



**(19) 대한민국특허청(KR)**  
**(12) 공개특허공보(A)**

(11) 공개번호 10-2022-0128469  
(43) 공개일자 2022년09월20일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)  
*C08L 23/26* (2006.01) *C08G 59/42* (2006.01)  
*C08K 3/36* (2006.01) *C08L 63/00* (2006.01)  
*C09J 7/35* (2018.01) *H05K 1/03* (2006.01)

(52) CPC특허분류  
*C08L 23/26* (2013.01)  
*C08G 59/42* (2013.01)

(21) 출원번호 10-2022-7023408  
 (22) 출원일자(국제) 2021년01월06일  
 심사청구일자 없음  
 (85) 번역문제출일자 2022년07월07일  
 (86) 국제출원번호 PCT/JP2021/000148  
 (87) 국제공개번호 WO 2021/145241  
 국제공개일자 2021년07월22일

(30) 우선권주장  
 JP-P-2020-005403 2020년01월16일 일본(JP)

(71) 출원인  
 스미토모 세이카 가부시카이가이샤  
 일본 효고켄 가코군 하리마초 미야니시 346번치노  
 1

(72) 발명자  
 하리사키 료타  
 일본 효고 6750145 가코군 하리마초 미야니시  
 346-1 스미토모 세이카 가부시카이가이샤 내

(74) 대리인  
 신성특허법인(유한)

전체 청구항 수 : 총 10 항

(54) 발명의 명칭 **수지 조성물**

**(57) 요약**

고주파 영역에서의 우수한 저유전 특성 및 고습도하에서의 우수한 저유전 특성을 가지고, 또한 금속 및 수지 기재에 대한 실용적인 밀착성을 가지는 수지 조성물이 제공된다. 보다 구체적으로는, 산변성 폴리올레핀, 에폭시 수지 및 무기 필러를 포함하는 수지 조성물로서, 그 경화물이 85℃, 85%RH(상대 습도)의 조건으로 168시간 보관한 후에 주파수 10GHz, 25℃에서 0.003 이하의 유전 정접을 나타내는 수지 조성물이 제공된다.

(52) CPC특허분류

*C08K 3/36* (2013.01)

*C08L 63/00* (2013.01)

*C09J 7/35* (2018.01)

*H05K 1/03* (2019.01)

---

## 명세서

### 청구범위

#### 청구항 1

산변성 폴리올레핀, 에폭시 수지 및 무기 필러를 포함하는 수지 조성물로서, 그 경화물이 85℃, 85%RH(상대 습도)의 조건으로 168시간 보관한 후에 주파수 10GHz, 25℃에서 0.003 이하의 유전 정점을 나타내는 수지 조성물.

#### 청구항 2

제1항에 있어서,  
상기 무기 필러가 실리카인 수지 조성물.

#### 청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서,  
상기 에폭시 수지가 비스페놀A형 에폭시 수지, 비페닐형 에폭시 수지, 디시클로펜타디엔형 에폭시 수지, 안트라센형 에폭시 수지, 규소 원소 함유 에폭시 수지로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1종인 수지 조성물.

#### 청구항 4

제1항 내지 제3항 중 어느 한 항에 있어서,  
상기 에폭시 수지가,  
그 경화물이 주파수 10GHz, 25℃에서의 유전 정점이 0.03 이하인 에폭시 수지인 수지 조성물.

#### 청구항 5

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서,  
경화제를 더 포함하는 수지 조성물.

#### 청구항 6

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서,  
산변성 폴리올레핀, 에폭시 수지 및 경화제의 합계 질량을 100질량부로 했을 때, 에폭시 수지 및 경화제의 합계 질량이 9질량부 이하인 수지 조성물.

**청구항 7**

제1항 내지 제6항 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물을 포함하는  
접착 필름.

**청구항 8**

제7항에 있어서,  
상기 수지 조성물이 경화되어 있고, 2~200 $\mu$ m의 두께를 가지는  
접착 필름.

**청구항 9**

제1항 내지 제6항 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물을 포함하는 접착층과 전기 절연층이 적층된 적층 구조를  
가지는  
커버레이 필름.

**청구항 10**

제1항 내지 제6항 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물을 포함하는 접착층과 전기 절연층이 적층된 적층 구조를  
가지는  
프린트 배선판.

**발명의 설명**

**기술 분야**

[0001] 본 개시는 수지 조성물 및 그 용도 등에 관한 것이다.

**배경 기술**

[0002] 근래, 플렉시블 프린트 배선판(FPC)에서의 전송 신호의 고속화에 동반하여, 신호의 고주파화가 진행되고 있다. 이에 동반하여, FPC용 재료에는, 고주파 영역에서의 저유전 특성(저비유전율 및 / 또는 저유전 정접)이 한층 요구되고 있다. 이와 같은 요구에 대하여, FPC에 이용되는 기재 필름으로서, 종래의 폴리이미드(PI), 폴리에틸렌 테레프탈레이트의 대체품으로서, 저유전 특성을 가지는 액정 폴리머(LCP), 신디오택틱 폴리스티렌(PS), 폴리페닐렌설폰(PPS) 등의 기재 필름이 제안되고 있다.

[0003] 그러나 저유전 특성을 가지는 기재 필름은 저극성이기 때문에 종래의 에폭시계 접착제나 아크릴계 접착제를 이용한 경우, 접착력이 약한 이유에서, 커버레이 필름, 적층판 등의 FPC용 부재의 제작이 곤란했다. 또한, 에폭시계 접착제나 아크릴계 접착제는 저유전 특성이 우수하지 않아서, FPC의 유전 특성을 손상시킨다. 이 때문에, 저유전 특성이 우수한 수지 접착제의 개발도 요망되고 있다.

[0004] 예를 들면, 특허문헌 1에는, 폴리이미드 화합물, 변성 폴리부타디엔 및 무기 충전제를 함유하고, 저유전 특성이 우수한 수지 조성물이 개시되어 있다.

[0005] 또한 예를 들면, 특허문헌 2에는, 결정성 산변성 폴리올레핀 및 비정성 폴리올레핀과 카르보디이미드 수지 또는 에폭시 수지를 함유하고, 우수한 저유전 특성을 발현하고, 또한 수지 기재나 금속 기재와의 높은 밀착성을 가지는 조성물이 개시되어 있다.

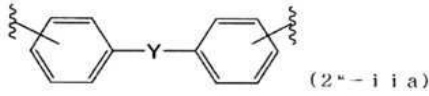
[0006] 또한 예를 들면, 특허문헌 3에는, 스티렌계 폴리머, 경화제, 무기 충전제를 함유하고, 유전 특성 및 기재와의 밀착성이 우수한 수지 조성물이 개시되어 있다.

**선행기술문헌**



~6개 축합한 구조를 가지는 환(環)으로부터 2개의 수소 원자를 제외하고 얻어지는 2가의 기, 또는 식(2<sup>g</sup>-ii a):

[0025] [화학식 2]



[0027] (식 중, Y는 결합수(結合手), 탄소수 1~4의 알킬기로 치환되어 있어도 좋은 탄소수 1~6의 알킬렌기, 산소 원자(-O-), 유황 원자(-S-), -SO-, 또는 -SO<sub>2</sub>-를 나타낸다.)로 표시되는 2가의 기를 나타내고,

[0028] R<sup>1</sup>은 동일 또는 다르고, 탄소수 1~18의 알킬기, 탄소수 2~9의 알케닐기, 시클로알킬기, 아릴기, 또는 아랄킬기를 나타내고, 이들의 기는 일부의 탄소 원자가 산소 원자 및 질소 원자로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1종의 원자로 치환되어 있어도 좋고,

[0029] R<sup>2</sup>는 동일 또는 다르고, 탄소수 1~18의 알킬렌기를 나타내고, 이 기는 규소 원자에 직접 결합한 탄소 원자를 제외한 일부의 탄소 원자가 산소 원자 및 질소 원자로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1종의 원자로 치환되어 있어도 좋고,

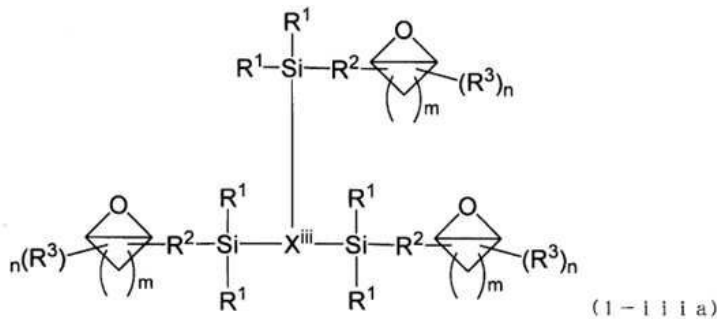
[0030] R<sup>3</sup>은 동일 또는 다르고, 탄소수 1~18의 알킬기, 탄소수 2~9의 알케닐기, 시클로알킬기, 아릴기, 또는 아랄킬기를 나타내고, 이들의 기는 일부의 탄소 원자가 산소 원자 및 질소 원자로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1종의 원자로 치환되어 있어도 좋고,

[0031] m은 0~6의 정수를 나타내고, n은 0~3의 정수를 나타낸다.]

[0032] 로 표시되는 에폭시 수지,

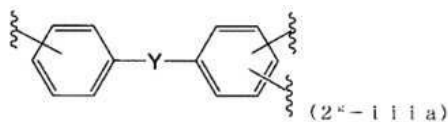
[0033] 식(1-iii a):

[0034] [화학식 3]



[0036] [식 중, X<sup>iii</sup>은 포화 탄화수소환 또는 불포화 탄화수소환, 또는 포화 탄화수소환 및 / 또는 불포화 탄화수소환이 2~6개 축합한 구조를 가지는 환으로부터 3개의 수소 원자를 제외하고 얻어지는 3가의 기, 또는 식(2<sup>g</sup>-iii a):

[0037] [화학식 4]



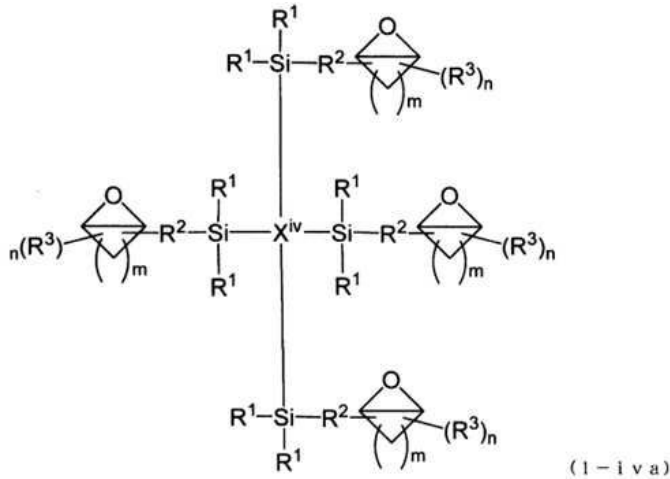
[0039] (식 중, Y는 상기와 같음.)로 표시되는 3가의 기를 나타내고,

[0040] R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, m 및 n은 상기와 같음.]

[0041] 로 표시되는 에폭시 수지 및,

[0042] 식(1-iva):

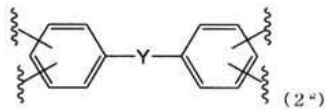
[0043] [화학식 5]



[0044]

[0045] [식 중,  $X^{iv}$ 는 포화 탄화수소환 또는 불포화 탄화수소환, 또는 포화 탄화수소환 및 / 또는 불포화 탄화수소환이 2~6개 축합한 구조를 가지는 환으로부터 4개의 수소 원자를 제외하고 얻어지는 4가의 기, 또는 식(2<sup>g</sup>):

[0046] [화학식 6]



[0047]

[0048] (식 중, Y는 상기와 같음.)으로 표시되는 4가의 기를 나타내고,

[0049]  $R^1, R^2, R^3, m$  및  $n$ 은 상기와 같음.]

[0050] 로 표시되는 군으로부터 선택되는 적어도 1종의 에폭시 수지인 항 1 또는 2에 기재된 수지 조성물.

[0051] 항 4.

[0052] 상기 에폭시 수지가,

[0053] 그 경화물이 주파수 10GHz, 25°C에서의 유전 정접이 0.03 이하인 에폭시 수지인 항 1 내지 3b 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.

[0054] 항 5.

[0055] 경화제를 더 포함하는 항 1 내지 4 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.

[0056] 항 6.

[0057] 산변성 폴리올레핀, 에폭시 수지 및 경화제의 합계 질량을 100질량부로 했을 때, 에폭시 수지 및 경화제의 합계 질량이 9질량부 이하인 항 1 내지 5 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.

[0058] 항 7.

[0059] 항 1 내지 6 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물을 포함하는 접착 필름.

[0060] 항 8.

[0061] 상기 수지 조성물이 경화되어 있고, 2~200 $\mu$ m의 두께를 가지는 항 7에 기재된 접착 필름.

[0062] 항 9.

[0063] 항 1 내지 6 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물을 포함하는 접착층과 전기 절연층이 적층된 적층 구조를 가지는 커버레이 필름.

[0064] 항 10.

[0065] 항 1 내지 6 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물을 포함하는 접착층과 전기 절연층이 적층된 적층 구조를 가지는 프린트 배선판.

**발명의 효과**

[0066] 고주파 영역에서의 우수한 저유전 특성 및 고습도하에서의 우수한 저유전 특성을 가지고, 또한 금속 및 수지 기재에 대한 실용적인 밀착성을 가지는 수지 조성물이 제공된다. 이와 같은 수지 조성물은 예를 들면, 커버레이 필름이나 프린트 배선판의 접착제 또는 접착 필름으로서 이용된 경우에, 우수한 밀착성을 가지면서도 고주파 영역에서 저유전 특성을 나타내고, 나아가서는, 고습도하에서의 유전 특성이 우수한 이유에서 유리하다. 특히, 고주파대(예를 들면, 1GHz 이상의 고주파대)에서 사용되는 커버레이 필름이나 프린트 배선판 등에 적합하게 사용할 수 있다.

**발명을 실시하기 위한 구체적인 내용**

[0067] 이하, 본 개시에 포함되는 각 실시형태에 대하여 더욱 상세히 설명한다. 본 개시는 산변성 폴리올레핀, 특정한 에폭시 수지 및 무기 필러를 포함하는 수지 조성물이나 해당 수지 조성물의 용도를 바람직하게 포함하지만, 이들에 한정되는 것은 아니고, 본 개시는 본 명세서에 개시되어, 당업자가 인식할 수 있는 전부를 포함한다.

[0068] 본 개시에 포함되는 수지 조성물은 상기와 같이, 산변성 폴리올레핀, 특정한 에폭시 수지 및 무기 필러를 함유한다. 이하, 본 개시에 포함되는 해당 수지 조성물을 “본 개시의 수지 조성물” 이라 하는 일이 있다.

[0069] [산변성 폴리올레핀]

[0070] 산변성 폴리올레핀으로서, 예를 들면, 카르복실기나 산무수물기 등의 산변성기로 변성된 폴리올레핀을 들 수 있다. 그 중에서도, 카르복실기로 변성된 폴리올레핀이 바람직하다. 또한, 본 명세서에 있어서, “카르복실기”란, 달리 언급이 없으면, “무수 카르복실기”도 포함하는 개념을 말한다.

[0071] 보다 구체적으로는, 산변성 폴리올레핀으로서, 폴리올레핀에 산변성기가 그래프트화된 산변성 폴리올레핀(산변성기 그래프트화 산변성 폴리올레핀) 및 올레핀 및 불포화 카르복실산 및 그 산무수물로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1종을 공중합시킨 산변성 폴리올레핀(산변성기 공중합 산변성 폴리올레핀), 나아가서는, 이들에 수소 첨가한 산변성 폴리올레핀(수소 첨가한 산변성기 그래프트화 산변성 폴리올레핀, 수소 첨가한 산변성기 공중합 산변성 폴리올레핀) 등이 바람직하게 예시된다. 산변성기 그래프트화 산변성 폴리올레핀 및 산변성기를 공중합시킨 산변성 폴리올레핀은 주쇄에 불포화 결합을 가지지 않는 수지인 것이 보다 바람직하다.

[0072] 산변성기가 그래프트화된 산변성 폴리올레핀에 관련되는 폴리올레핀(바꾸어 말하면, 산변성기가 그래프트화되기 전의 폴리올레핀)으로서, 폴리에틸렌, 폴리프로필렌 및 올레핀 공중합체가 바람직하게 예시된다.

[0073] 상기 올레핀 공중합체로서는, 프로필렌- $\alpha$ -올레핀 공중합체, 올레핀-환상 올레핀 공중합체, 올레핀-스티렌계 공중합체 등이 예시된다.

[0074] 프로필렌- $\alpha$ -올레핀 공중합체는 프로필렌에  $\alpha$ -올레핀을 더 공중합한 공중합체이다.  $\alpha$ -올레핀으로서, 예를 들면, 에틸렌, 1-부텐, 1-헵텐, 1-옥텐, 4-메틸-1-펜텐 등을 들 수 있다. 이들  $\alpha$ -올레핀은 단독으로 또는 2종 이상을 조합하여 이용할 수 있다. 또한, 아세트산비닐 등 외의 모노머를 조합하여 공중합해도 좋다. 올레핀-환상 올레핀 공중합체로서는, 에틸렌 또는 프로필렌과 테트라시클로도데센의 공중합체 등이 예시된다.

