



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I480329 B

(45)公告日：中華民國 104 (2015) 年 04 月 11 日

(21)申請案號：102119061

(22)申請日：中華民國 102 (2013) 年 05 月 30 日

(51)Int. Cl. : C08L71/12 (2006.01)

C08G65/48 (2006.01)

C08G73/06 (2006.01)

B32B5/28 (2006.01)

B32B15/08 (2006.01)

(71)申請人：財團法人工業技術研究院(中華民國) INDUSTRIAL TECHNOLOGY RESEARCH INSTITUTE (TW)

新竹縣竹東鎮中興路4段195號

(72)發明人：莊貴貽 CHUANG, KUEI YI (TW)；廖如仕 LIAO, LU SHIH (TW)；曾峰柏 TSENG, FENG PO (TW)；邱國展 CHIOU, KUO CHAN (TW)

(74)代理人：洪澄文；顏錦順

(56)參考文獻：

TW 201317301A

CN 102344567A

審查人員：吳志明

申請專利範圍項數：4項 圖式數：0 共31頁

(54)名稱

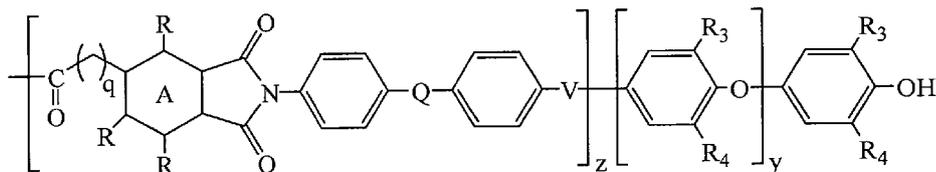
樹脂配方、樹脂聚合物及包含該聚合物之複合材料

RESIN FORMULATIONS, AND RESIN POLYMERS AND COMPOSITE MATERIALS COMPRISING THE RESIN POLYMERS

(57)摘要

本揭露提供一種樹脂配方，包括：5~150 重量份羧酸酐衍生物；6~200 重量份二異氰酸衍生物；13~440 重量份聚氧化二甲苯衍生物；以及 15~520 重量份雙馬來亞醯胺衍生物。本揭露亦提供一種樹脂預聚合物、一種樹脂聚合物及包含該聚合物之複合材料。

The present disclosure provides a resin formulation including 5-150 parts by weight of carboxy anhydride derivatives, 6-200 parts by weight of diisocyanate derivatives, 13-440 parts by weight of polyphenylene ether (PPE) derivatives and 15-520 parts by weight of bismaleimide (BMI) derivatives. The present disclosure also provides a resin prepolymer and resin polymer and a composite material including the resin polymer.



公告本

103年10月24日修正頁(第)對錄

發明摘要

※ 申請案號：102119061

※ 申請日：※IPC 分類：

102.5.30

C08L 21/12 (2006.01)

C08G 65/48 (2006.01)

C08G 23/06 (2006.01)

B32B 5/28 (2006.01)

B32B 15/08 (2006.01)

【發明名稱】

樹脂配方、樹脂聚合物及包含該聚合物之複合材料

Resin formulations, and resin polymers and composite materials comprising the resin polymers

【中文】

本揭露提供一種樹脂配方，包括：5~150 重量份羧酸酐衍生物；6~200 重量份二異氰酸衍生物；13~440 重量份聚氧化二甲苯衍生物；以及 15~520 重量份雙馬來亞醯胺衍生物。本揭露亦提供一種樹脂預聚合物、一種樹脂聚合物及包含該聚合物之複合材料。

【英文】

The present disclosure provides a resin formulation including 5-150 parts by weight of carboxy anhydride derivatives, 6-200 parts by weight of diisocyanate derivatives, 13-440 parts by weight of polyphenylene ether (PPE) derivatives and 15-520 parts by weight of bismaleimide (BMI) derivatives. The present disclosure also provides a resin prepolymer and resin polymer and a composite material including the resin polymer.

修正頁(第)
 107年10月24日對線

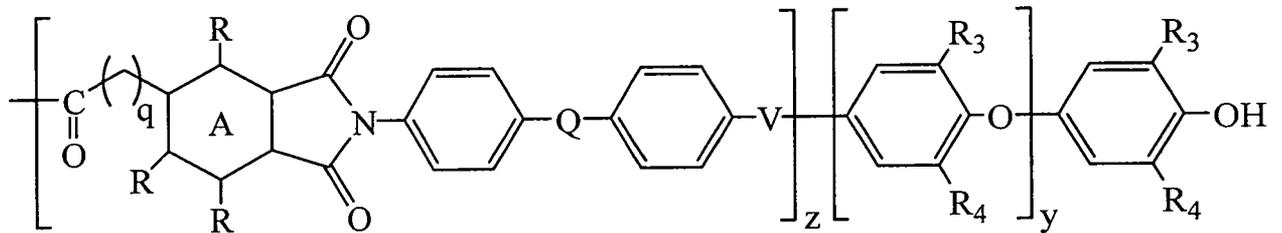
【代表圖】

【本案指定代表圖】：無。

【本代表圖之符號簡單說明】：

無。

【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】：



發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動)

