



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本

(11)公開編號：TW 201030013 A1

(43)公開日：中華民國 99 (2010) 年 08 月 16 日

(21)申請案號：098137247

(22)申請日：中華民國 98 (2009) 年 11 月 03 日

(51)Int. Cl.：

C07F19/00 (2006.01)

C08G77/30 (2006.01)

C08K5/5419 (2006.01)

C08L63/00 (2006.01)

C09K21/14 (2006.01)

(30)優先權：2008/11/03

美國

12/263,704

(71)申請人：3 M新設資產公司 (美國) 3M INNOVATIVE PROPERTIES COMPANY (US)

美國

(72)發明人：琳 麗莎 孫 LIM, LISA SUN (SG)；卞裕美 PYUN, EUMI (US)；魯爾 喬瑟夫

道格拉斯 RULE, JOSEPH DOUGLAS (US)

(74)代理人：陳長文

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：15 項 圖式數：0 共 18 頁

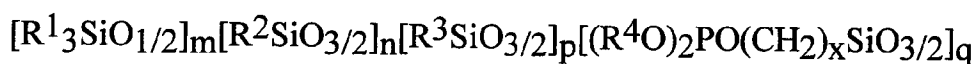
(54)名稱

作為阻燃劑之含磷倍半矽氧烷衍生物

PHOSPHORUS-CONTAINING SILSESQUIOXANE DERIVATIVES AS FLAME RETARDANTS

(57)摘要

本發明係關於一種由下式表示之含磷倍半矽氧烷： $[R^1_3SiO_{1/2}]_m[R^2SiO_{3/2}]_n[R^3SiO_{3/2}]_p[(R^4O)_2PO(CH_2)_xSiO_{3/2}]_q$ 其中 R^1 、 R^2 、 R^3 、及 R^4 各獨立表示烴基； x 表示 1 至 8 之整數； m 係小於 1.5 之正數； n 與 q 係大於 0 且小於 1 之正數；及 p 係大於或等於 0 且小於 1 之數值。進而， $(n+p)/q$ 係介於 0.5 至 99 之間，及 $(n+p+q)=1$ 。本發明揭示包含含磷倍半矽氧烷之可固化與經固化的組合物。





(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本

(11)公開編號：TW 201030013 A1

(43)公開日：中華民國 99 (2010) 年 08 月 16 日

(21)申請案號：098137247

(22)申請日：中華民國 98 (2009) 年 11 月 03 日

(51)Int. Cl.：

C07F19/00 (2006.01)

C08G77/30 (2006.01)

C08K5/5419 (2006.01)

C08L63/00 (2006.01)

C09K21/14 (2006.01)

(30)優先權：2008/11/03

美國

12/263,704

(71)申請人：3 M新設資產公司 (美國) 3M INNOVATIVE PROPERTIES COMPANY (US)

美國

(72)發明人：琳 麗莎 孫 LIM, LISA SUN (SG)；卞裕美 PYUN, EUMI (US)；魯爾 喬瑟夫

道格拉斯 RULE, JOSEPH DOUGLAS (US)

(74)代理人：陳長文

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：15 項 圖式數：0 共 18 頁

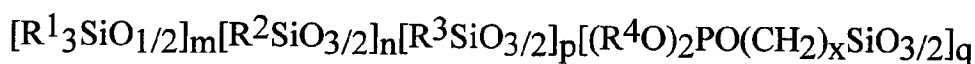
(54)名稱

作為阻燃劑之含磷倍半矽氧烷衍生物

PHOSPHORUS-CONTAINING SILSESQUIOXANE DERIVATIVES AS FLAME RETARDANTS

(57)摘要

本發明係關於一種由下式表示之含磷倍半矽氧烷： $[R^1_3SiO_{1/2}]_m[R^2SiO_{3/2}]_n[R^3SiO_{3/2}]_p[(R^4O)_2PO(CH_2)_xSiO_{3/2}]_q$ 其中 R^1 、 R^2 、 R^3 、及 R^4 各獨立表示烴基； x 表示 1 至 8 之整數； m 係小於 1.5 之正數； n 與 q 係大於 0 且小於 1 之正數；及 p 係大於或等於 0 且小於 1 之數值。進而， $(n+p)/q$ 係介於 0.5 至 99 之間，及 $(n+p+q)=1$ 。本發明揭示包含含磷倍半矽氧烷之可固化與經固化的組合物。