[0075] 올레핀-스티렌계 공중합체로서는, 스티렌-부타디엔 공중합체, 스티렌-에틸렌프로필렌 공중합체, 스티렌-부타디엔-스티렌 공중합체, 스티렌-이소프렌-스티렌 공중합체, 스티렌-에틸렌부틸렌-스티렌 공중합체, 스티렌-에틸렌프로필렌-스티렌 공중합체 등이 예시된다.

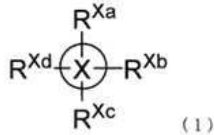
[0076] 산변성기가 그래프트화된 산변성 폴리올레핀의 제조 방법으로서, 특별히 한정되지 않고, 공지의 방법을 이용할 수 있다. 예를 들면, 폴리올레핀의 래디컬 그래프트화 반응을 이용할 수 있고, 보다 구체적으로는, 주쇄로 되는 폴리머에서 래디컬종을 생성하고, 그 래디컬종을 중합 개시점으로 하여 불포화 카르복실산 및 / 또는 불포화 카르복실산 무수물을 그래프트 중합시키는 방법을 들 수 있다.

[0077] 상기 불포화 카르복실산 및 / 또는 불포화 카르복실산 무수물로서는, 예를 들면, 아크릴산, 부탄산, 크로톤산, 비닐아세트산, 메타크릴산, 펜텐산, 도데센산, 리놀산, 안젤산, 계피산 등의 불포화 모노카르복실산, 말레인산, 푸말산, 클로로말레인산, 하이믹산 등의 불포화 디카르복실산, 무수 말레인산, 무수 하이믹산, 아크릴산 무수물

등의 불포화 카르복실산 무수물 등을 들 수 있다. 이들 중에서도, 무수 말레인산을 특히 적합하게 이용할 수 있다.

- [0078] 산변성 폴리올레핀의 수평균 분자량은 예를 들면, 2000~300000인 것이 바람직하고, 3000~200000인 것이 보다 바람직하다. 또한, 산변성 폴리올레핀은(특히, 수평균 분자량이 20000 이하의 산변성 폴리올레핀인 경우에는), 내열성의 관점에서, 에폭시 수지 조성물에 있어서, 에폭시 수지 중의 에폭시기와 산변성 폴리올레핀 중의 산변성기의 당량비(에폭시기 / 산변성기)가 0.5~6 정도인 것이 바람직하고, 보다 바람직한 하한은 0.5이고, 더욱 바람직한 하한은 0.8이고, 보다 바람직한 상한은 6이고, 더욱 바람직한 상한은 3이다. 수평균 분자량은 겔 퍼미에이션 크로마토그래피법(GPC)에 의해 측정된다. GPC에 의해 동일 조건으로 측정한 수평균 분자량을 이미 알려진 폴리스티렌과 비교함으로써 산변성 폴리올레핀의 수평균 분자량은 구해진다.
- [0079] 산변성 폴리올레핀의 산가는 특별히 한정되는 것은 아니지만, 산가(mgKOH / g)가 0.5~500인 것이 바람직하고, 2~300인 것이 보다 바람직하다.
- [0080] 산변성 폴리올레핀의 산변성기의 관능기 당량은 관능기 당량(g / mol)이 100~50000인 것이 바람직하고, 200~30000인 것이 보다 바람직하다.
- [0081] 특별히 제한되지는 않지만, 산변성 폴리올레핀은 수지 조성물에 있어서, 예를 들면, 70~98질량% 정도 함유될 수 있고, 바람직하게는 80~98, 85~98, 또는 90~98질량% 정도 함유될 수 있다.
- [0082] 산변성 폴리올레핀의 비유전율은 주파수 10GHz, 25℃에서 3.0 이하가 바람직하고, 보다 바람직하게는 2.8 이하, 더욱 바람직하게는 2.6 이하이다. 또한, 유전 정점은 주파수 10GHz, 25℃에서 0.003 이하가 바람직하고, 보다 바람직하게는 0.0028 이하이고, 더욱 바람직하게는 0.0025 이하이다. 또한, 산변성 폴리올레핀의 비유전율 및 유전 정점은 공동 공진기 섭동법으로 측정한다.
- [0083] 또한, 산변성 폴리올레핀은 1종을 단독으로 또는 2종 이상을 조합하여 이용할 수 있다.
- [0084] [에폭시 수지]
- [0085] 본 개시의 수지 조성물은 에폭시 수지를 포함한다. 에폭시 수지는 산변성 폴리올레핀에 포함되는 산변성기(예를 들면, 카르복실기)와 반응함으로써 가교 밀도를 증가시키고, 얻어지는 수지 조성물의 밀착력 및 내땀납 리플로성을 향상시킬 수 있다.
- [0086] 에폭시 수지로서는, 분자 내에 2개 이상(바람직하게는 2개, 3개, 또는 4개)의 에폭시기를 가지는 화합물을 들 수 있다. 해당 에폭시 수지로서는, 전기 및 전자 재료 용도에 사용 가능한 것이 바람직하다. 구체적으로는 예를 들면, 비스페놀A형 에폭시 수지, 비스페놀F형 에폭시 수지, 비스페놀S형 에폭시 수지, 페놀 노볼락형 에폭시 수지, 크레졸 노볼락형 에폭시 수지, 지환식 에폭시 수지, 함질소환 에폭시 수지(예를 들면, 트리글리시딜이소시아누레이트), 히단토인형 에폭시 수지, 지방족계 에폭시 수지, 글리시딜에테르형 에폭시 수지, 비페닐형 에폭시 수지, 디시클로펜타디엔형 에폭시 수지, 나프탈렌형 에폭시 수지, 안트라센형 에폭시 수지, 특수 에폭시 수지(규소 원소 함유 에폭시 수지 등이 예시된다) 등을 들 수 있다. 또한, 이들의 수지에는 할로겐화되어 있는 것, 또는 수소 첨가되어 있는 것도 포함된다.
- [0087] 경화물의 유전 특성을 향상(특히, 유전 정점의 저감)시키는 관점에서, 비스페놀A형 에폭시 수지, 비페닐형 에폭시 수지, 디시클로펜타디엔형 에폭시 수지, 안트라센형 에폭시 수지, 규소 원소 함유 에폭시 수지가 바람직하다. 보다 바람직하게는, 식(1)로 표시되는 규소 원소 함유 에폭시 수지이다. 이들의 에폭시 수지는 단독으로 이용해도 좋고, 2종 이상을 조합하여 이용해도 좋다.
- [0088] 구체적으로는 예를 들면, 비스페놀A형 에폭시 수지로서는, jER828, jER828EL(이상, 미츠비시 케미컬(주)제), EPICLON840, EPICLON860(이상, DIC(주)제) 등, 비페닐형 에폭시 수지로서는, YX4000, YL6677(이상, 미츠비시 케미컬(주)제), NC-3000, NC-3000-H(이상, 닛폰가야쿠(주)제) 등, 디시클로펜타디엔형 에폭시 수지로서는, HP-7200, HP-7200L, HP-7200H(이상, DIC(주)제), ND-1000(이상, 닛폰가야쿠(주)제) 등, 안트라센형 에폭시 수지로서는, YX8800(이상, 미츠비시 케미컬(주)제) 등, 규소 원소 함유 에폭시 수지로서는, 식(1)로 표시되는 에폭시 수지 등을 들 수 있다.
- [0089] 본 개시의 에폭시 수지 조성물에 바람직하게 사용할 수 있는 에폭시 수지로서, 식(1):

[0090] [화학식 7]

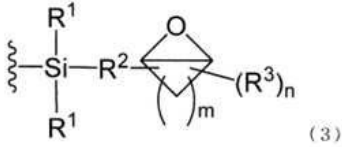


[0091]

[0092] 로 표시되는 예폭시 수지를 들 수 있다.

[0093] 식(1)에 있어서,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 는 동일 또는 다르고, 수소 원자, 저급 알킬기, 저급 알콕시기, 저급 알케닐기, 할로젠 원자, 또는 식(3):

[0094] [화학식 8]



[0095]

[0096] 으로 표시되는 기(이하, “식(3)의 기”라 하는 일이 있다)를 나타낸다. 또한, 이하, 저급 알킬기, 저급 알콕시기 및 저급 알케닐기를 종합하여 “저급 탄소 치환기”라 하는 일이 있다. 본 개시에 있어서는, 저급 탄소 치환기 중에서도, 저급 알킬기 또는 저급 알콕시기가 보다 바람직하다.

[0097] 다만,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$  중, 적어도 하나는 식(3)의 기이다. 바꾸어 말하면,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 는 3개가 수소 원자 또는 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기이고, 1개가 식(3)의 기이거나, 2개가 수소 원자 또는 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기이고, 2개가 식(3)의 기이거나, 1개가 수소 원자 또는 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기이고, 3개가 식(3)의 기이거나, 또는 전부가 식(3)의 기이다. 보다 구체적으로는 예를 들면,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$  중, (i)  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$  및  $R^{xc}$ 가 수소 원자 또는 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기이고,  $R^{xd}$ 가 식(3)의 기이거나, (ii)  $R^{xa}$  및  $R^{xb}$ 가 수소 원자 또는 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기이고,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 식(3)의 기이거나, (iii)  $R^{xa}$ 가 수소 원자 또는 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기이고,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 식(3)의 기이거나, 또는 (iv)  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 의 전부가 식(3)의 기일 수 있다. 또한,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$  중, 식(3)의 기가 아닌 것은 수소 원자 또는 저급 탄소 치환기인 것이 보다 바람직하다.

[0098] 식(1)에 있어서,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 는 동일 또는 달라도 좋다. 따라서, (i)  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$  및  $R^{xc}$ 가 수소 원자 또는 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기이고,  $R^{xd}$ 가 식(3)의 기인 경우에는,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$  및  $R^{xc}$ 가 동일 또는 달라도 좋고, (ii)  $R^{xa}$  및  $R^{xb}$ 가 수소 원자 또는 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기이고,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 식(3)의 기인 경우에는,  $R^{xa}$  및  $R^{xb}$ 가 동일 또는 달라도 좋고,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 도 동일 또는 달라도 좋고, (iii)  $R^{xa}$ 가 수소 원자 또는 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기이고,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 식(3)의 기인 경우에는,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 동일 또는 달라도 좋고, (iv)  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 의 전부가 식(3)의 기인 경우에는,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 동일 또는 달라도 좋다. 또한, 이들 어느 쪽의 경우에 있어서도, 식(3)의 기가 동일한 것이 바람직하다.

[0099] 또한,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$  중, 2 또는 3개가 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기인 경우에는, 이들의 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기도 동일 또는 달라도 좋다. 이 경우에는,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$  중, 2 또는 3개가 동일한 저급 탄소 치환기인 것이 더욱 바람직하다.

[0100] 본 명세서에 있어서, 저급 탄소 치환기란, 저급 알킬기, 저급 알콕시기, 또는 저급 알케닐기를 말한다. 여기에서의 저급이란, 탄소수 1~6(1, 2, 3, 4, 5, 또는 6)을 의미한다. 저급 탄소 치환기 중, 바람직하게는 저급 알킬기 또는 저급 알콕시기이다. 저급 알킬기로서는, 구체적으로는 메틸기, 에틸기, n-프로필기, 이소프로필기, n-부틸기, 이소부틸기 등을 바람직하게 예시할 수 있다. 저급 알콕시기로서는, 메톡시기, 에톡시기, 프로폭시기, 이소프로폭시기, 부톡시기, 이소부톡시기 등을 바람직하게 예시할 수 있다.

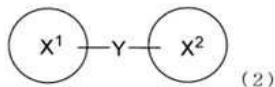
[0101] 또한, 본 명세서에 있어서, 할로젠 원자는 불소 원자, 염소 원자, 브롬 원자, 또는 요오드 원자이고, 바람직하게는 불소 원자, 염소 원자, 또는 브롬 원자이고, 보다 바람직하게는 불소 원자 또는 브롬 원자이다.

[0102] 식(1)에 있어서, X환은 포화 탄화수소환 또는 불포화 탄화수소환, 또는 포화 탄화수소환 및 / 불포화 탄화수소환이 2~6개 축합 또는 2개 연결된 구조를 가지는 환을 나타낸다. 본 명세서에 있어서, 포화 탄화수소환으로서는, 예를 들면, 탄소수 4~8(4, 5, 6, 7, 또는 8)의 포화 탄화수소환이 바람직하고, 시클로펜탄환, 시클로헥산환 등이 특히 바람직하다. 또한, 본 명세서에 있어서, 불포화 탄화수소환으로서는, 예를 들면, 탄소수 4~8(4, 5, 6, 7, 또는 8)의 불포화 탄화수소환이 바람직하고, 벤젠환 등이 특히 바람직하다. 또한, 본 명세서에 있어서, 포화 탄화수소환 및 / 또는 불포화 탄화수소환이 2~6개 축합한 구조를 가지는 환으로서는, 포화 탄화수소환 및 / 또는 불포화 탄화수소환이 2, 3, 또는 4개 축합한 환이 바람직하고, 2 또는 3개 축합한 환이 보다 바람직하다. 보다 구체적으로는 예를 들면, 데카히드로나트탈렌환, 아다만탄환, 나프탈렌환, 페난트렌환, 안트라센환, 피렌환, 트리페닐렌환, 테트라린환, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8-옥타히드로나프탈렌환, 노르보르넨환 등을 들 수 있다.

[0103] 또한, 본 명세서에서는 포화 탄화수소환 또는 불포화 탄화수소환, 또는 포화 탄화수소환 및 / 또는 불포화 탄화수소환이 2~6개 축합한 구조를 가지는 환을 종합하여 “탄화수소환”이라 부르는 일이 있다.

[0104] 포화 탄화수소환 및 / 또는 불포화 탄화수소환이 2개 연결된 구조를 가지는 환으로서는, 식(2):

[0105] [화학식 9]



[0106] 로 표시되는 환이 바람직하다.  
 [0107]

[0108] 식(2)에 있어서, X<sup>1</sup>환 및 X<sup>2</sup>환은 동일 또는 다르고, 포화 탄화수소환 또는 불포화 탄화수소환을 나타낸다. 즉, X<sup>1</sup>환 및 X<sup>2</sup>환은 양쪽 모두 포화 탄화수소환이거나, 양쪽 모두 불포화 탄화수소환이거나, 한쪽이 포화 탄화수소환이고, 다른 한쪽이 불포화 탄화수소환이다. X<sup>1</sup>환 및 X<sup>2</sup>환이 양쪽 모두 포화 탄화수소환이거나, 양쪽 모두 불포화 탄화수소환인 것이 바람직하다. 예를 들면, X<sup>1</sup>환 및 X<sup>2</sup>환은 양쪽이 벤젠환, 양쪽이 시클로헥산환, 또는 한쪽이 벤젠환이고, 다른 한쪽이 시클로헥산환인 것이 바람직하고, 양쪽이 벤젠환인 것이 보다 바람직하다.

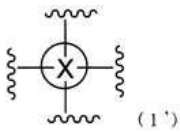
[0109] 또한, Y는 결합수, 탄소수 1~4의 알킬기로 치환되어 있어도 좋은 탄소수 1~6의 알킬렌기, 산소 원자(-O-), 유황 원자(-S-), -SO-, 또는 -SO<sub>2</sub>-를 나타낸다. 여기에서의 탄소수 1~6의 알킬렌기로서는, 메틸렌기, 에틸렌기, 트리메틸렌기, 테트라메틸렌기, 헥사메틸렌기 등을 예시할 수 있다. 또한, 치환기인 탄소수 1~4의 알킬기로서는, 메틸기, 에틸기, n-프로필기, 이소프로필기, n-부틸기, 이소부틸기 등을 예시할 수 있다. 바람직한 탄소수 1~4의 알킬기로 치환된 탄소수 1~6의 알킬렌기로서는, -CH(CH<sub>3</sub>)-, -C(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>-, -CH<sub>2</sub>CH(CH<sub>3</sub>)CH<sub>2</sub>-, -CH<sub>2</sub>C(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>- 등을 예시할 수 있다. Y는 바람직하게는 결합수, 산소 원자, 메틸렌기, 디메틸메틸렌기, -S-, -SO<sub>2</sub>-이고, 보다 바람직하게는 결합수, 디메틸메틸렌기, 산소 원자, -SO<sub>2</sub>-이다.