【發明名稱】

樹脂配方、樹脂聚合物及包含該聚合物之複合材料

Resin formulations, and resin polymers and composite materials comprising the resin polymers

【技術領域】

【0001】 本揭露係有關於一種樹脂配方，特別是有關於一種高耐熱之樹脂配方。

【先前技術】

【0002】 在一些有機基板的材料選擇上，除了雙馬來亞醯胺三嗪(Bismaleimide Triazine, BT)樹脂外，尚有環氧樹脂(epoxy resin)為主的耐熱性材料，多數材料尚需搭配耐燃劑，才能達到良好耐燃需求。

【0003】 在無鹵材料配方組成中，一般以選擇磷化物當作耐燃劑，取代現有鹵素化合物，或搭配氫氧化鋁來達成UL-94 V0耐燃需求。然而，磷化物耐燃劑仍存在一些環保疑慮。因此，業界亟需一種能兼具環保、高耐熱性(T_g 超過 180°C)、低介電之樹脂，以因應元件的需求。

【發明內容】

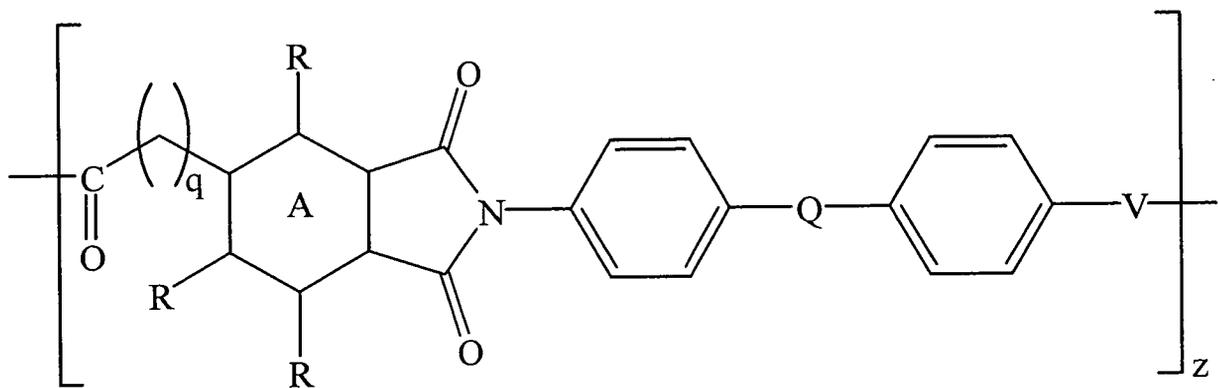
【0004】 本揭露之一實施例，提供一種樹脂配方，包括：5~150重量份羧酸酐(carboxy anhydride)衍生物；6~200重量份二異氰酸(diisocyanate)衍生物；13~440重量份聚氧化二甲苯

103年10月24日 修正頁(中)

(polyphenylene ether, PPE)衍生物；以及15~520重量份雙馬來亞醯胺(bismaleimide, BMI)衍生物。

【0005】 本揭露之一實施例，提供一種樹脂預聚合物，具有下列化學式(I)、(II)、(III)或(IV)：

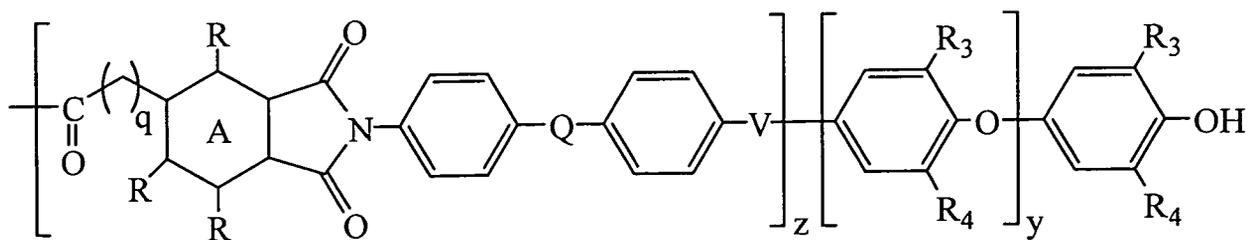
【0006】



(I)

【0007】 化學式(I)中，A包括苯環或環己烷，R獨立地包括-H、-CH₃或-COOH，q介於0~8，Q包括-CH₂-、-C(CH₃)₂-、-O-、-S-、-SO₂-或單鍵，V包括-NH-、-NHCO-或-NHCOO-，以及z介於1~20,000；

