

(21)申請案號：112105281

(22)申請日：中華民國 112 (2023) 年 02 月 15 日

(51)Int. Cl. : C08G73/10 (2006.01)

C08K5/523 (2006.01)

B32B15/08 (2006.01)

(30)優先權：2022/03/01 日本

2022-031098

(71)申請人：日商三菱瓦斯化學股份有限公司(日本)MITSUBISHI GAS CHEMICAL COMPANY, INC. (JP)

日本

(72)發明人：藤井良輔 FUJII, RYOSUKE (JP)；酒井敦史 SAKAI, ATSUSHI (JP)；佐藤勇希 SATO, YUUKI (JP)

(74)代理人：周良吉；林郁君；周宜新

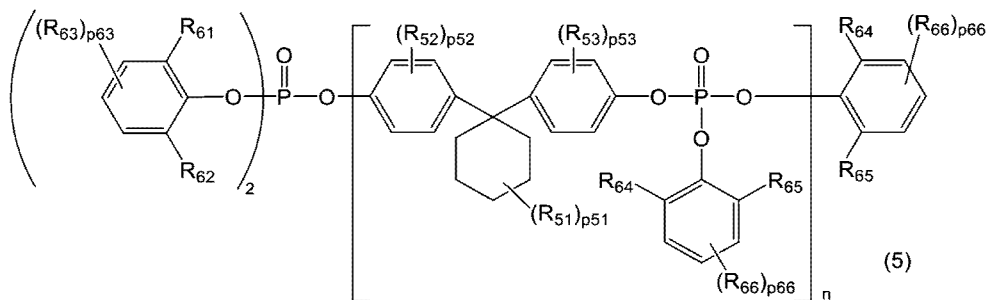
申請實體審查：無 申請專利範圍項數：6 項 圖式數：0 共 62 頁

## (54)名稱

聚醯亞胺樹脂組成物及成形體

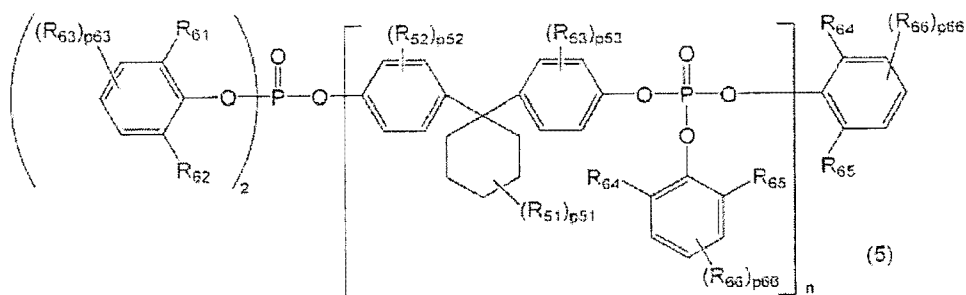
## (57)摘要

一種聚醯亞胺樹脂組成物，含有具有特定結構之聚醯亞胺樹脂(A)、及下式(5)表示之化合物(B)。



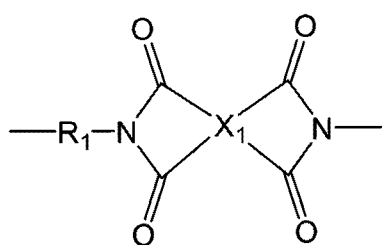
R<sub>51</sub> 係碳數 1~10 之烷基、或碳數 1~10 之烷氧基。R<sub>52</sub>~R<sub>53</sub>、及 R<sub>61</sub>~R<sub>66</sub> 各自獨立地係碳數 1~4 之烷基或碳數 1~4 之烷氧基。p<sub>51</sub> 係 0~6 之整數，p<sub>52</sub> 及 p<sub>53</sub> 各自獨立地係 0~4 之整數，p<sub>63</sub> 及 p<sub>66</sub> 各自獨立地係 0~3 之整數。p<sub>51</sub>~p<sub>53</sub>、p<sub>63</sub>、或 p<sub>66</sub> 係 2 以上時，多個之 R<sub>51</sub>~R<sub>53</sub>、R<sub>63</sub> 或 R<sub>66</sub> 可以互為相同亦可以不同。n 係 1~10 之整數。

A polyimide resin composition of the invention contains a polyimide resin (A) having a specific structure, and a compound (B) represented by formula (5) shown below.

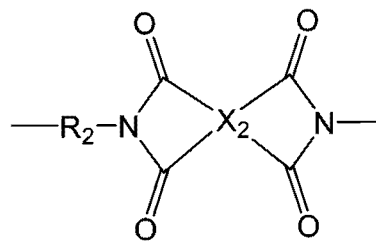


(R<sub>51</sub> represents an alkyl group of 1 to 10 carbon atoms, or an alkoxy group of 1 to 10 carbon atoms. R<sub>52</sub>, R<sub>53</sub> and R<sub>61</sub> to R<sub>66</sub> each independently represent an alkyl group of 1 to 4 carbon atoms or an alkoxy group of 1 to 4 carbon atoms. Further, p<sub>51</sub> represents an integer from 0 to 6, p<sub>52</sub> and p<sub>53</sub> each independently represent an integer from 0 to 4, and p<sub>63</sub> and p<sub>66</sub> each independently represent an integer from 0 to 3. When p<sub>51</sub> to p<sub>53</sub>, p<sub>63</sub>, or p<sub>66</sub> is two or greater, then a plurality of R<sub>51</sub> to R<sub>53</sub>, R<sub>63</sub>, or R<sub>66</sub> may be the same or different. n represents an integer from 1 to 10.)

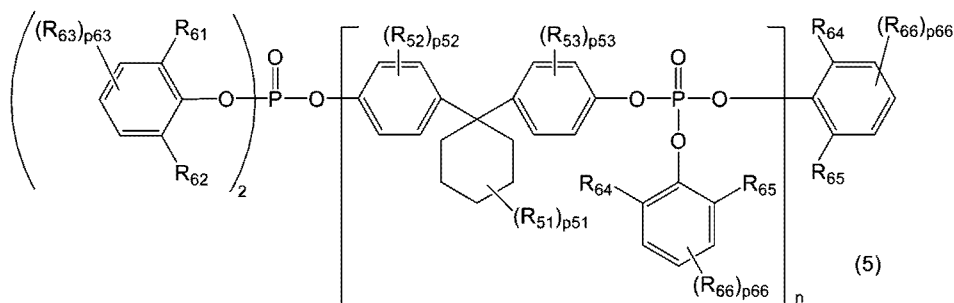
特徵化學式：



(1)



(2)



## 【發明摘要】

### 【中文發明名稱】

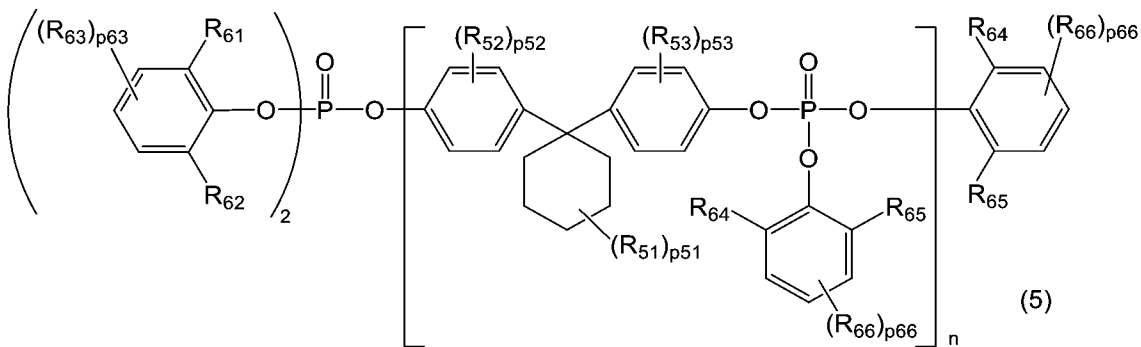
聚醯亞胺樹脂組成物及成形體

### 【英文發明名稱】

POLYIMIDE RESIN COMPOSITION AND MOLDED ARTICLE

### 【中文】

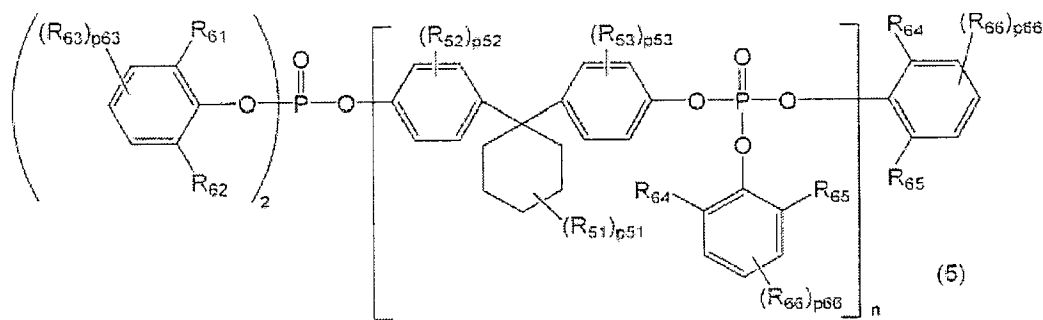
一種聚醯亞胺樹脂組成物，含有具有特定結構之聚醯亞胺樹脂(A)、及下式(5)表示之化合物(B)。



$R_{51}$ 係碳數1~10之烷基、或碳數1~10之烷氧基。 $R_{52}$ ~ $R_{53}$ 、及 $R_{61}$ ~ $R_{66}$ 各自獨立地係碳數1~4之烷基或碳數1~4之烷氧基。 $p_{51}$ 係0~6之整數， $p_{52}$ 及 $p_{53}$ 各自獨立地係0~4之整數， $p_{63}$ 及 $p_{66}$ 各自獨立地係0~3之整數。 $p_{51}$ ~ $p_{53}$ 、 $p_{63}$ 、或 $p_{66}$ 係2以上時，多個之 $R_{51}$ ~ $R_{53}$ 、 $R_{63}$ 或 $R_{66}$ 可以互為相同亦可以不同。 $n$ 係1~10之整數。

### 【英文】

A polyimide resin composition of the invention contains a polyimide resin (A) having a specific structure, and a compound (B) represented by formula (5) shown below.



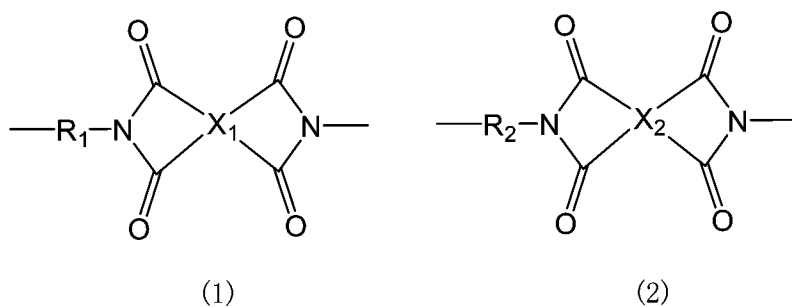
(R<sub>51</sub> represents an alkyl group of 1 to 10 carbon atoms, or an alkoxy group of 1 to 10 carbon atoms. R<sub>52</sub>, R<sub>53</sub> and R<sub>61</sub> to R<sub>66</sub> each independently represent an alkyl group of 1 to 4 carbon atoms or an alkoxy group of 1 to 4 carbon atoms. Further, p<sub>51</sub> represents an integer from 0 to 6, p<sub>52</sub> and p<sub>53</sub> each independently represent an integer from 0 to 4, and p<sub>63</sub> and p<sub>66</sub> each independently represent an integer from 0 to 3. When p<sub>51</sub> to p<sub>53</sub>, p<sub>63</sub>, or p<sub>66</sub> is two or greater, then a plurality of R<sub>51</sub> to R<sub>53</sub>, R<sub>63</sub>, or R<sub>66</sub> may be the same or different. n represents an integer from 1 to 10.)

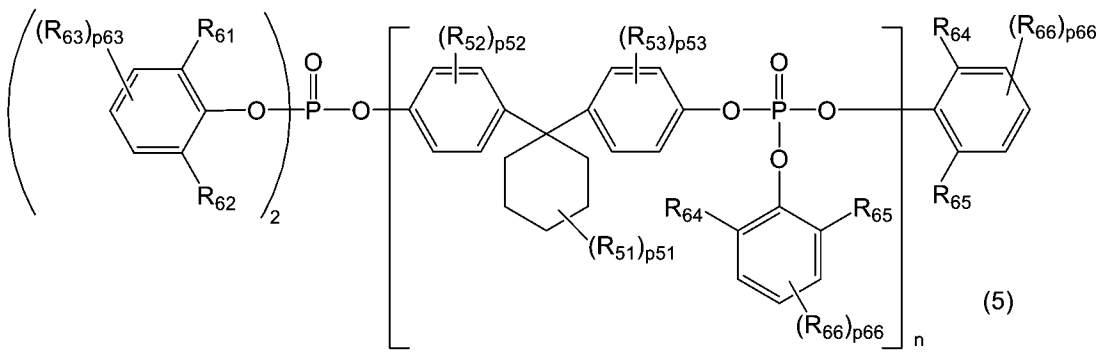
【指定代表圖】 無

【代表圖之符號簡單說明】

無

【特徵化學式】





## 【發明說明書】

### 【中文發明名稱】

聚醯亞胺樹脂組成物及成形體

### 【英文發明名稱】

POLYIMIDE RESIN COMPOSITION AND MOLDED ARTICLE

### 【技術領域】

#### 【0001】

本發明係關於聚醯亞胺樹脂組成物及成形體。

### 【先前技術】

#### 【0002】

聚醯亞胺樹脂由於分子鏈之剛直性、共振穩定化、強化學鍵而係具有高熱穩定性、高強度、高耐溶劑性之有用的工程塑膠，被應用在廣泛的領域。

聚醯亞胺樹脂雖然係高耐熱性，另一方面，不會展現熱塑性而有成形加工性低之問題，近年來，亦有人報告具有熱塑性之聚醯亞胺樹脂。熱塑性聚醯亞胺樹脂除了聚醯亞胺樹脂本來具有的耐熱性之外，成形加工性亦優良。因此，熱塑性聚醯亞胺樹脂亦能夠應用於可在係汎用的熱塑性樹脂之尼龍、聚酯所無法應用的嚴酷環境下使用之成形體。

#### 【0003】

作為用以對聚醯亞胺樹脂賦予熱塑性之分子設計之一，一般而言，已知有將如脂肪族結構般柔軟的結構導入主鏈之手法。脂肪族結構具有以下優點：對

於聚醯亞胺可以較容易賦予熱塑性、因為其體積龐大而容易表現低介電特性。另一方面，相較於芳香族結構，其耐氧化性差，就結果而言，存在會降低原本聚醯亞胺所具有的高阻燃性之課題。

為了將如此之熱塑性聚醯亞胺樹脂應用在要求高阻燃性之用途，亦有人探討添加阻燃劑來改善阻燃性。例如專利文獻1揭示含有特定結構之聚醯亞胺樹脂及次磷酸金屬鹽系阻燃劑之聚醯亞胺樹脂組成物，其成形加工性優良，同時能夠兼具高阻燃性及良好的外觀。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

**【0004】**

[專利文獻1]國際公開第2019/220968號

**【發明內容】**

[發明所欲解決之課題]

**【0005】**

在聚醯亞胺樹脂之中，尤其是半芳香族系聚醯亞胺樹脂、全脂肪族系聚醯亞胺樹脂、或是具有氟等體積大的取代基之聚醯亞胺樹脂，除了原本聚醯亞胺樹脂所具有之高耐熱性、尺寸穩定性之外，也可達到就樹脂材料而言係極低的介電特性(低介電常數及低介電正切)。因此，聚醯亞胺樹脂在對於要求低介電特性的第5代行動通訊系統(5G)相關構件(可撓性印刷基板、天線等)、其他電氣、電子構件之應用亦受到矚目。在這些用途中，除了低介電特性之外，與專利文

獻1之揭示技術同樣地，亦要求具有高阻燃性、即使添加阻燃劑等仍不會產生滲出等即外觀良好。

但是，如可撓性印刷基板般，成形體之厚度薄時，例如成形體之厚度下降到500 $\mu\text{m}$ 以下、200 $\mu\text{m}$ 以下，進一步為低於100 $\mu\text{m}$ 時，變得極難達到高阻燃性及良好的外觀。專利文獻1之揭示技術針對這點仍有改善之餘地。