[0110] 식(2)로 표시되는 환은 R<sup>xa</sup>, R<sup>xb</sup>, R<sup>xc</sup> 및 R<sup>xd</sup>로 치환되어 있다. 식(1) 중의 X환이 식(2)로서, R<sup>xa</sup>~R<sup>xd</sup>의 3개가 수소 원자 또는 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기이고, 1개가 식(3)의 기인 경우, X<sup>1</sup>환 및 X<sup>2</sup>환의 어느 쪽이 식(3)의 기로 치환되어 있어도 좋다. 이 경우, 식(2)로 표시되는 환은 0, 1, 2, 또는 3개의 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기로 치환되는 바, 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기의 (X<sup>1</sup>환의 치환수:X<sup>2</sup>환의 치환수)는 (1:0), (0:1), (2:0), (1:1), (0:2), (3:0), (2:1), (1:2), 또는 (0:3)일 수 있다. R<sup>xa</sup>~R<sup>xd</sup>의 2개가 수소 원자 또는 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기이고, 2개가 식(3)의 기인 경우, X<sup>1</sup>환 및 X<sup>2</sup>환의 어느 쪽인가가 2개의 식(3)의 기로 치환되어 있어도 좋고, X<sup>1</sup>환 및 X<sup>2</sup>환이 1개씩 식(3)의 기로 치환되어 있어도 좋고, X<sup>1</sup>환 및 X<sup>2</sup>환이 1개씩 식(3)의 기로 치환되어 있는 것이 바람직하다. 이 경우, 식(2)로 표시되는 환은 0, 1, 또는 2개의 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기로 치환되는 바, 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기의 (X<sup>1</sup>환의 치환수:X<sup>2</sup>환의 치환수)는 (1:0), (0:1), (2:0), (1:1), 또는 (0:2)일 수 있다. R<sup>xa</sup>~R<sup>xd</sup>의 1개가 수소 원자 또는 할로젠 원

자 또는 저급 탄소 치환기이고, 3개가 식(3)의 기인 경우,  $X^1$ 환 및  $X^2$ 환의 어느 쪽인가가 3개의 식(3)의 기로 치환되어 있어도 좋고,  $X^1$ 환이 2개,  $X^2$ 환이 1개의 식(3)의 기로 치환되어 있어도 좋고,  $X^1$ 환이 1개,  $X^2$ 환이 2개의 식(3)의 기로 치환되어 있어도 좋고,  $X^1$ 환이 2개,  $X^2$ 환이 1개의 식(3)의 기로 치환되어 있거나, 또는  $X^1$ 환이 1개,  $X^2$ 환이 2개의 식(3)의 기로 치환되어 있는 것이 바람직하다. 이 경우, 식(2)로 표시되는 환은 0 또는 1개의 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기로 치환되는 바, 할로젠 원자 또는 저급 탄소 치환기의 ( $X^1$ 환의 치환수: $X^2$ 환의 치환수)는 (1:0) 또는 (0:1)일 수 있다.  $R^{xa} \sim R^{xd}$ 의 전부가 식(3)의 기인 경우,  $X^1$ 환 및  $X^2$ 환의 어느 쪽인가가 4개의 식(3)의 기로 치환되어 있어도 좋고,  $X^1$ 환이 3개,  $X^2$ 환이 1개의 식(3)의 기로 치환되어 있어도 좋고,  $X^1$ 환이 1개,  $X^2$ 환이 3개의 식(3)의 기로 치환되어 있어도 좋고,  $X^1$ 환이 2개,  $X^2$ 환이 2개의 식(3)의 기로 치환되어 있어도 좋고,  $X^1$ 환이 2개,  $X^2$ 환이 2개의 식(3)의 기로 치환되어 있는 것이 바람직하다.

[0111] 식(1)의 일부인 기인 식(1') :

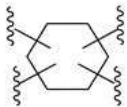
[0112] [화학식 10]



[0113] ...  
 [0114] (식(1') ) 중, X환은 상기와 같음.)

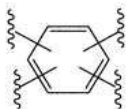
[0115] 로 나타나는 4가의 기로서, 특히 바람직하게는 이하의 식으로 표시되는 기를 들 수 있다. 즉,

[0116] [화학식 11]



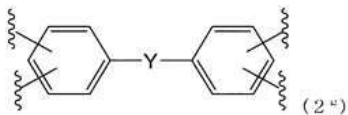
[0117] ...  
 [0118] 또는,

[0119] [화학식 12]



[0120] ...  
 [0121] 또는,

[0122] [화학식 13]



[0123] ...  
 [0124] (식(2'') 중, Y는 상기와 같음.)

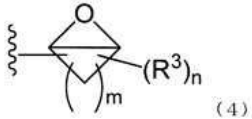
[0125] 으로 표시되는 기이다.

[0126] 식(3)에 있어서,  $R^1$ 은 동일 또는 다르고, 탄소수 1~18의 알킬기, 탄소수 2~9의 알케닐기, 시클로알킬기, 아릴기, 또는 아랄킬기를 나타내고, 이들의 기는 일부의 탄소 원자가 산소 원자 및 질소 원자로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1종의 원자(바람직하게는 산소 원자)로 치환되어 있어도 좋다. 해당 일부의 탄소 원자는 규소 원자에 직접 결합해 있지 않은 탄소 원자인 것이 바람직하다. 또한, 해당 치환되어 있어도 좋은 일부의 탄소 원자는 1 또는 복수(예를 들면, 2, 3, 4, 5, 또는 6)개의 탄소 원자이고, 바람직하게는 1개의 탄소 원자이다. 또한, 합성의 간편함의 관점 등에서, 동일 규소 원자에 결합한  $R^1$ 은 동일한 것이 바람직하다. 또한, 식

(1)에서 존재하는 모든  $R^1$ 이 동일한 것이 보다 바람직하다.

- [0127]  $R^1$ 로 나타나는 탄소수 1~18의 알킬기로서는, 직쇄 또는 분기쇄상의 알킬기이고, 예를 들면, 메틸기, 에틸기, n-프로필기, 이소프로필기, n-부틸기, 이소부틸기, tert-부틸기, n-펜틸기, 네오펜틸기, tert-펜틸기, n-헥실기, n-헵틸기, 2, 2, 4-트리메틸펜틸기, n-옥틸기, 이소옥틸기, n-노닐기, n-데실기, n-도데실기 등을 들 수 있다. 바람직하게는 탄소수 1~10의 알킬기이고, 보다 바람직하게는 탄소수 1~6의 알킬기이고, 더욱 바람직하게는 탄소수 1~3의 알킬기이고, 특히 바람직하게는 메틸기이다.
- [0128]  $R^1$ 로 나타나는 탄소수 2~9의 알케닐기로서는, 직쇄 또는 분기쇄상의 알케닐기이고, 예를 들면, 비닐기, 알릴기, 2-프로페닐기, 부테닐기, 펜테닐기, 헥세닐기, 헵테닐기, 옥테닐기, 노네닐기 등을 들 수 있다. 바람직하게는 탄소수 2~4의 알케닐기이다.
- [0129]  $R^1$ 로 나타나는 시클로알킬기로서는, 3~8원환의 시클로알킬기를 들 수 있고, 예를 들면, 시클로펜틸기, 시클로헥실기, 시클로헵틸기, 메틸시클로헥실기 등을 들 수 있다.
- [0130]  $R^1$ 로 나타나는 아릴기로서는, 단환 또는 2환의 아릴기를 들 수 있고, 예를 들면, 페닐기, 톨릴기, 크실릴기, 에틸페닐기, 나프틸기 등을 들 수 있다. 그 중에서도, 페닐기가 바람직하다.
- [0131]  $R^1$ 로 나타나는 아랄킬기로서는, 아릴기(특히, 페닐기)로 치환된 탄소수 1~4의 알킬기를 들 수 있고, 예를 들면, 벤질기,  $\alpha$ -페네틸기,  $\beta$ -페네틸기,  $\beta$ -메틸페네틸기 등을 들 수 있다.
- [0132]  $R^1$ 은 바람직하게는 탄소수 1~3의 알킬기이고, 보다 바람직하게는 메틸기이다.
- [0133] 식(3)에 있어서,  $R^2$ 는 탄소수 1~18(1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 14, 15, 16, 17, 또는 18)의 알킬렌기를 나타낸다. 해당 알킬렌기는 직쇄 또는 분기쇄상의 알킬렌기이고, 바람직하게는 직쇄상의 알킬렌기이다. 예를 들면, 메틸렌기, 메틸메틸렌기, 에틸메틸렌기, 디메틸메틸렌기, 디에틸메틸렌기, 디메틸렌기( $-\text{CH}_2\text{CH}_2-$ ), 트리메틸렌기( $-\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2-$ ), 테트라메틸렌기, 펜타메틸렌기, 헥사메틸렌기, 헵타메틸렌기, 옥타메틸렌기, 노나메틸렌기, 데카메틸렌기, 운데카메틸렌기, 도데카메틸렌기, 트리데카메틸렌기 등을 들 수 있다. 예를 들면, 탄소수 2~18의 알킬렌기, 바람직하게는 탄소수 2~10의 알킬렌기이고, 보다 바람직하게는 탄소수 2~8의 알킬렌기이고, 더욱 바람직하게는 탄소수 2~6의 알킬렌기이고, 특히 바람직하게는 탄소수 2~5의 알킬렌기이다.
- [0134] 상기 탄소수 1~18의 알킬렌기는 일부의 탄소 원자가 산소 원자 및 질소 원자로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1종의 원자(바람직하게는 산소 원자)로 치환되어 있어도 좋다. 해당 일부의 탄소 원자는 규소 원자 및 3~8원환 또는 에폭시환의 어느 쪽에도 직접 결합해 있지 않은 탄소 원자인 것이 바람직하다. 또한, 해당 치환되어 있어도 좋은 일부의 탄소 원자는 1 또는 복수(예를 들면, 2, 3, 4, 5, 또는 6)개의 탄소 원자이고, 바람직하게는 1개의 탄소 원자이다.
- [0135] 해당 기로서는,  $R^2$ 의 규소 원자에 결합하는 측을 (\*)로 한 경우에, 예를 들면, (\*)-탄소수 2~9의 알킬렌-0-탄소수 1~8의 알킬렌-, 바람직하게는 (\*)-탄소수 2~4의 알킬렌-0-탄소수 1~3의 알킬렌-, 보다 바람직하게는 (\*)-탄소수 2~4의 알킬렌-0-탄소수 1~2의 알킬렌-, 특히 바람직하게는 (\*)-탄소수 3의 알킬렌-0-메틸렌-를 들 수 있다.
- [0136] 구체적으로는 예를 들면, (\*)- $(\text{CH}_2)_2$ -0- $\text{CH}_2-$ , (\*)- $(\text{CH}_2)_3$ -0- $\text{CH}_2-$ , (\*)- $(\text{CH}_2)_3$ -0- $(\text{CH}_2)_2-$ , (\*)- $(\text{CH}_2)_5$ -0- $(\text{CH}_2)_4-$  등을 들 수 있고, 이들 중에서도, (\*)- $(\text{CH}_2)_3$ -0- $\text{CH}_2-$ 가 바람직하다.
- [0137] 식(3)에 있어서, m은 0~6의 정수(즉, 0, 1, 2, 3, 4, 5, 또는 6)을 나타낸다. 또한, n은 0~3의 정수(즉, 0, 1, 2, 또는 3)를 나타낸다. 여기에서, 식(3)의  $R^2$ 가 결합해 있는 기(규소 원자에 결합해 있지 않은 측)를 식(4)로 나타내면(이하, “식(4)의 기”라 하는 일이 있다), 이하와 같이 된다.

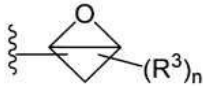
[0138] [화학식 14]



[0139]

[0140] 식(4)의 기에 대하여, m이 1~6의 정수인 경우를 구체적으로 구조식으로 기재하면, m=1인 경우는,

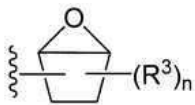
[0141] [화학식 15]



[0142]

[0143] m=2인 경우는,

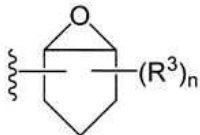
[0144] [화학식 16]



[0145]

[0146] m=3인 경우는,

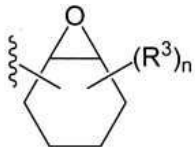
[0147] [화학식 17]



[0148]

[0149] m=4인 경우는,

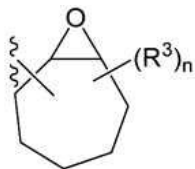
[0150] [화학식 18]



[0151]

[0152] m=5인 경우는,

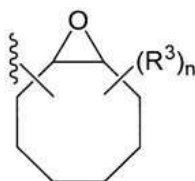
[0153] [화학식 19]



[0154]

[0155] m=6인 경우는,

[0156] [화학식 20]

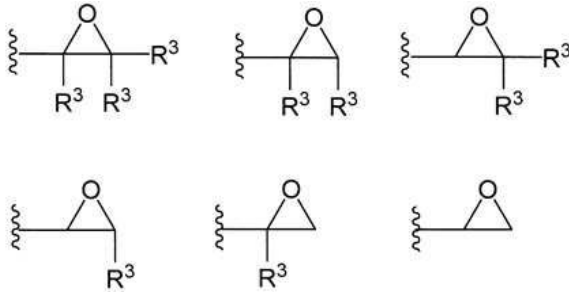


[0157]

[0158] 으로 나타낸다.

[0159] 식(4)의 기는  $m$ 이 0인 경우에는, 에폭시환만이 남고,  $n$ 이 0~3의 정수이기 때문에 이하의 어느 쪽인가의 기를 나타낸다.

[0160] [화학식 21]



[0161]

[0162] 식(3)에 있어서,  $R^2$  및  $R^3$ 은 3~8원환 또는 에폭시환에 결합한다. 또한,  $n$ 은 3~8원환 또는 에폭시환에 결합하는  $R^3$ 의 수를 나타내고 있다.

[0163] 식(3)에 있어서,  $R^3$ 은 동일 또는 다르고, 탄소수 1~18의 알킬기, 탄소수 2~9의 알케닐기, 시클로알킬기, 아릴기, 또는 아랄킬기를 나타내고, 이들의 기는 일부의 탄소 원자가 산소 원자 및 질소 원자로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1종의 원자로 치환되어 있어도 좋다. 해당 일부의 탄소 원자는 3~8원환 또는 에폭시환에 직접 결합해 있지 않은 탄소 원자인 것이 바람직하다. 또한, 해당 치환되어 있어도 좋은 일부의 탄소 원자는 1 또는 복수(예를 들면, 2, 3, 4, 5, 또는 6)개의 탄소 원자이고, 바람직하게는 1개의 탄소 원자이다.

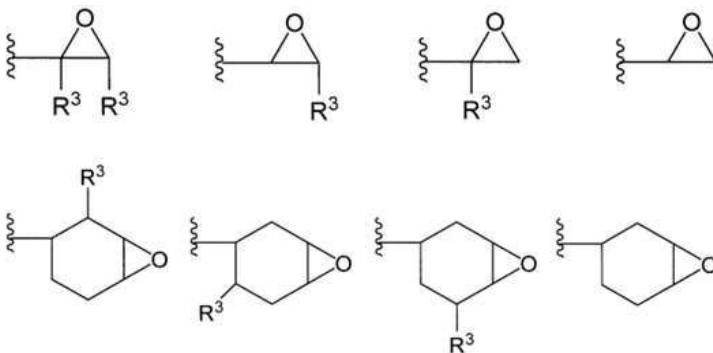
[0164]  $R^3$ 으로 나타나는 탄소수 1~18의 알킬기, 탄소수 2~9의 알케닐기, 시클로알킬기, 아릴기 및 아랄킬기는 각각 상기  $R^1$ 로 나타나는 대응하는 치환기와 동일한 것을 들 수 있다.

[0165]  $R^3$ 으로서, 바람직하게는 탄소수 1~3의 알킬기이고, 보다 바람직하게는 메틸기 또는 에틸기이다.

[0166] 그 중에서도 바람직한 식(3)의 기의 예로서,  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $m$  및  $n$ 은 상기와 같고, 또한  $R^1$ 이 모두 동일하고,  $R^3$ 이 (복수 존재하는 경우에는)모두 동일한 기를 들 수 있다. 해당 기는 식(1)로 표시되는 에폭시 수지에는 1, 2, 3, 또는 4 존재하고, 각각의 기가 동일 또는 달라도 좋고, 동일한 것이 바람직하다.

[0167] 또한, 식(4)의 기로서, 특히 바람직한 구체예로서는,  $R^3$ 은 상기와 같고,  $m$ 이 0, 1, 2, 3, 또는 4를 나타내고,  $n$ 이 0, 1, 또는 2를 나타내는 기를 들 수 있고, 그 중에서도 보다 바람직하게는, 예를 들면, 이하의 기(모두  $R^3$ 은 상기와 같음)를 들 수 있다.

[0168] [화학식 22]



[0169]

[0170] 식(4)의 기는 식(1)로 표시되는 에폭시 수지에는 1, 2, 3, 또는 4 존재하지만, 각각의 기가 동일 또는 달라도 좋고, 동일한 것이 바람직하다.

[0171] 또한, X환을 구성하는 탄화수소환을 구성하는 탄소 원자이고, 또한  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 결합해 있지 않은 탄소 원자에 결합한 수소 원자는 저급 탄소 치환기 또는 할로젠 원자(바람직하게는 저급 탄소 치환기)로 치환되어 있

어도 좋다. 즉, X환이 포화 탄화수소환 또는 불포화 탄화수소환, 또는 포화 탄화수소환 및 / 또는 불포화 탄화수소환이 2~6개 축합한 구조를 가지는 환인 경우에는, 이들의 환을 구성하는 탄소 원자이고, 또한  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 결합해 있지 않은 탄소 원자에 결합한 수소 원자는 저급 탄소 치환기 또는 할로겐 원자(바람직하게는 저급 탄소 치환기)로 치환되어 있어도 좋고, 또는 X환이 포화 탄화수소환 및 / 또는 불포화 탄화수소환이 2개 연결된 구조를 가지는 환인 경우에는, 이들 연결된 포화 탄화수소환 및 / 또는 불포화 탄화수소환을 구성하는 탄소 원자이고, 또한  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 결합해 있지 않은 탄소 원자에 결합한 수소 원자는 저급 탄소 치환기 또는 할로겐 원자(바람직하게는 저급 탄소 치환기)로 치환되어 있어도 좋다. 또한, X환이 식(2)로 표시되는 환인 경우를 보다 구체적으로 설명하면,  $X^1$ 환 및  $X^2$ 환을 구성하는 탄소 원자이고, 또한  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 결합해 있지 않은 탄소 원자에 결합한 수소 원자는 저급 탄소 치환기 또는 할로겐 원자(바람직하게는 저급 탄소 치환기)로 치환되어 있어도 좋다고 할 수 있다.

