(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2024-0087832
(43) 공개일자 2024년06월19일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C08L 63/00 (2006.01) *B32B 15/08* (2006.01)
B32B 15/092 (2006.01) *C08G 59/40* (2006.01)
C08G 59/42 (2006.01) *C08G 59/62* (2006.01)
C08K 3/013 (2018.01) *C08L 101/00* (2006.01)
H01L 23/29 (2006.01) *H05K 1/03* (2006.01)
(52) CPC특허분류
C08L 63/00 (2013.01)
B32B 15/08 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2024-7011930
(22) 출원일자(국제) 2022년10월07일
심사청구일자 없음
(85) 번역문제출일자 2024년04월09일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2022/037690
(87) 국제공개번호 WO 2023/063266
국제공개일자 2023년04월20일
(30) 우선권주장
JP-P-2021-169102 2021년10월14일 일본(JP)

(71) 출원인
아지노모토 가부시키가이샤
일본국 도쿄도 쥬오구 교바시 1쵸메15반1고
(72) 발명자
니시무라 요시오
일본 카나가와켄 2108681 카와사키시 카와사키쿠 스즈키초 1-1 아지노모토 가부시키가이샤 내
나가오카 지로우
일본 카나가와켄 2108681 카와사키시 카와사키쿠 스즈키초 1-1 아지노모토 가부시키가이샤 내
(74) 대리인
장훈

전체 청구항 수 : 총 16 항

(54) 발명의 명칭 **수지 조성물**

(57) 요 약

(A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지, (B) 에폭시 수지, (C) 활성 에스테르 화합물, 및 (D) 무기 충전재를 포함하는 수지 조성물로서, (C) 활성 에스테르 화합물의 양이, 수지 조성물의 불휘발 성분 100질량%에 대해 10질량% 이상이고, (D) 무기 충전재의 양이, 수지 조성물의 불휘발 성분 100질량%에 대해 60질량% 이상이고, 또는, 수지 조성물의 불휘발 성분 100체적%에 대해 45체적% 이상인, 수지 조성물.

(52) CPC특허분류
B32B 15/092 (2013.01)
C08G 59/4042 (2013.01)
C08G 59/42 (2013.01)
C08G 59/621 (2013.01)
C08K 3/013 (2018.01)
C08L 101/00 (2013.01)
C08L 79/085 (2013.01)
H01L 23/295 (2013.01)
H05K 1/0353 (2013.01)

명 세 서

청구범위

청구항 1

(A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지, (B) 에폭시 수지, (C) 활성 에스테르 화합물, 및 (D) 무기 충전재를 포함하는 수지 조성물로서,

(C) 활성 에스테르 화합물의 양이, 수지 조성물의 불휘발 성분 100질량%에 대해 10질량% 이상이고,

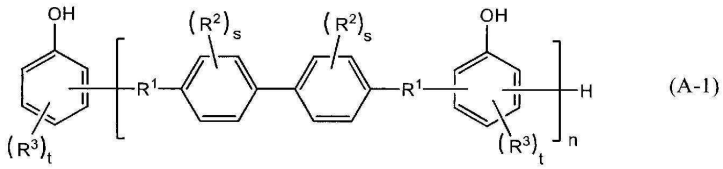
(D) 무기 충전재의 양이, 수지 조성물의 불휘발 성분 100질량%에 대해 60질량% 이상이고, 또는, 수지 조성물의 불휘발 성분 100체적%에 대해 45체적% 이상인, 수지 조성물.

청구항 2

제1항에 있어서, (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지의 양이, 수지 조성물의 불휘발 성분 100질량%에 대해, 0.01질량% 이상 5질량% 이하인, 수지 조성물.

청구항 3

제1항에 있어서, (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지가, 하기 식 (A-1)로 표시되는, 수지 조성물.



(A-1)

(식 (A-1)에서,

R^1은, 각각 독립적으로, 알킬렌기를 나타내고,

R^2는, 각각 독립적으로, 1가의 탄화수소기를 나타내고,

R^3은, 각각 독립적으로, 1가의 탄화수소기를 나타내고,

n은, 1 내지 20의 정수를 나타내고,

s는, 각각 독립적으로, 0 내지 4의 정수를 나타내고,

t는, 각각 독립적으로, 0 내지 3의 정수를 나타낸다.)

청구항 4

제1항에 있어서, 카보디이미드계 경화제를 포함하는 (E) 경화제를 추가로 포함하는, 수지 조성물.

청구항 5

제1항에 있어서, (F) 경화 촉진제를 포함하는, 수지 조성물.

청구항 6

제1항에 있어서, (G) 열가소성 수지를 포함하는, 수지 조성물.

청구항 7

제1항에 있어서, (C) 활성 에스테르 화합물이 나프탈렌형 활성 에스테르 화합물을 포함하는, 수지 조성물.

청구항 8

제1항에 있어서, (C) 활성 에스테르 화합물이 디사이클로펜타디엔형 활성 에스테르 화합물 및 나프탈렌형 활성

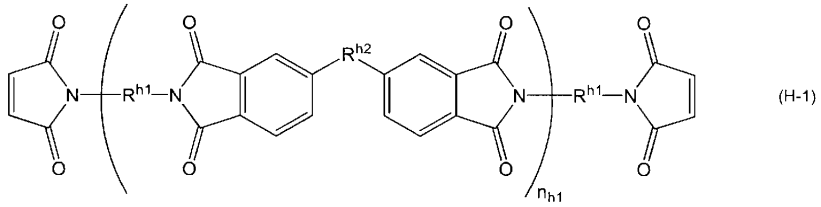
에스테르 화합물을 포함하는, 수지 조성물.

청구항 9

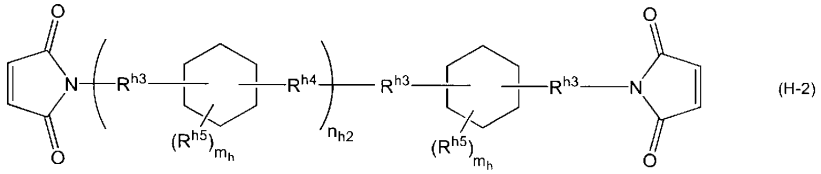
제1항에 있어서, (H) 말레이미드 수지를 포함하는, 수지 조성물.

청구항 10

제9항에 있어서, (H) 말레이미드 수지가, 식 (H-1)로 표시되는 말레이미드 수지 및 식 (H-2)로 표시되는 말레이미드 수지로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종류 이상을 포함하는, 수지 조성물.



(H-1)



(H-2)

(식 (H-1)에서, R^{h1}은 각각 독립적으로 치환기를 갖고 있어도 좋은 탄소 원자 수가 5 이상인 2가의 지방족기를 나타내고, R^{h2}는 각각 독립적으로, 산소 원자, 아릴렌기, 알킬렌기, 또는 이러한 기의 2 이상의 조합으로 이루어진 2가의 기를 나타낸다. n_{h1}은 1 내지 15의 정수를 나타낸다.

식 (H-2)에서, R^{h3}은 각각 독립적으로 치환기를 갖고 있어도 좋은 탄소 원자수가 5 이상인 2가의 지방족기를 나타내고, R^{h4}는 각각 독립적으로 치환기를 갖고 있어도 좋은 방향환을 갖는 2가의 기를 나타내고, R^{h5}는 각각 독립적으로 탄소 원자수가 5 이상인 알킬기를 나타낸다. n_{h2}는 0 내지 10의 정수를 나타내고, m_h는 각각 독립적으로 0 내지 4의 정수를 나타낸다.)

청구항 11

제1항에 있어서, 절연층 형성용인, 수지 조성물.

청구항 12

제1항 내지 제11항 중 어느 한 항에 따르는 수지 조성물의 경화물.

청구항 13

제1항 내지 제11항 중 어느 한 항에 따르는 수지 조성물을 함유하는, 시트상 적층 재료.

청구항 14

지지체와, 당해 지지체 위에 제1항 내지 제11항 중 어느 한 항에 따르는 수지 조성물로 형성된 수지 조성물층을 갖는, 수지 시트.

청구항 15

제1항 내지 제11항 중 어느 한 항에 따르는 수지 조성물의 경화물을 포함하는 절연층을 구비하는, 프린트 배선판.

청구항 16

제15항에 기재된 프린트 배선판을 구비하는, 반도체 장치.

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 수지 조성물에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0002] 프린트 배선판의 제조 기술로서, 절연층과 도체층을 교대로 포개어 쌓는 빌드업 방식에 의한 제조 방법이 알려져 있다. 빌드업 방식에 의한 제조 방법에서는 일반적으로 절연층은 수지 조성물을 경화시킨 경화물에 의해 형성된다(특허문헌 1).

선행기술문헌

특허문헌

[0003] (특허문헌 0001) 일본 공개특허공보 특개2020-23714호

발명의 내용

해결하려는 과제

[0004] 절연층에 포함되는 경화물은 이의 유전 정접을 낮게 하는 것이 요구된다. 유전 정접이 낮은 경화물을 얻는 방법의 하나로서, 수지 조성물에 활성 에스테르 화합물 및 무기 충전재를 고농도로 배합하는 것을 들 수 있다. 그러나, 활성 에스테르 화합물 및 무기 충전재를 고농도로 배합한 수지 조성물을 사용하는 경우, 경화물에 균열(크랙)이 생기기 쉬워지거나 경화물의 파단점 신도가 작아지는 경향이 있었다.

[0005] 본 발명은 상기 과제를 감안하여 창안된 것으로, 유전 정접이 낮고 균열을 억제할 수 있으며 또한 파단점 신도가 큰 경화물을 얻을 수 있는 수지 조성물; 상기 수지 조성물의 경화물; 상기 수지 조성물을 함유하는 시트상 적층 재료; 상기 수지 조성물로 형성되는 수지 조성물층을 갖는 수지 시트; 상기 수지 조성물의 경화물을 포함하는 절연층을 구비하는 프린트 배선판; 및 상기 프린트 배선판을 구비하는 반도체 장치를 제공하는 것을 목적으로 한다.

과제의 해결 수단

[0006] 본 발명자는 상기 과제를 해결하기 위해 예의 검토하였다. 그 결과, 본 발명자는, (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지, (B) 에폭시 수지, 특정 범위의 양의 (C) 활성 에스테르 화합물, 및 특정 범위의 양의 (D) 무기 충전재를 포함하는 수지 조성물이 상기 과제를 해결할 수 있음을 발견하여, 본 발명을 완성하였다.

[0007] 즉, 본 발명은 하기의 것을 포함한다.

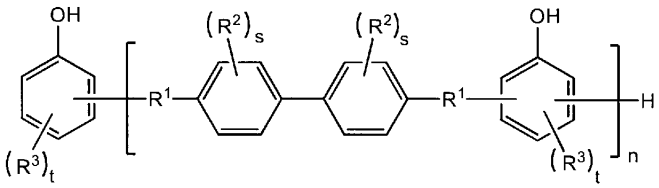
[0008] [1] (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지, (B) 에폭시 수지, (C) 활성 에스테르 화합물, 및 (D) 무기 충전재를 포함하는 수지 조성물로서,

[0009] (C) 활성 에스테르 화합물의 양이, 수지 조성물의 불휘발 성분 100질량%에 대해 10질량% 이상이고,

[0010] (D) 무기 충전재의 양이, 수지 조성물의 불휘발 성분 100질량%에 대해 60질량% 이상이고, 또는, 수지 조성물의 불휘발 성분 100체적%에 대해 45체적% 이상인, 수지 조성물.

[0011] [2] (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지의 양이, 수지 조성물의 불휘발 성분 100질량%에 대해, 0.01질량% 이상 5질량% 이하인, [1]에 기재된 수지 조성물.

[0012] [3] (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지가, 하기 식 (A-1)로 표시되는, [1] 또는 [2]에 기재된 수지 조성물.



(A-1)

[0013]

[0014] (식 (A-1)에서,

[0015] R^1은, 각각 독립적으로, 알킬렌기를 나타내고,

[0016] R^2는, 각각 독립적으로, 1가의 탄화수소기를 나타내고,

[0017] R^3은, 각각 독립적으로, 1가의 탄화수소기를 나타내고,

[0018] n은, 1 내지 20의 정수를 나타내고,

[0019] s는, 각각 독립적으로, 0 내지 4의 정수를 나타내고,

[0020] t는, 각각 독립적으로, 0 내지 3의 정수를 나타낸다.)

[0021] [4] 카보디이미드계 경화제를 포함하는 (E) 경화제를 추가로 포함하는, [1] 내지 [3] 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.

[0022] [5] (F) 경화 촉진제를 포함하는, [1] 내지 [4] 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.

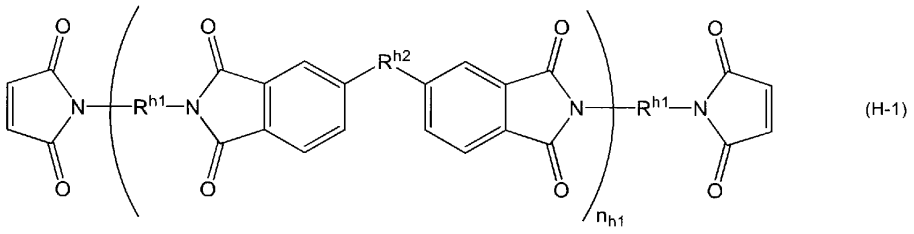
[0023] [6] (G) 열가소성 수지를 포함하는, [1] 내지 [5] 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.

[0024] [7] (C) 활성 에스테르 화합물이 나프탈렌형 활성 에스테르 화합물을 포함하는, [1] 내지 [6] 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.

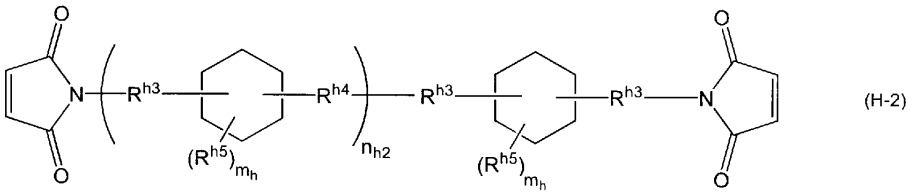
[0025] [8] (C) 활성 에스테르 화합물이 디사이클로펜타디엔형 활성 에스테르 화합물 및 나프탈렌형 활성 에스테르 화합물을 포함하는, [1] 내지 [7] 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.

[0026] [9] (H) 말레이미드 수지를 포함하는, [1] 내지 [8] 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.

[0027] [10] (H) 말레이미드 수지가, 식 (H-1)로 표시되는 말레이미드 수지 및 식 (H-2)로 표시되는 말레이미드 수지로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종류 이상을 포함하는, [9]에 기재된 수지 조성물.



(H-1)



(H-2)

[0028]

[0029] (식 (H-1)에서, R^{h1}은 각각 독립적으로 치환기를 갖고 있어도 좋은 탄소 원자 수가 5 이상인 2가의 지방족기를 나타내고, R^{h2}는 각각 독립적으로, 산소 원자, 아릴렌기, 알킬렌기, 또는 이러한 기의 2 이상의 조합으로 이루어진 2가의 기를 나타낸다. n_{h1}은 1 내지 15의 정수를 나타낸다.

[0030] 식 (H-2)에서, R^{h3}은 각각 독립적으로 치환기를 갖고 있어도 좋은 탄소 원자수가 5 이상인 2가의 지방족기를 나타내고, R^{h4}는 각각 독립적으로 치환기를 갖고 있어도 좋은 방향환을 갖는 2가의 기를 나타내고, R^{h5}는 각각 독립적으로 탄소 원자수가 5 이상인 알킬기를 나타낸다. n_{h2}는 0 내지 10의 정수를 나타내고, m_h는 각각 독립적으로 0 내지 4의 정수를 나타낸다.

[0031] [11] 절연층 형성용인, [1] 내지 [10] 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물.

[0032] [12][1] 내지 [11] 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물의 경화물.

[0033] [13][1] 내지 [11] 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물을 함유하는, 시트상 적층 재료.

[0034] [14] 지지체와, 당해 지지체 위에 [1] 내지 [11] 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물로 형성된 수지 조성물층을 갖는, 수지 시트.

[0035] [15] [1] 내지 [11] 중 어느 한 항에 기재된 수지 조성물의 경화물을 포함하는 절연층을 구비하는, 프린트 배선판.

[0036] [16] [15]에 기재된 프린트 배선판을 구비하는, 반도체 장치.

발명의 효과

[0037] 본 발명에 의해, 유전 정접이 낮고 균열을 억제할 수 있으며 또한 파단점 신도가 큰 경화물을 얻을 수 있는 수지 조성물; 상기 수지 조성물의 경화물; 상기 수지 조성물을 함유하는 시트상 적층 재료; 상기 수지 조성물로 형성되는 수지 조성물층을 갖는 수지 시트; 상기 수지 조성물의 경화물을 포함하는 절연층을 구비하는 프린트 배선판; 및 상기 프린트 배선판을 구비하는 반도체 장치를 제공할 수 있다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0038] 이하, 본 발명에 대해 실시형태 및 예시물을 나타내어 설명한다. 단, 본 발명은 이하에 나타내는 실시형태 및 예시물에 한정되지 않으며, 청구범위 및 그 균등의 범위를 일탈하지 않는 범위에서 임의로 변경하여 실시될 수 있다.

[0039] [1. 수지 조성물의 개요]

[0040] 본 발명의 일 실시형태에 따른 수지 조성물은 (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지, (B) 에폭시 수지, 특정 범위의 양의 (C) 활성 에스테르 화합물, 및 특정 범위 의 양의 (D) 무기 충전재를 조합하여 포함한다. 상기 수지 조성물에 의해, 유전 정접이 낮고 균열을 억제할 수 있으며 또한 파단점 신도가 큰 경화물을 얻을 수 있다. 상기 경화물은, 예를 들면, 프린트 배선판의 절연층의 재료로서 적합하다.

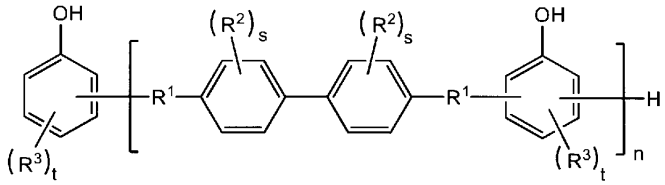
[0041] [2. (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지]

[0042] 본 실시형태에 따른 수지 조성물은 (A) 성분으로서의 (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지를 포함한다. (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지는, 분자 중에 비페닐아르알킬 구조와 페놀 구조를 조합하여 포함하고, 통상, (B) 에폭시 수지와 반응하여 수지 조성물을 경화시키는 기능을 발휘할 수 있다. (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지를 상기와 같이 (B) 내지 (D) 성분과 조합하여 사용하는 경우에, 유전 정접이 낮고 균열을 억제할 수 있으며 또한 파단점 신도가 큰 경화물을 얻을 수 있다.

[0043] 비페닐아르알킬 구조란, 알킬렌쇄의 양 말단을 제거한 일부의 탄소쇄가 비페닐 골격으로 치환된 구조를 나타낸다. 비페닐 골격에는, 본 발명의 효과를 현저하게 손상시키지 않는 한, 1 또는 2 이상의 치환기가 결합하고 있어도 좋다. 치환기로서는, 알킬기, 아릴기 등의 탄화수소기를 들 수 있다.

[0044] 페놀 구조란, 벤젠환에 수산기가 결합한 구조를 나타낸다. 페놀 구조의 벤젠환에는, 본 발명의 효과를 현저하게 손상시키지 않는 한, 1 또는 2 이상의 치환기가 결합하고 있어도 좋다. 치환기로서는, 알킬기, 아릴기 등의 탄화수소기를 들 수 있다.

[0045] 바람직한 (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지로서는, 예를 들면, 하기 식 (A-1)로 표시되는 화합물을 들 수 있다.

[0046] 

(A-1)

[0047] (식 (A-1)에서, R^1은, 각각 독립적으로, 알킬렌기를 나타내고, R^2는, 각각 독립적으로, 1가의 탄화수소기를 나타내고, R^3은, 각각 독립적으로, 1가의 탄화수소기를 나타내고, n은, 1 내지 20의 정수를 나타내고, s는, 각각 독립적으로, 0 내지 4의 정수를 나타내고, t는, 각각 독립적으로, 0 내지 3의 정수를 나타낸다.)

[0048] 식 (A-1)에서, R^1은, 각각 독립적으로, 알킬렌기를 나타낸다. 알킬렌기는, 직쇄상이라도 좋고, 분기쇄상이라도 좋다. 알킬렌기의 탄소 원자수는 바람직하게는 1 내지 10, 보다 바람직하게는 1 내지 8, 특히 바람직하게는 1 내지 5이다. 알킬렌기로서는, 예를 들면, 메틸렌기, 에틸렌기, 프로필렌기 등을 들 수 있다.

[0049] 식 (A-1)에서, R^2는, 각각 독립적으로, 1가의 탄화수소기를 나타낸다. 1가의 탄화수소기는, 지방족 탄화수소기라도 좋고 방향족 탄화수소기라도 좋다. 또한, 1가의 탄화수소기는, 직쇄상 또는 분기쇄상의 탄화수소기라도 좋고, 환을 포함하는 탄화수소기라도 좋다. 1가의 탄화수소기의 탄소 원자수는 바람직하게는 1 내지 20, 보다 바람직하게는 1 내지 10, 특히 바람직하게는 1 내지 6이다. 1가의 탄화수소기로서는 예를 들면, 메틸기, 에틸기, 프로필기, 부틸기 등의 알킬기; 페닐기, 나프틸기 등의 아릴기를 들 수 있다.

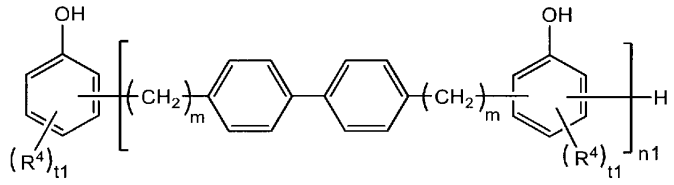
[0050] 식 (A-1)에서, R^3은, 각각 독립적으로, 1가의 탄화수소기를 나타낸다. R^3의 범위는 상기 R^2와 동일할 수 있다.

[0051] 식 (A-1)에서, n은, 1 내지 20의 정수를 나타낸다. n은 바람직하게는 1 내지 10, 보다 바람직하게는 1 내지 6이다.

[0052] 식 (A-1)에서, s는, 각각 독립적으로, 0 내지 4의 정수를 나타낸다. s는 바람직하게는 0 또는 1이고, 특히 바람직하게는 0이다.

[0053] 식 (A-1)에서, t는, 각각 독립적으로, 0 내지 3의 정수를 나타낸다. t는 바람직하게는 0 또는 1이고, 특히 바람직하게는 0이다.

