/20	A	A	388	11	-
실시에 108	(46)	에폭시 화합물 A	이미다졸	80/20	A	A	382	11	-
실시에 109	(46)	말레이미드 화합물 A	-	80/20	A	A	386	9	-
비교예 20	-	시아네이트 화합물 A	옥틸산 아연	0/100	A	A	360	4	B
비교예 21	-	에폭시 화합물 A	이미다졸	0/100	A	A	332	3	B
비교예 22	-	말레이미드 화합물 A	유기 과산화물	0/100	A	A	341	6	B
비교예 23	-	시아네이트 화합물 A/ 에폭시 화합물 D (질량비 =50/50)	이미다졸	0/100	A	A	337	5	B

[0600]

표 3

	중합체 종	경화성 화합물	경화보조제	중합체와 경화성 화합물 의 질량비	접착성
실시에 38	(14)	에폭시 화합물 A	이미다졸	50/50	A
실시에 39	(14)	말레이미드 화합물 A	유기 과산화물	50/50	A
실시에 44	(14)	에폭시 화합물 A	이미다졸	90/10	A
실시에 45	(14)	에폭시 화합물 A	이미다졸	10/90	A
실시에 104	(44)	에폭시 화합물 A	이미다졸	80/20	A
실시에 105	(44)	말레이미드 화합물 A	-	80/20	A
실시에 106	(45)	에폭시 화합물 A	이미다졸	80/20	A
비교예 21	-	에폭시 화합물 A	이미다졸	0/100	B
비교예 22	-	말레이미드 화합물 A	유기 과산화물	0/100	B

[0601]

표 4

	중합체 종	질량 비	필러	질량 비	경화성 화합물	질량 비	경화보조제	질량 비	분산성	자립막	Td5 [°C]	인장 신율 [%]	구리막 밀착성
실시에 50	(21)	70	실리카A	30	—	—	—	—	A	A	421	205	A
실시에 51	(21)	30	실리카A	70	—	—	—	—	A	A	424	45	A
실시에 52	(21)	70	실리카B	30	—	—	—	—	A	A	417	198	A
실시에 53	(21)	30	실리카B	70	—	—	—	—	A	A	441	47	A
실시에 54	(21)	70	실리카C	30	—	—	—	—	A	A	413	187	A
실시에 55	(21)	30	실리카C	70	—	—	—	—	A	A	413	39	A
실시에 56	(21)	15	실리카A	70	시아네이트 화합물 A	15	옥틸산 아연	2.5	A	A	386	21	A
실시에 57	(21)	15	실리카A	70	에폭시 화합물 E	15	이미다졸	2.0	A	A	362	16	A
실시에 58	(21)	70	질화붕소	30	—	—	—	—	A	A	425	186	A
실시에 59	(21)	50	질화붕소	50	—	—	—	—	A	A	433	4	A
실시에 60	(14)	70	실리카A	30	—	—	—	—	A	A	353	203	A
실시에 61	(14)	30	실리카A	70	—	—	—	—	A	A	308	8	A
실시에 62	(14)	10	실리카A	90	—	—	—	—	A	A	312	3	A
실시에 63	(14)	70	실리카B	30	—	—	—	—	A	A	321	210	A
실시에 64	(14)	30	실리카B	70	—	—	—	—	A	A	332	51	A
실시에 65	(14)	10	실리카B	90	—	—	—	—	A	A	341	11	A
실시에 66	(14)	70	실리카C	30	—	—	—	—	A	A	305	202	A
실시에 67	(14)	30	실리카C	70	—	—	—	—	A	A	344	35	A
실시에 68	(14)	10	실리카C	90	—	—	—	—	A	A	329	19	A
실시에 69	(10)	70	실리카A	30	—	—	—	—	A	A	401	11	A
실시에 70	(12)	70	실리카A	30	—	—	—	—	A	A	402	14	A
실시에 71	(13)	70	실리카A	30	—	—	—	—	A	A	398	10	A
실시에 72	(16)	70	실리카A	30	—	—	—	—	A	A	397	176	A
비교예 30	—	—	실리카A	30	에폭시 화합물 E	70	이미다졸	2.0	B	막 붕괴	343	막 붕괴	B
비교예 31	—	—	실리카B	30	에폭시 화합물 E	70	이미다졸	2.0	B	막 붕괴	351	막 붕괴	B
비교예 32	—	—	실리카B	30	말레이미드 화합물 B	70	유기 과산화물	2.0	B	B	344	3	B
비교예 33	(32)	70	실리카B	30	—	—	—	—	중합체 불용	제막 불가	—	—	—
비교예 34	(34)	70	실리카B	30	—	—	—	—	중합체 불용	제막 불가	—	—	—