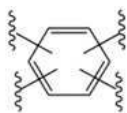
[0172] 본 명세서에 있어서는, X환을 구성하는 탄화수소환을 구성하는 탄소 원자이고, 또한  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 결합해 있지 않은 탄소 원자를 " $R^{xa-d}$  비결합 탄소 원자"라 하는 일이 있다.

[0173]  $R^{xa-d}$  비결합 탄소 원자에 결합한 수소 원자가 치환되어 있어도 좋은 저급 탄소 치환기 또는 할로겐 원자는 1개의  $R^{xa-d}$  비결합 탄소 원자에 1개만 결합하는 것이 바람직하다. 즉,  $R^{xa-d}$  비결합 탄소 원자에 결합한 수소 원자가 치환되는 경우에 있어서는,  $R^{xa-d}$  비결합 탄소 원자에 결합한 수소 원자 중, 1개의 수소 원자만이 저급 탄소 치환기 또는 할로겐 원자로 치환되는 것이 바람직하다. 또한, 해당 치환의 수(즉, 저급 탄소 치환기 및 할로겐 원자의 합계)는  $R^{xa-d}$  비결합 탄소 원자의 수보다 적은 것이 바람직하다. 해당 치환의 수는 보다 구체적으로는, 1~6(1, 2, 3, 4, 5, 또는 6)이 바람직하고, 1~4가 보다 바람직하고, 1~2가 더욱 바람직하다. 또한, 특히 X환이 식(2)로 표시되는 환인 경우에는, 치환되는 수소 원자는 Y가 결합해 있지 않은 탄소 원자에 결합한 수소 원자인 것이 바람직하다.

[0174]  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$  중, 적어도 1개가 저급 탄소 치환기이고, 또한  $R^{xa-d}$  비결합 탄소 원자에 저급 탄소 치환기가 적어도 1개 결합하는 경우, 모든 저급 탄소 치환기가 동일한 것이 바람직하다. 즉,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$  중에 저급 탄소 치환기가 존재하고, 또한  $R^{xa-d}$  비결합 탄소 원자에 결합하는 저급 탄소 치환기가 존재하는 경우, 모든 저급 탄소 치환기가 동일한 것이 바람직하다. 또한,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$  중 적어도 1개가 할로겐 원자이고, 또한  $R^{xa-d}$  비결합 탄소 원자에 할로겐 원자가 적어도 1개 결합하는 경우, 모든 할로겐 원자가 동일한 것이 바람직하다. 즉,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$  중에 할로겐 원자가 존재하고, 또한  $R^{xa-d}$  비결합 탄소 원자에 결합하는 할로겐 원자가 존재하는 경우, 모든 할로겐 원자가 동일한 것이 바람직하다.

[0175] 더욱 구체적으로 설명하면, 예를 들면, 상기 식(1')로 표시되는 4가의 기가

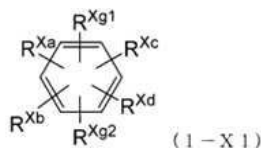
[0176] [화학식 23]



[0177] 인 경우, 식(1)로 표시되는 에폭시 수지로서, 식(1-X1)

[0178]

[0179] [화학식 24]



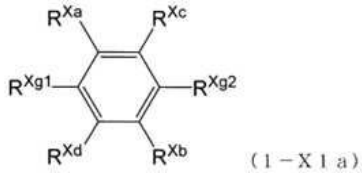
[0180]

[0181] (식(1-X1) 중,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 는 상기와 같고,  $R^{xg1}$  및  $R^{xg2}$ 는 동일 또는 다르고, 수소 원자, 저급 알킬기, 저급 알콕시기, 또는 저급 알케닐기를 나타낸다.)로 표시되는 에폭시 수지를 바람직하게 예시할 수 있다. 식(1

-X1)에 있어서,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ ,  $R^{xg1}$  및  $R^{xg2}$ 가 각각 벤젠환 상의 다른 탄소 원자에 결합해 있는것이 보다 바람직하다. 식(1-X1)로 표시되는 에폭시 수지 중에서도,  $R^{xg1}$  및  $R^{xg2}$ 가 수소 원자인 것이 바람직하다.

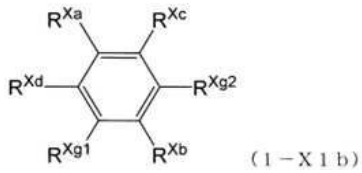
[0182] 식(1-X1)로 표시되는 에폭시 수지 중에서도, 더욱 바람직한 것으로서 식(1-X1a):

[0183] [화학식 25]



[0185] (식(1-X1a) 중,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 는 상기와 같고,  $R^{xg1}$  및  $R^{xg2}$ 는 상기와 같음.)로 표시되는 에폭시 수지나 식(1-X1b):

[0186] [화학식 26]



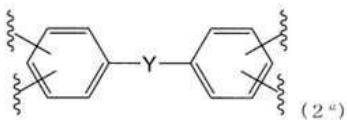
[0188] (식(1-X1b) 중,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 는 상기와 같고,  $R^{xg1}$  및  $R^{xg2}$ 는 상기와 같음.)로 표시되는 에폭시 수지를 예시할 수 있다.

[0189] 식(1-X1a)로 표시되는 에폭시 수지 중에서도, 예를 들면,  $R^{xa}$  및  $R^{xb}$ 가 수소 원자이고,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 식(3)의 기이고,  $R^{xg1}$  및  $R^{xg2}$ 가 수소 원자인 경우나,  $R^{xa}$  및  $R^{xc}$ 가 수소 원자이고,  $R^{xb}$  및  $R^{xd}$ 가 식(3)의 기이고,  $R^{xg1}$  및  $R^{xg2}$ 가 수소 원자인 경우가 보다 바람직하다.

[0190] 또한, 식(1-X1b)로 표시되는 에폭시 수지 중에서도, 예를 들면,  $R^{xa}$ 가 수소 원자이고,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 식(3)의 기이고,  $R^{xg1}$  및  $R^{xg2}$ 가 수소 원자인 경우가 보다 바람직하다.

[0191] 또한, 상기 식(1')로 표시되는 4가의 기가

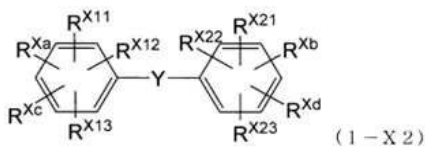
[0192] [화학식 27]



[0194] (식(2<sup>e</sup>) 중, Y는 상기와 같음.)

[0195] 로 표시되는 기인 경우, 식(1)로 표시되는 에폭시 수지로서, 식(1-X2)

[0196] [화학식 28]

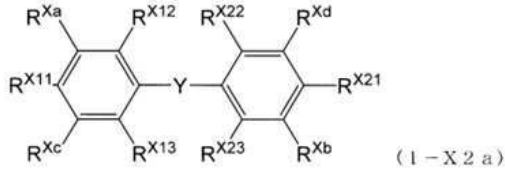


[0198] [식(1-X2) 중, Y는 상기와 같고,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 는 상기와 같고,  $R^{x11}$ ,  $R^{x12}$  및  $R^{x13}$  및  $R^{x21}$ ,  $R^{x22}$  및  $R^{x23}$ 은 동일 또는 다르고, 수소 원자, 저급 알킬기, 저급 알콕시기, 또는 저급 알케닐기를 나타낸다.]로 표시되는 에폭시 수지도 바람직하게 예시할 수 있다. 식(1-X2)에 있어서,  $R^{xa}$ ,  $R^{xc}$ ,  $R^{x11}$ ,  $R^{x12}$  및  $R^{x13}$ 이 각각 다른 탄소 원자에

결합해 있는 것이 보다 바람직하고, 또한  $R^{xb}$ ,  $R^{xd}$ ,  $R^{x21}$ ,  $R^{x22}$  및  $R^{x23}$ 이 각각 다른 탄소 원자에 결합해 있는 것이 보다 바람직하다. 또한,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$ ,  $R^{xd}$ ,  $R^{x11}$ ,  $R^{x12}$ ,  $R^{x13}$ ,  $R^{x21}$ ,  $R^{x22}$  및  $R^{x23}$ 은 모두 Y가 결합한 탄소 원자에는 결합하지 않는다.

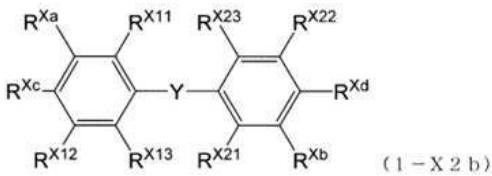
[0199] 식(1-X2)로 표시되는 에폭시 수지 중에서도, 더욱 바람직한 것으로서 식(1-X2a):

[0200] [화학식 29]



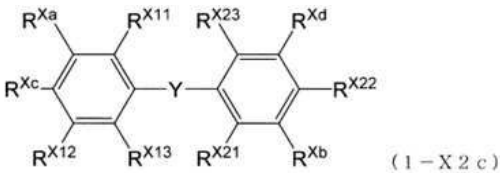
[0202] (식(1-X2a) 중, Y는 상기와 같고,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 는 상기와 같고,  $R^{x11}$ ,  $R^{x12}$  및  $R^{x13}$  및  $R^{x21}$ ,  $R^{x22}$  및  $R^{x23}$ 은 동일 또는 다르고, 수소 원자, 저급 알킬기, 저급 알콕시기, 또는 저급 알케닐기를 나타낸다.)로 표시되는 에폭시 수지나 식(1-X2b):

[0203] [화학식 30]



[0205] (식(1-X2b) 중, Y는 상기와 같고,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 는 상기와 같고,  $R^{x11}$ ,  $R^{x12}$  및  $R^{x13}$  및  $R^{x21}$ ,  $R^{x22}$  및  $R^{x23}$ 은 동일 또는 다르고, 수소 원자, 저급 알킬기, 저급 알콕시기, 또는 저급 알케닐기를 나타낸다.)로 표시되는 에폭시 수지나 식(1-X2c):

[0206] [화학식 31]



[0208] (식(1-X2c) 중, Y는 상기와 같고,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 는 상기와 같고,  $R^{x11}$ ,  $R^{x12}$  및  $R^{x13}$  및  $R^{x21}$ ,  $R^{x22}$  및  $R^{x23}$ 은 동일 또는 다르고, 수소 원자, 저급 알킬기, 저급 알콕시기, 또는 저급 알케닐기를 나타낸다.)로 표시되는 에폭시 수지를 예시할 수 있다.

[0209] 식(1-X2a)로 표시되는 에폭시 수지 중에서도, 예를 들면,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 식(3)의 기이고,  $R^{x11}$  및  $R^{x21}$ 이 저급 탄소 치환기이고,  $R^{x12}$ ,  $R^{x13}$ ,  $R^{x22}$  및  $R^{x23}$ 이 수소 원자인 경우가 바람직하다. 그 중에서도, Y가 탄소수 1~4의 알킬기로 치환되어 있어도 좋은 탄소수 1~6의 알킬렌기(특히,  $-C(CH_3)_2-$ )이고,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 식(3)의 기이고,  $R^{x11}$  및  $R^{x21}$ 이 저급 알콕시기이고,  $R^{x12}$ ,  $R^{x13}$ ,  $R^{x22}$  및  $R^{x23}$ 이 수소 원자인 경우가 특히 바람직하다. 이들의 경우에 있어서,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 의 식(3)의 기가 모두 동일하고,  $R^{x11}$  및  $R^{x21}$ 의 저급 탄소 치환기가 동일한 경우가 보다 바람직하다.

[0210] 또한, 식(1-X2b)로 표시되는 에폭시 수지 중에서도, 예를 들면,  $R^{xa}$  및  $R^{xb}$ 가 수소 원자이고,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 식(3)의 기이고,  $R^{x11}$ ,  $R^{x12}$ ,  $R^{x13}$ ,  $R^{x21}$ ,  $R^{x22}$  및  $R^{x23}$ 은 수소 원자인 경우가 바람직하다. 이 경우에 있어서,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 의 식(3)의 기가 동일한 경우가 보다 바람직하다.

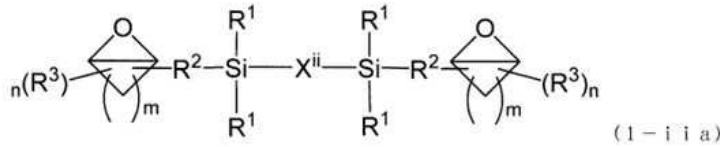
[0211] 또한, 식(1-X2c)로 표시되는 에폭시 수지 중에서도, 예를 들면,  $R^{xa}$ 가 수소 원자이고,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 식(3)의 기이고,  $R^{x11}$ ,  $R^{x12}$ ,  $R^{x13}$ ,  $R^{x21}$ ,  $R^{x22}$  및  $R^{x23}$ 은 수소 원자인 경우가 바람직하다. 이 경우에 있어서,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 의 식(3)의 기가 동일한 경우가 보다 바람직하다.

[0212] 본 명세서에 있어서, 식(1)에서의 X환,  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$  및 식(3)의 기에서의  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ , m 및 n에 관한 설명은 식(4)의 기에 대한 설명도 포함시켜서, 모두 임의로 조합할 수 있고, 그 조합에 의해 나타나는 어느 쪽의 에폭시 수지도 이용할 수 있다.

[0213] 식(1)에 있어서, (iia)  $R^{xa-d}$  비결합 탄소 원자에 결합한 수소 원자가 치환되어 있지 않고, 또한  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$  중,  $R^{xa}$  및  $R^{xb}$ 가 수소 원자이고,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 식(3)의 기이거나, (iiia)  $R^{xa-d}$  비결합 탄소 원자에 결합한 수소 원자가 치환되어 있지 않고, 또한  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$  중,  $R^{xa}$ 가 수소 원자이고,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 가 식(3)의 기이거나, 또는 (iva)  $R^{xa-d}$  비결합 탄소 원자에 결합한 수소 원자가 치환되어 있지 않고, 또한  $R^{xa}$ ,  $R^{xb}$ ,  $R^{xc}$  및  $R^{xd}$ 의 전부가 식(3)의 기일 수 있다.

[0214] (iia)의 경우, 식(1)로 나타나는 에폭시 수지는 다음의 식(1-ii a):

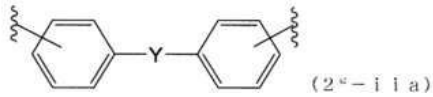
[0215] [화학식 32]



[0216]

[0217] [식 중,  $X^{ii}$ 는 탄화수소환으로부터 2개의 수소 원자를 제외하고 얻어지는 2가의 기, 또는 식(2<sup>g</sup>-iia):

[0218] [화학식 33]



[0219]

[0220] (식 중, Y는 상기와 같음.)로 표시되는 2가의 기를 나타내고,

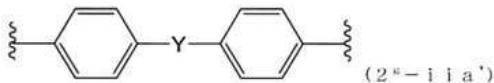
[0221]  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ , m 및 n은 상기와 같음.]

[0222] 로 표시되는 에폭시 수지를 바람직하게 포함한다. 또한,  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ , m 및 n은 모두 각각 동일 또는 달라 있어도 좋고, 동일한 것이 바람직하다.

[0223]  $X^{ii}$ 로 나타나는 2가의 기로서, 바람직하게는 시클로hexan-1, 4-디일기, 1, 4-페닐렌기를 들 수 있고, 보다 바람직하게는 1, 4-페닐렌기이다.

[0224] 식(2<sup>g</sup>-iia)로 표시되는 2가의 기 중, 바람직하게는 식(2<sup>g</sup>-iia'):

[0225] [화학식 34]



[0226]

[0227] (식 중, Y는 상기와 같음.)

[0228] 로 표시되는 기이다.

[0229] 식(2<sup>g</sup>-iia')에 있어서, Y가 결합수, 디메틸메틸렌기, 산소 원자, 또는  $-SO_2-$ 인 기가 특히 바람직하다.

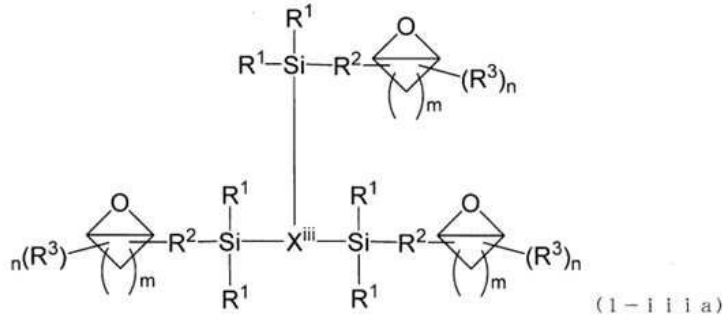
[0230]  $X^{ii}$ 로서, 그 중에서도 바람직하게는 시클로hexan-1, 4-디일기, 1, 4-페닐렌기, 식(2<sup>g</sup>-iia')를 들 수 있고,

보다 바람직하게는 1, 4-페닐렌기이다.