[0054] 특히, (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지로서는, 하기 식 (A-2)로 표시되는 화합물이 바람직하다.

[0055] 

(A-2)

[0056] (식 (A-2)에서, R^4는, 각각 독립적으로, 탄소 원자수 1 내지 5의 알킬기, 또는 페닐기를 나타내고, m은, 각각 독립적으로, 1 내지 5의 정수를 나타내고, n1은, 1 내지 20의 정수를 나타내고, t1은, 각각 독립적으로, 0 또는 1을 나타낸다.)

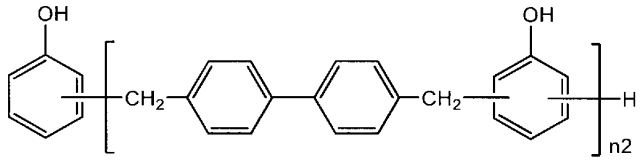
[0057] 식 (A-2)에서, R^4는, 각각 독립적으로, 탄소 원자수 1 내지 5의 알킬기, 또는 페닐기를 나타낸다. 알킬기로서는 예를 들면 메틸기, 에틸기 등을 들 수 있다.

[0058] 식 (A-2)에서, m은, 각각 독립적으로, 1 내지 5의 정수를 나타낸다. m은 바람직하게는 1 내지 4, 보다 바람직하게는 1 내지 3, 특히 바람직하게는 1이다.

[0059] 식 (A-2)에서, n1은, 각각 독립적으로, 1 내지 20의 정수를 나타낸다. n1은, 식 (A-1)에서의 n과 동일할 수 있다.

[0060] 식 (A-2)에서, t1은, 각각 독립적으로, 0 또는 1을 나타낸다. t1은 바람직하게는 0이다.

[0061] 특히 바람직한 (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지의 예로서는, 하기 식 (A-3)으로 표시되는 화합물을 들 수 있다. 식 (A-3)에서, n2는, 통상 1 내지 20, 바람직하게는 1 내지 6의 정수를 나타낸다.



(A-3)

[0062]

[0063] (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지로서는 시판품을 사용해도 좋다. 시판의 (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지로서는, 예를 들어, 니혼 카야쿠사 제조의 「KAYAHARD GPH-65」, 「KAYAHARD GPH-78」, 「KAYAHARD GPH-103」(모두 상기 식 (A-3)으로 표시되는 화합물)을 들 수 있다.

[0064] (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지는 1종류를 단독으로 사용해도 좋고 2종류 이상을 조합하여 사용해도 좋다.

[0065] (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지의 수산기 당량은 바람직하게는 50g/eq. 내지 500g/eq., 보다 바람직하게는 50g/eq. 내지 400g/eq., 더욱 바람직하게는 100g/eq. 내지 300g/eq.이다. 수산기 당량은 수산기 1당량당의 수지의 질량을 나타낸다.

[0066] (B) 에폭시 수지의 에폭시기수를 1로 하는 경우, (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지의 수산기수는 바람직하게는 0.01 이상, 보다 바람직하게는 0.02 이상, 더욱 바람직하게는 0.05 이상이고, 바람직하게는 1.5 이하, 보다 바람직하게는 1.0 이하, 보다 바람직하게는 0.9 이하, 특히 바람직하게는 0.8 이하이다. 「(A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지의 수산기수」란, 수지 조성물 중에 존재하는 (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지의 불휘발 성분의 질량을 수산기 당량으로 나눈 값을 모두 합계한 값을 나타낸다. 또한, 「(B) 에폭시 수지의 에폭시기수」란, 수지 조성물 중에 존재하는 (B) 에폭시 수지의 불휘발 성분의 질량을 에폭시 당량으로 나눈 값을 모두 합계한 값을 나타낸다.

[0067] 수지 조성물 중의 (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지의 질량 W_A와 (B) 에폭시 수지의 질량 W_B의 질량비 W_A/W_B는 특정 범위에 있는 것이 바람직하다. 구체적으로는, 질량비 W_A/W_B는 바람직하게는 0.01 이상, 보다 바람직하게는 0.03 이상, 특히 바람직하게는 0.05 이상이며, 바람직하게는 1.0 이하, 보다 바람직하게는 0.7 이하, 특히 바람직하게는 0.6 이하이다. 질량비 W_A/W_B가 상기 범위에 있는 경우, 수지 조성물의 경화물의 유전 정접의 저감, 균열의 억제, 및 파단점 신도의 증대와 같은 효과를 현저하게 얻을 수 있다.

[0068] 수지 조성물 중의 (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지의 질량 W_A와 (C) 활성 에스테르 화합물의 질량 W_C의 질량비 W_A/W_C는, 특정 범위에 있는 것이 바람직하다. 구체적으로는, 질량비 W_A/W_C는 바람직하게는 0.01 이상, 보다 바람직하게는 0.02 이상, 특히 바람직하게는 0.03 이상이며, 바람직하게는 0.80 이하, 보다 바람직하게는 0.50 이하, 특히 바람직하게는 0.40 이하이다. 질량비 W_A/W_C가 상기 범위에 있는 경우, 수지 조성물의 경화물의 유전 정접의 저감, 균열의 억제, 및 파단점 신도의 증대와 같은 효과를 현저하게 얻을 수 있다.

[0069] 수지 조성물 중의 (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지의 양은, 수지 조성물의 불휘발 성분 100질량%에 대해, 바람직하게는 0.01질량% 이상, 보다 바람직하게는 0.1질량% 이상, 특히 바람직하게는 0.5질량% 이상이고, 바람직하게는 10질량% 이하, 보다 바람직하게는 6질량% 이하, 특히 바람직하게는 5질량% 이하이다. (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지의 양이 상기 범위에 있는 경우, 수지 조성물의 경화물의 유전 정접의 저감, 균열의 억제, 및 파단점 신도의 증대와 같은 효과를 현저하게 얻을 수 있다.

[0070] 수지 조성물 중의 (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지의 양은, 수지 조성물의 수지 성분 100질량%에 대해, 바람직하게는 0.1질량% 이상, 보다 바람직하게는 1질량% 이상, 특히 바람직하게는 2질량% 이상이며, 바람직하게는 30질량% 이하, 보다 바람직하게는 20질량% 이하, 특히 바람직하게는 15질량% 이하이다. 수지 조성물의 수지 성분이란, 수지 조성물의 불휘발 성분 중, (D) 무기 충전재를 제외한 성분을 나타낸다. (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지의 양이 상기 범위에 있는 경우, 수지 조성물의 경화물의 유전 정접의 저감, 균열의 억제, 및 파단점 신도의 증대와 같은 효과를 현저하게 얻을 수 있다.

[0071] [3. (B) 에폭시 수지]

[0072] 본 실시형태에 따른 수지 조성물은 (B) 성분으로서의 (B) 에폭시 수지를 포함한다. (B) 에폭시 수지는 에폭시기

를 갖는 경화성 수지일 수 있다. (B) 에폭시 수지로는, 상술한 (A) 성분에 해당하는 것은 포함하지 않는다.

[0073] (B) 에폭시 수지로서는, 예를 들면, 비크실레놀형 에폭시 수지, 비스페놀 A형 에폭시 수지, 비스페놀 F형 에폭시 수지, 비스페놀 S형 에폭시 수지, 비스페놀 AF형 에폭시 수지, 디사이클로펜타디엔형 에폭시 수지, 트리스페놀형 에폭시 수지, 나프톨노볼락형 에폭시 수지, 페놀노볼락형 에폭시 수지, tert-부틸-카테콜형 에폭시 수지, 나프탈렌형 에폭시 수지, 나프톨형 에폭시 수지, 안트라센형 에폭시 수지, 글리시딜아민형 에폭시 수지, 글리시딜에스테르형 에폭시 수지, 크레졸노볼락형 에폭시 수지, 페놀아르알킬형 에폭시 수지, 비페닐형 에폭시 수지, 선상 지방족 에폭시 수지, 부타디엔 구조를 갖는 에폭시 수지, 지환식 에폭시 수지, 복소환식 에폭시 수지, 스피로환 함유 에폭시 수지, 사이클로헥산형 에폭시 수지, 사이클로헥산디메탄올형 에폭시 수지, 나프틸렌에테르형 에폭시 수지, 트리메틸올형 에폭시 수지, 테트라페닐에탄형 에폭시 수지, 이소시아누레이트형 에폭시 수지, 페놀프탈이미딘형 에폭시 수지 등을 들 수 있다. (B) 에폭시 수지는 1종류 단독으로 사용해도 좋고 2종류 이상을 조합하여 사용해도 좋다.

[0074] (B) 에폭시 수지는, 내열성이 뛰어난 경화물을 얻는 관점에서, 방향족 구조를 함유하는 에폭시 수지를 포함하는 것이 바람직하다. 방향족 구조란, 일반적으로 방향족으로 정의되는 화학 구조이며, 다환 방향족 및 방향족 복소환도 포함한다. 방향족 구조를 함유하는 에폭시 수지로서는, 예를 들면, 비스페놀 A형 에폭시 수지, 비스페놀 F형 에폭시 수지, 비스페놀 S형 에폭시 수지, 비스페놀 AF형 에폭시 수지, 디사이클로펜타디엔형 에폭시 수지, 트리스페놀형 에폭시 수지, 나프톨노볼락형 에폭시 수지, 페놀노볼락형 에폭시 수지, tert-부틸-카테콜형 에폭시 수지, 나프탈렌형 에폭시 수지, 나프톨형 에폭시 수지, 안트라센형 에폭시 수지, 비크실레놀형 에폭시 수지, 방향족 구조를 갖는 글리시딜아민형 에폭시 수지, 방향족 구조를 갖는 글리시딜에스테르형 에폭시 수지, 크레졸노볼락형 에폭시 수지, 비페닐형 에폭시 수지, 방향족 구조를 갖는 선상 지방족 에폭시 수지, 방향족 구조를 갖는 부타디엔 구조를 갖는 에폭시 수지, 방향족 구조를 갖는 지환식 에폭시 수지, 복소환식 에폭시 수지, 방향족 구조를 갖는 스피로환 함유 에폭시 수지, 방향족 구조를 갖는 사이클로헥산디메탄올형 에폭시 수지, 나프틸렌에테르형 에폭시 수지, 방향족 구조를 갖는 트리메틸올형 에폭시 수지, 방향족 구조를 갖는 테트라페닐에탄형 에폭시 수지 등을 들 수 있다.

[0075] 수지 조성물은, (B) 에폭시 수지로서, 1분자 중에 2개 이상의 에폭시기를 갖는 에폭시 수지를 포함하는 것이 바람직하다. (B) 에폭시 수지의 불휘발 성분 100질량%에 대해, 1분자 중에 2개 이상의 에폭시기를 갖는 에폭시 수지의 비율은 바람직하게는 50질량% 이상, 보다 바람직하게는 60질량% 이상, 특히 바람직하게는 70질량% 이상이다.

[0076] 에폭시 수지로는, 온도 20℃에서 액상인 에폭시 수지(이하 「액상 에폭시 수지」라고 하는 경우가 있다) 및 온도 20℃에서 고체상인 에폭시 수지(이하 「고체상 에폭시 수지」라고 하는 경우가 있다)가 있다. 수지 조성물은, 에폭시 수지로서, 액상 에폭시 수지만을 포함하고 있어도 좋고, 또는 고체상 에폭시 수지만을 포함하고 있어도 좋고, 또는 액상 에폭시 수지와 고체상 에폭시 수지를 조합하여 포함하고 있어도 좋다.

[0077] 액상 에폭시 수지로서는, 1분자 중에 2개 이상의 에폭시기를 갖는 액상 에폭시 수지가 바람직하다.

[0078] 액상 에폭시 수지로서는, 비스페놀 A형 에폭시 수지, 비스페놀 F형 에폭시 수지, 비스페놀 AF형 에폭시 수지, 나프탈렌형 에폭시 수지, 글리시딜에스테르형 에폭시 수지, 글리시딜아민형 에폭시 수지, 페놀노볼락형 에폭시 수지, 에스테르 골격을 갖는 지환식 에폭시 수지, 사이클로헥산형 에폭시 수지, 사이클로헥산디메탄올형 에폭시 수지, 및 부타디엔 구조를 갖는 에폭시 수지가 바람직하다.

[0079] 액상 에폭시 수지의 구체예로서는, DIC사 제조의 「HP4032」, 「HP4032D」, 「HP4032SS」(나프탈렌형 에폭시 수지); 미츠비시 케미컬사 제조의 「828US」, 「828EL」, 「jER828EL」, 「825」, 「에피코트 828EL」(비스페놀 A형 에폭시 수지); 미츠비시 케미컬사 제조의 「jER807」, 「1750」(비스페놀 F형 에폭시 수지); 미츠비시 케미컬사 제조의 「jER152」(페놀노볼락형 에폭시 수지); 미츠비시 케미컬사 제조의 「630」, 「630LSD」, 「604」(글리시딜아민형 에폭시 수지); ADEKA사 제조의 「ED-523T」(글리시롤형 에폭시 수지); ADEKA사 제조의 「EP-3950L」, 「EP-3980S」(글리시딜아민형 에폭시 수지); ADEKA사 제조의 「EP-4088S」(디사이클로펜타디엔형 에폭시 수지); 닛테츠 케미컬&머테리얼 카가쿠사 제조의 「ZX1059」(비스페놀 A형 에폭시 수지와 비스페놀 F형 에폭시 수지의 혼합품); 나가세 켐텍스사 제조의 「EX-721」(글리시딜에스테르형 에폭시 수지); 다이셀사 제조의 「셀록사이드 2021P」(에스테르 골격을 갖는 지환식 에폭시 수지); 다이셀사 제조의 「PB-3600」, 니혼 소다사 제조의 「JP-100」, 「JP-200」(부타디엔 구조를 갖는 에폭시 수지); 닛테츠 케미컬&머테리얼 제조의 「ZX1658」, 「ZX1658GS」(액상 1,4-글리시딜사이클로헥산형 에폭시 수지) 등을 들 수 있다. 이들은 1종류 단독으로 사용해도 좋고 2종류 이상을 조합하여 사용해도 좋다.

[0080] 고체상 에폭시 수지로서는, 1분자 중에 3개 이상의 에폭시기를 갖는 고체상 에폭시 수지가 바람직하고, 1분자 중에 3개 이상의 에폭시기를 갖는 방향족계의 고체상 에폭시 수지가 보다 바람직하다.

[0081] 고체상 에폭시 수지로서는, 비크실레놀형 에폭시 수지, 나프탈렌형 에폭시 수지, 나프탈렌형 4관능 에폭시 수지, 나프톨노볼락형 에폭시 수지, 크레졸노볼락형 에폭시 수지, 디사이클로펜타디엔형 에폭시 수지, 트리스페놀형 에폭시 수지, 나프톨형 에폭시 수지, 비페닐형 에폭시 수지, 나프틸렌에테르형 에폭시 수지, 안트라센형 에폭시 수지, 비스페놀 A형 에폭시 수지, 비스페놀 AF형 에폭시 수지, 페놀아르알킬형 에폭시 수지, 테트라페닐에탄형 에폭시 수지, 페놀프탈이미딘형 에폭시 수지가 바람직하다.

[0082] 고체상 에폭시 수지의 구체예로서는, DIC사 제조의 「HP4032H」(나프탈렌형 에폭시 수지); DIC사 제조의 「HP-4700」, 「HP-4710」(나프탈렌형 4관능 에폭시 수지); DIC사 제조의 「N-690」(크레졸노볼락형 에폭시 수지); DIC사 제조의 「N-695」(크레졸노볼락형 에폭시 수지); DIC사 제조의 「HP-7200」, 「HP-7200HH」, 「HP-7200H」, 「HP-7200L」(디사이클로펜타디엔형 에폭시 수지); DIC사 제조의 「EXA-7311」, 「EXA-7311-G3」, 「EXA-7311-G4」, 「EXA-7311-G4S」, 「HP6000」(나프틸렌에테르형 에폭시 수지); 니혼 카야쿠사 제조의 「EPPN-502H」(트리스페놀형 에폭시 수지); 니혼 카야쿠사 제조의 「NC7000L」(나프톨노볼락형 에폭시 수지); 니혼 카야쿠사 제조의 「NC3000H」, 「NC3000」, 「NC3000L」, 「NC3000FH」, 「NC3100」(비페닐형 에폭시 수지); 닛테츠 케미컬&머테리얼사 제조의 「ESN475V」, 「ESN4100V」(나프탈렌형 에폭시 수지); 닛테츠 케미컬&머테리얼사 제조의 「ESN485」(나프톨형 에폭시 수지); 닛테츠 케미컬&머테리얼사 제조의 「ESN375」(디하이드록시나프탈렌형 에폭시 수지); 미츠비시 케미컬사 제조의 「YX4000H」, 「YX4000」, 「YX4000HK」, 「YL7890」(비크실레놀형 에폭시 수지); 미츠비시 케미컬사 제조의 「YL6121」(비페닐형 에폭시 수지); 미츠비시 케미컬사 제조의 「YX8800」(안트라센형 에폭시 수지); 미츠비시 케미컬사 제조의 「YX7700」(페놀아르알킬형 에폭시 수지); 오사카 가스 케미컬사 제조의 「PG-100」, 「CG-500」; 미츠비시 케미컬사 제조의 「YL7760」(비스페놀 AF형 에폭시 수지); 미츠비시 케미컬사 제조의 「YL7800」(플루오렌형 에폭시 수지); 미츠비시 케미컬사 제조의 「jER1010」(비스페놀 A형 에폭시 수지); 미츠비시 케미컬사 제조의 「jER1031S」(테트라페닐에탄형 에폭시 수지); 니혼 카야쿠사 제조의 「WHR991S」(페놀프탈이미딘형 에폭시 수지) 등을 들 수 있다. 이들은 1종류 단독으로 사용해도 좋고 2종류 이상을 조합하여 사용해도 좋다.

[0083] (B) 에폭시 수지의 에폭시 당량은 바람직하게는 50g/eq. 내지 5,000g/eq., 보다 바람직하게는 60g/eq. 내지 3,000g/eq., 더욱 바람직하게는 80g/eq. 내지 2,000g/eq., 특히 바람직하게는 110g/eq. 내지 1,000g/eq.이다. 에폭시 당량은, 에폭시기 1당량당의 수지의 질량을 나타낸다. 에폭시 당량은 JIS K7236에 따라 측정할 수 있다.

[0084] (B) 에폭시 수지의 중량 평균 분자량(Mw)은 바람직하게는 100 내지 5,000, 보다 바람직하게는 250 내지 3,000, 더욱 바람직하게는 400 내지 1,500이다. 수지의 중량 평균 분자량은 겔 침투 크로마토그래피(GPC)법에 의해 폴리스티렌 환산의 값으로서 측정할 수 있다.

[0085] 수지 조성물 중의 (B) 에폭시 수지의 양은, 수지 조성물 중의 불휘발 성분 100질량%에 대해, 바람직하게는 1질량% 이상, 보다 바람직하게는 2질량% 이상, 특히 바람직하게는 4질량% 이상이며, 바람직하게는 25질량% 이하, 보다 바람직하게는 20질량% 이하, 특히 바람직하게는 10질량% 이하이다. (B) 에폭시 수지의 양이 상기 범위에 있는 경우, 수지 조성물의 경화물의 유전 정접의 저감, 균열의 억제, 및 파단점 신도의 증대와 같은 효과를 현저하게 얻을 수 있다.

[0086] 수지 조성물 중의 (B) 에폭시 수지의 양은, 수지 조성물 중의 수지 성분 100질량%에 대해, 바람직하게는 5질량% 이상, 보다 바람직하게는 10질량% 이상, 특히 바람직하게는 20질량% 이상이며, 바람직하게는 60질량% 이하, 보다 바람직하게는 50질량% 이하, 특히 바람직하게는 40질량% 이하이다. (B) 에폭시 수지의 양이 상기 범위에 있는 경우, 수지 조성물의 경화물의 유전 정접의 저감, 균열의 억제, 및 파단점 신도의 증대와 같은 효과를 현저하게 얻을 수 있다.

[0087] [4. (C) 활성 에스테르 화합물]

[0088] 본 실시형태에 따른 수지 조성물은, (C) 성분으로서의 (C) 활성 에스테르 화합물을, 특정 범위의 함유량으로 포함한다. (C) 활성 에스테르 화합물에는, 상술한 (A) 내지 (B) 성분에 해당하는 것은 포함하지 않는다. (C) 활성 에스테르 화합물은, (B) 에폭시 수지와 반응하여 수지 조성물을 경화시키는 에폭시 수지 경화제로서의 기능을 가질 수 있다. (C) 활성 에스테르 화합물은 1종류를 단독으로 사용해도 좋고 2종류 이상을 조합하여 사용해도 좋다.

[0089] (C) 활성 에스테르 화합물로서는, 일반적으로, 페놀에스테르류, 티오페놀에스테르류, N-하이드록시아민에스테르

류, 복소환 하이드록시 화합물의 에스테르류 등의, 반응 활성이 높은 에스테르기를 1분자 중에 2개 이상 갖는 화합물이 바람직하게 사용된다. 당해 활성 에스테르 화합물은, 카복실산 화합물 및/또는 티오카복실산 화합물과 하이드록시 화합물 및/또는 티올 화합물의 축합 반응에 의해 얻어지는 것이 바람직하다. 특히 내열성 향상의 관점에서, 카복실산 화합물과 하이드록시 화합물로부터 얻어지는 활성 에스테르 화합물이 바람직하고, 카복실산 화합물과 페놀 화합물 및/또는 나프톨 화합물로부터 얻어지는 활성 에스테르 화합물이 보다 바람직하다. 카복실산 화합물로서는, 예를 들면 벤조산, 아세트산, 석신산, 말레산, 이타콘산, 프탈산, 이소프탈산, 테레프탈산, 피로멜리트산 등을 들 수 있다. 페놀 화합물 또는 나프톨 화합물로서는, 예를 들면, 하이드로퀴논, 레조르신, 비스페놀 A, 비스페놀 F, 비스페놀 S, 페놀프탈린, 메틸화비스페놀 A, 메틸화비스페놀 F, 메틸화비스페놀 S, 페놀, o-크레졸, m-크레졸, p-크레졸, 카테콜, α-나프톨, β-나프톨, 1,5-디하이드록시나프탈렌, 1,6-디하이드록시나프탈렌, 2,6-디하이드록시나프탈렌, 디하이드록시벤조페논, 트리하이드록시벤조페논, 테트라하이드록시벤조페논, 플로로글루신, 벤젠트리올, 디사이클로펜타디엔형 디페놀 화합물, 페놀노볼락 등을 들 수 있다. 여기서, 「디사이클로펜타디엔형 디페놀 화합물」이란, 디사이클로펜타디엔 1분자에 페놀 2분자가 축합하여 얻어지는 디페놀 화합물을 말한다.