六、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

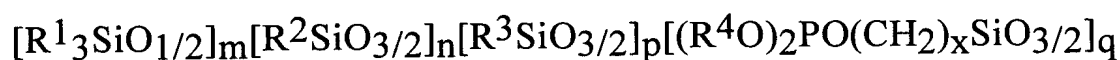
本發明廣義上係關於阻燃劑及其等於環氧樹脂中之用途。

【先前技術】

用於環氧樹脂之現有阻燃劑存在大量問題。例如，經溴化與含其他鹵素之阻燃劑一般會產生毒性及腐蝕性燃燒產物。無機水合物通常會分解而產生水，其通常必須於高用量下使用以致其將損害環氧樹脂之物理特性。再者，基於鹵素之阻燃劑已成為各種環境法規關注之物質。

【發明內容】

本發明內容提供一種以下式表示之含磷倍半矽氧烷：



其中

R^1 、 R^2 、 R^3 、及 R^4 各獨立表示烴基；

x表示1至8之整數；

m係小於1.5之正數；

n與q係大於0且小於1之正數；及

p係大於或等於0且小於1之數字，其中 $(n+p)/q$ 係介於0.5至99之間，且進而其中 $(n+p+q)=1$ 。

於某些具體例中， R^1 、 R^2 、 R^3 、及 R^4 各獨立表示具有1至8個碳原子之烷基。於某些具體例中，各 R^1 表示甲基，及各 R^2 與 R^3 獨立地選自由甲基、環己基、環戊基、及異丙基所組成之群組。於某些具體例中，x係2。於某些具體例中，該含磷倍半矽氧烷具有介於每莫耳500至10000克之間

之數量平均分子量。於某些具體例中，該含磷倍半矽氧烷具有介於每莫耳1000至4000克之間之數量平均分子量。

本發明之倍半矽氧烷可用作例如阻燃劑，及尤其可與非鹵素阻燃劑結合使用。

因此，於另一方面，本發明係關於一種包含環氧樹脂之可固化組合物、用於聚環氧化物之有效量固化劑、及如本發明之含磷倍半矽氧烷。

於某些具體例中，該可固化組合物進一步包含用於熱固性樹脂之有效量之固化劑。於某些具體例中，該熱固性樹脂包含可固化環氧樹脂。

及於又一方面，本發明係關於包含熱固樹脂與本發明之含磷倍半矽氧烷之固化組合物。

如本文所使用：

「烴基」係指藉由自烴化合物移除一氫原子所形成之單價基團；

「非鹵化」意指不含鹵素原子；

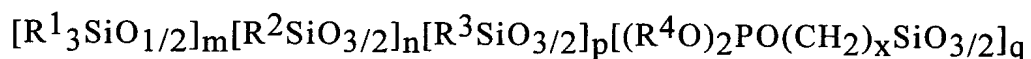
「熱固性」意指可經由化學交聯；及

「熱固」意指經充分化學交聯而不呈現熔融流動。

【實施方式】

倍半矽氧烷具有由Si-O-Si鍵聯組成之網絡構架。其一般係由一或多個有機矽烷縮合而形成(例如，三烷氧基矽烷衍生物)。

本發明之倍半矽氧烷係由下式表示：



R^1 、 R^2 、 R^3 、及 R^4 各獨立表示烴基。有用之烴基包括脂族基團(例如、線型、環型、及/或分支型烷基)與芳族基團(例如，芳基、芳烷基、或烷芳基)。例舉的烴基包括：具有1至8個碳原子之烷基如，例如，甲基、乙基、丙基、異丙基、丁基、戊基、己基、異辛基、環己基、甲基環己基及環戊基；芳基如，例如，苯基；烷芳基如，例如，甲基苯基與乙基苯基；及芳烷基如苯基乙基與苯基甲基。其中 R^1 係甲基之彼等具體例典型上為較佳。同樣地，其中 R^2 及 R^3 獨立表示甲基、環己基、環戊基及異丙基之該等具體例典型上為較佳，尤其與 R^1 為甲基組合使用。