[0602]

표 5

		중합체	경화성 화합물	반응성 희석제	경화보조제	필러	기타 중합체	용매
B1	중류	(21)	에폭시 화합물 A	반응성 희석제 A	이미다졸	-	-	-
	질량비	0.98	52.25	46.25	0.52	-	-	-
B2	중류	(21)	에폭시 화합물 A	반응성 희석제 A	이미다졸	-	-	-
	질량비	0.10	52.71	46.66	0.53	-	-	-
B3	중류	(21)	에폭시 화합물 A	반응성 희석제 B	이미다졸	-	-	-
	질량비	0.98	52.84	45.66	0.52	-	-	-
B4	중류	(39)	에폭시 화합물 A	반응성 희석제 A	이미다졸	-	-	-
	질량비	0.98	52.36	46.14	0.52	-	-	-
B5	중류	(43)	에폭시 화합물 A	반응성 희석제 A	이미다졸	-	-	-
	질량비	0.98	52.50	46.25	0.52	-	-	-
B6	중류	(44)	에폭시 화합물 A	반응성 희석제 A	이미다졸	-	-	-
	질량비	0.98	52.50	46.25	0.52	-	-	-
B7	중류	(45)	에폭시 화합물 A	반응성 희석제 A	이미다졸	-	-	-
	질량비	0.98	52.50	46.25	0.52	-	-	-
B8	중류	(45)	에폭시 화합물 A	반응성 희석제 B	이미다졸	-	-	-
	질량비	0.98	52.84	45.66	0.52	-	-	-
B9	중류	(43)	에폭시 화합물 A	반응성 희석제 A	이미다졸	알루미나 A	-	-
	질량비	0.39	20.90	18.50	0.21	60.00	-	-
B10	중류	(45)	에폭시 화합물 A	반응성 희석제 B	이미다졸	알루미나 A	-	-
	질량비	0.39	20.90	18.50	0.21	60.00	-	-
D1	중류	(21)	에폭시 화합물 A	-	DMAP	알루미나 A	에스테르 수지	S1
	질량비	1.00	8.81	-	0.01	90.00	0.18	*
D2	중류	(21)	에폭시 화합물 A	-	DMAP	알루미나 B	에스테르 수지	S1
	질량비	1.05	9.27	-	0.02	89.47	0.19	*
D3	중류	(21)	에폭시 화합물 A	-	DMAP	실리카A/알루미나A(1/9 질량비)	에스테르 수지	S1
	질량비	1.00	8.81	-	0.01	90.00	0.18	*
D4	중류	(21)	에폭시 화합물 A	-	DMAP	실리카A/질화붕소(1/9 질량비)	에스테르 수지	S1
	질량비	1.00	8.81	-	0.01	90.00	0.18	*
D5	중류	(21)	에폭시 화합물 A	-	DMAP	알루미나A/질화붕소(1/9 질량비)	에스테르 수지	S1
	질량비	1.00	8.81	-	0.01	90.00	0.18	*
D6	중류	(21)	에폭시 화합물 A	-	이미다졸	알루미나 A	페놀 수지	S1
	질량비	1.00	8.81	-	0.01	90.00	0.18	*
D7	중류	(21)	에폭시 화합물 A	-	이미다졸	알루미나 B	페놀 수지	S1
	질량비	1.00	9.27	-	0.02	89.47	0.19	*
D8	중류	(39)	에폭시 화합물 A	-	DMAP	실리카A/질화붕소(1/9 질량비)	에스테르 수지	S1
	질량비	1.00	8.81	-	0.01	90.00	0.18	*
D9	중류	(43)	에폭시 화합물 A	-	DMAP	실리카A/질화붕소(1/9 질량비)	에스테르 수지	S1
	질량비	1.00	8.81	-	0.01	90.00	0.18	*
D10	중류	(44)	에폭시 화합물 A	-	DMAP	실리카A/질화붕소(1/9 질량비)	에스테르 수지	S1
	질량비	1.00	8.81	-	0.01	90.00	0.18	*
D11	중류	(45)	에폭시 화합물 A	-	DMAP	실리카A/질화붕소(1/9 질량비)	에스테르 수지	S1
	질량비	1.00	8.81	-	0.01	90.00	0.18	*
D12	중류	(39)	에폭시 화합물 F	-	이미다졸	알루미나 A	페놀 수지	S1
	질량비	1.00	8.81	-	0.01	89.99	0.19	*
D13	중류	(39)	에폭시 화합물 G	-	이미다졸	알루미나 A	페놀 수지	S1
	질량비	1.00	8.81	-	0.01	89.99	0.19	*
D14	중류	(39)	에폭시 화합물 A	-	이미다졸	알루미나 A	페놀 수지	S1
	질량비	1.00	7.16	-	0.50	89.56	1.79	*
D15	중류	(39)	에폭시 화합물 E	-	이미다졸	알루미나 A	페놀 수지	S1
	질량비	1.00	7.16	-	0.50	89.56	1.79	*
D16	중류	(39)	에폭시 화합물 A	-	이미다졸	알루미나 A	고무 A	S1
	질량비	1.00	7.16	-	0.50	89.56	1.79	*
D17	중류	(39)	에폭시 화합물 A	-	이미다졸	알루미나 A	고무 B	S1
	질량비	1.00	7.16	-	0.50	89.56	1.79	*
D18	중류	(39)	에폭시 화합물 A/ 비닐 화합물 B	-	이미다졸	알루미나 A	-	S1
	질량비	1.00	7.16/1.79	-	0.50	89.56	-	*
D19	중류	(43)	에폭시 화합물 A	-	이미다졸	알루미나 A	-	S1
	질량비	1.00	8.99	-	0.10	89.91	-	*
D20	중류	(43)	에폭시 화합물 A	-	이미다졸	실리카A/질화붕소(1/9 질량비)	-	S1
	질량비	1.00	8.99	-	0.10	89.91	-	*
비교 예	중류	-	에폭시 화합물 A	-	이미다졸	알루미나 A	페놀 수지	S1
	질량비	-	9.37	-	0.02	90.42	0.20	*
36	중류	-	에폭시 화합물 A	-	DMAP	실리카A/질화붕소(1/9 질량비)	에스테르 수지	S1
	질량비	-	9.37	-	0.02	90.42	0.20	*