本發明之課題係提供即使在厚度薄(例如500 $\mu\text{m}$ 以下)之情形下，仍可以製作能夠兼具高阻燃性及良好的外觀之成形體之聚醯亞胺樹脂組成物。

[解決課題之手段]

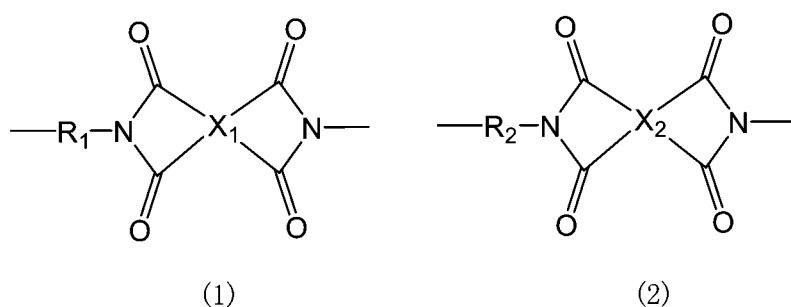
【0006】

本發明人們發現含有將特定不同的聚醯亞胺結構單元按特定的比率組合之聚醯亞胺樹脂、及具有特定結構之有機系阻燃劑之聚醯亞胺樹脂組成物可以解決上述課題。

亦即，本發明係關於下述。

[1] 一種聚醯亞胺樹脂組成物，含有聚醯亞胺樹脂(A)及化合物(B)，該聚醯亞胺樹脂(A)含有下式(1)表示之重複結構單元及下式(2)表示之重複結構單元，且該式(1)之重複結構單元相對於該式(1)之重複結構單元及該式(2)之重複結構單元之合計之含有比係20~70莫耳%，該化合物(B)係由下式(5)表示。

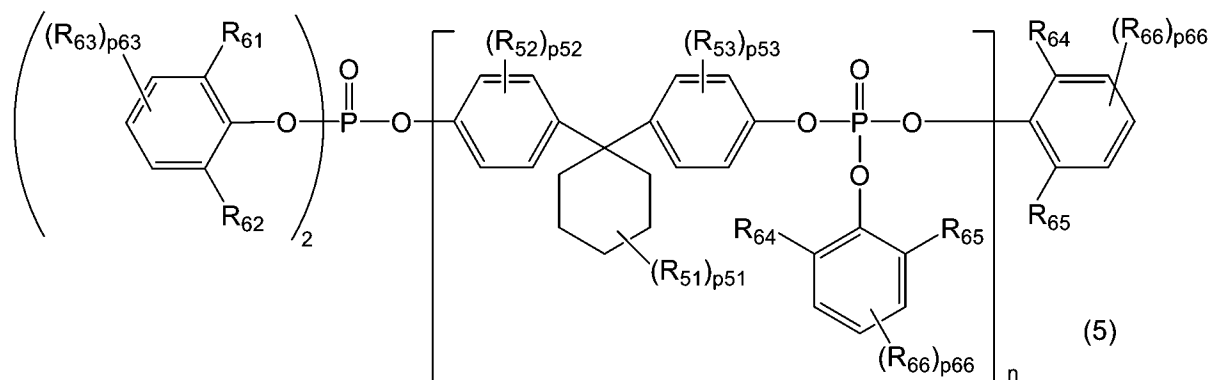
[化1]



第 3 頁，共 56 頁(發明說明書)

$R_1$ 係含有至少1個脂環族烴結構之碳數6~22之2價基。 $R_2$ 係碳數5~16之2價鏈狀脂肪族基。 $X_1$ 及 $X_2$ 各自獨立地係含有至少1個芳香環之碳數6~22之4價基。

[化2]



$R_{51}$ 係碳數1~10之烷基、或碳數1~10之烷氧基。 $R_{52}$ ~ $R_{53}$ 、及 $R_{61}$ ~ $R_{66}$ 各自獨立地係碳數1~4之烷基或碳數1~4之烷氧基。 $p_{51}$ 係0~6之整數， $p_{52}$ 及 $p_{53}$ 各自獨立地係0~4之整數， $p_{63}$ 及 $p_{66}$ 各自獨立地係0~3之整數。 $p_{51}$ ~ $p_{53}$ 、 $p_{63}$ 、或 $p_{66}$ 係2以上時，多個之 $R_{51}$ ~ $R_{53}$ 、 $R_{63}$ 或 $R_{66}$ 可以互為相同亦可以不同。 $n$ 係1~10之整數。

[發明之效果]

【0007】

根據本發明之聚醯亞胺樹脂組成物，即使在厚度薄(例如500 $\mu\text{m}$ 以下)之情形下仍可以製作能夠兼具高阻燃性及良好的外觀之成形體。並且，該聚醯亞胺樹脂組成物及含有其的成形體具有高耐熱性(高玻璃轉移溫度)及低介電特性。因此，本發明之聚醯亞胺樹脂組成物及成形體，可應用在要求高阻燃性、及低介電常數及低介電正切之用途，例如：5G、或使用70G~300GHz之頻帶之第6代行動通訊系統(6G)相關構件、各種天線、各種天線基板、電線被覆材、搭接片、絕緣薄膜、碳纖維強化塑膠(CFRP)用原料、高頻電路基板、印刷配線基板、覆晶薄膜(Chip on Film)(COF)可撓性基板、多層疊層板、LED搭載基板、工業用機器

人基板、家庭用機器人之通訊用基板、半導體元件材料、高頻元件用晶圓、Wi-fi 晶片、無線通訊元件、傳輸線、軸承用塗層、隔熱軸、托盤(Tray)、各種帶(Belt)、耐熱低介電帶、耐熱低介電管、各種感測器、各種雷達、天線罩(雷達罩)、光通訊模組(TOSA/ROSA)、8k-TV之有線行動裝置或數位家電、基地台、無人機、監控攝影機、室內或戶外伺服器、人造衛星、太空站用通訊設備等。

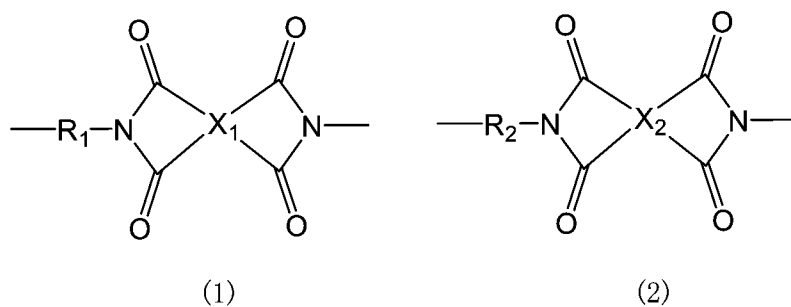
### 【實施方式】

#### 【0008】

##### [聚醯亞胺樹脂組成物]

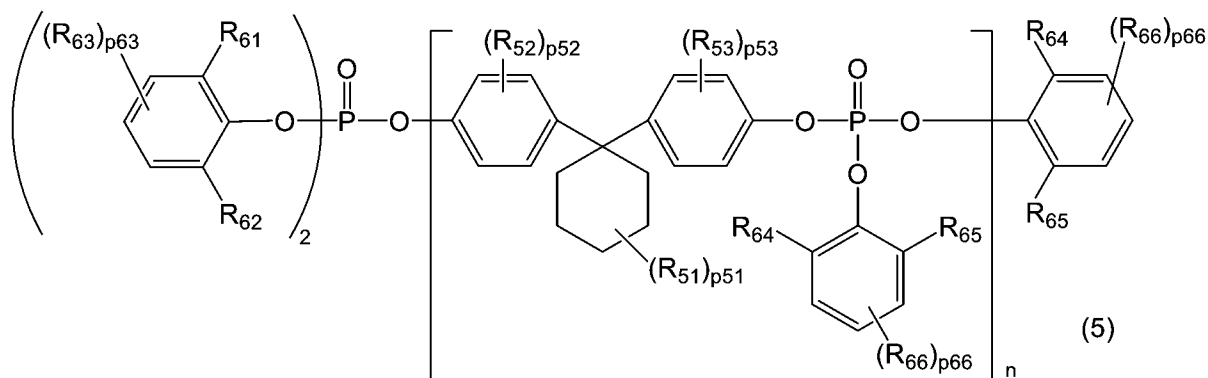
本發明之聚醯亞胺樹脂組成物，含有聚醯亞胺樹脂(A)及化合物(B)，該聚醯亞胺樹脂(A)含有下式(1)表示之重複結構單元及下式(2)表示之重複結構單元，且該式(1)之重複結構單元相對於該式(1)之重複結構單元及該式(2)之重複結構單元之合計之含有比係20~70莫耳%，該化合物(B)係由下式(5)表示。

#### [化3]



R<sub>1</sub>係含有至少1個脂環族烴結構之碳數6~22之2價基。R<sub>2</sub>係碳數5~16之2價鏈狀脂肪族基。X<sub>1</sub>及X<sub>2</sub>各自獨立地係含有至少1個芳香環之碳數6~22之4價基。

#### [化4]



$R_{51}$ 係碳數1~10之烷基、或碳數1~10之烷氧基。 $R_{52}$ ~ $R_{53}$ 、及 $R_{61}$ ~ $R_{66}$ 各自獨立地係碳數1~4之烷基或碳數1~4之烷氧基。 $p_{51}$ 係0~6之整數， $p_{52}$ 及 $p_{53}$ 各自獨立地係0~4之整數， $p_{63}$ 及 $p_{66}$ 各自獨立地係0~3之整數。 $p_{51}$ ~ $p_{53}$ 、 $p_{63}$ 、或 $p_{66}$ 係2以上時，多個之 $R_{51}$ ~ $R_{53}$ 、 $R_{63}$ 或 $R_{66}$ 可以互為相同亦可以不同。 $n$ 係1~10之整數。

#### 【0009】

本發明之聚醯亞胺樹脂組成物，藉由含有將特定不同的聚醯亞胺結構單元按上述特定的比率組合而成之聚醯亞胺樹脂(A)，會成為更能表現熱塑性且成形加工性優良之樹脂組成物。此外，藉由將該聚醯亞胺樹脂(A)及特定的化合物(B)組合，即使在厚度薄(例如500 $\mu\text{m}$ 以下)之情形下，仍可以製作能夠兼具高阻燃性及良好的外觀之成形體。

在本發明中，得到上述效果之理由並不確定，但據認為如下。在芳香族縮合磷酸酯系阻燃劑之中，化合物(B)具有高耐熱性。另一方面，由於其係具有熔點之有機系阻燃劑，不同於次磷酸金屬鹽系阻燃劑等不具有熔點之粒狀阻燃劑，據認為其和熱成形時之聚醯亞胺樹脂(A)之相容性較高。因此，據認為根據本發明之聚醯亞胺樹脂組成物，即使在製作厚度薄的成形體之情形下仍可以表現高阻燃性，不易發生成形體中化合物(B)之析出、熱分解、滲出等，可以維持良好的外觀。



## 【0012】

本發明中使用之聚醯亞胺樹脂(A)係熱塑性樹脂，其形態宜為粉末或丸粒。熱塑性聚醯亞胺樹脂，有別於例如：在以聚醯胺酸等聚醯亞胺前驅物之狀態成形後，將醯亞胺環予以閉環而形成的不具玻璃轉移溫度(Tg)之聚醯亞胺樹脂、或是在低於玻璃轉移溫度之溫度下會分解之聚醯亞胺樹脂。

## 【0013】

關於式(1)之重複結構單元，詳述如下。

R<sub>1</sub>係含有至少1個脂環族烴結構之碳數6~22之2價基。此處，脂環族烴結構，意指衍生自脂環族烴化合物的環，該脂環族烴化合物可以係飽和亦可以係不飽和，可以係單環亦可以係多環。

脂環族烴結構，可示例：環己烷環等環烷環、環己烯等環烯環、降莖烷環等雙環烷環、及降莖烯等雙環烯環，但並不受限於此等。此等之中，宜為環烷環，較宜為碳數4~7之環烷環，更宜為環己烷環。

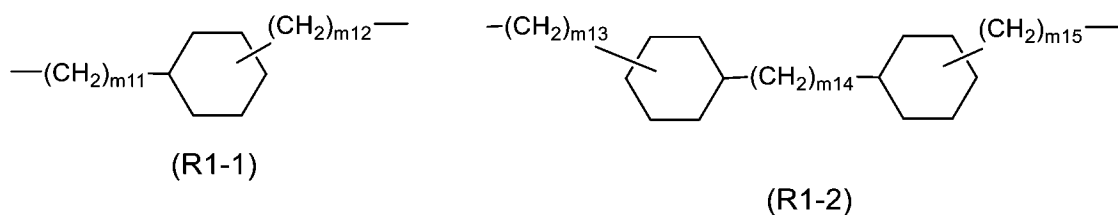
R<sub>1</sub>之碳數係6~22，宜為8~17。

R<sub>1</sub>含有至少1個脂環族烴結構，宜含有1~3個。

## 【0014】

R<sub>1</sub>宜為下式(R1-1)或(R1-2)表示之2價基。

[化6]

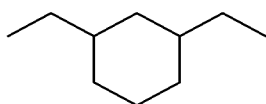


$m_{11}$ 及 $m_{12}$ 各自獨立地係0~2之整數，宜為0或1。 $m_{13}$ ~ $m_{15}$ 各自獨立地係0~2之整數，宜為0或1。

**【0015】**

$R_1$ 特宜為下式(R1-3)表示之2價基。

[化7]



(R1-3)

另外，上述式(R1-3)表示之2價基中，2個亞甲基相對於環己烷環的位置關係可以係順式亦可以係反式，此外，順式與反式之比可以係任意值。

**【0016】**

$X_1$ 係含有至少1個芳香環之碳數6~22之4價基。前述芳香環可以係單環亦可以係縮合環，可示例為：苯環、萘環、蔥環、及稠四苯環，但並不受限於此等。此等之中，宜為苯環及萘環，較宜為苯環。

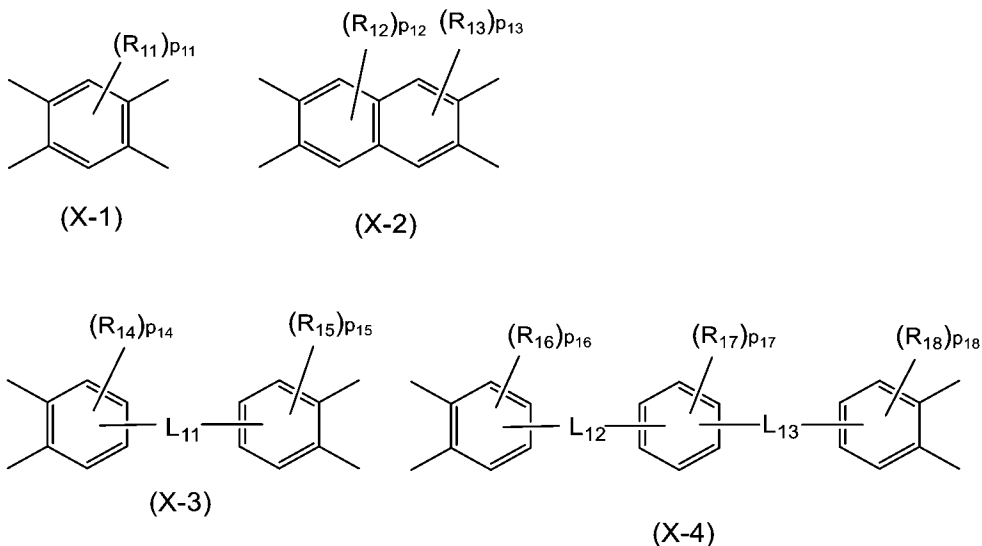
$X_1$ 之碳數係6~22，宜為6~18。

$X_1$ 含有至少1個芳香環，宜含有1~3個。

**【0017】**

$X_1$ 宜為下式(X-1)~(X-4)中任一者表示之4價基。

[化8]



$R_{11} \sim R_{18}$ 各自獨立地係碳數1~4之烷基。 $p_{11} \sim p_{13}$ 各自獨立地係0~2之整數，宜為0。 $p_{14}$ 、 $p_{15}$ 、 $p_{16}$ 及 $p_{18}$ 各自獨立地係0~3之整數，宜為0。 $p_{17}$ 係0~4之整數，宜為0。 $L_{11} \sim L_{13}$ 各自獨立地係單鍵、醚基、羰基或碳數1~4之伸烷基。