變數 x 表示1至8之整數，例如，1、2、3、4、5、6、7、或8。其中 x 係2之彼等具體例為較佳。

變數 m 表示小於1.5之正數(即係，大於零之任何數)，例如，0.001、0.01、0.1、0.3、0.5、0.75、1、1.25、或1.49。

變數 n 與 q 表示大於0且小於1之正數；例如，0.001、0.1、0.3、或0.5。

變數 p 為大於或等於0且小於1之數字；例如0、0.01、0.1、0.3、0.5、0.75、或0.99。

變數 x 、 m 、 n 、 p 、及 q 於以下兩約束條件下可以任何組合被使用：

- (1) $(n+p)/q$ 之值係介於0.5至99之間；及
- (2) $(n+p+q)$ 之值等於1。

含磷倍半矽氧烷可具有滿足上述準則之任何分子量。正如典型之倍半矽氧烷，其等可作為單一化合物或具有不同

分子量之倍半矽氧烷之混合物存在。於此等情況下，本技藝一般實務係表示為平均分子量(例如，數量平均分子量)。具有介於每莫耳500至10000克(例如，每莫耳1000至4000克)之數量平均分子量之倍半矽氧烷一般尤其適用作熱固性樹脂中之阻燃劑。

可藉由例如使已知方法製備或自商業來源購得之對應三烷氧基矽烷縮合而製造本發明之倍半矽氧烷。於一代表性合成中，使三烷氧基矽烷衍生物與甲酸組合並於高溫下(例如，約80°C)充分加熱以除去因三烷氧基矽烷之縮合作用而產生之醇類副產物，以形成對應倍半矽氧烷。任何殘餘之矽烷醇基團皆可以(CH₃)₃Si-基團封端，例如，藉由添加六甲基二矽胺烷或六甲基二矽氧烷。可藉由於真空下加熱除去揮發物(包括任何未反應起始物)。

可藉由控制對應三烷氧基矽烷之量而控制n、p、及q之各值。

本發明之倍半矽氧烷可用作例如阻燃劑，及尤其可用於與非鹵化阻燃劑組合，其中有可能降低例如須通過用於阻燃性工業標準測試之阻燃劑之總量重量，以獲得熱固樹脂之UL94-V0等級(根據測試方法UL94「用於測試用於裝置及應用中之零件之塑料物質可燃性之標準」，第8章節，20 mm垂直燃燒測試(於2001年5月22日更新)，由美國伊利諾斯州北溪之保險商實驗所發表)。非鹵化阻燃劑之實例包括：水鋁土、有機硼酸酯、有機磷酸酯、有機亞磷酸酯、與有機膦酸酯(例如，如可獲自北卡羅來納州夏洛特市之科萊

恩公司的EXOLIT OP1230與WXOLIT OP930)。

本發明亦係提供一種包含熱固性樹脂、視情況之用於熱固性樹脂之有效量固化劑及本發明之含磷倍半矽氧烷。熱固性樹脂之實例包括環氧樹脂(單組分與/或二組分)、胺基甲酸乙酯樹脂(單組分與/或二組分)、氰酸酯樹脂、酚樹脂及丙烯酸樹脂。就電子應用而言較好該熱固性樹脂為電子等級。

典型熱固性樹脂包括以3M SCOTCHCAST ELECTRICAL INSULATING RESIN 4獲自明尼蘇達州聖保羅之3M公司之二組分環氧樹脂。可用之環氧樹脂之實例包括2,2-雙[4-(2,3-環氧丙氧基)-苯基]丙烷(雙酚A之二環氧丙醚)與以EPON 828、EPON 1004、與EPON 1001F購自蜆殼(Shell)化工公司、以DER-331、DER-332與DER-334購自道氏(Dow)化學公司之原料)。其他適宜的環氧樹脂包含酚甲醛酚醛清漆之環氧丙醚(例如購自道氏化學公司之DEN-43及DEN-428)。