* 교형분 농도가 65질량%가 되도록 조정

[0603]

표 6

		분산성	분산 안정성	반응성
실 시 예	B1	-	-	A
	B2	-	-	A
	B3	-	-	A
	B4	-	-	A
	B5	-	-	A
	B6	-	-	A
	B7	-	-	A
	B8	-	-	A
	B9	A	A	A
	B10	A	A	A
	D1	A	A	-
	D2	A	A	-
	D3	A	A	-
	D4	A	A	-
	D5	A	A	-
	D6	A	A	-
	D7	A	A	-
	D8	A	A	-
	D9	A	A	-
	D10	A	A	-
D11	A	A	-	
D12	A	A	-	
D13	A	A	-	
D14	A	A	-	
D15	A	A	-	
D16	A	A	-	
D17	A	A	-	
D18	A	A	-	
D19	A	A	-	
D20	A	A	-	
비 교 예	35	B	B	-
	36	B	B	-

[0604]

[0605] 또한, 표 2 내지 표 5 중의 경화성 화합물, 경화 보조제, 반응 희석제, 필러, 기타 중합체 및, 용매의 약칭은, 각각 이하와 같다.

[0606] <경화성 화합물>

[0607] · 시아네이트 화합물 A: 2,2-비스(4-시아나토펜일)프로판(도쿄 가세이 고교(주)제)

[0608] · 시아네이트 화합물 B: 1,3-비스[2-(4-시아나토펜일)프로판-2-일]벤젠

[0609] · 에폭시 화합물 A: 2,2-비스(4-글리시딜옥시페닐)프로판(도쿄 가세이 고교(주)제)

[0610] · 에폭시 화합물 B: jER872(미쓰비시케미컬(주)제)

[0611] · 에폭시 화합물 C: XD-1000(닛폰 가야쿠(주)제)

[0612] · 에폭시 화합물 D: 테나콜EX-991L(나가세 켄텍스(주)제)

[0613] · 에폭시 화합물 E: jER604(미쓰비시케미컬(주)제)