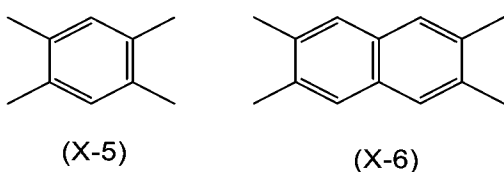
另外， $X_1$ 係含有至少1個芳香環之碳數6~22之4價基，故式(X-2)中之 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $p_{12}$ 及 $p_{13}$ 係以式(X-2)表示之4價基之碳數會落入10~22之範圍之方式予以選擇。

同樣地，式(X-3)中之 $L_{11}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{15}$ 、 $p_{14}$ 及 $p_{15}$ 係以式(X-3)表示之4價基之碳數會落入12~22之範圍之方式予以選擇，式(X-4)中之 $L_{12}$ 、 $L_{13}$ 、 $R_{16}$ 、 $R_{17}$ 、 $R_{18}$ 、 $p_{16}$ 、 $p_{17}$ 及 $p_{18}$ 係以式(X-4)表示之4價基之碳數會落入18~22之範圍之方式予以選擇。

### 【0018】

$X_1$ 特宜為下式(X-5)或(X-6)表示之4價基。

[化9]



## 【0019】

然後，關於式(2)之重複結構單元，詳述如下。

$R_2$ 係碳數5~16之2價鏈狀脂肪族基，宜為碳數6~14，較宜為碳數7~12，更宜為碳數8~10。此處，鏈狀脂肪族基意指衍生自鏈狀脂肪族化合物的基，該鏈狀脂肪族化合物可以係飽和亦可以係不飽和，可以係直鏈狀亦可以係分支狀，亦可含有氧原子等雜原子。

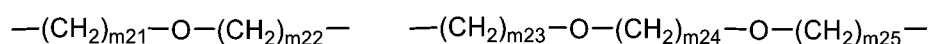
$R_2$ 宜為碳數5~16之伸烷基，較宜為碳數6~14，更宜為碳數7~12之伸烷基，其中，宜為碳數8~10之伸烷基。前述伸烷基，可以係直鏈伸烷基亦可以係分支伸烷基，宜為直鏈伸烷基。

$R_2$ 宜為選自由伸辛基及伸癸基構成之群組中之至少1種，特宜為伸辛基。

## 【0020】

此外， $R_2$ 之其他理想的態樣，可舉例：含有醚基之碳數5~16之2價鏈狀脂肪族基。該碳數宜為碳數6~14，較宜為碳數7~12，更宜為碳數8~10。其中，宜為下式(R2-1)或(R2-2)表示之2價基。

[化10]



(R2-1)

(R2-2)

$m_{21}$ 及 $m_{22}$ 各自獨立地係1~15之整數，宜為1~13，較宜為1~11，更宜為1~9。

$m_{23}$ ~ $m_{25}$ 各自獨立地係1~14之整數，宜為1~12，較宜為1~10，更宜為1~8。

另外， $R_2$ 係碳數5~16(宜為碳數6~14，較宜為碳數7~12，更宜為碳數8~10)之2價鏈狀脂肪族基，故式(R2-1)中之 $m_{21}$ 及 $m_{22}$ ，係以式(R2-1)表示之2價基之碳

數會落入5~16(宜為碳數6~14，較宜為碳數7~12，更宜為碳數8~10)之範圍之方式予以選擇。亦即， $m_{21}+m_{22}$ 係5~16(宜為6~14，較宜為7~12，更宜為8~10)。

同樣地，式(R2-2)中之 $m_{23}\sim m_{25}$ ，係以式(R2-2)表示之2價基之碳數會落入5~16(宜為碳數6~14，較宜為碳數7~12，更宜為碳數8~10)之範圍之方式予以選擇。亦即， $m_{23}+m_{24}+m_{25}$ 係5~16(宜為碳數6~14，較宜為碳數7~12，更宜為碳數8~10)。

### 【0021】

$X_2$ 係與式(1)中之 $X_1$ 為同樣定義，理想的態樣亦相同。

### 【0022】

式(1)之重複結構單元相對於式(1)之重複結構單元與式(2)之重複結構單元之合計之含有比係20~70莫耳%。式(1)之重複結構單元之含有比係上述範圍時，即使在一般的射出成型循環中，仍能夠使聚醯亞胺樹脂充分地結晶化。該含量比若未達20莫耳%則成形加工性降低，若超過70莫耳%則結晶性降低，故耐熱性會降低。

式(1)之重複結構單元相對於式(1)之重複結構單元與式(2)之重複結構單元之合計之含有比，就表現高結晶性之觀點而言，宜為65莫耳%以下，較宜為60莫耳%以下，更宜為50莫耳%以下。

其中，式(1)之重複結構單元相對於式(1)之重複結構單元與式(2)之重複結構單元之合計之含有比為20莫耳%以上、未達40莫耳%為理想。若為該範圍則聚醯亞胺樹脂(A)之結晶性提高，可以得到耐熱性更優良的樹脂組成物。

上述含有比，就成形加工性之觀點而言，宜為25莫耳%以上，較宜為30莫耳%以上，更宜為32莫耳%以上，就表現高結晶性之觀點而言，再更宜為35莫耳%以下。

### 【0023】

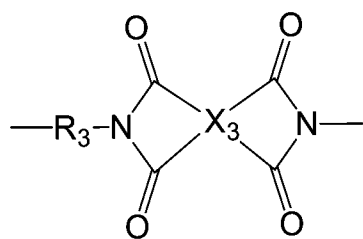
式(1)之重複結構單元與式(2)之重複結構單元之合計相對於構成聚醯亞胺樹脂(A)之全部重複結構單元之含有比，宜為50~100莫耳%，較宜為75~100莫耳%，更宜為80~100莫耳%，再更宜為85~100莫耳%。

### 【0024】

聚醯亞胺樹脂(A)亦可更含有下式(3)之重複結構單元。此情形下，式(3)之重複結構單元相對於式(1)之重複結構單元與式(2)之重複結構單元之合計之含有比，宜為25莫耳%以下。另一方面，下限值並無特別限制，超過0莫耳%即可。

前述含有比，就耐熱性改善之觀點而言，宜為5莫耳%以上，較宜為10莫耳%以上，另一方面，就維持結晶性之觀點而言，宜為20莫耳%以下，較宜為15莫耳%以下。

[化11]



(3)

$R_3$ 係含有至少1個芳香環之碳數6~22之2價基。 $X_3$ 係含有至少1個芳香環之碳數6~22之4價基。

### 【0025】

$R_3$ 係含有至少1個芳香環之碳數6~22之2價基。前述芳香環可以係單環亦可以係縮合環，可示例：苯環、萘環、蔥環、及稠四苯環，但並不受限於此等。此等之中，宜為苯環及萘環，較宜為苯環。

$R_3$ 之碳數係6~22，宜為6~18。

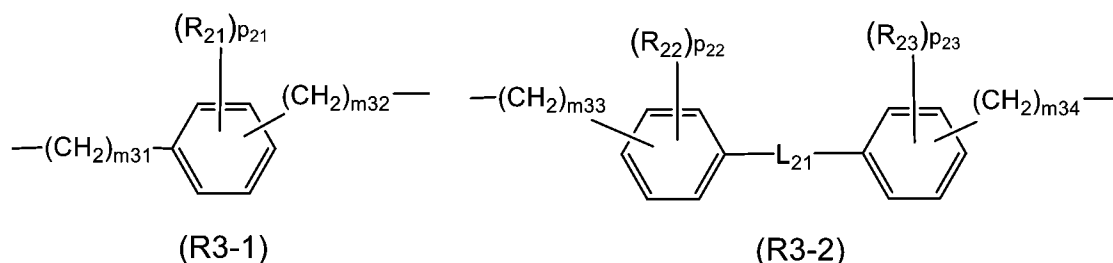
$R_3$ 含有至少1個芳香環，宜含有1~3個。

此外，前述芳香環亦可以鍵結1價或是2價之電子吸引基。1價之電子吸引基可舉例：硝基、氰基、對甲苯磺醯基、鹵素、鹵化烷基、苯基、醯基等。2價之電子吸引基，可舉例：如氟化伸烷基(例如 $-C(CF_3)_2-$ 、 $-(CF_2)_p-$ (此處， $p$ 係1~10之整數))之鹵化伸烷基，除此之外， $-CO-$ 、 $-SO_2-$ 、 $-SO-$ 、 $-CONH-$ 、 $-COO-$ 等。

### 【0026】

$R_3$ 宜為下式(R3-1)或(R3-2)表示之2價基。

[化12]



$m_{31}$ 及 $m_{32}$ 各自獨立地係0~2之整數，宜為0或1。 $m_{33}$ 及 $m_{34}$ 各自獨立地係0~2之整數，宜為0或1。 $R_{21}$ 、 $R_{22}$ 、及 $R_{23}$ 各自獨立地係碳數1~4之烷基、碳數2~4之烯基、或碳數2~4之炔基。 $p_{21}$ 、 $p_{22}$ 及 $p_{23}$ 係0~4之整數，宜為0。 $L_{21}$ 係單鍵、醚基、羰基或碳數1~4之伸烷基。

另外， $R_3$ 係含有至少1個芳香環之碳數6~22之2價基，故式(R3-1)中之 $m_{31}$ 、 $m_{32}$ 、 $R_{21}$ 及 $p_{21}$ ，係以式(R3-1)表示之2價基之碳數會落入6~22之範圍之方式予以選擇。

同樣地，式(R3-2)中之 $L_{21}$ 、 $m_{33}$ 、 $m_{34}$ 、 $R_{22}$ 、 $R_{23}$ 、 $p_{22}$ 及 $p_{23}$ ，係以式(R3-2)表示之2價基之碳數會落入12~22之範圍之方式予以選擇。

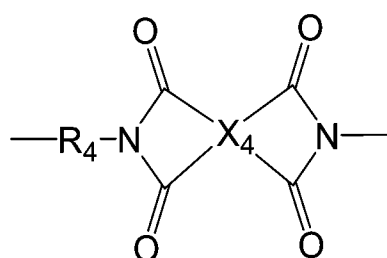
**【0027】**

$X_3$ 與式(1)中之 $X_1$ 為同樣定義，理想的態樣亦相同。

**【0028】**

聚醯亞胺樹脂(A)亦可更含有下式(4)表示之重複結構單元。

[化13]



(4)

$R_4$ 係含有 $-SO_2-$ 或 $-Si(R_x)(R_y)O-$ 之2價基， $R_x$ 及 $R_y$ 各自獨立地表示碳數1~3之鏈狀脂肪族基或苯基。 $X_4$ 係含有至少1個芳香環之碳數6~22之4價基。

$X_4$ 與式(1)中之 $X_1$ 為同樣定義，理想的態樣亦相同。

**【0029】**

聚醯亞胺樹脂(A)之末端結構並無特別限制，宜在末端具有碳數5~14之鏈狀脂肪族基。

該鏈狀脂肪族基可以係飽和亦可以係不飽和，可以係直鏈狀亦可以係分支狀。聚醯亞胺樹脂(A)若在末端具有上述特定的基，則可以得到耐熱老化性優良的樹脂組成物。

碳數5~14之飽和鏈狀脂肪族基，可舉例：正戊基、正己基、正庚基、正辛基、正壬基、正癸基、正十一烷基、月桂基、正十三烷基、正十四烷基、異戊基、新戊基、2-甲基戊基、2-甲基己基、2-乙基戊基、3-乙基戊基、異辛基、2-乙基己基、3-乙基己基、異壬基、2-乙基辛基、異癸基、異十二烷基、異十三烷基、異十四烷基等。

碳數5~14之不飽和鏈狀脂肪族基，可舉例：1-戊烯基、2-戊烯基、1-己烯基、2-己烯基、1-庚烯基、2-庚烯基、1-辛烯基、2-辛烯基、壬烯基、癸烯基、十二烯基、十三烯基、十四烯基等。

其中，上述鏈狀脂肪族基宜為飽和鏈狀脂肪族基，較宜為飽和直鏈狀脂肪族基。此外，就得到耐熱老化性之觀點而言，上述鏈狀脂肪族基宜為碳數6以上，較宜為碳數7以上，更宜為碳數8以上，宜為碳數12以下，較宜為碳數10以下，更宜為碳數9以下。上述鏈狀脂肪族基可以僅為1種，亦可以係2種以上。

上述鏈狀脂肪族基，特宜為選自由正辛基、異辛基、2-乙基己基、正壬基、異壬基、正癸基、及異癸基構成之群組中之至少1種，更宜為選自由正辛基、異辛基、2-乙基己基、正壬基、及異壬基構成之群組中之至少1種，最佳為選自由正辛基、異辛基、及2-乙基己基構成之群組中之至少1種。

此外，聚醯亞胺樹脂(A)，就耐熱老化性之觀點而言，除了末端胺基及末端羧基以外，宜為在末端僅具有碳數5~14之鏈狀脂肪族基。末端具有上述以外之

基時，其含量，宜為相對於碳數5~14之鏈狀脂肪族基為10莫耳%以下，較宜為5莫耳%以下。

### 【0030】

聚醯亞胺樹脂(A)中之上述碳數5~14之鏈狀脂肪族基之含量，就表現優良的耐熱老化性之觀點而言，相對於構成聚醯亞胺樹脂(A)之全部重複結構單元之合計100莫耳%，宜為0.01莫耳%以上，較宜為0.1莫耳%以上，更宜為0.2莫耳%以上。此外，為了確保充分的分子量且得到良好的機械物性，聚醯亞胺樹脂(A)中之上述碳數5~14之鏈狀脂肪族基之含量，相對於構成聚醯亞胺樹脂(A)之全部重複結構單元之合計100莫耳%，宜為10莫耳%以下，較宜為6莫耳%以下，更宜為3.5莫耳%以下。

聚醯亞胺樹脂(A)中之上述碳數5~14之鏈狀脂肪族基之含量，可以藉由將聚醯亞胺樹脂(A)解聚合來求得。

### 【0031】

聚醯亞胺樹脂(A)宜為具有360°C以下之熔點，且具有150°C以上之玻璃轉移溫度。聚醯亞胺樹脂之熔點，就耐熱性之觀點而言，較宜為280°C以上，更宜為290°C以上，就表現高成形加工性之觀點而言，宜為345°C以下，較宜為340°C以下，更宜為335°C以下。此外，聚醯亞胺樹脂(A)之玻璃轉移溫度，就耐熱性之觀點而言，較宜為160°C以上，較宜為170°C以上，就表現高成形加工性之觀點而言，宜為250°C以下，較宜為230°C以下，更宜為200°C以下。

聚醯亞胺樹脂(A)之熔點、玻璃轉移溫度皆可以藉由差示掃描型熱量計來進行測定。

此外，針對聚醯亞胺樹脂(A)，就改善結晶性、耐熱性、機械強度、耐化學性之觀點而言，藉由差示掃描型熱量計測定在將該聚醯亞胺樹脂熔融後以降溫速度20°C/分鐘進行冷卻時所觀測到的結晶化發熱峰部之熱量(以下，亦簡稱「結晶化發熱量」)，宜為5.0mJ/mg以上，較宜為10.0mJ/mg以上，更宜為17.0mJ/mg以上。結晶化發熱量之上限值並無特別限制，通常係45.0mJ/mg以下。

聚醯亞胺樹脂(A)之熔點、玻璃轉移溫度、結晶化發熱量，具體而言可以用實施例中記載之方法測定。

### 【0032】

聚醯亞胺樹脂(A)之0.5質量%濃硫酸溶液之於30°C之對數黏度，宜為0.2~2.0dL/g，較宜為0.3~1.8dL/g之範圍。對數黏度若係0.2dL/g以上，則在將得到之聚醯亞胺樹脂組成物製成成形體時會得到充分的機械強度，若係2.0dL/g以下，則成形加工性及操作性會變得良好。對數黏度 $\mu$ 係使用堪農-芬斯基(Cannon-Fenske)黏度計，各自測定於30°C之濃硫酸及上述聚醯亞胺樹脂溶液之流動時間，並由下式求得。

$$\mu = \ln(ts/t_0)/C$$

$t_0$ ：濃硫酸之流動時間

$ts$ ：聚醯亞胺樹脂溶液之流動時間

$C$ ：0.5(g/dL)

### 【0033】

聚醯亞胺樹脂(A)之重量平均分子量 $M_w$ ，宜為10,000~150,000，較宜為15,000~100,000，更宜為20,000~80,000，再更宜為30,000~70,000，再更宜為35,000~65,000之範圍。聚醯亞胺樹脂(A)之重量平均分子量 $M_w$ 若係10,000以上則

