

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：96105000

CatG 69/40

※ 申請日期：96/02/12

※IPC 分類：

CatG 59/06

一、發明名稱：(中文/英文)

多官能二苯醚低聚物、其衍生物、包含其之樹脂組成物及其用途

Polyfunctional Phenylene Ether Oligomer, Derivative thereof, Resin Composition containing the Same, and Use thereof

二、申請人：(共 1 人)

姓名或名稱：(中文/英文)

三菱瓦斯化學股份有限公司

MITSUBISHI GAS CHEMICAL COMPANY, INC. (三菱瓦斯化学株式会社)

代表人：(中文/英文)

小高英紀 / Hideki ODAKA

住居所或營業所地址：(中文/英文)

日本國東京都千代田區丸の内二丁目 5 番 2 號

5-2, Marunouchi 2-chome, Chiyoda-ku, Tokyo, Japan

國 籍：(中文/英文)

日本 / Japan

三、發明人：(共 4 人)

姓 名：(中文/英文)

(1) 堀野建 / Takeru Horino

(2) 大野大典 / Daisuke Ohno

(3) 石井賢治 / Kenji Ishii

(4) 上等和良 / Kazuyoshi Uera

國 籍：(中文/英文)

(1)~(4) 日本 / Japan

四、聲明事項：

☐ 主張專利法第二十二條第二項 ☐ 第一款或 ☐ 第二款規定之事實，其事實發生日期為： 年 月 日。

☒ 申請前已向下列國家(地區)申請專利：

【格式請依：受理國家(地區)、申請日、申請案號 順序註記】

☒ 有主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

1. 日本；2006/03/10；2006-065072
2. 日本；2006/03/15；2006-070983
3. 日本；2006/04/20；2006-116367
- 4.
- 5.

☐ 無主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

☐ 主張專利法第二十九條第一項國內優先權：

【格式請依：申請日、申請案號 順序註記】

☐ 主張專利法第三十條生物材料：

☐ 須寄存生物材料者：

國內生物材料 【格式請依：寄存機構、日期、號碼 順序註記】

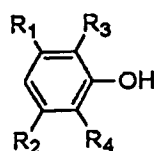
國外生物材料 【格式請依：寄存國家、機構、日期、號碼 順序註記】

☐ 不須寄存生物材料者：

所屬技術領域中具有通常知識者易於獲得時，不須寄存。

五、中文發明摘要：

由每分子具有 3 至小於 9 個酚羥基，及在至少一個該酚羥基的第 2 及 6 位置上具有烷基及/或伸烷基的多官能酚 (A)，與式 (1) 之一元酚化合物反應，以獲得具有 3 至小於 9 個酚羥基的多官能二苯醚低聚物 (B)、其衍生物、包含該衍生物之樹脂組成物、由其所獲得之可固化薄膜及其固化薄膜，

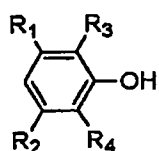


(1)

其中 R_1 和 R_2 為相同或不同，其代表氫原子、鹵素原子、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，及 R_3 及 R_4 為相同或不同，其代表鹵素原子、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基。

六、英文發明摘要：

A polyfunctional phenylene ether oligomer (B) having 3 to less than 9 phenolic hydroxyl groups, obtained by reacting a polyfunctional phenol (A) having 3 to less than 9 phenolic hydroxyl groups per molecule and having alkyl groups and/or alkylene groups at 2-and 6-positions of at least one of the phenolic hydroxyl groups with a monohydric phenol compound of the formula (1), derivatives thereof, resin compositions containing the derivatives, curable films obtained therefrom and cured films thereof,



(1)

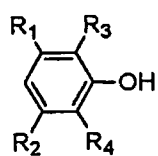
wherein R_1 and R_2 are the same or different and represent a hydrogen atom, a halogen atom, an alkyl group having 6 or less carbon atoms or a phenyl group, and R_3 and R_4 are the same or different and represent a halogen atom, an alkyl group having 6 or less carbon atoms or a phenyl group.

七、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第(1)圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

無

八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

(1)

九、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明係有關於新穎之多官能二苯醚低聚物、其衍生物、包含其之樹脂組成物及其用途。更具體地，本發明係有關由多官能二苯醚低聚物經縮水甘油基化所獲得之具有優異介電特性和耐熱性的環氧樹脂、包含該環氧樹脂的環氧可固化樹脂組成物、固化產物、由多官能二苯醚低聚物經乙烯基-苄化所獲得之具有優異介電特性、耐熱性和溶劑可溶性的聚乙烯基苄基醚化合物、包含該聚乙烯基苄基醚化合物的芳族乙烯類可固化樹脂組成物、固化產物及其用途。

【先前技術】

環氧樹脂具有優異的耐熱性、電特性、機械特性和黏合性，因此環氧樹脂係用於多種領域，例如層壓板、黏合劑、塗料、模塑材料和澆注材料之領域。在電子材料領域，近年來，隨著通訊或電腦的發展，已經開始使用高頻率，因此要求低介電特性以提高信號傳輸的速度。作為應對上述要求的方法，已知使用二環戊二烯酚醛清漆型環氧樹脂的方法（例如，JP-A-11-060688）及使用聯苯基苯酚芳烷基型環氧樹脂的方法（例如，JP-A-2002-179761）。在這點上，本發明人已經注意到具有低介電常數和低介電損耗角正切的聚二苯醚樹脂並開發出使用具有引入其中的聚二苯醚結構的環氧樹脂的方法（例如 JP-A-2003-292570）。具有引入其中的聚二苯醚結構的環氧樹脂可以具有高耐熱

性、低介電常數和低介電損耗角正切，但是，聚二苯醚樹脂具有需要長時間固化的缺點，因此需要改進。

傳統上，可固化樹脂廣泛用於黏合、澆注、塗布、浸漬、層壓和模塑化合物等。然而，近年來其係用於如此多樣的領域，傳統上已知的可固化樹脂有時在某些使用環境中或在某些使用條件下令人不滿意。例如，對於用於各種電氣裝置的印刷線路板用的層壓板，隨著電子器件的發展，需要具有低介電特性的材料以改進信號傳輸的速度。另一方面，近年來，在由於使用無鉛焊料而提高的回焊(reflow)溫度的影響下，要求材料在低介電特性之外還具有更高的耐熱性。此外，當用於電子材料時，可固化樹脂在許多情況下以清漆形式使用。因此，考慮到可操作性，要求可固化樹脂具有優異的溶劑可溶性。作為近來用於層壓板的母體樹脂，酚醛樹脂、環氧樹脂、氰酸酯樹脂、乙烯酯樹脂及聚醯亞胺樹脂是已知的。這些樹脂滿足了高耐熱性和溶劑可溶性之類的要求，但沒有充分滿足低介電常數和低介電損耗角正切的要求。作為滿足低介電特性的可固化樹脂，其中引入了聯苯基苯酚芳烷基結構的聚乙烯基苄基醚化合物(例如 JP-A-2005-314556)和本發明人開發出的其中引入了聚二苯醚結構的雙官能乙烯基苄基醚化合物(例如，JP-A-2004-067727)是已知的。然而，需要進一步改進這些乙烯基苄基醚化合物的耐熱性和溶劑可溶性。需要開發出具有平衡的低介電特性、耐熱性和溶劑可溶性的材料。

近年來，資訊通訊裝置，例如 PHS 或手提電話的信號帶和電腦的 CPU 時鐘時間達到 GHz 帶並開始使用更高的頻率。電信號的介電損耗與形成電路用的絕緣體的介電常數的平方根、介電損耗角正切和所用信號的頻率的乘積成比例。因此，隨著所用信號頻率的提高，介電損耗提高。介電損耗使電信號衰減並損害信號的可靠性。為了抑制上述損害，需要選擇具有小介電常數和小介電損耗角正切的材料作為絕緣體。作為這種材料，提出了含氟樹脂、聚烯烴樹脂、聚苯乙烯樹脂和聚二苯醚樹脂。然而，儘管這些樹脂具有優異的低介電特性，它們多數具有與耐化學性或可模塑性有關的問題。對於由這些樹脂製成的用於電絕緣材料的薄膜，例如，由聚二苯醚製成的薄膜具有與撓性有關的問題（例如，JP-A-7-188362），由低分子量苯乙烯化合物（例如二乙烯基苯）製成的薄膜具有黏著性且所得固化產物易碎（例如，JP-A-2002-249531）。本發明人已經提出了將雙官能聚二苯醚低聚物的乙烯基化合物衍生物與高分子量化合物結合而獲得的沒有黏著性並具有低介電特性和高耐熱性的樹脂組成物（JP-A-2006-083364）。然而，由於為應對近來對無鉛焊料的需求而提高回焊溫度，需要具有更高耐熱性且在熱作用下僅產生小尺寸變化的材料。

【發明內容】

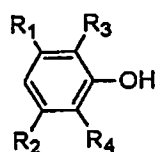
本發明的目的是克服傳統技術的上述問題並提供具有優異介電特性和耐熱性以及具有改進的反應性的多官能環氧樹脂、作為上述環氧樹脂的原材料的多官能二苯醚低

聚物、包含上述環氧樹脂的環氧樹脂組成物及其固化產物。

本發明的另一目的是提供具有改進的耐熱性和可溶性的聚乙烯基苄基醚化合物、包含該聚乙烯基苄基醚化合物的芳族乙烯樹脂組成物及其固化產物。

本發明的再一目的是提供芳族乙烯類可固化樹脂組成物，其能夠提供具有高耐熱性、低介電常數和低介電損耗角正切且在熱作用下僅產生微小尺寸變化的固化產物、使用上述樹脂組成物的可固化薄膜、及由該可固化薄膜固化而得的薄膜。

本發明一係提供每分子具有 3 至小於 9 個酚羥基的多官能二苯醚低聚物(B)，該低聚物係由每分子具有 3 至小於 9 個酚羥基，及該 3 至小於 9 個酚羥基之至少一個於第 2 及 6 位置上具有烷基及/或伸烷基的多官能酚(A)，與式(1)所示一元酚化合物反應而獲得，



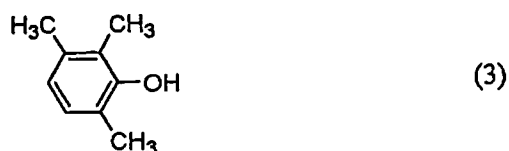
(1)

其中 R_1 和 R_2 為相同或不同，代表氫原子、鹵素原子、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，及 R_3 和 R_4 為相同或不同，代表鹵素原子、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基。

本發明一進一步提供了多官能二苯醚低聚物(B)，其中該多官能二苯醚低聚物(B)作為聚苯乙烯係具有 700 至

3,000 的數均分子量。

本發明一再進一步提供了多官能二苯醚低聚物(B)，其中式(1)所代表的一元酚化合物係式(2)化合物、式(3)化合物或式(2)及式(3)化合物的混合物。



本發明一還提供了由上述多官能二苯醚低聚物(B)的酚羥基縮水甘油基化而得的多官能環氧樹脂(E)、包含上述多官能環氧樹脂的環氧樹脂組成物、及由上述樹脂組成物固化而得的固化產物。

本發明二係提供由多官能二苯醚低聚物(B)的酚羥基進行乙烯基-苄化而得的聚乙烯基苄基醚化合物(C)。

本發明二進一步提供包含聚乙烯基苄基醚化合物(C)的芳族乙烯類可固化樹脂組成物，及由上述樹脂組成物固化而得的固化產物。

本發明三係提供由包含上述多官能二苯醚低聚物(B)酚羥基的乙烯基苄基醚化而獲得的聚乙烯基苄基醚化合物(C)和苯乙烯類熱塑性高彈體(D)的芳族乙烯類可固化樹脂組成物。

本發明三進一步提供芳族乙烯類可固化樹脂組成物，其中苯乙烯類熱塑性高彈體(D)作為聚苯乙烯係具有 30,000

至 300,000 的重均分子量。

本發明三再進一步提供了芳族乙烯類可固化樹脂組成物，其中苯乙烯類熱塑性高彈體(D)具有 20 至 49 重量%的苯乙烯含量。

本發明三還提供了由上述芳族乙烯類可固化樹脂組成物加工成薄膜形式而得的可固化薄膜，及由上述可固化薄膜固化而得的薄膜或形成導體層的薄膜。

(發明效果)

本發明一所提供之包含由多官能二苯醚低聚物(B)獲得的多官能環氧樹脂(E)的環氧可固化樹脂組成物係具有優異的反應性，其固化產物具有低介電常數、介電損耗角正切及高耐熱性。因此，該環氧可固化樹脂組成物可用作電及電子部件的絕緣材料、各種複合材料例如層壓板或 CFRP(碳纖維增強塑膠)、黏合劑及塗料。

本發明二所提供之包含聚乙烯基苄基醚化合物(C)的芳族乙烯類可固化樹脂組成物具有優異的反應性及溶劑可溶性，其固化產物具有低介電常數、介電損耗角正切和高耐熱性。因此，上述芳族乙烯類可固化樹脂組成物可用作電及電子部件的絕緣材料、各種複合材料例如層壓板(印刷線路板)或 CFRP(碳纖維增強塑膠)和模塑原材料。

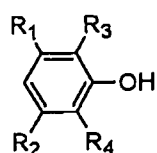
使用本發明三提供的含有聚乙烯基苄基醚化合物(C)和苯乙烯類熱塑性高彈體(D)的芳族乙烯類可固化樹脂組成物，可以獲得具有高耐熱性、低介電常數和介電損耗角正切且在加熱下僅產生小尺寸變化的固化產物。因此，預計

將該芳族乙烯類可固化樹脂組成物用於高頻電部件的絕緣材料、半導體的絕緣材料、裝配線路板材料、塗布材料、塗料、黏合劑和電容器用薄膜。其工業意義非常重大。

【實施方式】

本發明人已經以具有優異介電特性、優異耐熱性和高反應性的熱固性樹脂組成物為目標，對環氧樹脂進行勤奮的研究，並因此發現，使用具有特定結構的多官能酚化合物作為原材料，可以獲得具有改進的反應性和耐熱性同時保持低介電常數和低介電損耗角正切的多官能環氧樹脂。根據該發現，本發明人完成本案發明。

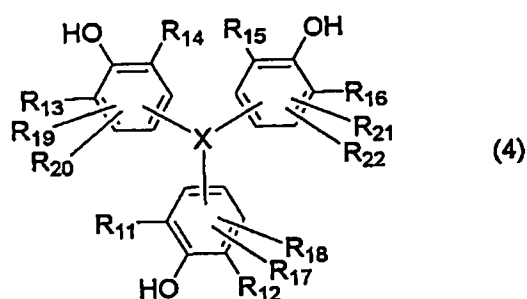
本發明的多官能二苯醚低聚物(B)係每分子具有 3 至小於 9 個酚羥基的多官能二苯醚低聚物(B)，其可由使多官能酚化合物(A)與式(1)所示一元酚化合物反應而得。對多官能二苯醚低聚物(B)的製造方法並無特別限制。例如，可以在溶劑中使多官能酚化合物(A)與一種式(1)所代表的一元酚化合物或至少兩種式(1)所代表的一元酚化合物的混合物氧化聚合以獲得多官能二苯醚低聚物(B)。



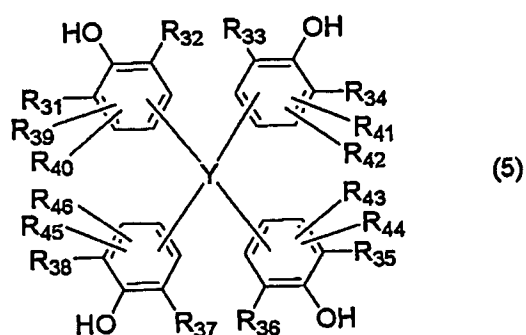
(1)

其中 R_1 和 R_2 為相同或不同，代表氫原子、鹵素原子、具有 6 或更少個碳原子的烷基或、苯基，及 R_3 和 R_4 為相同或不同，代表鹵素原子、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基。

本發明中所用的多官能二苯醚低聚物(B)的原材料的多官能酚化合物(A)是指每分子含有 3 至小於 9 個酚羥基，及該 3 至小於 9 個酚羥基、較佳 2 至小於 5 個酚羥基中至少一個酚羥基之第 2 及 6 位置上具有烷基和/或伸烷基的化合物。該多官能酚(A)較佳為下式(4)、(5)、(6)和(7)中所示任一化合物，

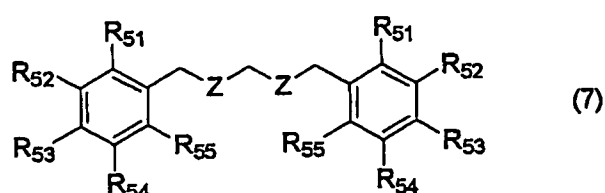
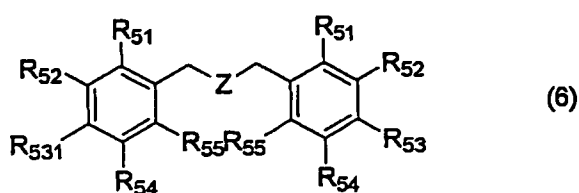


其中 X 是含有 1 至 20 個碳原子的烴， R_{11} 和 R_{12} 為相同或不同，代表具有 6 或更少個碳原子的烷基， R_{13} 、 R_{14} 、 R_{15} 和 R_{16} 為相同或不同，代表氫原子、鹵素原子、烷氧基、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，及 R_{17} 、 R_{18} 、 R_{19} 、 R_{20} 、 R_{21} 和 R_{22} 為相同或不同，代表氫原子、烷氧基、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，



其中 Y 是含有 1 至 20 個碳原子的烴， R_{31} 和 R_{32} 為相同或不同，代表具有 6 或更少個碳原子的烷基， R_{33} 、 R_{34} 、 R_{35} 、

R_{36} 、 R_{37} 和 R_{38} 為相同或不同，代表氫原子、鹵素原子、烷氧基、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，及 R_{39} 、 R_{40} 、 R_{41} 、 R_{42} 、 R_{43} 、 R_{44} 、 R_{45} 和 R_{46} 為相同或不同，代表氫原子、烷氧基、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，



其中 Z 為伸苯基，其在至少一個位置含有羥基，並可以在其他位置含有取代基， R_{51} 、 R_{53} 和 R_{55} 中的至少一個代表羥基，其餘的各自代表氫原子、烷氧基、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基， R_{52} 和 R_{54} 各自代表氫原子、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，條件是在分子中至少一個羥基的第 2 和 6 位置上存在兩個相同或不同，並選自烷基或伸烷基所組成之組群的基團。

式(4)化合物的例子包括 4,4'-[(3-羥基苯基)亞甲基]雙(2,6-二甲基苯酚)、4,4'-[(3-羥基苯基)亞甲基]雙(2,3,6-三甲基苯酚)、4,4'-[(4-羥基苯基)亞甲基]雙(2,6-二甲基苯酚)、4,4'-[(4-羥基苯基)亞甲基]雙(2,3,6-三甲基苯酚)、4,4'-[(4-羥基-3-乙氧基苯基)亞甲基]雙(2,3,6-三甲基苯酚)、4,4'-[4-(4-羥基苯基)環亞己基]雙(2,6-二甲基苯酚)、4,4'-[1-[4-[1-(4-羥基

-3,5-二甲基苯基)-1-甲基乙基]苯基]亞乙基]雙(2,6-二甲基苯酚)和 4,4'-[1-[4-[1-(4-羥基-3-氟苯基)-1-甲基乙基]苯基]亞乙基]雙(2,6-二甲基苯酚)。

式(5)化合物的例子包括 4,4',4'',4'''-(1,2-乙烷亞二基)四(2,6-二甲基苯酚)及 4,4',4'',4'''-(1,4-亞苯基二亞甲基)四(2,6-二甲基苯酚)。

式(6)化合物的例子包括 2,6-雙[(4-羥基-3,5-二甲基苯基)甲基]-4-乙基苯酚、2,6-雙[(4-羥基-2,3,6-三甲基苯基)甲基]-4-甲基苯酚、2,6-雙[(4-羥基-3,5,6-三甲基苯基)甲基]-4-乙基苯酚、2,4-雙[(4-羥基-3-甲基苯基)甲基]-6-甲基苯酚、2,6-雙[(4-羥基-3-甲基苯基)甲基]-4-甲基苯酚、2,4-雙[(4-羥基-3-環己基苯基)甲基]-6-甲基苯酚、2,4-雙[(4-羥基-3-甲基苯基)甲基]-6-環己基苯酚、2,4-雙[(2-羥基-5-甲基苯基)甲基]-6-環己基苯酚、2,4-雙[(4-羥基-2,3,6-三甲基苯基)甲基]-6-環己基苯酚、3,6-雙[(4-羥基-3,5-二甲基苯基)甲基]-1,2-苯二酚和 4,6-雙[(4-羥基-3,5-二甲基苯基)甲基]-1,3-苯二酚。

式(7)化合物的例子包括 2,2'-亞甲基雙[6-[(4/2-羥基-2,5/3,6-二甲基苯基)甲基]-4-甲基苯酚]、2,2'-亞甲基雙[6-[(4-羥基-3,5-二甲基苯基)甲基]-4-甲基苯酚]、2,2'-亞甲基雙[6-[(4/2-羥基-2,3,5/3,4,6-三甲基苯基)甲基]-4-甲基苯酚]、2,2'-亞甲基雙[6-[(4-羥基-2,3,5-三甲基苯基)甲基]-4-甲基苯酚]、4,4'-亞甲基雙

