



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2024-0051946
(43) 공개일자 2024년04월22일

- (51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C08L 79/08 (2006.01) B32B 27/28 (2006.01)
C08F 299/02 (2006.01) C08J 5/18 (2006.01)
C08J 5/24 (2006.01) C08K 3/013 (2018.01)
C08K 5/544 (2006.01) C08L 71/12 (2006.01)
H01L 23/29 (2006.01) H05K 1/03 (2006.01)
- (52) CPC특허분류
C08L 79/085 (2013.01)
B32B 27/281 (2013.01)
- (21) 출원번호 10-2024-7006802
(22) 출원일자(국제) 2022년09월02일
심사청구일자 없음
- (85) 번역문제출일자 2024년02월28일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2022/033057
(87) 국제공개번호 WO 2023/033131
국제공개일자 2023년03월09일
- (30) 우선권주장
JP-P-2021-144141 2021년09월03일 일본(JP)
- (71) 출원인
가부시끼가이샤 레조낙
일본국 도쿄도 미나토쿠 히가시신바시 1쵸메 9방
1고
- (72) 발명자
후지이, 도시키
일본 1057325 도쿄도 미나토쿠 히가시신바시 1쵸
메 9방 1고 가부시끼가이샤 레조낙 내
시모카와, 료
일본 1057325 도쿄도 미나토쿠 히가시신바시 1쵸
메 9방 1고 가부시끼가이샤 레조낙 내
(뒷면에 계속)
- (74) 대리인
장수길, 최인호, 오현식

전체 청구항 수 : 총 14 항

(54) 발명의 명칭 수지 조성물, 프리프레그, 적층판, 수지 필름, 프린트 배선판 및 반도체 패키지

(57) 요약

(A) 열경화성 수지와, (B) 폴리페닐렌에테르계 수지와, (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물과, (D) 무기 충전재를 함유하는 수지 조성물, 해당 수지 조성물을 사용한 프리프레그, 적층판, 수지 필름, 프린트 배선판 및 반도체 패키지에 관한 것이다.

(52) CPC특허분류

C08F 299/02 (2013.01)
C08J 5/18 (2021.05)
C08J 5/24 (2023.05)
C08K 3/013 (2018.01)
C08K 5/544 (2022.05)
C08L 71/12 (2013.01)
H01L 23/295 (2013.01)
H05K 1/0353 (2013.01)

(72) 발명자

히다카, 요시키

일본 1057325 도쿄토 미나토쿠 히가시신바시 1쵸메
9방 1고 가부시끼가이샤 레조낙 내

야나기다, 마코토

일본 1057325 도쿄토 미나토쿠 히가시신바시 1쵸메
9방 1고 가부시끼가이샤 레조낙 내

나카무라, 유키오

일본 1057325 도쿄토 미나토쿠 히가시신바시 1쵸메
9방 1고 가부시끼가이샤 레조낙 내

명세서

청구범위

청구항 1

- (A) 열경화성 수지와,
(B) 폴리페닐렌에테르계 수지와,
(C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물과,
(D) 무기 충전재
를 함유하는 수지 조성물.

청구항 2

제1항에 있어서, 상기 (A) 열경화성 수지가, 에폭시 수지, 시아네이트 수지 및 말레이미드 수지로 이루어지는 군에서 선택되는 1종 이상인, 수지 조성물.

청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서, 상기 (A) 열경화성 수지가 말레이미드 수지인, 수지 조성물.

청구항 4

제1항 또는 제2항에 있어서, 상기 (B) 폴리페닐렌에테르계 수지가, 에틸렌성 불포화 결합을 포함하는 관능기를 갖는 것인, 수지 조성물.

청구항 5

제4항에 있어서, 상기 에틸렌성 불포화 결합을 포함하는 관능기가, (메트)아크릴로일기인, 수지 조성물.

청구항 6

제1항 또는 제2항에 있어서, 상기 (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물이, 트리알콕시실릴기를 갖는, 수지 조성물.

청구항 7

제1항 또는 제2항에 있어서, 상기 (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물의 함유량이, 상기 수지 조성물의 고형분 총량(100질량%)에 대하여 0.1 내지 10질량%인, 수지 조성물.

청구항 8

제1항 또는 제2항에 있어서, 상기 (D) 무기 충전재가 실리카인, 수지 조성물.

청구항 9

제1항 또는 제2항에 있어서, 추가로, (E) 스티렌계 엘라스토머를 함유하는, 수지 조성물.

청구항 10

제1항 또는 제2항에 기재된 수지 조성물 또는 상기 수지 조성물의 반경화물을 함유하는 프리프레그.

청구항 11

제10항에 기재된 프리프레그의 경화물을 갖는 적층판.

청구항 12

제1항 또는 제2항에 기재된 수지 조성물 또는 상기 수지 조성물의 반경화물을 함유하는 수지 필름.

청구항 13

제1항 또는 제2항에 기재된 수지 조성물의 경화물을 갖는 프린트 배선판.

청구항 14

제13항에 기재된 프린트 배선판을 갖는 반도체 패키지.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 실시 형태는, 수지 조성물, 프리프레그, 적층판, 수지 필름, 프린트 배선판 및 반도체 패키지에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 휴대 전화로 대표되는 이동체 통신 기기, 그 기지국 장치, 서버, 라우터 등의 네트워크 인프라 기기, 대형 컴퓨터 등의 전자 기기에서는, 사용하는 신호의 고속화 및 대용량화가 해마다 진행되고 있다. 이에 따라서, 이들 전자 기기에 탑재하는 프린트 배선판의 기판 재료에는, 고주파 신호의 전송 손실을 저감시킬 수 있는 유전 특성 [이하, 「고주파 특성」이라고 칭하는 경우가 있다.], 즉, 저비유전율 및 저유전 정접이 요구되고 있다.

[0003] 근년, 상술한 전자 기기 이외에도, 자동차, 교통 시스템 관련 등의ITS(Intelligent Transport Systems) 분야 및 실내의 근거리 통신 분야에서도, 고주파 무선 신호를 취급하는 신규 시스템의 실용화 또는 실용 계획이 진행되고 있다. 그 때문에, 금후 이들 분야에서 사용하는 프린트 배선판에 대해서도, 고주파 특성이 우수한 기판 재료의 필요성이 높아질 것으로 예상된다.

[0004] 특허문헌 1에는, 프린트 배선판의 절연층에 적용할 수 있는 수지 조성물로서, 얻어지는 경화물의 비유전율과 유전 정접이 낮고, 내열성도 우수한 경화성 수지 조성물을 제공하는 것을 과제로 하여, 나프톨 노불락형 에폭시 수지와 폴리페닐렌에테르 수지를 함유하는 것을 특징으로 하는 경화성 수지 조성물이 개시되어 있다.

선행기술문헌

특허문헌

[0005] (특허문헌 0001) 일본 특허 공개 제2013-185080호 공보

발명의 내용

해결하려는 과제

[0006] 그러나, 특허문헌 1의 기술과 같이, 열경화성 수지에 대하여 폴리페닐렌에테르를 배합하면, 충분한 구리박 박리 강도가 얻어지지 않는 경우가 있다. 이후, 점점 높아지는 고주파 특성의 요구에 대응하기 위해서는, 폴리페닐렌에테르를 배합한 경우에 있어서도, 우수한 구리박 박리 강도를 얻는 것이 가능한 기술이 요망되고 있다.

[0007] 또한, 폴리페닐렌에테르의 배합에 의해, 폴리페닐렌에테르 자체의 유동성 및 수지 조성물 중의 열경화성 수지의 질량 농도가 낮아지는 것에서 기인하여, 적층 프레스할 때에 수지 조성물이 파잉으로 유동하여 성형성이 악화되는 경우가 있다. 이 문제에 대해서는, 수지 조성물의 경화성을 향상시키는 것이 유효하다. 수지 조성물의 경화성은, 예를 들어 경화 촉진제를 사용함으로써 향상시킬 수 있지만, 경화 촉진제는 유전 특성을 악화시키는 경우가 있기 때문에, 그 사용량은 억제되는 것이 바람직하다.

[0008] 본 실시 형태는, 이러한 현상화를 감안하여, 구리박 박리 강도 및 경화성이 우수한 수지 조성물, 해당 수지 조성물을 사용한 프리프레그, 적층판, 수지 필름, 프린트 배선판 및 반도체 패키지를 제공하는 것을 과제로 한다.

과제의 해결 수단

[0009] 본 발명자들은 상기 과제를 해결하기 위해 예의 연구를 거듭한 결과, 하기 본 실시 형태에 의해, 상기 과제를

해결할 수 있는 것을 알아내었다.

- [0010] 즉, 본 실시 형태는 하기 [1] 내지 [14]에 관한 것이다.
- [0011] [1] (A) 열경화성 수지와,
- [0012] (B) 폴리페닐렌에테르계 수지와,
- [0013] (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물과,
- [0014] (D) 무기 충전재
- [0015] 를 함유하는 수지 조성물.
- [0016] [2] 상기 (A) 열경화성 수지가, 에폭시 수지, 시아네이트 수지 및 말레이미드 수지로 이루어지는 군에서 선택되는 1종 이상인, 상기 [1]에 기재된 수지 조성물.
- [0017] [3] 상기 (A) 열경화성 수지가 말레이미드 수지인, 상기 [1] 또는 [2]에 기재된 수지 조성물.
- [0018] [4] 상기 (B) 폴리페닐렌에테르계 수지가, 에틸렌성 불포화 결합을 포함하는 관능기를 갖는 것인, 상기 [1] 내지 [3] 중 어느 것에 기재된 수지 조성물.
- [0019] [5] 상기 에틸렌성 불포화 결합을 포함하는 관능기가, (메트)아크릴로일기인, 상기 [4]에 기재된 수지 조성물.
- [0020] [6] 상기 (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물이, 트리알콕시실릴기를 갖는, 상기 [1] 내지 [5] 중 어느 것에 기재된 수지 조성물.
- [0021] [7] 상기 (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물의 함유량이, 상기 수지 조성물의 고형분 총량(100질량%)에 대하여 0.1 내지 10질량%인, 상기 [1] 내지 [6] 중 어느 것에 기재된 수지 조성물.
- [0022] [8] 상기 (D) 무기 충전재가 실리카인, 상기 [1] 내지 [7] 중 어느 것에 기재된 수지 조성물.
- [0023] [9] 추가로, (E) 스티렌계 엘라스토머를 함유하는, 상기 [1] 내지 [8] 중 어느 것에 기재된 수지 조성물.
- [0024] [10] 상기 [1] 내지 [9] 중 어느 것에 기재된 수지 조성물 또는 상기 수지 조성물의 반경화물을 함유하는 프리프레그.
- [0025] [11] 상기 [10]에 기재된 프리프레그의 경화물을 갖는 적층판.
- [0026] [12] 상기 [1] 내지 [9] 중 어느 것에 기재된 수지 조성물 또는 상기 수지 조성물의 반경화물을 함유하는 수지 필름.
- [0027] [13] 상기 [1] 내지 [9] 중 어느 것에 기재된 수지 조성물의 경화물을 갖는 프린트 배선판.
- [0028] [14] 상기 [13]에 기재된 프린트 배선판을 갖는 반도체 패키지.

발명의 효과

- [0029] 본 실시 형태에 의하면, 구리박 박리 강도 및 경화성이 우수한 수지 조성물, 해당 수지 조성물을 사용한 프리프레그, 적층판, 수지 필름, 프린트 배선판 및 반도체 패키지를 제공할 수 있다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0030] 본 명세서에 있어서, 「내지」를 사용하여 나타내진 수치 범위는, 「내지」의 전후에 기재되는 수치를 각각 최솟값 및 최대값으로서 포함하는 범위를 나타낸다.
- [0031] 예를 들어, 수치 범위 「X 내지 Y」(X, Y는 실수)라는 표기는, X 이상 Y 이하인 수치 범위를 의미한다. 그리고, 본 명세서에 있어서의 「X 이상」이라는 기재는, X 및 X를 초과하는 수치를 의미한다. 또한, 본 명세서에 있어서의 「Y 이하」라는 기재는, Y 및 Y 미만의 수치를 의미한다.
- [0032] 본 명세서 중에 기재되어 있는 수치 범위의 하한값 및 상한값은, 각각 다른 수치 범위의 하한값 또는 상한값과 임의로 조합할 수 있다.
- [0033] 본 명세서 중에 기재되어 있는 수치 범위에 있어서, 그 수치 범위의 하한값 또는 상한값은, 실시예에 나타내져 있는 값으로 치환해도 된다.

- [0034] 본 명세서에 예시하는 각 성분 및 재료는, 특별히 언급하지 않는 한, 1종을 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 병용해도 된다.
- [0035] 본 명세서에 있어서, 수지 조성물 중의 각 성분의 함유량은, 수지 조성물 중에 각 성분에 해당하는 물질이 복수 존재하는 경우, 특별히 언급하지 않는 한, 수지 조성물 중에 존재하는 당해 복수의 물질의 합계량을 의미한다.
- [0036] 본 명세서에 있어서 「고형분」이란, 용매 이외의 성분을 의미하고, 실온에서 액상, 물엿상 및 왁스상의 것도 포함한다. 여기서, 본 명세서에 있어서 실온이란 25℃를 나타낸다.
- [0037] 본 명세서에 있어서의 「(메트)아크릴로일」이란 「아크릴로일」 및 그것에 대응하는 「메타크릴로일」을 의미한다.
- [0038] 본 명세서에 있어서의 중량 평균 분자량(Mw)은 겔 침투 크로마토그래피(GPC; Gas Permeation Chromatography)에 의해 폴리스티렌 환산으로 측정되는 값을 의미한다. 구체적으로는, 본 명세서에 있어서의 중량 평균 분자량(Mw)은 실시예에 기재된 방법에 의해 측정할 수 있다.
- [0039] 본 명세서에 기재되어 있는 작용 기서는 추측이며, 본 실시 형태의 효과를 발휘하는 기서를 한정하는 것은 아니다.
- [0040] 본 명세서의 기재 사항을 임의로 조합한 양태도 본 실시 형태에 포함된다.
- [0041] [수지 조성물]
- [0042] 본 실시 형태의 수지 조성물은,
- [0043] (A) 열경화성 수지와,
- [0044] (B) 폴리페닐렌에테르계 수지와,
- [0045] (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물과,
- [0046] (D) 무기 충전제
- [0047] 를 함유하는 수지 조성물이다.
- [0048] 또한, 본 명세서에 있어서, 상기 성분은 각각 (A) 성분, (B) 성분, (C) 성분, (D) 성분 등이라 생략하여 칭하는 경우가 있고, 기타 성분에 대해서도 마찬가지로 생략하는 방법을 행하는 경우가 있다.
- [0049] 본 실시 형태의 수지 조성물이, 구리박 박리 강도 및 경화성이 우수한 이유에 대해서는, 이하와 같이 추측된다.
- [0050] 본 실시 형태의 수지 조성물은 (A) 열경화성 수지 및 (B) 폴리페닐렌에테르계 수지를 함유하는 것이다. (B) 폴리페닐렌에테르계 수지는, (A) 열경화성 수지와 비교하면 극성기의 존재 확률이 낮기 때문에 다른 성분과의 분자간력이 약한 경향이 있다. 그 때문에, (B) 폴리페닐렌에테르계 수지를 첨가한 수지 조성물은, 구리박을 박리하는 응력이 인가된 경우에 파괴가 발생하기 쉬워진다고 생각된다.
- [0051] 한편, 본 실시 형태의 수지 조성물은, (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물을 함유함으로써, 상기 문제가 해결된 것으로 추측된다. (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물은, 유기 성분과의 반응성 및 친화성이 우수한 제1급 아미노기와, 무기 성분과의 반응성 및 친화성이 우수한 알콕시실릴기를 갖는다. 그 때문에, (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물을 함유하는 본 실시 형태의 수지 조성물에 있어서는, 주로 유기 성분과 무기 성분의 계면 접착력이 강화되고, 수지상과 (D) 무기 충전제의 계면 파괴가 발생하기 어려워져, 구리박 박리 강도가 향상된 것으로 추측된다. 또한, 상기한 (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물과 유기 성분의 반응, 및 유기 성분과 무기 성분의 계면 접착력의 강화가 경화 반응 중에 발현됨으로써, 본 실시 형태의 수지 조성물의 경화성이 향상된 것으로 생각된다.
- [0052] 이하, 본 실시 형태의 수지 조성물이 함유할 수 있는 각 성분에 대하여 차례로 설명한다.
- [0053] <(A) 열경화성 수지>
- [0054] 본 실시 형태의 수지 조성물은 (A) 열경화성 수지를 함유하는 것이다.
- [0055] (A) 열경화성 수지는 1종을 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 병용해도 된다.
- [0056] (A) 열경화성 수지로서는, 예를 들어 에폭시 수지, 페놀 수지, 말레이미드 수지, 시아네이트 수지, 이소시아네

이트 수지, 벤조옥사진 수지, 옥세탄 수지, 아미노 수지, 불포화 폴리에스테르 수지, 알릴 수지, 디시클로펜타디엔 수지, 실리콘 수지, 트리아진 수지, 멜라민 수지 등을 들 수 있다.

