(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2023-0164008
(43) 공개일자 2023년12월01일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C08K 7/26 (2006.01) *C01B 33/193* (2006.01)
C08K 3/36 (2006.01) *C08L 101/00* (2006.01)
(52) CPC특허분류
C08K 7/26 (2013.01)
C01B 33/193 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2023-7028419
(22) 출원일자(국제) 2022년03월30일
심사청구일자 없음
(85) 번역문제출일자 2023년08월22일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2022/016129
(87) 국제공개번호 WO 2022/210920
국제공개일자 2022년10월06일
(30) 우선권주장
JP-P-2021-060589 2021년03월31일 일본(JP)

(71) 출원인
니끼 쇼꾸바이 카세이 가부시키가이샤
일본, 212-0013, 가나가와, 가와사키, 사이와이-구, 호리가와-초 580, 솔리드 스퀘어 이스트 타워 16층
(72) 발명자
에가미, 미키
일본 8080027 후쿠오카켄 기타큐슈시 와카마츠쿠 기타미나토마치 13방 2고 니끼 쇼꾸바이 카세이 가부시키가이샤 기타큐슈 지교소 내
다니구치, 마사노부
일본 8080027 후쿠오카켄 기타큐슈시 와카마츠쿠 기타미나토마치 13방 2고 니끼 쇼꾸바이 카세이 가부시키가이샤 기타큐슈 지교소 내
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
한상욱, 오현식, 이석재

전체 청구항 수 : 총 7 항

(54) 발명의 명칭 **분체 및 그 제조 방법, 그리고 수지 조성물의 제조 방법**

(57) 요 약

본 발명은, 무공질의 외각의 내부에 공동을 갖는 중공 입자를 포함한 분체에 관한 것이다. 분체의 평균 입자경(D50)은 1.0 내지 10.0㎛이고, 입자경 1.0㎛ 미만의 미소 입자의 함유량이 10체적% 이하이고, 입자경 8.0㎛를 초과하는 조대 입자의 함유량이 20체적% 이하이다. 분체를 물에 현탁시켰을 때, 부유 입자가 0.5 내지 15.0질량%, 현탁 입자가 0 내지 4.0질량%, 침강 입자가 81.0 내지 99.5질량%이다.

(52) CPC특허분류
C08K 3/36 (2013.01)
C08L 101/00 (2013.01)
(72) 발명자
아라카네, 히로타다
일본 8080027 후쿠오카켄 기타큐슈시 와카마츠쿠 기타미나토마치 13방 2고 니끼 쇼꾸바이 카세이 가부시키가이샤 기타큐슈 지교소 내
무라구치, 료
일본 8080027 후쿠오카켄 기타큐슈시 와카마츠쿠 기타미나토마치 13방 2고 니끼 쇼꾸바이 카세이 가부시키가이샤 기타큐슈 지교소 내

명 세 서

청구범위

청구항 1

무공질의 외각의 내부에 공동을 갖는 중공 입자를 포함하는 분체이며,

상기 분체의 평균 입자경(D50)이 1.0 내지 10.0㎛이고, 입자경 1.0㎛ 미만의 미소 입자의 함유량이 10체적% 이하이고, 입자경 8.0㎛를 초과하는 조대 입자의 함유량이 20체적% 이하이고,

상기 분체를 물에 현탁시켰을 때, 부유 입자가 0.5 내지 15.0질량%, 현탁 입자가 0 내지 4.0질량%, 침강 입자가 81.0 내지 99.5질량%인 것을 특징으로 하는 분체.

청구항 2

제1항에 있어서, 입도 변동 계수(CV값)가 60% 이하인, 분체.

청구항 3

제1항 또는 제2항에 기재된 분체를 수지 재료에 배합하는 것을 특징으로 하는 수지 조성물의 제조 방법.

청구항 4

규산 알칼리 수용액을 열풍 기류 중에서 분무 건조시켜 입자를 조제하는 제1 공정과,

상기 입자에 포함되는 알칼리를 제거하는 제2 공정과,

상기 알칼리 제거된 입자를 소성하는 제3 공정

을 갖고,

상기 제1 공정과 상기 제3 공정 사이에, 입자경 1.0㎛ 미만의 미소 입자 및 입자경 8.0㎛를 초과하는 조대 입자를 제거하는 분급 공정이 마련된 것을 특징으로 하는 분체의 제조 방법.

청구항 5

제4항에 있어서, 상기 제2 공정에 있어서, 입자에 포함되는 알칼리양을 300ppm 이하로 저감시키는 것을 특징으로 하는 분체 제조 방법.

청구항 6

제4항 또는 제5항에 있어서, 상기 제3 공정 전에, 상기 중공 입자를 건조시키는 건조 공정이 마련됨과 함께,

상기 건조 공정과 상기 제3 공정 사이에, 상기 분급 공정이 마련된 것을 특징으로 하는 분체의 제조 방법.

청구항 7

제4항 내지 제6항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 분급 공정에 있어서, 상기 미소 입자와 상기 조대 입자가 습식 분급 처리에 의해 제거되는 것을 특징으로 하는 분체의 제조 방법.

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] 본 발명은, 반도체의 절연 재료의 필러로서 적합한 분체에 관한 것이다. 특히, 무공질의 외각의 내부에 공동을 갖는 중공 입자를 포함하는 분체에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0002] 근년, 정보 통신에 있어서 고속·대용량화가 진행되고 있다. 그 때문에, 통신 기기에 사용되는 자재에는, 낮은 유전율(저Dk) 및 낮은 유전 정접(저Df)이 요구되고 있다. 예를 들어, 반도체 소자가 실장되는 프린트 배선판에

는, 낮은 유전율 및 낮은 유전 정접을 갖는 절연 재료가 요구되고 있다. 절연 재료의 유전율이 높으면 유전 손실이 발생하고, 또한 절연 재료의 유전 정접이 높으면, 유전 손실뿐만 아니라, 발열량이 증대될 우려가 있다.

[0003] 절연 재료의 저유전율화 및 저유전 정접화를 실현하기 위해, 절연 재료의 주체인 수지 재료의 개발이 행해지고 있다. 이러한 수지 재료로서, 에폭시계 수지, 폴리페닐렌에테르계 수지, 불소계 수지 등이 제안되어 있다(예를 들어, 특허문헌 1 내지 5를 참조).