[2-[(2,4-二羥基苯基)甲基]-6-甲基苯酚]、4,4'-亞甲基雙[2-[(2,4-二羥基苯基)甲基]-3,6-二甲基苯酚]、4,4'-亞甲基雙[2-[(2,4-二羥基-3-甲基苯基)甲基]-3,6-二甲基苯酚]和 6,6'-亞甲基雙[4-[(4-羥基-3,5-二甲基苯基)甲基]-1,2,3-苯三酚]。

多官能酚(A)係不限於這些例子。除了這些化合物，多官能酚(A)的例子包括 4,4'-亞甲基雙[2-[(2,3,4-三羥基苯基)甲基]-3,6-二甲基苯酚]、4,4'-[(2-羥基-3-甲氧基苯基)亞甲基]雙(2,6-二甲基苯酚)、4,4'-[(2-羥基苯基)亞甲基]-雙(2,3,6-三甲基苯酚)、4,4'-[(3,4-二羥基苯基)亞甲基]雙(2,6-二甲基苯酚)、4,4'-[(3,4-二羥基苯基)亞甲基]雙(2,3,6-三甲基苯酚)、2,2'-[(4-羥基苯基)亞甲基]雙(3,5,6-三甲基苯酚)、2,4,6-三[(4-羥基-3,5-二甲基苯基)甲基]-1,3-苯二酚、2,4,6-三[(2-羥基-3,5-二甲基苯基)甲基]-1,3-苯二酚、4,4'-環亞己基雙[2-環己基-6-[(2-羥基-5-甲基苯基)甲基]苯酚]、4,4'-環亞己基雙[2-環己基-6-[(4-羥基-3,5-二甲基苯基)甲基]苯酚]、4,4'-環亞己基雙[2-環己基-6-[(4-羥基-2-甲基-5-環己基苯基)甲基]苯酚]和 4,4'-環亞己基雙[2-環己基-6-[(2,3,4-三羥基苯基)甲基]苯酚]。

酚羥基的數量沒有特別限制，只要其為 3 或更多。當酚羥基的數量太大時，有時會損害固化產物的介電特性。因此，其較佳為 3 至 4。更佳地，多官能酚(A)為式(4)或式(5)所示含有 3 至 4 個羥基的多官能酚化合物。

此外，甲基較佳係為第 2 及 6 位置上的烷基及/或伸烷基。多官能酚化合物(A)最佳為 4,4'-[(3-羥基苯基)亞苯基]雙(2,6-二甲基苯酚)、4,4'-[(3-羥基苯基)亞甲基]雙(2,3,6-三甲基苯酚)、4,4'-[(4-羥基苯基)亞甲基]雙(2,6-二甲基苯酚)、4,4'-[(4-羥基苯基)亞甲基]雙(2,3,6-三甲基苯酚)或 4,4',4'',4'''-(1,4-亞苯基二亞甲基)四(2,6-二甲基苯酚)。

作為本發明多官能二苯醚低聚物(B)原材料的一元酚化合物係指式(1)所示一元酚化合物，其中 R_1 和 R_2 相同或不同，代表氫原子、鹵素原子、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，及 R_3 和 R_4 為相同或不同，代表鹵素原子、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基。式(1)一元酚化合物特佳為使用在第 2 及 6 位置上具有取代基的化合物，或第 2、3 及 6 位置上具有取代基的化合物，或結合使用在第 2 及 6 位置上具有取代基的化合物以及第 2、3 及 6 位置上具有取代基的化合物。此外，一元酚化合物進一步較佳為 2,6-二甲基苯酚、2,3,6-三甲基苯酚或 2,6-二甲基苯酚和 2,3,6-三甲基苯酚的混合物。

本發明所用的多官能二苯醚低聚物(B)是指分子中含有 3 至小於 9 個酚羥基的多官能二苯醚低聚物，該低聚物係由使多官能酚化合物(A)與式(1)所示一元酚化合物反應而得。多官能二苯醚低聚物(B)的製造方法沒有特別限制。例如，可以根據 JP-A-2004-307554 和 JP-A-2005-023201 公開的方法獲得多官能二苯醚低聚物

(B)。通常由直接使用氧氣或空氣的方法進行多官能酚(A)和式(1)一元酚化合物的氧化聚合，其為本發明多官能二苯醚低聚物(B)製造方法的較佳實施方案。此外，也可以使用電極氧化法。對氧化法沒有特別限制。考慮到安全性和經濟的裝置和設備投資，空氣氧化為較佳。

氧氣或空氣的氧化聚合係可使用催化劑。催化劑的例子包括銅鹽，例如 CuCl 、 CuBr 、 Cu_2SO_4 、 CuCl_2 、 CuBr_2 、 CuSO_4 和 CuI 。這些銅鹽可以單獨或結合使用。除了上述催化劑，還可以使用胺。胺的例子包括單及二甲基胺、單及二乙基胺、單及二丙基胺、單及二正丁基胺、單及二第三丁基胺、單及二苄基胺、單及二環己基胺、單及二乙醇胺、乙基甲基胺、甲基丙基胺、丁基二甲基胺、烯丙基乙基胺、甲基環己基胺、嗎啉、甲基-正丁基胺、乙基異丙基胺、苄基甲基胺、辛基苄基胺、辛基氯苄基胺、甲基(苯基乙基)胺、苄基乙基胺、N-正丁基二甲基胺、N,N'-二第三丁基乙二胺、二(氯苯基乙基)胺、1-甲基胺基-4-戊烯、吡啶、甲基吡啶、4-二甲基胺基吡啶和呱啶。這些胺可以單獨或結合使用。催化劑係不限於這些例子，只要其為銅鹽或胺。

氧化聚合的反應溶劑可以選自芳烴溶劑，例如甲苯、苯和二甲苯、及鹵化烴溶劑，例如二氯甲烷、氯仿及四氯化碳。醇溶劑或酮溶劑可以與芳烴溶劑或鹵化烴溶劑結合使用。醇溶劑包括甲醇、乙醇、丁醇、丙醇、甲基丙烯乙二醇、二甘醇乙醚、丁基丙二醇和丙基丙二醇。酮溶劑包括丙酮、甲乙酮、二乙基酮、甲基丁基酮和甲基異丁基酮。

也可以使用四氫呋喃或二噁烷。反應溶劑係不限於這些溶劑。

對氧化聚合的反應溫度沒有特別限制。反應溫度較佳為 25 至 50°C。由於氧化聚合是放熱反應，難以將溫度控制在 50°C 或更高，並且難以控制分子量。當反應溫度為 25°C 或更低時，反應速度變得極低，因此不可能進行高效生產。

本發明的多官能二苯醚低聚物(B)的數均分子量較佳為 700 至 3,000。當數均分子量大於 3,000 時，在縮水甘油基化過程中反應混合物的熔體黏度升高，因此反應性下降。當數均分子量小於 700 時，所得多官能環氧樹脂具有差的低介電特性和耐熱性。

可以由上述多官能二苯醚低聚物(B)的酚羥基進行進行縮水甘油基化來獲得本發明一的多官能環氧樹脂(E)。本發明一的多官能環氧樹脂(E)較佳具有 250 至 1,000 克/當量的環氧基當量。對多官能環氧樹脂(E)的製造方法沒有特別限制。例如，其可以通過多官能二苯醚低聚物(B)在鹵化縮水甘油基(例如表氯醇)和鹼存在下的脫氫鹵化來合成。多官能二苯醚低聚物(B)可以以與反應溶液分離的粉末形式，或以將低聚物(B)溶於反應溶液而得的溶液形式使用。鹼的典型例子包括氫氧化鈉、氫氧化鉀、甲醇鈉、乙醇鈉、氫氧化鈣、碳酸鈉、碳酸鉀和碳酸氫鈉。鹼不限於這些鹼。反應溫度較佳為 -10°C 至 110°C。當反應溫度低於 -10°C 時，縮水甘油基化反應緩慢。當其高於 110

°C 時，容易產生副反應，例如鹵化縮水甘油基(例如表氯醇)與鹼的反應。

本發明一的環氧樹脂組成物係包含多官能環氧樹脂(E)。其較佳實施方案是包含多官能環氧樹脂(E)及環氧樹脂固化劑的環氧可固化樹脂組成物。固化劑可以選自各種固化劑，對其沒有特別限制。其例子包括胺化合物、酸酐化合物、醯胺化合物和酚化合物。此外，其具體例包括二胺基二苯基甲烷、二亞乙基三胺、三亞乙基四胺、二胺基二苯砜、異佛爾酮二胺、雙氰二醯胺(dicyan diamide)、由亞麻酸和乙二胺的二聚物合成的聚醯胺樹脂、鄰苯二甲酸酐、偏苯三酸酐、苯均四酸酐、馬來酸酐、四氫鄰苯二甲酸酐、甲基四氫鄰苯二甲酸酐、甲基內亞甲亞四氫苯酐(methyl nadic anhydride)、六氫鄰苯二甲酸酐、甲基六氫鄰苯二甲酸酐、多官能酚化合物及其改性的化合物，例如酚醛清漆樹脂、甲酚酚醛清漆樹脂、芳烴甲醛樹脂改性的酚醛樹脂、二環戊二烯苯酚加成型樹脂、苯酚芳烷基樹脂、萘酚芳烷基樹脂、三羥甲基甲烷樹脂、四酚乙烷(tetraphenylolthane)樹脂、萘酚酚醛清漆樹脂、萘酚-苯酚共縮合酚醛清漆樹脂、萘酚-甲酚共縮合酚醛清漆樹脂、聯苯改性的酚醛樹脂、和胺基三嗪改性的酚醛樹脂、咪唑、 BF_3 -胺絡合物和胍衍生物。這些固化劑可以單獨或結合使用。

本發明一的環氧樹脂組成物可以進一步包含環氧樹脂的固化促進劑。固化促進劑的例子包括咪唑，例如 2-甲基咪唑、2-乙基咪唑、2-苯基咪唑和 2-乙基-4-甲基咪唑；

第三胺，例如 2-(二甲基胺基甲基)苯酚、三亞乙基二胺、三乙醇胺和 1,8-二氮雜雙環(5,4,0)十一碳烯-7；有機磷，例如三苯磷、二苯磷和三丁基磷；金屬化合物，例如草酸錫、四取代的磷·四取代的硼酸酯，例如四苯基磷·硼酸四苯酯和四苯基磷·硼酸乙基三苯酯；和四苯基硼鹽，例如 2-乙基-4-甲基咪唑·硼酸四苯酯和 N-甲基嗎啉·硼酸四苯酯。

本發明一的多官能環氧樹脂(E)具有低熔體黏度和良好的流動性並具有優異的與不同樹脂的相容性。多官能環氧樹脂(E)可以根據預計目的和預計用途與各種樹脂結合使用。其具體例包括各種不同的環氧樹脂；改性環氧樹脂；氧雜環丁烷樹脂；(甲基)丙烯酸酯；聚烯丙基化合物，例如二烯丙基苯和二烯丙基對苯二甲酸酯；乙烯基化合物，例如 N-乙烯基-2-吡咯烷酮和二乙烯基苯；可聚合的含雙鍵的單體，例如不飽和聚酯；多官能馬來醯亞胺；聚醯亞胺；橡膠，例如聚丁二烯；熱塑性樹脂，例如聚乙烯和聚苯乙烯；工程塑料，例如 ABS 樹脂和聚碳酸酯；和氰酸酯樹脂。可與多官能環氧樹脂(E)結合使用的樹脂不限於這些例子。

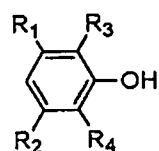
此外，本發明一的環氧樹脂組成物可以根據需要進一步包含多種已知添加劑，例如無機或有機填料、染料、顏料、增稠劑、潤滑劑、消泡劑、偶聯劑、光敏劑、紫外線吸收劑和阻燃劑。

將上述各個組分以所需的預定比率均勻混合，根據需要

在 100℃ 至 200℃ 進行預固化並在 150℃ 至 200℃ 進行後固化 1 至 15 小時，本發明一的環氧樹脂組成物經過充足的固化反應，由此獲得本發明的環氧固化產物。此外，在使環氧樹脂組成物均勻分散或溶解在溶劑或類似物中並去除溶劑之後，進行固化。

由此獲得本發明一的環氧固化產物具有耐熱性、低介電常數和低介電損耗角正切。因此，本發明的樹脂組成物可用在需要耐熱性、低介電常數和低介電損耗角正切的多種領域。具體而言，本發明的樹脂組成物可用作電和電子部件的材料，例如絕緣材料、層壓板或密封材料。

本發明人已經以具有優異介電特性、耐熱性和溶劑可溶性的可固化樹脂組成物為目標，對聚乙烯基苄基醚化合物進行勤奮的研究，並因此發現了可以在保持低介電常數和低介電損耗角正切的同時在耐熱性和溶劑可溶性方面獲得改進的聚乙烯基苄基醚化合物。根據上述發現，本發明人完成了本發明。也就是說，本發明二的聚乙烯基苄基醚化合物係由具有 3 至小於 9 個酚羥基的多官能二苯醚低聚物(B)的酚羥基進行乙烯基-苄化而得的聚乙烯基苄基醚化合物(C)，該多官能二苯醚低聚物(B)係由多官能酚(A)與式(1)所代表的一元酚化合物反應獲得的，



(1)

其中 R_1 和 R_2 為相同或不同，代表氫原子、鹵素原子、

具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基， R_3 和 R_4 為相同或不同，代表鹵素原子、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基。

本發明二中使用多官能二苯醚低聚物(B)的數均分子量較佳為 700 至 3,000。當數均分子量大於 3,000 時，在多官能二苯醚低聚物的乙烯基-苄化過程中反應混合物的熔體黏度升高，因此反應性下降。當數均分子量小於 700 時，所得聚乙烯基苄基醚化合物可能變黏，因此產生操作問題。

由多官能二苯醚低聚物(B)的酚羥基的乙烯基苄基醚化來獲得本發明二的聚乙烯基苄基醚化合物(C)。對聚乙烯基苄基醚化合物的製造方法沒有特別限制。例如，聚乙烯基苄基醚化合物可由多官能二苯醚低聚物(B)在乙烯基苄基鹵和鹼存在下的脫氫鹵化來合成。多官能二苯醚低聚物(B)可與反應溶液分離的粉末形式，或以將低聚物(B)溶於反應溶液而得的溶液形式使用。乙烯基苄基鹵包括對乙烯基苄基氯、間乙烯基苄基氯、鄰乙烯基苄基氯、對乙烯基苄基溴、間乙烯基苄基溴和鄰乙烯基苄基溴。這些可以單獨或結合使用。鹼的典型例子包括氫氧化鈉、氫氧化鉀、甲醇鈉、乙醇鈉、氫氧化鈣、碳酸鈉、碳酸鉀和碳酸氫鈉。鹼不限於這些鹼。反應溫度較佳為 -10°C 至 110°C 。當反應溫度低於 -10°C 時，加成反應緩慢。當其高於 110°C 時，容易產生副反應，例如乙烯基苄基鹵與鹼的反應。

以下將解釋本發明二的芳族乙烯類可固化樹脂組成

物。本發明二的芳族乙烯類可固化樹脂組成物係包含本發明二的聚乙烯基苄基醚化合物。可以結合使用可與上述聚乙烯基苄基醚化合物共聚的化合物。

在本發明二的芳族乙烯類可固化樹脂組成物中，可與聚乙烯基苄基醚化合物結合使用並共聚的化合物是指分子中含有雙鍵的化合物。其例子包括苯乙烯、乙烯基甲苯、二乙烯基苯、二乙烯基苄基醚、烯丙基苯酚、烯丙氧基苯、鄰苯二甲酸二烯丙酯、丙烯酸酯、甲基丙烯酸酯和乙烯基吡咯烷酮。上述可共聚化合物不限於這些化合物。這些可共聚化合物可以單獨或結合使用。

此外，本發明二的樹脂組成物可以根據預計目的和預計用途與各種樹脂結合使用。其具體例包括已知的熱固性樹脂，例如乙烯基酯樹脂、不飽和聚酯樹脂、馬來醯亞胺樹脂、氰酸酯樹脂、環氧樹脂、苯酚芳烷基樹脂和不同的乙烯基苄基化合物；和已知的熱塑性樹脂，例如聚醚醯亞胺、聚醚砜、聚乙縮醛和含二環戊二烯的樹脂。其中，乙烯基酯樹脂和環氧樹脂是較佳的。這些樹脂可以單獨或結合使用。

本發明二的芳族乙烯類可固化樹脂組成物可以進一步包含固化劑。所用固化劑的例子包括已知的自由基聚合引發劑，例如過氧化苯甲醯、過氧化甲乙酮、過氧化二枯基、過苯甲酸第三丁酯、2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧基)己烷、2,5-二甲基-2,5-雙(第三丁基過氧基)己炔-3和二第三丁基過氧化物。

此外，可以加入氫醌、苯醌或銅鹽之類的已知的聚合抑制劑以調節固化程度。

此外，可以與上述固化劑結合使用固化促進劑。固化促進劑的例子包括咪唑，例如 2-甲基咪唑、2-乙基咪唑、2-苯基咪唑和 2-乙基-4-甲基咪唑；第三胺，例如 2-(二甲基胺基甲基)苯酚、三亞乙基二胺、三乙醇胺和 1,8-二氮雜雙環(5,4,0)十一碳烯-7；有機磷，例如三苯磷、二苯磷和三丁基磷；金屬化合物，例如草酸錫、四取代的磷、四取代的硼酸酯，例如四苯基磷、硼酸四苯酯和四苯基磷、硼酸乙基三苯酯；和四苯基硼鹽，例如 2-乙基-4-甲基咪唑、硼酸四苯酯和 N-甲基嗎啉、硼酸四苯酯。

此外，本發明二的芳族乙烯類可固化樹脂組成物可以根據需要進一步含有各種增量劑(例如無機填料)、矽烷偶聯劑、穩定劑、脫模劑和顏料、各種其他的熱固性樹脂和熱塑性樹脂和增強纖維。

將上述各個組分以所需的預定比率均勻混合並在 150°C 至 250°C 進行後固化 1 至 15 小時，本發明二的芳族乙烯類可固化樹脂組成物經過充足的固化反應，由此可以獲得芳族乙烯類固化產物。

所獲得的芳族乙烯類固化產物具有耐熱性、低介電常數和低介電損耗角正切。因此，本發明的樹脂組成物可用在需要耐熱性、低介電常數和低介電損耗角正切的多種領域。具體而言，本發明的樹脂組成物可用作各種電氣和電(electrical and electric)部件用的材料，例如絕緣材

料或層壓板。

本發明人已經發現將分子中具有聚二苯醚結構和 3 至小於 9 個乙烯基苄基的聚乙烯基苄基醚化合物(C)與苯乙烯類熱塑性彈性體(D)結合，可以獲得具有高耐熱性、低介電常數和介電損耗角正切且在熱作用下僅產生微小尺寸變化的固化產物。根據上述發現，本發明人完成了本發明三。也就是說，本發明三係有關包含本發明二獲得的聚乙烯基苄基醚化合物(C)和苯乙烯類熱塑性彈性體(D)的芳族乙烯類可固化樹脂組成物。此外，本發明三係有關將上述可固化樹脂組成物加工成薄膜形式而獲得的可固化薄膜，及將上述可固化薄膜固化而獲得的薄膜或形成了導體層的薄膜。

對本發明三的芳族乙烯類可固化樹脂組成物中聚乙烯基苄基醚化合物(C)的含量沒有特別限制。然而，當上述含量太小時，不能獲得預期的低介電特性、耐熱性和固化性能。因此，可固化樹脂組成物中聚乙烯基苄基醚化合物(C)的含量較佳為 5 重量%至 95 重量%、更佳為 20 重量%至 85 重量%、進一步較佳為 30 重量%至 70 重量%。

本發明三的芳族乙烯類可固化樹脂組成物中所用的苯乙烯類熱塑性彈性體(D)係可期待能夠在不損害聚乙烯基苄基醚化合物(C)的低介電特性和耐熱性的情況下產生成膜能力。這種苯乙烯類熱塑性彈性體(D)的具體例包括苯乙烯丁二烯共聚物(SBR)、苯乙烯異戊二烯共聚物(SIR)、苯乙烯丁二烯苯乙烯共聚物(SBS)、氫化苯乙烯丁二烯苯

乙烯共聚物、苯乙烯異戊二烯苯乙烯共聚物(SIS)、氫化苯乙烯異戊二烯苯乙烯共聚物和氫化苯乙烯(丁二烯/異戊二烯)苯乙烯共聚物。這些苯乙烯類熱塑性彈性體(D)可以單獨或結合使用。其中，苯乙烯丁二烯苯乙烯共聚物(SBS)、氫化苯乙烯丁二烯苯乙烯共聚物、苯乙烯異戊二烯苯乙烯共聚物(SIS)、氫化苯乙烯異戊二烯苯乙烯共聚物和氫化苯乙烯(丁二烯/異戊二烯)苯乙烯共聚物是較佳的，因為這些共聚物與聚乙烯基苄基醚化合物(C)具有良好的相容性。

對苯乙烯類熱塑性彈性體(D)中的苯乙烯含量沒有特別限制。考慮到耐熱性與成膜能力的平衡，苯乙烯含量較佳為 10 至 70 重量%、更佳為 20 至 49 重量%。此外，苯乙烯類熱塑性彈性體(D)的重均分子量較佳為 30,000 至 300,000。當分子量低時，成膜能力趨於變低。當分子量太高時，有時難以將苯乙烯類熱塑性彈性體(D)與聚乙烯基苄基醚化合物(C)混合。