[0057] 이들 중에서도, (A) 열경화성 수지로서는, 내열성의 관점에서, 에폭시 수지, 시아네이트 수지 및 말레이미드 수지로 이루어지는 군에서 선택되는 1종 이상이 바람직하고, 말레이미드 수지가 보다 바람직하고, N-치환 말레이미드기를 1개 이상 갖는 말레이미드 수지 및 해당 말레이미드 수지의 유도체로 이루어지는 군에서 선택되는 1종 이상이 더욱 바람직하다.

[0058] 또한, 이하의 설명에 있어서, 「N-치환 말레이미드기를 1개 이상 갖는 말레이미드 수지 및 해당 말레이미드 수지의 유도체로 이루어지는 군에서 선택되는 1종 이상」을 「말레이미드계 수지」라고 칭하는 경우가 있다.

[0059] 또한, 이하의 설명에서, N-치환 말레이미드기를 1개 이상 갖는 말레이미드 수지를 「말레이미드 수지 (AX)」 또는 「(AX) 성분」이라고 칭하는 경우가 있다.

[0060] 또한, N-치환 말레이미드기를 1개 이상 갖는 말레이미드 수지의 유도체를 「말레이미드 수지 유도체 (AY)」 또는 「(AY) 성분」이라고 칭하는 경우가 있다.

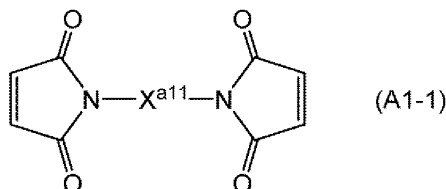
[0061] (말레이미드 수지 (AX))

[0062] 말레이미드 수지 (AX)는 N-치환 말레이미드기를 1개 이상 갖는 말레이미드 수지라면 특별히 한정되지 않는다.

[0063] 말레이미드 수지 (AX)는 도체 접착성 및 내열성의 관점에서, N-치환 말레이미드기를 2개 이상 갖는 방향족 말레이미드 수지인 것이 바람직하고, N-치환 말레이미드기를 2개 갖는 방향족 비스말레이미드 수지인 것이 보다 바람직하다.

[0064] 또한, 본 명세서 중, 「방향족 말레이미드 수지」란, 방향환에 직접 결합하는 N-치환 말레이미드기를 갖는 화합물을 의미한다. 또한, 본 명세서 중, 「방향족 비스말레이미드 수지」란, 방향환에 직접 결합하는 N-치환 말레이미드기를 2개 갖는 화합물을 의미한다. 또한, 본 명세서 중, 「방향족 폴리 말레이미드 수지」란, 방향환에 직접 결합하는 N-치환 말레이미드기를 3개 이상 갖는 화합물을 의미한다. 또한, 본 명세서 중, 「지방족 말레이미드 수지」란, 지방족 탄화수소에 직접 결합하는 N-치환 말레이미드기를 갖는 화합물을 의미한다.

[0065] 말레이미드 수지 (AX)로서는, 하기 일반식 (A1-1)로 표시되는 말레이미드 수지[이하, 「말레이미드 수지 (A1)」이라고 칭함]가 바람직하다.

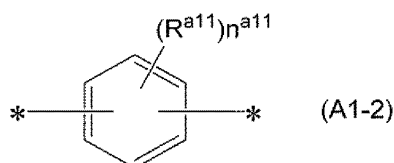


[0066]

[0067] (식 중, X^{a11} 은 2가의 유기기이다.)

[0068] 상기 일반식 (A1-1) 중의 X^{a11} 은 2가의 유기기이다.

[0069] 상기 일반식 (A1-1) 중의 X^{a11} 이 나타내는 2가의 유기기로서는, 예를 들어 하기 일반식 (A1-2)로 표시되는 2가의 기, 하기 일반식 (A1-3)으로 표시되는 2가의 기, 하기 일반식 (A1-4)로 표시되는 2가의 기, 하기 일반식 (A1-5)로 표시되는 2가의 기, 하기 일반식 (A1-6)으로 표시되는 2가의 기 등을 들 수 있다.



[0070]

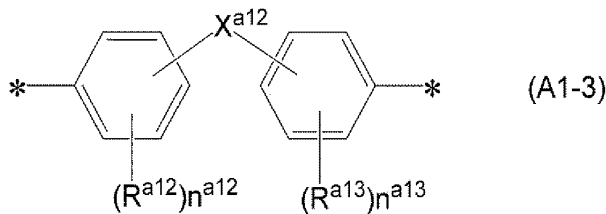
[0071] (식 중, R^{a11} 은 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기 또는 할로겐 원자이다. n^{a11} 은 0 내지 4의 정수이다. *은 결합 부위를 나타낸다.)

[0072] 상기 일반식 (A1-2) 중의 R^{a11} 이 나타내는 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기로서는, 예를 들어 메틸기, 에틸기, n-프로필기, 이소프로필기, n-부틸기, 이소부틸기, t-부틸기, n-펜틸기 등의 탄소수 1 내지 5의 알킬기; 탄소수 2 내지 5의 알케닐기, 탄소수 2 내지 5의 알킬닐기 등을 들 수 있다. 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기는 직쇄상 또는 분지쇄상 중 어느 것이어도 된다. 해당 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기로서는, 탄소수 1 내지 3의 지방족 탄화수소기가 바람직하고, 탄소수 1 내지 3의 알킬기가 보다 바람직하고, 메틸기가 더욱 바람직하다.

[0073] 할로겐 원자로서는, 예를 들어 불소 원자, 염소 원자, 브롬 원자, 요오드 원자 등을 들 수 있다.

[0074] 상기 일반식 (A1-2) 중의 n^{a11} 은 0 내지 4의 정수이며, 입수 용이성의 관점에서, 바람직하게는 0 내지 2의 정수, 보다 바람직하게는 0 또는 1, 더욱 바람직하게는 0이다.

[0075] n^{a11} 이 2 이상의 정수인 경우, 복수의 R^{a11} 끼리는 동일하여도 되고, 달라도 된다.



[0076]

[0077] (식 중, R^{a12} 및 R^{a13} 은 각각 독립적으로 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기 또는 할로겐 원자이다. X^{a12} 는 탄소수 1 내지 5의 알킬렌기, 탄소수 2 내지 5의 알킬리덴기, 에테르기, 술폰드기, 술폰닐기, 카르보닐옥시기, 케토기, 단결합, 또는 하기 일반식 (A1-3-1)로 표시되는 2가의 기이다. n^{a12} 및 n^{a13} 은 각각 독립적으로 0 내지 4의 정수이다. *은 결합 부위를 나타낸다.)

[0078] 상기 일반식 (A1-3) 중의 R^{a12} 및 R^{a13} 이 나타내는 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기로서는, 예를 들어 메틸기, 에틸기, n-프로필기, 이소프로필기, n-부틸기, 이소부틸기, t-부틸기, n-펜틸기 등의 탄소수 1 내지 5의 알킬기; 탄소수 2 내지 5의 알케닐기, 탄소수 2 내지 5의 알킬닐기 등을 들 수 있다. 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기는 직쇄상 또는 분지쇄상 중 어느 것이어도 된다. 해당 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기로서는, 탄소수 1 내지 3의 지방족 탄화수소기가 바람직하고, 탄소수 1 내지 3의 알킬기가 보다 바람직하고, 메틸기, 에틸기가 더욱 바람직하다.

[0079] 할로겐 원자로서는, 예를 들어 불소 원자, 염소 원자, 브롬 원자, 요오드 원자 등을 들 수 있다.

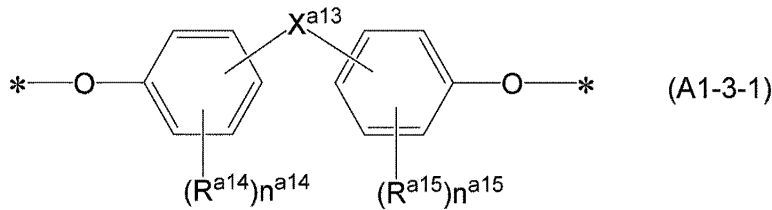
[0080] 상기 일반식 (A1-3) 중의 X^{a12} 가 나타내는 탄소수 1 내지 5의 알킬렌기로서는, 예를 들어 메틸렌기, 1,2-디메틸렌기, 1,3-트리메틸렌기, 1,4-테트라메틸렌기, 1,5-펜타메틸렌기 등을 들 수 있다. 해당 탄소수 1 내지 5의 알킬렌기로서는, 탄소수 1 내지 3의 알킬렌기가 바람직하고, 탄소수 1 또는 2의 알킬렌기가 보다 바람직하고, 메틸렌기가 더욱 바람직하다.

[0081] 상기 일반식 (A1-3) 중의 X^{a12} 가 나타내는 탄소수 2 내지 5의 알킬리덴기로서는, 예를 들어 에틸리덴기, 프로필리덴기, 이소프로필리덴기, 부틸리덴기, 이소부틸리덴기, 펜틸리덴기, 이소펜틸리덴기 등을 들 수 있다. 이들 중에서도, 탄소수 2 내지 4의 알킬리덴기가 바람직하고, 탄소수 2 또는 3의 알킬리덴기가 보다 바람직하고, 이소프로필리덴기가 더욱 바람직하다.

[0082] 상기 일반식 (A1-3) 중의 n^{a12} 및 n^{a13} 은 각각 독립적으로 0 내지 4의 정수이다.

[0083] n^{a12} 또는 n^{a13} 이 2 이상의 정수인 경우, 복수의 R^{a12} 끼리 또는 복수의 R^{a13} 끼리는 각각 동일하여도 되고, 달라도 된다.

[0084] 상기 일반식 (A1-3) 중의 X^{a12} 가 나타내는 일반식 (A1-3-1)로 표시되는 2가의 기는 이하와 같다.



[0085]

[0086] (식 중, R^{a14} 및 R^{a15} 는 각각 독립적으로 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기 또는 할로겐 원자이다. X^{a13} 은 탄소수 1 내지 5의 알킬렌기, 탄소수 2 내지 5의 알킬리렌기, 에테르기, 술피드기, 술폰닐기, 카르보닐옥시기, 케토기 또는 단결합이다. n^{a14} 및 n^{a15} 는 각각 독립적으로 0 내지 4의 정수이다. *은 결합 부위를 나타낸다.)

[0087] 상기 일반식 (A1-3-1) 중의 R^{a14} 및 R^{a15} 가 나타내는 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기로서는, 예를 들어 메틸기, 에틸기, n-프로필기, 이소프로필기, n-부틸기, 이소부틸기, t-부틸기, n-펜틸기 등의 탄소수 1 내지 5의 알킬기; 탄소수 2 내지 5의 알케닐기, 탄소수 2 내지 5의 알킬닐기 등을 들 수 있다. 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기는 직쇄상 또는 분지쇄상 중 어느 것이어도 된다. 해당 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기로서는, 탄소수 1 내지 3의 지방족 탄화수소기가 바람직하고, 탄소수 1 내지 3의 알킬기가 보다 바람직하고, 메틸기가 더욱 바람직하다.

[0088] 할로겐 원자로서는, 예를 들어 불소 원자, 염소 원자, 브롬 원자, 요오드 원자 등을 들 수 있다.

[0089] 상기 일반식 (A1-3-1) 중의 X^{a13} 이 나타내는 탄소수 1 내지 5의 알킬렌기로서는, 예를 들어 메틸렌기, 1,2-디메틸렌기, 1,3-트리메틸렌기, 1,4-테트라메틸렌기, 1,5-펜타메틸렌기 등을 들 수 있다. 해당 탄소수 1 내지 5의 알킬렌기로서는, 탄소수 1 내지 3의 알킬렌기가 바람직하고, 탄소수 1 또는 2의 알킬렌기가 보다 바람직하고, 메틸렌기가 더욱 바람직하다.

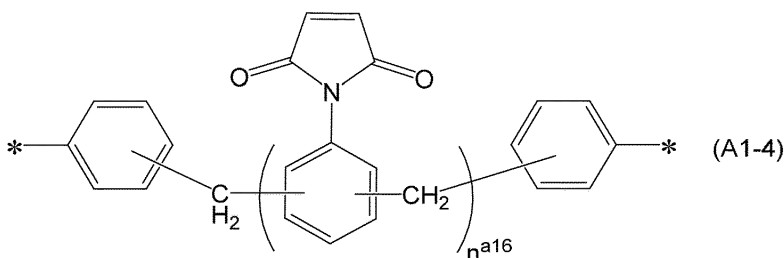
[0090] 상기 일반식 (A1-3-1) 중의 X^{a13} 이 나타내는 탄소수 2 내지 5의 알킬리렌기로서는, 예를 들어 에틸리렌기, 프로필리렌기, 이소프로필리렌기, 부틸리렌기, 이소부틸리렌기, 펜틸리렌기, 이소펜틸리렌기 등을 들 수 있다. 이들 중에서도, 탄소수 2 내지 4의 알킬리렌기가 바람직하고, 탄소수 2 또는 3의 알킬리렌기가 보다 바람직하고, 이소프로필리렌기가 더욱 바람직하다.

[0091] 상기 일반식 (A1-3-1) 중의 X^{a13} 으로서, 상기 선택지 중에서도, 탄소수 2 내지 5의 알킬리렌기가 바람직하고, 탄소수 2 내지 4의 알킬리렌기가 보다 바람직하고, 이소프로필리렌기가 더욱 바람직하다.

[0092] 상기 일반식 (A1-3-1) 중의 n^{a14} 및 n^{a15} 는 각각 독립적으로 0 내지 4의 정수이며, 입수 용이성의 관점에서, 모두, 바람직하게는 0 내지 2의 정수, 보다 바람직하게는 0 또는 1, 더욱 바람직하게는 0이다.

[0093] n^{a14} 또는 n^{a15} 가 2 이상의 정수인 경우, 복수의 R^{a14} 끼리 또는 복수의 R^{a15} 끼리는 각각 동일하여도 되고, 달라도 된다.

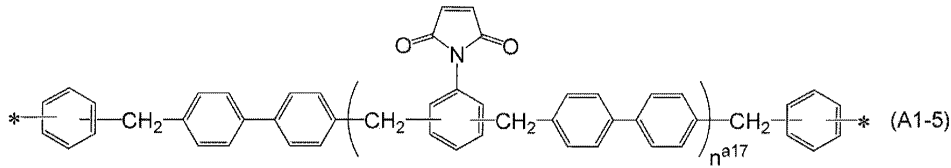
[0094] 상기 일반식 (A1-3) 중의 X^{a12} 로서는, 상기 선택지 중에서도, 탄소수 1 내지 5의 알킬렌기, 탄소수 2 내지 5의 알킬리렌기, 상기 일반식 (A1-3-1)로 표시되는 2가의 기가 바람직하고, 탄소수 1 내지 5의 알킬렌기가 보다 바람직하고, 메틸렌기가 더욱 바람직하다.



[0095]

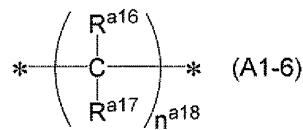
[0096] (식 중, n^{a16} 은 0 내지 10의 정수이다. *은 결합 부위를 나타낸다.)

[0097] 상기 일반식 (A1-4) 중의 n^{a16} 은, 입수 용이성의 관점에서, 바람직하게는 0 내지 5의 정수, 보다 바람직하게는 0 내지 4의 정수, 더욱 바람직하게는 0 내지 3의 정수이다.



[0098]

[0099] (식 중, n^{a17} 은 0 내지 5의 수이다. *은 결합 부위를 나타낸다.)



[0100]

[0101] (식 중, R^{a16} 및 R^{a17} 은 각각 독립적으로 수소 원자 또는 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기이다. n^{a18} 은 1 내지 8의 정수이다. *은 결합 부위를 나타낸다.)

[0102] 상기 일반식 (A1-6) 중의 R^{a16} 및 R^{a17} 이 나타내는 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기로서는, 예를 들어 메틸기, 에틸기, n-프로필기, 이소프로필기, n-부틸기, 이소부틸기, t-부틸기, n-펜틸기 등의 탄소수 1 내지 5의 알킬기; 탄소수 2 내지 5의 알케닐기, 탄소수 2 내지 5의 알킬닐기 등을 들 수 있다. 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기는 직쇄상 또는 분지쇄상 중 어느 것이어도 된다.