視情況，該熱固性樹脂含有典型上以足以化學交聯熱固性樹脂之量(即係，固化劑之有效量)之一或多種硬化劑、引發劑與/或觸媒(於本文中統稱為「固化劑」)。固化劑之選擇及用量一般視所選擇之熱固性樹脂種類而定，且為熟習本技藝者所熟知。用於環氧樹脂之例舉固化劑包括胺(包括咪唑)、硫醇、與路易斯(Lewis)酸。

可以任何量於本發明之可固化與/或固化組合物中使用含磷倍半矽氧烷。例如，含磷倍半矽氧烷可以基於可固化與/或固化組合物之總重量為1至20重量百分比之範圍，一般為4至10重量百分比，及更一般為4至8重量百分比之量存在。

可藉由簡單混合製造可固化組合物；然而，一般較好使用可形成均勻分散液之技術。於一技術中，利用高剪切混合機如，例如，以SPEEDMIXER DAC 150FVZ獲自南卡羅來納州藍德拉姆市之FlackTek公司之高速混合機將阻燃劑及/或含磷倍半矽氧烷混合至熱固性樹脂中。

可固化組合物可藉由，例如，本技藝熟知之方法固化，包括藉由混合(於二組分熱固性樹脂之情況下)、加熱、光化或熱輻射、或可產生固化組合物之其等任何組合。

藉由以下非限制性實例進一步說明本發明之標的與優勢，但於此等實例所引述之指定物質與量，以及其他條件與、細節不應理解為過度限制本發明。

實例

除另外說明外，否則於實例與說明書之他處之所有份、百分比、比例，等皆為重量計。

實例中所使用之物質列於表1(如下)。

表 1

獲自俄勒岡州，波特蘭之TCI America之己基三甲氧矽烷。
獲自威斯康興洲，密爾沃基市之Aldrich化工有限公司之甲基三甲氧矽烷。
獲自麻塞諸塞州，沃德山市之Alfa-Aesar有限公司之六甲基二矽氧烷。
獲自賓夕法尼亞州，莫裡斯威爾之Gelest公司之二乙基磷醯乙基三乙氧基矽烷。
SC4係指3M SCOTCHCAST ELECTRICAL INSULATING RESIN 4，其係購自明尼蘇達州，聖保羅之3M公司之環氧樹脂
OP1230係指EXOLIT OP1230，係基於金屬有機磷酸鹽之阻燃劑，購自北卡羅來納州，夏洛特市之科萊恩(Clariant)公司。

UL94 20 mm 垂直燃燒測試

利用由美國伊利諾斯州北溪之IL發表之20 mm垂直燃燒測試(於2000年6月8日更新)，第8章節，UL94「用於測試用於裝置及應用中之零件之塑料物質可燃性之標準」，但僅重複測試所示數字之次數。測試概述準則示於表2(如下)：

表 2

準則條件	94 V-0	94 V-1	94 V-2
燃燒時間，T ₁ 或T ₂	≤ 10秒	≤ 30秒	≤ 30秒
燃燒時間，T ₁ + T ₂	≤ 50秒	≤ 250秒	≤ 250秒
燃紅時間，T ₃	≤ 30秒	≤ 60秒	≤ 60秒
樣品是否燃燒至固定夾器？是/否	否	否	否
樣品是否滴出點燃棉花指示劑之燃燒顆粒？是/否	否	否	是

於表2中(如上)T₁係指第一次用火後之殘燄時間。T₂係指第二次用火後之殘燄時間。T₃係指第二次用火後之餘燼時間。

錐形熱量計燃燒測試

依照ASTM 1354-08，「利用氧耗熱量計測試物質與產物之熱且可見煙霧釋放率之標準測試方法」(2008)實施錐形熱量計燃燒測試。如以峰熱釋放率除以到達峰熱釋放之時間計算不包括於ASTM E1354-08之火焰增長率(FIGRA)。利用於如測試樣品同一天測試之對照樣品確定FIGRA之下降百分比。