[0004] 이러한 수지 재료에는, 내구성(강성)이나 내열성 등의 점에서, 필러가 배합된다. 필러로서, 실리카, 질화붕소, 탈크, 카올린, 클레이, 마이카, 알루미나, 지르코니아, 티타니아 등의 금속 산화물을 사용하는 것이 알려져 있다(예를 들어, 특허문헌 3 참조).

선행기술문헌

특허문헌

[0005] (특허문헌 0001) WO2009/041137호

(특허문헌 0002) 일본 특허 공표 제2006-516297호 공보

(특허문헌 0003) 일본 특허 공개 제2017-057352호 공보

(특허문헌 0004) 일본 특허 공개 제2001-288227호 공보

(특허문헌 0005) 일본 특허 공개 제2019-172962호 공보

발명의 내용

해결하려는 과제

[0006] 필러로서 사용되는 재료 중, 실리카는, 저유전율 및 저유전 정접의 점에서 우수하다. 그러나, 데이터 통신의 대용량화 및 고속 처리화가 급속하게 진행되고 있기 때문에, 더한층의 저유전율화 및 저유전 정접화가 요구되고 있다. 또한, 필러에는, 절연 재료의 제조 프로세스에서의 절연 재료 형성용 액의 여과성 및 주입성을 방해하지 않는 것도 요구되고 있다.

과제의 해결 수단

[0007] 본 발명자들은, 미소 입자 및 조대 입자를 포함하지 않는 소정 조건을 충족시키는 중공 입자가, 절연 재료의 저유전율화 및 저유전 정접화를 실현할 수 있고, 또한 그 제조 프로세스에서의 절연 재료 형성용 액의 여과성 및 주입성을 방해하지 않는 것을 찾아냈다.

[0008] 즉, 본 발명에 의한 분체는, 무공질의 외각의 내부에 공동을 갖는 중공 입자를 포함하고 있고, 평균 입자경(D50)이 1.0 내지 10.0㎛, 입자경 1.0㎛ 미만인 미소 입자의 함유량이 10체적% 이하이고, 입자경 8.0㎛를 초과하는 조대 입자의 함유량이 20체적% 이하이다. 이 분체를 물에 현탁시켰을 때, 부유 입자가 0.5 내지 15.0질량%, 현탁 입자가 0 내지 4.0질량%, 침강 입자가 81.0 내지 99.5질량%이다.

[0009] 또한, 본 발명에 의한 분체의 제조 방법은, 규산 알칼리 수용액을 열풍 기류 중에서 분무 건조시켜 입자를 조제하는 제1 공정과, 입자에 포함되는 알칼리를 제거하는 제2 공정과, 알칼리 제거된 입자를 소성하는 제3 공정을 갖고, 제1 공정과 제3 공정 사이에, 입자경 1.0㎛ 미만의 미소 입자 및 입자경 8.0㎛를 초과하는 조대 입자를 제거하는 분급 공정이 마련되어 있다.

발명의 효과

[0010] 본 발명의 분체는, 절연 재료의 저유전율화 및 저유전 정접화를 가능하게 하고, 나아가서는, 반도체의 전송 속도의 고속화나 전송 손실의 저감을 도모할 수 있다. 또한, 반도체의 제조 프로세스에 있어서의 절연 재료 형성용 액의 여과성 및 주입성을 방해하지 않는 것이고, 우수한 절연 재료를 안정적으로 제조할 수 있다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0011] 본 발명의 분체는, 무공질의 외각의 내부에 공동을 갖는 중공 입자를 포함하고 있고, 평균 입자경이 1.0 내지 10.0㎛이다. 또한, 입자경 1.0㎛ 미만의 입자(이하, 미소 입자)의 함유량이 10체적% 이하이고, 입자경 8.0㎛를 초과하는 입자(이하, 조대 입자)의 함유량이 20체적% 이하이다. 이 분체를 물에 현탁시켰을 때, 부유 입자가 0.5 내지 15.0질량%, 현탁 입자가 0 내지 4.0질량%, 침강 입자가 81.0 내지 99.5질량%이다. 본 발명의 분체에는, 중공 입자 외에 소량의 중실 입자도 포함되어 있을 가능성이 있다. 중공 입자의 제조 시에, 예기치 않게 중실 입자도 제작될 가능성이 있기 때문이다. 내부에 공동이 없는 중실 입자는, 비중이 크므로, 기본적으로 침강 입자 중에 잠재되어 있다고 생각된다. 분체에 포함되는 입자의 90질량% 이상이 중공 입자인 것이 바람직하다.

[0012] 여기서, 물에 현탁시켰을 때 수중에 분산되는 입자를 현탁 입자라고 하고, 상층(수면 부근)에 부유하여 존재하는 비중이 가벼운 입자를 부유 입자라고 했다. 이러한 부유 입자는 통상적으로는 공극률이 높다. 따라서, 수지 재료에 배합되는 부유 입자가 증가하면, 수지 제품의 유전율 및 유전 정접이 저하된다.

[0013] 또한, 미소 입자의 함유량을 적게(10체적% 이하) 함으로써, 전체 입자의 총 표면적이 작아진다. 결과적으로, SiOH기량이 적어져, 유전율, 유전 정접화를 낮게 할 수 있다. 또한, 미소 입자가 적은 분체는, 부착성이 낮아져, 유동성이 향상된다. 그 때문에, 취급성이나 분산성도 향상된다. 미소 입자의 함유량은, 8체적% 이하가 바람직하고, 5체적% 이하가 보다 바람직하고, 3체적% 이하가 더욱 바람직하고, 1체적% 이하가 가장 바람직하다.

[0014] 또한, 분체에 포함되는 조대 입자를 적게(20체적% 이하) 함으로써, 분체가 배합된 수지 조성물은, 양호한 여과성이나 주입성을 갖는다. 그 때문에, 이 수지 조성물로 성형된 수지 성형물(수지 제품)은, 양호한 표면 평활성을 구비하고 있다. 또한, 부유 입자의 양을 0.5 내지 15.0질량%로 제어하고 있다. 부유 입자는 통상적으로는 공극률이 높고, 공극률이 높은 중공 입자는, 일반적으로 입자경이 크다. 따라서, 부유 입자의 양을 제어(저감)하는 것은, 조대 입자의 양을 제어(저감)하게 된다. 조대 입자의 함유량은, 15체적% 이하가 바람직하고, 10체적% 이하가 보다 바람직하고, 5체적% 이하가 더욱 바람직하고, 1체적% 이하가 가장 바람직하다.