得到之成形體之機械強度會變得良好，若係40,000以上則機械強度之穩定性會變得良好，若係150,000以下則成形加工性會變得良好。

聚醯亞胺樹脂(A)之重量平均分子量 $M_w$ ，可以將聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)作為標準試料並藉由凝膠滲透層析(GPC)法來進行測定。

#### 【0034】

(聚醯亞胺樹脂(A)之製造方法)

聚醯亞胺樹脂(A)可以藉由使四羧酸成分及二胺成分進行反應來製造。該四羧酸成分包含含有至少1個芳香環之四羧酸及/或其衍生物，該二胺成分包含含有至少1個脂環族烴結構之二胺及鏈狀脂肪族二胺。

#### 【0035】

含有至少1個芳香環之四羧酸宜為4個羧基直接鍵結在芳香環之化合物，結構中亦可含有烷基。此外，前述四羧酸，宜為碳數6~26者。前述四羧酸，宜為焦蜜石酸、2,3,5,6-甲苯四甲酸、3,3',4,4'-二苯基酮四甲酸、3,3',4,4'-聯苯四甲酸、1,4,5,8-萘四甲酸等。此等之中，較宜為焦蜜石酸。

#### 【0036】

含有至少1個芳香環之四羧酸之衍生物，可舉例：含有至少1個芳香環之四羧酸之酐或烷酯體。前述四羧酸衍生物，宜為碳數6~38者。四羧酸之酐，可舉例：焦蜜石酸一酐、焦蜜石酸二酐、2,3,5,6-甲苯四甲酸二酐、3,3',4,4'-二苯基砜四甲酸二酐、3,3',4,4'-二苯基酮四甲酸二酐、3,3',4,4'-聯苯四甲酸二酐、1,4,5,8-萘四甲酸二酐等。四羧酸之烷酯體，可舉例：焦蜜石酸二甲酯、焦蜜石酸二乙酯、焦蜜石酸二丙酯、焦蜜石酸二異丙酯、2,3,5,6-甲苯四甲酸二甲酯、3,3',4,4'-二苯基砜四甲酸二甲酯、3,3',4,4'-二苯基酮四甲酸二甲酯、3,3',4,4'-聯苯四甲酸

二甲酯、1,4,5,8-萘四甲酸二甲酯等。上述四羧酸之烷酯體中，烷基之碳數宜為1~3。

**【0037】**

含有至少1個芳香環之四羧酸及/或其衍生物，可以單獨使用選自上述中之至少1個化合物，亦可以組合使用2個以上之化合物。

**【0038】**

含有至少1個脂環族烴結構之二胺之碳數宜為6~22，例如，宜為1,2-雙(胺甲基)環己烷、1,3-雙(胺甲基)環己烷、1,4-雙(胺甲基)環己烷、1,2-環己烷二胺、1,3-環己烷二胺、1,4-環己烷二胺、4,4'-二胺二環己基甲烷、4,4'-亞甲基雙(2-甲基環己胺)、香芹酮二胺(Carvone diamine)、檸檬烯二胺、異佛酮二胺、降莖烷二胺、雙(胺甲基)三環[5.2.1.0<sup>2,6</sup>]癸烷、3,3'-二甲基-4,4'-二胺二環己基甲烷、4,4'-二胺二環己基丙烷等。可以單獨使用此等化合物，亦可以組合使用選自此等中之2個以上之化合物。此等之中，可以理想地使用1,3-雙(胺甲基)環己烷。另外，含有脂環族烴結構之二胺一般而言具有結構異構物，但順式異構物/反式異構物之比率沒有限制。

**【0039】**

鏈狀脂肪族二胺，可以係直鏈狀亦可以係分支狀，碳數宜為5~16，較宜為6~14，更宜為7~12。此外，鏈部分之碳數若係5~16，則它們之間亦可含有醚鍵。鏈狀脂肪族二胺，宜為例如1,5-五亞甲基二胺、2-甲基戊烷-1,5-二胺、3-甲基戊烷-1,5-二胺、1,6-六亞甲基二胺、1,7-七亞甲基二胺、1,8-伸辛基二胺、1,9-九亞甲基二胺、1,10-伸癸基二胺、1,11-伸十一基二胺、1,12-伸十二基二胺、1,13-伸

十三基二胺、1,14-伸十四基二胺、1,16-伸十六基二胺、2,2'-(乙烯二氧基)雙(乙炔胺)等。

鏈狀脂肪族二胺可以使用1種或是亦可混合使用多種。此等之中，可理想地使用碳數係8~10之鏈狀脂肪族二胺，尤其是可以理想地使用選自由1,8-伸辛基二胺及1,10-伸癸基二胺構成之群組中之至少1種。

#### 【0040】

製造聚醯亞胺樹脂(A)時，含有至少1個脂環族烴結構之二胺之進料量相對於含有至少1個脂環族烴結構之二胺與鏈狀脂肪族二胺之合計量之莫耳比，宜為20~70莫耳%。該莫耳量宜為25莫耳%以上，較宜為30莫耳%以上，更宜為32莫耳%以上，就表現高結晶性之觀點而言，宜為60莫耳%以下，較宜為50莫耳%以下，更宜為未達40莫耳%，更宜為35莫耳%以下。

#### 【0041】

此外，上述二胺成分中，亦可包含含有至少1個芳香環之二胺。含有至少1個芳香環之二胺之碳數宜為6~22，例如可舉例：鄰亞二甲苯基二胺、間亞二甲苯基二胺、對亞二甲苯基二胺、1,2-二乙炔基苯二胺、1,3-二乙炔基苯二胺、1,4-二乙炔基苯二胺、1,2-二胺基苯、1,3-二胺基苯、1,4-二胺基苯、4,4'-二胺基二苯醚、3,4'-二胺基二苯醚、4,4'-二胺基二苯基甲烷、 $\alpha,\alpha'$ -雙(4-胺苯基)1,4-二異丙基苯、 $\alpha,\alpha'$ -雙(3-胺苯基)-1,4-二異丙基苯、2,2-雙〔4-(4-胺苯氧基)苯基〕丙烷、2,6-二胺基萘、1,5-二胺基萘等。

#### 【0042】

上述中，含有至少1個芳香環之二胺之進料量相對於含有至少1個脂環族烴結構之二胺與鏈狀脂肪族二胺之合計量之莫耳比，宜為25莫耳%以下。另一方面，下限值並無特別限制，超過0莫耳%即可。

前述莫耳比，就耐熱性改善之觀點而言，宜為5莫耳%以上，較宜為10莫耳%以上，另一方面就維持結晶性之觀點而言，宜為20莫耳%以下，較宜為15莫耳%以下。

此外，前述莫耳比，就減少聚醯亞胺樹脂(A)之著色之觀點而言，宜為12莫耳%以下，較宜為10莫耳%以下，更宜為5莫耳%以下，再更宜為0莫耳%。

#### 【0043】

製造聚醯亞胺樹脂(A)時，前述四羧酸成分與前述二胺成分之進料量比，宜為相對於四羧酸成分1莫耳，二胺成分係0.9~1.1莫耳。

#### 【0044】

此外，製造聚醯亞胺樹脂(A)時，除了前述四羧酸成分、前述二胺成分之外，亦可混合封端劑。封端劑宜為選自由單胺類及二羧酸類構成之群組中之至少1種。封端劑之使用量，只要是可以將期望量之末端基導入聚醯亞胺樹脂(A)中的量即可，相對於前述四羧酸及/或其衍生物1莫耳，宜為0.0001~0.1莫耳，較宜為0.001~0.06莫耳，更宜為0.002~0.035莫耳。

其中，封端劑宜為單胺類封端劑，就將前述碳數5~14之鏈狀脂肪族基導入聚醯亞胺樹脂(A)之末端並改善耐熱老化性之觀點而言，較宜為具有碳數5~14之鏈狀脂肪族基之單胺，更宜為具有碳數5~14之飽和直鏈狀脂肪族基之單胺。

封端劑，特宜為選自由正辛胺、異辛胺、2-乙基己胺、正壬胺、異壬胺、正癸胺、及異癸胺構成之群組中之至少1種，更宜為選自由正辛胺、異辛胺、2-乙

基己胺、正壬胺、及異壬胺構成之群組中之至少1種，最佳為選自由正辛胺、異辛胺、及2-乙基己胺構成之群組中之至少1種。

【0045】

用以製造聚醯亞胺樹脂(A)之聚合方法，可以應用公知之聚合方法，且可以使用國際公開第2016/147996號中記載之方法。

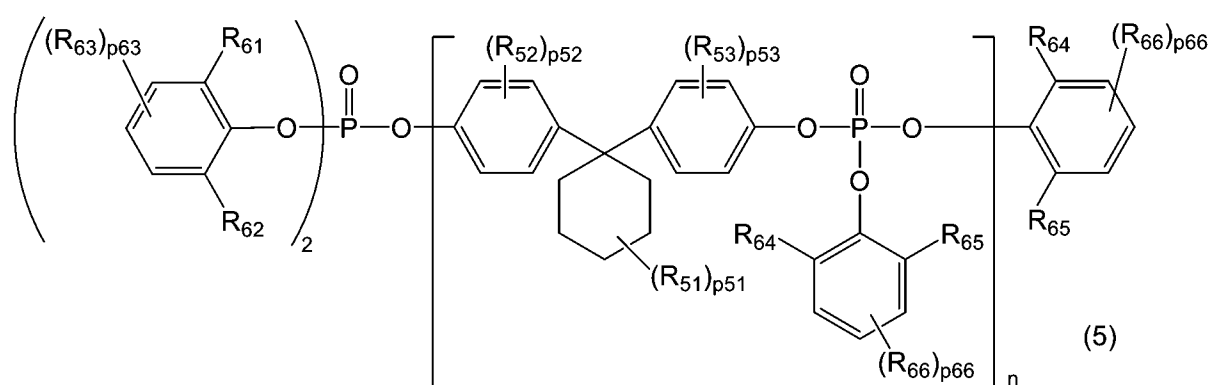
【0046】

<化合物(B)>

本發明之聚醯亞胺樹脂組成物含有聚醯亞胺樹脂(A)、及下式(5)表示之化合物(B)。

藉由對於具有前述特定的結構之聚醯亞胺樹脂(A)，使用式(5)表示之化合物(B)作為阻燃劑，所得到之成形體即使在厚度薄之情形下，仍可得到高阻燃性及良好的外觀。此外，藉由使用化合物(B)，聚醯亞胺樹脂組成物之擠製性亦會改善，並且，作為樹脂材料可以達成極低的介電常數及介電正切。

[化14]



$R_{51}$ 係碳數1~10之烷基、或碳數1~10之烷氧基。 $R_{52}$ ~ $R_{53}$ 、及 $R_{61}$ ~ $R_{66}$ 各自獨立地係碳數1~4之烷基或碳數1~4之烷氧基。 $p_{51}$ 係0~6之整數， $p_{52}$ 及 $p_{53}$ 各自獨立地

係0~4之整數， $p_{63}$ 及 $p_{66}$ 各自獨立地係0~3之整數。 $p_{51}$ ~ $p_{53}$ 、 $p_{63}$ 、或 $p_{66}$ 係2以上時，多個之 $R_{51}$ ~ $R_{53}$ 、 $R_{63}$ 或 $R_{66}$ 可以互為相同亦可以不同。 $n$ 係1~10之整數。

**【0047】**

式(5)中， $R_{51}$ 係碳數1~10之烷基、或碳數1~10之烷氧基，宜為碳數1~10之烷基，較宜為碳數1~6之烷基，更宜為碳數1~4之烷基。

**【0048】**

碳數1~10之烷基，可以係直鏈及分支狀中任一者，例如可舉例：甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、異丁基、第三丁基、正戊基、異戊基、2-甲基丁基、1-甲基丁基、1,2-二甲基丙基、新戊基(2,2-二甲基丙基)、第三戊基(1,1-二甲基丙基)、正己基、異己基、1-甲基戊基、2-甲基戊基、3-甲基戊基、1-乙基丁基、2-乙基丁基、1,1-二甲基丁基、1,2-二甲基丁基、1,3-二甲基丁基、2,2-二甲基丁基、2,3-二甲基丁基、1-乙基-1-甲基丙基、1-乙基-2-甲基丙基、正庚基、異庚基、1-甲基己基、2-甲基己基、3-甲基己基、4-甲基己基、1-乙基戊基、2-乙基戊基、3-乙基戊基、1-丙基丁基、1,1-二甲基戊基、1,2-二甲基戊基、1,3-二甲基戊基、1,4-二甲基戊基、1-乙基-1-甲基丁基、1-乙基-2-甲基丁基、1-乙基-3-甲基丁基、2-乙基-1-甲基丁基、2-乙基-1-甲基丁基、2-乙基-2-甲基丁基、2-乙基-3-甲基丁基、1,1-二乙基丙基、正辛基、異辛基、1-甲基庚基、2-甲基庚基、3-甲基庚基、4-甲基庚基、5-甲基庚基、1-乙基己基、2-乙基己基、3-乙基己基、4-乙基己基、1-丙基庚基、2-丙基庚基、壬基、及癸基。

**【0049】**

上述烷基之中，宜為甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、異丁基、第三丁基、正戊基、異戊基、2-甲基丁基、1-甲基丁基、1,2-二甲基丙基、新戊基

(2,2-二甲基丙基)、第三戊基(1,1-二甲基丙基)、正己基、異己基、1-甲基戊基、2-甲基戊基、3-甲基戊基、1-乙基丁基、2-乙基丁基、1,1-二甲基丁基、1,2-二甲基丁基、1,3-二甲基丁基、2,2-二甲基丁基、2,3-二甲基丁基、1-乙基-1-甲基丙基、或1-乙基-2-甲基丙基，較宜為甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、異丁基、或第三丁基，更宜為甲基或乙基，再更宜為甲基。

### 【0050】

碳數1~10之烷氧基，可以係直鏈及分支狀中任一者，例如可舉例：甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、異丁氧基、第三丁氧基、正戊氧基、異戊氧基、2-甲基丁氧基、1-甲基丁氧基、1,2-二甲基丙氧基、新戊氧基(2,2-二甲基丙氧基)、第三戊氧基(1,1-二甲基丙氧基)、正己氧基、異己氧基、1-甲基戊氧基、2-甲基戊氧基、3-甲基戊氧基、1-乙基丁氧基、2-乙基丁氧基、1,1-二甲基丁氧基、1,2-二甲基丁氧基、1,3-二甲基丁氧基、2,2-二甲基丁氧基、2,3-二甲基丁氧基、1-乙基-1-甲基丙氧基、1-乙基-2-甲基丙氧基、正庚氧基、異庚氧基、1-甲基己氧基、2-甲基己氧基、3-甲基己氧基、4-甲基己氧基、1-乙基戊氧基、2-乙基戊氧基、3-乙基戊氧基、1-丙基丁氧基、1,1-二甲基戊氧基、1,2-二甲基戊氧基、1,3-二甲基戊氧基、1,4-二甲基戊氧基、1-乙基-1-甲基丁氧基、1-乙基-2-甲基丁氧基、1-乙基-3-甲基丁氧基、2-乙基-1-甲基丁氧基、2-乙基-1-甲基丁氧基、2-乙基-2-甲基丁氧基、2-乙基-3-甲基丁氧基、1,1-二乙基丙氧基、正辛氧基、異辛氧基、1-甲基庚氧基、2-甲基庚氧基、3-甲基庚氧基、4-甲基庚氧基、5-甲基庚氧基、1-乙基己氧基、2-乙基己氧基、3-乙基己氧基、4-乙基己氧基、1-丙基庚氧基、2-丙基庚氧基、壬氧基、癸氧基等。

### 【0051】

上述烷氧基之中，宜為甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、異丁氧基、第三丁氧基、正戊氧基、異戊氧基、2-甲基丁氧基、1-甲基丁氧基、1,2-二甲基丙氧基、新戊氧基(2,2-二甲基丙氧基)、第三戊氧基(1,1-二甲基丙氧基)、正己氧基、異己氧基、1-甲基戊氧基、2-甲基戊氧基、3-甲基戊氧基、1-乙基丁氧基、2-乙基丁氧基、1,1-二甲基丁氧基、1,2-二甲基丁氧基、1,3-二甲基丁氧基、2,2-二甲基丁氧基、2,3-二甲基丁氧基、1-乙基-1-甲基丙氧基或1-乙基-2-甲基丙氧基，較宜為甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、異丁氧基或第三丁氧基。