比較例A：

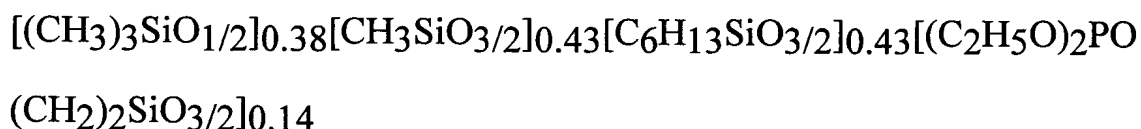
於磁攪拌下將甲基三甲氧矽烷(100克，0.73莫耳)、己基三甲氧矽烷(151.5克，0.73莫耳)、及甲酸(202.7克，4.40莫耳)置於1公升圓底燒瓶中。於70℃油浴中加熱燒瓶35分鐘並藉由蒸餾以回收揮發性副產物。隨後添加六甲基二矽氧烷(96克，0.59莫耳)接著於回流下於65℃油浴中加熱溶

液 50 分鐘。然後於真空下除去揮發性副產物。添加己烷 (200 mL) 與六甲基二矽胺烷 (97 g, 0.60 莫耳) 且溶液經抽吸過濾。於真空下首先於室溫及隨後藉由於 90°C 油浴中加熱除去濾液中之揮發性成份。所得產物，即比較倍半矽氧烷 A，係黏滯、無色液體。¹H NMR 分析結果與下式一致：
 $[(CH_3)_3SiO_{1/2}]_{0.4}[CH_3SiO_{3/2}]_{0.5}[C_6H_{13}SiO_{3/2}]_{0.5}$ 。

藉由 GPC 測定相對於聚苯乙烯標準之數量平均分子量為 680 克/莫耳。

實例 1

於一 250 毫升圓底燒瓶內組合甲基三甲氧矽烷 (15 克, 0.110 莫耳)、己基三甲氧矽烷 (22.7 克, 0.110 莫耳)、二乙基磷醯乙基三乙氧矽烷 (11.9 克, 0.036 莫耳) 及甲酸 (35.4 克, 0.770 莫耳)，及在 80°C 油浴中經由磁攪拌且於 25 分鐘內蒸餾揮發性副產物。添加六甲基二矽氧烷 (32 克, 0.197 莫耳) 及於 80°C 油浴中攪拌混合物另 65 分鐘。於真空下除去揮發性副產物。隨後添加己烷 (25 g) 與六甲基二矽胺烷 (25 g, 0.155 莫耳) 並攪拌溶液 35 分鐘。於真空下除去揮發性產物以形成呈黏滯、無色液體之倍半矽氧烷 1。¹H NMR 分析結果與下式一致：



藉由 GPC 測定相對於聚苯乙烯標準之數量平均分子量為 1600 克/莫耳。

阻燃性測試

藉由表3與4(如下)所示之量使所示之阻燃劑組合於SC4環氧樹脂中製備各種熱固性組合物並藉由UL94 20 mm垂直燃燒測試進行測定。於上述UL94中，表3(見下)所列之所有組合物具有T3=0秒，且不會燃燒至固定夾器、且不會點燃棉花。表4中之所有參數除FIGRA外(表4中第7欄)，係如ASTM E1354-08所定義。FIGRA=火焰增長率且表達為峰熱釋放率(表4中第5欄)除以到達峰熱釋放率之時間(表4中第6欄)。於表4中FIGRA之下降係每一行對比對照例100份SC4(第1行)於FIGRA之差異百分比。於表4中，MJ=百萬焦耳；m²=平方公尺；及kW=千瓦。錐形熱量計儀器之測定結果具有+/- 10百分比等級之已知誤差。

表3

實例	熱固性組合物	重複次數	UL94 20 mm垂直燃燒測試	
			滴出?	合格/不合格 V0至V2
比較例B1	94份SC4, 6份 OP1230	1	否	不合格
		2	否	不合格
		3	否	不合格
		4	否	不合格
比較例B2	93份SC4, 7份 OP1230	1	否	不合格
		2	否	V1
比較例B3	92份SC4, 8份 OP1230	1	否	V1
		2	否	V1
比較例C	93份SC4, 6份OP1230, 1份 比較倍半矽氧烷A	1	否	V1
		2	否	V0
實例2	93份SC4, 6份OP1230, 1份 倍半矽氧烷2	1	否	V0
		2	否	V0
實例3	99份SC4, 1份倍半 矽氧烷2	1	否	不合格
		2	否	不合格
實例4	93份SC4, 7份倍半 矽氧烷2	1	否	不合格
		2	否	V1