[0231] 예를 들면, 식(1-ii a)에 있어서, m은 동일하고, 0, 1, 2, 3, 또는 4(특히 바람직하게는, m은 동일하고, 0 또는 4), n은 동일하고, 0(즉, R<sup>3</sup>에 의해 환은 치환되어 있지 않다)을, X<sup>ii</sup>는 탄화수소환(특히 바람직하게는 벤젠환)으로부터 2개의 수소 원자를 제외하고 얻어지는 2가의 기를, R<sup>1</sup>은 동일하고, 탄소수 1~3의 알킬기를, R<sup>2</sup>는 동일하고, 규소 원자 및 3~6원환 또는 에폭시환의 어느 쪽에도 직접 결합해 있지 않은 1개의 탄소 원자가 산소 원자로 치환되어 있어도 좋은 탄소수 2~6의 알킬렌기를 각각 나타냄으로써 표시되는 에폭시 수지를 보다 바람직하게 이용할 수 있다.

[0232] (iiia)의 경우, 식(1)로 나타나는 에폭시 수지는 다음의 식(1-iii a):

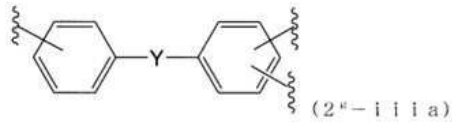
[0233] [화학식 35]



[0234]

[0235] [식 중, X<sup>iii</sup>은 탄화수소환으로부터 3개의 수소 원자를 제외하고 얻어지는 3가의 기, 또는 식(2<sup>g</sup>-iii a):

[0236] [화학식 36]



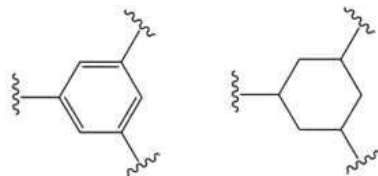
[0237]

[0238] (식 중, Y는 상기와 같음.)로 표시되는 3가의 기를 나타내고, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, m 및 n은 상기와 같음.]

[0239] 로 표시되는 에폭시 수지를 바람직하게 포함한다. 또한, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, m 및 n은 모두 각각 동일 또는 달라 있어도 좋고, 동일한 것이 바람직하다.

[0240] X<sup>iii</sup>으로 나타나는 3가의 기로서, 바람직하게는 이하의 기:

[0241] [화학식 37]

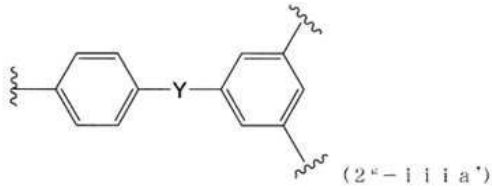


[0242]

[0243] 를 들 수 있다.

[0244] 식(2<sup>g</sup>-iii a)로 표시되는 3가의 기 중, 바람직하게는 식(2<sup>g</sup>-iii a') :

[0245] [화학식 38]



[0246]

(식 중, Y는 상기와 같음.)

[0247]

로 표시되는 기이다.

[0248]

식(2<sup>g</sup>-iii a')에 있어서, Y가 결합수, 디메틸메틸렌기, 산소 원자, 또는 -SO<sub>2</sub>-인 기가 특히 바람직하다.

[0249]

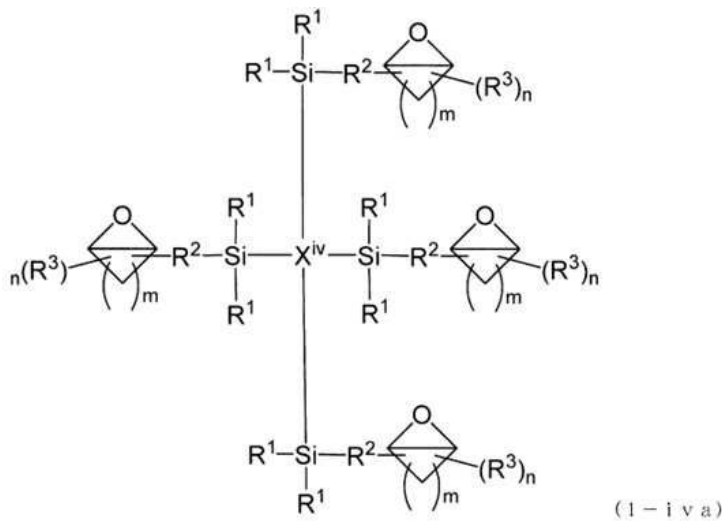
예를 들면, 식(1-iii a)에 있어서, m은 동일하고, 0, 1, 2, 3, 또는 4(특히 바람직하게는 m은 동일하고, 0 또는 4), n은 동일하고, 0(즉, R<sup>3</sup>에 의해 환은 치환되어 있지 않다)을, X<sup>iii</sup>은 탄화수소환(특히 바람직하게는 벤젠환)으로부터 3개의 수소 원자를 제외하고 얻어지는 3개의 기를, R<sup>1</sup>은 동일하고, 탄소수 1~3의 알킬기를, R<sup>2</sup>는 동일하고, 규소 원자 및 3~6원환 또는 에폭시환의 어느 쪽에도 직접 결합해 있지 않은 1개의 탄소 원자가 산소 원자로 치환되어 있어도 좋은 탄소수 2~6의 알킬렌기를 각각 나타냄으로써 표시되는 에폭시 수지를 보다 바람직하게 이용할 수 있다.

[0250]

(iva)의 경우, 식(1)로 나타나는 에폭시 수지는 다음의 식(1-iva):

[0251]

[0252] [화학식 39]



[0253]

[식 중, X<sup>iv</sup>는 상기 (1')로 나타나는 4가의 기이고, 또한 X환에 있어서 R<sup>xa-d</sup> 비결합 탄소 원자에 결합한 수소 원자가 치환되어 있지 않은 기를 나타내고, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, m 및 n은 상기와 같음.]

[0254]

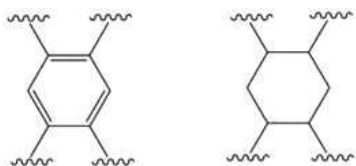
로 표시되는 에폭시 수지를 포함한다. 또한, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, m 및 n은 모두 각각 동일 또는 달라 있어도 좋고, 동일한 것이 바람직하다.

[0255]

X<sup>iv</sup>로 나타나는 4가의 기로서, 바람직하게는 이하의 기:

[0256]

[0257] [화학식 40]

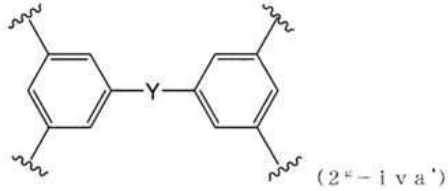


[0258]

[0259] 를 들 수 있다.

[0260]  $X^{iv}$ 로 나타나는 4개의 기로서, 식(2<sup>g</sup>)로 표시되는 4개의 기로서,  $R^{xa-d}$  비결합 탄소 원자에 결합한 수소 원자가 치환되어 있지 않은 기 중, 바람직하게는 식(2<sup>g</sup>-iva') :

[0261] [화학식 41]



[0262]

[0263] (식 중, Y는 상기와 같음.)

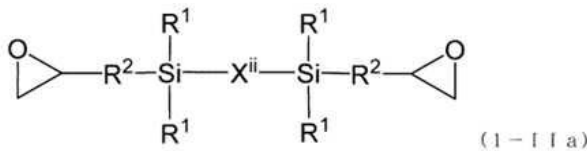
[0264] 로 표시되는 기를 들 수 있다.

[0265] 식(2<sup>g</sup>-iva')에 있어서, Y가 결합수, 디메틸메틸렌기, 산소 원자, 또는 -SO<sub>2</sub>-인 기가 특히 바람직하다.

[0266] 예를 들면, 식(1-iva)에 있어서, m은 동일하고, 0, 1, 2, 3, 또는 4(특히 바람직하게는 m은 동일하고, 0 또는 4), n은 동일하고, 0(즉, R<sup>3</sup>에 의해 환은 치환되어 있지 않다)을, X<sup>iv</sup>는 탄화수소환(특히 바람직하게는 벤젠환)으로부터 4개의 수소 원자를 제외하고 얻어지는 4개의 기를, R<sup>1</sup>은 동일하고, 탄소수 1~3의 알킬기를, R<sup>2</sup>는 동일하고, 규소 원자 및 3~6원환 또는 에폭시환의 어느 쪽에도 직접 결합해 있지 않은 1개의 탄소 원자가 산소 원자로 치환되어 있어도 좋은 탄소수 2~6의 알킬렌기를 각각 나타냄으로써 표시되는 에폭시 수지를 보다 바람직하게 이용할 수 있다.

[0267] 식(1)로 표시되는 에폭시 수지 중, 더욱 바람직한 것으로서, 구체적으로는 예를 들면, 식(1-IIa):

[0268] [화학식 42]



[0269]

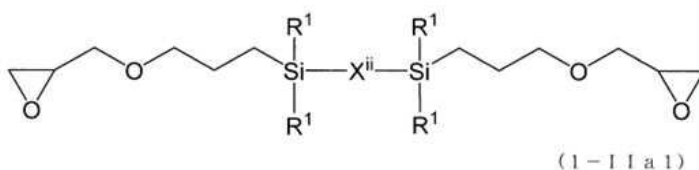
[0270] (식 중, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> 및 X<sup>ii</sup>는 상기와 같음.)

[0271] 로 표시되는 화합물을 들 수 있다.

[0272] 식(1-IIa)로 표시되는 화합물 중에서도, X<sup>ii</sup>가 1, 4-페닐렌기 또는 식(2<sup>g</sup>-iia')로 표시되는 기(바람직하게는 1, 4-페닐렌기)이고, R<sup>1</sup>이 동일 또는 다르고(바람직하게는 동일하고), 탄소수 1~3의 알킬기(특히, 메틸기)이고, R<sup>2</sup>가 동일 또는 다르고(바람직하게는 동일하고), 탄소수 2~6의 알킬렌기, (\*)-(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-O-CH<sub>2</sub>-, (\*)-(CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>-O-CH<sub>2</sub>-, (\*)-(CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>-O-(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-, 또는 (\*)-(CH<sub>2</sub>)<sub>5</sub>-O-(CH<sub>2</sub>)<sub>4</sub>-인 화합물이 바람직하다. 또한, 상기와 마찬가지로, (\*)는 R<sup>2</sup>의 규소 원자에 결합하는 측을 나타낸다.

[0273] 상기 식(1-IIa)로 표시되는 에폭시 수지 중, 더욱 바람직한 것으로서, 식(1-IIa1):

[0274] [화학식 43]

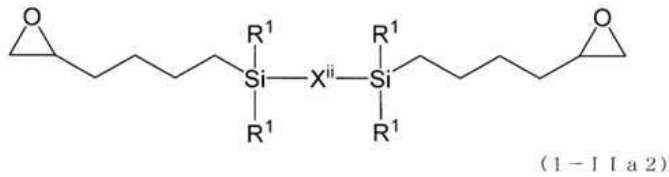


[0275]

[0276] (식 중, R<sup>1</sup> 및 X<sup>ii</sup>는 상기와 같음.)

[0277] 또는, 식(1-IIa2):

[0278] [화학식 44]



[0279]

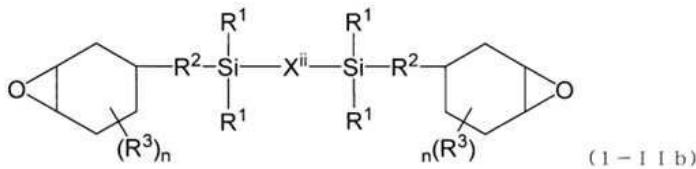
[0280] (식 중, R<sup>1</sup> 및 X<sup>ii</sup>는 상기와 같음.)

[0281] 로 표시되는 에폭시 수지를 예시할 수 있다. 또한, R<sup>1</sup>은 동일 또는 달라 있어도 좋고, 동일한 것이 바람직하다.

[0282] 식(1-IIa1) 또는 (1-IIa2)에 있어서, R<sup>1</sup>은 동일 또는 다르고(바람직하게는 동일하고), 탄소수 1~3의 알킬기(특히, 메틸기)이고, X<sup>ii</sup>는 1, 4-페닐렌기 또는 식(2<sup>g</sup>-iia')로 표시되는 기인 것이 보다 바람직하다.

[0283] 또한, 식(1)로 표시되는 에폭시 수지 중, 보다 바람직한 것으로서, 예를 들면, 식(1-IIb):

[0284] [화학식 45]



[0285]

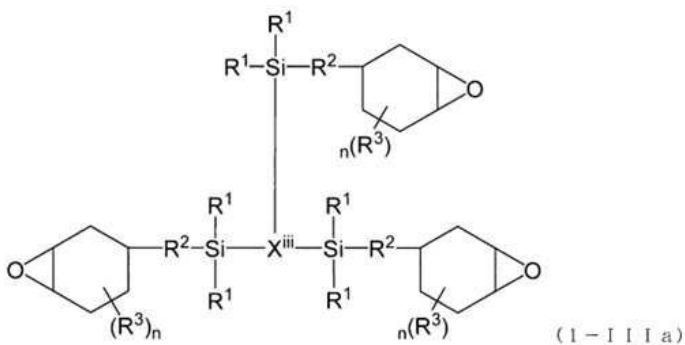
[0286] (식 중, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, X<sup>ii</sup> 및 n은 상기와 같음.)

[0287] 로 표시되는 에폭시 수지를 들 수도 있다. 또한, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> 및 n은 모두 각각 동일 또는 달라 있어도 좋고, 동일한 것이 바람직하다.

[0288] 식(1-IIb)에 있어서, X<sup>ii</sup>가 1, 4-페닐렌기 또는 식(2<sup>g</sup>-iia')로 표시되는 기(바람직하게는 1, 4-페닐렌기)이고, R<sup>1</sup>이 동일 또는 다르고(바람직하게는 동일하고), 탄소수 1~3의 알킬기(특히, 메틸기)이고, n이 함께 0(즉, 환은 R<sup>3</sup>으로 치환되어 있지 않다)이고, R<sup>2</sup>가 동일 또는 다르고(바람직하게는 동일하고), 탄소수 2~6의 알킬렌기(바람직하게는 디메틸렌기: -(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-)인 것이 보다 바람직하다.

[0289] 또한, 식(1)로 표시되는 에폭시 수지 중, 보다 바람직한 것으로서, 또한 예를 들면, 식(1-IIIa):

[0290] [화학식 46]



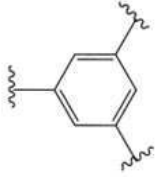
[0291]

[0292] (식 중, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, X<sup>iii</sup> 및 n은 상기와 같음.)

[0293] 로 표시되는 에폭시 수지를 들 수도 있다. 또한,  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  및  $n$ 은 모두 각각 동일 또는 달라 있어도 좋고, 동일한 것이 바람직하다.

[0294] 식(1-IIIa)에 있어서,  $X^{iii}$ 이

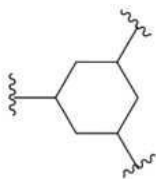
[0295] [화학식 47]



[0296]

[0297] 또는,

[0298] [화학식 48]



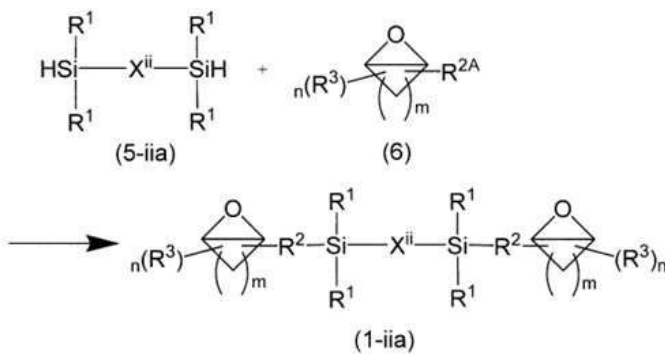
[0299]

[0300] 또는 식(2g-iii'a')로 표시되는 기이고,  $R^1$ 이 동일 또는 다르고(바람직하게는 동일하고), 탄소수 1~3의 알킬기(특히, 메틸기)이고,  $n$ 이 함께 0(즉, 환은  $R^3$ 으로 치환되어 있지 않다)이고,  $R^2$ 가 동일 또는 다르고(바람직하게는 동일하고), 탄소수 2~6의 알킬렌기(바람직하게는 디메틸렌기:  $-(CH_2)_2-$ )인 것이 보다 바람직하다.

[0301] 에폭시 수지 조성물에 있어서, 식(1)로 표시되는 에폭시 수지는 단독으로 또는 2종 이상을 조합하여 이용할 수 있다.

[0302] 식(1)로 표시되는 에폭시 수지는 공지의 방법에 기초하여 또는 준하여 예를 들면, 특허문헌(영국 특허 제 1123960호 공보) 등의 기재에 기초하여 또는 준하여 제조할 수 있다. 또한 예를 들면, 다음의 반응식으로 표시되는 반응에 의해 식(1-ii'a)로 나타나는 에폭시 수지를 제조할 수 있다.