[0015] 부유 입자는, 입자경(d)과 외각의 두께(t)의 비(t/d)가 작기 때문에, 입자 강도가 낮은 경향이 있다. 그 때문에, 수지 재료와 입자를 섞는 공정부터 수지 제품을 성형할 때까지의 동안(즉, 제조 프로세스 중)에, 입자가 깨질 우려가 있다. 깨진 입자는, 저유전율화 및 저유전 정접화의 방해가 됨과 함께, 수지 조성물의 유동성을 악화시켜, 수지 제품(성형물)의 균일성을 저하시키거나, 수지 제품의 내부에 보이드를 발생시키거나 하는 요인이 된다. 그러나, 부유 입자의 양을 제어함으로써, 입자의 깨짐을 억제할 수 있다.

[0016] 또한, 부유 입자의 양을 제어함으로써, 공극률이 높은 입자가 갖는 바람직한 특성(예를 들어, 저유전율화 및 저유전 정접화)을 확보하면서, 공극률이 높은 입자가 갖는 바람직하지 않은 특성(예를 들어, 깨짐의 발생)이 문제가 없을 정도로 억제할 수 있다. 부유 입자에는, 소경에서도 공극률이 높은 입자가 존재하고 있고, 이러한 입자는, 제조 프로세스에 있어서, 대경 입자에 비해 깨짐이 발생하기 어렵고, 전체로서, 공극률이 높은 입자가 갖는 바람직하지 않은 특성을 최대한 억제할 수 있다. 부유 입자의 함유량은, 0.5 내지 14.0질량%가 바람직하고, 0.5 내지 13.0질량%가 보다 바람직하고, 0.5 내지 12.0질량%가 더욱 바람직하다. 또한, 침강 입자의 함유량은, 82.0 내지 99.5질량%가 바람직하고, 83.0 내지 99.5질량%가 보다 바람직하고, 84.0 내지 99.5질량%가 더욱 바람직하다.

[0017] 또한, 분체의 평균 입자경(D50)은, 1.0 내지 10.0㎛의 범위에 있다. 평균 입자경이 1.0㎛ 미만인 경우, 미소 입자가 많이 포함되어 있기 때문에, 고비표면적(고SiOH기 함유량)이 되어, 우수한 유전 특성이 얻어지기 어렵다. 또한, 평균 입자경이 10㎛를 초과하는 분체는, 반도체 용도로서는 부적합하다. 반도체 용도의 경우, 평균 입자경은, 1.5 내지 10.0㎛가 바람직하고, 2.0 내지 5.0㎛가 보다 바람직하다.

[0018] 또한, 최대 입자경(D100)은, 50㎛ 이하가 바람직하고, 40㎛ 이하가 보다 바람직하고, 30㎛ 이하가 더욱 바람직하다. 최대 입자경(D100)은, 평균 입자경(D50)의 10배 이하가 바람직하고, 8배 이하가 보다 바람직하다. 통상적으로는, 2배 이상이고, 본 발명의 요건을 충족시키고 있으면, 5배를 초과해도 된다.

[0019] 또한, 분체의 입도 변동 계수(CV값)는 60% 이하가 적합하다. 이에 의해, 수지 재료에 배합한 경우에, 저유전율화 및 저유전 정접화를 안정적으로 실현할 수 있다. 또한, 수지 제품의 표면 평활성의 향상을 도모할 수 있다. 입도 변동 계수는 55% 이하가 보다 바람직하고, 50% 이하가 더욱 바람직하다.

[0020] 분체의 공극률은, 10체적% 이상이 바람직하고, 20체적% 이상이 보다 바람직하고, 30체적% 이상이 더욱 바람직하다. 또한, 70체적% 이하가 바람직하고, 60체적% 이하가 보다 바람직하고, 50체적% 이하가 더욱 바람직

하고, 40체적% 이하가 가장 바람직하다. 이러한 공극률에 의해, 저유전율화 및 저유전 정접화를 도모할 수 있음과 함께, 입자 강도를 소정 이상으로 유지하여 입자의 깨짐을 효과적으로 억제할 수 있다.

[0021] 여기서, 분체를 구성하는 입자는, 실리카를 주성분으로 하는 실리카계 입자가 적합하다. 따라서 분체에 포함되는 중공 입자(외각)는, 실리카 외에, 알루미나, 지르코니아, 티타니아 등의 무기 산화물을 포함하고 있어도 된다. 입자 중의 실리카의 함유량은, 70질량% 이상이 바람직하고, 90질량% 이상이 보다 바람직하고, 95질량% 이상이 더욱 바람직하고, 실질적으로 실리카만을 포함하는 것이 특히 바람직하다.

[0022] [수지 조성물]

[0023] 상술한 분체와 수지 재료를 배합함으로써, 수지 조성물이 조제된다. 이러한 수지 조성물은, 반도체 등의 전자 재료의 절연 재료 등, 구체적으로는, 프린트 배선판(리지드 기판 및 플렉시블 기판을 포함함)을 형성하기 위한 동장 적층판, 프리프레그, 빌드 업 필름 등에 사용할 수 있다. 또한, 몰드 수지, 몰드 언더필, 언더필 등의 반도체 패키지 관련 재료나, 플렉시블 기판용 접착제 등에 사용할 수 있다.

[0024] 수지로서, 일반적으로 반도체 등의 전자 재료에 사용되고 있는 경화성 수지를 사용할 수 있다. 광경화 수지여도 되지만, 열경화 수지가 바람직하다. 경화성 수지로서, 에폭시계 수지, 폴리페닐렌에테르계 수지, 불소계 수지, 폴리이미드계 수지, 비스말레이미드계 수지, 아크릴계 수지, 메타크릴계 수지, 실리콘계 수지, BT 레진, 시아네이트계 수지 등을 들 수 있다. 또한, 에폭시계 수지로서, 비스페놀형 에폭시 수지, 노볼락형 에폭시 수지, 트리페놀알칸형 에폭시 수지, 비페닐 골격을 갖는 에폭시 수지, 나프탈렌 골격을 갖는 에폭시 수지, 디시클로펜타디엔페놀노볼락 수지, 페놀아르알킬형 에폭시 수지, 글리시딜에스테르형 에폭시 수지, 지환식 에폭시 수지, 복소환형 에폭시 수지, 할로겐화에폭시 수지 등을 예시할 수 있다. 이들 수지는, 단독으로 사용되어도 되고, 2종 이상 혼합하여 사용되어도 된다.