表 4

實例	熱固性組合物	總熱量 釋放， MJ/m ²	平均熱量 釋放率， kW/m ²	峰熱 釋放率， kW/m ²	峰所在 時間， 秒	FIGRA	FIGRA 之下降 百分比
比較例D	100份SC4	175	920	2006	145	13.83	0.0
比較例 B1	94份SC4, 6份 OP1230	150	484	707	205	3.45	75.6
比較例 B2	93份SC4, 7份 OP1230	133	408	852	215	3.96	71.6
比較例 B3	92份SC4, 8份 OP1230	129	389	710	230	3.09	77.8
比較例C	93份SC4, 6份 OP1230, 1份比 較倍半矽氧烷 A	150	698	1379	155	8.90	37.1
實例2	93份SC4, 6份 OP1230, 1份倍 半矽氧烷2 1% S-2	145	425	639	210	3.04	78.0
實例3	99份SC4, 1份 倍半矽氧烷2	162	662	1515	165	9.18	34.1
實例4	93份SC4, 7份 倍半矽氧烷2	155	378	613	110	5.57	60.0

本文所涉及之所有專利案與公開案之全文皆以引用之方式併入本文中。於不脫離本發明之範圍及精神下熟習此項技術者可作成本發明之各種修改與替代，及應瞭解本發明不受前文說明的說明具體例之過度限制。

發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※ 申請案號： 98137247

(CIP 1%) (2006.01)

※ 申請日： 98.11.3

※IPC 分類： (CIP 1%) (2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

(CIP 5/449) (2006.01)

作為阻燃劑之含磷倍半矽氧烷衍生物

(CIP 6%) (2006.01)

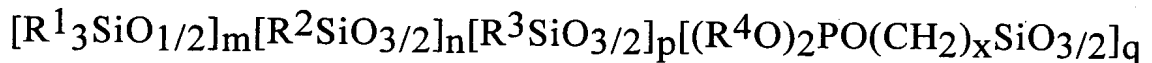
PHOSPHORUS-CONTAINING SILSESQUIOXANE DERIVATIVES

AS FLAME RETARDANTS

(CIP 3/4) (2006.01)

二、中文發明摘要：

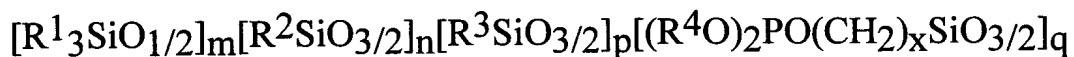
本發明係關於一種由下式表示之含磷倍半矽氧烷：



其中 R^1 、 R^2 、 R^3 、及 R^4 各獨立表示烴基；x 表示 1 至 8 之整數；m 係小於 1.5 之正數；n 與 q 係大於 0 且小於 1 之正數；及 p 係大於或等於 0 且小於 1 之數值。進而， $(n+p)/q$ 係介於 0.5 至 99 之間，及 $(n+p+q)=1$ 。本發明揭示包含含磷倍半矽氧烷之可固化與經固化的組合物。

三、英文發明摘要：

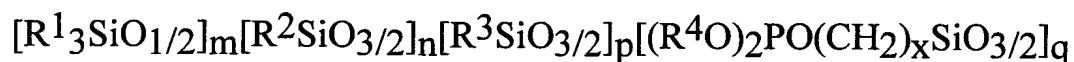
A phosphorus-containing silsesquioxane is represented by the formula



wherein each of R^1 , R^2 , R^3 , and R^4 independently represents a hydrocarbyl group; x represents an integer of from 1 to 8; m is a positive number less than 1.5; n and q are positive numbers greater than 0 and less than 1; and p is a number greater than or equal to 0 and less than 1. Further, $(n + p)/q$ is in a range of from 0.5 to 99, and $(n + p + q) = 1$. Curable and cured compositions comprising the phosphorus-containing silsesquioxane are disclosed.