[0614] · 에폭시 화합물 F: 테이산 레진SG-P3(나가세 켄텍스(주)제)

[0615] · 에폭시 화합물 G: 테이산 레진SG-80H(나가세 켄텍스(주)제)

[0616] · 말레이미드 화합물 A: 비스(3-에틸-5-메틸-4-말레이미드 페닐)메탄(도쿄 가세이 고교(주)제)

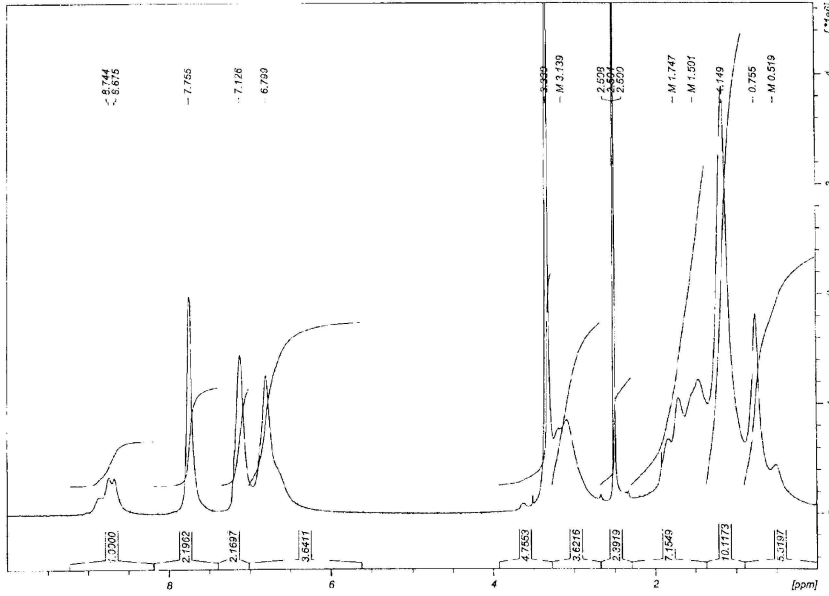
- [0617] · 말레이미드 화합물 B: ULTIMID3000A(ABC NANOTECH., LTD제)
- [0618] · 아크릴 화합물: 1,9-비스(아크릴로일옥시)노난(도쿄 가세이 고교(주)제)
- [0619] · 알릴 화합물: 트리알릴이소시아누레이트(도쿄 가세이 고교(주)제)
- [0620] · 비닐 화합물 A: 디비닐벤젠(도쿄 가세이 고교(주)제, m-, p-혼합물)
- [0621] · 비닐 화합물 B: RICON100(CRAY VALLY사제)
- [0622] · 메틸올 화합물: 2,4,6-트리스[비스(메톡시메틸)아미노]-1,3,5-트리아진(도쿄 가세이 고교(주)제)
- [0623] · 옥사졸린 화합물: 1,3-비스(4,5-디히드로-2-옥사졸릴)벤젠(도쿄 가세이 고교(주)제)
- [0624] · 옥사진 화합물: 2,2-비스(3,4-디히드로-3-메틸-2H-1,3-벤조옥사진)프로판(Macromolecules2003, 36, 8320-8329를 참고에 합성한 화합물)
- [0625] · 옥세탄 화합물: 메타크릴산(3-에틸옥세탄-3-일)메틸(도쿄 가세이 고교(주)제)
- [0626] <경화 보조제>
- [0627] · 옥틸산아연: 옥틸산아연(니혼 가가쿠 산교(주)제)
- [0628] · 이미다졸: 1-벤질-2-메틸이미다졸(도쿄 가세이 고교(주)제)
- [0629] · 유기 과산화물: 디쿠밀퍼옥사이드(니치유(주)제)
- [0630] · 보레이트염: 4-아세톡시페닐(디메틸)술포늄=테트라키스(펜타플루오로페닐)보레이트(산신 가가쿠 고교(주)제)
- [0631] · DMAP: 4-디메틸아미노피리딘(도쿄 가세이 고교(주)제)
- [0632] <반응 희석제>
- [0633] · 반응성 희석제 A: 4-메틸시클로hex산-1,2-디카르복실산 무수물(cis-, trans-혼합물)(도쿄 가세이 고교(주)제)
- [0634] · 반응성 희석제 B: o-크레실글리시딜에테르(윗카이치 고세(주)제)
- [0635] <필러>
- [0636] · 실리카 A: 에드마파인 SC2500-SQ((주)에드마텍스제)
- [0637] · 실리카 B: 에드마파인 SC2500-SXJ((주)에드마텍스제)
- [0638] · 실리카 C: 에드마파인 SC2500-SQ-SPJ((주)에드마텍스제)
- [0639] · 질화붕소: 질화붕소 UHP-1K(쇼와 덴코(주)제)
- [0640] · 알루미늄 A: DAW-01DC(덴카(주)제)
- [0641] · 알루미늄 B: CB-P02(쇼와 덴코(주)제)
- [0642] <기타 중합체>
- [0643] · 에스테르 수지: HPC-8000-65T(DIC(주)제)
- [0644] · 페놀 수지: PHENOLITE TD-2090(DIC(주)제)
- [0645] · 고무 A: 터프테크 M1913(아사히 가세이(주)제)
- [0646] · 고무 B: 터프테크 MP10(아사히 가세이(주)제)
- [0647] <용매>
- [0648] S1: 톨루엔/메틸에틸케톤=1/1(질량비)
- [0649] 본 중합체는, 내열성이 우수하고, 범용 용매에 가용이고, 구리 기재나 금 기재 등의 기재에 대한 도포성 및 밀착성이 우수하다. 또한, 본 중합체와, 다양한 경화성 화합물이나 필러 등을 적절히 조합함으로써 얻어지는 본 조성물에 의하면, 내열성이 우수하고, 구리 기재나 금 기재 등의 기재에 대한 도포성 및 밀착성이 우수한 경화물(경화물층)을 형성할 수 있다.