[0090] 구체적으로는, (C) 활성 에스테르 화합물로서는, 디사이클로펜타디엔형 활성 에스테르 화합물, 나프탈렌 구조를 포함하는 나프탈렌형 활성 에스테르 화합물, 페놀노볼락의 아세틸화물을 포함하는 활성 에스테르 화합물, 페놀노볼락의 벤조일화물을 포함하는 활성 에스테르 화합물이 바람직하고, 그 중에서도 디사이클로펜타디엔형 활성 에스테르 화합물, 및 나프탈렌형 활성 에스테르 화합물로부터 선택되는 적어도 1종인 것이 보다 바람직하고, 나프탈렌형 활성 에스테르 화합물을 포함하는 것이 특히 바람직하다. 디사이클로펜타디엔형 활성 에스테르 화합물로서는, 디사이클로펜타디엔형 디페놀 구조를 포함하는 활성 에스테르 화합물이 바람직하다. 또한, 본 발명의 일 형태로서, 디사이클로펜타디엔형 활성 에스테르 화합물 및 나프탈렌형 활성 에스테르 화합물을 포함하는 것이 바람직하다.

[0091] (C) 활성 에스테르 화합물의 시판품으로서는, 예를 들면, 디사이클로펜타디엔형 디페놀 구조를 포함하는 활성 에스테르 화합물로서, 「EXB9451」, 「EXB9460」, 「EXB9460S」, 「EXB-8000L」, 「EXB-8000L-65M」, 「EXB-8000L-65TM」, 「HPC-8000L-65TM」, 「HPC-8000」, 「HPC-8000-65T」, 「HPC-8000H」, 「HPC-8000H-65TM」(DIC사 제조); 나프탈렌 구조를 포함하는 활성 에스테르 화합물로서 「HP-B-8151-62T」, 「EXB-8100L-65T」, 「EXB-8150-60T」, 「EXB-8150-62T」, 「EXB-9416-70BK」, 「HPC-8150-60T」, 「HPC-8150-62T」, 「EXB-8」(DIC사 제조); 인 함유 활성 에스테르 화합물로서, 「EXB9401」(DIC사 제조); 페놀노볼락의 아세틸화물인 활성 에스테르 화합물로서 「DC808」(미츠비시 케미컬사 제조); 페놀노볼락의 벤조일화물인 활성 에스테르 화합물로서 「YLH1026」, 「YLH1030」, 「YLH1048」(미츠비시 케미컬사 제조); 스티릴기 및 나프탈렌 구조를 포함하는 활성 에스테르 화합물로서 「PC1300-02-65MA」(에어 워터사 제조) 등을 들 수 있다.

[0092] (C) 활성 에스테르 화합물의 활성 에스테르기 당량은 바람직하게는 50g/eq. 내지 500g/eq., 보다 바람직하게는 50g/eq. 내지 400g/eq., 더욱 바람직하게는 100g/eq. 내지 300g/eq.이다. 활성 에스테르기 당량은, 활성 에스테르기 1당량당의 활성 에스테르 화합물의 질량을 나타낸다.

[0093] (B) 에폭시 수지의 에폭시기수를 1로 하는 경우, (C) 활성 에스테르 화합물의 활성 에스테르기수는 바람직하게는 0.1 이상, 보다 바람직하게는 0.5 이상, 더욱 바람직하게는 0.8 이상이고, 바람직하게는 6.0 이하, 보다 바람직하게는 5.0 이하, 특히 바람직하게는 4.0 이하이다. 「(C) 활성 에스테르 화합물의 활성 에스테르기수」란, 수지 조성물 중에 존재하는 (C) 활성 에스테르 화합물의 불휘발 성분의 질량을 활성 에스테르기 당량으로 나눈 값을 모두 합계한 값을 나타낸다.

[0094] (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지의 수산기수를 1로 하는 경우, (C) 활성 에스테르 화합물의 활성 에스테르기수는 바람직하게는 1.0 이상, 보다 바람직하게는 1.5 이상, 특히 바람직하게는 2.0 이상이며, 바람직하게는 50 이하, 보다 바람직하게는 40 이하, 특히 바람직하게는 30 이하이다.

[0095] 수지 조성물 중의 (C) 활성 에스테르 화합물의 양은, 수지 조성물의 불휘발 성분 100질량%에 대해, 통상 10질량% 이상, 바람직하게는 11질량% 이상, 특히 바람직하게는 12질량% 이상이고, 바람직하게는 30질량% 이하, 보다 바람직하게는 25질량% 이하, 특히 바람직하게는 20질량% 이하이다. (C) 활성 에스테르 화합물의 양이 상기 범위에 있는 경우, 수지 조성물의 경화물의 유전 정접의 저감, 균열의 억제, 및 파단점 신도의 증대가 가능하다.

[0096] 수지 조성물 중의 (C) 활성 에스테르 화합물의 양은, 수지 조성물의 수지 성분 100질량%에 대해, 바람직하게는 20질량% 이상, 보다 바람직하게는 30질량% 이상, 특히 바람직하게는 40질량% 이상이며, 바람직하게는 80질량% 이하, 보다 바람직하게는 70질량% 이하, 특히 바람직하게는 60질량% 이하이다. (C) 활성 에스테르 화합물의 양

이 상기 범위에 있는 경우, 수지 조성물의 경화물의 유전 정접의 저감, 균열의 억제, 및 파단점 신도의 증대와 같은 효과를 현저하게 얻을 수 있다.

[0097] [5. (D) 무기 충전재]

[0098] 본 실시형태에 따른 수지 조성물은 (D) 성분으로서의 (D) 무기 충전재를 특정 범위의 함유량으로 포함한다. (D) 무기 충전재는, 통상, 입자 상태로 수지 조성물에 포함된다.

[0099] (D) 무기 충전재의 재료로서는 무기 화합물을 사용한다. (D) 무기 충전재의 재료로서는, 예를 들면, 실리카, 알루미나, 유리, 코디에라이트, 실리콘 산화물, 황산바륨, 탄산바륨, 탈크, 클레이, 운모분, 산화아연, 하이드로탈사이트, 베마이트, 수산화알루미늄, 수산화마그네슘, 탄산칼슘, 탄산마그네슘, 산화마그네슘, 질화붕소, 질화알루미늄, 질화망간, 붕산알루미늄, 탄산스트론튬, 티탄산스트론튬, 티탄산칼슘, 티탄산마그네슘, 티탄산비스무트, 산화티탄, 산화지르코늄, 티탄산바륨, 티탄산지르콘산바륨, 지르콘산바륨, 지르콘산칼슘, 인산지르코늄, 및 인산텅스텐산지르코늄 등을 들 수 있다.

[0100] 또한, (D) 무기 충전재의 재료로서는 무기 복합 산화물을 사용해도 좋다. 무기 복합 산화물이란, 금속 원자 및 반금속 원자로 이루어진 군으로부터 선택되는 2종류 이상의 원자를 포함하는 산화물을 나타낸다. 이러한 무기 복합 산화물로서는, 규소와, 규소 이외의 금속 원자 및 반금속 원자로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종류 이상의 원자의 조합을 포함하는 산화물이 바람직하다. 규소와 조합하는 금속 원자로서는, 알루미늄, 납, 니켈, 코발트, 구리, 아연, 지르코늄, 철, 리튬, 마그네슘, 바륨, 칼륨, 칼슘, 티탄, 붕소, 나트륨 등을 들 수 있고, 그 중에서도, 알루미늄이 특히 바람직하다. 따라서, 무기 복합 산화물로서는, 규소 및 알루미늄을 포함하는 산화물이 바람직하고, 알루미노실리케이트가 특히 바람직하다.

[0101] 이러한 (D) 무기 충전재의 재료 중에서도, 실리카, 알루미나 및 알루미노실리케이트가 적합하고, 실리카가 특히 적합하다. 실리카로서는, 예를 들면, 무정형 실리카, 용융 실리카, 결정 실리카, 합성 실리카, 중공 실리카 등을 들 수 있다. 또한, 실리카로서는 구형 실리카가 바람직하다. (D) 무기 충전재는 1종류 단독으로 사용해도 좋고 2종 이상을 조합하여 사용해도 좋다.

[0102] (D) 무기 충전재는, 내부에 공공(空孔)을 갖는 중공(中空) 무기 충전재, 및 내부에 공공을 갖지 않는 중실(中實) 무기 충전재로 분류할 수 있다. (D) 무기 충전재로서는, 중공 무기 충전재만을 사용해도 좋고, 중실 무기 충전재만을 사용해도 좋고, 중공 무기 충전재와 중실 무기 충전재를 조합하여 사용해도 좋다. 중공 무기 충전재를 사용하는 경우, 통상, 수지 조성물의 경화물의 비유전율을 낮게 할 수 있다.

[0103] 중공 무기 충전재는, 공공을 가지므로, 통상, 0체적%보다 큰 공공률을 갖는다. 수지 조성물의 경화물을 포함하는 절연층의 비유전율을 낮게 하는 관점에서, 중공 무기 충전재의 공공률은 바람직하게는 10체적% 이상, 보다 바람직하게는 15체적% 이상, 특히 바람직하게는 20체적% 이상이다. 또한, 수지 조성물의 경화물의 기계적 강도의 관점에서, 중공 무기 충전재의 공공률은 바람직하게는 95체적% 이하, 보다 바람직하게는 90체적% 이하, 특히 바람직하게는 85체적% 이하이다.

[0104] 입자의 공공률 P(체적%)는, 입자의 외면을 기준으로 한 입자 전체의 체적에 대한 입자 내부에 1개 또는 2개 이상 존재하는 공공의 합계 체적의 체적 기준 비율(공공의 합계 체적/입자의 체적)로서 정의된다. 이 공공률 P는 입자의 실제 밀도의 측정값 D_M(g/cm^3) 및 입자를 형성하는 재료의 물질 밀도의 이론값 D_T(g/cm^3)을 사용하여 하기 식 (X1)에 의해 산출할 수 있다.

[0105]
$$P[vol\%] = \left(1 - \frac{D_M}{D_T}\right) \times 100 \quad \cdots (X1)$$

[0106] 중공 무기 충전재의 제조 방법은 특별히 한정되지 않으며, 통상의 방법에 의해 제조할 수 있다.

[0107] (D) 무기 충전재의 시판품으로서는, 예를 들면, 신닛테츠 스미킨 머테리얼즈사 제조의 「SP60-05」, 「SP507-05」; 아도마텍스사 제조의 「YC100C」, 「YA050C」, 「YA050C-MJE」, 「YA010C」, 「SC2500SQ」, 「SO-C4」, 「SO-C2」, 「SO-C1」; 덴카사 제조의 「UFP-30」, 「DAW-03」, 「FB-105FD」; 토쿠야마사 제조의 「실필 NSS-3N」, 「실필 NSS-4N」, 「실필 NSS-5N」; 닛키 쇼쿠바이 카세이사 제조 「에스페리크」, 「BA-1」; 타이헤이요우 세멘트사 제조 「MG-005」, 「MGH-005」 등을 들 수 있다.

[0108] (D) 무기 충전재의 평균 입자 직경은, 본 발명의 원하는 효과를 현저하게 얻는 관점에서, 바람직하게는 0.01㎛

이상, 보다 바람직하게는 0.05㎛ 이상, 더욱 바람직하게는 0.1㎛ 이상, 특히 바람직하게는 0.2㎛ 이상이고, 바람직하게는 10㎛ 이하, 보다 바람직하게는 5㎛ 이하, 더욱 바람직하게는 3㎛ 이하이다.

[0109] (D) 무기 충전재의 평균 입자 직경은, 미(Mie) 산란 이론에 기초한 레이저 회절·산란법에 의해 측정할 수 있다. 구체적으로는, 레이저 회절 산란식 입자 직경 분포 측정 장치에 의해, 무기 충전재의 입자 직경 분포를 체적 기준으로 작성하고, 이의 메디안 직경을 평균 입자 직경으로 함으로써 측정할 수 있다. 측정 샘플은, 무기 충전재 100mg, 메틸에틸케톤 10g을 바이알 병에 측정하여 취하고, 초음파로 10분간 분산시킨 것을 사용할 수 있다. 측정 샘플을, 레이저 회절식 입자 직경 분포 측정 장치를 사용하여, 사용 광원 파장을 청색 및 적색으로 하고, 플로우 셀 방식으로 무기 충전재의 체적 기준의 입자 직경 분포를 측정하고, 얻어진 입자 직경 분포로부터 메디안 직경으로서 평균 입자 직경을 산출할 수 있다. 레이저 회절식 입자 직경 분포 측정 장치로서는, 예를 들면 호리바 세이사쿠쇼사 제조 「LA-960」 등을 들 수 있다.

[0110] (D) 무기 충전재의 비표면적은, 본 발명의 원하는 효과를 현저하게 얻는 관점에서, 바람직하게는 0.1㎡/g 이상, 보다 바람직하게는 0.5㎡/g 이상, 더욱 바람직하게는 1㎡/g 이상, 특히 바람직하게는 3㎡/g 이상이며, 바람직하게는 100㎡/g 이하, 보다 바람직하게는 70㎡/g 이하, 더욱 바람직하게는 50㎡/g 이하, 특히 바람직하게는 40㎡/g 이하이다. 무기 충전재의 비표면적은, BET법에 따라, 비표면적 측정 장치(마운테크사 제조 Macsorb HM-1210)를 사용하여 시료 표면에 질소 가스를 흡착시켜, BET 다점법을 사용하여 비표면적을 산출함으로써 측정할 수 있다.

[0111] (D) 무기 충전재는, 내습성 및 분산성을 높이는 관점에서, 표면 처리제로 처리되어 있는 것이 바람직하다. 표면 처리제로서는, 예를 들면, 불소 함유 실란 커플링제, 아미노실란계 커플링제, 에폭시실란계 커플링제, 머캅토실란계 커플링제, 실란계 커플링제, 알콕시실란, 오가노실라잔 화합물, 티타네이트계 커플링제 등을 들 수 있다. 표면 처리제는 1종류 단독으로 사용해도 좋고 2종류 이상을 임의로 조합하여 사용해도 좋다.

[0112] 표면 처리제의 시판품으로서는, 예를 들면, 신에츠 카가쿠 코교사 제조 「KBM403」(3-글리시독시프로필트리메톡시실란), 신에츠 카가쿠 코교사 제조 「KBM803」(3-머캅토프로필트리메톡시실란), 신에츠 카가쿠 코교사 제조 「KBE903」(3-아미노프로필트리에톡시실란), 신에츠 카가쿠 코교사 제조 「KBM573」(N-페닐-3-아미노프로필트리메톡시실란), 신에츠 카가쿠 코교사 제조 「SZ-31」(헥사메틸디실라잔), 신에츠 카가쿠 코교사 제조 「KBM103」(페닐트리메톡시실란), 신에츠 카가쿠 코교사 제조 「KBM-4803」(장쇄 에폭시형 실란 커플링제), 신에츠 카가쿠 코교사 제조 「KBM-7103」(3,3,3-트리플루오로프로필트리메톡시실란) 등을 들 수 있다.

[0113] 표면 처리제에 의한 표면 처리의 정도는, 무기 충전재의 분산성 향상의 관점에서, 특정 범위에 들어가는 것이 바람직하다. 구체적으로는, 무기 충전재 100질량%는, 0.2질량% 내지 5질량%의 표면 처리제로 표면 처리되어 있는 것이 바람직하고, 0.2질량% 내지 3질량%의 표면 처리제로 표면 처리되어 있는 것이 보다 바람직하고, 0.3질량% 내지 2질량%의 표면 처리제로 표면 처리되어 있는 것이 더욱 바람직하다.

[0114] 표면 처리제에 의한 표면 처리의 정도는, 무기 충전재의 단위 표면적당의 카본량에 의해 평가할 수 있다. 무기 충전재의 단위 표면적당의 카본량은, 무기 충전재의 분산성 향상의 관점에서, 0.02mg/m^2 이상이 바람직하고, 0.1mg/m^2 이상이 보다 바람직하고, 0.2mg/m^2 이상이 더욱 바람직하다. 한편, 수지 조성물의 용융 점도의 상승을 방지하는 관점에서, 1.0mg/m^2 이하가 바람직하고, 0.8mg/m^2 이하가 보다 바람직하고, 0.5mg/m^2 이하가 더욱 바람직하다.

[0115] (D) 무기 충전재의 단위 표면적당의 카본량은, 표면 처리 후의 무기 충전재를 용제(예를 들면, 메틸에틸케톤(MEK))에 의해 세정 처리한 후에 측정할 수 있다. 구체적으로는, 용제로서 충분한 양의 MEK를 표면 처리제로 표면 처리된 무기 충전재에 첨가하고, 25℃에서 5분간 초음파 세정한다. 상청액을 제거하고, 고형분을 건조시킨 후, 카본 분석계를 사용하여 무기 충전재의 단위 표면적당의 카본량을 측정할 수 있다. 카본 분석계로서는 호리바 세이사쿠쇼사 제조 「EMIA-320V」 등을 사용할 수 있다.

[0116] 수지 조성물 중의 (D) 무기 충전재의 양은 하기 조건 (i) 및 조건 (ii) 중 적어도 한쪽을 충족한다.

[0117] 조건 (i): (D) 무기 충전재의 양(질량%)이, 수지 조성물의 불휘발 성분 100질량%에 대해, 60질량% 이상이다.

[0118] 조건 (ii): (D) 무기 충전재의 양(체적%)이, 수지 조성물의 불휘발 성분 100체적%에 대해, 45체적% 이상이다.

[0119] 조건 (i)에 대해 상세히 설명한다. (D) 무기 충전재의 양(질량%)은, 수지 조성물의 불휘발 성분 100질량%에 대해, 통상 60질량% 이상, 바람직하게는 63질량% 이상, 더욱 바람직하게는 65질량% 이상, 특히 바람직하게는 67질

량% 이상이고, 바람직하게는 85질량% 이하, 보다 바람직하게는 80질량% 이하, 특히 바람직하게는 75질량% 이하이다.

[0120] 조건 (ii)에 대해 상세하게 설명한다. (D) 무기 충전재의 양(체적%)은, 수지 조성물의 불휘발 성분 100체적%에 대해, 통상 45체적% 이상, 바람직하게는 50체적% 이상, 보다 바람직하게는 55체적% 이상이며, 바람직하게는 80체적% 이하, 보다 바람직하게는 70체적% 이하, 특히 바람직하게는 65체적% 이하이다.

[0121] (D) 무기 충전재의 양이 조건 (i) 및 조건 (ii) 중 적어도 한쪽을 충족하는 경우에, 수지 조성물의 경화물의 유전 정접의 저감, 균열의 억제, 및 파단점 신도의 증대가 가능하다.

[0122] [6. (E) 임의의 경화제]

[0123] 본 실시형태에 따른 수지 조성물은, 상술한 (A) 내지 (D) 성분에 조합하여, 임의의 성분으로서, 추가로 (E) 임의의 경화제를 포함하고 있어도 좋다. (E) 성분으로서의 (E) 임의의 경화제에는, 상술한 (A) 내지 (D) 성분에 해당하는 것은 포함하지 않는다. (E) 임의의 경화제는, 상술한 (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지 및 (C) 활성 에스테르 화합물과 동일하게, (B) 에폭시 수지와 반응하여 수지 조성물을 경화시키는 에폭시 수지 경화제로서의 기능을 가질 수 있다. (E) 임의의 경화제는 1종류 단독으로 사용해도 좋고 2종류 이상을 조합하여 사용해도 좋다.

[0124] (E) 임의의 경화제로서는, 예를 들면, 페놀계 경화제, 카보디이미드계 경화제, 산 무수물계 경화제, 아민계 경화제, 벤조옥사진계 경화제, 시아네이트에스테르계 경화제, 및 티올계 경화제 제제를 들 수 있다. 단, (E) 임의의 경화제로 분류되는 페놀계 경화제에는, (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지에 해당하는 것은 포함하지 않는다. 그 중에서도, 페놀계 경화제 및 카보디이미드계 경화제로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종류 이상의 경화제를 사용하는 것이 바람직하고, 카보디이미드계 경화제가 특히 바람직하다. 따라서, (E) 임의의 경화제는 카보디이미드계 경화제를 포함하는 것이 특히 바람직하다.

[0125] 카보디이미드계 경화제로서는, 1분자 내 중에 1개 이상, 바람직하게는 2개 이상의 카보디이미드 구조를 갖는 경화제를 사용할 수 있다. 카보디이미드계 경화제의 구체예로서는, 테트라메틸렌-비스(t-부틸카보디이미드), 사이클로헥산비스(메틸렌-t-부틸카보디이미드) 등의 지방족 비스카보디이미드; 페닐렌-비스(크실릴카보디이미드) 등의 방향족 비스카보디이미드 등의 비스카보디이미드; 폴리헥사메틸렌카보디이미드, 폴리트리메틸헥사메틸렌카보디이미드, 폴리사이클로헥실렌카보디이미드, 폴리(메틸렌비스사이클로헥실렌카보디이미드), 폴리(이소포론카보디이미드) 등의 지방족 폴리카보디이미드; 폴리(페닐렌카보디이미드), 폴리(나프틸렌카보디이미드), 폴리(톨릴렌카보디이미드), 폴리(메틸디이소프로필페닐렌카보디이미드), 폴리(트리에틸페닐렌카보디이미드), 폴리(디에틸페닐렌카보디이미드), 폴리(트리이소프로필페닐렌카보디이미드), 폴리(디이소프로필페닐렌카보디이미드), 폴리(크실릴렌카보디이미드), 폴리(테트라메틸크실릴렌카보디이미드), 폴리(메틸렌디페닐렌카보디이미드), 폴리[메틸렌비스(메틸페닐렌)카보디이미드] 등의 방향족 폴리카보디이미드 등의 폴리카보디이미드를 들 수 있다. 카보디이미드계 경화제의 시판품으로서는, 예를 들면, 닛신보 케미컬사 제조의 「카보디라이트 V-02B」, 「카보디라이트 V-03」, 「카보디라이트 V-04K」, 「카보디라이트 V-07」 및 「카보디라이트 V-09」; 라인케미사 제조의 「스타박졸 P」, 「스타박졸 P400」, 「하이카질 510」 등을 들 수 있다.