[0025] 수지 조성물에는, 분체 A와 경화성 수지 B가, 10/100 내지 95/100의 질량비(A/B)로 포함되는 것이 바람직하다. 이에 의해, 유동성 등의 수지 조성물의 특성을 유지하면서, 필러로서의 기능을 충분히 발휘할 수 있다. 질량비(A/B)는, 30/100 내지 80/100이 보다 바람직하다.

[0026] 또한, 수지 조성물은, 페놀 화합물, 아민 화합물, 산 무수물 등의 경화제를 포함하는 것이 바람직하다. 경화성 수지에 에폭시 수지를 사용하는 경우, 경화제로서, 1분자 중에 페놀성 수산기를 2개 이상 갖는 수지(비스페놀형 수지, 노볼락 수지, 트리페놀알칸형 수지, 레졸형 페놀 수지, 페놀아르알킬 수지, 비페닐형 페놀 수지, 나프탈렌형 페놀 수지, 시클로펜타디엔형 페놀 수지 등의 페놀 수지) 및 메틸헥사히드로프탈산, 메틸테트라히드로프탈산, 무수 메틸나드산 등의 산 무수물을 들 수 있다. 수지 조성물에는, 필요에 따라, 각종 첨가제(착색제, 응력완화제, 소포제, 레벨링제, 커플링제, 난연제, 경화 촉진제 등)를 첨가해도 된다.

[0027] 수지 조성물의 제조 방법은, 종래 공지의 방법을 적용할 수 있다. 예를 들어, 경화성 수지, 분체, 경화제, 첨가제 등을 혼합하여, 롤밀 등으로 혼련한다. 얻어진 수지 조성물을 기체에 도포하고, 열, 자외선 등에 의해 경화시킨다.

[0028] [분체의 제조 방법]

[0029] 본 발명의 분체의 제조 방법은, 규산 알칼리 수용액을 열풍 기류 중에서 분무 건조시켜 입자를 조제하는 제1 공정과, 조제된 입자에 포함되는 알칼리를 제거하는 제2 공정과, 알칼리 제거된 입자를 소성하는 제3 공정을 갖고, 제1 공정과 제3 공정 사이에, 입자를 분급하여, 입자경 1.0㎛ 미만의 미소 입자 및 입자경 8.0㎛를 초과하는 조대 입자를 제거하는 공정(분급 공정)이 마련되어 있다. 또한, 각 공정 사이에, 건조 공정 등의 그밖의 공정을 마련해도 된다. 이러한 공정에 의해, 상술한 분체를 얻을 수 있다.

[0030] 일반적으로, 소성에 의해 입자를 제조하는 경우에는, 입자경을 맞추기 위해, 소성 후에 분급 처리를 행하는 것이 바람직하다고 생각되고 있다. 그러나, 여기서는, 굳이 소성 전에 분급 처리를 행한다. 분급 처리를 행하지 않고 소성 공정을 행하는 경우, 제거되어야 할 미소 입자가 존재한 상태로 소성되어, 미소 입자가 다른 입자와 소결되어 버린다. 그 때문에, 그 후에 분급 처리를 행해도 미소 입자를 제거할 수 없다. 또한, 제거되어야 할 고공극률의 조대 입자도 존재해 버린다. 이 고공극률의 조대 입자는 깨지기 쉽기 때문에, 가열에 의한 수축의 스트레스 등으로 깨질 우려가 있다. 깨짐에 의해 발생한 파편은, 공극이 없는 치밀한 실리카이기 때문에, 저유전율화·저유전 정접화의 방해가 된다. 분급 처리를 소성 전에 행하면, 이들 문제를 피할 수 있다. 그 때문에, 입자의 저유전율화·저유전 정접화가 더 확실하게 실현되어, 데이터 통신의 고속화에 대응한 입자가 얻어진다. 또한, 소성 후에, 다시 분급 처리를 행해도 된다. 이하, 각 공정을 상세하게 설명한다.

[0031] (제 1 공정)

[0032] 본 공정에서는, 규산 알칼리 수용액을 열풍 기류 중에서 분무 건조시켜 실리카계 입자를 조립한다. 또한, 본 공정은, 중공 입자를 얻기 위해 행해지지만, 모든 입자를 중공 입자로 하는 것은 곤란하고, 조립된 실리카계 입자에는, 결과적으로 중실 입자도 포함되어 있을 가능성이 있다. 이 경우, 후술하는 공정을 거쳐서 얻어지는 분체에 중실 입자도 포함되어 있다. 그러나, 분체가 상술한 특성을 구비하고 있으면, 중실 입자가 포함되어 있어도, 기대하는 효과가 얻어진다.

[0033] 규산 알칼리의 SiO_2와 M_2O(M은 알칼리 금속)의 몰비(SiO_2/M_2O)는, 1 내지 5가 바람직하고, 2 내지 4가 보다 바람직하다. 이 몰비가 1 미만인 경우는, 알칼리양이 너무 많으므로, 알칼리 제거 공정에서 산세정을 행해도 충분히 제거하는 것이 곤란하다. 또한, 분무 건조품의 조해성이 커지기 때문에, 원하는 중공 입자가 얻어지기 어렵다. 이 몰비가 5를 초과하면, 규산 알칼리의 가용성이 저하되어, 수용액의 조제가 곤란하다. 수용액을 조제할 수 있었다고 해도, 분무 건조에 의해 중공 입자를 형성할 수 없는 경우가 있다.

[0034] 규산 알칼리 수용액의 SiO_2로서의 농도는, 1 내지 30질량%가 바람직하고, 5 내지 28질량%가 보다 바람직하다. 1질량% 미만에서도 제조는 가능하지만, 생산성이 현저하게 저하된다. 30질량%를 초과하면, 규산 알칼리 수용액으로서의 안정성이 현저하게 저하되어 고점성이 되어, 분무 건조할 수 없는 경우가 있다. 분무 건조할 수 있었다고 해도, 입자경 분포, 외각의 두께 등이 매우 불균일해져, 얻어진 입자의 용도가 제한되는 경우가 있다. 규산 알칼리로서, 물에 가용인 규산나트륨, 규산칼륨을 사용할 수 있다. 규산나트륨이 바람직하다.