#### 【0052】

$R_{52}\sim R_{53}$ 、及 $R_{61}\sim R_{66}$ 各自獨立地係碳數1~4之烷基或碳數1~4之烷氧基，宜為碳數1~4之烷基，較宜為碳數1~3之烷基，更宜為碳數1或2之烷基。

碳數1~4之烷基，可以係直鏈及分支狀中任一者，例如可舉例：甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、異丁基、或第三丁基。

上述烷基之中，宜為甲基、乙基、正丙基或異丙基，較宜為甲基或乙基，更宜為甲基。

#### 【0053】

碳數1~4之烷氧基，可以係直鏈及分支狀中任一者，例如可舉例：甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、異丁氧基、或第三丁氧基。

上述烷氧基之中，宜為甲氧基、乙氧基、正丙氧基或異丙氧基，較宜為甲氧基或乙氧基。

#### 【0054】

式(5)中、 $p_{51}$ 係0~6之整數，宜為0~5，較宜為0~3。

$p_{52}$ 及 $p_{53}$ 各自獨立地係0~4之整數，宜為0~2，較宜為0。

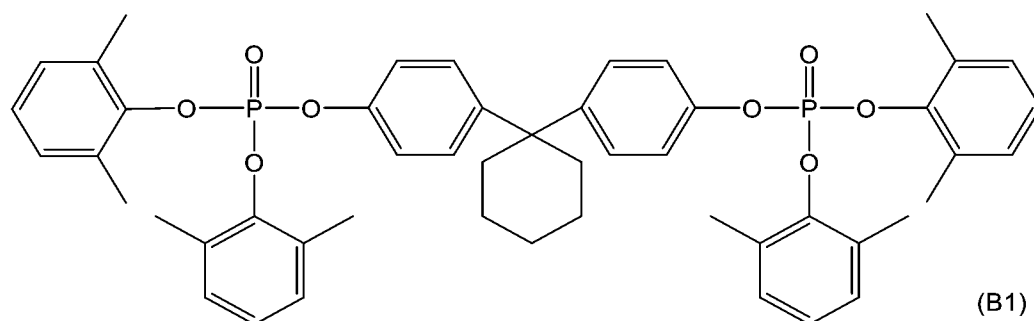
$p_{63}$ 及 $p_{66}$ 各自獨立地係0~3之整數，宜為0~1，較宜為0。

$n$ 係1~10，宜為1~5，較宜為1~3，更宜為1之整數。

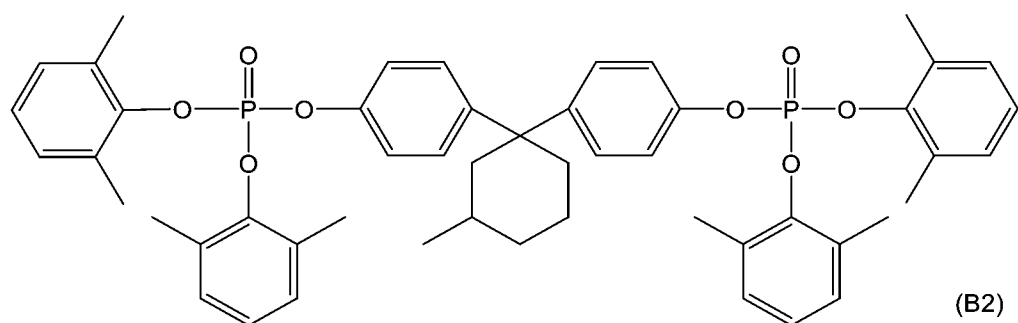
**【0055】**

就即使在厚度係例如500 $\mu\text{m}$ 以下之薄的成形體仍兼具高阻燃性及良好的外觀之觀點而言，化合物(B)宜為選自由下述結構式(B1)~(B3)表示之化合物構成之群組中之至少1種。較宜為化合物(B)係下述結構式(B3)表示之化合物。

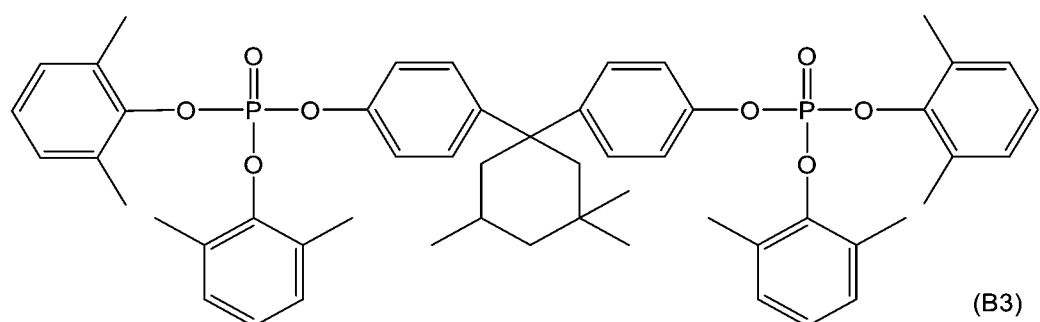
[化15]



[化16]



[化17]



**【0056】**

亦可以使用大八化學工業(股)製「SR-3000」等市售品作為化合物(B)。

**【0057】**

聚醯亞胺樹脂組成物中之化合物(B)之含量，相對於聚醯亞胺樹脂(A)100質量份，宜為0.1~30質量份，較宜為0.5~30質量份，更宜為1~30質量份，再更宜為2~30質量份，再更宜為4~25質量份，再更宜為5~25質量份，再更宜為5~20質量份，再更宜為5~15質量份。化合物(B)之含量相對於聚醯亞胺樹脂(A)100質量份，若係0.1質量份以上則容易賦予阻燃性改善效果及低介電特性，若係30質量份以下則可以維持良好的外觀及耐熱性。

**【0058】**

<成分(C)：選自由次磷酸金屬鹽(C1)及氟樹脂(C2)構成之群組中之至少1種  
>

為了改善防滴落效果、更提高阻燃性等，本發明之聚醯亞胺樹脂組成物可以含有選自由次磷酸金屬鹽(C1)及氟樹脂(C2)構成之群組中之至少1種之成分(C)。

**【0059】**

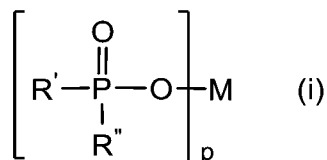
(次磷酸金屬鹽(C1))

就改善防滴落效果之觀點而言，次磷酸金屬鹽(C1)宜為選自由Mg、Ca、Al、Zn、Ti、Sn、Zr、及Fe構成之群組中之至少1種之金屬之鹽。該金屬較宜為選自由Mg、Ca、及Al構成之群組中之至少1種，更宜為Al。

**【0060】**

就改善防滴落效果之觀點、及得到良好的外觀之觀點而言，次膦酸金屬鹽(C1)更具體而言宜為下式(i)表示之化合物。

[化18]



R'及R''各自獨立地係碳數1~12之烴基，M係金屬原子。p係M表示之金屬原子之價數。

### 【0061】

前述式(i)中，R'及R''各自獨立地表示碳數1~12之烴基。該烴基，例如可舉例：烷基、環烷基、烯基、芳基、芳烷基等。

上述烷基，例如可舉例：甲基、乙基、正丙基、正丁基、正戊基、正己基、正庚基、正辛基、正壬基、正癸基、正十一烷基、月桂基、異丙基、異丁基、第二丁基、第三丁基、異戊基、新戊基、2-甲基戊基、2-甲基己基、2-乙基戊基、3-乙基戊基、異辛基、2-乙基己基、3-乙基己基、異壬基、2-乙基辛基、異癸基、異十二烷基等碳數1~12之烷基。

上述環烷基，例如可舉例：環戊基、環己基、環辛基、環癸基等碳數5~12之環烷基。

上述烯基，例如可舉例：乙烯基、烯丙基、丁烯基、1-戊烯基、2-戊烯基、1-己烯基、2-己烯基、1-庚烯基、2-庚烯基、1-辛烯基、2-辛烯基、壬烯基、癸烯基、十二烯基等碳數2~12之烯基。

上述芳基，例如可舉例：苯基、甲苯基、聯苯基、萘基等碳數6~12之芳基。

此外，上述芳烷基，例如可舉例：苄基、苯乙基、苯基丙基等碳數7~12之芳烷基。

上述其中，R'及R''宜為烷基。烷基之碳數，宜為1~8，較宜為1~6，更宜為1~3。

R'及R''可為相同亦可以不同，宜為相同。

### 【0062】

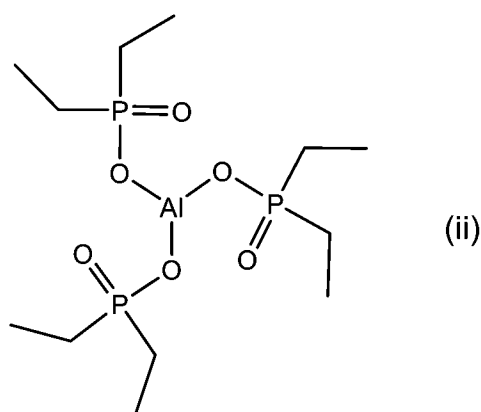
前述式(i)中，M係金屬原子，宜為選自由Mg、Ca、Al、Zn、Ti、Sn、Zr、及Fe構成之群組中之至少1種。M較宜為選自由Mg、Ca、及Al構成之群組中之至少1種，更宜為Al。

### 【0063】

次膦酸金屬鹽(C1)宜為前述式(i)中R'及R''係碳數1~12之烷基，且M係Al之化合物(二烷基次膦酸鋁)。此情形下，前述式(i)中之p係3。R'及R''之較理想的態樣與前述相同。

次膦酸金屬鹽(C1)更宜為前述式(i)中R'及R''係乙基，且M係Al之化合物(二乙基次膦酸鋁)。二乙基次膦酸鋁係下述結構式(ii)表示之化合物。

[化19]



### 【0064】

由於次膦酸金屬鹽(C1)係次膦酸金屬鹽，通常係固體的化合物，就對於聚醯亞胺樹脂(A)之分散性之觀點而言，宜為粉末狀。此外，就改善防滴落效果之觀點、及維持良好的外觀之觀點而言，宜為次膦酸金屬鹽(C1)之粒徑小。就上述觀點而言，次膦酸金屬鹽(C1)之粒徑(D50)，宜為40 $\mu\text{m}$ 以下，較宜為30 $\mu\text{m}$ 以下，更宜為20 $\mu\text{m}$ 以下，再更宜為10 $\mu\text{m}$ 以下，再更宜為5 $\mu\text{m}$ 以下。次膦酸金屬鹽(C1)之粒徑(D50)若係40 $\mu\text{m}$ 以下，尤其是10 $\mu\text{m}$ 以下，則於得到之聚醯亞胺樹脂組成物及成形體會得到較高阻燃性及良好的外觀。此外，次膦酸金屬鹽(C1)之粒徑(D50)，就操作性(揚升性)、抑制凝聚之觀點而言，宜為0.1 $\mu\text{m}$ 以上，較宜為0.5 $\mu\text{m}$ 以上，更宜為1 $\mu\text{m}$ 以上。

次膦酸金屬鹽(C1)之粒徑(D50)可以藉由雷射繞射式粒度分布計來進行測定。

#### 【0065】

次膦酸金屬鹽(C1)之磷含量，就改善防滴落效果之觀點而言，宜為0.5質量%以上，較宜為1質量%以上，就除了防滴落效果之外更表現高阻燃性之觀點而言，宜為10質量%以上，較宜為15質量%以上，更宜為20質量%以上。此外，就對於聚醯亞胺樹脂(A)之分散性改善之觀點、及維持良好的外觀之觀點而言，次膦酸金屬鹽(C1)之磷含量宜為40質量%以下。

#### 【0066】

次膦酸金屬鹽(C1)可以用公知之方法進行製造。此外，亦可以使用市售之次膦酸金屬鹽系阻燃劑作為次膦酸金屬鹽(C1)。市售之次膦酸金屬鹽系阻燃劑，例如可舉例：科萊恩化學(股)製之「EXOLIT OP1230」、「EXOLIT OP1240」、

「EXOLIT OP1400」、「EXOLIT OP930」、「EXOLIT OP935」、「EXOLIT OP945」、  
「EXOLIT OP945TP」等。

**【0067】**

(氟樹脂(C2))

氟樹脂(C2)，例如可舉例：聚四氟乙烯(PTFE)、聚氯三氟乙烯(PCTFE)、聚  
氟化亞乙烯(PVDF)、四氟乙烯與六氟丙烯之共聚物(FEP)、四氟乙烯與全氟烷基  
乙氧基醚之共聚物(PFA)、四氟乙烯與乙烯之共聚物(ETFE)、四氟乙烯與全氟烷  
氧基乙基之共聚物等，此等之中，可以使用1種或2種以上。其中，就改善防滴  
落效果之觀點、維持良好的外觀及耐熱性之觀點而言，宜為聚四氟乙烯。

**【0068】**

本發明中使用之氟樹脂(C2)，就對於聚醯亞胺樹脂(A)之分散性及操作性之  
觀點而言，宜為粉末狀。氟樹脂(C2)係粉末狀時，其平均粒徑(D50)並無特別限  
制，但就對於聚醯亞胺樹脂(A)之分散性及操作性之觀點而言，宜為1~50 $\mu\text{m}$ ，較  
宜為2~40 $\mu\text{m}$ ，更宜為3~30 $\mu\text{m}$ ，再更宜為5~20 $\mu\text{m}$ 。

上述平均粒徑(D50)可以藉由雷射繞射光散射式粒度分布測定器來進行測  
定。

**【0069】**

亦可以使用市售品作為氟樹脂(C2)。市售之氟樹脂之中，就聚四氟乙烯而  
言，例如可舉例：喜多村(股)製之「KT-300M」、「KT-400M」、「KT-600M」、  
「KTL-450A」、「KTL-450」、「KTL-610」、「KTL-610A」、「KTL-620」、  
「KTL-20N」、「KTL-10N」、「KTL-10S」、「KTL-9N」、「KTL-9S」、「KTL-8N」、  
「KTL-4N」、「KTL-2N」、「KTL-1N」、「KTL-8F」、「KTL-8FH」、「KTL-500F」、

3M Japan(股)製之3M Dyneon PTFE Micropowder「TF9201Z」、「TF9205」、「TF9207」、大金工業(股)製之FA-500H、FA-5601等「POLYFLON MPA」系列、「POLYFLON PTFE-M」系列、「POLYFLON PTFE-F」系列、「POLYFLON PTFE LUBRON」系列等。

#### 【0070】

成分(C)可以使用1種或2種以上，亦可以併用次膦酸金屬鹽(C1)及氟樹脂(C2)。就改善防滴落效果之觀點、維持良好的外觀及耐熱性，以及對於銅、鋼板等金屬之密接性之觀點而言，成分(C)宜為次膦酸金屬鹽(C1)。

#### 【0071】

使用成分(C)時，聚醯亞胺樹脂組成物中之成分(C)之含量，相對於聚醯亞胺樹脂(A)100質量份，宜為0.01~5質量份，較宜為0.05~3質量份，更宜為0.1~2質量份，再更宜為0.2~2質量份。聚醯亞胺樹脂組成物中之成分(C)之含量相對於聚醯亞胺樹脂(A)100質量份，若係0.01質量份以上則容易賦予防滴落效果，若係5質量份以下則可以維持良好的外觀及耐熱性。

此外，使用成分(C)時，成分(B)相對於聚醯亞胺樹脂組成物中之成分(C)之質量比[(B)/(C)]，就得到防滴落效果、阻燃性、良好的外觀及耐熱性之觀點而言，宜為1.0~40，較宜為5.0~30，更宜為10~20。

#### 【0072】

惟，就即使在厚度係500 $\mu\text{m}$ 以下之薄的成形體中仍得到高阻燃性、良好的外觀及耐熱性之觀點，尤其是就減低得到之聚醯亞胺樹脂組成物及成形體之燃燒時間之觀點而言，宜為聚醯亞胺樹脂組成物中之成分(C)之含量少者。就優先減低聚醯亞胺樹脂組成物及成形體之燃燒時間之觀點而言，聚醯亞胺樹脂組成物

中之成分(C)之含量，可以設定為相對於聚醯亞胺樹脂(A)100質量份，再更宜為1.5質量份以下，再更宜為1質量份以下，再更宜為0.5質量份以下，再更宜為0.1質量份以下。