[0126] 페놀계 경화제로서는, 벤젠환, 나프탈렌환 등의 방향환에 결합한 수산기를 1분자 중에 1개 이상, 바람직하게는 2개 이상 갖는 경화제를 사용할 수 있다. 내열성 및 내수성의 관점에서는, 노볼락 구조를 갖는 페놀계 경화제가 바람직하다. 또한, 밀착성의 관점에서는, 함질소 페놀계 경화제가 바람직하고, 트리아진 골격 함유 페놀계 경화제가 보다 바람직하다. 그 중에서도, 내열성, 내수성, 및 밀착성을 고도로 충족시키는 관점에서, 트리아진 골격 함유 페놀노볼락 수지가 바람직하다. 페놀계 경화제의 구체예로서는, 예를 들면, 메이와 카세이사 제조의 「MEH-7700」, 「MEH-7810」, 「MEH-7851」, 니혼 카야쿠사 제조의 「NHN」, 「CBN」, 닛테츠 케미컬&머테리얼사 제조의 「SN-170」, 「SN-180」, 「SN-190」, 「SN-475」, 「SN-485」, 「SN-495」, 「SN-375」, 「SN-395」, DIC사 제조의 「LA-7052」, 「LA-7054」, 「LA-3018」, 「LA-3018-50P」, 「LA-1356」, 「TD2090」, 「TD-2090-60M」 등을 들 수 있다.

[0127] 산 무수물계 경화제로서는, 1분자 내 중에 1개 이상의 산 무수물기를 갖는 경화제를 사용할 수 있고, 1분자 내 중에 2개 이상의 산 무수물기를 갖는 경화제가 바람직하다. 산 무수물계 경화제의 구체예로서는, 무수 프탈산, 테트라하이드로 무수 프탈산, 헥사하이드로 무수 프탈산, 메틸테트라하이드로 무수 프탈산, 메틸헥사하이드로 무수 프탈산, 메틸나딕산 무수물, 수소화메틸나딕산 무수물, 트리알킬테트라하이드로 무수 프탈산, 도데세닐 무수 석신산, 5-(2,5-디옥소테트라하이드로-3-푸라닐)-3-메틸-3-사이클로헥센-1,2-디카복실산 무수물, 무수 트리

멜리트산, 무수 피로멜리트산, 벤조페논테트라카복실산 2무수물, 비페닐테트라카복실산 2무수물, 나프탈렌테트라카복실산 2무수물, 옥시디프탈산 2무수물, 3,3'-4,4'-디페닐설폰테트라카복실산 2무수물, 1,3,3a,4,5,9b-헥사하이드로-5-(테트라하이드로-2,5-디옥소-3-푸라닐)-나프토[1,2-C]푸란-1,3-디온, 에틸렌글리콜비스(안하이드로트리멜리테이트), 스티렌과 말레산이 공중합한 스티렌·말레산 수지 등의 폴리머형의 산 무수물 등을 들 수 있다. 산 무수물계 경화제의 시판품으로서는, 예를 들면, 신 니혼 리카사 제조의 「HNA-100」, 「MH-700」, 「MTA-15」, 「DDSA」, 「OSA」; 미츠비시 케미컬사 제조의 「YH-306」, 「YH-307」; 히타치 카세이사 제조의 「HN-2200」, 「HN-5500」; 클레이밸리사 제조의 「EF-30」, 「EF-40」「EF-60」, 「EF-80」 등을 들 수 있다.

[0128] 아민계 경화제로서는, 1분자 내 중에 1개 이상, 바람직하게는 2개 이상의 아미노기를 갖는 경화제를 사용할 수 있다. 아민계 경화제로서는, 예를 들면, 지방족 아민류, 폴리에테르아민류, 지환식 아민류, 방향족 아민류 등을 들 수 있고, 그 중에서도, 방향족 아민류가 바람직하다. 아민계 경화제는, 제1급 아민 또는 제2급 아민이 바람직하고, 제1급 아민이 보다 바람직하다. 아민계 경화제의 구체예로서는, 4,4'-메틸렌비스(2,6-디메틸아닐린), 4,4'-디아미노디페닐메탄, 4,4'-디아미노디페닐설폰, 3,3'-디아미노디페닐설폰, m-페닐렌디아민, m-크실릴렌디아민, 디에틸톨루엔디아민, 4,4'-디아미노디페닐에테르, 3,3'-디메틸-4,4'-디아미노비페닐, 2,2'-디메틸-4,4'-디아미노비페닐, 3,3'-디하이드록시벤지딘, 2,2-비스(3-아미노-4-하이드록시페닐)프로판, 3,3-디메틸-5,5-디에틸-4,4-디페닐메탄디아민, 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, 비스(4-(4-아미노페녹시)페닐)설폰, 비스(4-(3-아미노페녹시)페닐)설폰 등을 들 수 있다. 아민계 경화제의 시판품으로서는, 예를 들면, 세이카사 제조 「SEIKACURE-S」; 니혼 카야쿠사 제조의 「KAYABOND C-200S」, 「KAYABOND C-100」, 「카야하드 A-A」, 「카야하드 A-B」, 「카야하드 A-S」; 미츠비시 케미컬사 제조의 「에피큐어 W」; 스미토모 세이카사 제조 「DTDA」 등을 들 수 있다.

[0129] 벤조옥사진계 경화제의 구체예로서는, JFE 케미컬사 제조의 「JBZ-OP100D」, 「ODA-BOZ」; 쇼와 코분시사 제조의 「HFB2006M」; 시코쿠 카세이 코교사 제조의 「P-d」, 「F-a」 등을 들 수 있다.

[0130] 시아네이트에스테르계 경화제로서는, 예를 들면, 비스페놀 A 디시아네이트, 폴리페놀시아네이트(올리고(3-메틸렌-1,5-페닐렌시아네이트)), 4,4'-메틸렌비스(2,6-디메틸페닐시아네이트), 4,4'-에틸리덴디페닐디시아네이트, 헥사플루오로비스페놀 A 디시아네이트, 2,2-비스(4-시아네이트)페닐프로판, 1,1-비스(4-시아네이트페닐메탄), 비스(4-시아네이트-3,5-디메틸페닐)메탄, 1,3-비스(4-시아네이트페닐-1-(메틸에틸리덴))벤젠, 비스(4-시아네이트페닐)티오에테르, 및 비스(4-시아네이트페닐)에테르 등의 2관능 시아네이트 수지, 페놀노볼락 및 크레졸노볼락 등으로부터 유도되는 다관능 시아네이트 수지, 이들 시아네이트 수지가 일부 트리아진화한 프리폴리머 등을 들 수 있다. 시아네이트에스테르계 경화제의 구체예로서는, 론자 재팬사 제조의 「PT30」 및 「PT60」(모두 페놀노볼락형 다관능 시아네이트에스테르 수지), 「BA230」, 「BA230S75」(비스페놀 A디시아네이트의 일부 또는 전부가 트리아진화되고 삼량체가 된 프리폴리머) 등을 들 수 있다.

[0131] 티올계 경화제로서는, 예를 들어, 트리메틸올프로판트리스(3-머캅토프로피오네이트), 펜타에리스리톨테트라키스(3-머캅토부틸레이트), 트리스(3-머캅토프로필)이소시아누레이트 등을 들 수 있다.

[0132] (E) 임의의 경화제의 활성기 당량은 바람직하게는 50g/eq. 내지 3000g/eq., 보다 바람직하게는 100g/eq. 내지 1000g/eq., 더욱 바람직하게는 100g/eq. 내지 500g/eq., 특히 바람직하게는 100g/eq. 내지 300g/eq.이다. 활성기 당량은, 활성기 1당량당의 경화제의 질량을 나타낸다.

[0133] 수지 조성물 중의 (E) 임의의 경화제의 양은, 수지 조성물의 불휘발 성분 100질량%에 대해, 0질량%라도 좋고, 0질량%보다 커도 좋고, 바람직하게는 0.01질량% 이상, 보다 바람직하게는 0.1질량% 이상, 특히 바람직하게는 1.0질량% 이상이며, 바람직하게는 20질량% 이하, 보다 바람직하게는 10질량% 이하, 특히 바람직하게는 5질량% 이하이다.

[0134] 수지 조성물 중의 (E) 임의의 경화제의 양은, 수지 조성물의 수지 성분 100질량%에 대해, 0질량%라도 좋고, 0질량%보다 커도 좋고, 바람직하게는 0.1질량% 이상, 보다 바람직하게는 1.0질량% 이상, 특히 바람직하게는 5.0질량% 이상이며, 바람직하게는 50질량% 이하, 보다 바람직하게는 40질량% 이하, 특히 바람직하게는 30질량% 이하이다.

[0135] [7. (F) 경화 촉진제]

[0136] 본 실시형태에 따른 수지 조성물은, 상술한 (A) 내지 (E) 성분에 조합하여, 임의의 성분으로서, 추가로 (F) 경화 촉진제를 포함하고 있어도 좋다. (F) 성분으로서의 (F) 경화 촉진제에는, 상술한 (A) 내지 (E) 성분에 해당

하는 것은 포함하지 않는다. (F) 경화 촉진제는, (B) 에폭시 수지의 경화를 촉진시키는 경화 촉매로서의 기능을 갖는다.

[0137] (F) 경화 촉진제로서는, 예를 들면, 인계 경화 촉진제, 우레아계 경화 촉진제, 구아니딘계 경화 촉진제, 이미다졸계 경화 촉진제, 금속계 경화 촉진제, 아민계 경화 촉진제 등을 들 수 있다. 그 중에서도, 이미다졸계 경화 촉진제가 바람직하다. (F) 경화 촉진제는 1종류를 단독으로 사용해도 좋고 2종류 이상을 조합하여 사용해도 좋다.

[0138] 인계 경화 촉진제로서는, 예를 들면, 테트라부틸포스포늄브로마이드, 테트라부틸포스포늄클로라이드, 테트라부틸포스포늄아세테이트, 테트라부틸포스포늄데카노에이트, 테트라부틸포스포늄라우레이트, 비스(테트라부틸포스포늄)피로멜리테이트, 테트라부틸포스포늄하이드로젠헥사하이드로프탈레이트, 테트라부틸포스포늄 2,6-비스[(2-하이드록시-5-메틸페닐)메틸]-4-메틸페놀레이트, 디-tert-부틸디메틸포스포늄테트라페닐보레이트 등의 지방족 포스포늄염; 메틸트리페닐포스포늄브로마이드, 에틸트리페닐포스포늄브로마이드, 프로필트리페닐포스포늄브로마이드, 부틸트리페닐포스포늄브로마이드, 벤질트리페닐포스포늄클로라이드, 테트라페닐포스포늄브로마이드, p-톨릴트리페닐포스포늄테트라-p-톨릴보레이트, 테트라페닐포스포늄테트라페닐보레이트, 테트라페닐포스포늄테트라p-톨릴보레이트, 트리페닐에틸포스포늄테트라페닐보레이트, 트리스(3-메틸페닐)에틸포스포늄테트라페닐보레이트, 트리스(2-메톡시페닐)에틸포스포늄테트라페닐보레이트, (4-메틸페닐)트리페닐포스포늄티오시아네이트, 테트라페닐포스포늄티오시아네이트, 부틸트리페닐포스포늄티오시아네이트 등의 방향족 포스포늄염; 트리페닐포스핀·트리페닐보란 등의 방향족 포스핀·보란 복합체; 트리페닐포스핀·p-벤조퀴논 부가 반응물 등의 방향족 포스핀·퀴논 부가 반응물; 트리부틸포스핀, 트리-tert-부틸포스핀, 트리옥틸포스핀, 디-tert-부틸(2-부테닐)포스핀, 디-tert-부틸(3-메틸-2-부테닐)포스핀, 트리사이클로헥실포스핀 등의 지방족 포스핀; 디부틸페닐포스핀, 디-tert-부틸페닐포스핀, 메틸디페닐포스핀, 에틸디페닐포스핀, 부틸디페닐포스핀, 디페닐사이클로헥실포스핀, 트리페닐포스핀, 트리-o-톨릴포스핀, 트리-m-톨릴포스핀, 트리-p-톨릴포스핀, 트리스(4-에틸페닐)포스핀, 트리스(4-프로필페닐)포스핀, 트리스(4-이소프로필페닐)포스핀, 트리스(4-부틸페닐)포스핀, 트리스(4-tert-부틸페닐)포스핀, 트리스(2,4-디메틸페닐)포스핀, 트리스(2,5-디메틸페닐)포스핀, 트리스(2,6-디메틸페닐)포스핀, 트리스(3,5-디메틸페닐)포스핀, 트리스(2,4,6-트리메틸페닐)포스핀, 트리스(2,6-디메틸-4-에톡시페닐)포스핀, 트리스(2-메톡시페닐)포스핀, 트리스(4-메톡시페닐)포스핀, 트리스(4-에톡시페닐)포스핀, 트리스(4-tert-부톡시페닐)포스핀, 디페닐-2-피리딜포스핀, 1,2-비스(디페닐포스피노)에탄, 1,3-비스(디페닐포스피노)프로판, 1,4-비스(디페닐포스피노)부탄, 1,2-비스(디페닐포스피노)아세틸렌, 2,2'-비스(디페닐포스피노)디페닐에테르 등의 방향족 포스핀 등을 들 수 있다.

[0139] 우레아계 경화 촉진제로서는, 예를 들면, 1,1-디메틸요소; 1,1,3-트리메틸요소, 3-에틸-1,1-디메틸요소, 3-사이클로헥실-1,1-디메틸요소, 3-사이클로옥틸-1,1-디메틸요소 등의 지방족 디메틸우레아; 3-페닐-1,1-디메틸요소, 3-(4-클로로페닐)-1,1-디메틸요소, 3-(3,4-디클로로페닐)-1,1-디메틸요소, 3-(3-클로로-4-메틸페닐)-1,1-디메틸요소, 3-(2-메틸페닐)-1,1-디메틸요소, 3-(4-메틸페닐)-1,1-디메틸요소, 3-(3,4-디메틸페닐)-1,1-디메틸요소, 3-(4-이소프로필페닐)-1,1-디메틸요소, 3-(4-메톡시페닐)-1,1-디메틸요소, 3-(4-니트로페닐)-1,1-디메틸요소, 3-[4-(4-메톡시페녹시)페닐]-1,1-디메틸요소, 3-[4-(4-클로로페녹시)페닐]-1,1-디메틸요소, 3-[3-(트리플루오로메틸)페닐]-1,1-디메틸요소, N,N-(1,4-페닐렌)비스(N',N'-디메틸요소), N,N-(4-메틸-1,3-페닐렌)비스(N',N'-디메틸요소)[톨루엔비스디메틸우레아] 등의 방향족 디메틸우레아 등을 들 수 있다.

[0140] 구아니딘계 경화 촉진제로서는, 예를 들면, 디시안디아미드, 1-메틸구아니딘, 1-에틸구아니딘, 1-사이클로헥실구아니딘, 1-페닐구아니딘, 1-(o-톨릴)구아니딘, 디메틸구아니딘, 디페닐구아니딘, 트리메틸구아니딘, 테트라메틸구아니딘, 펜타메틸구아니딘, 1,5,7-트리아자비사이클로[4.4.0]데카-5-엔, 7-메틸-1,5,7-트리아자비사이클로[4.4.0]데카-5-엔, 1-메틸비구아니드, 1-에틸비구아니드, 1-n-부틸비구아니드, 1-n-옥타데실비구아니드, 1,1-디메틸비구아니드, 1,1-디에틸비구아니드, 1-사이클로헥실비구아니드, 1-알릴비구아니드, 1-페닐비구아니드, 1-(o-톨릴)비구아니드 등을 들 수 있다.

[0141] 이미다졸계 경화 촉진제로서는, 예를 들면, 2-메틸이미다졸, 2-운데실이미다졸, 2-헵타데실이미다졸, 1,2-디메틸이미다졸, 2-에틸-4-메틸이미다졸, 1,2-디메틸이미다졸, 2-에틸-4-메틸이미다졸, 2-페닐이미다졸, 2-페닐-4-메틸이미다졸, 1-벤질-2-메틸이미다졸, 1-벤질-2-페닐이미다졸, 1-시아노에틸-2-메틸이미다졸, 1-시아노에틸-2-운데실이미다졸, 1-시아노에틸-2-에틸-4-메틸이미다졸, 1-시아노에틸-2-페닐이미다졸, 1-시아노에틸-2-운데실이미다졸륨트리멜리테이트, 1-시아노에틸-2-페닐이미다졸륨트리멜리테이트, 2,4-디아미노-6-[2'-메틸이미다졸릴-(1')]-에틸-s-트리아진, 2,4-디아미노-6-[2'-운데실이미다졸릴-(1')]-에틸-s-트리아진, 2,4-디아미노-6-[2'-에틸-4'-메틸이미다졸릴-(1')]-에틸-s-트리아진, 2,4-디아미노-6-[2'-메틸이미다졸릴-(1')]-에틸-s-트리아

진이소시아누르산 부가물, 2-페닐이미다졸이소시아누르산 부가물, 2-페닐-4,5-디하이드록시메틸이미다졸, 2-페닐-4-메틸-5-하이드록시메틸이미다졸, 2,3-디하이드로-1H-피롤로[1,2-a]벤즈이미다졸, 1-도데실-2-메틸-3-벤질이미다졸륨클로라이드, 2-메틸이미다졸린, 2-페닐이미다졸린 등의 이미다졸 화합물 및 이미다졸 화합물과 에폭시 수지의 어덕트체를 들 수 있다. 이미다졸계 경화 촉진제의 시판품으로서는, 예를 들면, 시코쿠 카세이 코교사 제조의 「1B2PZ」, 「2E4MZ」, 「2MZA-PW」, 「2MZ-OK」, 「2MA-OK」, 「2MA-OK-PW」, 「2PHZ」, 「2PHZ-PW」, 「C11Z」, 「C11Z-CN」, 「C11Z-CNS」, 「C11Z-A」; 미츠비시 케미컬사 제조의 「P200-H50」 등을 들 수 있다.

[0142] 금속계 경화 촉진제로서는, 예를 들면, 코발트, 구리, 아연, 철, 니켈, 망간, 주석 등의 금속의, 유기 금속 착체 또는 유기 금속염을 들 수 있다. 유기 금속 착체의 구체예로서는, 코발트(II) 아세틸아세토네이트, 코발트(III) 아세틸아세토네이트 등의 유기 코발트 착체, 구리(II) 아세틸아세토네이트 등의 유기 구리 착체, 아연(II) 아세틸아세토네이트 등의 유기 아연 착체, 철(III) 아세틸아세토네이트 등의 유기 철 착체, 니켈(II) 아세틸아세토네이트 등의 유기 니켈 착체, 망간(II) 아세틸아세토네이트 등의 유기 망간 착체 등을 들 수 있다. 유기 금속염으로서는, 예를 들면, 옥틸산아연, 옥틸산주석, 나프텐산아연, 나프텐산코발트, 스테아르산주석, 스테아르산아연 등을 들 수 있다.

[0143] 아민계 경화 촉진제로서는, 예를 들면, 트리에틸아민, 트리부틸아민 등의 트리알킬아민, 4-디메틸아미노피리딘, 벤질디메틸아민, 2,4,6,-트리스(디메틸아미노메틸)페놀, 1,8-디아자비사이클로(5,4,0)-운데센 등을 들 수 있다. 아민계 경화 촉진제로서는, 시판품을 사용해도 좋고, 예를 들면, 아지노모토 파인 테크노사 제조의 「MY-25」 등을 들 수 있다.

[0144] 수지 조성물 중의 (F) 경화 촉진제의 양은, 수지 조성물의 불휘발 성분 100질량%에 대해, 0질량%라도 좋고, 0질량%보다 커도 좋고, 바람직하게는 0.01질량% 이상, 보다 바람직하게는 0.02질량% 이상, 특히 바람직하게는 0.03질량% 이상이며, 바람직하게는 1.0질량% 이하, 보다 바람직하게는 0.5질량% 이하, 특히 바람직하게는 0.1질량% 이하이다.

[0145] 수지 조성물 중의 (F) 경화 촉진제의 양은, 수지 조성물의 수지 성분 100질량%에 대해, 0질량%라도 좋고, 0질량%보다 커도 좋고, 바람직하게는 0.01질량% 이상, 보다 바람직하게는 0.05질량% 이상, 특히 바람직하게는 0.1질량% 이상이고, 바람직하게는 2.0질량% 이하, 보다 바람직하게는 1.5질량% 이하, 특히 바람직하게는 1.0질량% 이하이다.

[0146] [8. (G) 열가소성 수지]

[0147] 본 실시형태에 따른 수지 조성물은, 상술한 (A) 내지 (F) 성분에 조합하여, 임의의 성분으로서, 추가로 (G) 열가소성 수지를 포함하고 있어도 좋다. (G) 성분으로서의 (G) 열가소성 수지에는, 상술한 (A) 내지 (F) 성분에 해당하는 것은 포함하지 않는다.

[0148] (G) 열가소성 수지로서는, 예를 들면, 페녹시 수지, 폴리이미드 수지, 폴리비닐아세탈 수지, 폴리올레핀 수지, 폴리부타디엔 수지, 폴리아미드이미드 수지, 폴리에테르이미드 수지, 폴리설폰 수지, 폴리에테르설폰 수지, 폴리페닐렌에테르 수지, 폴리카보네이트 수지, 폴리에테르에테르케톤 수지, 폴리에스테르 수지 등을 들 수 있다. (G) 열가소성 수지는 1종류 단독으로 사용해도 좋고 또는 2종류 이상을 조합하여 사용해도 좋다.

[0149] 페녹시 수지로서는, 예를 들면, 비스페놀 A 골격, 비스페놀 F 골격, 비스페놀 S 골격, 비스페놀아세토페논 골격, 노볼락 골격, 비페닐 골격, 플루오렌 골격, 디사이클로펜타디엔 골격, 노보넨 골격, 나프탈렌 골격, 안트라센 골격, 아다만탄 골격, 테르펜 골격, 및 트리메틸사이클로헥산 골격으로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종류 이상의 골격을 갖는 페녹시 수지를 들 수 있다. 페녹시 수지의 말단은, 페놀성 수산기, 에폭시기 등의 어느 관능기라도 좋다. 페녹시 수지의 구체예로서는, 미츠비시 케미컬사 제조의 「1256」 및 「4250」(모두 비스페놀 A 골격 함유 페녹시 수지); 미츠비시 케미컬사 제조의 「YX8100」(비스페놀 S 골격 함유 페녹시 수지); 미츠비시 케미컬사 제조의 「YX6954」(비스페놀아세토페논 골격 함유 페녹시 수지); 신닛테츠 스미킨 카가쿠사 제조의 「FX280」 및 「FX293」; 미츠비시 케미컬사 제조의 「YL7500BH30」, 「YX6954BH30」, 「YX7553」, 「YX7553BH30」, 「YL7769BH30」, 「YL6794」, 「YL7213」, 「YL7290」, 「YL7482」 및 「YL7891BH30」 등을 들 수 있다.

[0150] 폴리이미드 수지의 구체예로서는, 신에츠 카가쿠 코교사 제조 「SLK-6100」, 신니혼 리카사 제조의 「리카코트 SN20」 및 「리카코트 PN20」 등을 들 수 있다.