對本發明三的芳族乙烯類可固化樹脂組成物中聚乙烯基苄基醚化合物(C)與苯乙烯類熱塑性彈性體(D)的混合比沒有特別限制。然而，當苯乙烯類熱塑性彈性體(D)的量太大時，不能獲得預期的耐熱性和可固化性。當苯乙烯類熱塑性彈性體(D)的量太小時，成膜能力下降。因此，聚乙烯基苄基醚化合物(C)：苯乙烯類熱塑性高彈體(D)的重量比較佳為 20:80 至 95:5，更佳為 30:70 至 85:15，進一步較佳為 40:60 至 70:30。

儘管本發明三的芳族乙烯類可固化樹脂組成物本身在熱作用下會進行固化，但可以在該組成物中併入熱固化催化劑以提高固化速度並由此改進可加工性和經濟效率。熱固化催化劑可以選自能夠在熱或光作用下產生能夠引發乙烯基聚合的陽離子類或自由基活性物類的那些熱固化催化劑。例如，陽離子聚合引發劑包括二烯丙基碘鎗鹽、三烯丙基鎗鹽和脂族鎗鹽，它們各自使用 BF_4 、 PF_6 、 AsF_6 或 SbF_6 作為配對陰離子。可以使用市售產品，例如 Asahi Denka Kogyo K.K. 供應的 SP70、SP172 和 CP 66，Nippon Soda Co., Ltd 供應的 CI2855 和 CI2823，Sanshin Chemical Industry Co. 供應的 SI100L 和 SI150L。自由基聚合引發劑包括苯偶姻化合物，例如苯偶姻和苯偶姻甲基；苯乙酮化合物，例如苯乙酮和 2,2-二甲氧基-2-苯基苯乙酮；噻噸酮化合物，例如噻噸酮和 2,4-二乙基噻噸酮；雙疊氮基化合物，例如 4,4'-二疊氮基查耳酮、2,6-雙(4'-疊氮基亞苄基)環己酮和 4,4'-二疊氮基二苯甲酮；偶氮化合物，例如偶氮雙異丁腈、2,2-偶氮雙丙烷和脞；和有機過氧化物，例如 2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧基)己烷、2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧基)己炔-3 和過氧化二枯基。這些固化劑可以單獨或結合使用。

本發明三的芳族乙烯類可固化樹脂組成物可以根據需要含有已知的熱固性樹脂、阻燃劑、填料、聚合抑制劑、抗氧化劑、偶聯劑、染料、顏料、增稠劑、潤滑劑、消泡

劑和紫外線吸收劑以調節固化產物的物理性質和儲存壽命。

將描述本發明中可用的熱固性樹脂、阻燃劑、填料等等。

熱固性樹脂的例子包括環氧樹脂，例如雙酚 A 型環氧樹脂、雙酚 F 型環氧樹脂、線型酚醛清漆型環氧樹脂、甲酚線型酚醛清漆型環氧樹脂和二環戊二烯線型酚醛清漆型環氧樹脂；(甲基)丙烯酸酯，例如雙酚 A 型環氧(甲基)丙烯酸酯、線型酚醛清漆型環氧(甲基)丙烯酸酯、三羥甲基丙烷三(甲基)丙烯酸酯和二季戊四醇六(甲基)丙烯酸酯；乙烯基化合物，例如苯乙烯、二乙烯基苯、二乙烯基萘、二乙烯基苯-乙基乙烯基苯共聚物和 1,2-雙(乙烯基苯基)乙烷；氰酸酯樹脂，例如雙酚 A 二氰酸酯、四甲基雙酚 F 二氰酸酯、雙酚 M 二氰酸酯和線型酚醛清漆氰酸酯；氧雜環丁烷樹脂、苯並環丁烯樹脂、苯並噁嗪樹脂和馬來醯亞胺樹脂。這些熱固性樹脂可以單獨或結合使用。

阻燃劑可以選自己知的阻燃劑。其例子包括鹵素阻燃劑，例如溴化環氧樹脂、溴化聚碳酸酯、溴化聚苯乙烯、溴化苯乙烯、溴化鄰苯二甲醯亞胺、四溴雙酚 A、五溴苄基(甲基)丙烯酸酯、五溴甲苯、三溴苯酚、六溴苯、十溴二苯基醚、氯化聚苯乙烯和氯化石蠟；磷阻燃劑，例如紅磷、磷酸三甲苯酯、磷酸三苯酯、磷酸甲苯基二苯酯、磷酸三苄酯(trixyl phosphate)、磷酸三烷基酯、磷酸二烷基酯、磷酸三(氯乙基)酯和磷腈；和無機阻燃劑，例如氫氧化鋁、氫氧化鎂、硼酸鋅和三氧化銻。這些阻燃劑可以

單獨或結合使用。

填料的例子包括纖維填料，例如玻璃纖維、碳纖維、芳族聚醯胺纖維、碳化矽纖維、氧化鋁纖維和硼纖維；無機須晶，例如碳化矽、氮化矽、氧化鎂、鈦酸鉀和硼鋁酸鹽；無機針狀填料，例如矽灰石、斜錳矽石、磷酸鹽纖維和海泡石；無機球形填料，例如粉狀矽石、熔凝矽石、滑石、氧化鋁、鈦酸鋇、雲母和玻璃珠；和有機填料，例如可通過(甲基)丙烯酸酯、苯乙烯等的交聯獲得的粒狀聚合物。這些填料可以單獨或結合使用。

聚合抑制劑可以選自己知的聚合抑制劑。其例子包括奎寧，例如氫醌、甲基氫醌、第三丁基氫醌、對苯醌、氯醌和三甲基醌、和芳族二醇。這些聚合抑制劑可以單獨或結合使用。

抗氧化劑可以選自己知的抗氧化劑。其例子包括苯酚抗氧化劑，例如 2,6-二第三丁基-4-甲基苯酚、2,2'-亞甲基雙(6-第三丁基-4-甲基苯酚)、N,N'-己烷-1,6-二基雙[3-(3,5-二第三丁基-4-羥基苯基)丙醯胺]和 2,6-二第三丁基-4-(4,6-雙(辛基硫基)-1,3,5-三嗪-2-基胺基苯酚；胺抗氧化劑和硫抗氧化劑。這些抗氧化劑可以單獨或結合使用。

偶聯劑的例子包括矽烷偶聯劑，例如乙烯基三氯矽烷、乙烯基三乙氧基矽烷、乙烯基三甲氧基矽烷、 γ -甲基丙稀醯氧基丙基三甲氧基矽烷、 β (3,4-乙氧基環己基)乙基三甲氧基矽烷、 γ -環氧丙氧基(縮水甘油醚氧)丙基甲基

二乙氧基矽烷、N- β (胺基乙基) γ -胺基丙基甲基甲氧基矽烷、 γ -胺基丙基三乙氧基矽烷、N-苯基- γ -胺基丙基三甲氧基矽烷、 γ -巰基丙基三甲氧基矽烷和 γ -氯丙基三甲氧基矽烷、鈦酸鹽偶聯劑、鋁偶聯劑、鋇鋁酸鹽偶聯劑、矽氧烷偶聯劑和氟偶聯劑。這些偶聯劑可以單獨或結合使用。

接著解釋本發明三的可固化薄膜。本發明三的可固化薄膜可由本發明三的芳族乙烯類可固化樹脂組成物加工成薄膜形式來獲得。將芳族乙烯類可固化樹脂組成物加工成薄膜形式的方法是，例如，將可固化樹脂組成物溶於溶劑以製備可固化清漆，將可固化清漆塗敷到膜狀或板狀基材上，然後乾燥去除溶劑。對基材沒有特別限制。膜狀基材的例子包括聚乙烯膜、聚丙烯膜、聚碳酸酯膜、聚酯膜、聚醯亞胺膜、乙烯四氟乙烯共聚物薄膜、通過脫模處理這些薄膜表面而獲得的薄膜、和導體箔，例如銅箔。板狀基材的例子包括玻璃板、不銹鋼板和鋁板。當使用導體箔作為基材時，可以獲得形成了導體層的可固化薄膜。由此獲得的可固化薄膜可以用作，例如，用於製造印刷線路板的裝配用可固化薄膜或帶有樹脂的銅箔。

所用溶劑的例子包括丙酮、甲乙酮、乙二醇單甲醚乙酸酯、丙二醇二甲醚、甲苯、二甲苯、四氫呋喃和N,N-二甲基甲醯胺。溶劑不限於這些溶劑。此外，這些溶劑可以單獨或結合使用。考慮到可溶性，甲乙酮、甲基異丁基酮、甲苯或二甲苯是較佳的。

用於乾燥溶劑的乾燥條件沒有特別限制。當使用低溫時，溶劑容易留在可固化薄膜中。當使用高溫時，聚乙烯基苄基醚化合物(C)的固化提前。因此，乾燥較佳在 40℃ 至 150℃ 進行 1 至 90 分鐘。可以根據可固化清漆的濃度和清漆塗敷厚度來調節可固化薄膜的厚度。當清漆塗敷厚度太厚時，溶劑在乾燥時間內容易殘留。因此，可固化薄膜的厚度較佳為 0.1 至 500 微米。

在熱作用下將本發明的可固化薄膜固化來獲得本發明三的固化薄膜。固化條件係根據是否使用固化催化劑和是否結合使用不同的熱固性樹脂而改變，同時固化較佳在 150 至 250℃ 進行 0.1 至 5 小時。此外，固化可以根據需要在真空中、在惰性氣體及/或壓力下進行。

本發明三之形成導體層的薄膜，例如可以由下述方法獲得將上述形成了導體層的可固化薄膜固化，或由加熱將可固化薄膜固化並使用無電鍍敷、濺射或導電糊在所得薄膜表面上形成導體層。由此獲得之形成導體層的薄膜可以由例如由導體層形成電路來用作印刷線路板。

(實施例)

下面參照實施例和比較例更具體地解釋本發明，而本發明不限於這些實施例。在實施例和比較例中，「份數」是指「重量份」。此外，根據下列方法進行測量。

(1) 分子量

由凝膠滲透色譜法(GPC)獲得數均分子量(M_n)和重均分子量(M_w)。根據樣品的 GPC 曲線和分子量校準曲線進行資

料加工。用下式進行標準聚苯乙烯的分子量與溶解時間之間關係的逐次逼近，獲得分子量校準曲線，

$$\text{Log}M = A_0X^3 + A_1X^2 + A_2X + A_3 + A_4/X^2$$

其中 M：分子量，X：洗提時間-19(分鐘)，A：係數

(2) 羥基當量

在固體樣品(Sg)中添加具有 1:9 的乙酸酐:吡啶體積比的溶液，並通過在 95°C 加熱 1 小時來使羥基乙醯化。冷卻後，將所得混合物用具有 1:2:2 的甲苯:純淨水:甲乙酮體積比的溶液稀釋。添加酚酞作為指示劑。將過量乙酸用 0.25N 氫氧化鈉水溶液(AmL)滴定。在沒有固體樣品的情況下進行空白實驗(BmL)。根據下列公式計算固體的羥基當量。

$$\text{羥基當量} = S \times 1000 / (B - A) / 0.25 / f$$

其中 f：0.25N 氫氧化鈉水溶液的滴定度。

(3) 環氧基當量

將 1 毫升甲酚紅指示劑溶於 100 毫升無水乙醇並將混合物用 0.1N 氫氧化鈉水溶液中和，以獲得中和溶液(製備溶液)。在固體樣品(Sg)中添加 0.2N 鹽酸二噁烷溶液並使所得混合物在室溫靜置 15 分鐘。在其中添加製備溶液。將過量鹽酸用 0.1N 氫氧化鈉水溶液(AmL)滴定。在沒有固體樣品的情況下進行空白實驗(BmL)。根據下列公式計算固體的環氧基當量。

$$\text{環氧基當量} = S \times 1000 / (B - A) / 0.1 / f$$

其中 f：0.1N 氫氧化鈉水溶液的滴定度。

(4)斷裂強度

使用籠型彎曲試驗工具用自動繪圖儀進行測量。樣品尺寸為 10 毫米×40 毫米×大約 1 毫米。在三點彎曲試驗條件下進行測量，跨距 20 毫米且衝程為 1 毫米/分鐘。

(5)膠凝時間

用膠凝測試機測量在 160℃ 的條件下膠凝所需的時間。使用通過將環氧樹脂和固化劑溶於甲乙酮而獲得的樹脂含量為 50 重量%的清漆作為測量樣品。

(6)玻璃化轉變溫度

玻璃化轉變溫度獲自動態黏彈性測量中損耗模量的峰頂(E'')。樣品尺寸為 10 毫米×55 毫米×大約 1 毫米。在雙支承束彎曲條件、20 毫米的卡盤間距、10Hz 的頻率、10 微米的振幅和 5℃/分鐘的升溫速率下進行測量。

(7)介電常數和介電損耗角正切

固化產物：通過空腔諧振器微擾法，測量尺寸為 100 毫米×1.5 毫米×大約 1 毫米的樣品的介電常數和介電損耗角正切。

固化薄膜：將尺寸為 100 毫米×40 毫米的薄膜圓柱形卷起以製備測量樣品。通過空腔諧振器微擾法，測量樣品的介電常數和介電損耗角正切。

(8)可固化薄膜的外觀

目測可固化薄膜(尺寸：80 毫米×200 毫米)的外觀並確定是否存在混濁、裂紋或裂痕(○：透明，無裂紋，無裂痕，×：混濁、出現裂紋或裂痕)。

(9)玻璃化轉變溫度

使用尺寸為 3 毫米×30 毫米的薄膜作為測量樣品。通過 TMA(TMA120C: Seiko Instruments Inc. 供應)拉伸法以 5 克的載荷、10 毫米的卡盤間距和 10°C/分鐘的升溫速率測量樣品的玻璃化轉變溫度。

(10)尺寸變化率

根據上述 TMA 測量中獲得的資料，在 50°C 的基礎上計算 250°C 的尺寸變化率。

(實施例 1)多官能二苯醚低聚物(a)的合成

將 1.54 克(6.88 毫莫耳)CuBr₂、0.506 克(2.94 毫莫耳)二第三丁基乙二胺、15.4 克(152 毫莫耳)丁基二甲胺、0.7 克(1.73 毫莫耳)三辛基甲基氯化銨和 2,600 克甲苯裝入配有攪拌器、溫度計、空氣引入管和擋板的 12 升縱長反應器中。在 41°C 的反應溫度攪拌該混合物。單獨地，將 120 克(0.344 莫耳)4,4'-[(4-羥基苯基)亞甲基]雙(2,6-二甲基苯酚)、210 克(1.72 莫耳)2,6-二甲基苯酚、1.26 克(5.65 毫莫耳)CuBr₂、0.414 克(2.40 毫莫耳)二第三丁基乙二胺和 12.6 克(125 毫莫耳)丁基二甲胺預先溶於 1,730 克甲醇，以製備混合溶液(三元酚：一元酚莫耳比，1: 5)。將混合溶液加熱至 50°C，並在以 1020rpm 攪拌的同時經過 230 分鐘逐滴添加到反應器中的混合物中，同時用 2.1 升/分鐘空氣和 3.2 升/分鐘氮氣的混合氣體(氧濃度 8.0%)進行鼓泡。添加完成之後，終止氣體鼓泡。在混合物中添加 17.0 克(37.5 毫莫耳)乙二胺四乙酸

四鈉在 1,350 克純淨水中的水溶液，並將所得混合物以 600rpm 攪拌 30 分鐘，從而終止反應。然後，將反應混合物用純淨水洗滌一次以獲得溶液。用蒸發器將由此獲得的溶液濃縮以獲得 650 克固含量為 52 重量%的甲苯溶液。通過凝膠滲透色譜法(GPC)測量甲苯溶液。結果，其數均分子量(Mn)為 1,098，其重均分子量(Mw)為 1,751。根據 NMR 和 FDMS 分析，證實生成了多官能二苯醚低聚物(a)。其羥基當量為 308 克/當量。

(實施例 2)多官能二苯醚低聚物(b)的合成

將 1.62 克(7.22 毫莫耳)CuBr₂、0.531 克(3.09 毫莫耳)二第三丁基乙二胺、16.2 克(160 毫莫耳)丁基二甲胺、0.7 克(1.73 毫莫耳)三辛基甲基氯化銨和 2,730 克甲苯裝入配有攪拌器、溫度計、空氣引入管和擋板的 12 升縱長反應器中。在 41°C 的反應溫度攪拌該混合物。單獨地，將 126 克(0.361 莫耳)4,4'-[(4-羥基苯基)亞甲基]雙(2,6-二甲基苯酚)、164 克(1.34 莫耳)2,6-二甲基苯酚、63.6 克(0.47 莫耳)2,3,6-三甲基苯酚、1.32 克(5.93 毫莫耳)CuBr₂、0.435 克(2.52 毫莫耳)二第三丁基乙二胺和 13.2 克(131 毫莫耳)丁基二甲胺預先溶於 1,820 克甲醇，以製備混合溶液(三元酚：一元酚莫耳比，1:5)。將混合溶液加熱至 50°C，並在以 1020rpm 攪拌的同時經過 240 分鐘逐滴添加到反應器中的混合物中，同時用 2.1 升/分鐘空氣和 3.2 升/分鐘氮氣的混合氣體(氧濃度 8.0%)進行鼓泡。添加完成之後，終止氣體鼓泡。在混合物中添加

17.9 克(39.4 毫莫耳)乙二胺四乙酸四鈉在 1,420 克純淨水中的水溶液，並將所得混合物以 600rpm 攪拌 30 分鐘，從而終止反應。然後，將反應混合物用純淨水洗滌一次以獲得溶液。用蒸發器將由此獲得的溶液濃縮以獲得 707 克固含量為 50 重量%的多官能二苯醚低聚物(b)的甲苯溶液。通過凝膠滲透色譜法(GPC)測量多官能苯基低聚物(b)。結果，其數均分子量(M_n)為 989，其重均分子量(M_w)為 1,630。根據 NMR 和 FDMS 分析，證實生成了多官能二苯醚低聚物(b)。該固體具有 310 克/當量的羥基當量。

(實施例 3)多官能二苯醚低聚物(c)的合成

將 1.54 克(6.88 毫莫耳) CuBr_2 、0.506 克(2.94 毫莫耳)二第三丁基乙二胺、15.4 克(152 毫莫耳)丁基二甲胺、0.7 克(1.73 毫莫耳)三辛基甲基氯化銨和 2,600 克甲苯裝入配有攪拌器、溫度計、空氣引入管和擋板的 12 升縱長反應器中。在 41°C 的反應溫度攪拌該混合物。單獨地，將 120 克(0.344 莫耳)4,4'-[(3-羥基苯基)亞甲基]雙(2,6-二甲基苯酚)、210 克(1.72 莫耳)2,6-二甲基苯酚、1.26 克(5.65 毫莫耳) CuBr_2 、0.414 克(2.40 毫莫耳)二第三丁基乙二胺和 12.6 克(125 毫莫耳)丁基二甲胺預先溶於 1,730 克甲醇，以製備混合溶液(三元酚：一元酚莫耳比，1:5)。將混合溶液加熱至 50°C，並在以 1020rpm 攪拌的同時經過 220 分鐘逐滴添加到反應器中的混合物中，同時用 2.1 升/分鐘空氣和 3.2 升/分鐘氮氣的混合氣體(氧濃度 8.0%)進行鼓泡。添加完成之後，終止氣體鼓

泡。在混合物中添加 17.0 克(37.5 毫莫耳)乙二胺四乙酸四鈉在 1,350 克純淨水中的水溶液，並將所得混合物以 600rpm 攪拌 30 分鐘，從而終止反應。然後，將反應混合物用純淨水洗滌一次以獲得溶液。用蒸發器將由此獲得的溶液濃縮以獲得 520 克固含量為 60 重量%的甲苯溶液。通過凝膠滲透色譜法(GPC)測量甲苯溶液。結果，其數均分子量(M_n)為 1,054，其重均分子量(M_w)為 1,649。根據 NMR 和 FDMS 分析，證實生成了多官能二苯醚低聚物(c)。其羥基當量為 323 克/當量。

(實施例 4)多官能二苯醚低聚物(d)的合成

將 1.42 克(6.37 毫莫耳) CuBr_2 、0.462 克(2.68 毫莫耳)二第三丁基乙二胺、14.2 克(141 毫莫耳)丁基二甲胺、0.7 克(1.73 毫莫耳)三辛基甲基氯化銨和 2,600 克甲苯裝入配有攪拌器、溫度計、空氣引入管和擋板的 12 升縱長反應器中。在 41°C 的反應溫度攪拌該混合物。單獨地，將 120 克(0.319 莫耳)4,4'-[(4-羥基苯基)亞甲基]雙(2,3,6-三甲基苯酚)、194 克(1.59 莫耳)2,6-二甲基苯酚、1.16 克(5.23 毫莫耳) CuBr_2 、0.378 克(2.19 毫莫耳)二第三丁基乙二胺和 11.6 克(115 毫莫耳)丁基二甲胺預先溶於 1,650 克甲醇，以製備混合溶液(三元酚：一元酚莫耳比，1:5)。將混合溶液加熱至 50°C，並在以 1020rpm 攪拌的同時經過 230 分鐘逐滴添加到反應器中的混合物中，同時用 2.1 升/分鐘空氣和 3.2 升/分鐘氮氣的混合氣體(氧濃度 8.0%)進行鼓泡。添加完成之後，終止氣體鼓