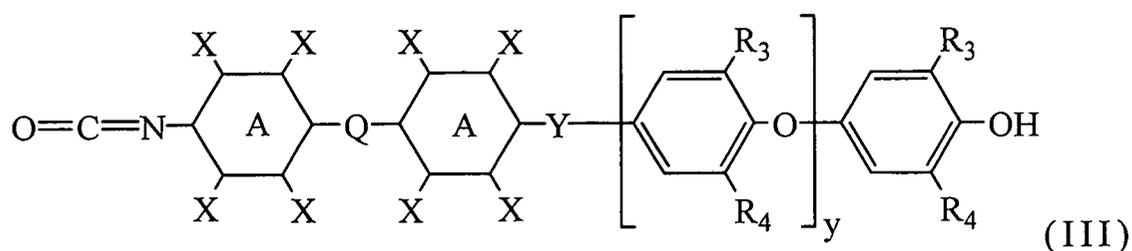
【0008】



(II)

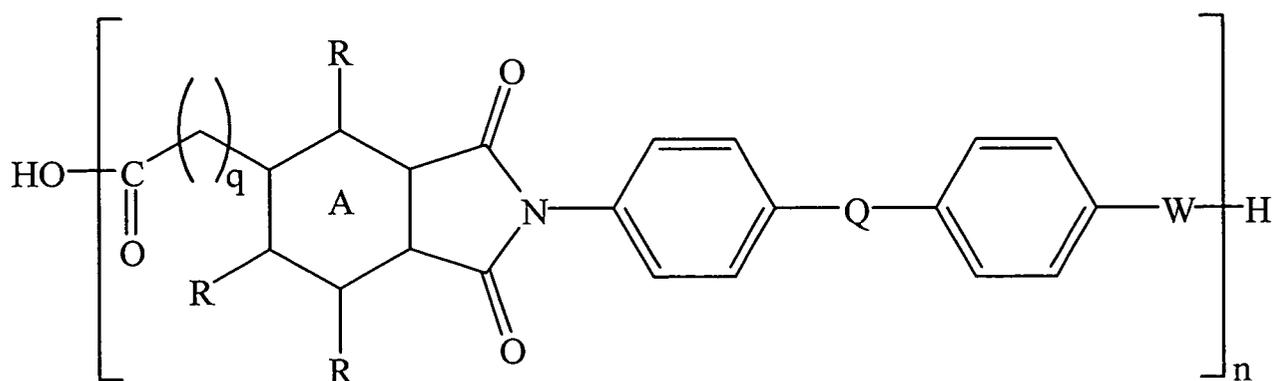
【0009】 化學式(II)中，A包括苯環或環己烷，R獨立地包括-H、-CH₃或-COOH，q介於0~8，Q包括-CH₂-、-C(CH₃)₂-、-O-、-S-、-SO₂-或單鍵，V包括-NH-、-NHCO-或-NHCOO-，z介於1~20,000，R₃與R₄獨立地包括碳數1~5之烷基，以及y介於20~230；