### 【0073】

#### <添加劑>

本發明之聚醯亞胺樹脂組成物中，因應需要可以摻合填充劑、強化纖維、消光劑、塑化劑、抗靜電劑、抗著色劑、抗膠凝劑、著色劑、滑動性改良劑、抗氧化劑、導電劑、樹脂改質劑等成分(C)以外之添加劑。關於各種添加劑之效果，例如係雲母、滑石等無機填充劑，尤其是添加了微米~次微米尺寸、或是奈米尺寸之粉末(實心粒子)時，可以擔保得到之成形體(尤其是薄膜)外觀的同時賦予填充劑所具有之低CTE(線膨脹係數)化效果，故為合適。此外，添加了以中空氧化矽為首之中空材料，其中係微米~次微米尺寸、或是奈米尺寸之中空材料時，可以擔保薄膜外觀的同時賦予填充劑所具有之低介電特性改善效果，故為合適。就擔保良好的外觀的同時賦予低CTE化效果、或是低介電特性改善效果之觀點而言，前述實心粒子及中空材料之粒徑(D50)，宜為40 $\mu\text{m}$ 以下，較宜為30 $\mu\text{m}$ 以下，更宜為20 $\mu\text{m}$ 以下，再更宜為10 $\mu\text{m}$ 以下，再更宜為5 $\mu\text{m}$ 以下。此外，就操作性改善(抑制揚升)及抑制凝聚之觀點而言，宜為0.1 $\mu\text{m}$ 以上，較宜為0.5 $\mu\text{m}$ 以上，更宜為1 $\mu\text{m}$ 以上。D50可以藉由雷射繞射式粒度分布計來進行測定。

使用上述添加劑時，其摻含量並無特別限制，就維持來自聚醯亞胺樹脂(A)之物性同時表現添加劑之效果之觀點而言，在聚醯亞胺樹脂組成物中，通常係50質量%以下，宜為0.0001~30質量%，較宜為0.001~15質量%，更宜為0.01~10質量%。

**【0074】**

此外，本發明之聚醯亞胺樹脂組成物中，在不阻礙其特性之範圍內，可以摻合聚醯亞胺樹脂(A)以外之其他樹脂。該其他樹脂，宜為高耐熱性之熱塑性樹脂，例如可舉例：聚醯胺樹脂、聚酯樹脂、聚醯亞胺樹脂(A)以外之聚醯亞胺樹脂、聚碳酸酯樹脂、聚醚醯亞胺樹脂、聚醯胺醯亞胺樹脂、聚苯醚醯亞胺樹脂、聚苯硫醚樹脂、聚砜樹脂、聚醚砜樹脂、聚芳酯樹脂、液晶聚合物、聚醚醯酮樹脂、聚醯酮樹脂、聚醯酮醯酮樹脂、聚醚醯酮醯酮樹脂、聚苯并咪唑樹脂等。此等之中，就耐熱性、成形加工性、強度及耐溶劑性之觀點而言，宜為選自由聚醚醯亞胺樹脂、聚苯硫醚樹脂、及聚醚醯酮醯酮樹脂構成之群組中之1種以上，就低吸水性之觀點而言，宜為液晶聚合物，就得到高阻燃性之觀點而言，宜為聚苯硫醚樹脂。

將聚醯亞胺樹脂(A)及其他樹脂併用時，只要是不阻礙聚醯亞胺樹脂組成物之特性之範圍，則其摻合比率沒有特別限制。

**【0075】**

惟，本發明之聚醯亞胺樹脂組成物中之聚醯亞胺樹脂(A)及化合物(B)之合計含量，就得到本發明之效果之觀點而言，宜為30質量%以上，較宜為40質量%以上，更宜為50質量%以上，再更宜為70質量%以上，再更宜為80質量%以上，再更宜為90質量%以上，再更宜為95質量%以上，且係100質量%以下。

**【0076】**

本發明之聚醯亞胺樹脂組成物可以製成任意形態，但宜為丸粒。

本發明之聚醯亞胺樹脂組成物及其所使用之聚醯亞胺樹脂(A)由於具有熱塑性，可以藉由例如添加聚醯亞胺樹脂(A)、化合物(B)、及因應需要之各種任意成

分並進行乾式混摻後、或是從與聚醯亞胺樹脂(A)向擠製機之進料處為不同的地方分別進料化合物(B)及任意成分後，於擠製機內進行熔融混練，擠製股線，並裁切股線來進行丸粒化。此外，藉由將該丸粒導入各種成形機並以後述方法進行熱成形，可以輕易地製造具有所欲之形狀之成形體。

上述丸粒之製造過程、及熱成形過程中，通常容易發生阻燃劑之滲出或熱分解、著色、白化等，但本發明之聚醯亞胺樹脂組成物不易發生此等缺陷，可以維持良好的外觀。

就製成丸粒形態之觀點而言，本發明之聚醯亞胺樹脂組成物宜不含有溶劑。具體而言，聚醯亞胺樹脂組成物中之溶劑之含量，宜為5質量%以下，較宜為1質量%以下，更宜為0.1質量%以下。

#### 【0077】

##### [成形體]

本發明提供含有前述聚醯亞胺樹脂組成物之成形體。

成形體之形狀並無特別限制，就有效地發揮即使係厚度薄的成形體仍會得到高阻燃性及良好的外觀之本發明之效果之觀點而言，厚度係500 $\mu\text{m}$ 以下，宜為200 $\mu\text{m}$ 以下，較宜為未達100 $\mu\text{m}$ ，更宜為80 $\mu\text{m}$ 以下，再更宜為60 $\mu\text{m}$ 以下之薄膜形狀為理想。厚度之下限值通常係5 $\mu\text{m}$ 以上，宜為10 $\mu\text{m}$ 以上。

本說明書中「薄膜形狀之成形體之厚度」，意指薄膜形狀之成形體之厚度的平均值。此外，薄膜形狀之成形體除了樹脂薄膜之形態之外，還包含構成多層疊層板之樹脂層之形態、塗佈層之形態等。

惟，本發明之成形體之形狀並不限於厚度500 $\mu\text{m}$ 以下之薄膜形狀。例如，即使係厚度超過500 $\mu\text{m}$ 之平板狀之成形體，仍可以得到本發明之效果。

**【0078】**

本發明之聚醯亞胺樹脂組成物由於具有熱塑性，故可以藉由進行熱成形而輕易地製造本發明之成形體。熱成形方法可舉例：射出成形、擠製成形、吹袋成形(Inflation molding)、吹塑成形(Blow molding)、熱壓製成形、真空成形、加壓成形、雷射成形、熔接、熔合等，只要是經由熱熔融步驟之成形方法則任一方法皆能夠成形。製造厚度500 $\mu\text{m}$ 以下之薄膜形狀之成形體時，宜為擠製成形。此外，製造厚度超過500 $\mu\text{m}$ 之平板狀之成形體時，可以使用射出成形等。

熱成形，因不需將成形溫度設定在例如超過400 $^{\circ}\text{C}$ 之高溫仍能夠成形，故為理想。其中在進行射出成形之情形下，不需將成形溫度及成形時之模具溫度設定在高溫仍能夠成形，故為理想。例如在射出成形中，成形溫度宜設定為400 $^{\circ}\text{C}$ 以下，較宜設定為360 $^{\circ}\text{C}$ 以下，模具溫度宜設定為260 $^{\circ}\text{C}$ 以下，較宜設定為220 $^{\circ}\text{C}$ 以下而能夠成形。另外，本發明中使用之聚醯亞胺樹脂(A)，由於相較於一般的結晶性樹脂，其結晶化速度極快，故即使在如使玻璃轉移溫度大幅下降(例如Tg-50 $^{\circ}\text{C}$ )之模具溫度，仍能夠進行結晶化。

**【0079】**

製造成形體之方法，宜具有將聚醯亞胺樹脂組成物以290~360 $^{\circ}\text{C}$ 進行熱成形之步驟。亦能夠係以超過360 $^{\circ}\text{C}$ ~390 $^{\circ}\text{C}$ 之熱成形，但就抑制聚醯亞胺樹脂(A)、其他樹脂成分之劣化之觀點而言，宜為以360 $^{\circ}\text{C}$ 以下之溫度進行熱成形。具體的程序，例如可舉例以下方法。

首先，在聚醯亞胺樹脂(A)中，添加化合物(B)及因應需要之各種任意成分並進行乾式混摻後，將其導入擠製機內，宜為以290~360 $^{\circ}\text{C}$ 熔融並於擠製機內進行熔融混練及擠製來製作丸粒。或是，亦可以將聚醯亞胺樹脂(A)導入擠製機內，

宜為以290~360°C熔融，於此導入化合物(B)及因應需要之各種任意成分並於擠製機內與聚醯亞胺樹脂(A)進行熔融混練、擠製，藉此製作前述丸粒。

將上述丸粒乾燥後，導入各種成形機，宜為以290~360°C進行熱成形，可以製造具有所欲之形狀之成形體。

本發明之聚醯亞胺樹脂組成物能夠以如290~360°C之較低的溫度進行擠製成形等熱成形，故可以輕易地製造成形加工性優良且具有所欲之形狀之成形體。熱成形時之溫度宜為310~360°C。

#### 【0080】

##### <阻燃性>

本發明之聚醯亞胺樹脂組成物及成形體，即使在製成厚度係500 $\mu$ m以下之薄的成形體之情形下仍會表現高阻燃性。該阻燃性，係用依循UL94VTM試驗(薄材料垂直燃燒試驗；ASTM D4804)之方法，具體而言可以基於實施例中記載之方法來進行評價。

#### 【0081】

##### <低介電特性>

本發明之聚醯亞胺樹脂組成物及成形體具有低介電特性，例如，可以達到於測定頻率10GHz之介電常數係3.0以下且介電正切係0.005以下。該介電常數宜為2.90以下，較宜為2.85以下，介電正切宜為0.004以下，較宜為0.003以下。介電常數及介電正切，具體而言可藉由實施例中記載之方法測定。

#### 【0082】

##### <用途>

根據本發明之聚醯亞胺樹脂組成物，即使在厚度薄(例如500 $\mu\text{m}$ 以下)之情形下，仍可以製作能夠兼具高阻燃性及良好的外觀之成形體。

並且，該聚醯亞胺樹脂組成物及含有其的成形體具有高耐熱性(高玻璃轉移溫度)及低介電特性，故可應用在要求高阻燃性、及低介電常數及低介電正切之用途，例如：5G、或使用70G~300GHz之頻帶之第6代行動通訊系統(6G)相關構件(智慧型手機、可撓性印刷基板、覆銅疊層板等金屬箔疊層板、天線、天線基板等)、上述以外之各種天線(微波用天線、至高頻用天線、開槽波導陣列天線、號角天線、透鏡天線、印刷天線、三板天線、微帶天線、貼片天線等)、各種天線基板(77GHz車載至高頻雷達之天線基板、兆赫波雷達之天線基板、航空器用雷達之天線基板、履帶式特殊車輛用天線基板、WiGig之天線基板等)、電線被覆材(低介電電線被覆材等)、搭接片、絕緣薄膜、碳纖維強化塑膠(CFRP)用原料、高頻電路基板、印刷配線基板、覆晶薄膜(COF)可撓性基板、多層疊層板、LED搭載基板、工業用機器人基板、家庭用機器人之通訊用基板、半導體元件材料、高頻元件用晶圓、Wi-fi晶片、無線通訊元件、傳輸線(同軸線、帶狀線、微帶線、共平面線、平行線等)、軸承用塗層、隔熱軸、托盤、各種帶(無縫帶等)、耐熱低介電帶、耐熱低介電管、各種感測器(觸碰感測器等)、各種雷達(車載用雷達、航空航天用雷達等)、天線罩(雷達罩)、光通訊模組(TOSA/ROSA)、8k-TV之有線行動裝置或數位家電(平板電腦、筆記型電腦、薄型電視、捲曲式電視、數位相機、智慧眼鏡、智慧手錶等)、基地台(巨細胞式基地台(Macro cell base station)、小細胞式基地台(Small cell base station)、C-RAN基地台等)、無人機(商業用無人機、長距離移動無人機等)、監控攝影機、室內或戶外伺服器、人造衛星、太空站用通訊設備等。

上述之中，本發明之聚醯亞胺樹脂組成物及成形體，較宜使用在以覆銅疊層板為主之金屬箔疊層板。以下，針對金屬箔疊層板進行說明。

### 【0083】

#### [金屬箔疊層板]

本發明提供一種金屬箔疊層板，具有：由含有前述聚醯亞胺樹脂組成物之成形體構成之層、及由金屬箔構成之層。

金屬箔疊層板，主要可舉例覆銅疊層板，該覆銅疊層板只要是具有由含有前述聚醯亞胺樹脂組成物之薄膜形狀之成形體構成之層(以下，亦簡稱「樹脂薄膜層」)、及至少1層之銅箔層者即可。例如，可舉例於含有前述聚醯亞胺樹脂組成物之樹脂薄膜之至少一面，宜為於兩面疊層了銅箔之構成之疊層板。

### 【0084】

覆銅疊層板之製造中使用之樹脂薄膜，可以用與前述成形體之製造方法同樣之方法製造。該樹脂薄膜、及覆銅疊層板中之樹脂薄膜層之厚度，就確保覆銅疊層板之強度之觀點、改善樹脂薄膜層與銅箔層之黏接性之觀點而言，宜為5~500 $\mu\text{m}$ ，較宜為10~300 $\mu\text{m}$ ，更宜為12.5~200 $\mu\text{m}$ 。

### 【0085】

覆銅疊層板之製造中使用之銅箔並無特別限制，可以使用市售之壓延銅箔、電解銅箔等，但就可撓性性之觀點而言，宜為壓延銅箔。銅箔層及其形成中使用之銅箔之厚度，就確保充分的導電性之觀點、及改善與樹脂薄膜層之黏接性之觀點而言，宜為2~50 $\mu\text{m}$ ，較宜為3~30 $\mu\text{m}$ ，更宜為5~20 $\mu\text{m}$ 。該厚度係每1層銅箔層、或每1片銅箔之厚度。

此外，覆銅疊層板之製造中使用之銅箔之表面粗糙度並無特別限制，但該銅箔之表面粗糙度和貼合樹脂薄膜後得到之疊層板本身的電特性有直接關聯，一般而言粗糙度越低則能成為介電特性越優良的疊層板。因此，銅箔表面之最大高度Rz之值，宜為0.1~1 $\mu\text{m}$ ，較宜為0.2~0.8 $\mu\text{m}$ 之範圍。銅箔表面之最大高度Rz，例如可以藉由表面粗糙度計來進行測定。

#### 【0086】

覆銅疊層板之厚度，就改善覆銅疊層板之強度及導電性之觀點而言，宜為15~600 $\mu\text{m}$ ，較宜為25~500 $\mu\text{m}$ ，更宜為50~300 $\mu\text{m}$ 。另外，只要不損害本發明之效果，覆銅疊層板亦可具有前述樹脂薄膜層及銅箔層以外之任意的層。

#### 【0087】

覆銅疊層板之製造方法並無特別限制，可以使用公知之方法。例如，可舉例藉由將前述樹脂薄膜與銅箔重疊，然後在加熱加壓條件下貼合以進行疊層之方法。由於該樹脂薄膜含有熱塑性之聚醯亞胺樹脂(A)，故能夠將表面以熱熔融後之狀態進行壓接，並與銅箔貼合。

覆銅疊層板之製造中使用之裝置，只要是能夠在加熱加壓條件下將樹脂薄膜及銅箔貼合之裝置即可，例如可舉例：輥壓機、平板疊合機、真空壓製裝置、雙帶式壓製裝置等。此等之中，就覆銅疊層板之生產性之觀點、及得到外觀良好的覆銅疊層板之觀點而言，宜使用真空壓製裝置、或雙帶式壓製裝置。雙帶式壓製裝置，意指具備於上下配置一對環帶，於該帶之間連續地送入形成各層之薄膜形狀之材料(樹脂薄膜及銅箔)，間隔環帶藉由加熱加壓機構將前述材料進行加熱加壓成形而能夠製造疊層體之裝置。