泡。在混合物中添加 15.7 克(34.7 毫莫耳)乙二胺四乙酸四鈉在 1,330 克純淨水中的水溶液，並將所得混合物以 600rpm 攪拌 30 分鐘，從而終止反應。然後，將反應混合物用純淨水洗滌一次以獲得溶液。用蒸發器將由此獲得的溶液濃縮以獲得 500 克固含量為 62 重量%的甲苯溶液。通過凝膠滲透色譜法(GPC)測量甲苯溶液。結果，其數均分子量(M_n)為 1,143，其重均分子量(M_w)為 1,621。根據 NMR 和 FDMS 分析，證實生成了多官能二苯醚低聚物(d)。其羥基當量為 336 克/當量。

(實施例 5)多官能二苯醚低聚物(e)的合成

將 1.42 克(6.37 毫莫耳) CuBr_2 、0.462 克(2.68 毫莫耳)二第三丁基乙二胺、14.2 克(141 毫莫耳)丁基二甲胺、0.7 克(1.73 毫莫耳)三辛基甲基氯化銨和 2,600 克甲苯裝入配有攪拌器、溫度計、空氣引入管和擋板的 12 升縱長反應器中。在 41°C 的反應溫度攪拌該混合物。單獨地，將 120 克(0.319 莫耳)4,4'-[(3-羥基苯基)亞甲基]雙(2,3,6-三甲基苯酚)、194 克(1.59 莫耳)2,6-二甲基苯酚、1.16 克(5.23 毫莫耳) CuBr_2 、0.378 克(2.19 毫莫耳)二第三丁基乙二胺和 11.6 克(115 毫莫耳)丁基二甲胺預先溶於 1,650 克甲醇，以製備混合溶液(三元酚：一元酚莫耳比，1:5)。將混合溶液加熱至 50°C，並在以 1020rpm 攪拌的同時經過 240 分鐘逐滴添加到反應器中的混合物中，同時用 2.1 升/分鐘空氣和 3.2 升/分鐘氮氣的混合氣體(氧濃度 8.0%)進行鼓泡。添加完成之後，終止氣體鼓

泡。在混合物中添加 15.7 克 (34.7 毫莫耳) 乙二胺四乙酸四鈉在 1,330 克純淨水中的水溶液，並將所得混合物以 600rpm 攪拌 30 分鐘，從而終止反應。然後，將反應混合物用純淨水洗滌一次以獲得溶液。用蒸發器將由此獲得的溶液濃縮以獲得 500 克固體樹脂含量為 62 重量%的甲苯溶液。通過凝膠滲透色譜法 (GPC) 測量甲苯溶液。結果，其數均分子量 (M_n) 為 1,065，其重均分子量 (M_w) 為 1,517。根據 NMR 和 FDMS 分析，證實生成了多官能二苯醚低聚物 (e)。其羥基當量為 325 克/當量。

(實施例 6) 多官能二苯醚低聚物 (f) 的合成

將 2.26 克 (10.1 毫莫耳) CuBr_2 、0.737 克 (4.28 毫莫耳) 二第三丁基乙二胺、22.7 克 (224 毫莫耳) 丁基二甲胺、0.7 克 (1.73 毫莫耳) 三辛基甲基氯化銨、1,441 克甲苯和 1,241 克甲醇裝入配有攪拌器、溫度計、空氣引入管和擋板的 12 升縱長反應器中。在 41°C 的反應溫度攪拌該混合物。單獨地，將 149 克 (0.253 莫耳) 4,4',4'',4'''-(1,4-亞苯基二亞甲基)四(2,6-二甲基苯酚)、309 克 (2.53 莫耳) 2,6-二甲基苯酚、1.85 克 (8.28 毫莫耳) CuBr_2 、0.603 克 (3.50 毫莫耳) 二第三丁基乙二胺和 18.5 克 (183 毫莫耳) 丁基二甲胺預先溶於 1,244 克甲苯和 1,071 克甲醇，以製備混合溶液 (四元酚：一元酚莫耳比，1:10)。將混合溶液加熱至 50°C，並在以 1020rpm 攪拌的同時經過 220 分鐘逐滴添加到反應器中的混合物中，同時用 2.1 升/分鐘空氣和 3.2 升/分鐘氮氣的混合氣體 (氧濃度 8.0%) 進行鼓

泡。添加完成之後，終止氣體鼓泡。在混合物中添加 25.0 克(55.2 毫莫耳)乙二胺四乙酸四鈉在 1,561 克純淨水中的水溶液，並將所得混合物以 600rpm 攪拌 30 分鐘，從而終止反應。然後，將反應混合物用純淨水洗滌一次以獲得溶液。用蒸發器將由此獲得的溶液濃縮以獲得 767 克固含量為 60 重量%的甲苯溶液。通過凝膠滲透色譜法(GPC)測量甲苯溶液。結果，其數均分子量(M_n)為 2,127，其重均分子量(M_w)為 3,092。根據 NMR 和 FDMS 分析，證實生成了多官能二苯醚低聚物(f)。其羥基當量為 561 克/當量。(比較例 1)雙官能二苯醚低聚物(g)的合成

將 2.22 克(9.94 毫莫耳) CuBr_2 、2.57 克(14.9 毫莫耳)二第三丁基乙二胺、27.4 克(271 毫莫耳)丁基二甲胺、2,248 克甲苯和 1,124 克甲醇裝入配有攪拌器、溫度計、空氣引入管和擋板的 12 升縱長反應器中。在 41°C 的反應溫度攪拌該混合物。單獨地，將 56.1 克(0.207 莫耳)2,2',3,3',5,5'-六甲基-4,4'-聯苯酚、380 克(3.11 莫耳)2,6-二甲基苯酚、1.75 克(7.84 毫莫耳) CuBr_2 、2.03 克(11.8 毫莫耳)二第三丁基乙二胺和 21.6 克(213 毫莫耳)丁基二甲胺預先溶於 1,234 克甲苯和 617 克甲醇，以製備混合溶液(二元酚:一元酚莫耳比，1:10)。將混合溶液加熱至 50°C，並在以 1020rpm 攪拌的同時經過 240 分鐘逐滴添加到反應器中的混合物中，同時用 2.1 升/分鐘空氣和 3.2 升/分鐘氮氣的混合氣體(氧濃度 8.0%)進行鼓泡。添加完成之後，終止氣體鼓泡。在混合物中添加 23.7 克

(52.3 毫莫耳)乙二胺四乙酸四鈉在 1,500 克純淨水中的水溶液，並將所得混合物以 600rpm 攪拌 30 分鐘，從而終止反應。然後，將反應混合物用純淨水洗滌一次以獲得溶液。用蒸發器將由此獲得的溶液濃縮以獲得 650 克固含量為 65 重量%的甲苯溶液。通過凝膠滲透色譜法(GPC)測量甲苯溶液。結果，其數均分子量(Mn)為 2,150，其重均分子量(Mw)為 3,805。根據 NMR 和 FDMS 分析，證實生成了雙官能二苯醚低聚物(g)。其羥基當量為 1,050 克/當量。

(實施例 7)聚乙炔基苄基醚化合物(h)的合成

將 183 克(羥基 0.258 莫耳)實施例 1 中獲得的多官能二苯醚低聚物(a)的甲苯溶液和 53.5 克(0.351 莫耳)氯甲基苯乙烯添加到配有磁攪拌器、Dimroth 冷凝器和溫度計的 2 升圓形反應器中。在反應器中加入 400 克二甲基甲醯胺(下文稱作 DMF)。用氮置換反應器內的氣體。然後，在 50℃ 的反應溫度攪拌該混合物。將 66.7 克(0.351 莫耳)28.4 重量%甲醇鈉的甲醇溶液裝入滴液漏斗，並將其經過 40 分鐘加入反應器。將混合物在 50℃ 攪拌 1.25 小時。進一步逐滴添加 5.2 克(0.027 莫耳)額外的 28.4 重量%甲醇鈉的甲醇溶液。逐滴添加完成之後，使混合物在攪拌的同時在 60℃ 反應 240 分鐘。逐滴添加 3.1 克(0.027 莫耳)85 重量%磷酸水溶液，並將混合物攪拌 10 分鐘。證實 pH 值為 7。通過抽吸過濾去除生成的鹽。然後，將反應溶液經過 5 分鐘逐滴添加到 2,150 克甲醇和 545 克水的混合溶液中，以獲得固體。通過抽吸過濾回收固體，然後使用攪拌器用甲

醇：水 = 1:1 的 400 克混合溶液洗滌 15 分鐘四次。然後，用真空乾燥器在 60°C 將固體乾燥 30 小時以獲得 102 克固體物質。由於由固體物質的 IR 分析所證實的酚羥基吸收峰 (3600 cm⁻¹) 的消失和由其 NMR 分析所證實的源自乙烯基苄基醚的峰 (4.6-5.8 ppm) 的出現，確定官能團轉化。由此獲得聚乙烯基苄基醚化合物 (h)。通過凝膠滲透色譜法 (GPC) 測量聚乙烯基苄基醚化合物 (h)。結果，其數均分子量 (M_n) 為 1,279，其重均分子量 (M_w) 為 1,758。

(實施例 8) 聚乙烯基苄基醚化合物 (i) 的合成

將 160 克 (羥基 0.260 莫耳) 實施例 2 中獲得的多官能二苄基醚低聚物 (b) 的甲苯溶液和 53.3 克 (0.350 莫耳) 氯甲基苯乙烯添加到配有磁攪拌器、Dimroth 冷凝器和溫度計的 2 升圓形反應器中。在反應器中加入 400 克 DMF。用氮置換反應器內的氣體。然後，在 50°C 的反應溫度攪拌該混合物。將 66.6 克 (0.350 莫耳) 28.4 重量% 甲醇鈉的甲醇溶液裝入滴液漏斗，並將其經過 40 分鐘加入反應器。將混合物在 50°C 攪拌 1.25 小時。進一步逐滴添加 5.2 克 (0.027 莫耳) 額外的 28.4 重量% 甲醇鈉的甲醇溶液。逐滴添加完成之後，使混合物在攪拌的同時在 60°C 反應 240 分鐘。逐滴添加 3.1 克 (0.027 莫耳) 85 重量% 磷酸水溶液，並將混合物攪拌 10 分鐘。證實 pH 值為 7。通過抽吸過濾去除生成的鹽。然後，將反應溶液經過 5 分鐘逐滴添加到 2,200 克甲醇和 550 克水的混合溶液中，以獲得固體。通過抽吸過濾回收固體，然後使用攪拌器用甲醇：水 = 1:1 的 400

克混合溶液洗滌 15 分鐘四次。然後，用真空乾燥器在 60 °C 將固體乾燥 30 小時以獲得 105 克固體物質。由於由固體物質的 IR 分析所證實的酚羥基吸收峰(3600cm⁻¹)的消失和由其 NMR 分析所證實的源自乙烯基苄基醚的峰(4.6-5.8ppm)的出現，確定官能團轉化。由此獲得聚乙烯基苄基醚化合物(i)。通過凝膠滲透色譜法(GPC)測量聚乙烯基苄基醚化合物(i)。結果，其數均分子量(Mn)為 1,251，其重均分子量(Mw)為 1,740。

(實施例 9)聚乙烯基苄基醚化合物(j)的合成

將 113 克(羥基 0.171 莫耳)實施例 3 中獲得的多官能二苄基醚低聚物(c)的甲苯溶液和 43.8 克(0.287 莫耳)氯甲基苯乙烯添加到配有磁攪拌器、Dimroth 冷凝器和溫度計的 2 升圓形反應器中。在反應器中加入 320 克 DMF。用氮置換反應器內的氣體。然後，在 50°C 的反應溫度攪拌該混合物。將 54.6 克(0.287 莫耳)28.4 重量%甲醇鈉的甲醇溶液裝入滴液漏斗，並將其經過 40 分鐘加入反應器。將混合物在 50°C 攪拌 1.25 小時。進一步逐滴添加 3.4 克(0.018 莫耳)額外的 28.4 重量%甲醇鈉的甲醇溶液。逐滴添加完成之後，使混合物在攪拌的同時在 60°C 反應 240 分鐘。逐滴添加 2.07 克(0.018 莫耳)85 重量%磷酸水溶液，並將混合物攪拌 10 分鐘。證實 pH 值為 7。通過抽吸過濾去除生成的鹽。然後，將反應溶液經過 5 分鐘逐滴添加到 2,144 克甲醇和 513 克水的混合溶液中，以獲得固體。通過抽吸過濾回收固體，然後使用攪拌器用甲醇：水=1:1 的 350

克混合溶液洗滌 15 分鐘四次。然後，用真空乾燥器在 60 °C 將固體乾燥 30 小時以獲得 74.6 克固體物質。由於由固體物質的 IR 分析所證實的酚羥基吸收峰(3600cm⁻¹)的消失和由其 NMR 分析所證實的源自乙烯基苄基醚的峰(4.6-5.8ppm)的出現，確定官能團轉化。由此獲得聚乙烯基苄基醚化合物(j)。通過凝膠滲透色譜法(GPC)測量聚乙烯基苄基醚化合物(j)。結果，其數均分子量(M_n)為 1,243，其重均分子量(M_w)為 1,720。

(實施例 10)聚乙烯基苄基醚化合物(k)的合成

將 148 克(羥基 0.250 莫耳)實施例 4 中獲得的多官能二苯醚低聚物(d)的甲苯溶液和 59.5 克(0.390 莫耳)氯甲基苯乙烯添加到配有磁攪拌器、Dimroth 冷凝器和溫度計的 2 升圓形反應器中。在反應器中加入 320 克 DMF。用氮置換反應器內的氣體。然後，在 50°C 的反應溫度攪拌該混合物。將 74.1 克(0.390 莫耳)28.4 重量%甲醇鈉的甲醇溶液裝入滴液漏斗，並將其經過 40 分鐘加入反應器。將混合物在 50°C 攪拌 1.25 小時。進一步逐滴添加 4.9 克(0.026 莫耳)額外的 28.4 重量%甲醇鈉的甲醇溶液。逐滴添加完成之後，使混合物在攪拌的同時在 60°C 反應 240 分鐘。逐滴添加 3.0 克(0.026 莫耳)85 重量%磷酸水溶液，並將混合物攪拌 10 分鐘。證實 pH 值為 7。通過抽吸過濾去除生成的鹽。然後，將反應溶液經過 5 分鐘逐滴添加到 2,220 克甲醇和 525 克水的混合溶液中，以獲得固體。通過抽吸過濾回收固體，然後使用攪拌器用甲醇：水=1:1 的 350

克混合溶液洗滌 15 分鐘四次。然後，用真空乾燥器在 60 °C 將固體乾燥 30 小時以獲得 97.1 克固體物質。由於由固體物質的 IR 分析所證實的酚羥基吸收峰(3600cm⁻¹)的消失和由其 NMR 分析所證實的源自乙烯基苄基醚的峰(4.6-5.8ppm)的出現，確定官能團轉化。由此獲得聚乙烯基苄基醚化合物(k)。通過凝膠滲透色譜法(GPC)測量聚乙烯基苄基醚化合物(k)。結果，其數均分子量(Mn)為 1,323，其重均分子量(Mw)為 1,718。

(實施例 11)聚乙烯基苄基醚化合物(1)的合成

將 135 克(羥基 0.249 莫耳)實施例 5 中獲得的多官能二苄基醚低聚物(e)的甲苯溶液和 63.4 克(0.415 莫耳)氯甲基 CH_2Cl 苯乙烯添加到配有磁攪拌器、Dimroth 冷凝器和溫度計的 2 升圓形反應器中。在反應器中加入 320 克 DMF。用氮置換反應器內的氣體。然後，在 50°C 的反應溫度攪拌該混合物。將 79.0 克(0.415 莫耳)28.4 重量%甲醇鈉的甲醇溶液裝入滴液漏斗，並將其經過 40 分鐘加入反應器。將混合物在 50°C 攪拌 1.25 小時。進一步逐滴添加 4.94 克(0.026 莫耳)額外的 28.4 重量%甲醇鈉的甲醇溶液。逐滴添加完成之後，使混合物在攪拌的同時在 60°C 反應 240 分鐘。逐滴添加 3.0 克(0.026 莫耳)85 重量%磷酸水溶液，並將混合物攪拌 10 分鐘。證實 pH 值為 7。通過抽吸過濾去除生成的鹽。然後，將反應溶液經過 5 分鐘逐滴添加到 2,275 克甲醇和 545 克水的混合溶液中，以獲得固體。通過抽吸過濾回收固體，然後使用攪拌器用甲醇：水=1:1

的 360 克混合溶液洗滌 15 分鐘四次。然後，用真空乾燥器在 60°C 將固體乾燥 30 小時以獲得 98.6 克固體物質。由於由固體物質的 IR 分析所證實的酚羥基吸收峰 (3600cm⁻¹) 的消失和由其 NMR 分析所證實的源自乙烯基苄基醚的峰 (4.6-5.8ppm) 的出現，確定官能團轉化。由此獲得聚乙烯基苄基醚化合物 (1)。通過凝膠滲透色譜法 (GPC) 測量聚乙烯基苄基醚化合物 (1)。結果，其數均分子量 (Mn) 為 1,258，其重均分子量 (Mw) 為 1,632。

(實施例 12) 聚乙烯基苄基醚化合物 (m) 的合成

將 100 克 (羥基 0.107 莫耳) 實施例 6 中獲得的多官能二苯醚低聚物 (f) 的甲苯溶液和 22.1 克 (0.145 莫耳) 氯甲基苯乙烯添加到配有磁攪拌器、Dimroth 冷凝器和溫度計的 1 升圓形反應器中。在反應器中加入 200 克 DMF。用氮置換反應器內的氣體。然後，在 50°C 的反應溫度攪拌該混合物。將 27.6 克 (0.145 莫耳) 28.4 重量% 甲醇鈉的甲醇溶液裝入滴液漏斗，並將其經過 40 分鐘加入反應器。將混合物在 50°C 攪拌 1.25 小時。進一步逐滴添加 2.1 克 (0.011 莫耳) 額外的 28.4 重量% 甲醇鈉的甲醇溶液。逐滴添加完成之後，使混合物在攪拌的同時在 60°C 反應 240 分鐘。逐滴添加 1.3 克 (0.011 莫耳) 85 重量% 磷酸水溶液，並將混合物攪拌 10 分鐘。證實 pH 值為 7。通過抽吸過濾去除生成的鹽。然後，將反應溶液經過 5 分鐘逐滴添加到 1,061 克甲醇和 250 克水的混合溶液中，以獲得固體。通過抽吸過濾回收固體，然後使用攪拌器用甲醇：水 = 1:1 的 200

克混合溶液洗滌 15 分鐘四次。然後，用真空乾燥器在 60 °C 將固體乾燥 30 小時以獲得 57.9 克固體物質。由於由固體物質的 IR 分析所證實的酚羥基吸收峰(3600cm⁻¹)的消失和由其 NMR 分析所證實的源自乙烯基苄基醚的峰(4.6-5.8ppm)的出現，確定官能團轉化。由此獲得聚乙烯基苄基醚化合物(m)。通過凝膠滲透色譜法(GPC)測量聚乙烯基苄基醚化合物(m)。結果，其數均分子量(Mn)為 2,180，其重均分子量(Mw)為 3,021。

(比較例 2)雙官能乙烯基苄基醚化合物(n)的合成

將 100 克(羥基 0.114 莫耳)比較例 1 中獲得的雙官能二苄基醚低聚物(g)的甲苯溶液和 21.8 克(0.143 莫耳)氯甲基苯乙烯添加到配有磁攪拌器、Dimroth 冷凝器和溫度計的 2 升圓形反應器中。在反應器中加入 400 克 DMF。用氮置換反應器內的氣體。然後，在 50°C 的反應溫度攪拌該混合物。將 27.3 克(0.143 莫耳)28.2 重量%甲醇鈉的甲醇溶液裝入滴液漏斗，並將其經過 40 分鐘加入反應器。將混合物在 50°C 攪拌 1.25 小時。進一步逐滴添加 6.8 克(0.036 莫耳)額外的 28.2 重量%甲醇鈉的甲醇溶液。逐滴添加完成之後，使混合物在攪拌的同時在 60°C 反應 240 分鐘。逐滴添加 3.9 克(0.034 莫耳)85 重量%磷酸水溶液，並將混合物攪拌 10 分鐘。證實 pH 值為 7。經由抽吸過濾去除生成的鹽。然後，將反應溶液經過 5 分鐘逐滴添加到 2,400 克甲醇和 1000 克水的混合溶液中，以獲得固體。通過抽吸過濾回收固體，然後使用攪拌器用甲醇：水=1：1 的

400 克混合溶液洗滌 15 分鐘四次。然後，用真空乾燥器在 60°C 將固體乾燥 30 小時以獲得 113 克固體物質。由於由固體物質的 IR 分析所證實的酚羥基吸收峰(3600cm⁻¹)的消失和由其 NMR 分析所證實的源自乙烯基苄基醚的峰(4.6-5.8ppm)的出現，確定官能團轉化。由此獲得雙官能乙烯基苄基醚化合物(n)。通過凝膠滲透色譜法(GPC)測量雙官能乙烯基苄基醚化合物(n)。結果，其數均分子量(M_n)為 2,200，其重均分子量(M_w)為 3,942。