【0010】

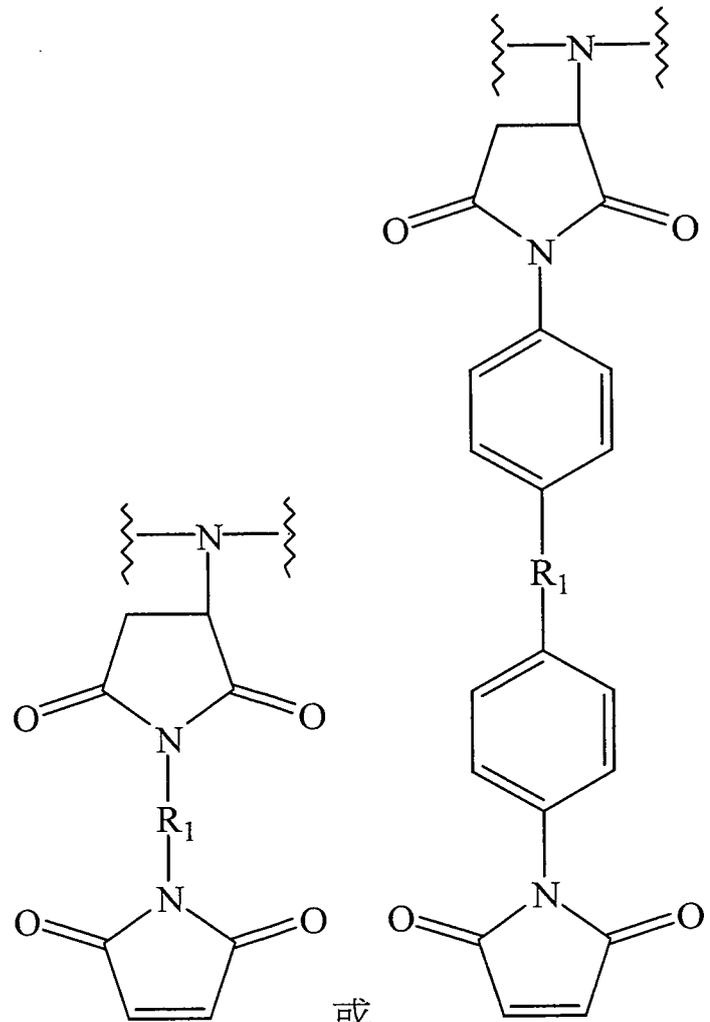


【0011】 化學式(III)中，A包括苯環或環己烷，X獨立地包括-H、-CH₃、-NCO或-CH₂-NCO，Q包括-CH₂-、-C(CH₃)₂-、-O-、-S-、-SO₂-或單鍵，Y包括-NH-、-NHCO-或-NHCOO-，R₃與R₄獨立地包括碳數1~5之烷基，以及y介於20~230；

【0012】

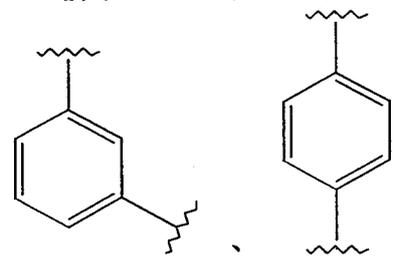


【0013】 化學式(IV)中，A包括苯環或環己烷，R獨立地包括-H、-CH₃或-COOH，q介於0~8，Q包括-CH₂-、-C(CH₃)₂-、-O-

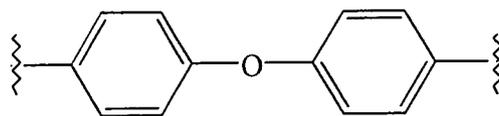
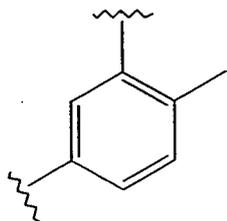


-S-、-SO₂-或單鍵，W包括

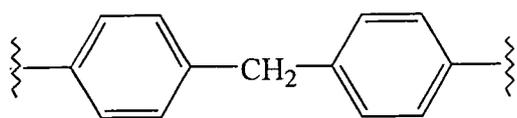
R₁獨立地包括 -(CH₂)₂-、-(CH₂)₆-、-(CH₂)₈-、-(CH₂)₁₂-、



-CH₂-C(CH₃)₂-CH₂-CH(CH₃)-CH₂-CH₂-、



或



，以及n介於1~2,000。

【0014】 本揭露之一實施例，提供一種樹脂聚合物，係由上述之樹脂預聚合物經加熱製備而成。

【0015】 本揭露之一實施例，提供一種複合材料，包括：一基材；以及一上述之樹脂聚合物，形成於該基材上。

【0016】 爲讓本發明之上述目的、特徵及優點能更明顯易懂，下文特舉一較佳實施例，並配合所附的圖式，作詳細說明如下。

【圖式簡單說明】

【0017】

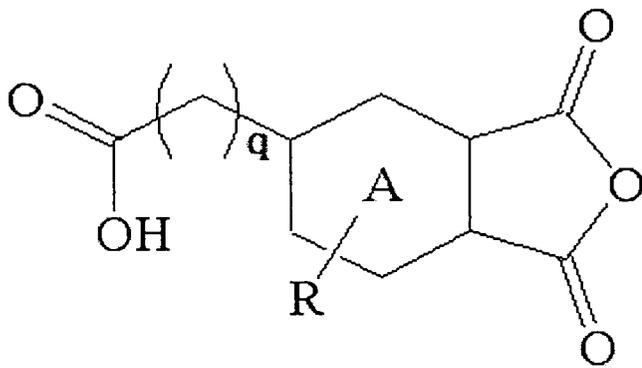
無。

【實施方式】

【0018】 本發明之一實施例，提供一種樹脂配方，包括：5~150重量份羧酸酐(carboxy anhydride)衍生物，例如12~80重量份；6~200重量份二異氰酸(diisocyanate)衍生物，例如20~110重量份；13~440重量份聚氧化二甲苯(polyphenylene ether, PPE)衍生物，例如75~175重量份；以及15~520重量份雙馬來亞醯胺(bismaleimide, BMI)衍生物，例如50~200重量份。