[0103] 상기 일반식 (A1-6) 중의 n^{a18} 은 1 내지 8의 정수이며, 바람직하게는 1 내지 5의 정수, 보다 바람직하게는 1 내지 3의 정수, 더욱 바람직하게는 1이다. n^{a18} 이 2 이상의 정수인 경우, 복수의 R^{a16} 끼리 또는 복수의 R^{a17} 끼리는 각각 동일하여도 되고, 달라도 된다.

[0104] 말레이미드 수지 (A1)로서는, 예를 들어 방향족 비스말레이미드 수지, 방향족 폴리 말레이미드 수지, 지방족 말레이미드 수지 등을 들 수 있다.

[0105] 말레이미드 수지 (A1)의 구체예로서는, N,N'-에틸렌비스말레이미드, N,N'-헥사메틸렌비스말레이미드, N,N'-(1,3-페닐렌)비스말레이미드, N,N'-[1,3-(2-메틸페닐렌)]비스말레이미드, N,N'-[1,3-(4-메틸페닐렌)]비스말레이미드, N,N'-(1,4-페닐렌)비스말레이미드, 비스(4-말레이미드페닐)메탄, 비스(3-메틸-4-말레이미드페닐)메탄, 3,3'-디메틸-5,5'-디에틸-4,4'-디페닐메탄비스말레이미드, 비스(4-말레이미드페닐)에테르, 비스(4-말레이미드페닐)술폰, 비스(4-말레이미드페닐)설파이드, 비스(4-말레이미드페닐)케톤, 비스(4-말레이미드페닐)시클로헥산, 1,4-비스(4-말레이미드페닐)시클로헥산, 1,4-비스(말레이미드메틸)벤젠, 1,3-비스(4-말레이미드페녹시)벤젠, 1,3-비스(3-말레이미드페녹시)벤젠, 비스[4-(3-말레이미드페녹시)페닐]메탄, 비스[4-(4-말레이미드페녹시)페닐]메탄, 1,1-비스[4-(3-말레이미드페녹시)페닐]에탄, 1,1-비스[4-(4-말레이미드페녹시)페닐]에탄, 1,2-비스[4-(3-말레이미드페녹시)페닐]에탄, 1,2-비스[4-(4-말레이미드페녹시)페닐]에탄, 2,2-비스[4-(3-말레이미드페녹시)페닐]프로판, 2,2-비스[4-(4-말레이미드페녹시)페닐]프로판, 2,2-비스[4-(3-말레이미드페녹시)페닐]부탄, 2,2-비스[4-(4-말레이미드페녹시)페닐]부탄, 2,2-비스[4-(3-말레이미드페녹시)페닐]-1,1,1,3,3,3-헥사플루오로프로판, 2,2-비스[4-(4-말레이미드페녹시)페닐]-1,1,1,3,3,3-헥사플루오로프로판, 4,4-비스(3-말레이미드페녹시)비페닐, 4,4-비스(4-말레이미드페녹시)비페닐, 비스[4-(3-말레이미드페녹시)페닐]케톤, 비스[4-(4-말레이미드페녹시)페닐]케톤, 비스(4-말레이미드페닐)디설파이드, 비스[4-(3-말레이미드페녹시)페닐]설파이드, 비스[4-(4-말레이미드페녹시)페닐]설파이드, 비스[4-(3-말레이미드페녹시)페닐]설폰, 비스[4-(4-말레이미드페녹시)페닐]설폰, 비스[4-(3-말레이미드페녹시)페닐]에테르, 비스[4-(4-말레이미드페녹시)페닐]에테르, 1,4-비스[4-(4-말레이미드페녹시)- α , α -디메틸벤질]벤젠, 1,3-비스[4-(4-말레이미드페녹시)- α , α -디메틸벤

질]벤젠, 1,4-비스[4-(3-말레이미드페녹시)- α , α -디메틸벤질]벤젠, 1,3-비스[4-(3-말레이미드페녹시)- α , α -디메틸벤질]벤젠, 1,4-비스[4-(4-말레이미드페녹시)-3,5-디메틸- α , α -디메틸벤질]벤젠, 1,3-비스[4-(4-말레이미드페녹시)-3,5-디메틸- α , α -디메틸벤질]벤젠, 1,4-비스[4-(3-말레이미드페녹시)-3,5-디메틸- α , α -디메틸벤질]벤젠, 1,3-비스[4-(3-말레이미드페녹시)-3,5-디메틸- α , α -디메틸벤질]벤젠, 폴리페닐메탄말레이미드, 비페닐아르알킬형 말레이미드 등을 들 수 있다. 이들 중에서도, 2,2-비스[4-(4-말레이미드페녹시)페닐]프로판이 바람직하다.

[0106] (말레이미드 수지 유도체 (AY))

[0107] 말레이미드 수지 유도체 (AY)로서는, 상기한 말레이미드 수지 (AX) 유래의 구조 단위와 디아민 화합물 유래의 구조 단위를 갖는 아미노말레이미드 수지[이하, 「아미노말레이미드 수지 (A2)」 또는 「(A2) 성분」이라고 칭하는 경우가 있다.]가 바람직하다.

[0108] [아미노말레이미드 수지 (A2)]

[0109] 아미노말레이미드 수지 (A2)는 말레이미드 수지 (AX) 유래의 구조 단위와 디아민 화합물[이하, 「디아민 화합물 (a)」 또는 「(a) 성분」이라고 칭하는 경우가 있다.] 유래의 구조 단위를 갖는다.

[0110] 《말레이미드 수지 (AX) 유래의 구조 단위》

[0111] 말레이미드 수지 (AX) 유래의 구조 단위로서는, 예를 들어 말레이미드 수지 (AX)가 갖는 N-치환 말레이미드기 중, 적어도 1개의 N-치환 말레이미드기가, 디아민 화합물이 갖는 아미노기와 마이클 부가 반응하여 이루어지는 구조 단위를 들 수 있다.

[0112] 아미노말레이미드 수지 (A2) 중에 포함되는 말레이미드 수지 (AX) 유래의 구조 단위는, 1종 단독이어도 되고, 2종 이상이어도 된다.

[0113] 아미노말레이미드 수지 (A2) 중에 있어서의 말레이미드 수지 (AX) 유래의 구조 단위의 함유량은, 특별히 한정되지 않지만, 바람직하게는 5 내지 95질량%, 보다 바람직하게는 30 내지 93질량%, 더욱 바람직하게는 60 내지 90질량%이다.

[0114] 아미노말레이미드 수지 (A2) 중에 있어서의 말레이미드 수지 (AX) 유래의 구조 단위의 함유량이 상기 범위 내이면, 유전 특성 및 필름 핸들링성이 보다 양호해지는 경향이 있다.

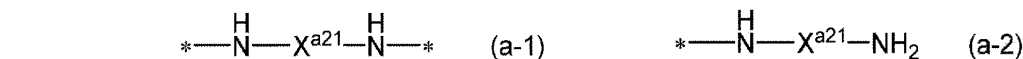
[0115] 《디아민 화합물 (a) 유래의 구조 단위》

[0116] 디아민 화합물 (a) 유래의 구조 단위로서는, 예를 들어 디아민 화합물 (a)가 갖는 2개의 아미노기 중, 한쪽 또는 양쪽의 아미노기가, 말레이미드 수지 (AX)가 갖는 N-치환 말레이미드기와 마이클 부가 반응하여 이루어지는 구조 단위를 들 수 있다.

[0117] 아미노말레이미드 수지 (A2) 중에 포함되는 디아민 화합물 (a) 유래의 구조 단위는, 1종 단독이어도 되고, 2종 이상이어도 된다.

[0118] 디아민 화합물 (a)가 갖는 아미노기는 제1급 아미노기인 것이 바람직하다.

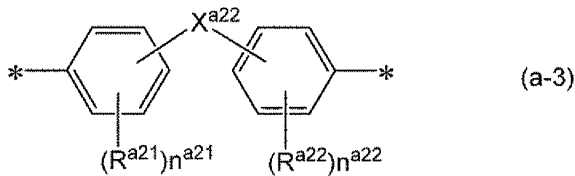
[0119] 제1급 아미노기를 2개 갖는 디아민 화합물 (a) 유래의 구조 단위로서는, 예를 들어 하기 일반식 (a-1)로 표시되는 기, 하기 일반식 (a-2)로 표시되는 기 등을 들 수 있다.



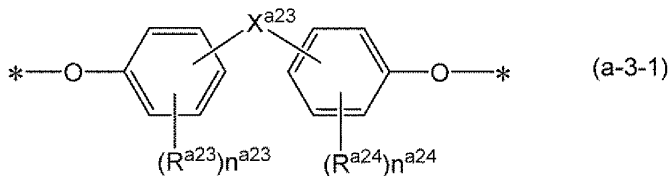
[0121] (식 중, X^{a21} 은 2가의 유기기이며, *은 결합 부위를 나타낸다.)

[0122] 상기 일반식 (a-1) 및 상기 일반식 (a-2) 중의 X^{a21} 은 2가의 유기기이며, 디아민 화합물 (a)로부터 2개의 제1급 아미노기를 제외한 2가의 기에 상당한다.

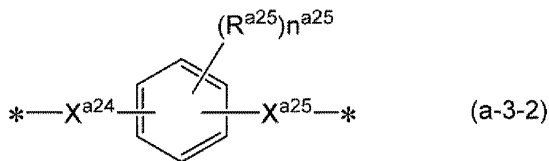
[0123] 상기 일반식 (a-1) 및 상기 일반식 (a-2) 중의 X^{a21} 은, 하기 일반식 (a-3)으로 표시되는 2가의 기인 것이 바람직하다.



(식 중, R^{a21} 및 R^{a22} 는 각각 독립적으로 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기, 탄소수 1 내지 5의 알콕시기, 수산기 또는 할로젠 원자이다. X^{a22} 는 탄소수 1 내지 5의 알킬렌기, 탄소수 2 내지 5의 알킬리렌기, 에테르기, 술피드기, 술폰닐기, 카르보닐옥시기, 케토기, 플루오레닐렌기, 단결합, 또는 하기 일반식 (a-3-1) 혹은 하기 일반식 (a-3-2)로 표시되는 2가의 기이다. n^{a21} 및 n^{a22} 는 각각 독립적으로 0 내지 4의 정수이다. *은 결합 부위를 나타낸다.)



(식 중, R^{a23} 및 R^{a24} 는 각각 독립적으로 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기 또는 할로젠 원자이다. X^{a23} 은 탄소수 1 내지 5의 알킬렌기, 탄소수 2 내지 5의 알킬리렌기, m-페닐렌디이소프로필리렌기, p-페닐렌디이소프로필리렌기, 에테르기, 술피드기, 술폰닐기, 카르보닐옥시기, 케토기 또는 단결합이다. n^{a23} 및 n^{a24} 는 각각 독립적으로 0 내지 4의 정수이다. *은 결합 부위를 나타낸다.)



(식 중, R^{a25} 는 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기 또는 할로젠 원자이다. X^{a24} 및 X^{a25} 는 각각 독립적으로 탄소수 1 내지 5의 알킬렌기, 탄소수 2 내지 5의 알킬리렌기, 에테르기, 술피드기, 술폰닐기, 카르보닐옥시기, 케토기 또는 단결합이다. n^{a25} 는 0 내지 4의 정수이다. *은 결합 부위를 나타낸다.)

상기 일반식 (a-3), 상기 일반식 (a-3-1) 및 상기 일반식 (a-3-2) 중의 R^{a21} , R^{a22} , R^{a23} , R^{a24} 및 R^{a25} 가 나타내는 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기로서는, 예를 들어 메틸기, 에틸기, n-프로필기, 이소프로필기, n-부틸기, 이소부틸기, t-부틸기, n-펜틸기 등의 탄소수 1 내지 5의 알킬기; 탄소수 2 내지 5의 알케닐기, 탄소수 2 내지 5의 알킬닐기 등을 들 수 있다. 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기는 직쇄상 또는 분지쇄상 중 어느 것이어도 된다. 해당 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기로서는, 탄소수 1 내지 3의 지방족 탄화수소기가 바람직하고, 탄소수 1 내지 3의 알킬기가 보다 바람직하고, 메틸기, 에틸기가 더욱 바람직하다.

할로젠 원자로서는, 예를 들어 불소 원자, 염소 원자, 브롬 원자, 요오드 원자 등을 들 수 있다.

상기 일반식 (a-3) 중의 X^{a22} , 상기 일반식 (a-3-1) 중의 X^{a23} 그리고 상기 일반식 (a-3-2) 중의 X^{a24} 및 X^{a25} 가 나타내는 탄소수 1 내지 5의 알킬렌기로서는, 예를 들어 메틸렌기, 1,2-디메틸렌기, 1,3-트리메틸렌기, 1,4-테트라메틸렌기, 1,5-펜타메틸렌기 등을 들 수 있다. 해당 탄소수 1 내지 5의 알킬렌기로서는, 탄소수 1 내지 3의 알킬렌기가 바람직하고, 탄소수 1 또는 2의 알킬렌기가 보다 바람직하고, 메틸렌기가 더욱 바람직하다.

상기 일반식 (a-3) 중의 X^{a22} , 상기 일반식 (a-3-1) 중의 X^{a23} , 그리고 상기 일반식 (a-3-2) 중의 X^{a24} 및 X^{a25} 가 나타내는 탄소수 2 내지 5의 알킬리렌기로서는, 예를 들어 에틸리렌기, 프로필리렌기, 이소프로필리렌기, 부틸리렌기, 이소부틸리렌기, 펜틸리렌기, 이소펜틸리렌기 등을 들 수 있다. 해당 탄소수 2 내지 5의 알킬리렌기로서는, 탄소수 2 내지 4의 알킬리렌기가 바람직하고, 탄소수 2 또는 3의 알킬리렌기가 보다 바람직하고, 이소프

로필리텐기가 더욱 바람직하다.

[0134] 상기 일반식 (a-3) 중의 n^{a21} 및 n^{a22} 는 각각 독립적으로 0 내지 4의 정수이며, 입수 용이성의 관점에서, 모두, 바람직하게는 0 내지 3의 정수, 보다 바람직하게는 0 내지 2의 정수, 더욱 바람직하게는 0 또는 2이다.

[0135] n^{a21} 또는 n^{a22} 가 2 이상의 정수인 경우, 복수의 R^{a21} 끼리 또는 복수의 R^{a22} 끼리는 각각 동일하여도 되고, 달라도 된다.

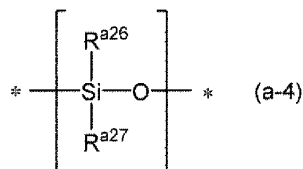
[0136] 상기 일반식 (a-3-1) 중의 n^{a23} 및 n^{a24} 는 각각 독립적으로 0 내지 4의 정수이며, 입수 용이성의 관점에서, 모두, 바람직하게는 0 내지 2의 정수, 보다 바람직하게는 0 또는 1, 더욱 바람직하게는 0이다.

[0137] n^{a23} 또는 n^{a24} 가 2 이상의 정수인 경우, 복수의 R^{a23} 끼리 또는 복수의 R^{a24} 끼리는 각각 동일하여도 되고, 달라도 된다.

[0138] 상기 일반식 (a-3-2) 중의 n^{a25} 는 0 내지 4의 정수이며, 입수 용이성의 관점에서, 바람직하게는 0 내지 2의 정수, 보다 바람직하게는 0 또는 1, 더욱 바람직하게는 0이다.

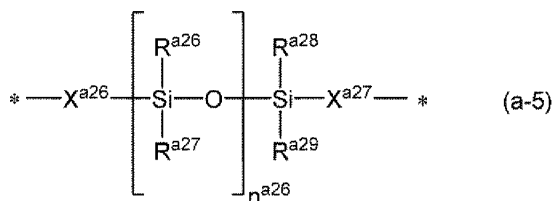
[0139] n^{a25} 가 2 이상의 정수인 경우, 복수의 R^{a25} 끼리는 각각 동일하여도 되고, 달라도 된다.

[0140] 또한, 상기 일반식 (a-1) 및 상기 일반식 (a-2) 중의 X^{a21} 은, 하기 일반식 (a-4)로 표시되는 구조 단위를 함유하는 2가의 기여도 되고, 하기 일반식 (a-5)로 표시되는 2가의 기여도 된다.



[0141]

[0142] (식 중, R^{a26} 및 R^{a27} 은 각각 독립적으로 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기, 페닐기 또는 치환 페닐기이다. *은 결합 부위를 나타낸다.)