(比較例 3)乙烯基苄基醚化合物(o)的合成

將 40 克(羥基 0.196 莫耳)聯苯基苯酚芳烷基樹脂(GPH65, Nippon Kayaku Co., Ltd. 供應)和 37.4 克(0.245 莫耳)氯甲基苯乙烯添加到配有磁攪拌器、Dimroth 冷凝器和溫度計的 1 升圓形反應器中。在反應器中加入 200 克 DMF。用氮置換反應器內的氣體。然後，在 50°C 的反應溫度攪拌該混合物。將 46.6 克(0.245 莫耳)28.4 重量%甲醇鈉的甲醇溶液裝入滴液漏斗，並將其經過 30 分鐘加入反應器。將混合物在 50°C 攪拌 1 小時。進一步逐滴添加 3.9 克(0.021 莫耳)額外的 28.4 重量%甲醇鈉的甲醇溶液。逐滴添加完成之後，使混合物在攪拌的同時在 60°C 反應 4.5 小時。逐滴添加 2.4 克(0.021 莫耳)85 重量%磷酸水溶液，並將混合物攪拌 10 分鐘。證實 pH 值為 7。通過抽吸過濾去除生成的鹽。然後，將反應溶液經過 5 分鐘逐滴添加到 2,500 克甲醇中，以獲得固體。經由抽吸過濾回收固體，然後用真空乾燥器在 50°C 乾燥 10 小時以獲得 19.2 克固

體物質。由於由固體物質的 IR 分析所證實的酚羥基吸收峰(3600cm⁻¹)的消失和由其 NMR 分析所證實的源自乙烯基苄基醚的峰(4.6-5.8ppm)的出現，確定官能團轉化。由此獲得聚乙烯基苄基醚化合物(o)。通過凝膠滲透色譜法(GPC)測量聚乙烯基苄基醚化合物(o)。結果，其數均分子量(Mn)為 823，其重均分子量(Mw)為 3,549。

(實施例 13-18，比較例 4-5)

分別觀察實施例 7 至 12 和比較例 2 和 3 中獲得的乙烯基苄基醚化合物(h)、(i)、(j)、(k)、(l)、(m)、(n)和(o)在甲苯和甲乙酮中的可溶性。

表 1

		實施例 13	實施例 14	實施例 15	實施例 16
	乙烯基苄基化合物	(h)	(i)	(j)	(k)
可溶性	10 重量%甲苯	可溶	可溶	可溶	可溶
	30 重量%甲苯	可溶	可溶	可溶	可溶
	50 重量%甲苯	可溶	可溶	可溶	可溶
	10 重量%甲乙酮	可溶	可溶	可溶	可溶
	30 重量%甲乙酮	可溶	可溶	可溶	可溶
	50 重量%甲乙酮	可溶	可溶	可溶	可溶

表 1(續)

		實施例 17	實施例 18	比較例 4	比較例 5
	乙烯基苄基化合物	(l)	(m)	(n)	(o)
可溶性	10 重量%甲苯	可溶	可溶	可溶	不溶
	30 重量%甲苯	可溶	可溶	可溶	不溶
	50 重量%甲苯	可溶	可溶	可溶	不溶
	10 重量%甲乙酮	可溶	可溶	可溶	不溶
	30 重量%甲乙酮	可溶	可溶	不溶	不溶
	50 重量%甲乙酮	可溶	可溶	不溶	不溶

表 1 顯示了本發明的聚乙烯基苄基醚化合物具有比雙官能乙烯基苄基醚化合物和不同的聚乙烯基苄基醚化合物高的溶劑可溶性。

(實施例 19-23，比較例 6-7)

使用由 SUS 製成的模具，用真空壓機將實施例 7、實施

例 9 至 12 和比較例 2 和 3 中獲得的乙烯基苄基醚化合物 (h)、(j)、(k)、(l)、(m)、(n) 和 (o) 各自獨立地在 2MPa 下以 3°C/分鐘的速率升溫至 200°C，然後在 2MPa 下在 200°C 保持 3 小時以進行壓制，由此分別獲得大約 1 毫米厚的樹脂固化產物。測量樹脂固化產物的玻璃化轉變溫度和介電特性，由此證實耐熱性、介電常數和介電損耗角正切中的差異。

表 2

		實施例 19	實施例 20	實施例 21	實施例 22
	乙烯基苄基化合物	(h)	(j)	(k)	(l)
物理性質	玻璃化轉變溫度(°C)	248	240	249	245
	介電常數(10GHz)	2.46	2.46	2.50	2.46
	介電損耗角正切(10GHz)	0.0042	0.0043	0.0045	0.0040

表 2(續)

		實施例 23	比較例 6	比較例 7
	乙烯基苄基化合物	(m)	(n)	(o)
物理性質	玻璃化轉變溫度(°C)	251	218	214
	介電常數(10GHz)	2.48	2.48	2.60
	介電損耗角正切(10GHz)	0.0045	0.0035	0.0065

表 2 顯示了本發明的聚乙烯基苄基醚化合物的耐熱性高於雙官能乙烯基苄基醚化合物，且本發明的聚乙烯基苄基醚化合物與不同的聚乙烯基苄基醚化合物相比，具有更高的耐熱性和更低的介電常數和介電損耗角正切。

(實施例 24-28，比較例 8-9)

將實施例 7、實施例 9 至 12、比較例 2 中獲得的每一乙烯基苄基醚化合物 (h)、(j)、(k)、(l)、(m) 和 (n) 和不含聚二苯醚結構的聚乙烯基苄基醚化合物 (SHOWA HIGHPOLYMER CO., LTD.: V1100X 供應) 獨立地與苯乙烯丁二烯苯乙烯共聚物 (JSR 供應的 TR2003，苯乙烯含量 43 重

量%，重均分子量大約 100,000)以乙烯基苄基醚化合物：苯乙烯丁二烯苯乙烯共聚物=50:50 的重量比混合。將混合物獨立地溶於甲苯，由此分別製備樹脂固含量為 30 重量%的清漆。用刮刀將每一清漆獨立地塗敷到 100 微米 PET 薄膜(Lumirror-T: Toray Industries, Inc. 供應)上，然後用空氣乾燥器在 80°C 乾燥 5 分鐘，由此分別製備各自具有 30 微米厚的樹脂層的可固化薄膜。評測可固化薄膜的外觀。表 3 顯示了結果。對於比較例 9，在溶劑乾燥之後出現裂紋和裂痕，且不能獲得均勻塗膜。然後，將可固化薄膜在惰性爐中在氮氣下以 4°C /分鐘的升溫速率加熱至 200°C，並在熱下在 200°C 保持 30 分鐘。然後，用手將 PET 薄膜從可固化薄膜上剝離並去除，由此獲得薄膜。薄膜各自具有 30 微米的厚度。測量薄膜的玻璃化轉變溫度、尺寸變化率、介電常數和介電損耗角正切。表 3 顯示了結果。

表 3

	實施例 24	實施例 25	實施例 26	實施例 27	實施例 28	比較例 8	比較例 9
可固化樹脂	樹脂 h	樹脂 j	樹脂 k	樹脂 l	樹脂 m	樹脂 n	V1100X
可固化薄膜的外觀	○	○	○	○	○	○	×
玻璃化轉變溫度 (°C)	195	193	199	198	187	162	—
尺寸變化率	7%	8%	6%	7%	7%	16%	—
介電常數 (10GHz)	2.41	2.42	2.40	2.42	2.43	2.40	—
介電損耗角正切 (10GHz)	0.0028	0.0029	0.0027	0.0027	0.0028	0.0025	—

根據實施例 24 至 28 和比較例 8 和 9，發現由於二苯醚

結構而獲得沒有缺陷的薄膜。根據實施例 24 至 28 和比較例 8，發現多官能化可以在保持低介電特性的同時提高耐熱性並降低尺寸變化。

(實施例 29-33，比較例 10-11)

將實施例 7、實施例 9 至 12、比較例 2 中獲得的每一乙烯基苄基醚化合物(h)、(j)、(k)、(l)、(m)和(n)和不含聚二苯醚結構的聚乙烯基苄基醚化合物(V1100X)獨立地與氫化苯乙烯丁二烯苯乙烯共聚物(Kurary Co., Ltd. 供應的 SEPTON8007L，苯乙烯含量 20 重量%，重均分子量大約 100,000)以乙烯基苄基醚化合物：氫化苯乙烯丁二烯苯乙烯共聚物 = 50: 50 的重量比混合。將混合物獨立地溶於甲苯，由此分別製備樹脂固含量為 20 重量%的清漆。用刮刀將每一清漆獨立地塗敷到 18 微米厚的電解銅箔(3EC-III: MITSUI MINING & SMELTING CO., LTD 供應)的消光面上，然後用空氣乾燥器在 80°C 乾燥 5 分鐘，由此分別製備各自具有 30 微米厚的樹脂層的帶有銅箔的可固化薄膜。評測帶有銅箔的可固化薄膜的外觀。表 4 顯示了結果。對於比較例 11，在溶劑乾燥之後出現裂紋和裂痕，且不能獲得均勻塗膜。然後，將帶有銅箔的可固化薄膜在惰性爐中在氮氣下以 4°C /分鐘的升溫速率加熱至 200°C，並在熱下在 200°C 保持 30 分鐘。然後，經由蝕刻分別從可固化薄膜上去除銅箔，由此獲得薄膜。薄膜各自具有 30 微米的厚度。測量薄膜的玻璃化轉變溫度、尺寸變化率、介電常數和介電損耗角正切。表 4 顯示了結果。

表 4

	實施例 29	實施例 30	實施例 31	實施例 32	實施例 33	比較例 10	比較例 11
可固化樹脂	樹脂 h	樹脂 j	樹脂 k	樹脂 l	樹脂 m	樹脂 n	V1100X
可固化薄膜的外觀	○	○	○	○	○	○	×
玻璃化轉變溫度 (°C)	197	196	197	200	214	183	—
尺寸變化率	6%	7%	6%	6%	8%	28%	—
介電常數 (10GHz)	2.35	2.33	2.36	2.36	2.34	2.33	—
介電損耗角正切 (10GHz)	0.0018	0.0019	0.0020	0.0019	0.0021	0.0018	—

根據實施例 29 至 33 和比較例 10 至 11，發現由於二苯醚結構而獲得沒有缺陷的薄膜。根據實施例 29 至 33 和比較例 10，發現多官能化可以在保持低介電特性的同時提高耐熱性並降低尺寸變化。

(實施例 34)

將實施例 33 中獲得的帶有銅箔的可固化薄膜置於在其兩個表面上均具有線路/間隔=100 微米/100 微米圖案的芯材(EL190，銅箔厚度 18 微米，Mitsubishi Gas Chemical Company, Inc. 供應)的各個表面上，並將所得元件在 200 °C 的熱下和在 2MPa 的壓力下固化 2 小時，以製造四層板。根據 JIS C6481 評測外層的銅箔剝離強度。結果，其為 0.8kN/m。此外，通過蝕刻去除銅箔，並考察圖案的嵌入性質。沒有任何空隙地嵌入內層圖案。

(實施例 35)多官能環氧樹脂(p)的合成

將 160 克(羥基 0.258 莫耳)實施例 1 中獲得的多官能二苯醚低聚物(a)的甲苯溶液和 639 克(6.91 莫耳)表氯醇添

加到配有磁攪拌器、Dimroth 冷凝器和溫度計的 2 升圓形反應器中。用氮置換反應器內的氣體。然後，在 85°C 的反應溫度攪拌該混合物。將 105 克(0.310 莫耳)20 重量%乙醇鈉的乙醇溶液裝入滴液漏斗，並將其攪拌的同時經過 60 分鐘逐滴加入反應器。逐滴添加完成之後，使混合物在攪拌的同時在 85°C 反應 240 分鐘。反應完成之後，使反應溶液靜置直至其溫度降至 60°C。在反應溶液中加入 250 克 50°C 熱純淨水。將液體分離操作重複四次直至水相的 pH 值變成 7。用蒸發器濃縮有機相以獲得 195 克濃縮溶液。將該濃縮溶液用 40 克甲醇稀釋，並將稀釋溶液在攪拌的同時逐滴添加到 1,000 克甲醇和 1,000 克純淨水的混合溶液中，由此沉澱固體。通過用瓷漏斗過濾，回收固體。通過攪拌，將固體用 100 克甲醇和 100 克純淨水的混合溶劑洗滌 5 分鐘。在相同條件下進行過濾。將固體洗滌兩次，然後將固體用真空乾燥器乾燥以獲得 65 克多官能環氧樹脂(p)。經由凝膠滲透色譜法(GPC)測量多官能環氧樹脂(p)。結果，其數均分子量(M_n)為 1,061，其重均分子量(M_w)為 1,617。由於由 IR 分析所證實的酚羥基吸收峰(3600cm^{-1})的消失和由 NMR 分析所證實的源自縮水甘油醚的峰的出現，確定官能團轉化。此外，其環氧基當量為 425 克/當量。

(實施例 36)多官能環氧樹脂(q)的合成

將 160 克(羥基 0.260 莫耳)實施例 2 中獲得的多官能二苯醚低聚物(b)的甲苯溶液和 642 克(6.92 莫耳)表氯醇添

加到配有磁攪拌器、Dimroth 冷凝器和溫度計的 2 升圓形反應器中。用氮置換反應器內的氣體。然後，在 85°C 的反應溫度攪拌該混合物。將 105 克(0.310 莫耳)20 重量%乙醇鈉的乙醇溶液裝入滴液漏斗，並將其攪拌的同時經過 60 分鐘逐滴加入反應器。逐滴添加完成之後，使混合物在攪拌的同時在 85°C 反應 240 分鐘。反應完成之後，使反應溶液靜置直至其溫度降至 60°C。在反應溶液中加入 250 克 50°C 熱純淨水。將液體分離操作重複四次直至水相的 pH 值變成 7。用蒸發器濃縮有機相以獲得 200 克濃縮溶液。將該濃縮溶液用 40 克甲醇稀釋，並將稀釋溶液在攪拌的同時逐滴添加到 1,000 克甲醇和 1,000 克純淨水的混合溶液中，由此沉澱固體。通過用瓷漏斗過濾，回收固體。通過攪拌，將固體用 100 克甲醇和 100 克純淨水的混合溶劑洗滌 5 分鐘。在相同條件下進行過濾。將固體洗滌兩次，然後將固體用真空乾燥器乾燥以獲得 66 克樹脂(q)。經由凝膠滲透色譜法(GPC)測量樹脂(q)。結果，其數均分子量(Mn)為 1,050，其重均分子量(Mw)為 1,613。由於由 IR 分析所證實的酚羥基吸收峰(3600cm⁻¹)的消失和由 NMR 分析所證實的源自縮水甘油醚的峰的出現，確定官能團轉化。此外，其環氧基當量為 430 克/當量。

(實施例 37)多官能環氧樹脂(r)的合成

將 133.3 克(羥基 0.248 莫耳)實施例 3 中獲得的多官能二苯醚低聚物(c)的甲苯溶液、26.7 克甲苯和 615 克(6.65

莫耳)表氯醇添加到配有磁攪拌器、Dimroth 冷凝器和溫度計的 2 升圓形反應器中。用氮置換反應器內的氣體。然後，在 85°C 的反應溫度攪拌該混合物。將 101 克(0.298 莫耳)20 重量%乙醇鈉的乙醇溶液裝入滴液漏斗，並將其攪拌的同時經過 60 分鐘逐滴加入反應器。逐滴添加完成之後，使混合物在攪拌的同時在 85°C 反應 240 分鐘。反應完成之後，使反應溶液靜置直至其溫度降至 60°C。在反應溶液中加入 250 克 50°C 熱純淨水。將液體分離操作重複四次直至水相的 pH 值變成 7。用蒸發器濃縮有機相以獲得 190 克濃縮溶液。將該濃縮溶液用 40 克甲醇稀釋，並將稀釋溶液在攪拌的同時逐滴添加到 1,000 克甲醇和 1,000 克純淨水的混合溶液中，由此沉澱固體。通過用瓷漏斗過濾，回收固體。經攪拌，將固體用 100 克甲醇和 100 克純淨水的混合溶劑洗滌 5 分鐘。在相同條件下進行過濾。將固體洗滌兩次，然後將固體用真空乾燥器乾燥以獲得 57 克多官能環氧樹脂(r)。經由凝膠滲透色譜法(GPC)測量多官能環氧樹脂(r)。結果，其數均分子量(Mn)為 1,003，其重均分子量(Mw)為 1,598。由於由 IR 分析所證實的酚羥基吸收峰(3600cm⁻¹)的消失和由 NMR 分析所證實的源自縮水甘油醚的峰的出現，確定官能團轉化。此外，其環氧基當量為 418 克/當量。

(實施例 38)多官能環氧樹脂(s)的合成

將 129 克(羥基 0.239 莫耳)實施例 4 中獲得的多官能二苯醚低聚物(d)的甲苯溶液、31.0 克甲苯和 592 克(6.40

莫耳)表氯醇添加到配有磁攪拌器、Dimroth 冷凝器和溫度計的 2 升圓形反應器中。用氮置換反應器內的氣體。然後，在 85°C 的反應溫度攪拌該混合物。將 97.6 克(0.287 莫耳)20 重量%乙醇鈉的乙醇溶液裝入滴液漏斗，並將其攪拌的同時經過 60 分鐘逐滴加入反應器。逐滴添加完成之後，使混合物在攪拌的同時在 85°C 反應 240 分鐘。反應完成之後，使反應溶液靜置直至其溫度降至 60°C。在反應溶液中加入 250 克 50°C 熱純淨水。將液體分離操作重複四次直至水相的 pH 值變成 7。用蒸發器濃縮有機相以獲得 190 克濃縮溶液。將該濃縮溶液用 40 克甲醇稀釋，並將稀釋溶液在攪拌的同時逐滴添加到 1,000 克甲醇和 1,000 克純淨水的混合溶液中，由此沉澱固體。通過用瓷漏斗過濾，回收固體。經攪拌，將固體用 100 克甲醇和 100 克純淨水的混合溶劑洗滌 5 分鐘。在相同條件下進行過濾。將固體洗滌兩次，然後將固體用真空乾燥器乾燥以獲得 66 克多官能環氧樹脂(s)。經由凝膠滲透色譜法(GPC)測量多官能環氧樹脂(s)。結果，其數均分子量(M_n)為 1,096，其重均分子量(M_w)為 1,573。由於由 IR 分析所證實的酚羥基吸收峰(3600cm^{-1})的消失和由 NMR 分析所證實的源自縮水甘油醚的峰的出現，確定官能團轉化。此外，其環氧基當量為 430 克/當量。

(實施例 39)多官能環氧樹脂(t)的合成

將 129.0 克(羥基 0.239 莫耳)實施例 5 中獲得的多官能二苯醚低聚物(e)的甲苯溶液、31.0 克甲苯和 608 克(6.57

莫耳)表氯醇添加到配有磁攪拌器、Dimroth 冷凝器和溫度計的 2 升圓形反應器中。用氮置換反應器內的氣體。然後，在 85°C 的反應溫度攪拌該混合物。將 100 克(0.294 莫耳)20 重量%乙醇鈉的乙醇溶液裝入滴液漏斗，並將其攪拌的同時經過 60 分鐘逐滴加入反應器。逐滴添加完成之後，使混合物在攪拌的同時在 85°C 反應 240 分鐘。反應完成之後，使反應溶液靜置直至其溫度降至 60°C。在反應溶液中加入 250 克 50°C 熱純淨水。將液體分離操作重複四次直至水相的 pH 值變成 7。用蒸發器濃縮有機相以獲得 190 克濃縮溶液。將該濃縮溶液用 40 克甲醇稀釋，並將稀釋溶液在攪拌的同時逐滴添加到 1,000 克甲醇和 1,000 克純淨水的混合溶液中，由此沉澱固體。通過用瓷漏斗過濾，回收固體。經攪拌，將固體用 100 克甲醇和 100 克純淨水的混合溶劑洗滌 5 分鐘。在相同條件下進行過濾。將固體洗滌兩次，然後將固體用真空乾燥器乾燥以獲得 53 克多官能環氧樹脂(t)。經由凝膠滲透色譜法(GPC)測量多官能環氧樹脂(t)。結果，其數均分子量(M_n)為 1,068，其重均分子量(M_w)為 1,540。由於由 IR 分析所證實的酚羥基吸收峰(3600cm^{-1})的消失和由 NMR 分析所證實的源自縮水甘油醚的峰的出現，確定官能團轉化。此外，其環氧基當量為 435 克/當量。

(實施例 40)多官能環氧樹脂(u)的合成

將 200 克(羥基 0.242 莫耳)實施例 6 中獲得的多官能二苯醚低聚物(f)的甲苯溶液和 600 克(6.48 莫耳)表氯醇添

加到配有磁攪拌器、Dimroth 冷凝器和溫度計的 2 升圓形反應器中。用氮置換反應器內的氣體。然後，在 85°C 的反應溫度攪拌該混合物。將 99 克(0.290 莫耳)20 重量%乙醇鈉的乙醇溶液裝入滴液漏斗，並將其攪拌的同時經過 60 分鐘逐滴加入反應器。逐滴添加完成之後，使混合物在攪拌的同時在 85°C 反應 240 分鐘。反應完成之後，使反應溶液靜置直至其溫度降至 60°C。在反應溶液中加入 250 克 50°C 熱純淨水。將液體分離操作重複四次直至水相的 pH 值變成 7。用蒸發器濃縮有機相以獲得 220 克濃縮溶液。將該濃縮溶液用 40 克甲醇稀釋，並將稀釋溶液在攪拌的同時逐滴添加到 1,000 克甲醇和 1,000 克純淨水的混合溶液中，由此沉澱固體。通過用瓷漏斗過濾，回收固體。經攪拌，將固體用 100 克甲醇和 100 克純淨水的混合溶劑洗滌 5 分鐘。在相同條件下進行過濾。將固體洗滌兩次，然後將固體用真空乾燥器乾燥以獲得 103 克多官能環氧樹脂(u)。經由凝膠滲透色譜法(GPC)測量多官能環氧樹脂(u)。結果，其數均分子量(M_n)為 2,097，其重均分子量(M_w)為 2,969。由於由 IR 分析所證實的酚羥基吸收峰(3600cm^{-1})的消失和由 NMR 分析所證實的源自縮水甘油醚的峰的出現，確定官能團轉化。此外，其環氧基當量為 505 克/當量。