【0019】 上述羧酸酐(carboxy anhydride)衍生物可具有下列化學式：

【0020】

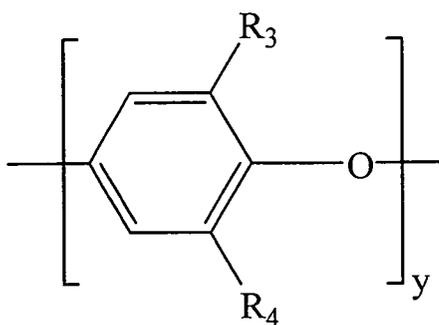


【0021】 此化學式中，A可包括苯環或環己烷，R可包括-H、-CH₃或-COOH，q可介於0~8。本揭露羧酸酐衍生物例如為苯三甲酸酐 (trimellitic anhydride, TMA)、c-TMA (cyclohexane-1,2,4-tricarboxylic acid-1,2-anhydride) 或其組合。

【0022】 上述二異氰酸 (diisocyanate) 衍生物可包括二異氰酸二苯甲烷 (methylene diphenyl diisocyanate, MDI)、二異氰酸甲苯 (toluene diisocyanate, TDI)、二異氰酸異佛爾酮 (isophorone diisocyanate, IPDI) 或其組合。

【0023】 上述聚氧化二甲苯 (polyphenylene ether, PPE) 衍生物可具有下列化學式：

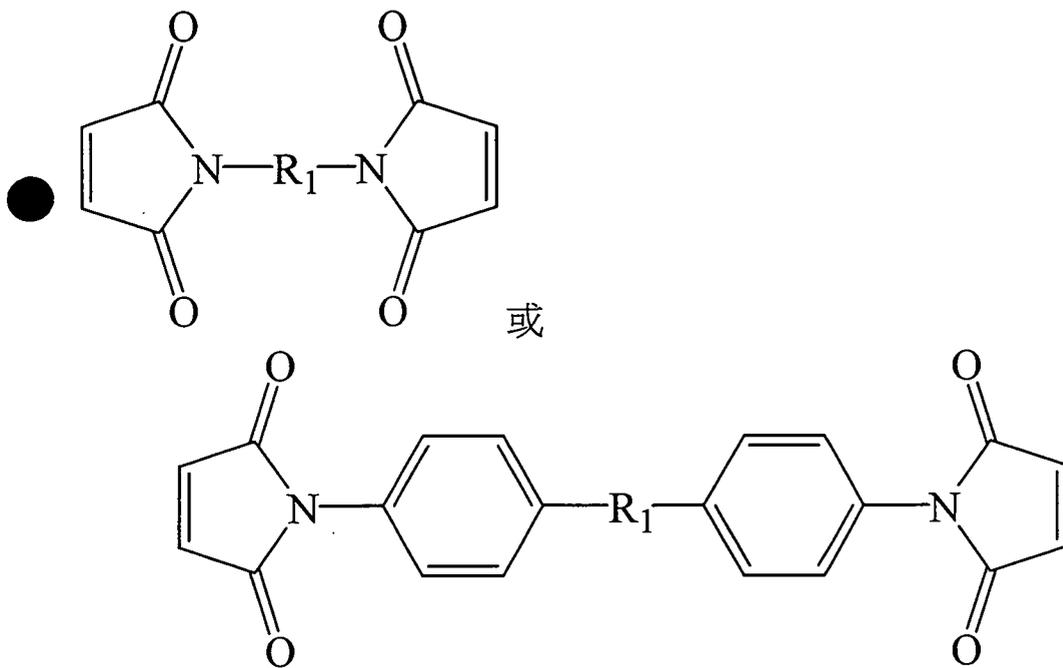
【0024】



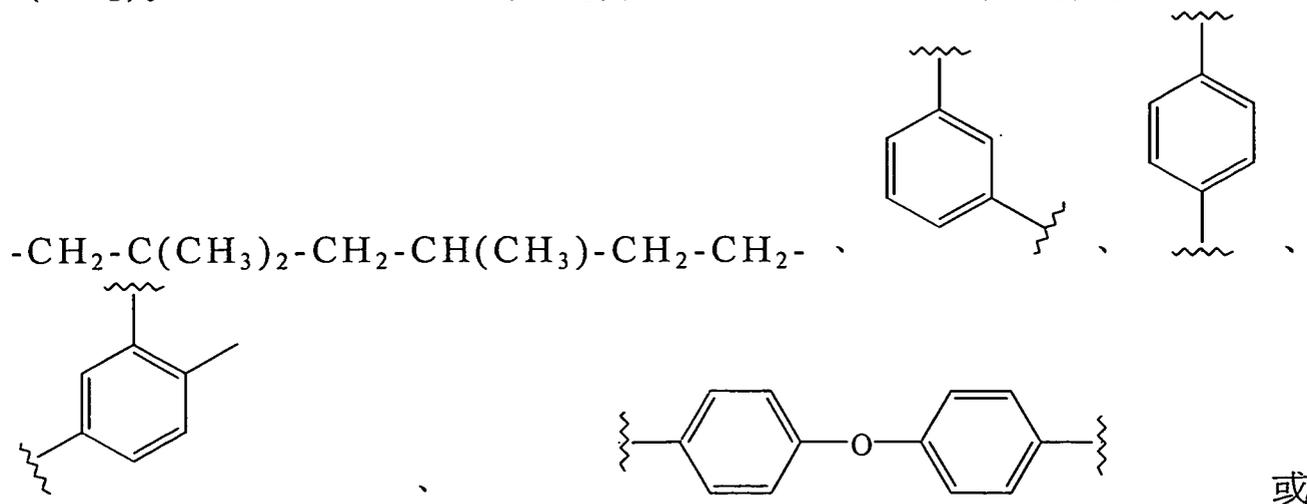
【0025】 此化學式中， R_3 與 R_4 可獨立地包括碳數1~5之烷基， y 可介於20~230。