[0143]

[0144] (식 중, R^{a26} 및 R^{a27} 은 상기 일반식 (a-4) 중의 것과 동일하고, R^{a28} 및 R^{a29} 는 각각 독립적으로 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기, 페닐기 또는 치환 페닐기이다. X^{a26} 및 X^{a27} 은 각각 독립적으로 2가의 유기기이며, n^{a26} 은 2 내지 100의 정수이다. *은 결합 부위를 나타낸다.)

[0145] 상기 일반식 (a-4) 및 (a-5) 중의 R^{a26} 내지 R^{a29} 가 나타내는 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기로서는, 예를 들어 메틸기, 에틸기, n-프로필기, 이소프로필기, n-부틸기, 이소부틸기, t-부틸기, n-펜틸기 등의 탄소수 1 내지 5의 알킬기; 탄소수 2 내지 5의 알케닐기, 탄소수 2 내지 5의 알키닐기 등을 들 수 있다. 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기는 직쇄상 또는 분지쇄상 중 어느 것이어도 된다. 해당 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기로서는, 탄소수 1 내지 3의 지방족 탄화수소기가 바람직하고, 탄소수 1 내지 3의 알킬기가 보다 바람직하고, 메틸기가 더욱 바람직하다.

[0146] R^{a26} 내지 R^{a29} 가 나타내는 치환 페닐기에 있어서의 페닐기가 갖는 치환기로서는, 상기한 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기를 들 수 있다.

[0147] X^{a26} 및 X^{a27} 이 나타내는 2가의 유기기로서는, 예를 들어 알킬렌기, 알케닐렌기, 알키닐렌기, 아릴렌기, -O- 또는

이들이 조합된 2가의 연결기 등을 들 수 있다.

- [0148] 상기 알킬렌기로서는, 예를 들어 메틸렌기, 에틸렌기, 프로필렌기 등의 탄소수 1 내지 10의 알킬렌기를 들 수 있다.
- [0149] 상기 알케닐렌기로서는, 예를 들어 탄소수 2 내지 10의 알케닐렌기를 들 수 있다.
- [0150] 상기 알키닐렌기로서는, 예를 들어 탄소수 2 내지 10의 알키닐렌기를 들 수 있다.
- [0151] 상기 아릴렌기로서는, 예를 들어 페닐렌기, 나프틸렌기 등의 탄소수 6 내지 20의 아릴렌기를 들 수 있다.
- [0152] 이들 중에서도, X^{a26} 및 X^{a27} 로서는, 알킬렌기, 아릴렌기가 바람직하고, 알킬렌기가 보다 바람직하다.
- [0153] n^{a26} 은 2 내지 100의 정수이며, 바람직하게는 2 내지 50의 정수, 보다 바람직하게는 3 내지 40의 정수, 더욱 바람직하게는 5 내지 30의 정수이다. n^{a26} 이 2 이상의 정수인 경우, 복수의 R^{a26} 끼리 또는 복수의 R^{a27} 끼리는 각각 동일하여도 되고, 달라도 된다.
- [0154] 아미노말레이미드 수지 (A2) 중에 있어서의 디아민 화합물 (a) 유래의 구조 단위의 함유량은, 특별히 한정되지 않지만, 바람직하게는 5 내지 95질량%, 보다 바람직하게는 7 내지 70질량%, 더욱 바람직하게는 10 내지 40질량%이다.
- [0155] 아미노말레이미드 수지 (A2) 중에 있어서의 디아민 화합물 (a) 유래의 구조 단위의 함유량이 상기 범위 내이면, 유전 특성, 내열성, 난연성 및 유리 전이 온도가 보다 양호해지는 경향이 있다.
- [0156] 디아민 화합물 (a)로서는, 예를 들어 4,4'-디아미노디페닐메탄, 3,3'-디메틸-4,4'-디아미노디페닐메탄, 3,3'-디에틸-4,4'-디아미노디페닐메탄, 4,4'-디아미노디페닐에테르, 4,4'-디아미노디페닐술폰, 3,3'-디아미노디페닐술폰, 4,4'-디아미노디페닐케톤, 4,4'-디아미노비페닐, 3,3'-디메틸-4,4'-디아미노비페닐, 2,2'-디메틸-4,4'-디아미노비페닐, 3,3'-디히드록시 벤지딘, 2,2'-비스(3-아미노-4-히드록시페닐)프로판, 3,3'-디메틸-5,5'-디에틸-4,4'-디아미노디페닐메탄, 2,2'-비스(4-아미노페닐)프로판, 2,2'-비스[4-(4-아미노페녹시)페닐]프로판, 1,3-비스(3-아미노페녹시)벤젠, 1,3-비스(4-아미노페녹시)벤젠, 1,4-비스(4-아미노페녹시)벤젠, 4,4'-비스(4-아미노페녹시)비페닐, 1,3-비스[1-[4-(4-아미노페녹시)페닐]-1-메틸에틸]벤젠, 1,4-비스[1-[4-(4-아미노페녹시)페닐]-1-메틸에틸]벤젠, 4,4'-[1,3-페닐렌비스(1-메틸에틸리덴)]비스아닐린, 4,4'-[1,4-페닐렌비스(1-메틸에틸리덴)]비스아닐린, 3,3'-[1,3-페닐렌비스(1-메틸에틸리덴)]비스아닐린, 비스[4-(4-아미노페녹시)페닐]술폰, 비스[4-(3-아미노페녹시)페닐]술폰, 9,9-비스(4-아미노페닐)플루오렌 등의 방향족 디아민 화합물; 제1급 아미노기를 2개 갖는 실리콘 화합물 등을 들 수 있다.
- [0157] 또한, 본 명세서 중, 「방향족 디아민 화합물」이란, 방향환에 직접 결합하는 아미노기를 2개 갖는 화합물을 의미한다.
- [0158] 이들 중에서도, 디아민 화합물 (a)는 유기 용매에 대한 용해성, 반응성, 내열성, 유전 특성 및 저흡수성이 우수하다는 관점에서, 4,4'-디아미노디페닐메탄, 3,3'-디메틸-4,4'-디아미노디페닐메탄, 3,3'-디에틸-4,4'-디아미노디페닐메탄, 2,2'-비스[4-(4-아미노페녹시)페닐]프로판, 4,4'-[1,3-페닐렌비스(1-메틸에틸리덴)]비스아닐린 및 4,4'-[1,4-페닐렌비스(1-메틸에틸리덴)]비스아닐린이 바람직하고, 3,3'-디에틸-4,4'-디아미노디페닐메탄이 보다 바람직하다. 또한, 저열 팽창성의 관점에서는, 제1급 아미노기를 2개 갖는 실리콘 화합물이 바람직하다.
- [0159] 제1급 아미노기를 2개 갖는 실리콘 화합물로서는, 제1급 아미노기를 양쪽 말단에 갖는 실리콘 화합물이 바람직하다.
- [0160] 제1급 아미노기를 2개 갖는 실리콘 화합물의 제1급 아미노기 당량은, 특별히 한정되지 않지만, 바람직하게는 300 내지 2,000g/mol, 보다 바람직하게는 400 내지 1,500g/mol, 더욱 바람직하게는 500 내지 1,000g/mol이다.
- [0161] 아미노말레이미드 수지 (A2) 중에 있어서의, 디아민 화합물 (a)의 $-NH_2$ 기 유래 기의 합계 당량(Ta2)과, 말레이미드 수지 (AX)의 N-치환 말레이미드기 유래 기의 합계 당량(Ta1)과의 당량비(Ta2/Ta1)는, 특별히 한정되지 않지만, 유전 특성, 내열성, 난연성 및 유리 전이 온도의 관점에서, 바람직하게는 0.05 내지 10, 보다 바람직하게는 1 내지 8, 더욱 바람직하게는 3 내지 7이다. 또한, 상기 디아민 화합물 (a)의 $-NH_2$ 기 유래의 기관, $-NH_2$ 자체도 포함하는 것으로 한다. 또한, 상기 말레이미드 수지 (AX)의 N-치환 말레이미드기 유래의 기관, N-치환 말레이미드기 자체도 포함하는 것으로 한다.

- [0162] 아미노말레이미드 수지 (A2)의 중량 평균 분자량(Mw)은 특별히 한정되지 않지만, 취급성 및 성형성의 관점에서, 바람직하게는 400 내지 10,000, 보다 바람직하게는 1,000 내지 5,000, 더욱 바람직하게는 1,500 내지 4,000, 특히 바람직하게는 2,000 내지 3,000이다.
- [0163] (아미노말레이미드 수지 (A2)의 제조 방법)
- [0164] 아미노말레이미드 수지 (A2)는, 예를 들어 말레이미드 수지 (AX)와 디아민 화합물 (a)를 유기 용매 중에서 반응 시킴으로써 제조할 수 있다.
- [0165] 말레이미드 수지 (AX)와 디아민 화합물 (a)를 반응시킴으로써, 말레이미드 수지 (AX)와 디아민 화합물 (a)가 마이클 부가 반응하여 이루어지는 아미노말레이미드 수지 (A2)가 얻어진다.
- [0166] 말레이미드 수지 (AX)와 디아민 화합물 (a)를 반응시킬 때는, 필요에 따라서 반응 촉매를 사용해도 된다.
- [0167] 반응 촉매로서는, 예를 들어 p-톨루엔술포산 등의 산성 촉매; 트리에틸아민, 피리딘, 트리부틸아민 등의 아민류; 메틸이미다졸, 페닐이미다졸 등의 이미다졸류; 트리페닐포스핀 등의 인계 촉매 등을 들 수 있다. 이들은 1종을 단독으로 사용해도, 2종 이상을 조합하여 사용해도 된다.
- [0168] 반응 촉매의 배합량은 특별히 한정되지 않지만, 반응 속도 및 반응 균일성의 관점에서, 말레이미드 수지 (AX) 및 디아민 화합물 (a)의 합계량 100질량부에 대하여, 바람직하게는 0.01 내지 5질량부, 보다 바람직하게는 0.05 내지 3질량부, 더욱 바람직하게는 0.1 내지 2질량부이다.
- [0169] 마이클 부가 반응의 반응 온도는, 반응 속도 등의 작업성, 반응 중에 있어서의 생성물의 겔화 억제 등의 관점에서, 바람직하게는 50 내지 160℃, 보다 바람직하게는 60 내지 150℃, 더욱 바람직하게는 70 내지 140℃이다.
- [0170] 마이클 부가 반응의 반응 시간은, 생산성 및 충분히 반응을 진행시킨다는 관점에서, 바람직하게는 0.5 내지 10 시간, 보다 바람직하게는 1 내지 8시간, 더욱 바람직하게는 2 내지 6시간이다.
- [0171] 단, 이들 반응 조건은, 사용하는 원료의 종류 등에 따라서 적절히 조정할 수 있고, 특별히 한정되지 않는다.
- [0172] ((A) 열경화성 수지의 함유량)
- [0173] 본 실시 형태의 수지 조성물에 있어서, (A) 열경화성 수지의 함유량은 특별히 한정되지 않지만, 본 실시 형태의 수지 조성물 중의 수지 성분의 총량(100질량%)에 대하여, 바람직하게는 20 내지 95질량%, 보다 바람직하게는 50 내지 90질량%, 더욱 바람직하게는 70 내지 85질량%이다.
- [0174] (A) 열경화성 수지의 함유량이 상기 하한값 이상이면, 내열성, 성형성, 가공성 및 도체 접착성이 보다 양호해지기 쉬운 경향이 있다. 또한, (A) 열경화성 수지의 함유량이 상기 상한값 이하이면, 유전 특성이 보다 양호해지기 쉬운 경향이 있다.
- [0175] 여기서, 본 명세서에 있어서, 「수지 성분」이란, 수지 및 경화 반응에 의해 수지를 형성하는 화합물을 의미한다.
- [0176] 예를 들어, 본 실시 형태의 수지 조성물에 있어서는, (A) 열경화성 수지 및 (B) 폴리페닐렌에테르계 수지가 수지 성분에 상당한다.
- [0177] 본 실시 형태의 수지 조성물이, 임의 성분으로서, 상기 성분 이외에도 수지 또는 경화 반응에 의해 수지를 형성하는 화합물을 함유하는 경우, 이들 임의 성분도 수지 성분에 포함된다. 수지 성분에 상당하는 임의 성분으로서, 후술하는 (E) 스티렌계 엘라스토머, (F) 경화 촉진제 등을 들 수 있다.
- [0178] 한편, (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물 및 (D) 무기 충전제는, 수지 성분에는 포함되지 않는 것으로 한다.
- [0179] 본 실시 형태의 수지 조성물 중에 있어서의 수지 성분의 합계 함유량은, 특별히 한정되지 않지만, 저열 팽창성, 내열성, 난연성 및 도체 접착성의 관점에서, 본 실시 형태의 수지 조성물 고형분 총량(100질량%)에 대하여, 바람직하게는 30 내지 95질량%, 보다 바람직하게는 50 내지 90질량%, 더욱 바람직하게는 70 내지 80질량%이다.
- [0180] (A) 열경화성 수지 중에 있어서의 상기 말레이미드계 수지의 함유량은, 특별히 한정되지 않지만, (A) 열경화성 수지의 총량(100질량%)에 대하여, 바람직하게는 80 내지 100질량%, 보다 바람직하게는 90 내지 100질량%, 더욱 바람직하게는 95 내지 100질량%이다.
- [0181] 말레이미드계 수지의 함유량이 상기 하한값 이상이면, 내열성, 성형성, 가공성 및 도체 접착성이 보다 양호해지

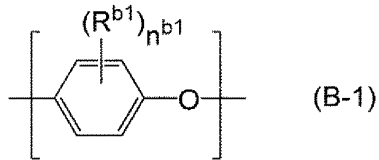
기 쉬운 경향이 있다. 또한, 말레이미드계 수지의 함유량이 상기 상한값 이하이면, 유전 특성이 보다 양호해지기 쉬운 경향이 있다.

[0182] <(B) 폴리페닐렌에테르계 수지>

[0183] (B) 폴리페닐렌에테르계 수지는 폴리페닐렌에테르쇄를 갖는 수지라면 특별히 한정되지 않는다.

[0184] (B) 폴리페닐렌에테르계 수지는 1종을 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 병용해도 된다.

[0185] (B) 폴리페닐렌에테르계 수지는 페닐렌에테르 결합을 갖는 것이며, 하기 일반식 (B-1)로 표시되는 구조 단위를 갖는 것이 바람직하다.



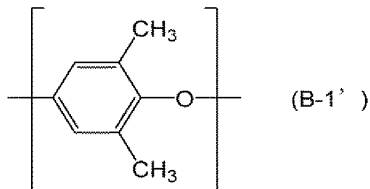
[0186]

[0187] (식 중, R^{b1} 은 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기 또는 할로젠 원자를 나타낸다. n^{b1} 은 0 내지 4의 정수를 나타낸다.)

[0188] 상기 일반식 (B-1) 중의 R^{b1} 이 나타내는 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기로서는, 예를 들어 메틸기, 에틸기, n-프로필기, 이소프로필기, n-부틸기, 이소부틸기, t-부틸기, n-펜틸기 등을 들 수 있다. 해당 지방족 탄화수소기는 탄소수 1 내지 3의 지방족 탄화수소기가 바람직하고, 탄소수 1 내지 3의 알킬기가 보다 바람직하고, 메틸기가 더욱 바람직하다.

[0189] n^{b1} 은 0 내지 4의 정수를 나타내고, 바람직하게는 1 또는 2, 보다 바람직하게는 2이다. 또한, n^{b1} 이 1 또는 2인 경우, R^{b1} 은 벤젠환 상의 오르토 위치(단, 산소 원자의 치환 위치를 기준으로 한다.)에 치환되어 있는 것이 바람직하다. 또한, n^{b1} 이 2 이상의 정수인 경우, 복수의 R^{b1} 끼리는 동일하여도 달라도 된다.

[0190] 상기 일반식 (B-1)로 표시되는 구조 단위는, 하기 일반식 (B-1')로 표시되는 구조 단위인 것이 바람직하다.

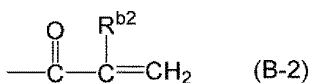


[0191]

[0192] (B) 폴리페닐렌에테르계 수지는, 내열성의 관점에서, 에틸렌성 불포화 결합을 포함하는 관능기[이하, 「에틸렌성 불포화 결합 함유기」라고 칭하는 경우가 있다.]를 갖는 것이 바람직하다.

[0193] 또한, 본 명세서에 있어서, 「에틸렌성 불포화 결합」이란, 부가 반응이 가능한 탄소-탄소 이중 결합을 의미하고, 방향환의 이중 결합은 포함하지 않는 것으로 한다.