(比較例 12)雙官能環氧樹脂(v)的合成

將 2.14 克(9.58 毫莫耳) CuBr_2 、0.699 克(4.05 毫莫耳)二第三丁基乙二胺、21.4 克(211 毫莫耳)丁基二甲胺、0.7

克(1.73 毫莫耳)三辛基甲基氯化銨和 2,600 克甲苯裝入配有攪拌器、溫度計、空氣引入管和擋板的 12 升縱長反應器中。在 41°C 的反應溫度攪拌該混合物。單獨地，將 130 克(0.480 莫耳)2,2',3,3',5,5'-六甲基-4,4'-聯苯酚、291 克(2.39 莫耳)2,6-二甲基苯酚、1.75 克(7.85 毫莫耳)CuBr₂、0.572 克(3.32 毫莫耳)二第三丁基乙二胺和 17.5 克(173 毫莫耳)丁基二甲胺預先溶於 2,250 克甲醇，以製備混合溶液(二元酚:一元酚莫耳比，1:5)。將混合溶液加熱至 50°C，並在以 1020rpm 攪拌的同時經過 230 分鐘逐滴添加到反應器中的混合物中，同時用 2.1 升/分鐘空氣和 3.2 升/分鐘氮氣的混合氣體(氧濃度 8.0%)進行鼓泡。添加完成之後，終止氣體鼓泡。在混合物中添加 23.7 克(52.3 毫莫耳)乙二胺四乙酸四鈉在 1,500 克純淨水中的水溶液，並將所得混合物以 600rpm 攪拌 30 分鐘，從而終止反應。然後，將反應混合物用純淨水洗滌一次以獲得溶液。用蒸發器將由此獲得的溶液濃縮以獲得 630 克雙官能二苯醚低聚物的 65 重量%甲苯溶液。通過凝膠滲透色譜法(GPC)測量由此獲得的雙官能二苯醚低聚物。結果，其數均分子量(Mn)為 1,115，其重均分子量(Mw)為 1,717。根據 NMR 和 FDMS 分析，證實其生成。該溶液的羥基當量為 755 克/當量。

然後，將 123.1 克(羥基 0.163 莫耳)如上獲得的雙官能二苯醚低聚物的甲苯溶液(65%)、26.9 克甲苯和 404 克(4.37 莫耳)表氯醇添加到配有磁攪拌器、Dimroth 冷凝器

和溫度計的 2 升圓形反應器中。用氮置換反應器內的氣體。然後，在 85°C 的反應溫度攪拌該混合物。將 66.6 克 (0.196 莫耳) 20 重量%乙醇鈉的乙醇溶液裝入滴液漏斗，並將其在攪拌的同時經過 60 分鐘逐滴加入反應器。逐滴添加完成之後，使混合物在攪拌的同時在 85°C 反應 240 分鐘。反應完成之後，使反應溶液靜置直至其溫度降至 60°C。在反應溶液中加入 250 克 50°C 熱純淨水。將液體分離操作重複五次直至水相的 pH 值變成 7。用蒸發器濃縮有機相以獲得 180 克濃縮溶液。將該濃縮溶液用 40 克甲醇稀釋，並將稀釋溶液在攪拌的同時逐滴添加到 1,000 克甲醇和 1,000 克純淨水的混合溶液中，由此沉澱固體。通過用瓷漏斗過濾，回收固體。通過攪拌，將固體用 100 克甲醇和 100 克純淨水的混合溶劑洗滌 5 分鐘。在相同條件下進行過濾。將固體洗滌兩次，然後將固體用真空乾燥器乾燥以獲得 85 克雙官能環氧樹脂(v)。通過凝膠滲透色譜法(GPC)測量雙官能環氧樹脂(v)。結果，其數均分子量(Mn)為 1,122，其重均分子量(Mw)為 2,020。由於由 IR 分析所證實的酚羥基吸收峰(3600cm⁻¹)的消失和由 NMR 分析所證實的源自縮水甘油醚的峰的出現，確定官能團轉化。此外，其環氧基當量為 575 克/當量。

(實施例 41-46，比較例 13)

將實施例 35 至 40 和比較例 12 中獲得的每一多官能環氧樹脂(p)、(q)、(r)、(s)、(t)和(u)和雙官能環氧樹脂(v)獨立地與作為固化劑的酚醛清漆樹脂(TD2131，

DAINIPPON INK AND CHEMICALS, INCORPORATED 供應)和作為固化促進劑的三苯膦(試劑, Tokyo Chemical Industry Co., Ltd. 供應)以表 5 中所示的重量比混合。將混合物各自獨立地溶於甲乙酮, 由此分別製備樹脂含量為 50 重量%的清漆。用繞線棒刮塗器將每一清漆獨立地塗敷到 KAPTON 薄膜(KAPTON 200H, Du PONT-TORAY Co., Ltd. 供應)上, 用空氣乾燥器在 120℃ 處理 3 分鐘然後刮掉, 由此分別獲得粉末。將粉末用真空乾燥器在 30℃ 乾燥 20 小時。然後, 使用由 SUS 製成的模具, 用真空壓機將每一粉末獨立地在 2MPa 下以 3℃/分鐘的速率升溫至 180℃, 然後在 2MPa 下在 180℃ 壓制 1 小時, 由此分別製備樹脂固化產物。同時, 在 180-℃ 1 小時壓制後, 將樹脂固化產物在 180℃ 後固化 9 小時, 由此獲得樹脂固化產物。

測量樹脂固化產物的斷裂強度並證實反應性的差異。

表 5

		實施例 41	實施例 42	實施例 43	實施例 44
環氧樹脂	樹脂(p)(實施例 35)	100			
	樹脂(q)(實施例 36)		100		
	樹脂(r)(實施例 37)			100	
	樹脂(s)(實施例 38)				100
	樹脂(t)(實施例 39)				
	樹脂(u)(實施例 40)				
	樹脂(v)(比較例 12)				
固化劑	酚醛清漆樹脂	24	24	24	25
固化促進劑	三苯膦	0.5	0.5	0.5	0.5
物理性質	斷裂強度(N/mm ²) (未進行後固化)	131	130	125	133
	斷裂強度(N/mm ²) (固化後)	123	121	126	129

(表 5)(續)

		實施例 45	實施例 46	比較例 13
環氧樹脂	樹脂(p)(實施例 35)			
	樹脂(q)(實施例 36)			
	樹脂(r)(實施例 37)			
	樹脂(s)(實施例 38)			
	樹脂(t)(實施例 39)	100		
	樹脂(u)(實施例 40)		100	
	樹脂(v)(比較例 12)			100
固化劑	酚醛清漆樹脂	24	20	18
固化促進劑	三苯膦	0.5	0.25	0.5
物理性質	斷裂強度(N/mm ²) (未進行後固化)	117	107	26
	斷裂強度(N/mm ²) (固化後)	126	122	100

表 5 顯示了本發明的多官能環氧樹脂的反應性高於雙官能環氧樹脂。

(實施例 47-52，比較例 14)

將實施例 35 至 40 和比較例 12 中獲得的每一多官能環氧樹脂(p)、(q)、(r)、(s)、(t)和(u)和雙官能環氧樹脂(v)獨立地與作為固化劑的 2-乙基-4-甲基咪唑(2E4MZ，Shikoku Chemicals Corporation 供應)以表 6 中所示的重量比混合。分別測量混合物的膠凝時間、並證實反應性的差異。

表 6

		實施例 47	實施例 48	實施例 49	實施例 50
環氧樹脂	樹脂(p)(實施例 35)	100			
	樹脂(q)(實施例 36)		100		
	樹脂(r)(實施例 37)			100	
	樹脂(s)(實施例 38)				100
	樹脂(t)(實施例 39)				
	樹脂(u)(實施例 40)				
	樹脂(v)(比較例 12)				
固化劑	2-乙基-4-甲基咪唑	4	4	4	4
物理性質	膠凝時間(160°C)	246s	250s	266s	303s

表 6(續)

		實施例 51	實施例 52	比較例 14
環氧樹脂	樹脂(p)(實施例 35)			
	樹脂(q)(實施例 36)			
	樹脂(r)(實施例 37)			
	樹脂(s)(實施例 38)			
	樹脂(t)(實施例 39)	100		
	樹脂(u)(實施例 40)		100	
	樹脂(v)(比較例 12)			100
固化劑	2-乙基-4-甲基咪唑	4	4	4
物理性質	膠凝時間(160°C)	303s	110s	>600s

表 6 顯示了本發明的多官能環氧樹脂的反應性高於雙官能環氧樹脂。

(實施例 53-58，比較例 15-17)

將實施例 35 至 40 中獲得的每一多官能環氧樹脂(p)、(q)、(r)、(s)、(t)和(u)和比較例 12 中獲得的雙官能環氧樹脂(v)、酚醛清漆型環氧樹脂(N770，DAINIPPON INK AND CHEMICALS，INCORPORATED 供應)和二環戊二烯酚醛清漆型環氧樹脂(HP7200H，DAINIPPON INK AND CHEMICALS，INCORPORATED 供應)獨立地與作為固化劑的酚醛清漆樹脂(TD2131)和作為固化促進劑的三苯膦(試劑)以表 7 中所示的重量比混合。將混合物各自獨立地溶於甲乙酮，由此

分別製備樹脂含量為 50 重量%的清漆。用繞線棒刮塗器將每一清漆獨立地塗敷到 KAPTON 薄膜(KAPTON 200H)上，用空氣乾燥器在 120℃ 處理 3 分鐘然後刮掉，由此分別獲得粉末。將粉末用真空乾燥器在 30℃ 乾燥 20 小時。然後，使用由 SUS 製成的模具，用真空壓機將每一粉末獨立地在 2MPa 下以 3℃ /分鐘的速率升溫至 180℃，然後在 2MPa 下在 180℃ 壓制 1 小時，然後在 180℃ 後固化 9 小時。然後，測量由此獲得的固化產物的玻璃化轉變溫度和介電特性，並證實介電常數、介電損耗角正切和耐熱性中的差異。

表 7

		實施例 53	實施例 54	實施例 55	實施例 56	實施例 57
環氧樹脂	樹脂(p)(實施例 35)	100				
	樹脂(q)(實施例 36)		100			
	樹脂(r)(實施例 37)			100		
	樹脂(s)(實施例 38)				100	
	樹脂(t)(實施例 39)					100
	樹脂(u)(實施例 40)					
	樹脂(v)(比較例 12)					
	酚醛清漆型環氧樹脂					
	二環戊二烯酚醛清漆型環氧樹脂					
固化劑	酚醛清漆樹脂	24	24	24	25	24
固化促進劑	三苯胺	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
物理性質	玻璃化轉變溫度 (DMA E'' 峰頂)	177℃	175℃	172℃	186℃	177℃
	介電常數(10GHz)	2.74	2.71	2.72	2.73	2.76
	介電損耗角正切(10GHz)	0.024	0.023	0.025	0.023	0.026

表 7(續)

		實施例 58	比較例 15	比較例 16	比較例 17
環氧樹脂	樹脂(p)(實施例 35)				
	樹脂(q)(實施例 36)				
	樹脂(r)(實施例 37)				
	樹脂(s)(實施例 38)				
	樹脂(t)(實施例 39)				
	樹脂(u)(實施例 40)	100			
	樹脂(v)(比較例 12)		100		
	酚醛清漆型環氧樹脂			100	
	二環戊二烯酚醛清漆型環氧樹脂				100
固化劑	酚醛清漆樹脂	20	18	54	37
固化促進劑	三苯膦	0.25	0.5	1.5	0.5
物理性質	玻璃化轉變溫度(DMA E" 峰頂)	178°C	166°C	183°C	158°C
	介電常數(10GHz)	2.81	2.67	3.03	2.89
	介電損耗角正切(10GHz)	0.033	0.021	0.036	0.034

表 7 顯示出當使用酚醛清漆樹脂作為固化劑時，本發明的多官能環氧樹脂的耐熱性高於雙官能環氧樹脂，且介電常數和介電損耗角正切低於不同的多官能環氧樹脂。
(實施例 59-62，比較例 18-19)

將實施例 35、37 至 39 中獲得的每一多官能環氧樹脂(p)、(r)、(s)和(t)、酚醛清漆型環氧樹脂(N770)和二環戊二烯酚醛清漆型環氧樹脂(HP7200H)獨立地與作為固化劑的苯基苯酚芳烷基樹脂(XLC-LL，Mitsui Chemicals, Inc. 供應)和作為固化促進劑的三苯膦(試劑)以表 8 中所示的重量比混合。將混合物各自獨立地溶於甲乙酮，由此分別製備樹脂含量為 50 重量%的清漆。用繞線棒刮塗器將每一清漆獨立地塗敷到 KAPTON 薄膜(KAPTON 200H)上，用空氣乾燥器在 120°C 處理 3 分鐘然後刮掉，由此分別獲得粉末。將粉末用真空乾燥器在 30°C 乾燥 20 小時。然後，

使用由 SUS 製成的模具，用真空壓機將粉末分別在 2MPa 下以 3°C /分鐘的速率升溫至 180°C，然後在 2MPa 下在 180°C 壓制 1 小時，然後在 180°C 後固化 9 小時。然後，測量由此獲得的固化產物的玻璃化轉變溫度和介電特性，並證實介電常數、介電損耗角正切和耐熱性中的差異。

表 8

		實施例 59	實施例 60	實施例 61	實施例 62	比較例 18	比較例 19
環氧樹脂	樹脂(p) (實施例 35)	100					
	樹脂(r)(實施例 37)		100				
	樹脂(s)(實施例 38)			100			
	樹脂(t)(實施例 39)				100		
	酚醛清漆型環氧樹脂					100	
	二環戊二烯酚醛清漆型環氧樹脂						100
固化劑	苯基苯酚芳烷基	42	43	41	43	93	63
固化促進劑	三苯膦	0.5	0.5	0.5	0.5	1.5	0.5
物理性質	玻璃化轉變溫度 (DMA E'' 峰頂)	165°C	164°C	172°C	169°C	144°C	140°C
	介電常數(10GHz)	2.74	2.76	2.74	2.77	2.98	2.87
	介電損耗角正切 (10GHz)	0.023	0.022	0.024	0.024	0.033	0.030

表 8 顯示出當使用苯基苯酚芳烷基樹脂作為固化劑時，本發明的多官能環氧樹脂的耐熱性高於且介電常數和介電損耗角正切低於不同的多官能環氧樹脂。

【圖式簡單說明】

在下列各圖中，縱軸表示吸收強度，橫軸表示 ppm。

圖 1 顯示實施例 1 所獲得的多官能二苯醚低聚物(a)的 ^1H -NMR 譜圖。

圖 2 顯示實施例 3 所獲得的多官能二苯醚低聚物(c)的 ^1H -NMR 譜圖。

圖 3 顯示實施例 4 所獲得的多官能二苯醚低聚物(d)的¹H-NMR 譜圖。

圖 4 顯示實施例 5 所獲得的多官能二苯醚低聚物(e)的¹H-NMR 譜圖。

圖 5 顯示實施例 6 所獲得的多官能二苯醚低聚物(f)的¹H-NMR 譜圖。

圖 6 顯示實施例 7 所獲得的聚乙烯基苄基醚化合物(h)的¹H-NMR 譜圖。

圖 7 顯示實施例 9 所獲得的聚乙烯基苄基醚化合物(j)的¹H-NMR 譜圖。

圖 8 顯示實施例 10 所獲得的聚乙烯基苄基醚化合物(k)的¹H-NMR 譜圖。

圖 9 顯示實施例 11 所獲得的聚乙烯基苄基醚化合物(l)的¹H-NMR 譜圖。

圖 10 顯示實施例 12 所獲得的聚乙烯基苄基醚化合物(m)的¹H-NMR 譜圖。

圖 11 顯示實施例 35 所獲得的多官能環氧樹脂(p)的¹H-NMR 譜圖。

圖 12 顯示實施例 37 所獲得的多官能環氧樹脂(r)的¹H-NMR 譜圖。

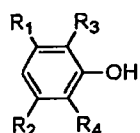
圖 13 顯示實施例 38 所獲得的多官能環氧樹脂(s)的¹H-NMR 譜圖。

圖 14 顯示實施例 39 所獲得的多官能環氧樹脂(t)的¹H-NMR 譜圖。

圖 15 顯示實施例 40 所獲得的多官能環氧樹脂(u)的¹H-NMR 譜圖。

十、申請專利範圍：

1. 一種聚乙烯基苺基醚化合物，其係藉由乙烯基-苺化具有 3 至小於 9 個酚羥基之多官能二苯醚低聚物(B)的酚羥基而得，該多官能二苯醚低聚物(B)係藉由每分子具有 3 至小於 9 個酚羥基且該 3 至小於 9 個酚羥基中之至少一個於第 2 及 6 位置上具有相同或不同且係選自烷基及伸烷基所組成之組群的兩個基團的多官能酚(A)，與式(1)所示之一元酚化合物反應而獲得，

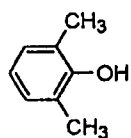


(1)

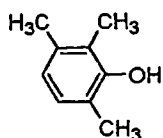
其中 R_1 和 R_2 為相同或不同且代表氫原子、鹵素原子、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，及 R_3 和 R_4 為相同或不同且代表鹵素原子、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基。

2. 如申請專利範圍第 1 項之聚乙烯基苺基醚化合物，其中該多官能二苯醚低聚物(B)作為聚苯乙烯係具有 700 至 3,000 之數均分子量。

3. 如申請專利範圍第 1 項之聚乙烯基苺基醚化合物，其中該式(1)所示之一元酚化合物係為式(2)化合物、式(3)化合物或式(2)及式(3)化合物的混合物

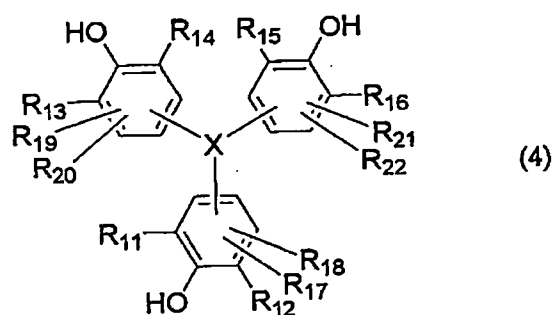


(2)

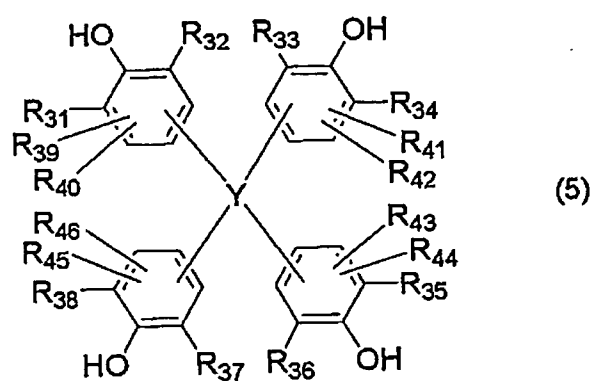


(3)

4. 如申請專利範圍第 1 項之聚乙炔基苺基醚化合物，其中該多官能酚(A)係選自式(4)所示之化合物、式(5)所示之化合物、式(6)所示之化合物及式(7)所示之化合物所組成之組群中之至少一化合物，

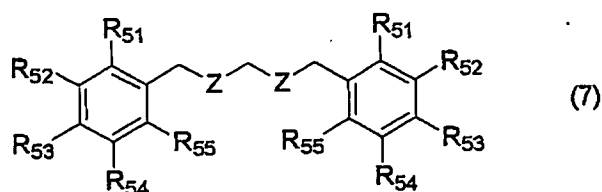
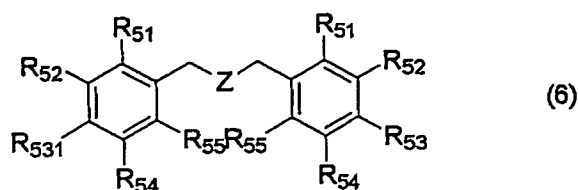


其中 X 係具有 1 至 20 個碳原子的烴， R_{11} 及 R_{12} 為相同或不同且代表具有 6 或更少個碳原子的烷基， R_{13} 、 R_{14} 、 R_{15} 及 R_{16} 為相同或不同且代表氫原子、鹵素原子、烷氧基、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，及 R_{17} 、 R_{18} 、 R_{19} 、 R_{20} 、 R_{21} 及 R_{22} 為相同或不同且代表氫原子、烷氧基、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，



其中 Y 係具有 1 至 20 個碳原子的烴， R_{31} 及 R_{32} 為相同或不同且代表具有 6 或更少個碳原子的烷基， R_{33} 、 R_{34} 、 R_{35} 、 R_{36} 、 R_{37} 及 R_{38} 為相同或不同且代表氫原子、鹵素原子、烷

氧基、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，及 R_{39} 、 R_{40} 、 R_{41} 、 R_{42} 、 R_{43} 、 R_{44} 、 R_{45} 及 R_{46} 為相同或不同且代表氫原子、烷氧基、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，