[0151] 폴리비닐아세탈 수지로서는, 예를 들면, 폴리비닐포르말 수지, 폴리비닐부티랄 수지를 들 수 있고, 폴리비닐부

티랄 수지가 바람직하다. 폴리비닐아세탈 수지의 구체예로서는, 덴키 카가쿠 코교사 제조의 「덴카 부티랄 4000-2」, 「덴카 부티랄 5000-A」, 「덴카 부티랄 6000-C」, 「덴카 부티랄 6000-EP」; 세키스이 카가쿠 코교사 제조의 에스렉 BH 시리즈, BX 시리즈(예를 들면 BX-5Z), KS 시리즈(예를 들면 KS-1), BL 시리즈, BM 시리즈 등을 들 수 있다.

[0152] 폴리올레핀 수지로서는, 예를 들면 저밀도 폴리에틸렌, 초저밀도 폴리에틸렌, 고밀도 폴리에틸렌, 에틸렌-아세트산비닐 공중합체, 에틸렌-아크릴산에틸 공중합체, 에틸렌-아크릴산메틸 공중합체 등의 에틸렌계 공중합 수지; 폴리프로필렌, 에틸렌-프로필렌 블록 공중합체 등의 폴리올레핀계 중합체 등을 들 수 있다.

[0153] 폴리부타디엔 수지로서는, 예를 들면, 수소화 폴리부타디엔 골격 함유 수지, 하이드록시기 함유 폴리부타디엔 수지, 페놀성 수산기 함유 폴리부타디엔 수지, 카복시기 함유 폴리부타디엔 수지, 산 무수물기 함유 폴리부타디엔 수지, 에폭시기 함유 폴리부타디엔 수지, 이소시아네이트기 함유 폴리부타디엔 수지, 우레탄기 함유 폴리부타디엔 수지, 폴리페닐렌에테르-폴리부타디엔 수지 등을 들 수 있다.

[0154] 폴리아미드이미드 수지의 구체예로서는, 토요보사 제조의 「바이로맥스 HR11NN」 및 「바이로맥스 HR16NN」을 들 수 있다. 폴리아미드이미드 수지의 구체예로서는 또한, 히타치 카세이사 제조의 「KS9100」, 「KS9300」(폴리실록산 골격 함유 폴리아미드이미드) 등의 변성 폴리아미드이미드를 들 수 있다.

[0155] 폴리에테르설폰 수지의 구체예로서는, 스미토모 카가쿠사 제조의 「PES5003P」 등을 들 수 있다.

[0156] 폴리설폰 수지의 구체예로서는, 솔베이 어드밴스트 폴리머즈사 제조의 폴리설폰 「P1700」, 「P3500」 등을 들 수 있다.

[0157] 폴리페닐렌에테르 수지의 구체예로서는, SABIC 제조 「NORYL SA90」 등을 들 수 있다. 폴리에테르이미드 수지의 구체예로서는, GE사 제조의 「울템」 등을 들 수 있다.

[0158] 폴리카보네이트 수지로서는, 예를 들면, 하이드록시기 함유 카보네이트 수지, 페놀성 수산기 함유 카보네이트 수지, 카복시기 함유 카보네이트 수지, 산 무수물기 함유 카보네이트 수지, 이소시아네이트기 함유 카보네이트 수지, 우레탄기 함유 카보네이트 수지 등을 들 수 있다. 폴리카보네이트 수지의 구체예로서는, 미츠비시 가스 카가쿠사 제조의 「FPC0220」, 아사히 카세이 케미컬즈사 제조의 「T6002」, 「T6001」(폴리카보네이트디올), 쿠라레사 제조의 「C-1090」, 「C-2090」, 「C-3090」(폴리카보네이트디올) 등을 들 수 있다. 폴리에테르에테르케톤 수지의 구체예로서는, 스미토모 카가쿠사 제조의 「스미프로이 K」 등을 들 수 있다.

[0159] 폴리에스테르 수지로서는, 예를 들면, 폴리에틸렌테레프탈레이트 수지, 폴리에틸렌나프탈레이트 수지, 폴리부틸렌테레프탈레이트 수지, 폴리부틸렌나프탈레이트 수지, 폴리트리메틸렌테레프탈레이트 수지, 폴리트리메틸렌나프탈레이트 수지, 폴리사이클로헥산디메틸테레프탈레이트 수지 등을 들 수 있다.

[0160] (G) 열가소성 수지의 중량 평균 분자량(Mw)은 바람직하게는 5,000보다 크고, 보다 바람직하게는 8,000 이상, 더욱 바람직하게는 10,000 이상, 특히 바람직하게는 20,000 이상이며, 바람직하게는 100,000 이하, 보다 바람직하게는 70,000 이하, 더욱 바람직하게는 60,000 이하, 특히 바람직하게는 50,000 이하이다.

[0161] 수지 조성물 중의 (G) 열가소성 수지의 양은, 수지 조성물의 불휘발 성분 100질량%에 대해, 0질량%라도 좋고, 0질량%보다 커도 좋고, 바람직하게는 0.01질량% 이상, 보다 바람직하게는 0.02질량% 이상, 특히 바람직하게는 0.03질량% 이상이며, 바람직하게는 1.0질량% 이하, 보다 바람직하게는 0.5질량% 이하, 특히 바람직하게는 0.1질량% 이하이다.

[0162] 수지 조성물 중의 (G) 열가소성 수지의 양은, 수지 조성물의 수지 성분 100질량%에 대해, 0질량%라도 좋고, 0질량%보다 커도 좋고, 바람직하게는 0.01질량% 이상, 보다 바람직하게는 0.05질량% 이상, 특히 바람직하게는 0.1질량% 이상이고, 바람직하게는 2.0질량% 이하, 보다 바람직하게는 1.5질량% 이하, 특히 바람직하게는 1.0질량% 이하이다.

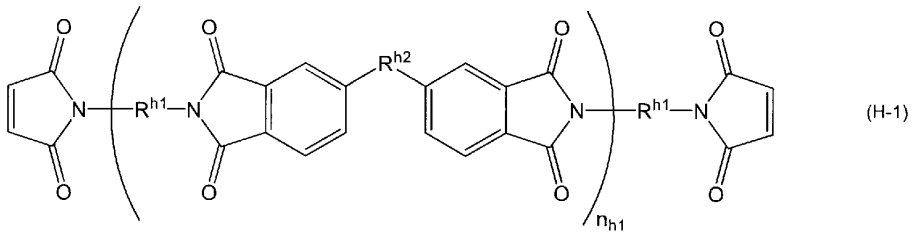
[0163] [9. (H) 말레이미드 수지]

[0164] 본 실시형태에 따른 수지 조성물은, 상술한 (A) 내지 (G) 성분에 조합하여, 임의의 성분으로서, 추가로 (H) 말레이미드 수지를 포함하고 있어도 좋다. (H) 성분으로서의 (H) 말레이미드 수지에는, 상술한 (A) 내지 (G) 성분에 해당하는 것은 포함하지 않는다. 말레이미드 수지로서는, 1분자 중에 적어도 1개, 바람직하게는 2개 이상의 말레이미드기(2,5-디하이드로-2,5-디옥소-1H-피롤-1-일기)를 함유하는 화합물을 사용할 수 있다. (H) 말레이미드 수지는, 이미다졸 화합물 등의 적절한 촉매의 존재하에 (B) 에폭시 수지와 반응할 수 있다. 또한, (H) 말레

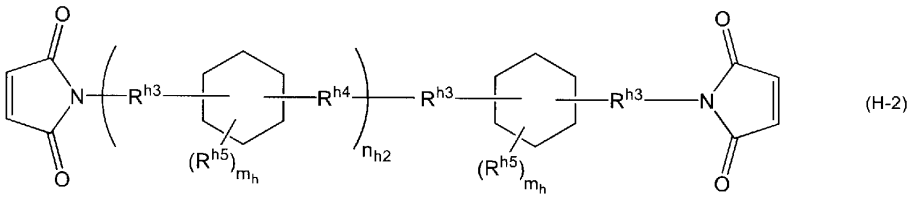
이미드 수지는, 말레이미드기가 함유하는 에틸렌성 이중 결합이 라디칼 중합을 일으킬 수 있다. 따라서, (H) 말레이미드 수지는, 이러한 반응에 의해 수지 조성물을 열경화시킬 수 있다. (H) 말레이미드 수지를 사용하는 경우, 수지 조성물의 경화물의 유전 정접을 특히 효과적으로 저감할 수 있다.

[0165] (H) 말레이미드 수지로서는, 지방족 아민 골격을 포함하는 지방족 말레이미드 수지를 사용해도 좋고, 방향족 아민 골격을 포함하는 방향족 말레이미드 수지를 사용해도 좋고, 이들의 조합을 사용해도 좋다. 또한, (H) 말레이미드 수지는 1종류를 단독으로 사용해도 좋고 2종류 이상을 조합하여 사용해도 좋다.

[0166] (H) 말레이미드 수지는, 하기 식 (H-1)로 표시되는 말레이미드 수지, 및 하기 식 (H-2)로 표시되는 말레이미드 수지로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종류 이상이 바람직하다.



(H-1)



(H-2)

[0167]

[0168] (식 (H-1)에서, R^{h1}은 각각 독립적으로 치환기를 갖고 있어도 좋은 탄소 원자수가 5 이상인 2가의 지방족기를 나타내고, R^{h2}는 각각 독립적으로, 산소 원자, 아릴렌기, 알킬렌기, 또는 이러한 기의 2 이상의 조합으로 이루어지는 2가의 기를 나타낸다. n_{h1}은 1 내지 15의 정수를 나타낸다.

[0169] 식 (H-2)에서, R^{h3}은 각각 독립적으로 치환기를 갖고 있어도 좋은 탄소 원자수가 5 이상인 2가의 지방족기를 나타내고, R^{h4}는 각각 독립적으로 치환기를 갖고 있어도 좋은 방향환을 갖는 2가의 기를 나타내고, R^{h5}는 각각 독립적으로 탄소 원자수가 5 이상인 알킬기를 나타낸다. n_{h2}는 0 내지 10의 정수를 나타내고, m_h는 각각 독립적으로 0 내지 4의 정수를 나타낸다.)

[0170] R^{h1}은 각각 독립적으로 치환기를 갖고 있어도 좋은 탄소 원자수가 5 이상인 2가의 지방족기를 나타낸다. 탄소 원자수가 5 이상인 2가의 지방족기의 탄소 원자수는 바람직하게는 6 이상, 보다 바람직하게는 8 이상, 바람직하게는 50 이하, 보다 바람직하게는 45 이하, 더욱 바람직하게는 40 이하이다. 이러한 2가의 지방족기는, 직쇄상, 분기쇄상, 환상 중 어느 것이라도 좋고, 그 중에서도 직쇄상이 바람직하다. 여기서, 환상의 지방족기란, 환상의 지방족기만으로 이루어지는 경우와, 직쇄상의 지방족기와 환상의 지방족기의 양쪽을 포함하는 경우도 포함하는 개념이다. 2가의 지방족기로서는, 알킬렌기, 알케닐렌기 등을 들 수 있다.

[0171] 이러한 알킬렌기로서는, 예를 들면, 펜틸렌기, 헥실렌기, 헵틸티닐렌기, 옥틸렌기, 노닐렌기, 데실렌기, 운데실렌기, 도데실렌기, 트리데실렌기, 헵타데실렌기, 헥사트리아콘틸렌기, 옥틸렌-사이클로헥실렌 구조를 갖는 기, 옥틸렌-사이클로헥실렌-옥틸렌 구조를 갖는 기, 프로필렌-사이클로헥실렌-옥틸렌 구조를 갖는 기 등을 들 수 있고, 헥사트리아콘틸렌기가 바람직하다.

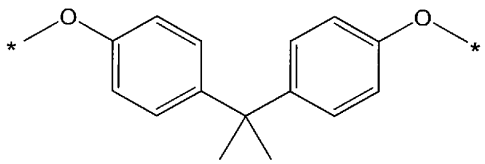
[0172] 알케닐렌기로서는, 예를 들면, 펜티닐렌기, 헥시닐렌기, 헵틸레닐렌기, 옥티닐렌기, 노니닐렌기, 데시닐렌기, 운데시닐렌기, 도데시닐렌기, 트리데시닐렌기, 헵타데시닐렌기, 헥사트리아콘티닐렌기, 옥티닐렌-사이클로헥시닐렌 구조를 갖는 기, 옥티닐렌-사이클로헥시닐렌-옥티닐렌 구조를 갖는 기, 프로피닐렌-사이클로헥시닐렌-옥티닐렌 구조를 갖는 기 등을 들 수 있고, 헥사트리아콘티닐렌기가 바람직하다.

[0173] 2가의 지방족기의 치환기로서는, 예를 들면, 할로겐 원자, -OH, -O-C_{1-10}알킬기, -N(C_{1-10}알킬기)$_2$, C_{1-10}알킬기, C_{2-30}알케닐기, C_{2-30}알키닐기, C_{6-10}아릴기, $-NH_2$, -CN, -C(O)O-C_{1-10}알킬기, -COOH, -C(O)H, $-NO_2$ 등을 들 수 있다.

여기서, 「C_{x-y}」(x 및 y는 양의 정수이고, x<y를 충족한다)라는 용어는, 이 용어의 직후에 기재된 유기기의 탄소 원자수가 x 내지 y인 것을 나타낸다. 예를 들어, 「C_{1-10}알킬기」라는 표현은, 탄소 원자수 1 내지 10의 알킬기를 나타낸다. 이들 치환기는 서로 결합하여 환을 형성하고 있어도 좋으며, 환 구조는, 스피로환이나 축합환을 또한 포함한다. 치환기는 바람직하게는 탄소수 원자가 5 이상인 알킬기이다.

[0174] R^{h2}는 각각 독립적으로, 산소 원자, 아릴렌기, 알킬렌기, 또는 이러한 기의 2 이상의 조합으로 이루어지는 2가의 기를 나타낸다. R^{h2}로서는, 이러한 기의 2 이상의 조합으로 이루어진 2가의 기 또는 산소 원자인 것이 바람직하다.

[0175] 이러한 기의 2 이상의 조합으로 이루어진 2가의 기로서는, 산소 원자, 아릴렌기, 및 알킬렌기의 조합을 들 수 있다. 이러한 기의 2 이상의 조합으로 이루어진 2가의 기의 구체예로서는 이하의 기를 들 수 있다. 식에서, 「*」는 결합손을 나타낸다.



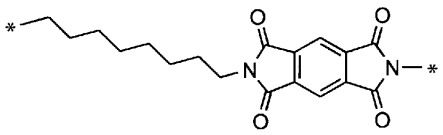
[0176]

[0177] n_{h1}은 1 내지 15의 정수를 나타내고, 1 내지 10의 정수를 나타내는 것이 바람직하다.

[0178] R^{h3}은 각각 독립적으로 치환기를 갖고 있어도 좋은 탄소 원자수가 5 이상인 2가의 지방족기를 나타낸다. R^{h3}은, R^{h1}이 나타내는 치환기를 갖고 있어도 좋은 탄소 원자수가 5 이상인 2가의 지방족기와 동일하고, 헥실렌기, 헵틸렌기, 옥틸렌기, 노닐렌기, 데실렌기가 바람직하고, 옥틸렌기가 보다 바람직하다.

[0179] R^{h4}는 각각 독립적으로 치환기를 갖고 있어도 좋은 방향환을 갖는 2가의 기를 나타낸다. R^{h4}는, 알킬렌기 및 피로멜리트산디이미드 유래의 2가의 기의 조합으로 이루어진 기; 프탈이미드 유래의 2가의 기 및 알킬렌기의 조합으로 이루어진 기가 바람직하고, 알킬렌기 및 피로멜리트산디이미드 유래의 2가의 기의 조합으로 이루어진 기가 보다 바람직하다.

[0180] R^{h4}가 나타내는 기의 구체예로서는, 예를 들면 이하의 기를 들 수 있다. 식에서, 「*」는 결합손을 나타낸다.

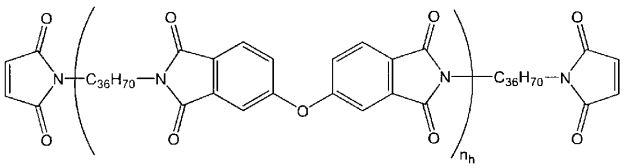


[0181]

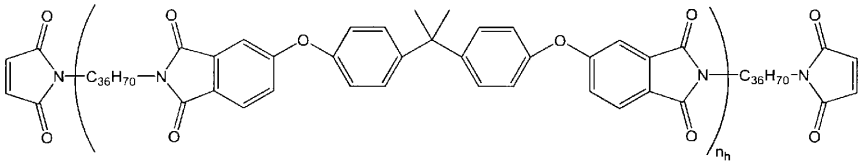
[0182] R^{h5}는 각각 독립적으로 탄소 원자수가 5 이상인 알킬기를 나타낸다. 탄소 원자수가 5 이상인 알킬기의 탄소 원자수는 바람직하게는 6 이상, 보다 바람직하게는 8 이상, 바람직하게는 50 이하, 보다 바람직하게는 45 이하, 더욱 바람직하게는 40 이하이다. 이 알킬기는, 직쇄상, 분기쇄상, 환상 중 어느 것이라도 좋고, 그 중에서도 직쇄상이 바람직하다. 이러한 알킬기로서는, 예를 들면, 펜틸기, 헥실기, 헵틸기, 옥틸기, 노닐기, 데실기 등을 들 수 있다. 탄소 원자수가 5 이상인 알킬기는, 탄소 원자수가 5 이상인 알킬렌기의 치환기로서 갖고 있어도 좋다. 그 중에서도, 헥실기, 헵틸기, 옥틸기, 노닐기, 데실기가 바람직하고, 헥실기, 옥틸기가 보다 바람직하다.

[0183] m_h는, 0 내지 4의 정수를 나타내고, 1 내지 3의 정수가 바람직하고, 2가 보다 바람직하다.

[0184] (H) 말레이미드 수지의 구체예로서는, 이하의 (h-1) 내지 (h-4)의 화합물을 들 수 있다. 단, (H) 말레이미드 수지는 이들 구체예에 한정되는 것은 아니다. 식에서, n_h는 1 내지 10의 정수를 나타낸다.

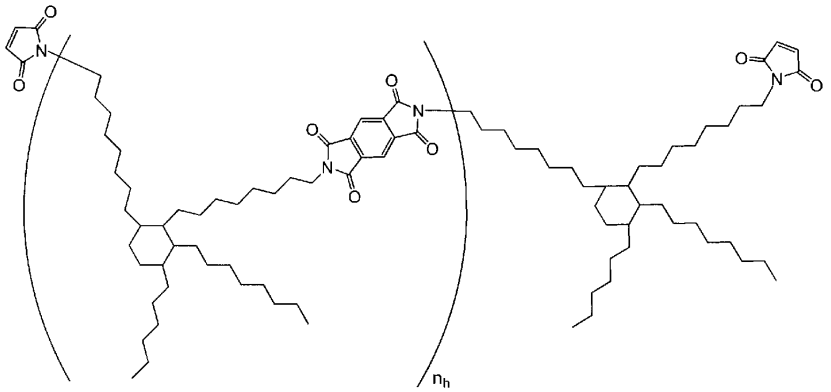


(h-1)

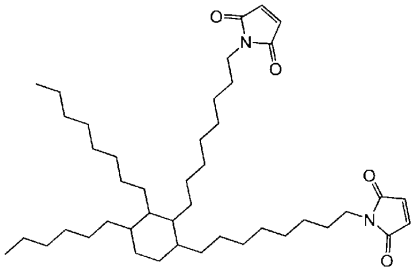


(h-2)

[0185]



(h-3)



(h-4)

[0186]

[0187] (H) 말레이미드 수지의 구체예로서는, 디자이너 몰레큘즈사 제조의 「BMI1500」, 신에츠 카가쿠 코교사 제조 「SLK-1500-T80」(식 (h-1)의 화합물); 「BMI1700」(식 (h-2)의 화합물); 「BMI3000J」(식 (h-3)의 화합물); 디자이너 몰레큘즈사 제조의 「BMI689」 및 신에츠 카가쿠 코교사 제조 「SLK-6895-T90」(식 (h-4)의 화합물); 신에츠 카가쿠 코교사 제조의 「SLK-2600」, 디자이너 몰레큘즈사 제조의 「BMI-2500」(다이머디아민 구조 함유 말레이미드 수지); 디자이너 몰레큘즈사 제조의 「BMI-6100」(방향족 말레이미드 수지); 니혼 카야쿠사 제조의 「MIR-5000-60T」, 「MIR-3000-70MT」(비페닐아르알킬형 말레이미드 수지); 케이 아이 카세이사 제조의 「BMI-70」, 「BMI-80」, 다이와 카세이 코교사 제조 「BMI-2300」, 「BMI-TMH」 등을 들 수 있다. 또한, (H) 말레이미드 수지로서는, 예를 들면, 발명 협회 공개 기보 공기 번호 2020-500211호에 개시되어 있는 말레이미드 수지(인단환 골격 함유 말레이미드 수지)도 들 수 있다.

[0188] (H) 말레이미드 수지의 중량 평균 분자량(Mw)은 바람직하게는 150 내지 5000, 보다 바람직하게는 300 내지 2500이다.

[0189] (H) 말레이미드 수지의 말레이미드기 당량은 바람직하게는 50g/eq. 내지 2000g/eq., 보다 바람직하게는 100g/eq. 내지 1000g/eq., 더욱 바람직하게는 150g/eq. 내지 500g/eq.이다. 말레이미드기 당량은, 1당량의 말레이미드기를 포함하는 (H) 말레이미드 수지의 질량을 나타낸다.

[0190] 수지 조성물 중의 (H) 말레이미드 수지의 양은, 수지 조성물 중의 불휘발 성분 100질량%에 대해, 0질량%라도 좋고, 0질량%보다 커도 좋고, 바람직하게는 0.01질량% 이상, 보다 바람직하게는 0.02질량% 이상, 특히 바람직하게는 0.03질량% 이상이며, 바람직하게는 5질량% 이하, 보다 바람직하게는 2질량% 이하, 특히 바람직하게는 1질량% 이하이다. (H) 말레이미드 수지의 양이 상기 범위에 있는 경우, 수지 조성물의 경화물의 유전 정접을 특히 효과

적으로 저감할 수 있다.