[0035] 분무 건조 방법으로서는, 예를 들어, 회전 디스크법, 가압 노즐법, 2유체 노즐법 등의 종래 공지의 방법을 채용할 수 있다. 여기서는, 2유체 노즐법이 적합하다.

[0036] 분무 건조에 있어서, 분무 건조기에 있어서의 입구 온도는, 300 내지 600℃가 바람직하고, 350 내지 550℃가 보다 바람직하다. 또한, 출구 온도는, 120 내지 300℃가 바람직하고, 130 내지 250℃가 보다 바람직하다. 이러한 온도 설정에 의해, 중공 입자를 안정적으로 얻을 수 있다.

[0037] (제2 공정)

[0038] 이어서, 제1 공정에서 조립된 입자에 포함되는 알칼리를 제거한다. 산을 첨가하여 중화함으로써 제거하는 방법이 적합하다. 입자를 산의 용액에 침지하는 처리가 바람직하다. 이때, 입자 중의 M_2O 몰수(Msp)와 산의 몰수(Ma)의 몰비(Ma/Msp)는, 0.6 내지 4.7이 바람직하고, 1 내지 4.5가 더욱 바람직하다. 이 몰비가 0.6 미만인 경우는, M_2O에 비해 산의 양이 너무 적다. 그 때문에, 알칼리의 제거와 함께 일어난다고 생각되는 규산의 실리카 골격화가 진행되지 않아, 입자가 부분적으로 용해되거나, 용해된 규산 알칼리가 겔화되는 경우가 있다. 몰비가 4.7을 초과해도 실리카 골격화가 더 진행되는 일은 없고, 산이 과잉이고 경제적이지 않다.

[0039] 또한, 입자의 농도가, SiO_2로서 1 내지 30질량%가 되도록 산 수용액에 침지하는 것이 바람직하다. 1질량% 미만인 경우는, 알칼리 제거나 세정성에 문제는 없지만, 제조 효율이 저하된다. 30질량%를 초과하면, 농도가 너무 진하여 알칼리 제거, 세정 효율이 저하되는 경우가 있다. 5 내지 25질량%가 더욱 바람직하다.

[0040] 산 수용액에 침지하는 조건은, 알칼리를 원하는 양까지 제거할 수 있으면 특별히 제한은 없고, 통상, 처리 온도는 5 내지 100℃이고, 처리 시간은 0.5 내지 24시간이다. 침지 처리 후, 종래 공지의 방법으로 세정하는 것이 바람직하다. 예를 들어, 순수로 여과 세정한다. 또한, 필요에 따라, 상기 산 처리 및 세정을 반복해서 행해도 된다.

[0041] 알칼리 제거 후의 알칼리(M)의 잔존량(질량 비율)은, 300ppm 이하가 바람직하고, 200ppm 이하가 보다 바람직하고, 100ppm 이하가 더욱 바람직하다. 본 공정에서 충분히 알칼리를 제거함으로써, 후속 공정에서 입자가 합착되는 것이 방지되어, 소성 공정에서 소결 입자가 발생하는 것을 방지할 수 있다. 또한, 알칼리의 잔존량(함유량)은, 유전 특성에 영향을 미치는 것이 알려져 있다. 본 공정에서 충분히 알칼리를 제거함으로써, 원료에 규산 알칼리 수용액을 사용한 경우에도, 저유전율화 및 저유전 정접화를 가능하게 하는 입자를 얻을 수 있다.

[0042] 또한, 최종 제품(분체를 구성하는 입자)의 알칼리양도 상술한 범위가 바람직하고, 통상, 알칼리 제거 공정 후의 알칼리양과 동등해진다.

[0043] 알칼리 잔존량은, 분체를 산으로 용해시킨 것을 시료로 하여, 원자 흡광 광도계를 사용하여 측정할 수 있다. 규산나트륨을 사용한 경우는 Na을 측정하고, 규산칼륨을 사용한 경우는 K을 측정한다. 구체적으로는, 실시예에

서 설명한다.

[0044] 본 공정에서 사용하는 산으로서, 무기산(염산, 질산, 황산 등) 및 유기산(아세트산, 타르타르산, 말산 등)을 사용할 수 있다. 무기산이 적합하게 사용되고, 특히, 가수가 큰 황산이 바람직하다.

[0045] (제3 공정)

[0046] 이어서, 알칼리 제거 처리 후의 입자를 소성한다. 소성 온도는, 600 내지 1200℃가 바람직하고, 900 내지 1100℃가 보다 바람직하다. 소성 온도가 600℃ 미만인 경우는, SiOH기의 잔존량이 많아, 입자의 유전 정접이 높아진다. 그 때문에, 수지에 배합해도, 유전 정접 저감 효과가 얻어지기 어렵다. 소성 온도가 1200℃를 초과한 경우는, 입자끼리가 소결되기 쉬우므로, 이형상의 입자나, 조대 입자가 생성되기 쉽다. 이것은, 수지 조성물의 여과성이나, 주입성이 저하되는 원인이 된다.

[0047] (분급 공정)

[0048] 제1 공정과 제3 공정 사이에 분급 처리를 행함으로써, 미소 입자와 조대 입자를 제거한다. 알칼리 제거 전에 분급 처리를 행하는 경우에는, 중공 입자가 흡습(조해)하여 응집·합착하는 것을 방지하기 위해, 조립 후 즉시 분급 처리를 할 필요가 있다. 또한, 소성 전에 분급 처리를 행하는 경우, 분급 처리를 알칼리 제거 처리에 계속해서 행해도 된다.

[0049] 분급 공정에 의해, 미소 입자의 양을 10체적% 이하까지 감소시킨다. 8체적% 이하로 하는 것이 바람직하고, 5체적% 이하로 하는 것이 보다 바람직하고, 3체적% 이하로 하는 것이 더욱 바람직하고, 1체적% 이하로 하는 것이 가장 바람직하다. 또한, 조대 입자의 양을 20체적% 이하까지 감소시킨다. 15체적% 이하로 하는 것이 바람직하고, 10체적% 이하로 하는 것이 보다 바람직하고, 5체적% 이하로 하는 것이 더욱 바람직하고, 1체적% 이하로 하는 것이 가장 바람직하다. 이 분급 공정에 의해, 분체에 존재하는 부유 입자 비율을 소정 범위로 제어할 수 있다. 또한, 통상, 최종 제품의 미소 입자나 조대 입자의 함유량은, 분급 공정 후의 함유량과 큰 변화는 없다.