其中 Z 為伸苯基，其在至少一個位置具有羥基，並可在其他位置具有取代基， R_{51} 、 R_{53} 及 R_{55} 中至少一個代表羥基，且其他各自代表氫原子、烷氧基、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，及 R_{52} 和 R_{54} 各自代表氫原子、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，條件為在一分子中至少一個羥基之第 2 及 6 位置上存在相同或不同且係選自烷基及伸烷基所組成之組群的兩個基團。

5. 一種芳族乙烯類可固化樹脂組成物，其包含申請專利範圍第 1 項所定義之聚乙炔基苺基醚化合物。

6. 一種芳族乙烯類固化產物，其係藉由固化申請專利範圍第 5 項所定義之可固化樹脂組成物而得。

7. 如申請專利範圍第 5 項之芳族乙烯類可固化樹脂組成物，其進一步包含苯乙炔類熱塑性彈性體(D)。

8. 如申請專利範圍第 7 項之芳族乙烯類可固化樹脂組成物，其中該苯乙炔類熱塑性彈性體(D)作為聚苯乙炔係

具有 30,000 至 300,000 之重均分子量。

9. 如申請專利範圍第 7 項之芳族乙烯類可固化樹脂組成物，其中該苯乙烯類熱塑性彈性體(D)係具有苯乙烯含量為 20 至 49 重量%。

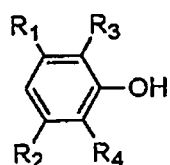
10. 一種可固化薄膜，其係藉由將申請專利範圍第 7 項所定義之芳族乙烯類可固化樹脂組成物加工成薄膜形式而得。

11. 一種固化薄膜，其係藉由固化申請專利範圍第 10 項所定義之可固化薄膜而得。

12. 一種形成導體層之可固化薄膜，其係藉由在申請專利範圍第 10 項所定義之可固化薄膜的至少一個表面上形成導體層而得。

13. 一種形成導體層之固化薄膜，其係藉由固化申請專利範圍第 12 項所定義之形成導體層之可固化薄膜而得。

14. 一種多官能環氧樹脂，其係藉由縮水甘油基化具有 3 至小於 9 個酚羥基之多官能二苯醚低聚物(B)的酚羥基而得，該多官能二苯醚低聚物(B)係藉由每分子具有 3 至小於 9 個酚羥基且該 3 至小於 9 個酚羥基中之至少一個於第 2 及 6 位置上具有相同或不同且係選自烷基及伸烷基所組成之組群的兩個基團的多官能酚(A)，與式(1)所示之一元酚化合物反應而獲得，

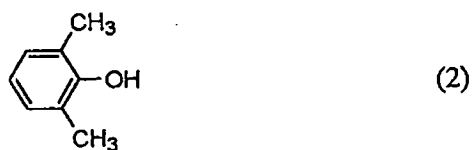


(1)

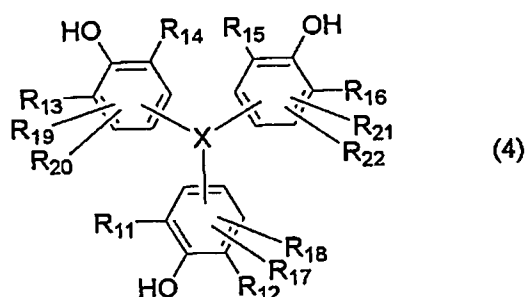
其中 R_1 和 R_2 為相同或不同且代表氫原子、鹵素原子、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，及 R_3 和 R_4 為相同或不同且代表鹵素原子、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基。

15. 如申請專利範圍第 14 項之多官能環氧樹脂，其中該多官能二苯醚低聚物(B)作為聚苯乙烯係具有 700 至 3,000 之數均分子量。

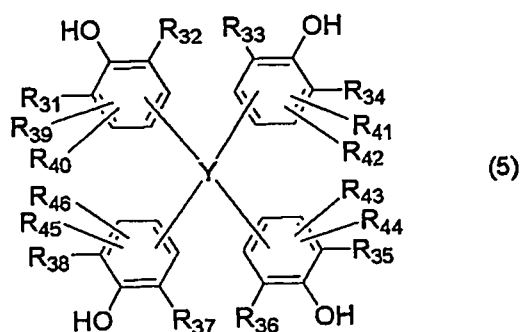
16. 如申請專利範圍第 14 項之多官能環氧樹脂，其中該式(1)所示之一元酚化合物係為式(2)化合物、式(3)化合物或式(2)及式(3)化合物的混合物



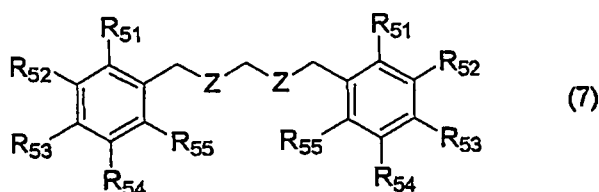
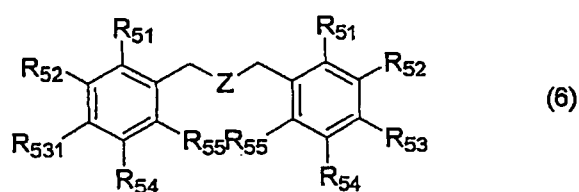
17. 如申請專利範圍第 14 項之多官能環氧樹脂，其中該多官能酚(A)係選自式(4)所示之化合物、式(5)所示之化合物、式(6)所示之化合物及式(7)所示之化合物所組成之組群中之至少一化合物，



其中 X 係具有 1 至 20 個碳原子的烴， R_{11} 及 R_{12} 為相同或不同且代表具有 6 或更少個碳原子的烷基， R_{13} 、 R_{14} 、 R_{15} 及 R_{16} 為相同或不同且代表氫原子、鹵素原子、烷氧基、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，及 R_{17} 、 R_{18} 、 R_{19} 、 R_{20} 、 R_{21} 及 R_{22} 為相同或不同且代表氫原子、烷氧基、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，



其中 Y 係具有 1 至 20 個碳原子的烴， R_{31} 及 R_{32} 為相同或不同且代表具有 6 或更少個碳原子的烷基， R_{33} 、 R_{34} 、 R_{35} 、 R_{36} 、 R_{37} 及 R_{38} 為相同或不同且代表氫原子、鹵素原子、烷氧基、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，及 R_{39} 、 R_{40} 、 R_{41} 、 R_{42} 、 R_{43} 、 R_{44} 、 R_{45} 及 R_{46} 為相同或不同且代表氫原子、烷氧基、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，



其中 Z 為伸苯基，其在至少一個位置具有羥基，並可在其

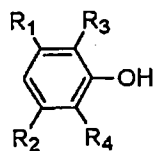
他位置具有取代基， R_{51} 、 R_{53} 及 R_{55} 中至少一個代表羥基，且其他各自代表氫原子、烷氧基、具有6或更少個碳原子的烷基、或苯基，及 R_{52} 和 R_{54} 各自代表氫原子、具有6或更少個碳原子的烷基、或苯基，條件為在一分子中至少一個羥基之第2及6位置上存在相同或不同且係選自烷基及伸烷基所組成之組群的兩個基團。

18. 一種環氧樹脂組成物，其包含申請專利範圍第14項所定義之多官能環氧樹脂。

19. 一種環氧可固化樹脂組成物，其包含申請專利範圍第14項所定義之多官能環氧樹脂及固化劑。

20. 一種環氧固化產物，其係藉由固化申請專利範圍第19項所定義之環氧可固化樹脂組成物而得。

21. 一種具有3至小於9個酚羥基之多官能二苯醚低聚物，該低聚物係藉由每分子具有3至小於9個酚羥基且該3至小於9個酚羥基中之至少一個於第2及6位置上具有相同或不同且係選自烷基及伸烷基所組成之組群的兩個基團的多官能酚(A)，與式(1)所示之一元酚化合物反應而獲得，



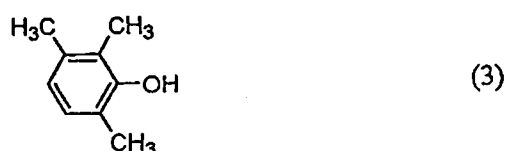
(1)

其中 R_1 和 R_2 為相同或不同且代表氫原子、鹵素原子、具有6或更少個碳原子的烷基、或苯基，及 R_3 和 R_4 為相同或不同且代表鹵素原子、具有6或更少個碳原子的烷基、

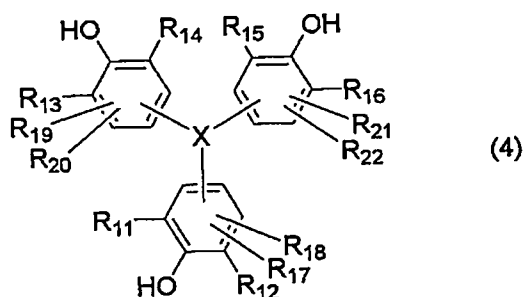
或苯基。

22. 如申請專利範圍第 21 項之多官能二苯醚低聚物，其中該多官能二苯醚低聚物作為聚苯乙烯係具有 700 至 3,000 之數均分子量。

23. 如申請專利範圍第 21 項之多官能二苯醚低聚物，其中該式(1)所示之一元酚化合物係為式(2)化合物、式(3)化合物或式(2)及式(3)化合物的混合物

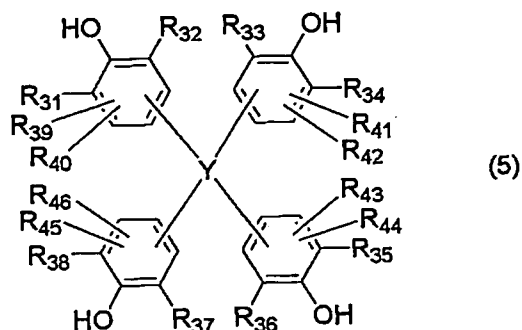


24. 如申請專利範圍第 21 項之多官能二苯醚低聚物，其中該多官能酚(A)係選自式(4)所示之化合物、式(5)所示之化合物、式(6)所示之化合物及式(7)所示之化合物所組成之組群中之至少一化合物，

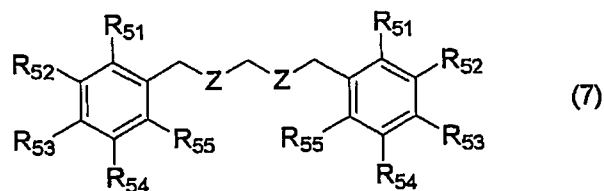
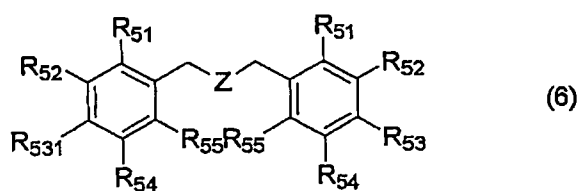


其中 X 係具有 1 至 20 個碳原子的烴， R_{11} 及 R_{12} 為相同或不同且代表具有 6 或更少個碳原子的烷基， R_{13} 、 R_{14} 、 R_{15} 及 R_{16} 為相同或不同且代表氫原子、鹵素原子、烷氧基、具有

6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，及 R_{17} 、 R_{18} 、 R_{19} 、 R_{20} 、 R_{21} 及 R_{22} 為相同或不同且代表氫原子、烷氧基、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，



其中 Y 係具有 1 至 20 個碳原子的烴， R_{31} 及 R_{32} 為相同或不同且代表具有 6 或更少個碳原子的烷基， R_{33} 、 R_{34} 、 R_{35} 、 R_{36} 、 R_{37} 及 R_{38} 為相同或不同且代表氫原子、鹵素原子、烷氧基、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，及 R_{39} 、 R_{40} 、 R_{41} 、 R_{42} 、 R_{43} 、 R_{44} 、 R_{45} 及 R_{46} 為相同或不同且代表氫原子、烷氧基、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，



其中 Z 為伸苯基，其在至少一個位置具有羥基，並可在其他位置具有取代基， R_{51} 、 R_{53} 及 R_{55} 中至少一個代表羥基，且其他各自代表氫原子、烷氧基、具有 6 或更少個碳原子的烷基、或苯基，及 R_{52} 和 R_{54} 各自代表氫原子、具有 6 或