[0303] [화학식 49]



[0304]

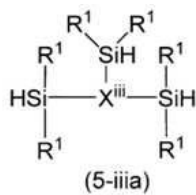
[0305] (식 중,  $R^{2A}$ 는 탄소수 2~18의 알케닐기이고, 이 기는 일부의 탄소 원자가 산소 원자 및 질소 원자로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1종의 원자로 치환되어 있어도 좋다.  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  및  $X^{ii}$ 는 상기와 같음.)

[0306]  $R^{2A}$ 로 나타나는 탄소수 2~18의 알케닐기로서는, 직쇄 또는 분기쇄상의 알케닐기이고, 직쇄상이 바람직하다. 구체적으로는 예를 들면, 비닐기, 알릴기, 프로페닐기, 부테닐기, 펜테닐기, 헥세닐기, 헵테닐기, 옥테닐기, 노르보르네닐기, 시클로헥세닐기 등을 들 수 있다. 바람직하게는 탄소수 2~10의 알케닐기이고, 보다 바람직하게는 탄소수 2~8의 알케닐기이고, 더욱 바람직하게는 탄소수 2~6의 알케닐기이고, 특히 바람직하게는 비닐기, 알릴기, 또는 부테닐기이다. 또한, 해당 알케닐기는  $\alpha$ -알케닐기인 것이 바람직하다.

[0307] 이들의 탄소수 2~18의 알케닐기는 일부의 탄소 원자가 산소 원자 및 질소 원자로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1종의 원자(바람직하게는 산소 원자)로 치환되어 있어도 좋다. 해당 일부의 탄소 원자는 에폭시환에 직접 결합해 있지 않은 탄소 원자인 것이 바람직하다. 또한, 해당 치환되어도 좋은 일부의 탄소 원자는 1 또는 복수(예를 들면, 2, 3, 4, 5, 또는 6)개의 탄소 원자이고, 바람직하게는 1개의 탄소 원자이다. 해당 기로서는, 예를 들면, 탄소수 2~9알케닐-O-탄소수 1~8알킬렌-, 바람직하게는 탄소수 2~4알케닐-O-탄소수 1~3알킬렌-, 보다 바람직하게는 탄소수 2~4알케닐-O-탄소수 1~2알킬렌-, 특히 바람직하게는 탄소수 3알케닐-O-CH<sub>2</sub>-를 들 수 있다. 구체적으로는 예를 들면, CH<sub>2</sub>=CH-O-CH<sub>2</sub>-, CH<sub>2</sub>=CH-CH<sub>2</sub>-O-CH<sub>2</sub>-, CH<sub>2</sub>=CH-CH<sub>2</sub>-O-(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-, CH<sub>2</sub>=CH-(CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>-O-(CH<sub>2</sub>)<sub>4</sub>- 등을 들 수 있고, 이들 중에서도 CH<sub>2</sub>=CH-CH<sub>2</sub>-O-CH<sub>2</sub>- (알릴옥시메틸기)가 바람직하다.

[0308] 식(1-ii a)로 표시되는 에폭시 수지는 식(5-ii a)로 표시되는 화합물과 식(6)으로 표시되는 화합물을 히드로실릴화 반응시켜서 제조할 수 있다. 히드로실릴화 반응은 통상, 촉매의 존재하, 용매의 존재하, 또는 비존재하에서 실시할 수 있다. 또한, 식(5-ii a)로 표시되는 화합물에 대신하여, 식(5-iii a):

[0309] [화학식 50]

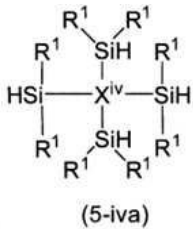


[0310]

[0311] (식 중, R<sup>1</sup> 및 X<sup>iii</sup>은 상기와 같음.)

[0312] 또는 식(5-iv a):

[0313] [화학식 51]



[0314]

[0315] (식 중, R<sup>1</sup> 및 X<sup>iv</sup>는 상기와 같음.)

[0316] 로 표시되는 화합물을 이용함으로써 상기 식(1-iii a) 또는 (1-iv a)로 표시되는 에폭시 수지나 1개의 식(3)의 기가 탄화수소환에 결합한 구조를 가지는 에폭시 수지를 제조할 수도 있다. 또한, 이들 화합물의 구조에 있어서, X<sup>ii</sup>~X<sup>iv</sup>가 각각 X환으로부터 2개의 수소 원자를 제외하고 얻어지는 2개의 기, X환으로부터 3개의 수소 원자를 제외하고 얻어지는 3개의 기, 또는 X환으로부터 4개의 수소 원자를 제외하고 얻어지는 4개의 기로 치환된 구조의 화합물을 이용함으로써 식(1)로 나타나는 여러 가지 화합물을 제조할 수 있다.

[0317] 히드로실릴화 반응에 이용되는 촉매는 공지의 촉매로 좋고, 예를 들면, 백금 카본, 염화 백금산, 백금의 올레핀 착체, 백금의 알케닐실록산 착체, 백금의 카르보닐 착체 등의 백금계 촉매; 트리스(트리페닐포스핀)로듐 등의 로듐계 촉매; 비스(시클로옥타디에닐)디클로로이리듐 등의 이리듐계 촉매를 들 수 있다. 상기의 촉매는 용매화물(예를 들면, 수화물, 알코올화물 등)의 형태이어도 좋고, 또한, 사용에 있어서, 촉매를 알코올(예를 들면, 에탄올 등)에 용해하여 용액의 형태로 이용할 수도 있다. 또한, 촉매는 단독으로 또는 2종 이상을 조합하여 이용할 수 있다.

[0318] 촉매의 사용량은 촉매로서의 유효량으로 좋고, 예를 들면, 상기 식(5-ii a), (5-iii a), 또는 (5-iv a)로 표시되는 화합물과 식(6)으로 표시되는 화합물의 합계량 100질량부에 대하여 0.00001~20질량부, 바람직하게는 0.0005~5질량부이다.

[0319] 상기 히드로실릴화 반응은 용매를 이용하지 않고도 진행하지만, 용매를 이용함으로써 온화한 조건으로 반응을

실시할 수 있다. 용매로서는, 예를 들면, 톨루엔, 크실렌 등의 방향족 탄화수소 용매; 헥산, 옥탄 등의 지방족 탄화수소 용매; 테트라히드로푸란, 디옥산 등의 에테르계 용매; 에탄올, 이소프로판올 등의 알코올계 용매 등을 들 수 있고, 이들은 단독으로 또는 2종 이상 조합해도 좋다.

- [0320] 식(6)으로 표시되는 화합물의 사용량은 예를 들면, 식(5-ii a), (5-iii a), 또는 (5-iv a)로 표시되는 화합물 중의 Si-H기 1몰에 대하여 통상, 0.5~2몰, 바람직하게는 0.6~1.5몰, 보다 바람직하게는 0.8~1.2몰이다.
- [0321] 반응 온도는 통상, 0℃~150℃, 바람직하게는 10℃~120℃이고, 반응 시간은 통상, 1시간~24시간 정도이다.
- [0322] 반응 종료 후, 반응액으로부터 용매를 증류 제거하는 등, 공지의 단리 방법을 이용함으로써 식(1)로 표시되는 에폭시 수지를 얻을 수 있다.
- [0323] 본 개시의 수지 조성물에 함유되는 에폭시 수지는, 그 단독 경화물이 주파수 10GHz, 25℃에서의 유전 정접이 0.03 이하이다. 해당 유전 정접은 0.028, 0.026, 0.024, 0.022, 또는 0.02 이하인 것이 보다 바람직하고, 0.018, 0.016, 0.014, 0.012, 또는 0.01 이하인 것이 더욱 바람직하다. 또한, 해당 에폭시 수지는, 그 단독 경화물이 주파수 10GHz, 25℃에서의 비유전율이 3.0 이하의 것이 바람직하고, 2.9 이하 또는 2.8 이하의 것이 보다 바람직하고, 2.7, 2.6, 또는 2.5 이하의 것이 더욱 바람직하다. 또한, 본 명세서에 있어서, 에폭시 수지 단독 경화물이란, 에폭시 수지 100질량부와 경화 촉진제를 1.0~2.0질량부로 이루어지는 에폭시 수지 조성물의 경화물을 말한다. 또한, 에폭시 수지 단독 경화물을 단순히 에폭시 수지 경화물이라 하는 일이 있다. 또한, 해당 비유전율 및 유전 정접은 공동 공진기 섭동법으로 측정된다. 예를 들면, 유전율 측정 장치(네트워크 애널라이저)를 이용하여 측정될 수 있다.
- [0324] 에폭시 수지의 에폭시 당량은 예를 들면, 바람직하게는 50~3000 정도, 보다 바람직하게는 80~2000 정도, 더욱 바람직하게는 100~1000 또는 100~500 정도이다. 에폭시 당량은 JIS K7236에 따라서 측정한다. 보다 구체적으로는, 에폭시 당량은 칭량한 에폭시 수지를 클로로포름에 용해시키고, 아세트산과 브롬화 테트라에틸암모늄아세트산 용액을 추가한 후, 전위차 적정 장치(히라누마 자동 적정 장치 COM-1700A, 히라누마 산업(주)제)를 이용하여 0.1mol/L 과염소아세트산 표준액을 적가(滴加)하고, 모든 에폭시기가 반응한 곳을 종점 검출하여 산출된다. 에폭시 당량은 1당량의 에폭시기를 포함하는 수지의 질량이다.
- [0325] 특별히 제한되지는 않지만, 에폭시 수지는 수지 조성물에 있어서, 예를 들면, 0.2~15질량% 정도 함유될 수 있고, 바람직하게는 0.5~10, 1.0~10, 1.2~8, 또는 1.5~5질량% 정도 함유될 수 있다. 또한, 특별히 제한되지는 않지만, 수지 조성물 중에 포함되는 산변성 폴리올레핀의 산변성기(바람직하게는 카르복실기) 1당량에 대한 에폭시 수지의 에폭시기의 당량은 0.3~4.0이 바람직하고, 보다 바람직하게는 0.4~3.5이고, 더욱 바람직하게는 0.5~3.0이다.
- [0326] 수지 조성물 중의 에폭시 수지의 함유량은 특별히 제한되지는 않지만, 예를 들면, 산변성 폴리올레핀 100질량부에 대하여 1~10질량부가 바람직하고, 보다 바람직하게는 1.5~9.0질량부이고, 더욱 바람직하게는 2.0~8.0질량부이다.
- [0327] [무기 필러]
- [0328] 무기 필러로서는, 예를 들면, 실리카(보다 구체적으로는 예를 들면, 결정성 실리카, 용융 실리카, 구형상 용융 실리카 등), 알루미늄, 산화티탄, 산화지르코늄, 산화아연, 산화주석, 질화규소, 탄화규소, 질화붕소, 탄산칼슘, 규산칼슘, 티탄산칼륨, 질화알루미늄, 산화인듐, 산화안티몬, 산화세륨, 산화마그네슘, 산화철, 주석도프 산화인듐(ITO) 등의 무기 화합물을 들 수 있다. 그 중에서도, 실리카가 바람직하다. 또한, 무기 필러는 1종 단독으로 이용해도 좋고, 2종 이상을 조합하여 이용해도 좋다.
- [0329] 또한, 본 개시의 수지 조성물에 무기 필러를 이용하는 데 있어서, 무기 필러의 분체를 그대로 사용해도 좋고, 또는 무기 필러를 수지 중에 분산시킨 것을 이용해도 좋다.
- [0330] 무기 필러의 체적 평균 입경은 5.0 $\mu$ m 이하가 바람직하고, 보다 바람직하게는 3.0 $\mu$ m 이하, 더욱 바람직하게는 1.5 $\mu$ m 이하이다. 체적 평균 입경의 하한은 수지 조성물 중의 분산성 향상이라는 관점에서, 0.05 $\mu$ m 이상이 바람직하고, 보다 바람직하게는 0.06 $\mu$ m 이상이고, 더욱 바람직하게는 0.07 $\mu$ m 이상이다.
- [0331] 무기 필러의 함유량은 예를 들면, 산변성 폴리올레핀 100질량부에 대하여 1~100질량부가 바람직하고, 보다 바람직하게는 20~80질량부이고, 더욱 바람직하게는 30~70질량부 또는 40~60질량부이다.
- [0332] 특별히 제한되지는 않지만, 무기 필러에 있어서, 주파수 1MHz, 25℃에서의 비유전율은 5.0 이하가 바람직하고,

보다 바람직하게는 4.5이고, 더욱 바람직하게는 4.0 이하이다. 주파수 1MHz, 25℃에서의 유전 정점은 0.005 이하가 바람직하고, 보다 바람직하게는 0.003 이하이고, 더욱 바람직하게는 0.001 이하이다.

- [0333] [수지 조성물]
- [0334] 본 발명의 수지 조성물은 효과를 손상하지 않는 범위에서 필요에 따라서 예를 들면, 경화제, 경화 촉진제, 산변성 폴리올레핀 이외의 열가소성 수지, 첨가제 등을 함유해도 좋다.
- [0335] 상기 경화제로서는, 에폭시 수지를 경화하는 기능을 가지는 것이면(즉, 에폭시 수지 경화제이면) 특별히 한정되지 않고, 예를 들면, 아민계 경화제, 아미드계 경화제, 산무수물계 경화제, 페놀계 경화제, 벤즈옥사진계 경화제, 나프톨계 경화제, 메르캅탄계 경화제, 이소시아네이트계 경화제, 활성 에스테르계 경화제, 시아네이트에스테르계 경화제, 카르보디이미드계 경화제 등을 들 수 있다. 산무수물계 경화제, 페놀계 경화제, 벤즈옥사진계 경화제, 나프톨계 경화제, 활성 에스테르계 경화제, 시아네이트에스테르계 경화제가 바람직하고, 보다 바람직하게는 산무수물계 경화제, 벤즈옥사진계 경화제, 활성 에스테르계 경화제이다. 경화제는 단독으로 이용해도 좋고, 또한 2종 이상을 병용해도 좋다.
- [0336] 본 발명의 수지 조성물에서의 경화제의 배합 비율은 본 개시의 수지 조성물의 효과를 발휘할 수 있는 범위이면 좋고, 특별히 제한되지는 않지만, 예를 들면, 에폭시 수지 중의 에폭시기의 당량에 대하여 경화제 중의 반응성 관능기의 당량이 10:90~90:10인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 20:80~80:20이고, 더욱 바람직하게는 30:70~70:30이고, 더한층 바람직하게는 40:60~60:40이다.
- [0337] 또한, 본 개시의 수지 조성물은 산변성 폴리올레핀, 에폭시 수지 및 경화제(에폭시 수지 경화제)의 합계 질량을 100질량부로 했을 때, 에폭시 수지 및 경화제의 합계 질량이 9질량부 이하인 것이 바람직하고, 8.5, 8, 7.5, 7, 6.5, 또는 6질량부 이하인 것이 보다 바람직하다.(또한, 해당 합계 질량의 산출에 있어서는, 상기와 같이, 수지 조성물에 경화제는 함유되어도, 함유되지 않아도 좋기 때문에 함유되지 않는 경우에는 함유되는 경화제의 질량은 0으로서 산출된다.)
- [0338] 상기 경화 촉진제로서는, 예를 들면, 2-메틸이미다졸, 2-에틸이미다졸, 2-페닐이미다졸, 2-에틸-4-메틸이미다졸, 1, 2-디메틸이미다졸, 1-(2-시아노에틸)-2-에틸-4-메틸이미다졸, 2-운데실이미다졸, 2-페닐이미다졸린 등의 이미다졸류; 2-(디메틸아미노메틸)페놀, 트리에틸렌디아민, 트리에탄올아민, 4-디메틸아미노피리딘, 1, 8-디아자비시클로(5, 4, 0)운데센-7, 1, 5-디아자비시클로(4, 3, 0)-노넨-5), 1, 8-비스(디메틸아미노)나프탈렌, 1, 1, 3, 3-테트라메틸구아니딘, 7-메틸-1, 5, 7-트리아자비시클로[4. 4. 0]데카-5-엔, 1, 5, 7-트리아자비시클로[4. 4. 0]데카-5-엔 등의 제 3급 아민류; 트리페닐포스핀, 디페닐포스핀, 트리부틸포스핀 등의 유기 포스핀류; 옥틸산 주석 등의 금속 화합물; 에틸트리페닐포스포늄브로마이드, 테트라페닐포스포늄테트라페닐보레이트 등의 포스포늄염류 등을 들 수 있다. 수지 조성물의 경화성을 향상시키는 관점에서, 2-에틸-4-메틸이미다졸, 1, 2-디메틸이미다졸, 4-디메틸아미노피리딘, 트리페닐포스핀이 바람직하다.
- [0339] 경화 촉진제의 사용량은 특별히 한정되지 않지만, 수지층 중의 에폭시 수지 100질량부에 대하여 바람직하게는 0.01~10.0질량부이고, 보다 바람직하게는 0.1~5질량부 또는 0.1~2질량부이다.
- [0340] 상기 산변성 폴리올레핀 이외의 열가소성 수지로서는, 예를 들면, 폴리올레핀 수지, 아크릴 수지, 페녹시 수지, 폴리아미드 수지, 폴리에스테르 수지, 폴리카보네이트 수지, 폴리우레탄 수지, 폴리아릴레이트 수지, 폴리페닐렌에테르 수지, 폴리아세탈 수지 및 이들이 산변성된 것 등을 들 수 있다. 본 발명에 관련되는 에폭시 수지 조성물과의 상용성(相溶性) 및 내열성의 관점에서, 폴리올레핀 수지, 아크릴 수지, 페녹시 수지, 폴리아릴레이트 수지, 폴리페닐렌에테르 수지 등을 들 수 있다.
- [0341] 상기 첨가제로서는, 예를 들면, 커플링제, 산화 방지제, 무기 형광제, 활제, 자외선 흡수제, 열광 안정제, 대전 방지제, 중합 금지제, 소포제, 용제, 노화 방지제, 래디컬 금지제, 점착성 개량제, 난연제, 계면 활성제, 보존 안정성 개량제, 오존 노화 방지제, 증점제, 가소제, 방사선 차단제, 핵제, 도전성 부여제, 인계 과산화물 분해제, 안료, 금속 불활성화제, 물성 조정제 등을 들 수 있다.
- [0342] 본 개시의 수지 조성물은, 그 경화물이 우수한 유전 정점을 나타낸다. 해당 경화물은 주파수 10GHz, 25℃에서 0.003 이하의 유전 정점을 바람직하게 나타낸다. 해당 유전 정점은 실시형태에 따라서는, 보다 바람직하게는 0.029 또는 0.0028 이하일 수 있고, 더욱 바람직하게는 0.0027, 0.0026, 또는 0.0025 이하일 수 있고, 더한층 바람직하게는 0.0024, 0.0023, 0.0022, 0.0021, 또는 0.0020 이하일 수 있다. 또한, 본 개시의 수지 조성물의 경화물은 고온 고습하(특히, 고온 고습하에서 보관한 후)이어도 우수한 유전 정점을 나타낸다. 해당 경화물은 고온 고습 시험(85℃, 85%RH의 조건으로 168시간 처리) 후의 주파수 10GHz, 25℃에서 0.003 이하의 유전 정점

을 나타낸다. 해당 유전 정점은 실시형태에 따라서는, 바람직하게는 0.0029 또는 0.0028 이하일 수 있고, 보다 바람직하게는 0.0027, 0.0026, 또는 0.0025 이하일 수 있고, 더욱 바람직하게는 0.0024, 0.0023, 0.0022, 0.0021, 또는 0.0020 이하일 수 있다.