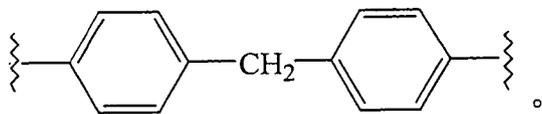
【0026】 上述雙馬來亞醯胺(bismaleimide, BMI)衍生物可具有下列化學式：

【0027】



【0028】 該等化學式中， R_1 可獨立地包括 $-(CH_2)_2-$ 、 $-(CH_2)_6-$ 、 $-(CH_2)_8-$ 、 $-(CH_2)_{12}-$ 、



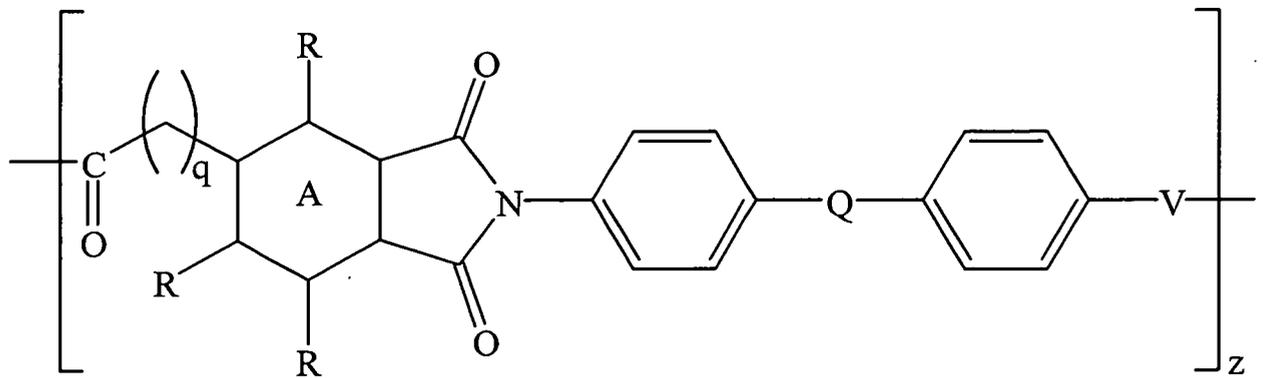


【0029】 樹脂配方之溶劑可依照所使用之二異氰酸 (diisocyanate) 衍生物與雙馬來亞醯胺 (bismaleimide, BMI) 衍生物作適當的選擇，包括但不限於丙酮 (acetone)、丁酮 (methyl ethyl ketone)、丙二醇甲醚 (1-methoxy-2-propanol)、丙二醇甲醚醋酸酯 (1,2-Propanediol monomethyl ether acetate)、甲苯 (toluene)、二甲苯 (xylene)、二甲基甲醯胺 (dimethyl formamide, DMF)、甲基咯烷酮 (N-methyl-2-pyrrolidone, NMP)、二甲基亞? (dimethyl sulfoxide, DMSO) 或其組合。

【0030】 在一實施例中，混合上述羧酸酐 (carboxy anhydride) 衍生物、二異氰酸 (diisocyanate) 衍生物、聚氧化二甲苯 (polyphenylene ether, PPE) 衍生物、雙馬來亞醯胺 (bismaleimide, BMI) 衍生物及溶劑並加熱，以進行一預聚合反應，形成一預聚合物，其反應溫度約介於 80°C 至 140°C，例如約 100°C 至 130°C；反應時間約介於 0.5~6 小時，例如約 1.5~3.5 小時。

【0031】 本發明之一實施例，提供一種樹脂預聚合物，具有下列化學式 (I)、(II)、(III) 或 (IV)：

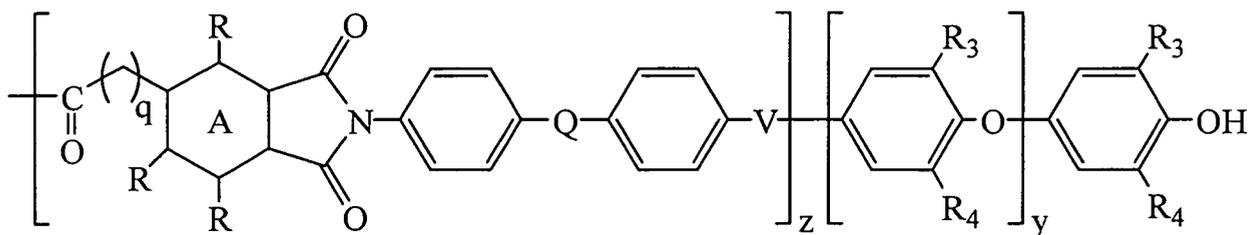
【0032】



(I)