更少個碳原子的烷基、或苯基，條件為在一分子中至少一個羥基之第 2 及 6 位置上存在相同或不同且係選自烷基及伸烷基所組成之組群的兩個基團。

圖 1

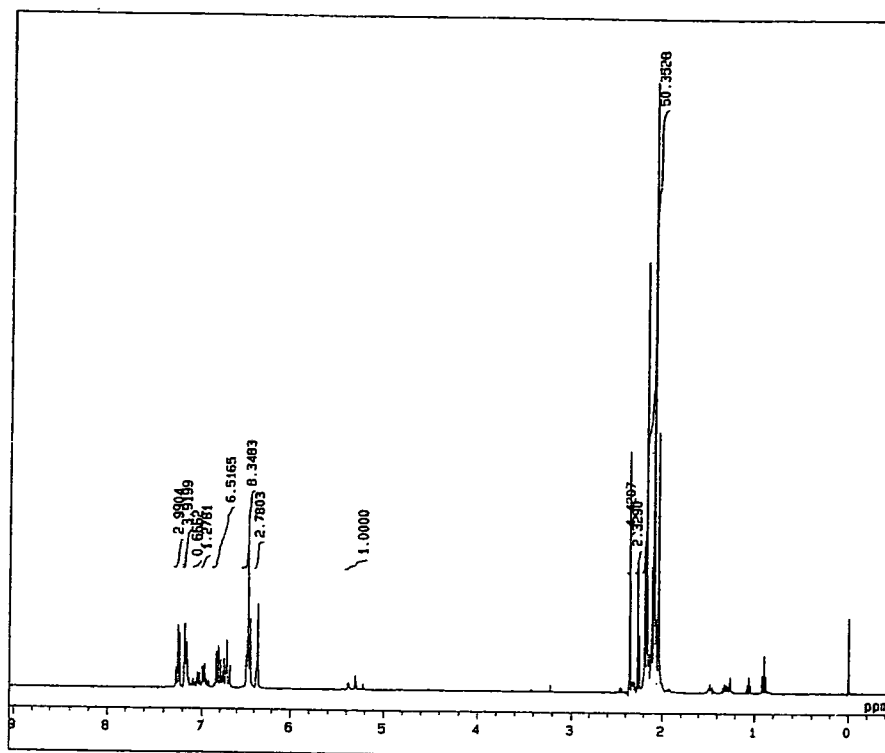


圖 2

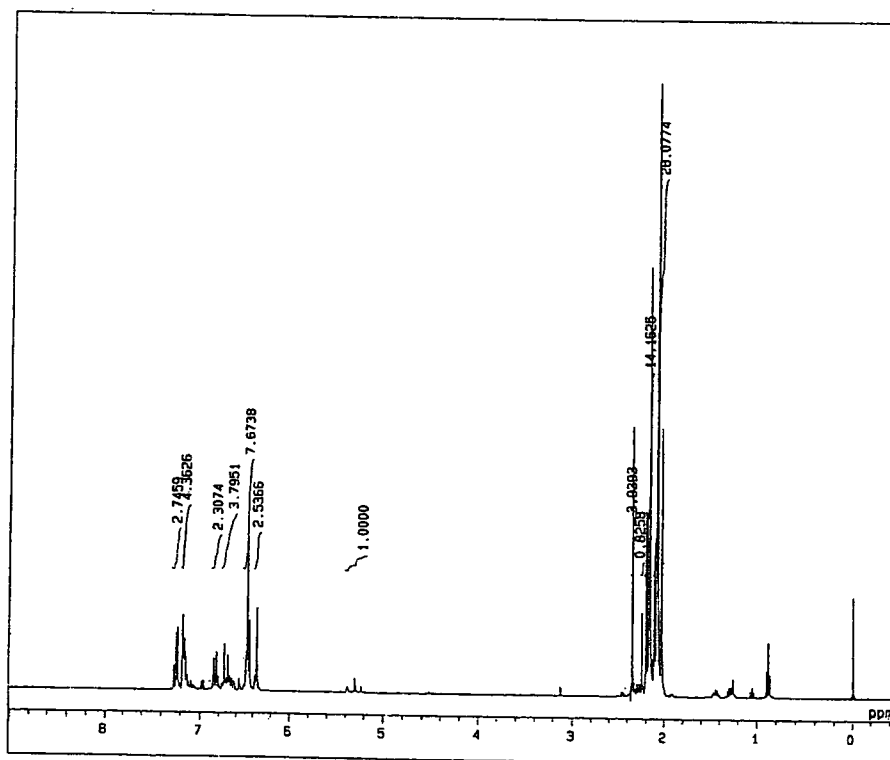


圖 3

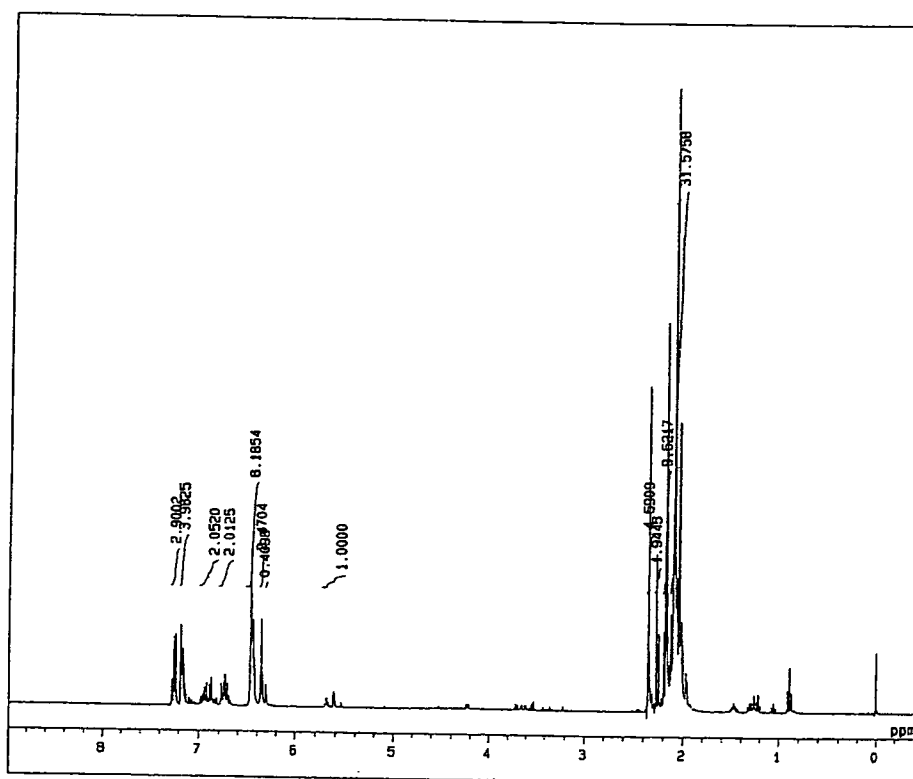


圖 4

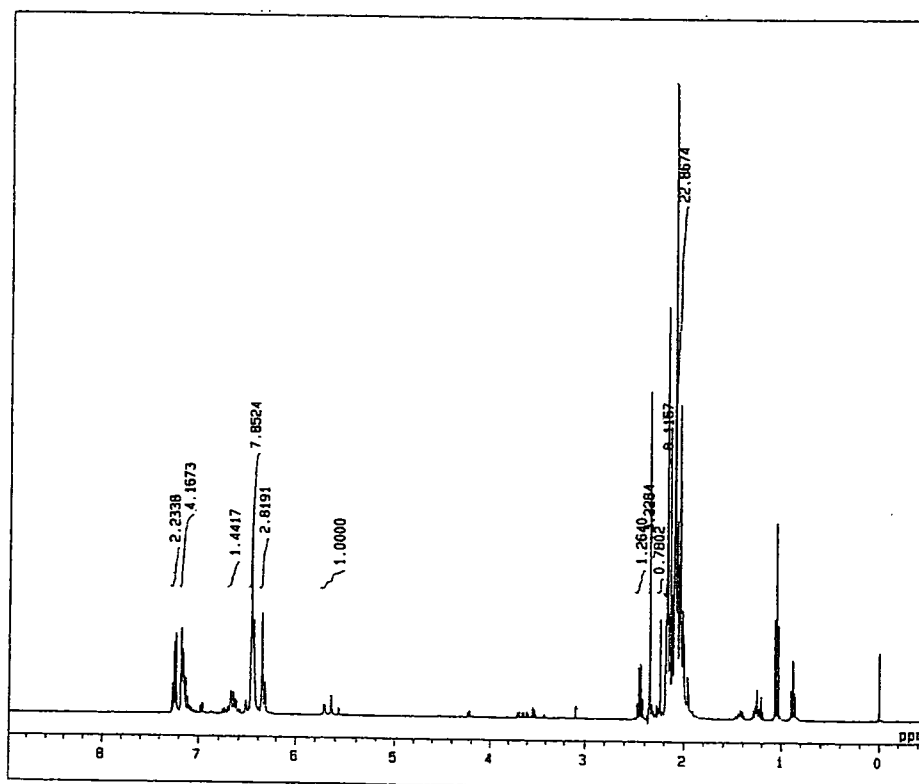


圖 5

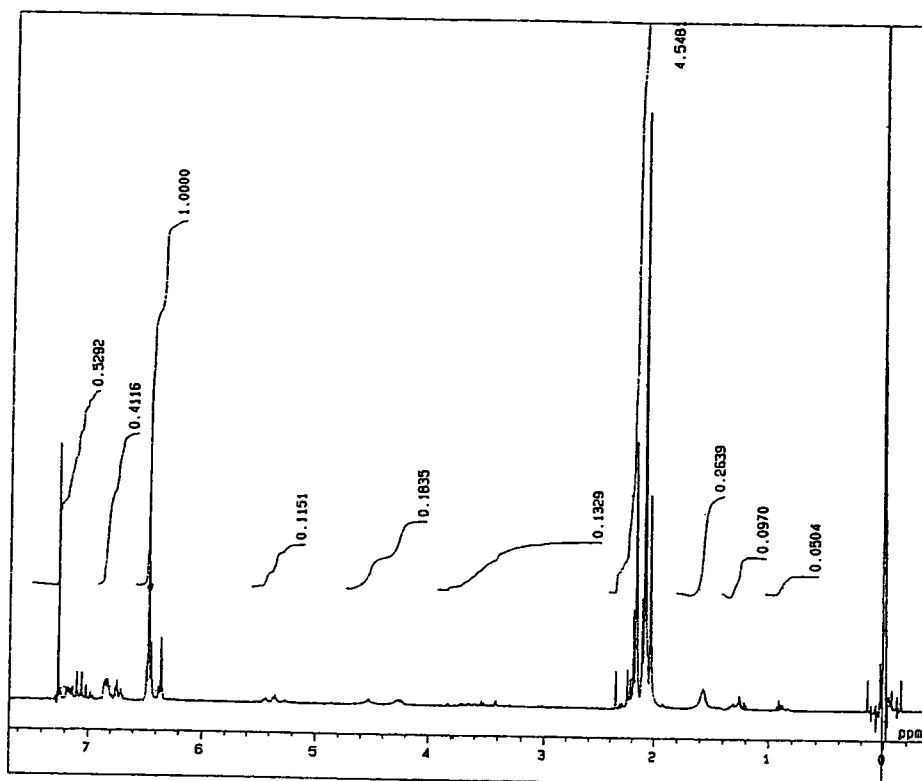


圖 6

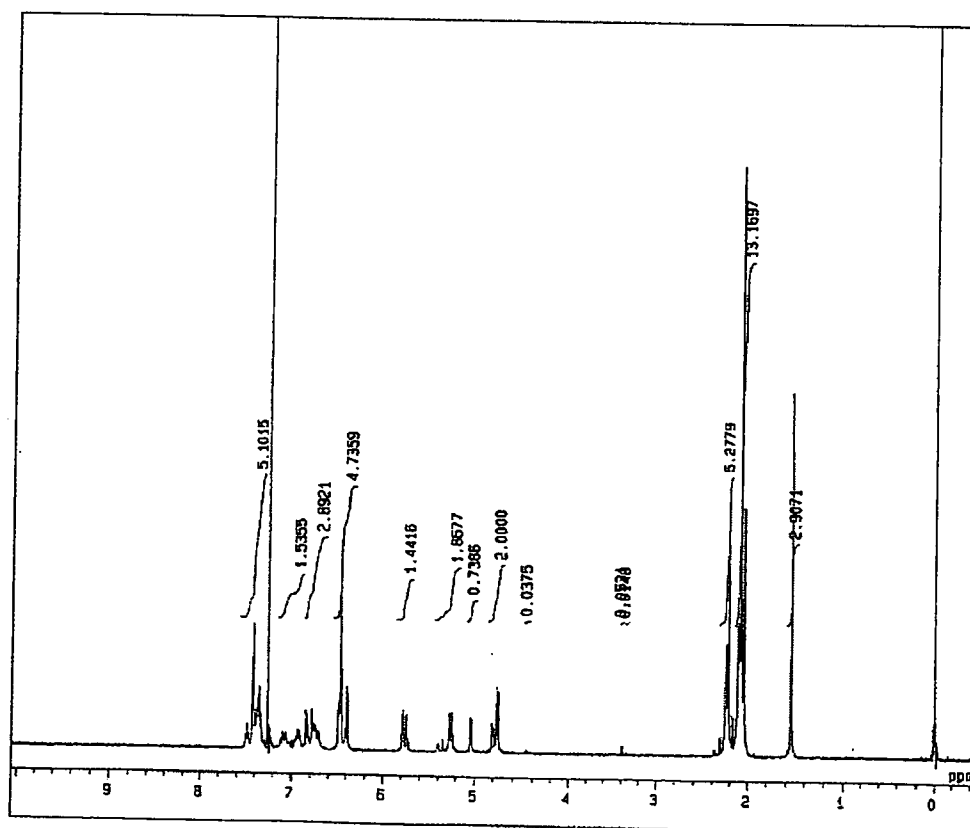
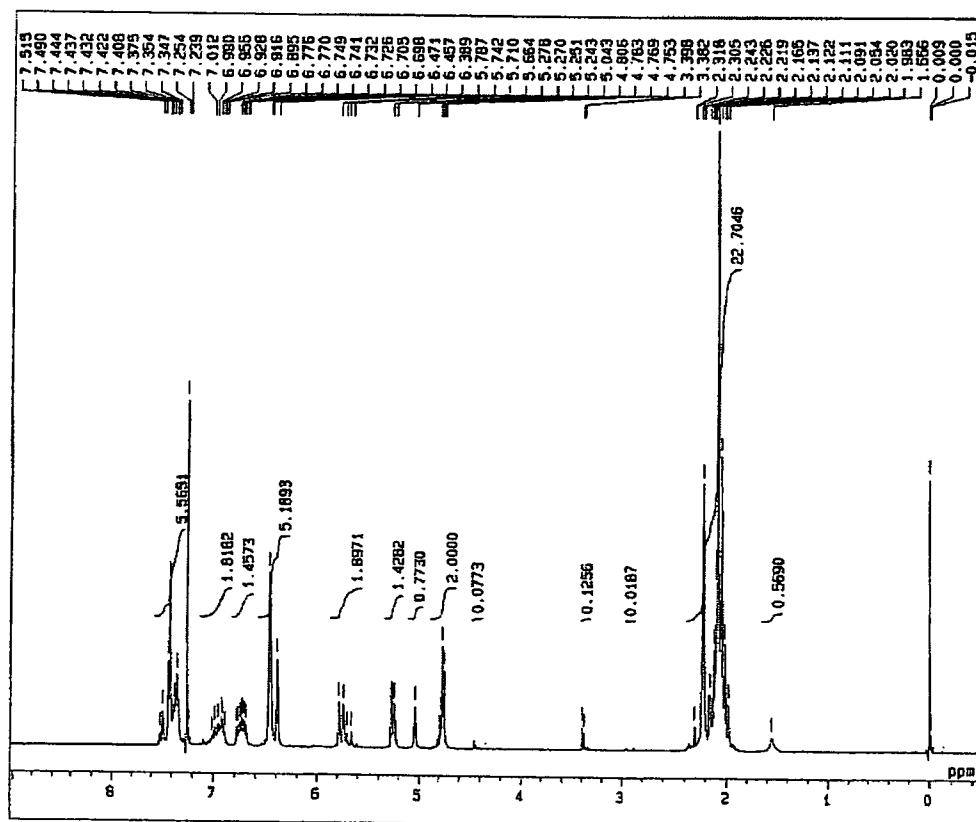
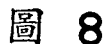
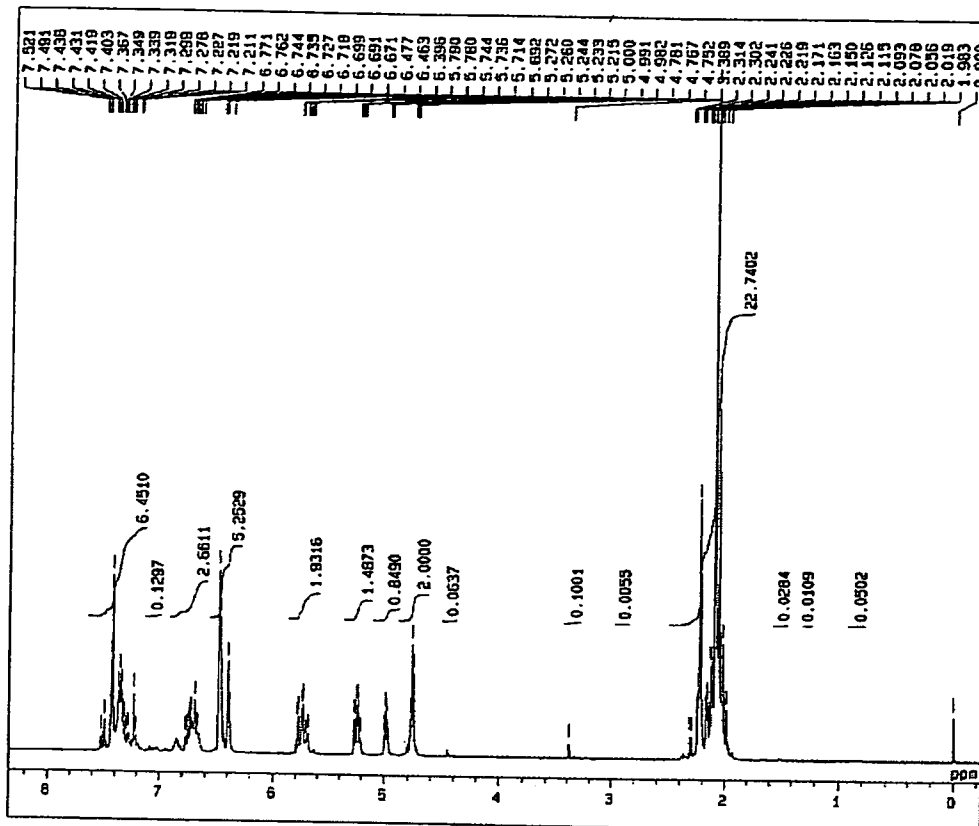


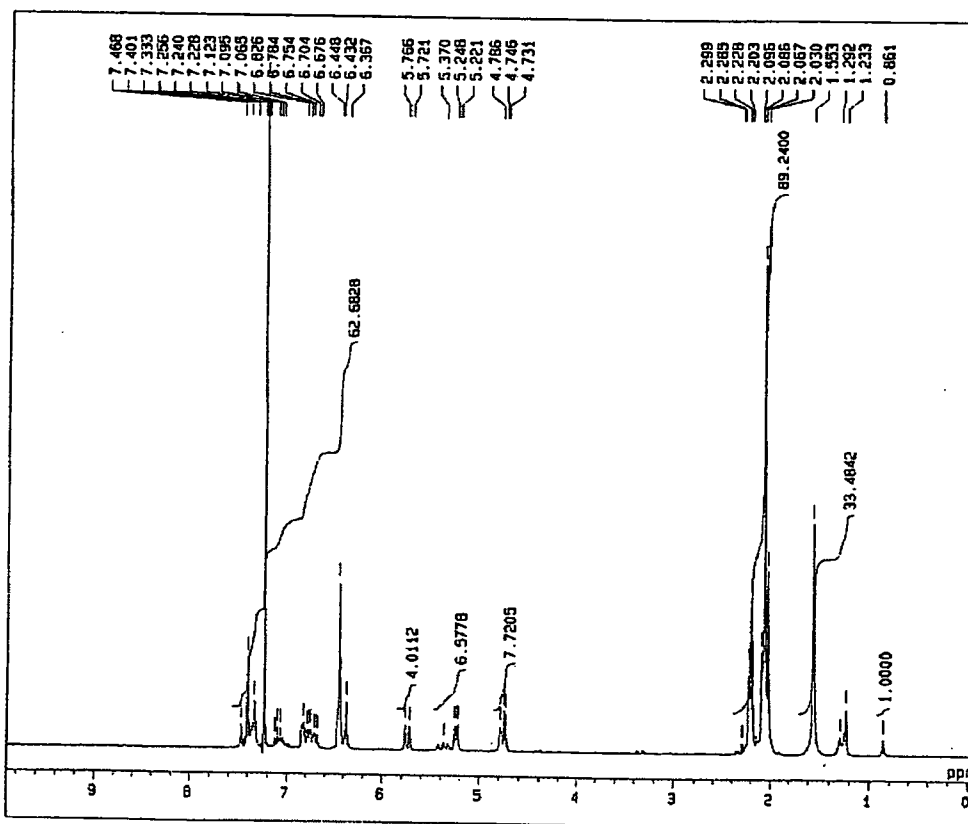
圖 7



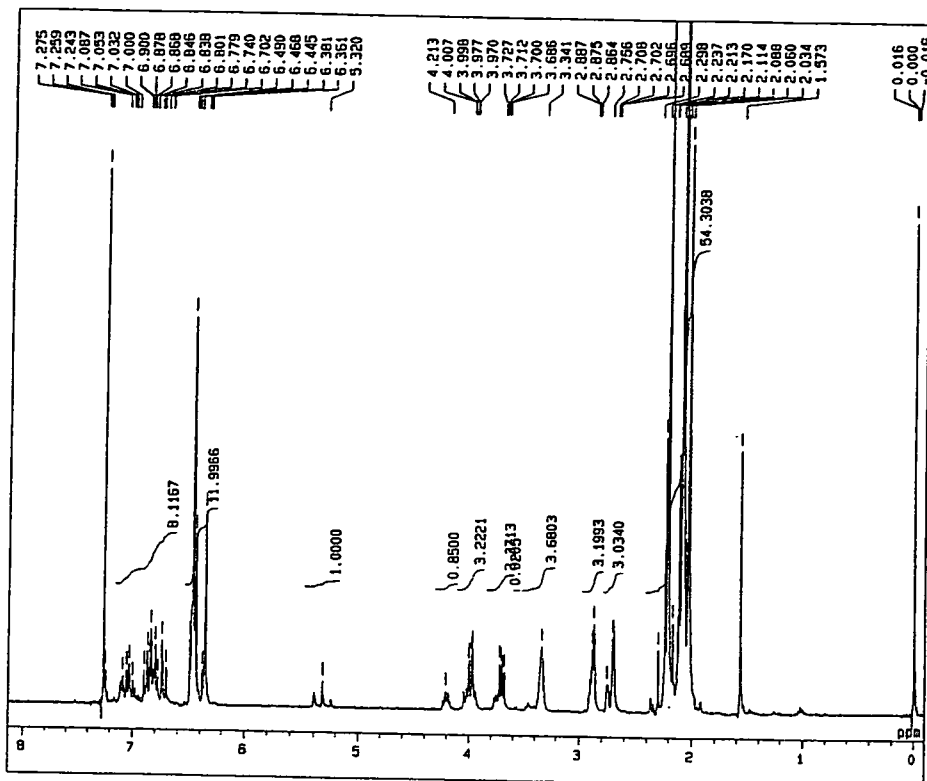
9



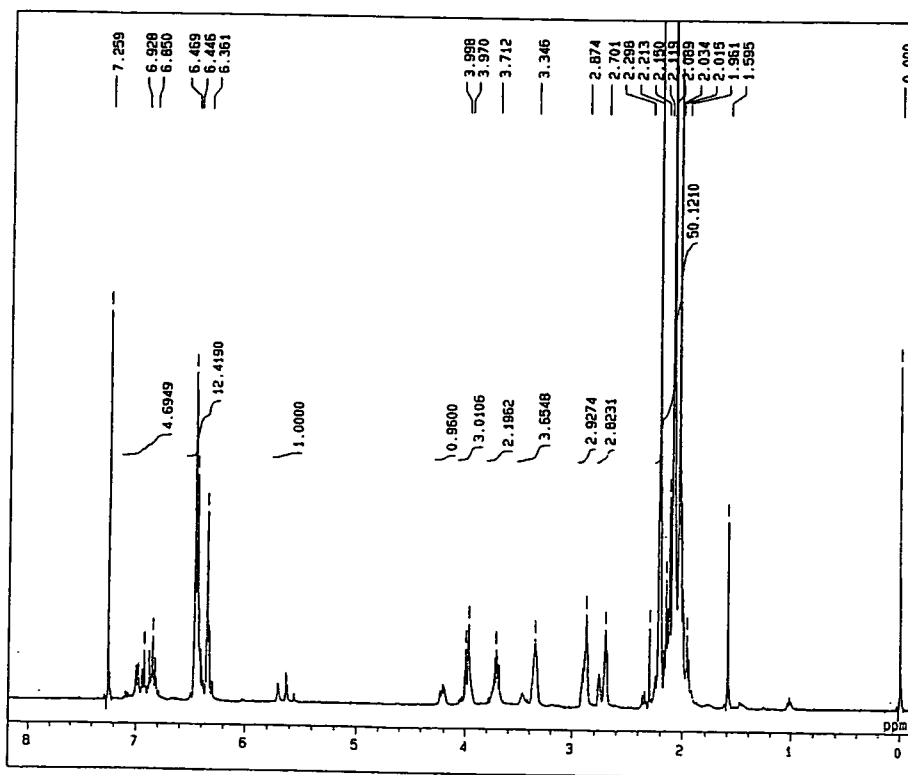
10



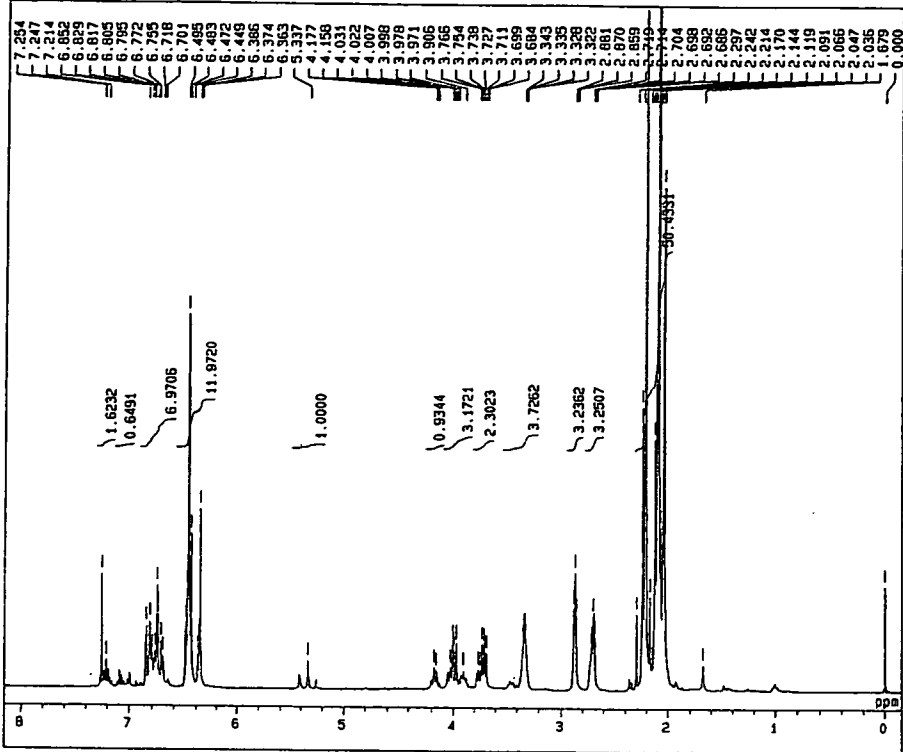
11



12



13



14

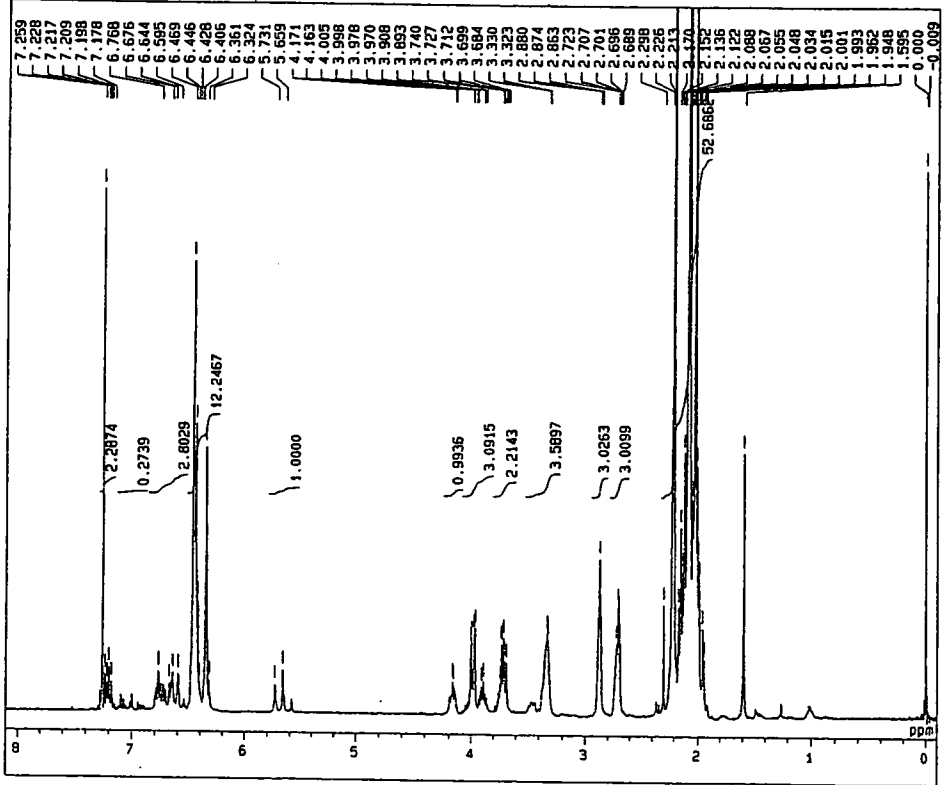


圖 15