[0050] 이 분급 공정에서의 분급 처리란, 분체의 입도를 맞추는 것을 목적으로, 입자경에 의해 분체를 나누는 입도 분급을 의미한다. 이 입도 분급의 조작으로서, 유체 분급을 들 수 있고, 유체 분급은 건식 분급과 습식 분급으로 분류할 수 있다.

[0051] 건식 분급에 사용되는 분급기는, 원리적으로, 중력 분급기, 관성 분급기, 원심 분급기로 크게 구별할 수 있다. 관성 분급기나, 원심 분급기를 사용함으로써, 더 정밀한 분급이 가능해진다. 가볍고, 원심력이 가해지기 어려운 입자라도 정밀하게 분급할 수 있는 분급기로서, 닛테츠 고교사제 엘보우 제트, 일본 쓰리엠사제 SG 세퍼레이터, 닛신 엔지니어링사제 에어로파인 클래시파이어, 닛폰 뉴마틱 고교사제 마이크로 스핀을 들 수 있다. 이들 중에서도, 엘보우 제트, 에어로파인 클래시파이어가 바람직하다.

[0052] 습식 분급에 사용되는 분급기는, 원리적으로, 중력 분급기, 원심 분급기로 크게 구별할 수 있다. 원심 분급기를 사용함으로써, 더 정밀한 분급이 가능해진다. 가볍고, 원심력이 가해지기 어려운 입자라도 정밀하게 분급할 수 있는 분급기로서, 닛폰 가가쿠 기카이 고교사제 하이드로 사이클론, 무라타 고교사제 스파클론, 사타케 가가쿠 기카이 고교사제 아이 클래시파이어를 들 수 있다. 이것들 중에서도, 아이 클래시파이어가 바람직하다. 습식 분급에 의하면, 미소 입자의 제거를 행할 때, 비중이 작은 조대 입자를 함께 제거할 수 있어, 분급 효율을 높일 수 있다.

[0053] 미소 입자와 조대 입자의 제거는, 동시에 행해도 되고, 따로따로 나누어 행해도 된다. 따로따로 나누어 행할 때는, 미소 입자의 제거와, 조대 입자의 제거의 어느 쪽을 먼저 행해도 상관없다. 또한, 미소 입자의 제거 및 조대 입자의 제거의 각 처리는, 각각 복수회로 나누어 행해도 된다.

[0054] 또한, 제조 공정 중에, 적절히 건조 처리 공정을 마련해도 된다. 건조 처리는, 알칼리 제거 처리와 분급 처리 사이, 분급 처리와 소성 사이, 그 양쪽, 혹은 알칼리 제거 처리와 소성 사이에 마련할 수 있다. 필요에 따라 복수회 마련해도 된다. 또한, 소성 전에 건조 처리를 행하고, 분급 처리를 건조 처리와 소성 사이에서 행해도 된다. 본 발명의 효과를 더 향수하기 위해서는, 건조 처리 후에 분급 처리를 행하고, 소성하는 것이 바람직하다. 건조 처리로서, 가열 건조가 적합하다. 건조 온도는, 50 내지 400℃가 바람직하고, 50 내지 200℃가 보다 바람직하다. 구체적으로는, 50 내지 200℃ 정도의 저온에서 시간을 들여 건조시키는 방법이나, 온도를 서서히 상승시켜 건조시키는 방법이나, 온도를 몇단계로 나누어 변경하여 건조시키는 방법을 예시할 수 있다.

[0055] 또한, 입자 덩어리를 체 분리하는 체 분리 처리를, 건조 후와 소성 후의 적어도 한쪽에 마련하는 것이 바람직하

다. 또한, 입자 덩어리란, 예를 들어 입경이 50㎛를 초과하는 것을 가리키고, 이러한 입자 덩어리를 없애는 눈 크기(메쉬수)의 체를 적절히 사용한다.

[0056] **실시예**

[0057] 이하, 본 발명의 실시예를 구체적으로 설명한다.

[0058] [실시예 1]

[0059] 물유리 수용액(SiO_2/Na_2O 몰비 3.2, SiO_2 농도 24질량%) 30000g을 사용하여, 2유체 노즐의 한쪽에 0.62kg/hr의 유량으로, 다른 쪽의 노즐에 공기를 31800L/hr(공/액체적비 63600)의 유량으로, 입구 온도 400℃의 열풍에 분무하여 중공 입자를 조립했다. 여기서, 출구 온도는 150℃였다(제1 공정). 제1 공정에서는, 소량의 중실 입자도 조립될 가능성이 있지만, 중실 입자를 제거하고 다음 공정으로 진행할 필요는 없다.

[0060] 계속해서, 이 중공 입자(즉, 제1 공정에서 조립된 입자) 5000g을 농도 10질량%의 황산 수용액 32000g에 침지하여, 15시간 교반했다. 고형분(SiO_2) 농도는 10.2질량%이다. 또한, 황산은 2가의 산이므로, 산의 몰수(Ma)와 알칼리(Na_2O)의 몰수(Msp)의 비(Ma/Msp)는 3.3이 된다. 분산액의 온도는 35℃, pH는 3.0이었다. 침지 처리 후, 순수로 여과 세정을 행하였다(제2 공정).

[0061] 계속해서, 건조기에서, 120℃에서 24시간 건조 처리했다. 건조 후, 해쇄하여 눈 크기 75㎛의 체에 걸쳐서 입자 덩어리를 제거했다.

[0062] 계속해서, 자사제 사이클론을 사용하여, 분체 수송 라인의 유속을 5m/s로 하여, 건식 원심 분급 처리를 행하였다(제1 분급 공정). 사이클론에 포집되지 않고 통과한 입자, 즉 조대 입자가 제거된 입자를 백 필터에 의해 회수했다. 그 후, 닛테츠 고교사제 엘보우 제트(EJ-15)를 사용하여 건식 관성 분급 처리를 행하였다(제2 분급 공정). 이 장치를 사용하여 분급하면, F분(미분), M분(세분), G분(조분)의 3종류의 입자로 나눌 수 있다. 이때, F분(미분)에 포함되는 미소 입자가 1체적% 이하가 되도록 F 에지 거리를 조정했다. F분을 회수하고, 이후의 공정에서 사용했다.