[0650]

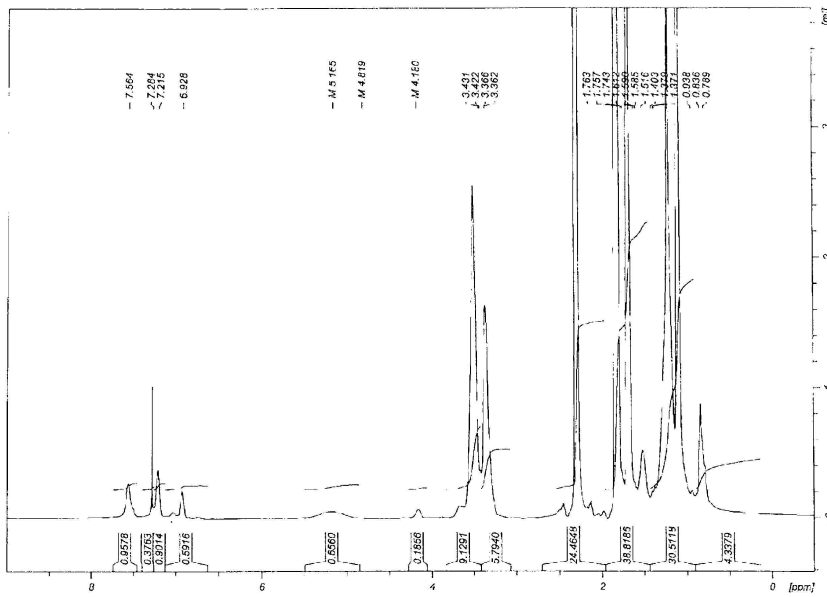
이 때문에, 본 중합체나 본 조성물은, 항공기 산업이나 자동차 산업 등의 수송기 산업으로 사용되는 구조용 재료, 전기 전자 산업으로 사용되는 전기 전자 재료 등의 폭넓은 분야에서 적합하게 사용할 수 있다.