[0343] 또한, 해당 경화물의 유전 정점은 두께 100 $\mu\text{m}$ 의 수지 필름(수지 조성물 경화물로 이루어진다)을 이용하여 공동 공진기 섭동법에 의해 측정한다. 측정 장치로서는, 예를 들면, 네트워크 애널라이저를 이용할 수 있다.

[0344] 또한, 본 개시의 수지 조성물의 경화물이 이와 같이 우수한 유전 정점을 나타낼 수 있는 것은, 수지 조성물에 함유되는 에폭시 수지의 단독 경화물(에폭시 수지 경화물)이 주파수 10GHz, 25 $^{\circ}\text{C}$ 에서의 유전 정점이 0.03 이하이고, 또한 수지 조성물에서의 산변성 폴리올레핀, 에폭시 수지 및 경화제(에폭시 수지 경화제)의 합계 질량을 100질량부로 했을 때, 에폭시 수지 및 경화제의 합계 질량을 9질량부 정도 이하로 하는 바가 크다. 바꾸어 말하면, 수지 조성물에 함유되는 에폭시 수지로서, 그 단독 경화물(에폭시 수지 경화물)이 주파수 10GHz, 25 $^{\circ}\text{C}$ 에서의 유전 정점이 0.03 이하인 에폭시 수지를 이용하고, 또한 수지 조성물에서의 산변성 폴리올레핀, 에폭시 수지 및 경화제(에폭시 수지 경화제)의 합계 질량을 100질량부로 했을 때, 에폭시 수지 및 경화제의 합계 질량이 9질량부 정도 이하로 되도록 수지 조성물을 조제한 후에, 필요에 따라서 상기의 유전 정점값을 나타내는지 확인함으로써 바람직하게 본 개시의 수지 조성물을 얻을 수 있다.

[0345] 또한, 본 개시의 수지 조성물은 예를 들면, 접착제로서 이용할 수 있다. 보다 구체적으로는 예를 들면, 플렉시블 프린트 배선판(FPC)의 각종 부재의 접착제로서 이용할 수 있다. 수지 조성물을 접착 필름 등의 형상으로 하여, 해당 필름을 접착 필름으로서 이용할 수도 있다. 본 개시는 이와 같은 접착 필름이나 각종 부재도 바람직하게 포함한다. 이하, 해당 접착 필름 및 각종 부재에 대해서도 설명한다.

[0346] [접착 필름]

[0347] 본 실시형태에서의 접착 필름은 본 개시의 수지 조성물을 포함한다. 접착 필름은 예를 들면, 이형 필름 상에 본 개시의 수지 조성물을 도포함으로써 제작할 수 있다. 보다 구체적으로는, 적어도 일면에 이형 처리가 실시된 PET(폴리에틸렌테레프탈레이트)필름, PP(폴리프로필렌)필름, PE(폴리에틸렌)필름 등의 이형 처리면 상에 본 개시의 수지 조성물을 도포한 후, 적당한 조건(예를 들면, 온도: 80~180 $^{\circ}\text{C}$ , 시간: 2~10분)에 의해 반경화 상태(B스테이지)가 될 때까지 건조시켜서 접착 필름을 얻을 수 있다. 도포 방법은 특별히 한정되지 않고, 예를 들면, 콤팩트 코터, 다이 코터, 그라비아 코터 등의 방법을 들 수 있다. 또한, 완전 경화 상태(C스테이지)의 접착 필름은 B스테이지의 접착 필름을 적당한 경화 조건(예를 들면, 온도: 160~180 $^{\circ}\text{C}$ , 압력: 2~3MPa, 시간: 30~120분)으로 처리함으로써 얻을 수 있다.

[0348] 경화 후의 접착 필름의 두께는 특별히 한정되지는 않지만, 바람직하게는 2~200 $\mu\text{m}$ 이고, 보다 바람직하게는 5~150 $\mu\text{m}$ 이고, 더욱 바람직하게는 10~100 $\mu\text{m}$ 이다.

[0349] [커버레이 필름]

[0350] 본 개시는 본 개시의 수지 조성물을 포함하는 접착층과, 전기 절연층이 적층된 구조를 가지는 커버레이 필름도 포함한다.

[0351] 전기 절연층은 커버레이 필름을 FPC의 부재로서 이용한 경우, 배선판 상에 형성된 회로 등을 보호하기 위한 역할을 가진다. 전기 절연층을 구성하는 재료로서는, 특별히 한정되지 않고, 예를 들면, 폴리이미드, 액정 폴리머, 폴리페닐렌설피드, 신디오택틱 폴리스티렌, 폴리에틸렌테레프탈레이트, 폴리에틸렌나프탈레이트, 폴리카보네이트, 폴리부틸렌테레프탈레이트, 폴리테트라에테르케톤 및 불소계 수지로 이루어지는 군으로부터 선택되는 1종 이상의 수지를 들 수 있다.

[0352] 전기 절연층으로서의 불소계 수지로서는, 특별히 한정되지 않고, 예를 들면, 폴리테트라플루오로에틸렌, 폴리테트라플루오로에틸렌-퍼플루오로알킬비닐에테르 공중합체, 테트라플루오로에틸렌-헥사플루오로프로필렌 공중합체, 디플루오로에틸렌-트리플루오로에틸렌 공중합체, 테트라플루오로에틸렌-에틸렌 공중합체, 폴리클로로트리플루오로에틸렌 및 폴리비닐리덴플루오라이드로 이루어지는 군으로부터 선택되는 1종 이상을 들 수 있다.

[0353] [적층판]

[0354] 본 개시는 본 개시의 수지 조성물을 포함하는 접착층과, 전기 절연층과, 동박이 적층된 적층 구조를 가지는 적층판도 포함한다. 해당 적층판에 있어서는, 접착층은 제 1 면과, 제 1 면에 대향하는 제 2 면을 가지고, 접착층의 제 1 면에 전기 절연층이 적층되고, 접착층의 제 2 면에 동박이 적층되어 있는 것이 바람직하다. 해당 적층판은 접착층에 본 개시의 수지 조성물을 포함하기 때문에 고습도하에서의 유전 특성, UV레이저 가공성 및 밀

작성 등이 우수하다.

- [0355] 또한, 해당 적층판은 본 개시의 수지 조성물을 포함하는 접착층과, 전기 절연층과, 동박이 적층된 적층판으로서, 전기 절연층의 양면에 접착층이 적층되고, 접착층의 전기 절연층이 적층된 면과는 반대측의 면에 동박이 적층된 구조를 가지는 양면 동장(copper clad) 적층판이어도 좋다. 양면 동장 적층판은 일면 동장 적층판의 전기 절연층에서의 접착층 및 동박이 적층된 면과는 반대측의 면에 접착층과 동박이 더 설치된 구조를 가진다.
- [0356] 적층판은 접착층의 경화 상태가 커버레이 필름과는 다른 것이 바람직하다. 구체적으로는, 커버레이 필름에 포함되는 접착층의 경화 상태는 B스테이지인 것이 바람직한 것에 대하여, 적층판에 포함되는 접착층의 경화 상태는 C스테이지인 것이 바람직하다.
- [0357] 적층판에 포함되는 접착층의 두께는 바람직하게는 2~200 $\mu\text{m}$ 이고, 보다 바람직하게는 5~100 $\mu\text{m}$ 이고, 더욱 바람직하게는 5~50 $\mu\text{m}$ 이다. 접착층의 두께가 2 $\mu\text{m}$  이상이면, 전기 절연층과 피착체의 사이의 접착성이 양호하게 되는 경향에 있고, 200 $\mu\text{m}$  이하이면, 밴딩성이 양호하게 되는 경향에 있다.
- [0358] 상기한 각종 부재는 접착층이 노출된 면에 세퍼레이트 필름이 더 적층되어 있어도 좋다. 세퍼레이트 필름은 적당한 수지로 형성된 것을 바람직하게 이용할 수 있다. 이와 같은 수지로서는, 특별히 한정되지 않고, 예를 들면, 폴리에틸렌테레프탈레이트 수지, 폴리에틸렌나프탈레이트 수지, 폴리프로필렌 수지, 폴리에틸렌 수지 및 폴리부틸렌테레프탈레이트 수지로 이루어지는 군으로부터 선택되는 1종 이상의 수지를 들 수 있고, 그 중에서도, 제조 비용을 저감하는 관점에서, 폴리프로필렌 수지, 폴리에틸렌 수지 및 폴리에틸렌테레프탈레이트 수지로 이루어지는 군으로부터 선택되는 1종 이상의 수지가 바람직하다. 세퍼레이트 필름을 가지는 각종 부재는 해당 세퍼레이트 필름을 박리한 후에 사용하는 것이 바람직하다. 예를 들면, 세퍼레이트 필름을 박리한 후, 접착층면을 피착체에 부착하도록 이용할 수 있다.
- [0359] [플렉시블 프린트 배선판]
- [0360] 본 개시의 수지 조성물을 구비하는 플렉시블 프린트 배선판도 본 개시에 포함된다. 예를 들면, 상기 커버레이 필름과 적층판을 포함하고, 적층판에 포함되는 동박에 회로를 형성한 후, 커버레이 필름의 접착층을 적층판의 회로 형성면에 부착시킴으로써 얻어지는 플렉시블 프린트 배선판도 본 개시에 포함된다.
- [0361] [제조 방법]
- [0362] 각종 부재의 제조 방법으로서, 특별히 한정되지 않고, 공지의 방법을 이용할 수 있다. 예를 들면, 커버레이 필름은 이하의 (I)공정을 포함하는 방법에 의해 바람직하게 제조할 수 있다.
- [0363] (I) 전기 절연층의 일면에 접착층을 형성하는 수지 조성물의 바니시를 도포하고, B스테이지까지 건조시키는 공정.
- [0364] 또한, 일면 동장 적층판은 예를 들면, 상기 (I)공정에 추가하여, 이하의 (II)공정을 더 실시함으로써 제조할 수 있다.
- [0365] (II) 상기 (I)공정에서 얻어진 커버레이 필름의 접착층이 설치된 면에 동박을 열프레스하여, 접착층을 C스테이지까지 건조시키는 공정.
- [0366] 또한, 양면 동장 적층판은 예를 들면, 상기의 일면 동장 적층판의 전기 절연층의 다른 한쪽의 면에 접착층과 동박을 상기와 동일한 방법에 의해 적층함으로써 제조할 수 있다.
- [0367] 바니시에 이용되는 용제로서는, 예를 들면, 아세톤, 톨루엔, 메틸에틸케톤, 메틸이소부틸케톤, 시클로헥사논, 프로필렌글리콜모노메틸에테르, 디메틸아세트아미드, 아세트산부틸, 아세트산에틸 등을 들 수 있다.
- [0368] 바니시를 도포하는 방법으로서, 도포 두께에 따라서 콤팩트 코터, 다이 코터, 그라비아 코터 등을 적절히 채용할 수 있다. 바니시의 건조는 예를 들면, 인라인 드라이어 등에 의해 실시할 수 있고, 그 때의 건조 조건은 수지나 첨가제의 종류 및 양 등에 따라 적절히 조절할 수 있다.
- [0369] 또한, 본 명세서에서 “포함하는” 이란, “본질적으로 이루어지는” 과 “로 이루어지는” 도 포함한다(The term “comprising” includes “consisting essentially of” and “consisting of.”). 또한, 본 개시는 본 명세서에 설명한 구성 요건의 임의의 조합을 모두 포함한다.
- [0370] 또한, 상기한 본 개시의 각 실시형태에 대하여 설명한 각종 특성(성질, 구조, 기능 등)은 본 개시에 포함되는

주제를 특정하는 데 있어서, 어떻게 조합되어도 좋다. 즉, 본 개시에는 본 명세서에 기재되는 조합 가능한 각 특성의 모든 조합으로 이루어지는 주제가 모두 포함된다.

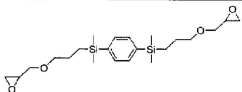
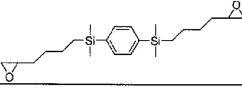
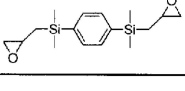
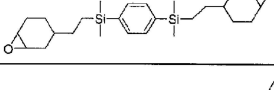
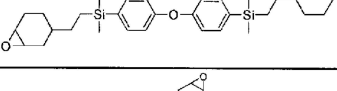
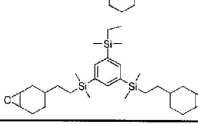
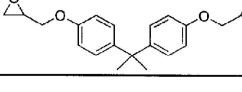
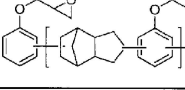
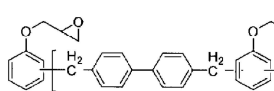
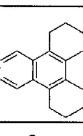
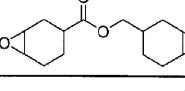
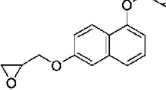
- [0371] (실시예)
- [0372] 이하, 예를 나타내어 본 개시의 실시형태를 보다 구체적으로 설명하지만, 본 개시의 실시형태는 하기의 예에 한정되는 것은 아니다.
- [0373] 제조예 1(에폭시 수지 A의 제조)
- [0374] 교반기, 온도계 및 냉각기를 구비한 200mL용적의 4구 플라스크에 질소 분위기하에서 알릴글리시딜에테르 5.9g, 헥사클로로 백금산 6수화물의 2질량% 에탄올 용액 0.05g, 톨루엔 100g을 넣고, 액온을 70℃까지 승온시킨 후, 1, 4-비스(디메틸실릴)벤젠 5.0g을 15분간으로 적하하고, 그 후, 90℃에서 4시간 교반했다. 톨루엔을 농축 후, 무색 투명 액체의 1, 4-비스[(2, 3-에폭시프로필옥시프로필)디메틸실릴]벤젠(에폭시 수지 A) 10.3g(에폭시 당량 211g / eq)을 취득했다.
- [0375] 제조예 2(에폭시 수지 B의 제조)
- [0376] 교반기, 온도계 및 냉각기를 구비한 200mL용적의 4구 플라스크에 질소 분위기하에서 1, 2-에폭시-5-헥센 5.0g, 헥사클로로 백금산 6수화물의 2질량% 에탄올 용액 0.05g, 톨루엔 100g을 넣고, 액온을 70℃까지 승온시킨 후, 1, 4-비스(디메틸실릴)벤젠 5.0g을 15분간으로 적하하고, 그 후, 90℃에서 5시간 교반했다. 톨루엔을 농축 후, 무색 투명 액체의 1, 4-비스[(5, 6-에폭시헥실)디메틸실릴]벤젠(에폭시 수지 B) 9.5g(에폭시 당량 195g / eq)을 취득했다.
- [0377] 제조예 3(에폭시 수지 C의 제조)
- [0378] 교반기, 온도계 및 냉각기를 구비한 200mL용적의 4구 플라스크에 질소 분위기하에서 3, 4-에폭시-1-부텐 4.0g, 헥사클로로 백금산 6수화물의 2질량% 에탄올 용액 0.05g, 톨루엔 100g을 넣고, 액온을 70℃까지 승온시킨 후, 1, 4-비스(디메틸실릴)벤젠 5.0g을 15분간으로 적하하고, 그 후, 90℃에서 5시간 교반했다. 톨루엔을 농축 후, 무색 투명 액체의 1, 4-비스[(3, 4-에폭시부틸)디메틸실릴]벤젠(에폭시 수지 C) 8.5g(에폭시 당량 167g / eq)을 취득했다.
- [0379] 제조예 4(에폭시 수지 D의 제조)
- [0380] 교반기, 온도계 및 냉각기를 구비한 200mL용적의 4구 플라스크에 질소 분위기하에서 1, 2-에폭시-4-비닐시클로헥산 6.4g, 헥사클로로 백금산 6수화물의 2질량% 에탄올 용액 0.05g, 톨루엔 100g을 넣고, 액온을 70℃까지 승온시킨 후, 1, 4-비스(디메틸실릴)벤젠 5.0g을 15분간으로 적하하고, 그 후, 90℃에서 4시간 교반했다. 톨루엔을 농축 후, 무색 투명 액체의 1, 4-비스{[2-(3, 4-에폭시시클로헥실)에틸]디메틸실릴}벤젠(에폭시 수지 D) 10.8g(에폭시 당량 221g / eq)을 취득했다.
- [0381] 제조예 5(에폭시 수지 E의 제조)
- [0382] 교반기, 온도계 및 냉각기를 구비한 200mL용적의 4구 플라스크에 질소 분위기하에서 1, 2-에폭시-4-비닐시클로헥산 4.3g, 헥사클로로 백금산 6수화물의 2질량% 에탄올 용액 0.05g, 톨루엔 100g을 넣고, 액온을 70℃까지 승온시킨 후, 비스[(p-디메틸실릴)페닐]에테르 5.0g을 15분간으로 적하하고, 그 후, 90℃에서 6시간 교반했다. 톨루엔을 농축 후, 무색 투명 액체의 4, 4'-비스{[2-(3, 4-에폭시시클로헥실)에틸]디메틸실릴}디페닐에테르(에폭시 수지 E) 8.9g(에폭시 당량 267g / eq)을 취득했다.
- [0383] 제조예 6(에폭시 수지 F의 제조)
- [0384] 교반기, 온도계 및 냉각기를 구비한 200mL용적의 4구 플라스크에 질소 분위기하에서 1, 2-에폭시-4-비닐시클로헥산 7.4g, 헥사클로로 백금산 6수화물의 2질량% 에탄올 용액 0.05g, 톨루엔 100g을 넣고, 액온을 70℃까지 승온시킨 후, 1, 3, 5-트리스(디메틸실릴)벤젠 5.0g을 15분간으로 적하하고, 그 후, 90℃에서 6시간 교반했다. 톨루엔을 농축 후, 무색 투명 액체의 1, 3, 5-트리스{[2-(3, 4-에폭시시클로헥실)에틸]디메틸실릴}벤젠(에폭시 수지 F) 11.8g(에폭시 당량 208g / eq)을 취득했다.
- [0385] 각 예에서 이용한 원재료는 다음과 같다.
- [0386] · 산변성 폴리올레핀A: 수소 첨가 스티렌계 열가소성 엘라스토머 터프텍M1913(아사히 가세이(주)제)(무수 말레인산 변성 폴리올레핀계 수지(보다 구체적으로는, 무수 말레인산기가 그래프트화된 수소 첨가 SEBS: 스티렌 / 에