[0194] 에틸렌성 불포화 결합 함유기로서는, 예를 들어 비닐기, 알릴기, 1-메틸알릴기, 이소프로페닐기, 2-부테닐기, 3-부테닐기, 스티릴기, 말레이미드기, 하기 일반식 (B-2)로 표시되는 기 등을 들 수 있다. 이들 중에서도, 유전 특성의 관점에서, 하기 일반식 (B-2)로 표시되는 기가 바람직하다.



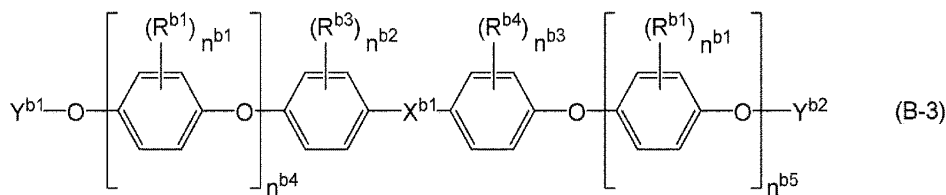
[0195]

[0196] (식 중, R^{b2} 는 수소 원자 또는 탄소수 1 내지 20의 알킬기를 나타낸다.)

[0197] R^{b2} 가 나타내는 탄소수 1 내지 20의 알킬기는, 직쇄상 알킬기, 분지쇄상 알킬기 또는 환상 알킬기 중 어느 것이

어도 되고, 직쇄상 알킬기인 것이 바람직하다.

- [0198] 상기 알킬기의 탄소수는, 바람직하게는 1 내지 10, 보다 바람직하게는 1 내지 5, 더욱 바람직하게는 1 내지 3, 특히 바람직하게는 1이다.
- [0199] 알킬기로서는, 예를 들어 메틸기, 에틸기, 프로필기, 부틸기, 펜틸기, 헥실기, 헵틸기, 옥틸기, 데실기, 펜타데실기, 헥사데실기, 헵타데실기 등을 들 수 있고, 이들 중에서도, 메틸기가 바람직하다.
- [0200] 상기 일반식 (B-2)로 표시되는 기는, 유전 특성의 관점에서, (메트)아크릴로일기가 바람직하고, 메타크릴로일기가 보다 바람직하다.
- [0201] (B) 폴리페닐렌에테르계 수지가 1 분자 중에 갖는 에틸렌성 불포화 결합 함유기의 수는, 특별히 한정되지 않지만, 바람직하게는 1 내지 5개, 보다 바람직하게는 2 내지 3개, 더욱 바람직하게는 2개이다.
- [0202] 에틸렌성 불포화 결합 함유기의 수가 상기 하한값 이상이면, 내열성이 보다 양호해지기 쉬운 경향이 있다. 또한, 에틸렌성 불포화 결합 함유기의 수가 상기 상한값 이하이면, 성형성이 보다 양호해지기 쉬운 경향이 있다.
- [0203] (B) 폴리페닐렌에테르계 수지는 에틸렌성 불포화 결합 함유기를 말단에 갖고 있는 것이 바람직하고, 양쪽 말단에 갖고 있는 것이 보다 바람직하다.
- [0204] (B) 폴리페닐렌에테르계 수지는 말단 이외에도 에틸렌성 불포화 결합 함유기를 갖고 있어도 되지만, 말단에만 에틸렌성 불포화 결합 함유기를 갖는 것이 바람직하다.
- [0205] (B) 폴리페닐렌에테르계 수지는, 유전 특성의 관점에서, 하기 일반식 (B-3)으로 표시되는 화합물인 것이 바람직하다.



- [0206]
- [0207] (식 중, R^{b1} 및 n^{b1} 은 상기 일반식 (B-1)에 있어서의 설명한 대로이다. R^{b3} 및 R^{b4} 는 각각 독립적으로 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기 또는 할로젠 원자를 나타낸다. n^{b2} 및 n^{b3} 은 각각 독립적으로 0 내지 4의 정수를 나타낸다. n^{b4} 및 n^{b5} 는 각각 독립적으로 0 내지 20의 정수를 나타내고, n^{b4} 및 n^{b5} 의 합계는 1 내지 30의 정수이다. X^{b1} 은 탄소수 1 내지 5의 알킬렌기, 탄소수 2 내지 5의 알킬리텐기, 에테르기, 술폰드기, 술폰닐기, 카르보닐옥시기, 케토기 또는 단결합을 나타낸다. Y^{b1} 및 Y^{b2} 는 각각 독립적으로 상기 에틸렌성 불포화 결합 함유기를 나타낸다.)
- [0208] 상기 일반식 (B-3) 중의 R^{b3} 및 R^{b4} 가 나타내는 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기에 관한 설명은, 상기 일반식 (B-1) 중의 R^{b1} 이 나타내는 탄소수 1 내지 5의 지방족 탄화수소기에 관한 설명과 동일하다.
- [0209] n^{b2} 및 n^{b3} 은 0 내지 4의 정수를 나타내고, 바람직하게는 0 내지 3의 정수, 보다 바람직하게는 2 또는 3이다. n^{b2} 또는 n^{b3} 이 2 이상의 정수인 경우, 복수의 R^{b3} 끼리 또는 복수의 R^{b4} 끼리는 각각 동일하여도 달라도 된다.
- [0210] n^{b4} 및 n^{b5} 는 0 내지 20의 정수를 나타내고, 바람직하게는 1 내지 20의 정수, 보다 바람직하게는 2 내지 15의 정수, 더욱 바람직하게는 3 내지 10의 정수이다. n^{b4} 또는 n^{b5} 가 2 이상의 정수인 경우, 복수의 n^{b1} 끼리는 동일하여도 달라도 된다.
- [0211] n^{b4} 및 n^{b5} 의 합계는 1 내지 30의 정수이며, 바람직하게는 2 내지 25의 정수, 보다 바람직하게는 5 내지 20의 정수, 더욱 바람직하게는 7 내지 15의 정수이다.
- [0212] 상기 일반식 (B-3) 중의 X^{b1} 이 나타내는 탄소수 1 내지 5의 알킬렌기로서는, 예를 들어 메틸렌기, 1,2-디메틸렌

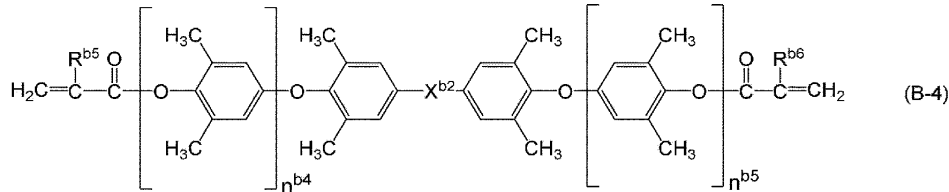
기, 1,3-트리메틸렌기, 1,4-테트라메틸렌기, 1,5-펜타메틸렌기 등을 들 수 있다.

[0213] X^{b1} 이 나타내는 탄소수 2 내지 5의 알킬리텐기로서는, 예를 들어 에틸리텐기, 프로필리텐기, 이소프로필리텐기, 부틸리텐기, 이소부틸리텐기, 펜틸리텐기, 이소펜틸리텐기 등을 들 수 있다.

[0214] X^{b1} 이 나타내는 기 중에서도, 유전 특성의 관점에서, 이소프로필리텐기가 바람직하다.

[0215] Y^{b1} 및 Y^{b2} 가 나타내는 에틸렌성 불포화 결합 함유기의 바람직한 형태에 대해서는 상기한 대로이다.

[0216] 상기 일반식 (B-3)으로 표시되는 화합물은, 유전 특성의 관점에서, 하기 일반식 (B-4)로 표시되는 화합물인 것이 바람직하다.



[0217]

[0218] (식 중, n^{b4} 및 n^{b5} 는 상기 일반식 (B-3)에 있어서의 설명한 대로이다. R^{b5} 및 R^{b6} 은 각각 독립적으로 수소 원자 또는 메틸기를 나타낸다. X^{b2} 는 메틸렌기 또는 이소프로필리텐기를 나타낸다.)

[0219] [(B) 폴리페닐렌에테르계 수지의 중량 평균 분자량(M_w)]

[0220] (B) 폴리페닐렌에테르계 수지의 중량 평균 분자량(M_w)은 특별히 한정되지 않지만, 바람직하게는 500 내지 7,000, 보다 바람직하게는 800 내지 5,000, 더욱 바람직하게는 1,000 내지 3,000, 특히 바람직하게는 1,200 내지 2,500이다.

[0221] (B) 폴리페닐렌에테르계 수지의 중량 평균 분자량(M_w)이 상기 하한값 이상이면, 폴리페닐렌에테르의 우수한 유전 특성을 가지며, 또한 내열성이 우수한 경화물이 얻어지기 쉬운 경향이 있다. 또한, (B) 폴리페닐렌에테르계 수지의 중량 평균 분자량(M_w)이 상기 상한값 이하이면, 성형성이 보다 양호해지기 쉬운 경향이 있다.

[0222] (B) 폴리페닐렌에테르계 수지의 합성 방법은 공지된 폴리페닐렌에테르의 합성 방법 및 변성 방법을 적용할 수 있고, 특별히 한정되는 것은 아니다.

[0223] ((B) 폴리페닐렌에테르계 수지의 함유량)

[0224] 본 실시 형태의 수지 조성물 중에 있어서의 (B) 폴리페닐렌에테르계 수지의 함유량은, 특별히 한정되지 않지만, 본 실시 형태의 수지 조성물 중의 수지 성분의 총량(100질량%)에 대하여, 바람직하게는 1 내지 30질량%, 보다 바람직하게는 4 내지 20질량%, 더욱 바람직하게는 7 내지 15질량%이다.

[0225] (B) 폴리페닐렌에테르계 수지의 함유량이 상기 하한값 이상이면, 유전 특성이 보다 양호해지기 쉬운 경향이 있다. 또한, (B) 폴리페닐렌에테르계 수지의 함유량이 상기 상한값 이하이면, 내열성, 성형성 및 가공성이 보다 양호해지기 쉬운 경향이 있다.

[0226] <(C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물>

[0227] (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물은, 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실릴기를 갖는 화합물이면 특별히 한정되지 않는다.

[0228] (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물은, 1종을 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 병용해도 된다.

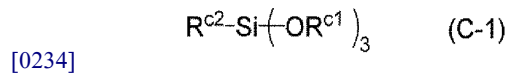
[0229] (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물로서는, 예를 들어 모노알콕시실릴기, 디알콕시실릴기, 트리알콕시실릴기 등을 갖는 것을 들 수 있고, 이들 중에서도, 트리알콕시실릴기를 갖는 것이 바람직하다.

[0230] 알콕시실릴기에 포함되는 알콕시기를 구성하는 알킬기의 탄소수는, 바람직하게는 1 내지 10, 보다 바람직하게는 1 내지 5, 더욱 바람직하게는 1 또는 2이다.

[0231] 알콕시실릴기에 포함되는 알콕시기를 구성하는 알킬기는, 직쇄상이어도 되고, 분지쇄상이어도 된다.

[0232] (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물이 갖는 제1급 아미노기의 수는, 특별히 한정되지 않지만, 바람직하게는 1 내지 3개, 보다 바람직하게는 1개 또는 2개, 더욱 바람직하게는 1개이다.

[0233] (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물로서는, 하기 일반식 (C-1)로 표시되는 화합물이 바람직하다.



[0235] (식 중, R^{c1} 은 각각 독립적으로 탄소수 1 내지 10의 알킬기이며, R^{c2} 는 제1급 아미노기를 갖는 탄소수 1 내지 10의 탄화수소기이다.)

[0236] 상기 일반식 (C-1) 중의 R^{c1} 이 나타내는 탄소수 1 내지 10의 알킬기로서는, 예를 들어 메틸기, 에틸기, 프로필기, 부틸기, 펜틸기, 헥실기, 헵틸기, 옥틸기, 데실기, 도데실기 등을 들 수 있다. 탄소수 1 내지 10의 알킬기는 직쇄상 또는 분지쇄상 중 어느 것이어도 된다. 이들 중에서도, 메틸기, 에틸기, 프로필기가 바람직하고, 메틸기, 에틸기가 보다 바람직하다.

[0237] 상기 일반식 (C-1) 중의 R^{c2} 가 나타내는 제1급 아미노기를 갖는 탄소수 1 내지 10의 탄화수소기[이하, 「제1급 아미노기를 갖는 탄화수소기」라고 칭하는 경우가 있다.]의 탄소수는, 바람직하게는 1 내지 8, 보다 바람직하게는 2 내지 7, 더욱 바람직하게는 3 내지 6이다.

[0238] 제1급 아미노기를 갖는 탄화수소기는, 제1급 아미노기 이외에도 치환기를 갖고 있어도 되고, 갖지 않아도 된다. 제1급 아미노기를 갖는 탄화수소기가, 제1급 아미노기 이외에도 치환기를 갖는 경우, 제1급 아미노기는 해당 치환기에 결합되어 있어도 된다. 제1급 아미노기를 갖는 탄화수소기가 치환기를 갖는 경우, 상기 탄소수에는, 치환기의 탄소수도 포함하는 것으로 한다.

[0239] 제1급 아미노기를 갖는 탄화수소기로서는, 예를 들어 제1급 아미노기를 갖는 탄소수 1 내지 10의 알킬기, 제1급 아미노기를 갖는 탄소수 1 내지 10의 알케닐기, 제1급 아미노기를 갖는 탄소수 1 내지 10의 알키닐기 등을 들 수 있다. 이들 중에서도, 제1급 아미노기를 갖는 탄소수 1 내지 10의 알킬기가 바람직하다.

[0240] 또한, 여기에서의 「제1급 아미노기를 갖는」이란, 상기 알킬기, 알케닐기, 알키닐기를 구성하는 탄소 원자에 제1급 아미노기가 직접 결합되어 있는 경우뿐만 아니라, 상기 알킬기, 알케닐기, 알키닐기를 구성하는 탄소 원자가 제1급 아미노기 이외의 치환기에 의해 치환되어 있고, 당해 치환기의 일부에 제1급 아미노기가 포함되어 있는 경우도 포함한다. 또한, 이하, 제1급 아미노기를 포함하는 치환기를 「제1급 아미노기 함유기」라고 칭하는 경우가 있다.

[0241] 상기 제1급 아미노기를 갖는 탄소수 1 내지 10의 알킬기를 구성하는 알킬기로서는, 예를 들어 제1급 아미노기 또는 제1급 아미노기 함유기에 의해 치환된, 메틸기, 에틸기, 프로필기, 부틸기, 펜틸기, 헥실기, 헵틸기, 옥틸기, 데실기, 도데실기 등을 들 수 있다. 이들 중에서도, 제1급 아미노기 또는 제1급 아미노기 함유기에 의해 치환된, 메틸기, 에틸기, 프로필기가 바람직하고, 제1급 아미노기 또는 제1급 아미노기 함유기에 의해 치환된 프로필기가 더욱 바람직하다. 제1급 아미노기에 의해 치환된 프로필기로서는, 예를 들어 3-아미노프로필기를 들 수 있다.

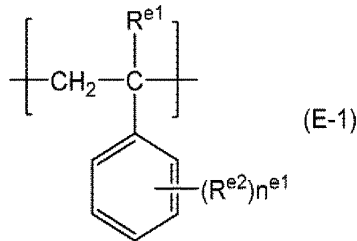
[0242] 제1급 아미노기 함유기로서는, 예를 들어 제1급 아미노기를 갖는 치환 아미노기를 바람직하게 들 수 있다. 제1급 아미노기를 갖는 치환 아미노기로서는, 예를 들어 제1급 아미노기를 갖는 탄화수소기에 의해 치환된 아미노기를 들 수 있다. 해당 제1급 아미노기를 갖는 탄화수소기로서는, 제1급 아미노기를 갖는 탄소수 1 내지 5의 알킬기가 바람직하고, 제1급 아미노기를 갖는 탄소수 2 내지 4의 알킬기가 보다 바람직하다. 제1급 아미노기를 갖는 탄화수소기에 의해 치환된 치환 아미노기로서는, 2-아미노에틸아미노기가 바람직하다. 제1급 아미노기를 갖는 탄화수소기에 의해 치환된 치환 아미노기를 갖는 탄소수 1 내지 10의 알킬기로서는, 3-(2-아미노에틸아미노)프로필기가 바람직하다.