[0191] 수지 조성물 중의 (H) 말레이미드 수지의 양은, 수지 조성물의 수지 성분 100질량%에 대해, 0질량%라도 좋고, 0질량%보다 커도 좋고, 바람직하게는 0.01질량% 이상, 보다 바람직하게는 0.05질량% 이상, 특히 바람직하게는 0.1질량% 이상이며, 바람직하게는 5질량% 이하, 보다 바람직하게는 2질량% 이하, 특히 바람직하게는 1질량% 이하이다. (H) 말레이미드 수지의 양이 상기 범위에 있는 경우, 수지 조성물의 경화물의 유전 정접을 특히 효과적으로 저감할 수 있다.

[0192] [10. (I) 임의의 첨가제]

[0193] 본 실시형태에 따른 수지 조성물은, 상술한 (A) 내지 (H) 성분에 조합하여, 추가로 임의의 불휘발 성분으로서, (I) 임의의 첨가제를 포함하고 있어도 좋다. (I) 임의의 첨가제로서는, 예를 들어, 에폭시 수지 이외의 열경화성 수지; 고무 입자 등의 유기 충전재; 유기 구리 화합물, 유기 아연 화합물, 유기 코발트 화합물 등의 유기 금속 화합물; 프탈로시아닌 블루, 프탈로시아닌 그린, 아이오딘 그린, 디아조 옐로우, 크리스탈 바이올렛, 산화티탄, 카본 블랙 등의 착색제; 하이드로퀴논, 카테콜, 피로갈롤, 페노티아진 등의 중합 금지제; 실리콘계 레벨링제, 아크릴폴리머계 레벨링제 등의 레벨링제; 벤톤, 몬모릴로나이트 등의 증점제; 실리콘계 소포제, 아크릴계 소포제, 불소계 소포제, 비닐 수지계 소포제 등의 소포제; 벤조트리아졸계 자외선 흡수제 등의 자외선 흡수제; 요소실란 등의 접착성 향상제; 트리아졸계 밀착성 부여제, 테트라졸계 밀착성 부여제, 트리아진계 밀착성 부여제 등의 밀착성 부여제; 힌더드페놀계 산화 방지제 등의 산화 방지제; 스틸벤 유도체 등의 형광 증백제; 불소계 계면활성제, 실리콘계 계면활성제 등의 계면활성제; 인계 난연제(예를 들면 인산에스테르 화합물, 포스파젠 화합물, 포스핀산 화합물, 적린), 질소계 난연제(예를 들어 황산멜라민), 할로겐계 난연제, 무기계 난연제(예를 들어 삼산화안티몬) 등의 난연제; 인산에스테르계 분산제, 폴리옥시알킬렌계 분산제, 아세틸렌계 분산제, 실리콘계 분산제, 음이온성 분산제, 양이온성 분산제 등의 분산제; 보레이트계 안정제, 티타네이트계 안정제, 알루미네이트계 안정제, 지르코네이트계 안정제, 이소시아네이트계 안정제, 카복실산계 안정제, 카복실산 무수물계 안정제 등의 안정제를 들 수 있다. (I) 임의의 첨가제는 1종류를 단독으로 사용해도 좋고 2종류 이상을 조합하여 사용해도 좋다.

[0194] [11. (J) 용제]

[0195] 본 실시형태에 따른 수지 조성물은, 상술한 (A) 내지 (I) 성분과 같은 불휘발 성분에 조합하여, 추가로 임의의 휘발성 성분으로서, (J) 용제를 포함하고 있어도 좋다. (J) 용제로서는, 통상, 유기 용제를 사용한다. 유기 용제로서는, 예를 들면, 아세톤, 메틸에틸케톤, 메틸이소부틸케톤, 사이클로헥사논 등의 케톤계 용제; 아세트산메틸, 아세트산에틸, 아세트산부틸, 아세트산이소부틸, 아세트산이소아밀, 프로피온산메틸, 프로피온산에틸, γ-부티로락톤 등의 에스테르계 용제; 테트라하이드로피란, 테트라하이드로푸란, 1,4-디옥산, 디에틸에테르, 디이소프로필에테르, 디부틸에테르, 디페닐에테르, 아니솔 등의 에테르계 용제; 메탄올, 에탄올, 프로판올, 부탄올, 에틸렌글리콜 등의 알코올계 용제; 아세트산 2-에톡시에틸, 프로필렌글리콜모노메틸에테르아세테이트, 디에틸렌글리콜모노에틸에테르아세테이트, 에틸디글리콜아세테이트, γ-부티로락톤, 메톡시프로피온산메틸 등의 에테르에스테르계 용제; 락트산메틸, 락트산에틸, 2-하이드록시이소부티르산메틸 등의 에스테르알코올계 용제; 2-메톡시프로판올, 2-메톡시에탄올, 2-에톡시에탄올, 프로필렌글리콜모노메틸에테르, 디에틸렌글리콜모노부틸에테르(부틸카비톨) 등의 에테르알코올계 용제; N,N-디메틸포름아미드, N,N-디메틸아세트아미드, N-메틸-2-피롤리돈 등의 아미드계 용제; 디메틸설폭시드 등의 설폭시드계 용제; 아세토니트릴, 프로피오니트릴 등의 니트릴계 용제; 헥산, 사이클로펜탄, 사이클로헥산, 메틸사이클로헥산 등의 지방족 탄화수소계 용제; 벤젠, 톨루엔, 크실렌, 에틸벤젠, 트리메틸벤젠 등의 방향족 탄화수소계 용제 등을 들 수 있다. (J) 용제는 1종류를 단독으로 사용해도 좋고 2종류 이상을 조합하여 사용해도 좋다.

[0196] (J) 용제의 양은, 특별히 한정되는 것은 아니지만, 수지 조성물의 전체 성분 100질량%에 대해, 예를 들면, 60질량% 이하, 40질량% 이하, 30질량% 이하, 20질량% 이하, 15질량% 이하, 10질량% 이하 등일 수 있고, 0질량%라도 좋다.

[0197] [12. 수지 조성물의 제조 방법]

[0198] 본 실시형태에 따른 수지 조성물은, 예를 들면, 상술한 성분을 혼합함으로써 제조할 수 있다. 상술한 성분은 일부 또는 전부를 동시에 혼합해도 좋고 순서대로 혼합해도 좋다. 각 성분을 혼합하는 과정에서 온도를 적절히 설정해도 좋으며, 따라서, 일시적으로 또는 종시에 걸쳐 가열 및/또는 냉각해도 좋다. 또한, 각 성분을 혼합하는 과정에서, 교반 또는 진탕을 행해도 좋다.

[0199] [13. 수지 조성물의 물성]

[0200] 본 실시형태에 따른 수지 조성물은 유전 정접이 낮은 경화물을 얻을 수 있다. 예를 들면, 후술하는 실시예의 [시험예 1: 유전 정접의 측정]에서 설명하는 조건으로 수지 조성물의 경화물의 유전 정접의 측정을 행하는 경우에, 낮은 유전 정접을 얻을 수 있다. 경화물의 유전 정접은 바람직하게는 0.0040 이하, 보다 바람직하게는 0.0035 이하, 더욱 바람직하게는 0.0033 이하, 특히 바람직하게는 0.0030 이하이다. 하한은, 특별히 제한되지 않으며, 예를 들면, 0.0010 이상일 수 있다.

[0201] 본 실시형태에 따른 수지 조성물은, 균열의 발생을 억제 가능한 경화물을 얻을 수 있다. 예를 들면, 후술하는 실시예의 [시험예 2: 균열 평가 시험]에서 설명하는 조건으로 수지 조성물의 경화물에서의 균열의 발생 빈도의 지표로서 수율을 측정하는 경우, 그 수율을 바람직하게는 40% 이상, 보다 바람직하게는 60% 이상, 특히 바람직하게는 80% 이상으로 할 수 있다.

[0202] 본 실시형태에 따른 수지 조성물은, 파단점 신도가 큰 경화물을 얻을 수 있다. 예를 들면, 후술하는 실시예의 [시험예 3: 파단점 신도의 측정]에서 설명하는 조건으로 수지 조성물의 경화물의 파단점 신도를 측정하는 경우에, 큰 파단점 신도를 얻을 수 있다. 경화물의 파단점 신도는 바람직하게는 1.2% 이상, 보다 바람직하게는 1.4% 이상, 특히 바람직하게는 1.6% 이상이다. 상한은, 특별히 제한되지 않으며, 예를 들면 10% 이하일 수 있다.

[0203] [14. 수지 조성물의 용도]

[0204] 본 실시형태에 따른 수지 조성물은, 절연 용도의 수지 조성물로서 사용할 수 있고, 특히, 절연층을 형성하기 위한 수지 조성물(절연층 형성용의 수지 조성물)로서 적합하게 사용할 수 있다. 예를 들어, 본 실시형태에 따른 수지 조성물은, 프린트 배선판의 절연층을 형성하기 위한 수지 조성물로서 사용할 수 있고, 층간 절연층을 형성하기 위한 수지 조성물(층간 절연 용도의 수지 조성물)로서 적합하게 사용할 수 있다.

[0205] 또한, 본 실시형태에 따른 수지 조성물은, 재배선 형성층을 형성하기 위한 수지 조성물(재배선 형성층 형성용의 수지 조성물)로서 사용해도 좋다. 재배선 형성층이란, 재배선층을 형성하기 위한 절연층을 나타낸다. 또한, 재배선층이란, 절연층으로서의 재배선 형성층 위에 형성되는 도체층을 나타낸다. 예를 들어, 이하의 (1) 내지 (6) 공정을 거쳐 반도체 칩 패키지가 제조되는 경우, 본 실시형태에 따른 수지 조성물은, 재배선 형성층을 형성하기 위한 수지 조성물로서 사용해도 좋다. 또한, 하기 (1) 내지 (6) 공정에 의해 반도체 칩 패키지가 제조될 때, 밀봉층 위에 추가로 재배선층을 형성해도 좋다.

[0206] (1) 기재에 가고정 필름을 적층하는 공정,

[0207] (2) 반도체 칩을, 가고정 필름 위에 가고정하는 공정,

[0208] (3) 반도체 칩 위에 밀봉층을 형성하는 공정,

[0209] (4) 기재 및 가고정 필름을 반도체 칩으로부터 박리하는 공정,

[0210] (5) 반도체 칩의 기재 및 가고정 필름을 박리한 면에, 절연층으로서의 재배선 형성층을 형성하는 공정, 및

[0211] (6) 재배선 형성층 위에, 도체층으로서의 재배선층을 형성하는 공정

[0212] 또한, 본 실시형태에 따른 수지 조성물은, 예를 들면, 수지 시트, 프리프레그 등의 시트상 적층 재료, 솔더 레지스트, 언더필재, 다이 본딩재, 반도체 밀봉재, 구멍 메우기 수지, 부품 매립 수지 등, 수지 조성물이 사용되는 용도에서 광범위하게 사용할 수 있다.

[0213] [15. 시트상 적층 재료]

[0214] 본 실시형태에 따른 수지 조성물은, 바니시 상태로 도포하여 사용해도 좋지만, 공업적으로는, 당해 수지 조성물을 함유하는 시트상 적층 재료의 형태로 사용하는 것이 적합하다.

[0215] 시트상 적층 재료로서는, 이하에 나타내는 수지 시트, 프리프레그가 바람직하다.

[0216] 일 실시형태에서, 수지 시트는, 지지체와, 당해 지지체 위에 마련된 수지 조성물층을 포함한다. 수지 조성물층은 본 실시형태에 따른 수지 조성물로 형성되어 있다. 따라서, 수지 조성물층은 통상 수지 조성물을 포함하고, 바람직하게는 수지 조성물만을 포함한다.

[0217] 수지 조성물층의 두께는, 프린트 배선판의 박형화, 및 당해 수지 조성물의 경화물이 박막이라도 절연성이 뛰어난 경화물을 제공할 수 있다는 관점에서, 바람직하게는 50㎛ 이하, 보다 바람직하게는 40㎛ 이하이다. 수지 조

성물층의 두께의 하한은, 특별히 한정되지 않지만, 5㎛ 이상, 10㎛ 이상 등일 수 있다.

[0218] 지지체로서는, 예를 들면, 플라스틱 재료로 이루어진 필름, 금속박, 이형지를 들 수 있고, 플라스틱 재료로 이루어진 필름, 금속박이 바람직하다.

[0219] 지지체로서 플라스틱 재료로 이루어진 필름을 사용하는 경우, 플라스틱 재료로서는, 예를 들면, 폴리에틸렌테레프탈레이트(이하 「PET」로 약칭하는 경우가 있다), 폴리에틸렌나프탈레이트(이하 「PEN」으로 약칭하는 경우가 있다) 등의 폴리에스테르, 폴리카보네이트(이하 「PC」로 약칭하는 경우가 있다), 폴리메틸메타크릴레이트(PMMA) 등의 아크릴, 환상 폴리올레핀, 트리아세틸셀룰로오스(TAC), 폴리에테르설파이드(PES), 폴리에테르케톤, 폴리이미드 등을 들 수 있다. 그 중에서도, 폴리에틸렌테레프탈레이트, 폴리에틸렌나프탈레이트가 바람직하고, 저렴한 폴리에틸렌테레프탈레이트가 특히 바람직하다.

[0220] 지지체로서 금속박을 사용하는 경우, 금속박으로서는, 예를 들면, 동박, 알루미늄박 등을 들 수 있고, 동박이 바람직하다. 동박으로서는, 구리의 단금속으로 이루어진 박을 사용해도 좋고, 구리와 다른 금속(예를 들면, 주석, 크롬, 은, 마그네슘, 니켈, 지르코늄, 규소, 티탄 등)의 합금으로 이루어진 박을 사용해도 좋다.

[0221] 지지체는, 수지 조성물층과 접합하는 면에 매트 처리, 코로나 처리, 대전 방지 처리를 실시해도 좋다.

[0222] 지지체로서, 수지 조성물층과 접합하는 면에 이형층을 갖는 이형층 부착 지지체를 사용해도 좋다. 이형층 부착 지지체의 이형층에 사용하는 이형제로서는, 예를 들면, 알키드 수지, 폴리올레핀 수지, 우레탄 수지, 및 실리콘 수지로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상의 이형제를 들 수 있다. 이형층 부착 지지체는, 시판품을 사용해도 좋고, 예를 들어, 알키드 수지계 이형제를 주성분으로 하는 이형층을 갖는 PET 필름인, 린텍사 제조의 「SK-1」, 「AL-5」, 「AL-7」, 토레사 제조의 「루미라 T60」, 테이진사 제조의 「퓨렉스」, 유니티카사 제조의 「유니필」 등을 들 수 있다.

[0223] 지지체의 두께는, 특별히 한정되지 않지만, 5㎛ 내지 75㎛의 범위가 바람직하고, 10㎛ 내지 60㎛의 범위가 보다 바람직하다. 또한, 이형층 부착 지지체를 사용하는 경우, 이형층 부착 지지체 전체의 두께가 상기 범위인 것이 바람직하다.

[0224] 일 실시형태에서, 수지 시트는, 추가로 필요에 따라, 임의의 층을 포함하고 있어도 좋다. 이러한 임의의 층으로서는, 예를 들면, 수지 조성물층의 지지체와 접합하고 있지 않은 면(즉, 지지체와는 반대측의 면)에 마련된, 지지체에 준한 보호 필름 등을 들 수 있다. 보호 필름의 두께는, 특별히 한정되는 것은 아니지만, 예를 들면, 1㎛ 내지 40㎛이다. 보호 필름을 적층함으로써, 수지 조성물층의 표면으로의 먼지의 부착이나 흠집을 억제할 수 있다.

[0225] 수지 시트는, 예를 들면, 액상(바니시상)의 수지 조성물을 그대로, 또는 용제에 수지 조성물을 용해하여 액상(바니시상)의 수지 조성물을 조제하고, 이를 다이 코터 등을 사용하여 지지체 위에 도포하고, 추가로 건조시켜 수지 조성물층을 형성시킴으로써 제조할 수 있다.

[0226] 용제로서는, 수지 조성물의 성분으로서 설명한 용제와 동일한 것을 들 수 있다. 용제는 1종류를 단독으로 사용해도 좋고 2종류 이상을 조합하여 사용해도 좋다.

[0227] 건조는, 가열, 열풍 분사 등의 방법에 의해 실시해도 좋다. 건조 조건은, 특별히 한정되지 않지만, 수지 조성물층 중의 용제의 함유량이 통상 10질량% 이하, 바람직하게는 5질량% 이하가 되도록 건조시킨다. 수지 조성물 중의 용제의 비점에 따라서도 상이하지만, 예를 들면 30질량% 내지 60질량%의 용제를 포함하는 수지 조성물을 사용하는 경우, 50℃ 내지 150℃에서 3분간 내지 10분간 건조시킴으로써, 수지 조성물층을 형성할 수 있다.

[0228] 수지 시트는 롤상으로 권취하여 보존하는 것이 가능하다. 수지 시트가 보호 필름을 갖는 경우, 통상, 보호 필름을 벗김으로써 사용 가능해진다.

[0229] 일 실시형태에서, 프리프레그는, 시트상 섬유 기재에 본 실시형태에 따른 수지 조성물을 함침시켜 형성된다.

[0230] 프리프레그에 사용하는 시트상 섬유 기재는, 예를 들면, 유리 크로스, 아라미드 부직포, 액정 폴리머 부직포 등의 프리프레그용 기재로서 상용되고 있는 것을 사용할 수 있다. 프린트 배선판의 박형화의 관점에서, 시트상 섬유 기재의 두께는 바람직하게는 50㎛ 이하, 보다 바람직하게는 40㎛ 이하, 더욱 바람직하게는 30㎛ 이하, 특히 바람직하게는 20㎛ 이하이다. 시트상 섬유 기재의 두께의 하한은 특별히 한정되지 않고, 통상 10㎛ 이상이다.

[0231] 프리프레그는, 핫멜트법, 솔벤트법 등의 방법에 의해 제조할 수 있다.

[0232] 프리프레그의 두께는, 상술한 수지 시트에서의 수지 조성물층과 동일한 범위일 수 있다.

[0233] 시트상 적층 재료는, 프린트 배선판의 절연층을 형성하기 위해(프린트 배선판의 절연층용) 적합하게 사용할 수 있고, 프린트 배선판의 층간 절연층을 형성하기 위해(프린트 배선판의 층간 절연층용) 보다 적합하게 사용할 수 있다.

[0234] [16. 프린트 배선판]

[0235] 본 발명의 일 실시형태에 따른 프린트 배선판은, 본 실시형태에 따른 수지 조성물의 경화물을 포함하는 절연층을 구비한다. 이 프린트 배선판은, 예를 들면, 상술한 수지 시트를 사용하여, 하기 (I) 및 (II)의 공정을 포함하는 방법에 의해 제조할 수 있다.

[0236] (I) 내층 기판 위에, 수지 시트를, 수지 시트의 수지 조성물층이 내층 기판과 접합하도록, 적층하는 공정.

[0237] (II) 수지 조성물층을 경화하여, 절연층을 형성하는 공정.

[0238] 공정 (I)에서 사용하는 「내층 기판」이란, 프린트 배선판의 기판이 되는 부재로서, 예를 들면, 유리 에폭시 기판, 금속 기판, 폴리에스테르기판, 폴리이미드 기판, BT 레진 기판, 열경화형 폴리페닐렌에테르 기판 등을 들 수 있다. 또한, 당해 기판은, 이의 편면 또는 양면에 도체층을 갖고 있어도 좋고, 이 도체층은 패턴 가공되어 있어도 좋다. 기판의 편면 또는 양면에 도체층(회로)이 형성된 내층 기판은 「내층 회로 기판」이라고 하는 경우가 있다. 또한 프린트 배선판을 제조할 때에, 추가로 절연층 및/또는 도체층이 형성되어야 할 중간 제조물도, 상기 「내층 기판」에 포함된다. 프린트 배선판이 부품 내장 회로판인 경우, 부품을 내장한 내층 기판을 사용해도 좋다.

[0239] 내층 기판과 수지 시트의 적층은, 예를 들면, 지지체측으로부터 수지 시트를 내층 기판에 가열 압착함으로써 행할 수 있다. 수지 시트를 내층 기판에 가열 압착하는 부재(이하, 「가열 압착 부재」라고도 한다)로서는, 예를 들어, 가열된 금속판(SUS 경판 등) 또는 금속 롤(SUS 롤 등)을 들 수 있다. 또한, 가열 압착 부재를 수지 시트에 직접 프레스하는 것이 아니라, 내층 기판의 표면 요철에 수지 시트가 충분히 추종하도록, 내열 고무 등의 탄성재를 사이에 두고 프레스하는 것이 바람직하다.

[0240] 내층 기판과 수지 시트의 적층은 진공 라미네이트법에 의해 실시해도 좋다. 진공 라미네이트법에서, 가열 압착 온도는 바람직하게는 60℃ 내지 160℃, 보다 바람직하게는 80℃ 내지 140℃의 범위이며, 가열 압착 압력은 바람직하게는 0.098MPa 내지 1.77MPa, 보다 바람직하게는 0.29MPa 내지 1.47MPa의 범위이며, 가열 압착 시간은 바람직하게는 20초간 내지 400초간, 보다 바람직하게는 30초간 내지 300초간의 범위이다. 적층은 바람직하게는 압력 26.7hPa 이하의 감압 조건 하에서 실시된다.

[0241] 적층은 시판의 진공 라미네이터에 의해 행할 수 있다. 시판의 진공 라미네이터로서는, 예를 들면, 메이키 세이사쿠쇼사 제조의 진공 가압식 라미네이터, 닛코 머테리얼즈사 제조의 베큠 어플리케이터, 배치식 진공 가압 라미네이터 등을 들 수 있다.

[0242] 적층 후에, 상압 하(대기압 하), 예를 들면, 가열 압착 부재를 지지체측으로부터 프레스함으로써, 적층된 수지 시트의 평활화 처리를 행해도 좋다. 평활화 처리의 프레스 조건은, 상기 적층의 가열 압착 조건과 동일한 조건으로 할 수 있다. 평활화 처리는 시판의 라미네이터에 의해 행할 수 있다. 또한, 적층과 평활화 처리는 상기 시판의 진공 라미네이터를 사용하여 연속으로 행해도 좋다.

[0243] 지지체는, 공정 (I)과 공정 (II) 사이에서 제거해도 좋고, 공정 (II) 후에 제거해도 좋다.

[0244] 공정 (II)에서, 수지 조성물층을 경화하여, 수지 조성물의 경화물로 이루어진 절연층을 형성한다. 수지 조성물층의 경화는, 통상, 열경화에 의해 행한다. 수지 조성물층의 구체적인 경화 조건은, 프린트 배선판의 절연층을 형성할 때 통상 채용되는 조건을 사용해도 좋다.

[0245] 예를 들면, 수지 조성물층의 열경화 조건은, 수지 조성물의 종류 등에 따라서도 상이하지만, 일 실시형태에서, 경화 온도는 바람직하게는 120℃ 내지 240℃, 보다 바람직하게는 150℃ 내지 220℃, 더욱 바람직하게는 170℃ 내지 210℃이다. 경화 시간은 바람직하게는 5분간 내지 120분간, 보다 바람직하게는 10분간 내지 100분간, 더욱 바람직하게는 15분간 내지 100분간일 수 있다.