틸렌 / 부틸렌 / 스티렌 공중합체), 산가 약 10mgKOH / g, 약 7000g / eq)

- [0387] · 산변성 폴리올레핀 B: 특수 폴리올레핀 수지 서프렌(미츠비시 케미컬(주)제)(산가 약 15mgKOH / g, 약 4000g / eq)
- [0388] · 에폭시 수지 G: 비스페놀A형 에폭시 수지(jER828, 미츠비시 케미컬(주)제)(에폭시 당량 175g / eq)
- [0389] · 에폭시 수지 H: 디시클로펜타디엔형 에폭시 수지(HP-7200, DIC(주)제)(에폭시 당량 268g / eq)
- [0390] · 에폭시 수지 I: 비페닐형 에폭시 수지(NC-3000-H, 닛폰가야쿠(주)제)(에폭시 당량 286g / eq)
- [0391] · 에폭시 수지 J: 안트라센형 에폭시 수지(jER YX8800, 미츠비시 케미컬(주)제)(에폭시 당량 179g / eq)
- [0392] · 에폭시 수지 K: 지환식 에폭시 수지(셀록사이드2021P; 일반명은 3', 4' -에폭시시클로헥실메틸 3, 4-에폭시시클로헥산카르복실레이트, 다이셀(주)제)(에폭시 당량 137g / eq)
- [0393] · 에폭시 수지L: 나프탈렌형 에폭시 수지(HP-4032D, DIC(주)제)(에폭시 당량 142g / eq)
- [0394] · 경화제 A: 리카시드MH-700(신니혼 리카(주)제)
- [0395] · 경화제 B: EPICRON HPC-8000-65T(DIC(주)제)
- [0396] · 무기 필러 A: 실리카, SC2050-MB(애드마텍스(주)제)(입경: 0.5 $\mu$ m)
- [0397] · 경화 촉진제 A: 산에이드SI-100L(산신 화학 공업(주)제)
- [0398] · 경화 촉진제 B: 큐어졸2E4MZ(시코쿠 가세이(주)제)
- [0399] · 경화 촉진제 C: 큐어졸1.2DMZ(시코쿠 가세이(주)제)
- [0400] · 경화 촉진제 D: N, N-디메틸-4-아민피리딘(DMAP, TCI(주)제)
- [0401] 표 1a에 에폭시 수지 A~J의 구조식을 나타낸다. 또한, 표 1b에 경화제 A~B 및 경화 촉진제 A~D의 구조식을 나타낸다.





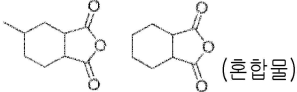
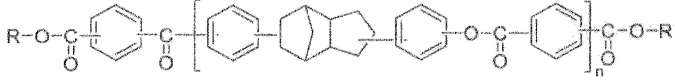
[0402]

[표 1a]

에폭시 수지 A	
에폭시 수지 B	
에폭시 수지 C	
에폭시 수지 D	
에폭시 수지 E	
에폭시 수지 F	
에폭시 수지 G	
에폭시 수지 H	
에폭시 수지 I	
에폭시 수지 J	
에폭시 수지 K	
에폭시 수지 L	

[0403]

[0404] [표 1b]

경화 촉진제 A 산에이드SI-100L	
경화 촉진제 B 큐어졸2E4MZ	
경화 촉진제 C 큐어졸1.2DMZ	
경화 촉진제 D DMAP	
경화제 A 리카시드MH-700	
경화제 B HPC-8000-65T	

[0405]

[0406] 실시예 A~J, 비교예 K~L

[0407] <에폭시 수지 단독 경화물의 조제 및 비유전율·유전 정접 측정>

[0408] 표 2에 기재한 배합량(질량부)의 각 성분을 칭량, 혼합했다. 얻어진 각 에폭시 수지 조성물을 수지제 몰드(두께 3mm)에 흘러넣고, 60℃에서 1시간, 100℃에서 1시간, 120℃에서 2시간, 150℃에서 2시간, 180℃에서 2시간, 200℃에서 2시간의 차례로 가열하여 경화시키고, 이어서, 얻어진 경화물을 폭 3mm×길이 80mm×두께 1mm의 사이즈로 잘라내고, 유전율 측정용 시험편으로 했다.

[0409] 얻어진 시험편에 대하여 유전율 측정 장치(네트워크 애널리라이저MS46122B, (주)에이티제)를 이용하여 비유전율(10GHz, 25℃) 및 유전 정접(10GHz, 25℃)을 측정했다. 이것을 에폭시 수지 단독 경화물의 비유전율 및 유전 정접으로 했다. 결과를 표 2에 아울러서 나타낸다.

[0410] [표 2]

	실시예 A	실시예 B	실시예 C	실시예 D	실시예 E	실시예 F	실시예 G	실시예 H	실시예 I	실시예 J	비교예 K	비교예 L
에폭시 수지 A	100.0											
에폭시 수지 B		100.0										
에폭시 수지 C			100.0									
에폭시 수지 D				100.0								
에폭시 수지 E					100.0							
에폭시 수지 F						100.0						
에폭시 수지 G							100.0					
에폭시 수지 H								100.0				
에폭시 수지 I									100.0			
에폭시 수지 J										100.0		
에폭시 수지 K											100.0	
에폭시 수지 L												100.0
경화 촉진제 A	1.0	1.0	1.0				1.0	1.0		1.0		
경화 촉진제 B				2.0	2.0	2.0			2.0		2.0	2.0
비유전율@10GHz, 25℃	2.51	2.49	2.50	2.38	2.40	2.49	2.85	2.87	2.85	2.83	2.87	3.18
유전 정률@10GHz, 25℃	0.0085	0.0068	0.0074	0.0061	0.0062	0.0100	0.0296	0.0286	0.0268	0.0191	0.0393	0.0310
평가												

에폭시 수지  
단독 경화물

[0411]

[0412] 실시예 1~18, 비교예 1~10

[0413] <수지 바니시의 조제>

[0414] 표 3에 기재한 배합량(질량부)의 각 성분을 칭량했다. 칭량한 각 성분 및 유기 용제로서 2-부탄온을 고정분 농도(에폭시 수지 조성물 농도)가 20질량%로 되도록 플라스크에 투입하고, 60℃로 교반하여 에폭시 수지 조성물 성분을 용제에 용해시키고, 수지 바니시를 얻었다.

[0415] <수지 조성물 경화물(수지 필름)의 제작>

[0416] 상기에서 얻어진 수지 바니시를 박리 PET(폴리에틸렌테레프탈레이트) 상에 건조 후 도공 두께를 100 $\mu$ m의 두께로 겨냥하여 도공했다. 도공한 수지 바니시를 오븐에서 건조시키고, 반경화(B스테이지) 상태로 했다. 또한, 박리 PET를 B스테이지 상에 겹치도록 적층하여, 프레스 200℃, 보온 유지 시간 120분, 프레스 압력 2.5MPa의 조건으로 프레스를 실시하고, 경화(C스테이지) 상태로 했다. 이렇게 하여 경화된 수지층의 두께는 100 $\mu$ m이었다. 프레스 후의 적층체로부터 박리 PET를 제거하고, 수지층 단독으로 이루어지는 수지 필름을 얻었다.

[0417] [유전 정접]

[0418] 상기에서 얻어진 수지 필름에 대하여, 공동 공진기 섭동법에 의해 유전 정접을 측정했다. 우선, 측정 장치로서, 네트워크 애널리저를 이용하여 주파수 10GHz, 25℃에서의 유전 정접을 측정했다(정상 상태에서의 시험). 또한, 소형 환경 시험기SH-261(에스팩(주)제)를 이용하여 85℃, 85%RH(상대 습도) 조건하, 168시간 보관한 습열 처리 완료 샘플도 동일한 평가를 실시했다(고온 고습 시험). 결과를 표 3에 아울러서 나타낸다.

[0419] [표 3]

	실시예 1	실시예 2	실시예 3	실시예 4	실시예 5	실시예 6	실시예 7	실시예 8	실시예 9	실시예 10	실시예 11	실시예 12	실시예 13	실시예 14	실시예 15	실시예 16	실시예 17	실시예 18
신변상 폴리올레핀 A	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
신변상 폴리올레핀 B																		
애복시 수지 A	3.9										100							
애복시 수지 B		3.6																
애복시 수지 C			2.8															
애복시 수지 D				4.1							5.7	2.0	3.2	2.9				
애복시 수지 E					5.0													
애복시 수지 F						3.9												
애복시 수지 G							3.5					1.8						
애복시 수지 H								4.8										
애복시 수지 I									5.3						7.9			
애복시 수지 J										3.3								
애복시 수지 K																		
애복시 수지 L																		
경화제 A																		
경화제 B																		
무기 필러 A	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50
경화 촉진제 C	0.04	0.04	0.03	0.04	0.05	0.04	0.04	0.05	0.05	0.03	0.06	0.04	0.03	0.08	0.07	0.04	0.10	
경화 촉진제 D																		
(애복시 수지+경화제)/ (신성 폴리올레핀+애복시 수지+경화제)	3.8	3.5	2.8	3.9	4.7	3.7	3.4	4.6	5.0	3.2	5.4	3.7	5.0	5.5	7.4	6.2	6.2	9.0
유전 정접(10GHz, 25℃)	0.0019	0.0017	0.0038	0.0014	0.0015	0.0018	0.0022	0.0021	0.0020	0.0021	0.0024	0.0018	0.0022	0.0023	0.0025	0.0020	0.0014	0.0024
고온고습시험	0.0021	0.0019	0.0021	0.0016	0.0017	0.0022	0.0026	0.0024	0.0025	0.0025	0.0027	0.0021	0.0025	0.0025	0.0024	0.0019	0.0019	0.0029

[0420]

	비교예 1	비교예 2	비교예 3	비교예 4	비교예 5	비교예 6	비교예 7	비교예 8	비교예 9	비교예 10
산면장 폴리올레핀 A	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
산면장 폴리올레핀 B										
에폭시 수지 A										
에폭시 수지 B										
에폭시 수지 C										
에폭시 수지 D				11.1	25.0					
에폭시 수지 E										
에폭시 수지 F										
에폭시 수지 G										
에폭시 수지 H						10.6	15.9	13.3		
에폭시 수지 I										
에폭시 수지 J		2.5								
에폭시 수지 K										
에폭시 수지 L			2.6							
경화제 A				7.4	16.6					8.2
경화제 B										
무기 필러 A	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50
경화 촉진제 C	0.03	0.03	0.03	0.11	0.25	0.11	0.16	0.13	0.17	0.10
경화 촉진제 D										
(에폭시 수지+경화제)/ (산성 폴리올레핀+에폭시 수지+경화제)	0.0	2.5	2.6	15.6	29.4	9.6	13.7	11.7	14.2	15.4
유전 정점(10GHz, 25℃)	경화 상태	0.0013	0.0023	0.0024	0.0040	0.0083	0.0042	0.0035	0.0039	0.0030
	고온 고습 시험 후	0.0021	0.0033	0.0034	0.0044	0.0088	0.0058	0.0042	0.0050	0.0046

[0421]

[0422] <박리 강도(90도 필 강도 시험)>

[0423] 일면 이형 처리가 실시된 PET필름의 이형면측에 실시예 1~18의 어느 쪽인가의 수지 조성물을 도포하고, 건조 후의 두께가 25 $\mu$ m로 되도록 80~180 $^{\circ}$ C, 1~30분의 조건으로 반경화 상태(B스테이지)로 될 때까지 건조시킴으로써 접착층을 형성했다. 이에 따라, PET필름 상에 접착층이 형성된 접착 필름을 얻었다.

[0424] 접착층의 PET필름측과는 반대의 면에 25 $\mu$ m의 두께를 가지는 폴리이미드 필름을 라미네이트하고, PET필름을 박리했다. 이에 따라, 폴리이미드 필름 상에 접착층이 형성된 적층체를 얻었다.

[0425] 다음으로, 해당 적층체의 접착층의 폴리이미드 필름측과는 반대의 면에 압연 동박(JX금속(주)제, 품명 BHY-82F-HA-V2, 두께 35 $\mu$ m)의 광택면을 부착하고, 180 $^{\circ}$ C, 3.0MPa, 60분의 조건으로 가열 가압하여, 샘플(동박 적층판)을 얻었다.

[0426] 또한, 압연 동박 대신에, 폴리이미드 필름을 중첩하고, 동일한 조건으로 가열 가압하여 샘플(폴리이미드 적층판)을 얻었다.

[0427] 상기에서 얻어진 샘플을 폭 10mm $\times$ 길이 100mm로 자르고, AGS-X(시마즈 제작소(주)제)를 이용하여 90 $^{\circ}$  방향(적층판의 양방향에 직교하는 방향)에서의 박리 강도를 측정했다. 측정 조건은 기재 필름 박리로 테스트 스피드를 50mm/min으로 했다.

[0428] 결과를 표 4에 나타낸다.

[0429]

[표 4]

실시예	실시예	실시예	실시예	실시예	실시예	실시예	실시예	실시예	실시예	실시예	실시예	실시예	실시예	실시예	실시예	실시예	실시예	실시예	실시예	실시예
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	>10	>10	>10
8.6	8.0	8.2	7.2	7.4	6.6	9.1	8.9	6.7	5.2	6.6	>10	6.9	6.6	8.9	9.2	8.8	8.0	>10	>10	>10
동반 미립자 강도(N/mm)																				
폴리이미드 필름 박리 강도(N/mm)																				

[0430]

[0431]

어느 쪽의 실시예의 수지 조성물도 실용적인 접착성을 가지는 것을 확인할 수 있었다.

[0432]

[땀납 내열 시험]

[0433]

상기와 같이, 얻어진 샘플(동박 적층판)을 60mm×60mm의 샘플편으로 잘라내고, 260℃의 땀납욕에 10초간 침지시켜서, 부풀음 등의 외관 변화의 유무를 관찰했다. 비교예 1만 부풀음이 관찰되고, 실시예 1~18 및 비교예 2~10에서는 부풀음은 관찰되지 않았다.

[0434]

이로부터, 에폭시 수지를 함유하지 않는 수지 조성물(비교예 1)은 땀납 내열성이 현저히 나쁘고, 특히, 전자 부재 등에 이용하는 데는 부적합한 것을 확인할 수 있었다.