七、申請專利範圍：

1. 一種由下式表示之含磷倍半矽氧烷，



其中

R^1 、 R^2 、 R^3 、及 R^4 各獨立表示烴基；

x 表示 1 至 8 之整數；

m 係小於 1.5 之正數；

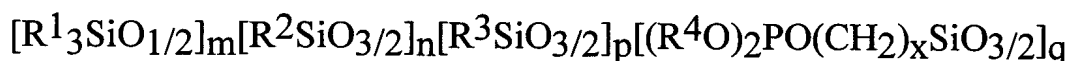
n 與 q 係大於 0 且小於 1 之正數；及

p 係大於或等於 0 且小於 1 之數值，其中 $(n+p)/q$ 係介於 0.5 至 99 之間，且進而其中 $(n+p+q)=1$ 。

2. 如請求項 1 之含磷倍半矽氧烷，其中 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 各獨立表示具有 1 至 8 個碳原子之烷基。
3. 如請求項 1 之含磷倍半矽氧烷，其中各 R^1 表示甲基；及各 R^2 與 R^3 係獨立地選自由甲基、環己基、環戊基、及異丙基所組成之群組。
4. 如請求項 3 之含磷倍半矽氧烷，其中 x 係 2。
5. 如請求項 1 之含磷倍半矽氧烷，其中該含磷倍半矽氧烷具有介於每莫耳 500 至 10000 克之數量平均分子量。
6. 如請求項 1 之含磷倍半矽氧烷，其中該含磷倍半矽氧烷具有介於每莫耳 1000 至 4000 克之數量平均分子量。
7. 一種可固化組合物，其包含：

熱固性樹脂；及

由下式表示之含磷倍半矽氧烷：



其中

R^1 、 R^2 、 R^3 、及 R^4 各獨立表示烴基；

x表示1至8之整數；

m係小於1.5之正數；

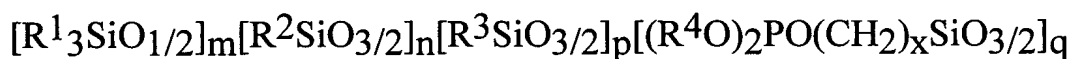
n與q係大於0且小於1之正數；及

p係大於或等於0且小於1之數值，其中 $(n+p)/q$ 係介於0.5至99之間，且進而其中 $(n+p+q)=1$ 。

8. 如請求項7之可固化組合物，其進一步包含用於熱固性樹脂之有效量之固化劑。
9. 如請求項7之可固化組合物，其中該熱固性樹脂包含可固化環氧樹脂。
10. 如請求項7之可固化組合物，其中各 R^1 表示甲基；及各 R^2 與 R^3 係獨立地選自由甲基、環己基、環戊基、及異丙基所組成之群組，及x係2。
11. 如請求項7之可固化組合物，其中該含磷倍半矽氧烷具有介於每莫耳500至10000克之間之數量平均分子量。
12. 一種固化組合物，其包含：

熱固樹脂；及

由下式表示之含磷倍半矽氧烷：



其中

R^1 、 R^2 、 R^3 、及 R^4 各獨立表示烴基；

x表示1至8之整數；

m係小於1.5之正數；

n 與 q 為大於0且小於1之正數；及

p 為大於或等於0且小於1之數值，其中 $(n+p)/q$ 係介於0.5至99之間，且進而其中 $(n+p+q)=1$ 。

13. 如請求項12之固化組合物，其中該熱固樹脂包含可固化環氧樹脂。
14. 如請求項12之固化組合物，其中各 R^1 表示甲基；及各 R^2 與 R^3 係獨立地選自由甲基、環己基、環戊基、與異丙基所組成之群組，及 x 為2。
15. 如請求項12之固化組合物，其中該含磷倍半矽氧烷具有介於每莫耳500至10000克之間之數量平均分子量。

四、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：(無)

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