[0243] (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물로서는, 예를 들어 3-아미노프로필트리메톡시실란, 3-아미노프로필트리메톡시실란, 3-(2-아미노에틸아미노)프로필트리메톡시실란, N-(트리메톡시실릴프로필)멜라민, N-(트리메톡시실릴프로필)멜라민 등을 들 수 있다. 이들 중에서도, 3-아미노프로필트리메톡시실란, 3-아미노프로필트리메톡시실란, 3-(2-아미노에틸아미노)프로필트리메톡시실란, 3-(2-아미노에틸아미노)프로필트리메톡시실란이 바람직하고, 3-아미노프

로필트리에톡시실란, 3-(2-아미노에틸아미노)프로필트리에톡시실란이 보다 바람직하다.

- [0244] ((C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물의 함유량)
- [0245] 본 실시 형태의 수지 조성물 중에 있어서의 (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물의 함유량은, 특별히 한정되지 않지만, 본 실시 형태의 수지 조성물 고형분 총량(100질량%)에 대하여, 바람직하게는 0.05 내지 10질량%, 보다 바람직하게는 0.1 내지 5질량%, 더욱 바람직하게는 0.3 내지 2질량%, 특히 바람직하게는 0.5 내지 1질량%이다.
- [0246] 또한, 본 실시 형태의 수지 조성물 중에 있어서의 (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물의 함유량은, 특별히 한정되지 않지만, (D) 무기 충전재 100질량부에 대하여, 바람직하게는 0.1 내지 15질량부, 보다 바람직하게는 0.3 내지 10질량부, 더욱 바람직하게는 0.6 내지 5질량부, 특히 바람직하게는 0.8 내지 2질량부이다.
- [0247] (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물의 함유량이 상기 하한값 이상이면, 구리박 박리 강도 및 경화성이 보다 양호해지기 쉬운 경향이 있다. 또한, (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물의 함유량이 상기 상한값 이하이면, 유전 특성이 보다 양호해지기 쉬운 경향이 있다.
- [0248] 또한, 본 실시 형태의 수지 조성물에 있어서, (C) 성분은 다른 성분과 반응한 형태로 존재하는 경우가 있다. 그 경우, 본 실시 형태의 수지 조성물 중에 있어서의 (C) 성분의 함유량이란, 해당 반응한 (C) 성분의 양도 포함하는 것으로 한다. 즉, 본 실시 형태의 수지 조성물에 배합한 (C) 성분의 총량을, 본 실시 형태의 수지 조성물 중에 있어서의 (C) 성분의 함유량이라고 간주한다.
- [0249] <(D) 무기 충전재>
- [0250] 본 실시 형태의 수지 조성물은, (D) 무기 충전재를 함유함으로써, 보다 우수한 저열 팽창성, 내열성 및 난연성이 얻어지기 쉬운 경향이 있다.
- [0251] (D) 무기 충전재는 1종을 단독으로 사용해도, 2종 이상을 조합하여 사용해도 된다.
- [0252] (D) 무기 충전재로서는, 예를 들어 실리카, 알루미늄, 산화티타늄, 마이카, 베릴리아, 티타늄산바륨, 티타늄산칼륨, 티타늄산스트론튬, 티타늄산칼슘, 탄산알루미늄, 수산화마그네슘, 수산화알루미늄, 규산알루미늄, 탄산칼슘, 규산칼슘, 규산마그네슘, 질화규소, 질화붕소, 클레이, 탈크, 붕산알루미늄, 탄화규소 등을 들 수 있다. 이들 중에서도, 저열 팽창성, 내열성 및 난연성의 관점에서, 실리카, 알루미늄, 마이카, 탈크가 바람직하고, 실리카, 알루미늄이 보다 바람직하다.
- [0253] 실리카로서는, 예를 들어 습식법으로 제조되어 함유율이 높은 침강 실리카, 건식법으로 제조되어 결합수 등을 거의 포함하지 않는 건식법 실리카 등을 들 수 있다. 건식법 실리카로서는, 추가로 제조법의 차이에 의해, 예를 들어 파쇄 실리카, 폼드 실리카, 용융 실리카 등을 들 수 있다.
- [0254] (D) 무기 충전재의 평균 입자경은 특별히 한정되지 않지만, (D) 무기 충전재의 분산성 및 미세 배선성의 관점에서, 바람직하게는 0.01 내지 20 μm , 보다 바람직하게는 0.1 내지 10 μm , 더욱 바람직하게는 0.2 내지 1 μm , 특히 바람직하게는 0.3 내지 0.8 μm 이다.
- [0255] 또한, 본 명세서에 있어서, (D) 무기 충전재의 평균 입자경은, 입자의 전체 체적을 100%로 하여 입자경에 의한 누적 도수 분포 곡선을 구했을 때, 체적 50%에 상당하는 점의 입자경이다. (D) 무기 충전재의 평균 입자경은, 예를 들어 레이저 회절 산란법을 사용한 입도 분포 측정 장치 등으로 측정할 수 있다.
- [0256] (D) 무기 충전재의 형상으로서, 예를 들어 구상, 파쇄상 등을 들 수 있고, 구상인 것이 바람직하다.
- [0257] ((D) 무기 충전재의 함유량)
- [0258] 본 실시 형태의 수지 조성물에 있어서, (D) 무기 충전재의 함유량은 특별히 한정되지 않지만, 수지 조성물의 고형분 총량(100질량%)에 대하여, 바람직하게는 20 내지 90질량%, 보다 바람직하게는 40 내지 80질량%, 더욱 바람직하게는 50 내지 75질량%, 특히 바람직하게는 55 내지 70질량%이다.
- [0259] (D) 무기 충전재의 함유량이 상기 하한값 이상이면, 저열 팽창성, 내열성 및 난연성이 보다 양호해지기 쉬운 경향이 있다. 또한, (D) 무기 충전재의 함유량이 상기 상한값 이하이면, 성형성 및 도체 접착성이 보다 양호하게 하기 쉬운 경향이 있다.
- [0260] <(E) 스티렌계 엘라스토머>

- [0261] 본 실시 형태의 수지 조성물은, 추가로, (E) 스티렌계 엘라스토머를 함유하는 것이 바람직하다.
- [0262] 본 실시 형태의 수지 조성물은, (E) 스티렌계 엘라스토머를 함유함으로써, 보다 우수한 유전 특성이 얻어지기 쉬운 경향이 있다.
- [0263] 또한, 여기에서의 「엘라스토머」란, JIS K6240: 2011을 따라서 시차 주사 열량 측정으로 측정한 유리 전이 온도가 25℃ 이하인 고분자를 의미한다.
- [0264] (E) 스티렌계 엘라스토머는 1종을 단독으로 사용해도, 2종 이상을 조합하여 사용해도 된다.
- [0265] (E) 스티렌계 엘라스토머로서는, 하기 일반식 (E-1)로 표시되는 스티렌계 화합물 유래의 구조 단위를 갖는 것이 바람직하다.



- [0266]
- [0267] (식 중, R^{e1} 은 수소 원자 또는 탄소수 1 내지 5의 알킬기이며, R^{e2} 는 탄소수 1 내지 5의 알킬기이다. n^{e1} 은 0 내지 5의 정수이다.)
- [0268] 상기 일반식 (E-1) 중의 R^{e1} 및 R^{e2} 가 나타내는 탄소수 1 내지 5의 알킬기로서는, 예를 들어 메틸기, 에틸기, n-프로필기, 이소프로필기, n-부틸기, 이소부틸기, t-부틸기, n-펜틸기 등을 들 수 있다. 탄소수 1 내지 5의 알킬기는 직쇄상 또는 분지쇄상 중 어느 것이어도 된다. 이들 중에서도, 탄소수 1 내지 3의 알킬기가 바람직하고, 탄소수 1 또는 2의 알킬기가 보다 바람직하고, 메틸기가 더욱 바람직하다.
- [0269] 상기 일반식 (E-1) 중의 n^{e1} 은 0 내지 5의 정수이며, 바람직하게는 0 내지 2의 정수, 보다 바람직하게는 0 또는 1, 더욱 바람직하게는 0이다.
- [0270] (E) 스티렌계 엘라스토머는 스티렌계 화합물 유래의 구조 단위 이외의 구조 단위를 함유하고 있어도 된다.
- [0271] (E) 스티렌계 엘라스토머가 갖는 스티렌계 화합물 유래의 구조 단위 이외의 구조 단위로서는, 예를 들어 부타디엔 유래의 구조 단위, 이소프렌 유래의 구조 단위, 말레산 유래의 구조 단위, 무수말레산 유래의 구조 단위 등을 들 수 있다.
- [0272] 상기 부타디엔 유래의 구조 단위 및 상기 이소프렌 유래의 구조 단위는, 수소 첨가되어 있어도 된다. 수소 첨가되어 있는 경우, 부타디엔 유래의 구조 단위는 에틸렌 단위와 부틸렌 단위가 혼합된 구조 단위가 되고, 이소프렌 유래의 구조 단위는 에틸렌 단위와 프로필렌 단위가 혼합된 구조 단위가 된다.
- [0273] (E) 스티렌계 엘라스토머로서는, 예를 들어 스티렌-부타디엔-스티렌 블록 공중합체의 수소 첨가물, 스티렌-이소프렌-스티렌 블록 공중합체의 수소 첨가물, 스티렌-무수말레산 공중합체 등을 들 수 있다.
- [0274] 스티렌-부타디엔-스티렌 블록 공중합체의 수소 첨가물은, 부타디엔 블록 중 탄소-탄소 이중 결합을 완전 수소 첨가하여 이루어지는 SEBS와, 부타디엔 블록 중 1,2-결합 부위의 탄소-탄소 이중 결합을 부분 수소 첨가하여 이루어지는 SBBS를 들 수 있다. 또한, SEBS에 있어서의 완전 수소 첨가란, 통상 전체의 탄소-탄소 이중 결합의 수소 첨가율이 90% 이상이며, 95% 이상이어도 되고, 99% 이상이어도 되고, 100%여도 된다. 또한, SBBS에 있어서의 부분 수소 첨가율은, 예를 들어 전체의 탄소-탄소 이중 결합에 대하여 60 내지 85%이다. 스티렌-이소프렌-스티렌 블록 공중합체의 수소 첨가물은, 폴리이소프렌부가 수소 첨가되어, SEPS로서 얻어진다.
- [0275] 이들 중에서도, 유전 특성, 도체 접착성, 내열성, 유리 전이 온도 및 저열 팽창성의 관점에서, SEBS, SEPS가 바람직하고, SEBS가 보다 바람직하다.
- [0276] 상기 SEBS에 있어서, 스티렌 유래의 구조 단위의 함유율[이하, 「스티렌 함유율」이라고 칭하는 경우가 있다.]은, 특별히 한정되지 않지만, 바람직하게는 5 내지 60질량%, 보다 바람직하게는 7 내지 40질량%, 더욱 바람직

하계는 10 내지 20질량%이다.

- [0277] SEBS의 멜트 플로 레이트(MFR)는 특별히 한정되지 않지만, 230℃, 하중 2.16kgf(21.2N)의 측정 조건에서는, 바람직하게는 0.1 내지 20g/10min, 보다 바람직하게는 1 내지 10g/10min, 더욱 바람직하게는 3 내지 7g/10min이다.
- [0278] SEBS의 시판품으로서, 예를 들어 아사히 가세이 가부시카가이샤제의 터프테크(등록 상표) H 시리즈, M 시리즈, 가부시카가이샤 쿠라레제의 썬톤(등록 상표) 시리즈, 크레이톤 폴리머 재팬 가부시카가이샤제의 크레이톤(등록 상표) G 폴리머 시리즈 등을 들 수 있다.
- [0279] (E) 스티렌계 엘라스토머의 중량 평균 분자량(Mw)은 특별히 한정되지 않지만, 바람직하게는 10,000 내지 500,000, 보다 바람직하게는 20,000 내지 350,000, 더욱 바람직하게는 40,000 내지 200,000, 특히 바람직하게는 60,000 내지 90,000이다.
- [0280] ((E) 스티렌계 엘라스토머의 함유량)
- [0281] 본 실시 형태의 수지 조성물이 (E) 스티렌계 엘라스토머를 함유하는 경우, (E) 스티렌계 엘라스토머의 함유량은 특별히 한정되지 않지만, 본 실시 형태의 수지 조성물 중의 수지 성분의 총량(100질량%)에 대하여, 바람직하게는 1 내지 30질량%, 보다 바람직하게는 4 내지 20질량%, 더욱 바람직하게는 7 내지 15질량%이다.
- [0282] (E) 스티렌계 엘라스토머의 함유량이 상기 하한값 이상이면, 유전 특성 및 유연성이 보다 양호해지기 쉬운 경향이 있다. 추가로, (E) 스티렌계 엘라스토머의 함유량이 상기 상한값 이하이면, 내열성 및 난연성이 보다 양호해지기 쉬운 경향이 있다.
- [0283] <(F) 경화 촉진제>
- [0284] 본 실시 형태의 수지 조성물은, 수지 조성물의 경화 반응을 촉진시킨다는 관점에서, 추가로 (F) 경화 촉진제를 함유하는 것이 바람직하다.
- [0285] (F) 경화 촉진제는 1종을 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 조합하여 사용해도 된다.
- [0286] (F) 경화 촉진제로서는, 예를 들어 아민계 경화 촉진제, 이미다졸계 경화 촉진제, 인계 경화 촉진제, 유기 금속염, 산성 촉매, 유기 과산화물 등을 들 수 있다. 또한, 본 실시 형태에 있어서, 이미다졸계 경화 촉진제는 아민계 경화 촉진제로 분류하지 않는 것으로 한다.
- [0287] 아민계 경화 촉진제로서는, 예를 들어 트리에틸아민, 피리딘, 트리부틸아민, 디시안디아미드 등의 제1급 내지 제3급 아민을 갖는 아민 화합물; 제4급 암모늄 화합물 등을 들 수 있다.
- [0288] 이미다졸계 경화 촉진제로서는, 예를 들어 메틸이미다졸, 페닐이미다졸, 2-운데실이미다졸 등의 이미다졸 화합물; 헥사메틸렌다이소시아네이트 수지와 2-에틸-4-메틸이미다졸의 부가 반응물 등의 이소시아네이트 마스크 이미다졸 등을 들 수 있다.
- [0289] 인계 경화 촉진제로서는, 예를 들어 트리페닐포스핀 등의 제3급 포스핀; p-벤조퀴논의 트리-n-부틸포스핀 부가 반응물 등의 제4급 포스포늄 화합물 등을 들 수 있다.
- [0290] 유기 금속염으로서, 예를 들어 망간, 코발트, 아연 등의 카르복실산염 등을 들 수 있다.
- [0291] 산성 촉매로서는, 예를 들어 p-톨루엔술포산 등을 들 수 있다.
- [0292] 유기 과산화물로서는, 예를 들어 디쿠밀퍼옥사이드, 2,5-디메틸-2,5-비스(t-부틸퍼옥시)헥산-3,2,5-디메틸-2,5-비스(t-부틸퍼옥시)헥산, t-부틸퍼옥시이소프로필모노카르보네이트, α, α'-디(t-부틸퍼옥시)디이소프로필벤젠 등을 들 수 있다.
- [0293] 이들 중에서도, 유전 특성, 내열성, 도체와의 접착성 및 탄성률의 관점에서, 아민계 경화 촉진제, 이미다졸계 경화 촉진제, 인계 경화 촉진제가 바람직하고, 디시안디아미드, 이미다졸계 경화 촉진제, 제4급 포스포늄 화합물이 보다 바람직하고, 이들을 병용하는 것이 더욱 바람직하다.
- [0294] 본 실시 형태의 수지 조성물이 (F) 경화 촉진제를 함유하는 경우, 그 함유량은, (A) 열경화성 수지 100질량부에 대하여, 바람직하게는 0.01 내지 10질량부, 보다 바람직하게는 0.1 내지 5질량부, 더욱 바람직하게는 1 내지 3질량부이다.
- [0295] (F) 경화 촉진제의 함유량이 상기 하한값 이상이면, 충분한 경화 촉진 효과가 얻어지기 쉬운 경향이 있다. 또

한, (F) 경화 촉진제의 함유량이 상기 상한값 이하이면, 보존 안정성이 보다 양호해지기 쉬운 경향이 있다.

[0296] <기타 성분>

[0297] 본 실시 형태의 수지 조성물은 추가로 필요에 따라서, 상기 각 성분 이외의 수지 재료, 난연제, 산화 방지제, 열 안정제, 대전 방지제, 자외선 흡수제, 안료, 착색제, 활제, 유기 용매 및 이들 이외의 첨가제로 이루어지는 군에서 선택되는 1종 이상의 임의 성분을 함유하고 있어도 된다.

[0298] 상기 임의 성분은 각각에 대해서, 1종을 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상을 조합하여 사용해도 된다.