[0063] 회수한 입자를 1000℃에서 10시간 가열 처리함으로써, 중공 입자를 포함하는 분체를 얻었다(제3 공정). 또한, 소성 후, 눈 크기 150㎛의 체에 의해 입자 덩어리를 제거했다.

[0064] 얻어진 분체를, 액상 산 무수물 「신니혼 리카사제 리카시드 MH700」, 이미다졸계 에폭시 수지 경화제 「시코쿠 가세이사제 2PHZ-PW」와 함께, 액상 에폭시 수지 「닛테츠 케미컬 & 머티리얼사제 ZX-1059」에 배합했다. 여기서, 「ZX-1059」가 100질량부, 「리카시드 MH700」이 86질량부, 「2PHZ-PW」가 1질량부의 비율로 하고, 배합물의 분체의 비율이 35체적%가 되도록 배합했다. 이 배합물을, 유성 밀로 예비 혼련한 후, 3개 롤로 혼련하여, 페이스트(수지 조성물)를 얻었다. 이 페이스트를 170℃에서 2시간 가열하여 경화시켜, 50㎜×50㎜×1㎜의 판 형상의 수지 성형물(수지 제품)을 얻었다.

[0065] 상술한 바와 같이 하여 얻어진 분체 및 수지 성형물의 물성을 이하와 같이 측정·평가했다. 그 결과를 조제 조건과 함께 표 1에 나타낸다. 다른 실시예나 비교예에서도 마찬가지로 행하였다.

[0066] (1) 입자경, 입자량 및 입도 변동 계수(CV값)

[0067] 입도 분석계(세이신 기교사제 레이저 마이크론사이저 LMS-3000)를 사용하여, 건식으로 분체의 입도 분포를 측정했다. 측정 결과로부터, 체적 평균 입자경(D43), 평균 입자경(D50), 최대 입자경(D100)이 얻어졌다. 또한, 이 입도 분포를 분석하여, 8.0㎛를 초과하는 조대 입자와 1.0㎛ 미만의 미소 입자의 체적비율을 각각 산출하여, 조대 입자량 및 미소 입자량으로 했다.

[0068] 입도 변동 계수(CV값)는, 하기 식으로부터 구했다. 개개의 입자의 입자경(Di)은, 건식 레이저 회절·산란법으로 측정했다.

[0069] CV값(%)=(표준 편차(τ)/체적 평균 입자경(D43))×100

[0070] 표준 편차(τ)=(ΣXi(Di-D43)^2/ΣXi)^(1/2)

[0071] (2) 알칼리 잔존량

[0072] 분체를 황산·불화 수소산으로 전처리한 후, 염산에 용해시켜, 원자 흡광 광도계(히타치제 Z-2310)를 사용하여 원자 흡광 분석법에 의해 알칼리양을 측정했다. 실시예 1에서는, Na양을 측정했다.

[0073] (3) 입자 밀도와 공극률

[0074] Quantachrome Instruments사제 Ultrapyc 1200e를 사용하여, 가스 피크노미터법에 의해 분체에 포함되는 입자의 밀도의 평균(입자 밀도)을 측정했다. 가스는 질소 가스를 사용했다.

[0075] 이 입자 밀도로부터, 식 「[2.2-(입자 밀도)]/2.2×100」에 의해 공극률(%)을 산출했다. 분체가 실리카 입자로 구성되어 있는 것으로 하여, 이 식에서는, 실리카의 밀도 2.2g/㎤를 사용했다.

[0076] (4) 분체의 유전율(Dk) 및 유전 정접(Df)

[0077] 네트워크 애널라이저(안리츠사제, MS46122B)와 공동 공진기(1㎓)를 사용하여 공동 공진기 섭동법에 의해, 유전율(Dk) 및 유전 정접(Df)을 측정했다. ASTMD2520(JIS C2565)에 준거하여 측정했다.

[0078] (5) 물에 현탁시켰을 때의 부유 입자, 현탁 입자 및 침강 입자의 비율

[0079] 먼저, 5질량%가 되도록 분체와 물을 혼합하여, 10분간의 초음파 처리를 행하였다. 얻어진 분산액을 25℃에서 24시간 정치한 후, 부유 입자, 현탁 입자 및 침강 입자를 각각 회수했다. 계속해서, 각 입자를 105℃에서 24시간 건조시킨 후에 계량하고, 그 비율을 산출했다.

[0080] (6) 수지 조성물의 여과성

[0081] 로키 테크노사제 필터(SHP 타입: 30㎛)를 사용하여, 필터가 막힐 때까지의 단위 면적당의 통액량으로 평가했다.

[0082] 평가 기준은, 이하와 같다.

[0083] ◎: ≥1g/㎠

[0084] ○: 0.5g/㎠ 이상 1.0g/㎠ 미만

[0085] △: 0.3g/㎠ 이상 0.5g/㎠ 미만

[0086] ×: <0.3g/㎠

[0087] (7) 수지 조성물의 주입성

[0088] 20㎛의 갭을 갖는 유리판 사이에 수지 조성물을 주입하고, 25㎜ 충전하는 데 필요로 하는 시간으로 평가했다.

[0089] 평가 기준은 이하와 같다.

[0090] ◎: 200초 이내

[0091] ○: 200초를 초과하고 400초 이내

[0092] △: 400초를 초과하고 600초 이내

[0093] ×: 600초 초과

[0094] (8) 수지 성형물의 유전율(Dk) 및 유전 정접(Df)

[0095] 50㎜×50㎜×1㎜의 판 형상 성형체(수지 성형물)의 유전율(Dk) 및 유전 정접(Df)을, 네트워크 애널라이저(안리츠사제, MS46122B)와 동축 공진기를 사용하여, 9.4㎓로 측정했다. 분체(필러)를 배합하고 있지 않은 수지 성형물과 다음 식을 사용하여 비교하고, 이하의 기준으로 평가했다.

[0096] 유전율(Dk)의 저감률(%)=(분체 배합 없음의 유전율-분체 배합 있음의 유전율)/분체 배합 없음의 유전율×100

[0097] ○: 저감률>0

[0098] △: 저감률=0

[0099] ×: 저감률<0

[0100] 유전 정접(Df)의 저감률(%)=(분체 배합 없음의 유전 정접-분체 배합 있음의 유전 정접)/분체 배합 없음의 유전 정접×100

[0101] ◎: 저감률 50% 이상

[0102] ○: 저감률 30% 이상 50% 미만

[0103] △: 저감률 20% 이상 30% 미만

[0104] ×: 저감률 20% 미만

[0105] [실시예 2]

[0106] 제2 분급 공정에서, 닛신 엔지니어링사제 에어로파인 클래시파이어를 사용하여 건식 원심(반자유 소용돌이) 분급 처리를 행하였다. 분급에 의해 회수된 입자에 포함되는 미소 입자가 1체적% 이하가 되도록, 블레이드의 각도 등을 조정했다. 그 이외는 실시예 1과 마찬가지로 했다.