雙帶式壓製裝置，可示例日本特開2010-221694號公報中記載之裝置、迪夢柯(股)製之雙帶式壓製裝置等。

### 【0088】

用前述方法製造覆銅疊層板時之加熱溫度，只要是可以使樹脂薄膜軟化或熔融之溫度則並無特別限制，就減輕裝置上及製造上之負擔之觀點而言，宜為250~400°C，較宜為280~350°C之範圍。此外，製造覆銅疊層板時之加壓條件，就改善樹脂薄膜與銅箔之黏接性之觀點、減輕裝置上及製造上之負擔之觀點而言，壓力宜為0.1~20MPa，較宜為0.15~15MPa，更宜為0.2~12MPa。此外，就改善生產效率之觀點而言，加壓時間宜為1~600秒，較宜為5~400秒，更宜為10~300秒之範圍。

### 【0089】

另外，前述樹脂薄膜，其特徵係可以熱融合，但在覆銅疊層板之製造中，亦能夠將樹脂薄膜及銅箔使用黏接劑貼合。黏接劑可任意選擇清漆狀之黏接劑、片狀之黏接劑、粉末狀之黏接劑等。另一方面，就擔保低介電特性之觀點而言，即使作為黏接劑仍具有低介電特性者為理想。低介電特性之黏接劑，例如可舉例荒川化學工業(股)製之聚醯亞胺黏接劑「PIAD」系列。

### [實施例]

### 【0090】

接著舉例實施例更詳細地說明本發明，但本發明並不受限於此。此外，各製造例、實施例中之各種測定及評價係用以下方式進行。

### 【0091】

<紅外線光譜分析(IR測定)>

聚醯亞胺樹脂之IR測定係使用日本電子(股)製「JIR-WINSPEC50」進行。

**【0092】**

<對數黏度 $\mu$ >

將聚醯亞胺樹脂以190~200°C乾燥2小時後，將該聚醯亞胺樹脂0.100g溶解在濃硫酸(96%，關東化學(股)製)20mL中，並將所得之聚醯亞胺樹脂溶液作為測定試料，使用堪農-芬斯基黏度計於30°C進行測定。對數黏度 $\mu$ 係藉由下式求得。

$$\mu = \ln(ts/t_0)/C$$

$t_0$ ：濃硫酸之流動時間

$ts$ ：聚醯亞胺樹脂溶液之流動時間

$C$ ：0.5g/dL

**【0093】**

<熔點、玻璃轉移溫度、結晶化溫度、結晶化發熱量>

聚醯亞胺樹脂或聚醯亞胺樹脂組成物之熔點 $T_m$ 、玻璃轉移溫度 $T_g$ 、結晶化溫度 $T_c$ 、及結晶化發熱量 $\Delta H_m$ ，係使用差示掃描熱量計裝置(SII NanoTechnology(股)製「DSC-6220」)測定。

在氮氣環境下，對於聚醯亞胺樹脂或聚醯亞胺樹脂組成物施加下述條件之熱歷程。熱歷程之條件係第1次昇溫(昇溫速度10°C/分鐘)，之後冷卻(降溫速度20°C/分鐘)，之後第2次昇溫(昇溫速度10°C/分鐘)。

熔點 $T_m$ 係讀取於第2次昇溫觀測到的吸熱峰部之峰頂值來決定。玻璃轉移溫度 $T_g$ 係讀取於第2次昇溫觀測到的值來決定。結晶化溫度 $T_c$ 係讀取冷卻時觀測到的發熱峰部之峰頂值來決定。

此外，結晶化發熱量 $\Delta H_m$ (mJ/mg)係由冷卻時觀測到的發熱峰部之面積計算得出。

**【0094】**

<半結晶化時間>

聚醯亞胺樹脂之半結晶化時間，係使用差示掃描熱量計裝置(SII NanoTechnology(股)製「DSC-6220」)測定。

半結晶化時間，係計算20秒以下之聚醯亞胺樹脂之測定條件為氮氣環境下，於420°C保持10分鐘，使聚醯亞胺樹脂完全熔融後，進行冷卻速度70°C/分鐘之急冷操作時所觀測到的結晶化峰部出現時直到達到峰部頂部所耗費的時間來決定。

**【0095】**

<重量平均分子量>

聚醯亞胺樹脂之重量平均分子量( $M_w$ )，係使用昭和電工(股)製之凝膠滲透層析法(GPC)測定裝置「Shodex GPC-101」並以下述條件測定。

管柱：Shodex HFIP-806M

移動相溶劑：含有三氟乙酸鈉2mM之HFIP

管柱溫度：40°C

移動相流速：1.0mL/min

試料濃度：約0.1質量%

檢測器：IR檢測器

注入量：100 $\mu$ m

檢量線：標準PMMA

**【0096】**

## &lt;阻燃性&gt;

關於實施例1~8、比較例1~3，係使用聚醯亞胺樹脂或各例中得到之聚醯亞胺樹脂組成物，並藉由後述方法製作200mm×50mm×厚度0.05±0.01mm之成形體(薄膜)。將該薄膜於23±2°C、50±5%R.H.進行48小時狀態調節後，於25±10°C、75%R.H.以下之試驗環境下，使用於UL94VTM試驗(薄材料垂直燃燒試驗；ASTM D4804)。

具體而言，係將前述薄膜捲成圓筒狀，垂直地安裝在夾具，進行2次由使用甲烷氣體而得之20mm火焰所為之3秒鐘接觸火焰，根據其燃燒行為來評價阻燃性。

關於實施例9，係藉由後述方法製作80mm×10mm×厚度4mm之平板狀之成形體，將該平板於23±2°C、50±5%R.H.進行48小時狀態調節後，於25±10°C、75%R.H.以下之試驗環境下，並使用在UL94V試驗(20mm垂直燃燒試驗；ASTM D3801)中。具體而言，係將前述平板垂直地安裝在夾鉗，進行2次由使用甲烷氣體而得之20mm火焰所為之10秒鐘接觸火焰，根據其燃燒行為來評價阻燃性。

**【0097】**

(第1次及第2次接觸火焰後之最大有火焰燃燒時間)

進行了2次前述接觸火焰後之接觸火焰後之最大有火焰燃燒時間(秒)表示於表2及表5(n=5)。燃燒時間短者意指阻燃性良好。

**【0098】**

(有火焰燃燒時間之合計)

有火焰燃燒時間之合計(秒)表示於表2及表5(n=5)。合計時間短者意指阻燃性良好。

**【0099】**

(第2次接觸火焰後之有火焰、無火焰燃燒時間之合計)

前述第2次接觸火焰後之有火焰、無火焰燃燒時間之合計表示於表2及表5(n=5)。合計時間短者意指阻燃性良好。

**【0100】**

(有無燃燒到達125mm標線)

針對實施例1~8、比較例1~3，觀察有無燃燒到達距離前述薄膜之下端125mm之標線，5次試驗之中火焰到達125mm標線之次數表示於表3。到達次數少者意指阻燃性良好。

**【0101】**

(有無綿著火)

在上述燃燒試驗中，觀察有無對於設置在薄膜或平板之下方300mm之綿之由滴落物導致之著火。5次試驗之中，綿著火之次數表示於表3及表5。一次也沒有著火之情形係標記為「0/5」。著火次數少者意指防滴落效果高。

**【0102】**

(阻燃性之判定)

表3中，係基於UL94VTM之判定基準來判定阻燃性之級別。於UL94VTM之判定基準中具有相當於VTM-0之阻燃性之情形係標記為「VTM-0」，具有相當於VTM-1之阻燃性之情形係標記為「VTM-1」，具有相當於VTM-2之阻燃性之

情形係標記為「VTM-2」。阻燃性係依VTM-0>1>2之順序為高，且沒有達到相當於VTM-2之阻燃性之情形定義為「VTM不適合」。

表5中係基於UL94V之判定基準來判定阻燃性之順位。於UL94V之判定基準中具有相當於V-0之阻燃性之情形係標記為「V-0」，具有相當於V-1之阻燃性之情形係標記為「V-1」、具有相當於V-2之阻燃性之情形係標記為「V-2」。阻燃性係依V-0>1>2之順序為高，且沒有達到相當於V-2之阻燃性之情形係定義為「V不適合」。

### 【0103】

<介電常數及介電正切>

使用聚醯亞胺樹脂或各例中得到之聚醯亞胺樹脂組成物，藉由後述方法進行擠製成形，製作薄膜狀之成形體，然後進行裁切，得到62mm×75mm×厚度0.05±0.01mm之評價用薄膜。將該薄膜以熱風乾燥機進行100°C、24小時乾燥後，於23±2°C、50±5%R.H.進行48小時狀態調節。然後，迅速地使用於測定。

使用Keysight Technologies(股)製「P5008A Keysight Streamline USB Vector Network Analyzer，53GHz」作為測定裝置，依循IEC 62631-2-1，於23°C、50%R.H.、測定頻率10GHz測定介電常數及介電正切並表示於表4。令測定值為n=3之平均值。

### 【0104】

<外觀>

使用聚醯亞胺樹脂或各例中得到之聚醯亞胺樹脂組成物，藉由後述方法製作200mm×50mm×厚度0.05±0.01mm之成形體，目視觀察其外觀，用下述基準進行評價，並表示於表4。

- A：薄膜表面平滑，且外觀良好。
- B：於薄膜表面觀察到細微的凹凸、皺摺。
- C：觀察到薄膜之彎曲、厚度不均。

**【0105】****<股線擠製性>**

聚醯亞胺樹脂或聚醯亞胺樹脂組成物之股線擠製性係用下述基準進行評價，並表示於表4。

AA：保持一定的股線徑，不會斷裂而能夠連續擠製。此外，擠製後，使股線不透明化需耗時3秒以上。

A：保持一定的股線徑，不會斷裂而能夠連續擠製。此外，擠製後，股線會在3秒以內不透明化。

B：觀察到股線之脈動且股線徑變得不穩定，或觀察到弱發煙但不會斷裂而能夠連續擠製。

C：發生股線之斷裂、強發煙、冒料(vent up)，難以連續擠製。

**【0106】****製造例1(聚醯亞胺樹脂1之製造)**

在設置了迪安-斯塔克(Dean-Stark)裝置、李必氏(Liebig)冷卻管、熱電偶、4片攪拌葉片之2L分離式燒瓶中導入2-(2-甲氧基乙氧基)乙醇(日本乳化劑(股)製)500g及焦蜜石酸二酐(三菱瓦斯化學(股)製)218.12g(1.00mol)，經氮氣流動後，以150rpm攪拌使其成為均勻的懸浮溶液。另一方面，使用500mL燒杯，將1,3-雙(胺甲基)環己烷(三菱瓦斯化學(股)製，順式/反式比=7/3)49.79g(0.35mol)、1,8-伸辛基二胺(關東化學(股)製)93.77g(0.65mol)溶解於2-(2-甲氧基乙氧基)乙醇250g，

製備混合二胺溶液。使用柱塞泵緩慢地加入此混合二胺溶液。雖然因滴加會引起發熱，但內溫係調整控制在40~80°C。混合二胺溶液之滴加時係全程設定成氮氣流動狀態，攪拌葉片轉速設定成250rpm。在滴加結束後，加入2-(2-甲氧基乙氧基)乙醇130g、及係封端劑之正辛胺(關東化學(股)製)1.284g(0.0100mol)進一步進行攪拌。於此階段會得到淡黃色之聚醯胺酸溶液。然後，將攪拌速度設定成200rpm後，將2L分離式燒瓶中之聚醯胺酸溶液昇溫至190°C。進行昇溫之過程中，於液溫係120~140°C之間確認到聚醯亞胺樹脂粉末之析出、及伴隨醯亞胺化之脫水。於190°C保持30分鐘後，進行放冷直到室溫，並進行過濾。得到之聚醯亞胺樹脂粉末利用2-(2-甲氧基乙氧基)乙醇300g及甲醇300g進行清洗、過濾後，以乾燥機進行180°C、10小時乾燥，得到317g之聚醯亞胺樹脂1之粉末。

測定了聚醯亞胺樹脂1之IR圖譜後，於 $\nu(\text{C}=\text{O})$ 1768、1697( $\text{cm}^{-1}$ )觀察到醯亞胺環之特性吸收。對數黏度係1.30dL/g， $T_m$ 係323°C， $T_g$ 係184°C， $T_c$ 係266°C，結晶化發熱量係21.0mJ/mg，半結晶化時間係20秒以下， $M_w$ 係55,000。

### 【0107】

製造例1中之聚醯亞胺樹脂之組成及評價結果表示於表1。另外，表1中之四羧酸成分及二胺成分之莫耳%，係由聚醯亞胺樹脂製造時之各成分之進料量計算得出之值。

### 【0108】

[表1]

表 1

製造例1	聚醯亞胺樹脂1	四羧酸成分 (全部四羧酸成分中之莫耳%)	二胺成分 (全部二胺成分中之莫耳%)		(1)/{(1)+(2)} (莫耳%)*1	Tm (°C)	Tg (°C)	Tc (°C)	結晶化發 熱量 ΔHm(mJ/ mg)	半結晶化 時間 (秒)	Mw
		PMDA	1,3-BAC	OMDA							
		100	35	65	35	323	184	266	21.0	<20	55,000

\*1 聚醯亞胺樹脂1中之式(1)之重複結構單元相對於式(1)之重複結構單元及式(2)之重複結構單元之合計之含有比(莫耳比%)

### 【0109】

表1中之簡稱如下。

- PMDA；焦蜜石酸二酐
- 1,3-BAC；1,3-雙(胺甲基)環己烷
- OMDA；1,8-伸辛基二胺

### 【0110】

實施例1~8、比較例1~3(聚醯亞胺樹脂組成物及成形體(樹脂薄膜)之製造、評價)

將製造例1中得到之聚醯亞胺樹脂1、表2~4所示之化合物、及其他的成分藉由乾式混摻充分混合。將得到之混合粉末使用同方向旋轉雙軸混練擠製機(PARKER CORPORATION(股)製「HK-25D-41D」)，以筒槽溫度350°C、螺桿轉速120rpm，擠製直徑2~3mm之股線。根據前述基準評價此時之股線擠製性。

將藉由擠製機擠製後之股線予以氣冷(air cooling)後，利用製粒機(Hoshi plastic(股)製「FAN CUTTER FC-Mini-4/N」)進行丸粒化。將得到之丸粒(聚醯亞胺樹脂組成物)進行190°C、10小時乾燥後，並在擠製成形中使用。

將丸粒投入具備寬150mm之T型模頭(Die)之Φ20mm單軸擠製成形機，並於樹脂溫度340~360°C進行熔融混練，從單軸擠製成形機之T型模頭連續地擠製。

然後，藉由使用係140°C之冷卻輥之金屬輥進行冷卻，得到厚度0.05±0.01mm之樹脂薄膜。

於此，各自調整成Φ20mm單軸擠製成形機之溫度係340~355°C，T型模頭之溫度係350°C。

使用得到之丸粒(聚醯亞胺樹脂組成物)或製得之樹脂薄膜，用前述之方法進行各種評價。結果表示於表2~4。

### 【0111】

[表2]

表 2

(質量%)		比較例	實施例					比較例		實施例		
		1	1	2	3	4	5	2	3	6	7	8
樹脂組成物	(A)聚醯亞胺樹脂1	100	99	95	90	88	80	93	90	89.5	89	89.5
	(B) SR-3000		1	5	10	12	20			10	10	10
	(C1) OP945							7	10	0.5	1	
	(C2) KTL-450											0.5
合計		100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
相對於成分(A)100質量份之成分(B)含量(質量份)		0	1.0	5.3	11.1	13.6	25.0	0	0	11.2	11.2	11.2
相對於成分(A)100質量份之成分(C)含量(質量份)		0	0	0	0	0	0	7.5	11.1	0.6	1.1	0.6
組成物中之成分(A)及成分(B)之合計含量(質量%)		100	100	100	100	100	100	93	90	99.5	99	99.5
評價結果	第1次及第2次接觸火焰後之最大火焰燃燒時間(秒)	7	7	1	1	1	0	18	8	3	7	7
	有火焰燃燒時間之合計(秒)	29	18	1	1	1	0	109	40	9	9	11
	第2次接觸火焰後之有火焰、無火焰燃燒時間之合計(秒)	16	18	1	1	0	0	38	11	5	7	9

### 【0112】

[表3]