[0299] 본 실시 형태의 수지 조성물 중에 있어서의 상기 임의 성분의 함유량은, 특별히 한정되지 않고, 필요에 따라서 본 실시 형태의 효과를 저해하지 않는 범위에서 사용하면 된다.

[0300] 또한, 본 실시 형태의 수지 조성물은, 원하는 성능에 따라서, 상기 임의 성분을 함유하지 않는 것이어도 된다.

[0301] <수지 조성물의 제조 방법>

[0302] 본 실시 형태의 수지 조성물은 상기 각 성분을 혼합함으로써 제조할 수 있다.

[0303] 각 성분을 혼합할 때에는, 각 성분은 교반하면서 용해 또는 분산시켜도 된다. 또한, 원료를 혼합하는 순서, 혼합 온도, 혼합 시간 등의 조건은, 특별히 한정되지 않고, 원료의 종류 등에 따라서 임의로 설정하면 된다.

[0304] <겔 타임>

[0305] 본 실시 형태의 수지 조성물 180℃에서의 겔 타임은, 특별히 한정되지 않지만, 바람직하게는 150 내지 350초, 보다 바람직하게는 200 내지 300초, 더욱 바람직하게는 220 내지 270초이다.

[0306] 겔 타임이 상기 하한값 이상이면, 본 실시 형태의 수지 조성물을 수지 필름 또는 프리프레그의 형태로 적층 프레스할 때에 과잉으로 흐르는 것을 억제하기 쉬운 경향이 있다. 또한, 겔 타임이 상기 상한값 이하이면, 보존 안정성 및 매립성이 보다 양호해지기 쉬운 경향이 있다.

[0307] 또한, 겔 타임은 실시예에 기재된 방법에 의해 측정할 수 있다.

[0308] [프리프레그]

[0309] 본 실시 형태의 프리프레그는, 본 실시 형태의 수지 조성물 또는 상기 수지 조성물의 반경화물을 함유하는 프리프레그이다.

[0310] 즉, 본 실시 형태의 프리프레그는, 본 실시 형태의 수지 조성물을 사용하여 형성된 프리프레그이다.

[0311] 본 실시 형태의 프리프레그는, 본 실시 형태의 수지 조성물을 B 스테이지화하여 이루어지는 B 스테이지화 수지 조성물과, 시트상 섬유 기재를 함유하는 것이 바람직하다.

[0312] 본 실시 형태의 프리프레그는, 예를 들어 본 실시 형태의 수지 조성물을 시트상 섬유 기재에 함침 또는 도공한 후, B 스테이지화함으로써 제조할 수 있다. 또한, 본 명세서에 있어서 B 스테이지화란, JIS K6900: 1994에서 정의되는 B 스테이지의 상태로 하는 것이며, 반경화라고도 칭해진다.

[0313] 본 실시 형태의 프리프레그가 함유하는 시트상 섬유 기재로서는, 예를 들어 각종 전기 절연 재료용 적층판에 사용되고 있는 공지된 시트상 섬유 기재를 사용할 수 있다.

[0314] 시트상 섬유 기재의 재질로서는, 예를 들어 E 유리, D 유리, S 유리, Q 유리 등의 무기물 섬유; 폴리이미드, 폴리에스테르, 테트라플루오로에틸렌 등의 유기 섬유; 이들의 혼합물 등을 들 수 있다. 이들 시트상 섬유 기재는, 예를 들어 직포, 부직포, 로우 빙크, 촛드 스트랜드 매트, 서피싱 매트 등의 형상을 갖는다.

[0315] 시트상 섬유 기재의 두께는 특별히 한정되지 않지만, 기계 강도 및 프리프레그의 박형화의 관점에서, 바람직하게는 0.01 내지 0.5mm, 보다 바람직하게는 0.02 내지 0.3mm, 더욱 바람직하게는 0.03 내지 0.1mm이다.

[0316] 시트상 섬유 기재는, 수지 조성물의 함침성, 적층판으로 했을 때의 내열성, 내습성 및 가공성의 관점에서, 커플링제 등으로 표면 처리한 것이어도 되고, 기계적으로 개선했을 것이어도 된다.

[0317] 본 실시 형태의 프리프레그는, 예를 들어 본 실시 형태의 수지 조성물을, 시트상 섬유 기재에 함침 또는 도포하고 나서, 필요에 따라서 건조시킴으로써 제조할 수 있다.

[0318] 본 실시 형태의 수지 조성물을 시트상 섬유 기재에 함침 또는 도포하는 방법로서는, 예를 들어 핫 멜트법, 솔

벤트법 등을 채용할 수 있다.

- [0319] 핫 멜트법은, 유기 용매를 함유하지 않는 수지 조성물을, 시트상 섬유 기재에 함침 또는 도포하는 방법이다.
- [0320] 핫 멜트법의 일 양태로서는, 유기 용매를 함유하지 않는 본 실시 형태의 수지 조성물을, 박리성이 양호한 도공지에 일단 코팅하고 나서, 해당 코팅한 수지 조성물을 시트상 섬유 기재에 라미네이트하는 방법을 들 수 있다.
- [0321] 핫 멜트법의 다른 양태로서는, 유기 용매를 함유하지 않는 본 실시 형태의 수지 조성물을 다이 코터 등에 의해 시트상 섬유 기재에 직접 도포하는 방법을 들 수 있다.
- [0322] 솔벤트법은, 유기 용매를 함유하는 수지 조성물을, 시트상 섬유 기재에 함침 또는 도포하는 방법이다. 구체적으로는, 예를 들어 유기 용매를 함유하는 본 실시 형태의 수지 조성물에 시트상 섬유 기재를 침지시킨 후, 건조시키는 방법을 들 수 있다. 건조시킴으로써, 수지 조성물 중의 유기 용매를 제거함과 함께, 수지 조성물을 B 스테이지화시킬 수 있다.
- [0323] 건조 온도는 특별히 한정되지 않지만, 생산성 및 본 실시 형태의 수지 조성물을 적절하게 B 스테이지화시킨다는 관점에서, 바람직하게는 50 내지 200℃, 보다 바람직하게는 100 내지 190℃, 더욱 바람직하게는 150 내지 180℃이다.
- [0324] 건조 시간은 특별히 한정되지 않지만, 생산성 및 본 실시 형태의 수지 조성물을 적절하게 B 스테이지화시킨다는 관점에서, 바람직하게는 1 내지 30분간, 보다 바람직하게는 2 내지 15분간, 더욱 바람직하게는 3 내지 10분간이다.
- [0325] 본 실시 형태의 프리프레그 중의 수지 조성물 유래의 고형분 농도는, 특별히 한정되지 않지만, 적층판으로 했을 때, 보다 양호한 성형성이 얻어지기 쉽다는 관점에서, 바람직하게는 20 내지 90질량%, 보다 바람직하게는 25 내지 80질량%, 더욱 바람직하게는 30 내지 75질량%이다.
- [0326] 본 실시 형태의 프리프레그 두께는 특별히 한정되지 않지만, 성형성 및 고밀도 배선화의 관점에서, 바람직하게는 0.01 내지 0.5mm, 보다 바람직하게는 0.02 내지 0.3mm, 더욱 바람직하게는 0.03 내지 0.1mm이다.
- [0327] [수지 필름]
- [0328] 본 실시 형태의 수지 필름은, 본 실시 형태의 수지 조성물 또는 상기 수지 조성물의 반경화물을 함유하는 수지 필름이다.
- [0329] 즉, 본 실시 형태의 수지 필름은, 본 실시 형태의 수지 조성물을 사용하여 형성된 수지 필름이다.
- [0330] 본 실시 형태의 수지 필름은, 본 실시 형태의 수지 조성물을 B 스테이지화하여 이루어지는 B 스테이지화 수지 조성물을 필름상으로 한 것인 것이 바람직하다.
- [0331] 본 실시 형태의 수지 필름은, 예를 들어 유기 용매를 함유하는 본 실시 형태의 수지 조성물, 즉 수지 바니시를 지지체에 도포하고 나서, 가열 건조시킴으로써 제조할 수 있다.
- [0332] 지지체로서는, 예를 들어 플라스틱 필름, 금속박, 이형지 등을 들 수 있다.
- [0333] 플라스틱 필름으로서, 예를 들어 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 폴리염화비닐 등의 폴리올레핀의 필름; 폴리에틸렌테레프탈레이트[이하, 「PET」라고 칭하는 경우가 있다.], 폴리에틸렌나프탈레이트 등의 폴리에스테르 필름; 폴리카르보네이트 필름, 폴리이미드 필름 등을 들 수 있다. 이들 중에서도, 경제성 및 취급성의 관점에서, 폴리에틸렌테레프탈레이트 필름이 바람직하다.
- [0334] 금속박으로서, 예를 들어 구리박, 알루미늄박 등을 들 수 있다. 지지체에 구리박을 사용하는 경우에는, 구리박을 그대로 도체층으로 하여, 회로를 형성할 수도 있다. 이 경우, 구리박으로서, 압연 구리박, 전해 구리박 등을 사용할 수 있다. 두께가 얇은 구리박을 사용하는 경우에는, 작업성을 향상시키는 관점에서, 캐리어 구비 구리박을 사용해도 된다.
- [0335] 지지체는 매트 처리, 코로나 처리 등의 표면 처리를 실시한 것이어도 된다. 또한, 지지체는 실리콘 수지계 이형제, 알키드 수지계 이형제, 불소 수지계 이형제 등에 의한 이형 처리를 실시한 것이어도 된다.
- [0336] 지지체의 두께는 특별히 한정되지 않지만, 취급성 및 경제성의 관점에서, 바람직하게는 10 내지 150 μ m, 보다 바람직하게는 20 내지 100 μ m, 더욱 바람직하게는 25 내지 50 μ m이다.
- [0337] 수지 바니시를 도포하기 위한 도포 장치로서는, 예를 들어 콤팩트 코터, 바 코터, 키스 코터, 롤 코터, 그라비아

코터, 다이 코터 등의 당업자에게 공지된 도포 장치를 사용할 수 있다. 이들 도포 장치는 형성하는 막 두께에 따라서 적절히 선택하면 된다.

- [0338] 수지 바니시를 도포한 후의 건조 조건은, 유기 용매의 함유량, 비점 등에 따라서 적절히 결정하면 되고, 특별히 한정되지 않는다.
- [0339] 예를 들어, 40 내지 60질량%의 방향족 탄화수소계 용매를 함유하는 수지 바니시의 경우, 건조 온도는 특별히 한정되지 않지만, 생산성 및 본 실시 형태의 수지 조성물을 적절하게 B 스테이지화시킨다는 관점에서, 바람직하게는 50 내지 200℃, 보다 바람직하게는 100 내지 190℃, 더욱 바람직하게는 150 내지 180℃이다.
- [0340] 또한, 상기 수지 바니시의 경우, 건조 시간은 특별히 한정되지 않지만, 생산성 및 본 실시 형태의 수지 조성물을 적절하게 B 스테이지화시킨다는 관점에서, 바람직하게는 1 내지 30분간, 보다 바람직하게는 2 내지 15분간, 더욱 바람직하게는 3 내지 10분간이다.
- [0341] 본 실시 형태의 수지 필름의 두께는, 해당 수지 필름의 용도에 따라서 적절히 결정할 수 있지만, 성형성 및 고밀도 배선화의 관점에서, 바람직하게는 5 내지 150 μm , 보다 바람직하게는 10 내지 100 μm , 더욱 바람직하게는 15 내지 60 μm 이다.
- [0342] 본 실시 형태의 수지 필름은, 이물 등의 부착 및 흡집 발생을 방지하는 관점에서, 지지체가 마련되어 있는 면과는 반대측의 면에 보호 필름을 갖고 있어도 된다. 보호 필름은 본 실시 형태의 수지 필름을 회로 기판 등에 적층하기 전에 박리된다.
- [0343] 본 실시 형태의 수지 필름은, 프린트 배선판을 제조하는 경우에 있어서, 절연층을 형성하기 위해 사용되는 것이 바람직하다.
- [0344] 본 실시 형태의 수지 필름은, 예를 들어 프린트 배선판을 제조하는 경우, 회로 기판에 라미네이트함으로써 용융 및 유동하여, 회로 기판을 매립하는 역할을 하는 층이다.
- [0345] 또한, 본 실시 형태의 수지 필름은, 예를 들어 회로 기판에 스루홀, 비아홀 등이 존재하는 경우, 그들 층으로 유동하여, 해당 홀 내를 충전하는 역할을 한다.
- [0346] [적층판]
- [0347] 본 실시 형태의 적층판은, 본 실시 형태의 프리프레그의 경화물을 갖는 적층판이다.
- [0348] 즉, 본 실시 형태의 적층판은, 본 실시 형태의 프리프레그를 사용하여 형성된 적층판이다.
- [0349] 본 실시 형태의 적층판은, 본 실시 형태의 프리프레그의 경화물과 금속박을 함유하는 것이 바람직하다.
- [0350] 또한, 금속박을 갖는 적층판은, 금속 피복 적층판이라고 칭해지는 경우도 있다.
- [0351] 금속박의 금속으로서는, 특별히 한정되지 않고, 예를 들어 구리, 금, 은, 니켈, 백금, 몰리브덴, 루테튬, 알루미늄, 텅스텐, 철, 티타늄, 크롬, 이들 금속 원소를 1종 이상 함유하는 합금 등을 들 수 있다. 합금으로서는, 예를 들어 구리계 합금, 알루미늄계 합금, 철계 합금 등을 들 수 있다. 구리계 합금으로서는, 예를 들어 구리-니켈 합금 등을 들 수 있다. 철계 합금으로서는, 예를 들어 철-니켈 합금 등을 들 수 있다.
- [0352] 이들 중에서도, 도전성 및 입수 용이성의 관점에서, 구리, 니켈, 알루미늄, 철-니켈 합금이 바람직하고, 구리, 알루미늄이 보다 바람직하고, 구리가 더욱 바람직하다.
- [0353] 금속박의 두께는 특별히 한정되지 않지만, 바람직하게는 1 내지 200 μm , 보다 바람직하게는 2 내지 100 μm , 더욱 바람직하게는 3 내지 50 μm 이다.
- [0354] 본 실시 형태의 적층판은, 예를 들어 본 실시 형태의 프리프레그의 편면 또는 양면에 금속박을 배치하고 나서, 가열 가압 성형함으로써 제조할 수 있다.
- [0355] 통상, 이 가열 가압 성형에 의해, 반경화된 상태인 프리프레그를 경화시켜 본 실시 형태의 적층판이 얻어진다.
- [0356] 가열 가압 성형할 때, 프리프레그는 1매만을 사용해도 되고, 2매 이상의 프리프레그를 적층시켜도 된다. 또한, 프리프레그 및 금속박 이외에도, 내층 회로 가공을 실시한 기판을 포함하여 가열 가압 성형해도 된다.
- [0357] 가열 가압 성형은, 예를 들어 다단 프레스, 다단 진공 프레스, 연속 성형, 오토클레이브 성형기 등을 사용할 수 있다.