[0107] [실시예 3]

[0108] 제2 분급 공정에서, 사타케 가가쿠 기카이 고교사제 아이 클래시파이어를 사용하여 습식 원심 분급 처리를 행하였다. 회수된 입자에 포함되는 미소 입자가 1체적% 이하, 조대 입자가 1체적% 이하가 되도록 분급했다. 그 이외는 실시예 1과 마찬가지로 했다.

[0109] [실시예 4]

[0110] 제1 분급 공정, 제2 분급 공정 모두, 닛신 엔지니어링사제 에어로파인 클래시파이어를 사용하여 건식 원심(반자유 소용돌이) 분급 처리를 행하였다. 최초에, 회수된 입자에 포함되는 미소 입자가 10체적% 이하가 되도록, 블레이드의 각도 등을 조정하여 분급하고, 그 후에, 조대 입자가 1체적% 이하가 되도록 조정하여 분급했다. 그 이외는 실시예 1과 마찬가지로 했다.

[0111] [실시예 5]

[0112] 제1 분급 공정, 제2 분급 공정 모두, 사타케 가가쿠 기카이 고교사제 아이 클래시파이어를 사용하여 습식 원심 분급 처리를 행하였다. 최초에, 회수된 입자에 포함되는 미소 입자가 5체적% 이하가 되도록 분급하고, 그 후에, 조대 입자가 1체적% 이하가 되도록 분급했다. 그 이외는 실시예 1과 마찬가지로 했다.

[0113] [비교예 1]

[0114] 알칼리 제거 처리의 침지 교반 시간을 1.5시간으로 변경하고, 분급 공정을 마련하지 않았다. 그 이외는 실시예 1과 마찬가지로 했다.

[0115] [비교예 2]

[0116] 제1 공정에서 분무 건조기의 입구 온도를 250℃로 하고, 알칼리 제거 처리의 침지 교반 시간을 1.5시간으로 하고, 분급 공정을 마련하지 않았다. 그 이외는 실시예 1과 마찬가지로 했다.

[0117] [비교예 3]

[0118] 분급 공정에서, 자사제 사이클론을 사용하여, 분체 수송 라인의 유속을 5m/s로 하여 행하여, 사이클론에 포집된 입자를 회수했다. 그 이외는 실시예 1과 마찬가지로 했다.

표 1

			실시예 1	실시예 2	실시예 3	실시예 4	실시예 5	비교예 1	비교예 2	비교예 3
			분급 있음	분급 있음	분급 있음	분급 있음	분급 있음	분급 없음	분급 없음	분급 있음
	1단계		건조 공정 후	건조 공정 후	건조 공정 후	건조 공정 후	건조 공정 후			건조 공정 후
	2단계		원심 분급 (자유 소용돌이)	원심 분급 (자유 소용돌이)	원심 분급 (자유 소용돌이)	원심 분급 (반자유 소용돌이)	원심 분급 (습식)	–	–	원심 분급 (반자유 소용돌이)
분무 조립 공정	SiO_2/Na_2O	몰비	3.2	←	←	←	←	←	←	←
	SiO_2 농도	질량%	24	←	←	←	←	←	←	←
	입구 온도	℃	400	←	←	←	←	←	250	400
	출구 온도	℃	150	←	←	←	←	←	50	150
	산의 종류	–	황산	←	←	←	←	←	←	←
중화·세정 공정	Ma/Msp	몰비	3.3	←	←	←	←	←	←	←
	농도	질량%	10	←	←	←	←	←	←	←
	시간	Hr	15	15	15	15	15	1.5	1.5	15
건조 공정	온도	℃	120	←	15	←	←	←	←	←
	시간	Hr	24	←	←	←	←	←	←	←
소성 공정 (계)	**계산 잔분**		적음	적음	적음	적음	적음	많음	많음	많음
분체 물성	평균 입자경 (D50)	μm	5.9	4.2	3.3	2.2	2.5	6.8	6.6	9.7
	최대 입자경 (D100)	μm	18.6	16.4	11.1	7.5	7.6	58.7	51.7	35.1
	CV값	%	41	51	44	41	37	99	92	48
	미소 입자량 (1.0μm 미만)	체적%	0.0	0.8	1.0	9.4	3.1	12.2	14.4	0.6
	조대 입자량 (8.0μm를 초과한다)	체적%	10.5	3.8	0.1	0.0	0.0	34.8	31.6	48.2
	Na 잔존량	p p m	74	74	74	74	74	371	371	74
	입자 밀도	g/cm^3	1.3	1.5	1.6	1.9	1.8	1.3	2.2	1.1
	공극률	%	41	32	27	14	18	41	0	50
	유전율 (Dk)	–	2.2	2.2	2.3	2.5	2.5	2.2	3.5	2.0
	유전 정접 (Df)	–	3.0E-04	3.0E-04	4.0E-04	5.0E-04	5.0E-04	1.0E-03	2.0E-03	1.0E-04
입자 비율	부유 입자	질량%	10.3	8.6	2.7	1.0	2.2	11.6	0.0	22.0
	현탁 입자	질량%	0.6	1.0	0.9	0.5	0.4	0.2	1.5	0.6
	침강 입자	질량%	89.1	90.4	96.4	98.5	97.4	88.2	98.5	77.4
수지 조성물 물성	여과성	–	○	○	○	◎	◎	×	×	×
	주입성	–	△	△	○	◎	◎	×	×	×
수지 성형물 물성	유전율 (Dk)	–	○	○	○	○	○	×	× (중심)	× (계점)
	유전 정접 (Df)	–	○	○	○	○	○	×	× (중심)	× (계점)

[0119]

[0120] 표 1에 나타낸 바와 같이, 실시예에 관한 분체 및 이 분체가 배합된 수지 성형물은, 유전율 및 유전 정접이 낮다. 또한, 실시예에 관한 분체를 배합한 수지 조성물은, 여과성 및 주입성이 우수하다.