도면

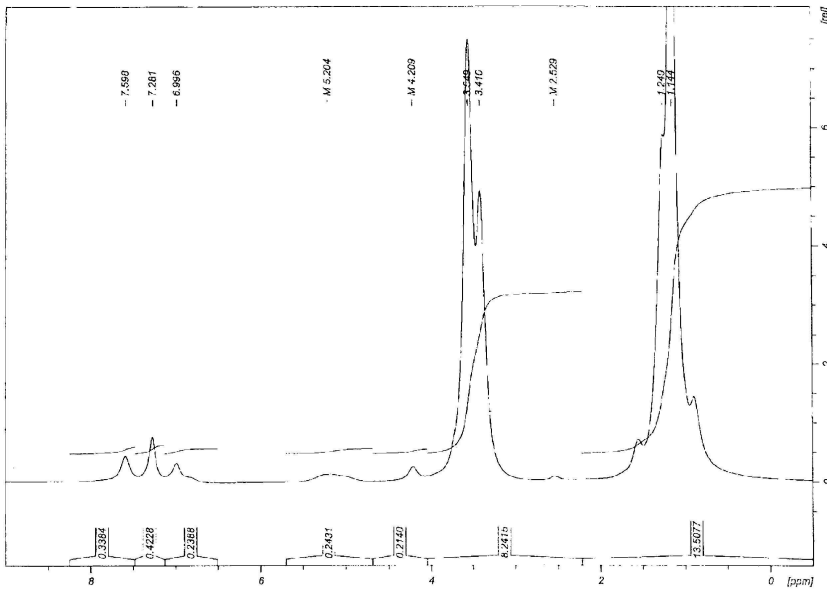
도면1



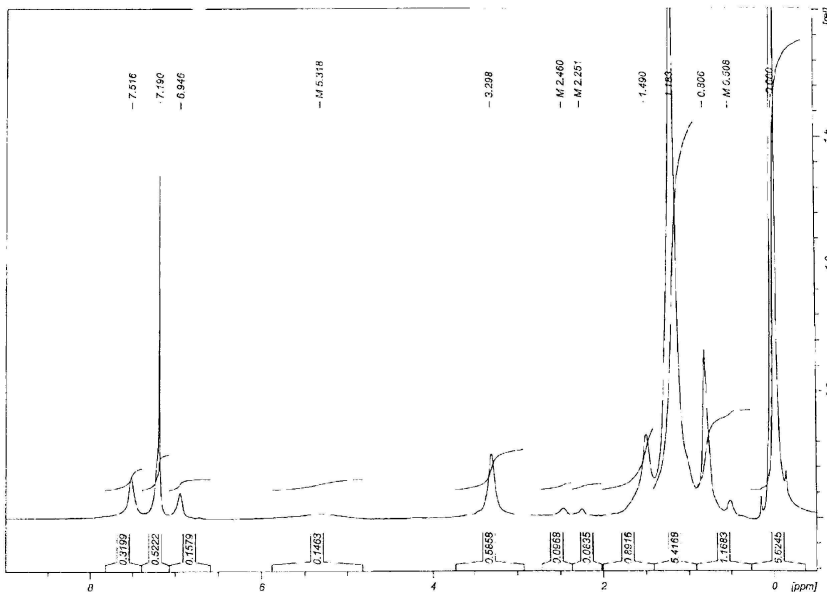
도면2



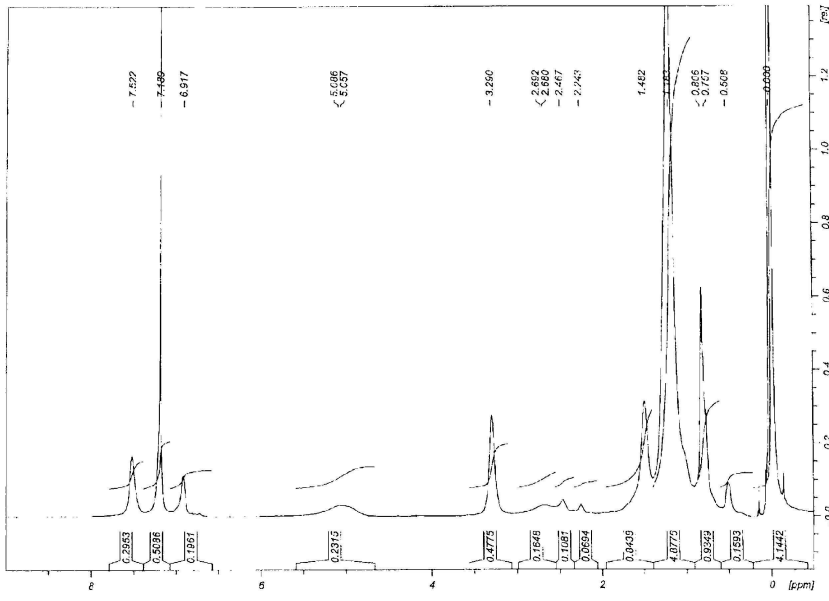
도면3



도면4



도면5



도면6