【0033】 化學式(I)中，A可包括苯環或環己烷，R可獨立地包括 -H、-CH₃或-COOH，q可介於0~8，Q可包括-CH₂-、-C(CH₃)₂-、-O-、-S-、-SO₂-或單鍵，V可包括-NH-、-NHCO-或-NHCOO-，以及z可介於1~20,000。

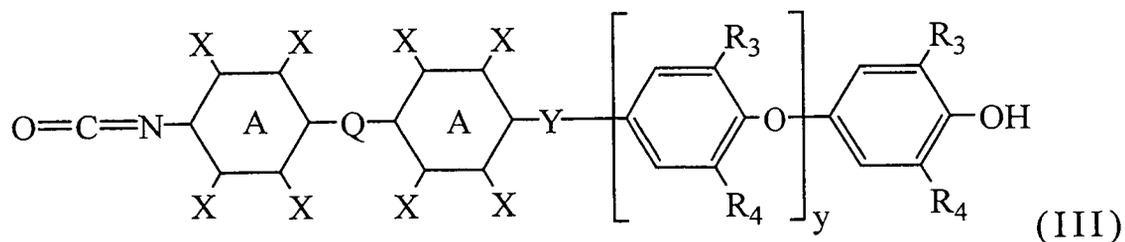
【0034】



(II)

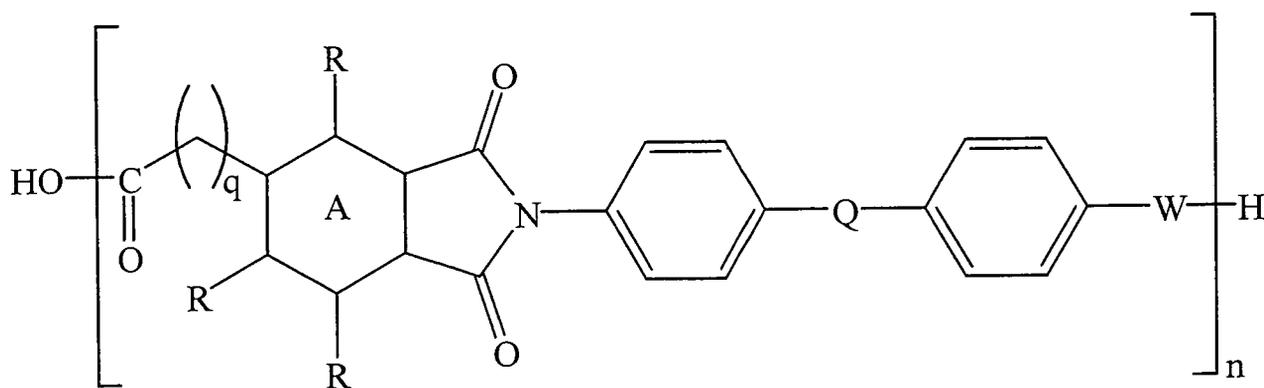
【0035】 化學式(II)中，A可包括苯環或環己烷，R可獨立地包括 -H、-CH₃或-COOH，q可介於0~8，Q可包括-CH₂-、-C(CH₃)₂-、-O-、-S-、-SO₂-或單鍵，V可包括-NH-、-NHCO-或-NHCOO-，z可介於1~20,000，R₃與R₄可獨立地包括碳數1~5之烷基，以及y可介於20~230。

【0036】



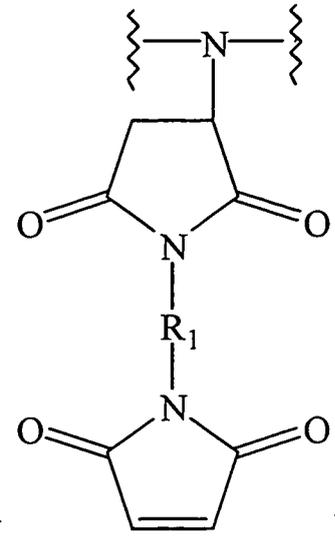
【0037】 化學式(III)中，A可包括苯環或環己烷，X可獨立地包括 -H、-CH₃、-NCO 或 -CH₂-NCO，Q可包括 -CH₂-、-C(CH₃)₂-、-O-、-S-、-SO₂-或單鍵，Y可包括 -NH-、-NHCO-或 -NHCOO-，R₃與R₄可獨立地包括碳數1~5之烷基，以及y可介於20~230。