[0246] 수지 조성물층을 열경화시키기 전에, 수지 조성물층을 경화 온도보다도 낮은 온도에서 예비 가열해도 좋다. 예를 들면, 수지 조성물층을 열경화시키기에 앞서, 50℃ 내지 150℃, 바람직하게는 60℃ 내지 140℃, 보다 바람직하게는 70℃ 내지 130℃의 온도에서, 수지 조성물층을 5분간 이상, 바람직하게는 5분간 내지 150분간, 보다 바

람직하게는 15분간 내지 120분간, 더욱 바람직하게는 15분간 내지 100분간 예비 가열해도 좋다.

[0247] 프린트 배선판의 제조시에는, (III) 절연층에 구멍 뚫는 공정, (IV) 절연층을 조화 처리하는 공정, (V) 도체층을 형성하는 공정을 추가로 실시해도 좋다. 이러한 공정 (III) 내지 공정 (V)는, 프린트 배선판의 제조에 사용되는, 당업자에게 공지된 각종 방법에 따라 실시해도 좋다. 또한, 지지체를 공정 (II) 후에 제거하는 경우, 당해 지지체의 제거는, 공정 (II)와 공정 (III) 사이, 공정 (III)과 공정 (IV) 사이, 또는 공정 (IV)와 공정 (V) 사이에 실시해도 좋다. 또한, 필요에 따라, 공정 (I) 내지 공정 (V)의 절연층 및 도체층의 형성을 반복해서 실시하여, 다층 배선판을 형성해도 좋다.

[0248] 다른 실시형태에서, 프린트 배선판은, 상술의 프리프레그를 사용하여 제조할 수 있다. 제조 방법은 기본적으로 수지 시트를 사용하는 경우와 동일할 수 있다.

[0249] 공정 (III)은 절연층에 구멍 뚫는 공정이며, 이로써 절연층에 비아홀, 스루홀 등의 홀을 형성할 수 있다. 공정 (III)은, 절연층의 형성에 사용한 수지 조성물의 조성 등에 따라, 예를 들어, 드릴, 레이저, 플라즈마 등을 사용하여 실시해도 좋다. 홀의 치수 및 형상은 프린트 배선판의 디자인에 따라 적절하게 결정해도 좋다.

[0250] 공정 (IV)는 절연층을 조화 처리하는 공정이다. 통상, 공정 (IV)에서, 스미어의 제거도 행해진다. 조화 처리의 순서, 조건은 특별히 한정되지 않고, 프린트 배선판의 절연층을 형성할 때 통상 사용되는 공지의 순서, 조건을 채용할 수 있다. 예를 들어, 팽윤액에 의한 팽윤 처리, 산화제에 의한 조화 처리, 중화액에 의한 중화 처리를 이 순으로 실시하여 절연층을 조화 처리할 수 있다.

[0251] 조화 처리에 사용하는 팽윤액으로서는, 예를 들어, 알칼리 용액, 계면활성제 용액 등을 들 수 있고, 바람직하게는 알칼리 용액이다. 당해 알칼리 용액으로서는, 수산화나트륨 용액, 수산화칼륨 용액이 보다 바람직하다. 시판되고 있는 팽윤액으로서는, 예를 들면, 아토텍 재팬사 제조의 「스웰링 딥 세큐리간스 P」, 「스웰링 딥 세큐리간스 SBU」 등을 들 수 있다. 팽윤액에 의한 팽윤 처리는, 예를 들면, 30℃ 내지 90℃의 팽윤액에 절연층을 1분간 내지 20분간 침지함으로써 행할 수 있다. 절연층의 수지의 팽윤을 적당한 레벨로 억제하는 관점에서, 40℃ 내지 80℃의 팽윤액에 절연층을 5분간 내지 15분간 침지시키는 것이 바람직하다.

[0252] 조화 처리에 사용하는 산화제로서는, 예를 들면, 수산화나트륨의 수용액에 과망간산칼륨 또는 과망간산나트륨을 용해한 알칼리성 과망간산 용액을 들 수 있다. 알칼리성 과망간산 용액 등의 산화제에 의한 조화 처리는, 60℃ 내지 100℃로 가열한 산화제 용액에 절연층을 10분간 내지 30분간 침지시켜 행하는 것이 바람직하다. 또한, 알칼리성 과망간산 용액에서의 과망간산염의 농도는 5질량% 내지 10질량%가 바람직하다. 시판되고 있는 산화제로서는, 예를 들면, 아토텍 재팬사 제조의 「콘센트레이트 컴팩트 CP」, 「도징솔류션 세큐리간스 P」 등의 알칼리성 과망간산 용액을 들 수 있다.

[0253] 조화 처리에 사용하는 중화액으로서는, 산성의 수용액이 바람직하고, 시판품으로서는, 예를 들면, 아토텍 재팬사 제조의 「리덕션솔류션 세큐리간트 P」를 들 수 있다. 중화액에 의한 처리는, 산화제에 의한 조화 처리가 이루어진 처리면을 30℃ 내지 80℃의 중화액에 5분간 내지 30분간 침지시킴으로써 행할 수 있다. 작업성 등의 점에서, 산화제에 의한 조화 처리가 이루어진 대상물을, 40℃ 내지 70℃의 중화액에 5분간 내지 20분간 침지하는 방법이 바람직하다.

[0254] 일 실시형태에서, 조화 처리 후의 절연층 표면의 산술 평균 거칠기(Ra)는 바람직하게는 500nm 이하, 보다 바람직하게는 400nm 이하, 더욱 바람직하게는 300nm 이하이다. 하한은, 특별히 한정되지 않으며, 예를 들면, 1nm 이상, 2nm 이상 등으로 할 수 있다. 또한, 조화 처리 후의 절연층 표면의 제곱 평균 제곱근 거칠기(Rq)는 바람직하게는 500nm 이하, 보다 바람직하게는 400nm 이하, 더욱 바람직하게는 300nm 이하이다. 하한은, 특별히 한정되지 않으며, 예를 들면, 1nm 이상, 2nm 이상 등으로 할 수 있다. 절연층 표면의 산술 평균 거칠기(Ra) 및 제곱 평균 제곱근 거칠기(Rq)는 비접촉형 표면 조도계를 사용하여 측정할 수 있다.

[0255] 공정 (V)는 도체층을 형성하는 공정이며, 절연층 위에 도체층을 형성한다. 도체층에 사용하는 도체 재료는 특별히 한정되지 않는다. 적합한 실시형태로는, 도체층은, 금, 백금, 팔라듐, 은, 구리, 알루미늄, 코발트, 크롬, 아연, 니켈, 티탄, 텅스텐, 철, 주석 및 인듐으로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종 이상의 금속을 포함한다. 도체층은, 단금속층이라도 합금층이라도 좋고, 합금층으로서는, 예를 들면, 상기 군으로부터 선택되는 2종 이상의 금속의 합금(예를 들면, 니켈·크롬 합금, 구리·니켈 합금 및 구리·티탄 합금)으로 형성된 층을 들 수 있다. 그 중에서도, 도체층 형성의 범용성, 비용, 패터닝의 용이성 등의 관점에서, 크롬, 니켈, 티탄, 알루미늄, 아연, 금, 팔라듐, 은 또는 구리의 단금속층, 또는 니켈·크롬 합금, 구리·니켈 합금, 구리·티탄 합금의 합금층이 바람직하고, 크롬, 니켈, 티탄, 알루미늄, 아연, 금, 팔라듐, 은 또는 구리의 단금속층, 또는 니켈·크롬

합금의 합금층이 보다 바람직하고, 구리의 단금속층이 더욱 바람직하다.

[0256] 도체층은, 단층 구조라도 좋고, 상이한 종류의 금속 또는 합금으로 이루어지는 단금속층 또는 합금층이 2층 이상 적층된 복층 구조라도 좋다. 도체층이 복층 구조인 경우, 절연층과 접하는 층은, 크롬, 아연 또는 티탄의 단금속층, 또는 니켈·크롬 합금의 합금층인 것이 바람직하다.

[0257] 도체층의 두께는, 원하는 프린트 배선판의 디자인에 따르지만, 일반적으로 3㎛ 내지 35㎛, 바람직하게는 5㎛ 내지 30㎛이다.

[0258] 일 실시형태에서, 도체층은, 도금에 의해 형성해도 좋다. 예를 들면, 세미 애디티브법, 풀 애디티브법 등의 종래 공지의 기술에 의해 절연층의 표면에 도금하여, 원하는 배선 패턴을 갖는 도체층을 형성할 수 있다. 제조의 간편성의 관점에서, 세미 애디티브법이 바람직하다. 이하, 도체층을 세미 애디티브법에 의해 형성하는 예를 나타낸다.

[0259] 우선, 절연층의 표면에, 무전해 도금에 의해 도금 시드층을 형성한다. 이어서, 형성된 도금 시드층 위에, 원하는 배선 패턴에 대응하여 도금 시드층의 일부를 노출시키는 마스크 패턴을 형성한다. 노출된 도금 시드층 위에, 전해 도금에 의해 금속층을 형성한 후, 마스크 패턴을 제거한다. 그 후, 불필요한 도금 시드층을 에칭 등에 의해 제거하여, 원하는 배선 패턴을 갖는 도체층을 형성할 수 있다.

[0260] 다른 실시형태에서, 도체층은, 금속박을 사용하여 형성해도 좋다. 금속박을 사용하여 도체층을 형성하는 경우, 공정 (V)는, 공정 (I)과 공정 (II) 사이에 실시하는 것이 적합하다. 예를 들어, 공정 (I) 후, 지지체를 제거하고, 노출된 수지 조성물층의 표면에 금속박을 적층한다. 수지 조성물층과 금속박의 적층은, 진공 라미네이트법에 의해 실시해도 좋다. 적층의 조건은, 공정 (I)에 대해 설명한 조건과 동일하게 해도 좋다. 이어서, 공정 (II)를 실시하여 절연층을 형성한다. 그 후, 절연층 위의 금속박을 이용하여, 서브트랙티브법, 모디파이드 세미 애디티브법 등의 종래 공지의 기술에 의해, 원하는 배선 패턴을 갖는 도체층을 형성할 수 있다.

[0261] 금속박은, 예를 들면, 전해법, 압연법 등의 공지의 방법으로 제조할 수 있다. 금속박의 시판품으로서는, 예를 들어, JX 닛코 닛세키 킨조쿠사 제조의 HLP 박, JXUT-III 박, 미츠이 킨조쿠 코잔사 제조의 3EC-III 박, TP-III 박 등을 들 수 있다.

[0262] [17. 반도체 장치]

[0263] 본 발명의 일 실시형태에 따른 반도체 장치는, 상기 프린트 배선판을 포함한다. 반도체 장치는 프린트 배선판을 사용하여 제조할 수 있다.

[0264] 반도체 장치로서는, 전기 제품(예를 들면, 컴퓨터, 휴대 전화, 디지털 카메라 및 텔레비전 등) 및 차량(예를 들면, 자동 이륜차, 자동차, 전차, 선박 및 항공기 등) 등에 제공되는 각종 반도체 장치를 들 수 있다.

[0265] **실시예**

[0266] 이하, 실시예를 나타내어 본 발명에 대해 구체적으로 설명한다. 단, 본 발명은 이러한 실시예에 한정되는 것은 아니다. 이하의 설명에서, 양을 나타내는 「부」 및 「%」는, 별도 명시가 없는 한, 각각 「질량부」 및 「질량%」를 의미한다. 또한, 특히 온도의 지정이 없는 경우의 온도 조건 및 압력 조건은 실온(25℃) 및 대기압(1atm)이었다. 또한, 이하의 실시예에서, 질량을 비중으로 나누어 각 성분의 체적을 구하고, 이에 따라 구한 각 성분의 체적으로부터 계산에 의해 (D) 무기 충전재의 체적 기준의 양(체적%)을 구하였다.

[0267] [실시예 1]

[0268] 비페닐아르알킬 구조를 갖는 페놀계 경화제(니혼 카야쿠 가부시키가이샤 제조 「GPH-65」, 페놀 당량 약 198g/eq.) 10부, 및 비페닐형 에폭시 수지(니혼 카야쿠사 제조 「NC-3000」, 에폭시 당량 약 275g/eq.) 30부를 MEK 40부에 교반하면서 가열 용해시켜, 용해 조성물을 얻었다. 이를 실온으로까지 냉각하고, 이 용해 조성물에, 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」, 활성 에스테르기 당량 약 223g/eq., 불휘발 성분율 65%의 톨루엔 용액) 73부, 실란 커플링제(신에츠 카가쿠 코교사 제조 「KBM-573」)로 표면 처리된 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」, 평균 입자 직경 0.5㎛) 260부, 카보디이미드계 경화제(닛신보 케미컬사 제조 「V-03」, 활성기 당량 약 216g/eq., 불휘발 성분율 50%의 톨루엔 용액) 15부, 이미다졸계 경화 촉진제(시코쿠 카세이 코교사 제조 「1B2PZ」, 1-벤질-2-페닐이미다졸) 0.2부, 페녹시 수지(미츠비시 카가쿠사 제조 「YX7553BH30」, 불휘발분 30질량%의 MEK와 사이클로헥사논의 1:1 용액) 0.2부를 혼합하고, 고속 회전 믹서로 균일하게 분산하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0269] [실시예 2]

[0270] 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 200질량부로 줄였다. 또한, 중공 알루미노실리케이트 입자(타이헤이요우 세멘트사 제조 「MGH-005」, 평균 입자 직경 1.6㎛, 공공률 80체적%) 49질량부를 수지 조성물에 첨가하였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0271] [실시예 3]

[0272] 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 200질량부로 줄였다. 또한, 중공 실리카 입자(평균 입자 직경 2.6㎛, 공공률 25체적%) 11.2질량부를 수지 조성물에 첨가하였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0273] [실시예 4]

[0274] 비페닐아르알킬 구조를 갖는 페놀 화합물(니혼 카야쿠 가부시키가이샤 제조 「GPH-65」, 페놀 당량 약 198g/eq.) 10부 대신에, 비페닐아르알킬 구조를 갖는 페놀 화합물(니혼 카야쿠 가부시키가이샤 제조 「GPH-103」, 페놀 당량 약 231g/eq.) 10부를 사용한 것 이외에는, 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0275] [실시예 5]

[0276] 비페닐아르알킬 구조를 갖는 페놀 화합물(니혼 카야쿠 가부시키가이샤 제조 「GPH-65」, 페놀 당량 약 198g/eq.)의 양을 2질량부로 줄였다. 또한, 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 240질량부로 줄였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0277] [실시예 6]

[0278] 비페닐아르알킬 구조를 갖는 페놀 화합물(니혼 카야쿠 가부시키가이샤 제조 「GPH-65」, 페놀 당량 약 198g/eq.)의 양을 15질량부로 늘린 것 이외에는, 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0279] [실시예 7]

[0280] 비페닐형 에폭시 수지(니혼 카야쿠사 제조 「NC-3000」, 에폭시 당량 약 275g/eq.) 30부 대신에 나프탈렌형 에폭시 수지(DIC사 제조 「HP-4032-SS」, 에폭시 당량 약 145g/eq.) 30부를 사용한 것 이외에는, 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0281] [실시예 8]

[0282] 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」) 73부 대신에, 상이한 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8150-62T」 활성 에스테르기 당량 약 229g/eq. 불휘발 성분율 62%의 톨루엔 용액) 73부를 사용하였다. 또한, 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 255질량부로 줄였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0283] [실시예 9]

[0284] 나프탈렌형 페놀 경화제(닛테츠 케미컬&머테리얼 제조 「SN-485」 페놀기 당량 약 215g/eq.) 10부를 수지 조성물에 첨가하였다. 또한, 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 288부로 늘렸다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0285] [실시예 10]

[0286] 트리아진 골격 함유 페놀계 경화제(DIC사 제조 「LA-3018-50P」, 활성기 당량 약 151g/eq., 불휘발 성분율 50%의 2-메톡시프로판올 용액) 20부를 수지 조성물에 첨가하였다. 또한, 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 288부로 늘렸다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0287] [실시예 11]

[0288] 비페닐아르알킬 구조를 갖는 페놀 화합물(니혼 카야쿠 가부시키가이샤 제조 「GPH-65」, 페놀 당량 약 198g/eq.)의 양을 25부로 늘렸다. 또한, 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 290부로 늘렸다. 이

상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0289] [실시예 12]

[0290] 페녹시 수지(미츠비시 카가쿠사 제조 「YX7553BH30」, 불휘발분 30질량%의 MEK와 사이클로헥사논의 1:1 용액) 0.2부 대신에, 사이클로헥산환 함유 말레이미드 수지(신에츠 카가쿠 코교사 제조 「SLK-6895-T90」, 불휘발분 90질량%의 톨루엔 용액)를 0.2부 사용한 것 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0291] [실시예 13]

[0292] 비페닐아르알킬 구조를 갖는 페놀 화합물(니혼 카야쿠 가부시키가이샤 제조 「GPH-65」, 페놀 당량 약 198g/eq.) 10부 대신에, 비페닐아르알킬 구조를 갖는 페놀 화합물(니혼 카야쿠 가부시키가이샤 제조 「GPH-103」, 페놀 당량 약 231g/eq.) 10부를 사용하였다. 또한, 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」) 73부 대신에, 상이한 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8150-62T」 활성 에스테르기 당량 약 229g/eq. 불휘발 성분율 62%의 톨루엔 용액) 73부를 사용하였다. 또한, 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 255질량부로 줄였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0293] [실시예 14]

[0294] 비페닐아르알킬 구조를 갖는 페놀 화합물(니혼 카야쿠 가부시키가이샤 제조 「GPH-65」, 페놀 당량 약 198g/eq.)의 양을 25부로 늘렸다. 또한, 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」) 73부 대신에, 상이한 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8150-62T」 활성 에스테르기 당량 약 229g/eq. 불휘발 성분율 62%의 톨루엔 용액) 73부를 사용하였다. 또한, 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 285질량부로 늘렸다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0295] [실시예 15]

[0296] 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」) 73부 대신에, 상이한 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8150-62T」 활성 에스테르기 당량 약 229g/eq. 불휘발 성분율 62%의 톨루엔 용액) 73부를 사용하였다. 또한, 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 282질량부로 늘렸다. 또한, 트리아진 골격 함유 페놀계 경화제(DIC사 제조 「LA-3018-50P」, 활성기 당량 약 151g/eq., 불휘발 성분율 50%의 2-메톡시프로판올 용액) 20부를 수지 조성물에 첨가하였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0297] [실시예 16]

[0298] 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」) 73부 대신에, 상이한 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8150-62T」 활성 에스테르기 당량 약 229g/eq. 불휘발 성분율 62%의 톨루엔 용액) 73부를 사용하였다. 또한, 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 255질량부로 줄였다. 또한, 페녹시 수지(미츠비시 카가쿠사 제조 「YX7553BH30」, 불휘발분 30질량%의 MEK와 사이클로헥사논의 1:1 용액) 0.2부 대신에, 사이클로헥산환 함유 말레이미드 수지(신에츠 카가쿠 코교사 제조 「SLK-6895-T90」, 불휘발분 90질량%의 톨루엔 용액)를 0.2부 사용하였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0299] [실시예 17]

[0300] 비페닐아르알킬 구조를 갖는 페놀 화합물(니혼 카야쿠 가부시키가이샤 제조 「GPH-65」, 페놀 당량 약 198g/eq.)의 양을 25부로 늘렸다. 또한, 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」) 73부 대신에, 상이한 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8150-62T」 활성 에스테르기 당량 약 229g/eq. 불휘발 성분율 62%의 톨루엔 용액) 73부를 사용하였다. 또한, 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 285질량부로 늘렸다. 또한, 페녹시 수지(미츠비시 카가쿠사 제조 「YX7553BH30」, 불휘발분 30질량%의 MEK와 사이클로헥사논의 1:1 용액) 0.2부 대신에, 사이클로헥산환 함유 말레이미드 수지(신에츠 카가쿠 코교사 제조 「SLK-6895-T90」, 불휘발분 90질량%의 톨루엔 용액)를 0.2부 사용하였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0301] [실시예 18]

[0302] 비페닐형 에폭시 수지(니혼 카야쿠사 제조 「NC-3000」, 에폭시 당량 약 275g/eq.) 30부 대신에 나프탈렌형 에

폭시 수지(DIC사 제조 「HP-4032-SS」, 에폭시 당량 약 145g/eq.) 30부를 사용하였다. 또한, 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」) 73부 대신에, 상이한 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8150-62T」 활성 에스테르기 당량 약 229g/eq. 불휘발 성분율 62%의 톨루엔 용액) 73부를 사용하였다. 또한, 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 255질량부로 줄였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0303] [실시예 19]

[0304] 페녹시 수지(미츠비시 카가쿠사 제조 「YX7553BH30」, 불휘발분 30질량%의 MEK와 사이클로헥사논의 1:1 용액) 0.2부 대신에, 말레이미드 수지(신에츠 카가쿠 코교사 제조 「SLK-1500-T80」, 불휘발 성분 80질량%의 톨루엔 용액)를 0.2부 사용하였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0305] [실시예 20]

[0306] 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」) 73부 대신에, 상이한 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8150-62T」 활성 에스테르기 당량 약 229g/eq. 불휘발 성분율 62%의 톨루엔 용액) 73부를 사용하였다. 또한, 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 255질량부로 줄였다. 또한, 페녹시 수지(미츠비시 카가쿠사 제조 「YX7553BH30」, 불휘발분 30질량%의 MEK와 사이클로헥사논의 1:1 용액) 0.2부 대신에, 말레이미드 수지(신에츠 카가쿠 코교사 제조 「SLK-1500-T80」, 불휘발 성분 80질량%의 톨루엔 용액)를 0.2부 사용하였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0307] [실시예 21]

[0308] 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」) 73부 대신에, 상이한 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8150-62T」 활성 에스테르기 당량 약 229g/eq. 불휘발 성분율 62%의 톨루엔 용액) 73부를 사용하였다. 또한, 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 285질량부로 늘렸다. 또한, 트리아진 골격 함유 페놀계 경화제(DIC사 제조 「LA-3018-50P」, 활성기 당량 약 151g/eq., 불휘발 성분율 50%의 2-메톡시프로판올 용액) 20부를 수지 조성물에 첨가하였다. 또한, 페녹시 수지(미츠비시 카가쿠사 제조 「YX7553BH30」, 불휘발분 30질량%의 MEK와 사이클로헥사논의 1:1 용액) 0.2부 대신에, 말레이미드 수지(신에츠 카가쿠 코교사 제조 「SLK-1500-T80」, 불휘발 성분 80질량%의 톨루엔 용액)를 1부 사용하였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0309] [실시예 22]