表 3

(質量%)		比較例	實施例							
		1	1	2	3	4	5	6	7	8
樹脂組成物	(A)聚醯亞胺樹脂 1	100	99	95	90	88	80	89.5	89	89.5
	(B) SR-3000		1	5	10	12	20	10	10	10
	(C1) OP945							0.5	1	
	(C2) KTL-450									0.5
合計		100	100	100	100	100	100	100	100	100
相對於成分(A)100質量份之成分(B)含量(質量份)		0	1.0	5.3	11.1	13.6	25.0	11.2	11.2	11.2
相對於成分(A)100質量份之成分(C)含量(質量份)		0	0	0	0	0	0	0.6	1.1	0.6
組成物中之成分(A)及成分(B)之合計含量(質量%)		100	100	100	100	100	100	99.5	99	99.5
評價結果	有無燃燒到達125mm標線	0/5	0/5	0/5	0/5	0/5	0/5	0/5	0/5	0/5
	有無綿著火	4/5	2/5	0/5	0/5	0/5	0/5	0/5	0/5	0/5
	阻燃性之判定	VTM-2	VTM-2	VTM-0	VTM-0	VTM-0	VTM-0	VTM-0	VTM-0	VTM-0

【0113】

[表4]

表 4

(質量%)		比較例	實施例					比較例		實施例			
		1	1	2	3	4	5	2	3	6	7	8	
樹脂組成物	(A)聚醯亞胺樹脂 1	100	99	95	90	88	80	93	90	89.5	89	89.5	
	(B) SR-3000		1	5	10	12	20			10	10	10	
	(C1) OP945							7	10	0.5	1		
	(C2) KTL-450											0.5	
合計		100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	
相對於成分(A)100質量份之成分(B)含量(質量份)		0	1.0	5.3	11.1	13.6	25.0	0	0	11.2	11.2	11.2	
相對於成分(A)100質量份之成分(C)含量(質量份)		0	0	0	0	0	0	7.5	11.1	0.6	1.1	0.6	
組成物中之成分(A)及成分(B)之合計含量(質量%)		100	100	100	100	100	100	93	90	99.5	99	99.5	
評價結果	熱物性	Tg	183	179	174	164	169	163	166	167	169	164	166
		Tm	321	321	318	315	317	313	321	321	315	314	317
		Tc	268	267	264	257	266	257	266	265	259	259	280
		ΔHm	28	29	30	25	27	24	27	25	27	28	25
	介電特性	介電常數	2.79	2.81	2.65	2.80	2.75	2.74	2.54	2.58	2.63	2.58	2.45
		介電正切	0.0025	0.0027	0.0027	0.0025	0.0021	0.0019	0.0026	0.0024	0.0021	0.0021	0.0018
	外觀		A	A	A	A	A	A	B	B	A	A	B
股線擠製性		A	AA	AA	AA	AA	AA	A	A	A	A	C	

【0114】

表2~4所示之各成分之細節如下。

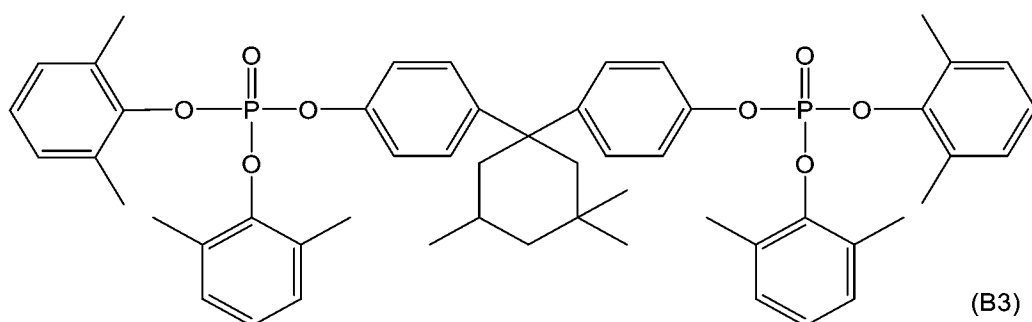
&lt;聚醯亞胺樹脂(A)&gt;

(A)製造例1中得到之聚醯亞胺樹脂1，Mw：55,000

<化合物(B)>

(B)SR-3000：下述結構式(B3)表示之化合物，大八化學工業(股)製

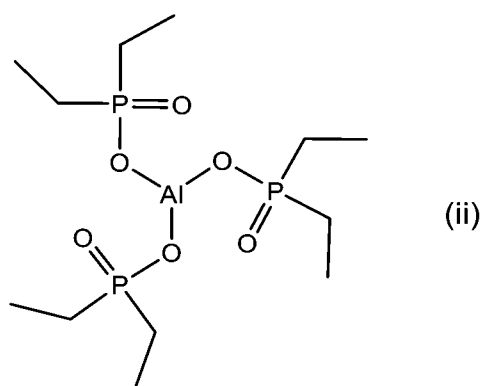
[化20]



<成分(C)>

(C1)EXOLIT OP945：下述結構式(ii)表示之次膦酸金屬鹽系阻燃劑(二乙基次膦酸鋁)，科萊恩化學(股)製，粒徑(D50)：1.3 $\mu\text{m}$ ，磷含量：23質量%

[化21]



(C2)KTL-450：聚四氟乙烯(PTFE)，喜多村(股)製

**【0115】**

表2~3中表示阻燃性之評價結果。根據表2，可得知含有本發明之聚醯亞胺樹脂組成物之成形體，相較於比較例之成形體，其燃燒時間短，阻燃性良好。此外，根據表3，尤其是於實施例2~8中，儘管係厚度0.05mm $\pm$ 0.01mm之非常薄的成形體，仍可以達到UL94VTM之判定基準中相當於VTM-0之阻燃性。

**【0116】**

表4中表示熱物性、介電特性、外觀、及股線擠製性之評價結果。根據表4，含有本發明之聚醯亞胺樹脂組成物之成形體皆係外觀良好。關於股線擠製性，僅含有化合物(B)作為阻燃劑之實施例1~5之聚醯亞胺樹脂組成物，顯示特別良好的結果。據認為這是因為化合物(B)與其他阻燃劑(成分(C1))不同，不會作為結晶成核劑作用，而有延遲聚醯亞胺樹脂(A)之結晶化之效果。

並且，含有本發明之聚醯亞胺樹脂組成物之成形體，介電常數係3以下且介電正切係0.005以下，顯示就樹脂成形體而言為極低的介電常數及介電正切。

**【0117】**

實施例9(聚醯亞胺樹脂組成物及成形體(厚度4mm平板)之製造、評價)

以與實施例2同樣的方法製得聚醯亞胺樹脂組成物之丸粒。該丸粒係進行了190°C、10小時乾燥後，使用在射出成形中。

使用射出成形機(FANUC(股)製「ROBOSHOT  $\alpha$ -S30iA」)，並設定成筒槽溫度350°C、模具溫度200°C、成形循環50秒進行射出成形，製得於JISK7161-2:2014規定之1A型試驗片。

將得到之1A型試驗片加工成80mm×10mm×厚度4mm之平板後，用前述之方法進行阻燃性評價。結果表示於表5。另外，關於阻燃性以外之評價結果係與實施例2相同。

**【0118】**

[表5]

表 5

(質量%)		實施例9
樹脂 組成物	(A)聚醯亞胺樹脂1	95
	(B) SR-3000	5
合計		100
相對於成分(A)100質量份之成分(B)含量(質量份)		5.3
組成物中之成分(A)及成分(B)之合計含量(質量%)		0
成形體厚度(mm)		4
評價 結果	第1次及第2次接觸火焰後之最大有火焰燃燒時間(秒)	0
	有火焰燃燒時間之合計(秒)	0
	第2次接觸火焰後之有火焰、無火焰燃燒時間之合計(秒)	0
	有無綿著火	0/5
	阻燃性之判定(UL94V級別)	V-0

## 【0119】

根據表5，含有本發明之聚醯亞胺樹脂組成物之成形體，即使在厚度超過500 $\mu\text{m}$ 之情形下仍顯示良好的阻燃性。

[產業上利用性]

## 【0120】

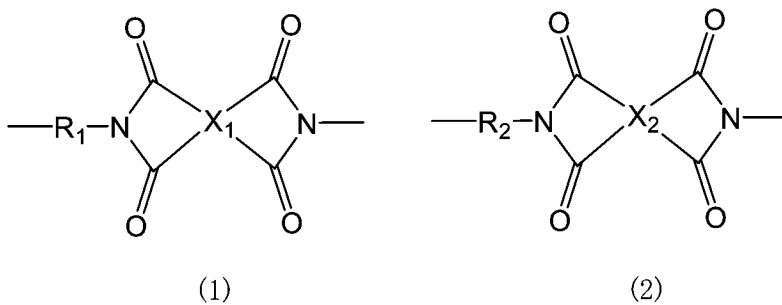
根據本發明之聚醯亞胺樹脂組成物，即使在厚度薄(例如500 $\mu\text{m}$ 以下)之情形下，仍可以製作能夠兼具高阻燃性及良好的外觀之成形體。並且，該聚醯亞胺樹脂組成物及含有其的成形體具有高耐熱性(高玻璃轉移溫度)及低介電特性。因此本發明之聚醯亞胺樹脂組成物及成形體，可應用在要求高阻燃性、及低介電常數及低介電正切之用途，例如，5G、或使用70G~300GHz之頻帶之第6代行動通訊系統(6G)相關構件、各種天線、各種天線基板、電線被覆材、搭接片、絕緣薄膜、碳纖維強化塑膠(CFRP)用原料、高頻電路基板、印刷配線基板、覆晶薄膜(COF)可撓性基板、多層疊層板、LED搭載基板、工業用機器人基板、家庭用機器人之通訊用基板、半導體元件材料、高頻元件用晶圓、Wi-fi晶片、無線通

訊元件、傳輸線、軸承用塗層、隔熱軸、托盤、各種帶、耐熱低介電帶、耐熱低介電管、各種感測器、各種雷達、天線罩(雷達罩)、光通訊模組(TOSA/ROSA)、8k-TV之有線行動裝置或數位家電、基地台、無人機、監控攝影機、室內或戶外伺服器、人造衛星、太空站用通訊設備等。

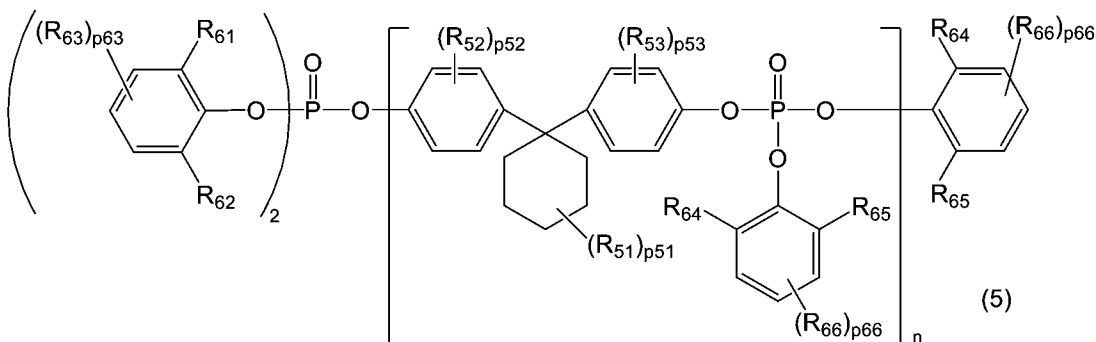
## 【發明申請專利範圍】

### 【請求項1】

一種聚醯亞胺樹脂組成物，含有聚醯亞胺樹脂(A)及化合物(B)，該聚醯亞胺樹脂(A)含有下式(1)表示之重複結構單元及下式(2)表示之重複結構單元，且該式(1)之重複結構單元相對於該式(1)之重複結構單元及該式(2)之重複結構單元之合計之含有比係20~70莫耳%，該化合物(B)係由下式(5)表示；



$R_1$ 係含有至少1個脂環族烴結構之碳數6~22之2價基； $R_2$ 係碳數5~16之2價鏈狀脂肪族基； $X_1$ 及 $X_2$ 各自獨立地係含有至少1個芳香環之碳數6~22之4價基；



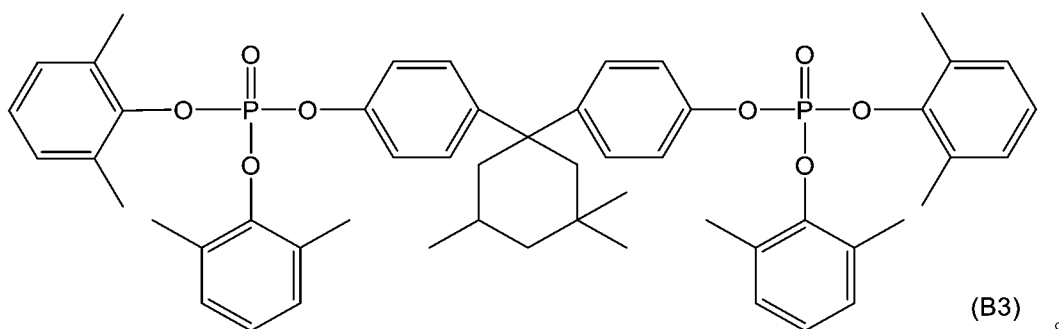
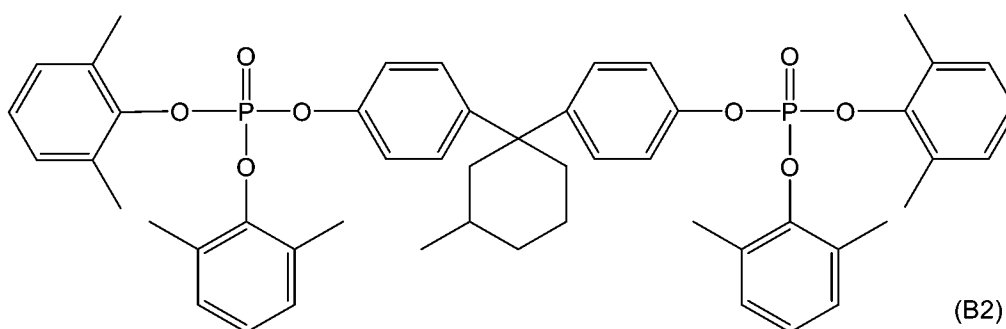
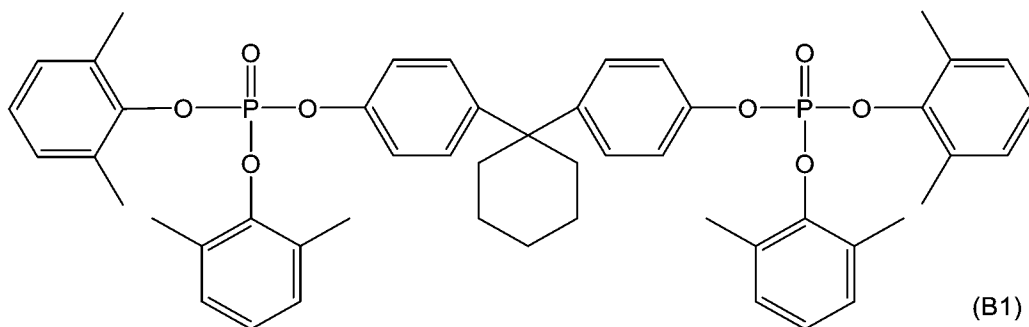
$R_{51}$ 係碳數1~10之烷基、或碳數1~10之烷氧基； $R_{52}$ ~ $R_{53}$ 、及 $R_{61}$ ~ $R_{66}$ 各自獨立地係碳數1~4之烷基或碳數1~4之烷氧基； $p_{51}$ 係0~6之整數， $p_{52}$ 及 $p_{53}$ 各自獨立地係0~4之整數； $p_{63}$ 及 $p_{66}$ 各自獨立地係0~3之整數； $p_{51}$ ~ $p_{53}$ 、 $p_{63}$ 、或 $p_{66}$ 係2以上時，多個之 $R_{51}$ ~ $R_{53}$ 、 $R_{63}$ 或 $R_{66}$ 可以互為相同亦可以不同； $n$ 係1~10之整數。

### 【請求項2】

如請求項1之聚醯亞胺樹脂組成物，其中，該聚醯亞胺樹脂組成物中之該化合物(B)之含量，相對於該聚醯亞胺樹脂(A)100質量份係0.1~30質量份。

**【請求項3】**

如請求項1或2之聚醯亞胺樹脂組成物，其中，該化合物(B)係選自由下述結構式(B1)~(B3)表示之化合物構成之群組中之至少1種，



**【請求項4】**

一種成形體，含有如請求項1至3中任一項之聚醯亞胺樹脂組成物。

**【請求項5】**

如請求項4之成形體，其中，該成形體係厚度500 $\mu\text{m}$ 以下之薄膜形狀。

**【請求項6】**

一種金屬箔疊層板，具有由如請求項4或5之成形體構成之層、及由金屬箔構成之層。