- [0358] 가열 가압 성형의 가열 온도는 특별히 한정되지 않지만, 바람직하게는 100 내지 300℃, 보다 바람직하게는 150 내지 280℃, 더욱 바람직하게는 200 내지 250℃이다.
- [0359] 가열 가압 성형의 가열 가압 시간은 특별히 한정되지 않지만, 바람직하게는 10 내지 300분간, 보다 바람직하게는 30 내지 200분간, 더욱 바람직하게는 80 내지 150분간이다.
- [0360] 가열 가압 성형의 압력은 특별히 한정되지 않지만, 바람직하게는 1.5 내지 5MPa, 보다 바람직하게는 1.7 내지 3MPa, 더욱 바람직하게는 1.8 내지 2.5MPa이다.
- [0361] 단, 이러한 조건은, 사용하는 원료의 종류 등에 따라서 적절히 조정할 수 있고, 특별히 한정되지 않는다.
- [0362] [프린트 배선판]
- [0363] 본 실시 형태의 프린트 배선판은, 본 실시 형태의 수지 조성물의 경화물을 갖는 프린트 배선판이다.
- [0364] 본 실시 형태의 프린트 배선판은, 예를 들어 본 실시 형태의 프리프레그, 본 실시 형태의 수지 필름 및 본 실시 형태의 적층판으로 이루어지는 군에서 선택되는 1종 이상을 사용하여 형성된 프린트 배선판이다. 해당 프린트 배선판은 적어도, 본 실시 형태의 프리프레그의 경화물, 본 실시 형태의 수지 필름의 경화물 또는 본 실시 형태의 적층판과 도체 회로층을 포함한다.
- [0365] 또한, 본 실시 형태의 프린트 배선판은, 다층 프린트 배선판인 것이 바람직하다.
- [0366] 이하, 본 실시 형태의 수지 필름을 사용하여 본 실시 형태의 프린트 배선판을 제조하는 방법에 대하여 설명한다.
- [0367] 본 실시 형태의 수지 필름을 사용하여 프린트 배선판을 제조할 때, 먼저, 본 실시 형태의 수지 필름을 회로 기판의 편면 또는 양면에 적층한다.
- [0368] 구체적으로는, 예를 들어 본 실시 형태의 수지 필름을 회로 기판 상에 배치한 후, 진공 라미네이터에 의해 가압 및 가열하면서 회로 기판에 라미네이트함으로써, 회로 기판 상에 본 실시 형태의 수지 필름을 적층할 수 있다.
- [0369] 프린트 배선판에 사용되는 회로 기판으로서, 예를 들어 유리 에폭시, 금속 기판, 폴리에스테르 기판, 폴리이미드 기판, BT 레진 기판, 열경화성 폴리페닐렌에테르기판 등의 편면 또는 양면에, 패턴 가공된 도체층이 형성된 것 등을 들 수 있다.
- [0370] 회로 기판의 도체층의 표면은, 접착성의 관점에서, 흑색화 처리 등에 의해 미리 조화 처리가 실시되어 있어도 된다.
- [0371] 이어서, 필요에 따라서 수지 필름의 지지체를 박리한 후, 수지 필름을 가열 경화시켜 절연층을 형성한다.
- [0372] 가열 경화시킬 때의 가열 온도는 특별히 한정되지 않지만, 바람직하게는 100 내지 300℃, 보다 바람직하게는 120 내지 280℃, 더욱 바람직하게는 150 내지 250℃이다.
- [0373] 가열 경화시킬 때의 가열 시간은 특별히 한정되지 않지만, 바람직하게는 2 내지 300분간, 보다 바람직하게는 5 내지 200분간, 더욱 바람직하게는 10 내지 150분간이다.
- [0374] 상기 방법에 의해 절연층을 형성한 후, 필요에 따라서 편칭을 행해도 된다. 편칭은, 회로 기판 및 형성된 절연층에, 예를 들어 드릴, 레이저, 플라스마, 이들의 조합 등의 방법에 의해 편칭을 행하여, 비아홀, 스루홀 등을 형성하는 공정이다. 편칭에 사용하는 레이저로서는, 예를 들어 탄산 가스 레이저, YAG 레이저, UV 레이저, 엑시머 레이저 등이 사용된다.
- [0375] 이어서, 절연층의 표면을 산화제에 의해 조화 처리해도 된다. 또한, 절연층 및 회로 기판에 비아홀, 스루홀 등이 형성되어 있는 경우에는, 이들을 형성할 때에 발생하는, 소위 「스미어」를, 공지된 산화제에 의해 제거해도 된다. 조화 처리와 스미어의 제거는 동시에 행할 수 있다. 조화 처리에 의해, 절연층의 표면에 도체층과의 접촉 강도를 향상시키기 위한 요철 앵커를 형성할 수 있다.
- [0376] 이어서, 조화 처리된 절연층의 표면에 도체층을 형성한다. 도체층은, 예를 들어 도금에 의해 형성할 수 있다.
- [0377] 도금 방법으로서, 예를 들어 무전해 도금법, 전해 도금법 등을 들 수 있다. 도금용의 금속은, 예를 들어 구리, 금, 은, 니켈, 백금, 몰리브덴, 루테튬, 알루미늄, 텅스텐, 철, 티타늄, 크롬, 이들 금속 원소 중 적어도 1종을 포함하는 합금 등을 들 수 있다. 이들 중에서도, 구리, 니켈이 바람직하고, 구리가 보다 바람직하다.

- [0378] 도체층을 패턴 가공하여, 회로 형성하는 방법으로서, 예를 들어 서브트랙티브법, 풀 애디티브법, 세미 애디티브법(SAP: Semi Additive Process), 모디파이드 세미 애디티브법(m-SAP: modified Semi Additive Process) 등의 공지된 방법을 이용할 수 있다.
- [0379] [반도체 패키지]
- [0380] 본 실시 형태의 반도체 패키지는, 본 실시 형태의 프린트 배선판을 갖는 반도체 패키지이다.
- [0381] 즉, 본 실시 형태의 반도체 패키지는, 본 실시 형태의 프린트 배선판, 바람직하게는 본 실시 형태의 다층 프린트 배선판을 사용하여 형성된 반도체 패키지이다. 본 실시 형태의 반도체 패키지는, 예를 들어 본 실시 형태의 프린트 배선판에, 공지된 방법에 의해, 반도체 칩, 메모리 등을 탑재함으로써 제조할 수 있다.
- [0382] **실시예**
- [0383] 이하, 실시예를 들어, 본 실시 형태를 구체적으로 설명한다. 단, 본 실시 형태는 이하의 실시예에 한정되는 것은 아니다.
- [0384] 또한, 각 예에 있어서, 중량 평균 분자량(Mw)은 이하의 방법에 의해 측정하였다.
- [0385] 겔 침투 크로마토그래피(GPC)에 의해, 표준 폴리스티렌을 사용한 검량선으로부터 환산하였다. 검량선은 표준 폴리스티렌: TSKstandard POLYSTYRENE(Type; A-2500, A-5000, F-1, F-2, F-4, F-10, F-20, F-40)[도소 가부시키가이샤제, 상품명]을 사용하여 3차식으로 근사하였다. GPC의 측정 조건을 이하에 나타낸다.
- [0386] 장치:
- [0387] 펌프: L-6200형[가부시키가이샤 히타치 하이테크놀로지제]
- [0388] 검출기: L-3300형 RI[가부시키가이샤 히타치 하이테크놀로지제]
- [0389] 칼럼 오븐: L-655A-52[가부시키가이샤 히타치 하이테크놀로지제]
- [0390] 칼럼: 가드 칼럼; TSK Guardcolumn HHR-L+칼럼; TSKgel G4000HHR+TSKgel G2000HHR(모두 도소 가부시키가이샤제, 상품명)
- [0391] 칼럼 사이즈: 6.0×40mm(가드 칼럼), 7.8×300mm(칼럼)
- [0392] 용리액: 테트라히드로푸란
- [0393] 시료 농도: 30mg/5mL
- [0394] 주입량: 20 μ L
- [0395] 유량: 1.00mL/분
- [0396] 측정 온도: 40℃
- [0397] [제조예 1: 아미노말레이미드 수지의 제조]
- [0398] 온도계, 교반 장치, 환류 냉각관 구비 수분 정량기가 붙은 가열 및 냉각 가능한 용적 5리터의 반응 용기에, 2,2-비스[4-(4-말레이미드페녹시)페닐]프로판 100질량부와, 양쪽 말단에 제1급 아미노기를 갖는 실리콘 화합물(제1급 아미노기 당량 750g/mol) 5.6질량부와, 3,3'-디에틸-4,4'-디아미노디페닐메탄 7.9질량부와, 프로필렌글리콜모노메틸에테르 171질량부를 투입하고, 환류시키면서 2시간 반응시켰다. 이것을 환류 온도에서 3시간에 걸쳐 농축하고, 고형분 농도가 65질량%인 아미노말레이미드 수지의 용액을 제조하였다. 얻어진 아미노말레이미드 수지의 중량 평균 분자량(Mw)은 약 2,700이었다.
- [0399] 실시예 1 내지 3, 비교예 1 내지 4
- [0400] (수지 조성물의 제조)
- [0401] 표 1에 기재된 각 성분을 표 1에 기재된 배합 조성을 따라서 배합하고, 톨루엔 및 메틸이소부틸케톤과 함께, 실온(25℃)에서 교반 및 혼합하여, 고형분 농도 55 내지 65질량%의 수지 조성물을 제조하였다. 또한, 표 1 중, 각 성분의 배합량의 단위는 질량부이며, 용액의 경우에는, 고형분 환산의 질량부를 의미한다. 또한, 표 1 중의 (C) 성분 및 비교용 성분의 배합량은, 각 예에 있어서의 (C) 성분 및 비교용 성분의 첨가량이, 동일한 몰수가 되는 양으로 하였다.

- [0402] (프리프레그 및 양면 동장 적층판의 제조)
- [0403] 상기에서 얻은 수지 조성물을, 두께 0.08mm의 유리 클로스(E 유리, 닛토 보세키 가부시키가이샤제)에 도공한 후, 150℃에서 5분간 가열 건조시켜, 수지 조성물 유래의 고형분 함유량이 약 47질량%인 프리프레그를 제작하였다. 이 프리프레그의 상하에, 두께 18 μ m의 로 프로파일 구리박(CIRCUIT FOIL사제, 상품명 「BF-ANP18」, M면의 Rz: 1.5 μ m,)을, M면이 프리프레그에 접하도록 배치하고, 온도 230℃, 압력 3.0MPa, 시간 90분간의 조건에서 가열 가압 성형하여, 양면 동장 적층판(두께: 0.10mm)을 제조하였다.
- [0404] [평가 방법]
- [0405] 각 예에서 얻어진 수지 조성물 및 양면 동장 적층판을 사용하여, 하기 방법에 따라서 각 평가를 행하였다. 결과를 표 1에 나타낸다.
- [0406] (구리박 박리 강도의 측정)
- [0407] 각 예에서 얻은 양면 동장 적층판의 구리박을 에칭에 의해 5mm 폭의 직선 라인상으로 가공한 것을 시험편으로 하였다. 형성한 직선 라인상의 구리박을 소형 탁상 시험기(가부시키가이샤 시마즈 세이사쿠쇼제, 상품명 「EZ-TEST」)에 설치하고, JIS C6481: 1996에 준거하여, 실온(25℃)에서 90° 방향으로 박리함으로써 구리박 박리 강도를 측정하였다. 또한, 구리박을 박리할 때의 인장 속도는 50mm/min으로 하였다.
- [0408] (겔 타임의 측정)
- [0409] 각 예에서 얻은 수지 조성물을, 두께 38 μ m의 PET 필름(데이진 가부시키가이샤제, 상품명: G2-38)에 도포한 후, 170℃에서 5분간 가열 건조시켜, B 스테이지 상태의 수지 필름을 제작하였다. 이 수지 필름을 PET 필름으로부터 박리한 후, 분쇄하여 B 스테이지 상태의 수지 분말로 하였다. 얻어진 수지 분말 0.1g을 측정 시료로 하고, 180℃의 열반 상에서, 수지가 경화될 때까지의 시간(겔 타임)을 측정하였다. 측정에는 닛신 가가쿠 가부시키가이샤제의 겔화 시험기 「GT-D-JIS」를 사용하였다.
- [0410] (비유전율 및 유전 정접의 측정)
- [0411] 각 예에서 얻은 양면 동장 적층판의 외층 구리박을, 구리 에칭액(과황산암모늄의 10질량% 용액, 미쓰비시 가스 가가쿠 가부시키가이샤제)에 침지시킴으로써 제거하고, 길이 90mm, 폭 70mm로 잘라낸 것을 시험편으로 하였다. 해당 시험편을 사용하여, SPDR(Split post dielectric resonators)법에 의해, 주파수 10GHz, 측정 온도 25℃의 조건 하에 있어서의 비유전율 및 유전 정접을 측정하였다. 측정기에는 키사이트 테크놀로지사의 네트워크 애널라이저 「E5071C」, 비유전율 측정 지그에는 QWED사의 「SPDR-10GHz」, 측정 프로그램에는 키사이트 테크놀로지사의 재료 측정 소프트웨어 「85071E」를 각각 사용하였다.

표 1

		실시에			비교예			
		1	2	3	1	2	3	4
배합 조성	(A) 성분	말레이미드계 수지		80	80	80	80	80
	(B) 성분	폴리페닐렌에테르계 수지		10	10	10	10	10
	(C) 성분	3-(2-아미노에틸아미노)프로필트리에톡시실란		1.8				
		N-(트리에톡시실틸프로필)멜라민			2.3			
		3-아미노프로필트리에톡시실란				1.5		
	비교용 성분	3-아닐리노프로필트리에톡시실란					1.8	
		벤조트리아졸기 함유 실란 커플링제						1.8
		멜라민						0.9
	(D) 성분	실리카		155	155	155	155	155
	(E) 성분	SEBS		10	10	10	10	10
평가 결과	(F) 성분	p-벤조퀴논의 트리-n-부틸포스핀 부가 반응물		0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
		2-운데실이미다졸		0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
		디시안디아미드		0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
평가 결과	구리박 박리 강도 (KN/m)		0.60	0.57	0.58	0.45	0.44	0.48
	겔 타임 (sec)		244	240	255	306	293	245
	비유전율(Dk)(10GHz)		3.6	3.6	3.6	3.6	3.6	3.6
	유전 정접(Df)(10GHz)		0.0030	0.0030	0.0030	0.0030	0.0030	0.0030

[0412]

[0413] 또한, 표 1에 있어서의 각 재료의 약호 등은, 이하와 같다.

[0414] [(A) 성분: 열경화성 수지]

[0415] · 말레이미드계 수지: 제조예 1에서 얻은 아미노말레이미드 수지

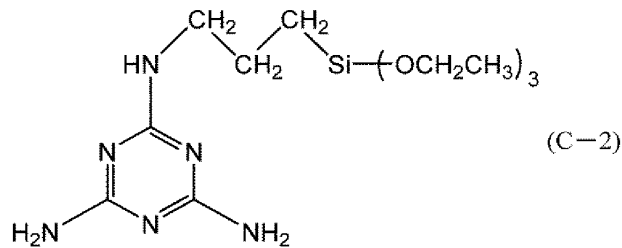
[0416] [(B) 성분: 폴리페닐렌에테르계 수지]

[0417] · 폴리페닐렌에테르계 수지: 양쪽 말단에 메타크릴로일기를 갖는 폴리페닐렌에테르(상기 일반식 (B-4)에 포함되는 화합물, 중량 평균 분자량(Mw) 1,700)

[0418] [(C) 성분: 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물]

[0419] · 3-(2-아미노에틸아미노)프로필트리에톡시실란

[0420] · N-(트리에톡시실릴프로필)멜라민: 하기 식 (C-2)로 표시되는 화합물



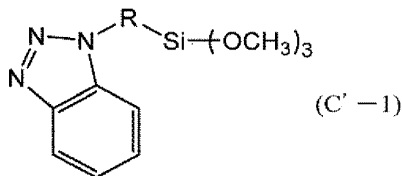
[0421]

[0422] · 3-아미노프로필트리에톡시실란

[0423] [비교용 성분]

[0424] · 3-아닐리노프로필트리에톡시실란

[0425] · 벤조트리아졸기 함유 실란 커플링제: 하기 일반식 (C'-1)로 표시되는 화합물, 신에쓰 가가꾸 고교 가부시기가 이사제, 상품명 「X-12-1214A」



[0426]

[0427] (식 중, R은 2가의 결합기를 나타낸다.)

[0428] · 멜라민

[0429] [(D) 성분: 무기 충전제]

[0430] · 실리카: 평균 입자경 0.5 μ m의 구상 용융 실리카

[0431] [(E) 성분: 스티렌계 엘라스토머]

[0432] · SEBS: 무수말레산 변성 수소 첨가 스티렌계 엘라스토머(SEBS), 산가 10mg CH₃ONa/g, 스티렌 함유율 30%, MFR 5.0g/10min(MFR의 측정 조건: ISO1133에 준거하여, 230℃, 하중 2.16kg에서 측정.)

[0433] [(F) 성분: 경화 촉진제]

[0434] · p-벤조퀴논의 트리-n-부틸포스핀 부가 반응물

[0435] · 2-운데실이미다졸

[0436] · 디시안디아미드

[0437] 표 1에 나타난 결과로부터, 본 실시 형태의 실시예 1 내지 3의 수지 조성물은, (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물을 배합하지 않은 비교예 1 내지 4의 수지 조성물보다도, 구리박 박리 강도가 우수한 것을 알 수 있다. 또한, 겔 타임의 결과로부터, 본 실시 형태의 실시예 1 내지 3의 수지 조성물은, (C) 제1급 아미노기를 갖는 알콕시실란 화합물 및 비교용 성분을 배합하지 않은 비교예 1의 수지 조성물보다도 경화성이 우수한 것을 알 수 있다.

산업상 이용가능성

[0438] 본 실시 형태의 수지 조성물은, 구리박 박리 강도 및 경화성이 우수한 것이기 때문에, 해당 수지 조성물을 사용하여 얻어지는 프리프레그, 적층판, 프린트 배선판, 반도체 패키지 등은, 고주파 신호를 취급하는 전자 부품 용도에 적합하다.