[0310] 비페닐형 에폭시 수지(니혼 카야쿠사 제조 「NC-3000」, 에폭시 당량 약 275g/eq.) 30부 대신에 나프탈렌형 에폭시 수지(DIC사 제조 「HP-4032-SS」, 에폭시 당량 약 145g/eq.) 30부를 사용하였다. 또한, 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」) 73부 대신에, 상이한 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8150-62T」 활성 에스테르기 당량 약 229g/eq. 불휘발 성분율 62%의 톨루엔 용액) 73부를 사용하였다. 또한, 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 258질량부로 줄였다. 또한, 페녹시 수지(미츠비시 카가쿠사 제조 「YX7553BH30」, 불휘발분 30질량%의 MEK와 사이클로헥사논의 1:1 용액)의 양을 1질량부로 늘렸다. 또한, 말레이미드 수지(신에츠 카가쿠 코교사 제조 「SLK-1500-T80」, 불휘발 성분 80질량%의 톨루엔 용액) 1부를 수지 조성물에 첨가하였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0311] [실시예 23]

[0312] 비페닐형 에폭시 수지(니혼 카야쿠사 제조 「NC-3000」, 에폭시 당량 약 275g/eq.) 30부 대신에 나프탈렌형 에폭시 수지(DIC사 제조 「HP-4032-SS」, 에폭시 당량 약 145g/eq.) 30부를 사용하였다. 또한, 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」) 73부 대신에, 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」) 52부와 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8150-62T」 활성 에스테르기 당량 약 229g/eq. 불휘발 성분율 62%의 톨루엔 용액) 18부를 조합하여 사용하였다. 또한, 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 255질량부로 줄였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0313] [실시예 24]

[0314] 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」) 73부 대신에, 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」) 35부와 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8150-62T」 활성 에스테르기 당량 약 229g/eq. 불휘발 성분율 62%의 톨루엔 용액) 36부를 조합하여 사용하였다. 또한, 구형 실리카(아도마텍스사 제조

「SO-C2」)의 양을 285질량부로 늘렸다. 또한, 트리아진 골격 함유 페놀계 경화제(DIC사 제조 「LA-3018-50P」, 활성기 당량 약 151g/eq., 불휘발 성분율 50%의 2-메톡시프로판올 용액) 20부를 수지 조성물에 첨가하였다. 또한, 페녹시 수지(미츠비시 카가쿠사 제조 「YX7553BH30」, 불휘발분 30질량%의 MEK와 사이클로헥사논의 1:1 용액) 0.2부 대신에, 말레이미드 수지(신에츠 카가쿠 코교사 제조 「SLK-1500-T80」, 불휘발 성분 80질량%의 톨루엔 용액)를 1부 사용하였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0315] [실시예 25]

[0316] 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」) 73부 대신에, 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」) 18부와 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8150-62T」 활성 에스테르기 당량 약 229g/eq. 불휘발 성분율 62%의 톨루엔 용액) 54부를 조합하여 사용하였다. 또한, 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 255질량부로 줄였다. 또한, 페녹시 수지(미츠비시 카가쿠사 제조 「YX7553BH30」, 불휘발분 30질량%의 MEK와 사이클로헥사논의 1:1 용액) 0.2부 대신에, 사이클로헥산환 함유 말레이미드 수지(신에츠 카가쿠 코교사 제조 「SLK- 6895-T90」, 불휘발분 90질량%의 톨루엔 용액)를 0.2부 사용하였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0317] [비교예 1]

[0318] 비페닐아르알킬 구조를 갖는 페놀계 경화제(니혼 카야쿠 가부시키가이샤 제조 「GPH-65」, 페놀 당량 약 198g/eq.) 10부를 사용하지 않았다. 또한, 나프탈렌형 페놀 경화제(닛테츠 케미컬&머테리얼 제조 「SN-485」 페놀성 수산기 당량 약 215g/eq.) 10부를 수지 조성물에 첨가하였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0319] [비교예 2]

[0320] 비페닐아르알킬 구조를 갖는 페놀계 경화제(니혼 카야쿠 가부시키가이샤 제조 「GPH-65」, 페놀 당량 약 198g/eq.) 10부를 사용하지 않았다. 또한, 트리아진 골격 함유 페놀계 경화제(DIC사 제조 「LA-3018-50P」, 활성기 당량 약 151g/eq., 불휘발 성분율 50%의 2-메톡시프로판올 용액) 20부를 수지 조성물에 첨가하였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0321] [비교예 3]

[0322] 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」)의 양을 30질량부로 줄였다. 또한, 수지 조성물 중의 무기 충전재의 비율을 실시예와 대략 동일하게 하기 위해, 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 182부로 줄였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0323] [비교예 4]

[0324] 활성 에스테르 화합물(DIC사 제조 「HPC-8000-65T」)의 양을 30질량부로 줄였다. 또한, 구형 실리카(아도마텍스사 제조 「SO-C2」)의 양을 98부로 줄였다. 이상의 사항 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 수지 조성물(수지 바니시)을 조제하였다.

[0325] [수지 시트의 제조]

[0326] 지지체로서, 표면에 알키드 수지계 이형제(린텍사 제조 「AL-5」)에 의한 이형 처리가 실시된 폴리에틸렌테레프탈레이트 필름(토레사 제조 「루미라 R80」; 두께 38㎛, 연화점 130℃)을 준비하였다. 상기 지지체 위에, 수지 조성물을, 건조 후의 수지 조성물층의 두께가 40㎛가 되도록 균일하게 도포하고, 90℃에서 3분간 건조하였다. 이어서, 수지 조성물층의 노출면(지지체와 접합하고 있지 않은 면)에, 보호 필름으로서 지지체와 동일한 폴리에틸렌테레프탈레이트 필름을 첩합하여, 지지체/수지 조성물층/보호 필름의 층 구성을 갖는 수지 시트를 얻었다. 이렇게 하여 얻은 수지 시트를 사용하여, 하기의 방법에 의해 평가를 행하였다.

[0327] [시험예 1: 유전 정접의 측정]

[0328] 실시예 및 비교예에서 제작한 수지 시트로부터 보호 필름을 벗겨, 200℃에서 90분간 가열하여 수지 조성물층을 열경화시킨 후, 지지체를 박리함으로써, 수지 조성물의 경화물로 형성된 경화물 필름을 얻었다. 경화물 필름을, 폭 2㎜, 길이 80㎜로 잘라내어, 평가용 경화물 A를 얻었다.

[0329] 얻어진 평가용 경화물 A에 대해, 애질런트 테크놀로지즈사 제조 「HP8362B」를 사용하여, 공동 공진 섭동법에

의해 측정 주파수 5.8GHz, 측정 온도 23℃에서 유전 정접의 값(Df값)을 측정하였다. 3개의 시험편에 대해 측정을 행하고, 평균값을 산출하였다.

[0330] [시험예 2: 균열 평가 시험]

[0331] <수지 시트의 라미네이트>

[0332] 라인/스페이스 비(L/S)=8㎛/8㎛의 배선 패턴으로 형성된 회로 도체(구리)를 양면에 갖는 내층 기판(히타치 카세이사 제조 「MCL-E700G」, 도체층의 두께 35㎛, 계 0.4mm 두께, 잔동율 40%)을 준비하였다. 수지 시트로부터 보호 필름을 박리하고, 수지 조성물층이 내층 기판과 접하도록, 상기 내층 기판의 양면에, 수지 시트를 라미네이트하였다. 이러한 라미네이트는, 진공 가압식 라미네이터(메이키 세이사쿠쇼사 제조 「MVLP-500」)를 사용하여, 온도 120℃에서 30초간 진공 흡인 후, 온도 120℃, 압력 7.0kg/cm^2의 조건으로, 지지체 위로부터, 내열 고무를 사이에 두고 30초간 프레스함으로써 행하였다. 다음으로, 대기압 하에서, SUS 경판을 사용하여, 온도 120℃, 압력 5.5kg/cm^2의 조건으로 60초간 프레스를 행하였다.

[0333] <수지 조성물층의 열경화>

[0334] 라미네이트된 수지 시트로부터 지지체를 박리하였다. 열풍 순환로를 사용하여, 170℃, 30분의 열경화 조건으로 수지 조성물층을 열경화시켜, 절연층을 형성하였다. 따라서, 내층 기판/절연층의 층 구성을 갖는 시료 기판을 얻었다. 다음으로, 시료 기판을 방치하고, 실온(25℃)까지 냉각시켰다.

[0335] <디스미어 처리>

[0336] 시료 기판을, 팽윤액(아토텍 재팬사 제조 「스웰링 딥 세큐리간스 P(Swelling Dip Securiganth P)」, pH는 11)에 60℃에서 10분간 침지하였다.

[0337] 시료 기판을, 산화제(아토텍 재팬사 제조 「콘센트레이트 컴팩트 CP」)에, 80℃에서 20분간 침지하였다. 또한, 시료 기판을, 중화액(아토텍 재팬사 제조 「리덕션솔류신 세큐리간트 P」)에, 40℃에서 5분간 침지하였다. 그 후, 시료 기판을, 80℃에서 30분간 건조하였다.

[0338] <균열의 평가 방법>

[0339] 디스미어 처리 후의 시료 기판의 절연층 표면 중, 내층 기판의 L/S 패턴 위를 관찰하였다. 내층 기판의 패턴 위의 100개의 부분에서, 패턴 형상을 따라 표면에 균열이 발생하고 있는지 확인하고, 균열이 발생하고 있지 않은 패턴 위의 부분의 수를 카운트하였다. 100개의 부분 중, 균열이 발생하고 있지 않은 부분의 비율을 「수율」로서 산출하였다. 수율은 높을수록 바람직하다. 이에 따라, 산출한 수율을 이하의 기준으로 점수를 매겼다.

[0340] 1점: 0% 이상 20% 미만.

[0341] 2점: 20% 이상 40% 미만.

[0342] 3점: 40% 이상 60% 미만.

[0343] 4점: 60% 이상 80% 미만.

[0344] 5점: 80% 이상.

[0345] 3점 이상을 균열 평가 「○」로 판정하였다. 또한, 2점 이하를 균열 평가 「×」로 판정하였다.

[0346] [시험예 3: 파단점 신도의 측정]

[0347] 시험예 1에서 얻어진 평가용 경화물 A에 대해, 일본 공업 규격 JIS K7127에 준거하여 텐실론 만능 시험기(오리엔텍사 제조 「RTC-1250A」)에 의해 인장 시험을 행하여, 파단점 신도 (%)를 측정하였다.

[0348] [결과]

[0349] 상술한 실시예 및 비교예의 조성 및 결과를 하기의 표에 나타낸다. 하기 표에서 약어의 의미는 이하와 같다.

[0350] 활성 에스테르기/에폭시기: (B) 에폭시 수지의 에폭시기수를 1로 하는 경우의 (C) 활성 에스테르 화합물의 활성 에스테르기수.

표 1

[표 1. 실시예 1 내지 5의 조성 및 결과]

		고형분율 (%)	실시예 1	2	3	4	5
(A)	GPH-65	100	10	10	10		2
	GPH-103	100				10	
(B)	HP-4032-SS	100					
	NC-3000	100	30	30	30	30	30
(C)	HPC-8000-65T	65	73	73	73	73	73
	HPC-8150-62T	62					
(D)	SO-C2	100	260	200	200	260	240
	MGH-005	100		49			
	중공 실리카 입자	100			11.2		
(E)	SN-485	100					
	LA-3018-50P	50					
	V-03	50	15	15	15	15	15
(F)	1B2PZ	100	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
(G)	YX7553BH30	30	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
(H)	SLK-6895-T90	90					
	SLK-1500-T80	80					
약품 (질량부)			388.4	377.4	339.6	388.4	360.4
불휘발 성분 (질량부)			355.2	344.2	306.4	355.2	327.2
(A) 성분 (질량%)			2.82	2.91	3.26	2.82	0.61
(B) 성분 (질량%)			8.4	8.7	9.8	8.4	9.2
(C) 성분 (질량%)			13.4	13.8	15.5	13.4	14.5
(D) 성분 (질량%)			73.2	72.3	68.9	73.2	73.3
(D) 성분 (체적%)			4.2	59.8	59.8	59.8	59.8
(E) 성분 (질량%)			2.1	2.2	2.4	2.1	2.3
활성 에스테르기/에폭시기			1.9	1.9	1.9	1.9	1.9
유전 정접 (Df)			0.0026	0.0032	0.0027	0.0026	0.0024
균열 평가	수율 (%)		90	96	94	98	84
	점수		5	5	5	5	5
	판정		○	○	○	○	○
파단점 신도 (%)			1.9	1.9	2	1.8	1.7

[0351]

표 2

[표 2. 실시예 6 내지 10의 조성 및 결과]

		고형분율 (%)	실시예				
			6	7	8	9	10
(A)	GPH-65	100	15	10	10	10	10
	GPH-103	100					
(B)	HP-4032-SS	100		30			
	NC-3000	100	30		30	30	30
(C)	HPC-8000-65T	65	73	73		73	73
	HPC-8150-62T	62			73		
(D)	SO-C2	100	260	260	255	288	288
	MGH-005	100					
	중공 실리카 입자	100					
(E)	SN-485	100				10	
	LA-3018-50P	50					20
	V-03	50	15	15	15	15	15
(F)	1B2PZ	100	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
(G)	YX7553BH30	30	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
(H)	SLK-6895-T90	90					
	SLK-1500-T80	80					
약품 (질량부)			393.4	388.4	383.4	426.4	436.4
불휘발 성분 (질량부)			360.2	355.2	348.0	393.2	393.2
(A) 성분 (질량%)			4.16	2.82	2.87	2.54	2.54
(B) 성분 (질량%)			8.3	8.4	8.6	7.6	7.6
(C) 성분 (질량%)			13.2	13.4	13.0	12.1	12.1
(D) 성분 (질량%)			72.2	73.2	73.3	73.2	73.2
(D) 성분 (체적%)			59.8	59.8	59.8	59.8	59.8
(E) 성분 (질량%)			2.1	2.1	2.2	4.5	4.5
활성 에스테르기/에폭시기			1.9	1	1.7	1.9	1.9
유전 정접 (Df)			0.0027	0.0025	0.0025	0.0024	0.0023
균열 평가	수율 (%)		100	100	92	73	52
	점수		5	5	5	4	3
	판정		○	○	○	○	○
파단점 신도 (%)			2.2	1.7	1.9	1.7	1.7

[0352]

표 3

[표 3. 실시예 11 내지 15의 조성 및 결과]

		고형분율 (%)	실시예				
			11	12	13	14	15
(A)	GPH-65	100	25	10		25	10
	GPH-103	100			10		
(B)	HP-4032-SS	100					
	NC-3000	100	30	30	30	30	30
(C)	HPC-8000-65T	65	73	73			
	HPC-8150-62T	62			73	73	73
(D)	SO-C2	100	290	260	255	285	282
	MGH-005	100					
	중공 실리카 입자	100					
(E)	SN-485	100					
	LA-3018-50P	50					20
	V-03	50	15	15	15	15	15
(F)	1B2PZ	100	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
(G)	YX7553BH30	30	0.2		0.2	0.2	0.2
(H)	SLK-6895-T90	90		0.2			
	SLK-1500-T80	80					
약품 (질량부)			433.4	388.4	383.4	428.4	430.4
불휘발 성분 (질량부)			400.2	355.3	348.0	393.0	385.0
(A) 성분 (질량%)			6.25	2.81	2.87	6.36	2.60
(B) 성분 (질량%)			7.5	8.4	8.6	7.6	7.8
(C) 성분 (질량%)			11.9	13.4	13.0	11.5	11.8
(D) 성분 (질량%)			72.5	73.2	73.3	72.5	73.2
(D) 성분 (체적%)			59.8	59.8	59.8	59.8	59.8
(E) 성분 (질량%)			1.9	2.1	2.2	1.9	4.5
활성 에스테르기/에폭시기			1.9	1.9	1.9	1.9	1.9
유전 정접 (Df)			0.0034	0.0022	0.0024	0.0033	0.0022
균열 평가	수율 (%)		100	100	99	100	85
	점수		5	5	5	5	3
	판정		○	○	○	○	○
파단점 신도 (%)			2.4	1.9	1.9	2.5	1.9

[0353]

표 4

[표 4. 실시예 16 내지 20의 조성 및 결과]

		고형분율 (%)	실시예 16	17	18	19	20
(A)	GPH-65	100	10	25	10	10	10
	GPH-103	100					
(B)	HP-4032-SS	100			30		
	NC-3000	100	30	30		30	30
(C)	HPC-8000-65T	65				73	
	HPC-8150-62T	62	73	73	73		73
(D)	SO-C2	100	255	285	255	260	255
	MGH-005	100					
	중공 실리카 입자	100					
(E)	SN-485	100					
	LA-3018-50P	50					
	V-03	50	15	15	15	15	15
(F)	1B2PZ	100	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
(G)	YX7553BH30	30			0.2		
(H)	SLK-6895-T90	90	0.2	0.2			
	SLK-1500-T80	80				0.2	0.2
약품 (질량부)			383.4	428.4	383.4	388.4	383.4
불휘발 성분 (질량부)			348.1	393.1	348.0	355.3	348.1
(A) 성분 (질량%)			2.87	6.36	2.87	2.81	2.87
(B) 성분 (질량%)			8.6	7.6	8.6	8.4	8.6
(C) 성분 (질량%)			13.0	11.5	13.0	13.4	13.0
(D) 성분 (질량%)			73.2	72.5	73.3	73.2	73.3
(D) 성분 (체적%)			59.8	59.8	59.8	59.8	59.8
(E) 성분 (질량%)			2.2	1.9	2.2	2.1	2.2
활성 에스테르기/에폭시기			1.9	1.9	1	1.9	1.9
유전 정접 (Df)			0.0021	0.0031	0.0023	0.0022	0.0021
균열 평가	수율 (%)		100	100	100	100	100
	점수		5	5	5	5	5
	판정		○	○	○	○	○
파단점 신도 (%)			2	2.6	1.8	1.7	1.9

[0354]

표 5

[표 5. 실시예 21 내지 25의 조성 및 결과]

		고형분율 (%)	실시예				
			21	22	23	24	25
(A)	GPH-65	100	10	10	10	10	10
	GPH-103	100					
(B)	HP-4032-SS	100		30	30		
	NC-3000	100	30			30	30
(C)	HPC-8000-65T	65			52	35	18
	HPC-8150-62T	62	73	73	18	36	54
(D)	SO-C2	100	285	258	255	285	255
	MGH-005	100					
	중공 실리카 입자	100					
(E)	SN-485	100					
	LA-3018-50P	50	20			20	
	V-03	50	15	15	15	15	15
(F)	1B2PZ	100	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
(G)	YX7553BH30	30		1	0.2		
(H)	SLK-6895-T90	90					0.2
	SLK-1500-T80	80	1	1		1	
약품 (질량부)			434.2	388.2	380.4	432.2	382.4
불휘발 성분 (질량부)			388.8	352.1	347.7	388.6	348.1
(A) 성분 (질량%)			2.57	2.84	2.88	2.57	2.87
(B) 성분 (질량%)			7.7	8.5	8.6	7.7	8.6
(C) 성분 (질량%)			11.6	12.9	12.9	11.6	13.0
(D) 성분 (질량%)			73.3	73.3	73.3	73.3	73.3
(D) 성분 (체적%)			59.8	59.8	59.8	59.8	59.8
(E) 성분 (질량%)			4.5	2.1	2.2	4.5	2.2
활성 에스테르기/에폭시기			1.9	1.9	1	1.9	1.9
유전 정접 (Df)			0.002	0.0021	0.0024	0.0021	0.0022
균열 평가	수율 (%)		100	100	100	100	100
	점수		5	5	5	5	5
	판정		○	○	○	○	○
파단점 신도 (%)			2.2	2.3	1.7	2	1.9

[0355]

표 6

[표 6. 비교예 1 내지 4의 조성 및 결과]

		고형분율 (%)	비교예			
			1	2	3	4
(A)	GPH-65	100			10	10
	GPH-103	100				
(B)	HP-4032-SS	100				
	NC-3000	100	30	30	30	30
(C)	HPC-8000-65T	65	73	73	30	30
	HPC-8150-62T	62				
(D)	SO-C2	100	260	260	182	98
	MGH-005	100				
	중공 실리카 입자	100				
(E)	SN-485	100	10			
	LA-3018-50P	50		20		
	V-03	50	15	15	15	15
(F)	1B2PZ	100	0.2	0.2	0.2	0.2
(G)	YX7553BH30	30	0.2	0.2	0.2	0.2
(H)	SLK-6895-T90	90				
	SLK-1500-T80	80				
약품 (질량부)			388.4	398.4	267.4	183.4
불휘발 성분 (질량부)			355.2	355.2	249.3	165.3
(A) 성분 (질량%)			0.00	0.00	4.01	6.05
(B) 성분 (질량%)			8.4	8.4	12.0	18.2
(C) 성분 (질량%)			13.4	13.4	7.8	11.8
(D) 성분 (질량%)			73.2	73.2	73.0	59.3
(D) 성분 (체적%)			59.8	59.8	59.6	44.3
(E) 성분 (질량%)			4.9	4.9	3.0	4.5
활성 에스테르기/에폭시기			1.9	1.9	0.8	0.8
유전 정접 (Df)			0.0024	0.0023	0.0063	0.0049
균열 평가	수율 (%)		28	6	90	38
	점수		2	1	5	2
	판정		×	×	○	×
파단점 신도 (%)			1.7	1.1	2.1	2.8

[0356]

[0357] [검토]

[0358] (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지를 사용하지 않는 비교예 1 및 2에서는, 파단점 강도 또는 균열 시험에 불량이 보였다. 또한, (C) 활성 에스테르 화합물이 소량인 비교예 3에서는, 균열 시험 및 파단점 신도는 양호하였지만, 유전 정접을 낮게 할 수 없었다. 또한, (D) 무기 충전재가 소량인 비교예 4에서는, 파단점 신도는 높은 값을 나타내지만, 균열 시험은 불량이며, 또한 유전 정접을 낮게 할 수 없었다.

[0359] 반면, (A) 내지 (D) 성분을 조합한 실시예 1 내지 25에서는, 모두, 유전 정접, 균열 시험 및 파단점 신도가 양호한 결과를 나타냈다. (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지가 많은 실시예 11에 비해, 실시예 1에서 유전 정접을 낮게 할 수 있는 점에서 생각하면, (A) 비페닐아르알킬형 페놀 수지의 양에는, 유전 정접을 낮게 하는 데에 있어서 적합한 범위가 있음을 이해할 수 있다.