【0038】



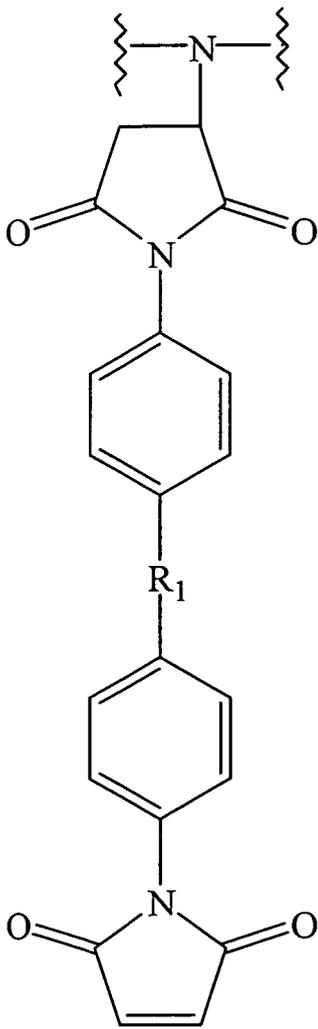
(IV)

【0039】 化學式(IV)中，A可包括苯環或環己烷，R可獨立地包括 -H、-CH₃或 -COOH，q可介於0~8，Q可包括 -CH₂-、



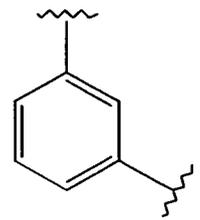
或

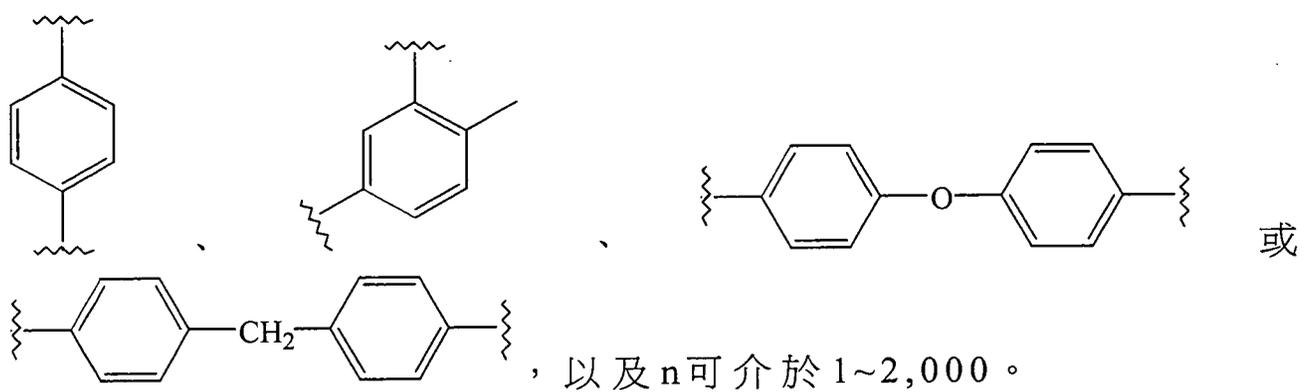
-C(CH₃)₂-、-O-、-S-、-SO₂-或單鍵，W可包括



，R₁可獨立地包括 -(CH₂)₂-、-(CH₂)₆-、-(CH₂)₈-、

-(CH₂)₁₂-、-CH₂-C(CH₃)₂-CH₂-CH(CH₃)-CH₂-CH₂-、





【0040】 本發明之一實施例，提供一種樹脂聚合物，由上述之樹脂預聚合物經加熱製備而成。

【0041】 本發明之一實施例，提供一種複合材料，包括：一基材；以及一上述之樹脂聚合物，形成於基材上。

【0042】 上述基材可包括纖維或金屬。

【0043】 本揭露高耐熱樹脂預聚合物可依實際需要作各種應用。在一實施例中，可利用上述高耐熱樹脂預聚合物溶液製備高耐熱樹脂複合材料，其方法包括：將本揭露高耐熱樹脂預聚合物溶液塗佈於金屬薄片，例如銅箔，約於175~225℃，例如約185~215℃，進行加熱加壓約1~4.5小時，例如約1.5~3.5小時，以獲得一高耐熱樹脂複合材料，其可作為高耐熱基板材料。

【0044】 在另一實施例中，可利用上述高耐熱樹脂預聚合物溶液搭配纖維製備高耐熱樹脂複合材料，其方法包括：將一纖維含浸於本揭露高耐熱樹脂預聚合物溶液，經疊層後加熱加壓。在一實施例中，本揭露高耐熱樹脂複合材料中的纖維可包括玻璃纖維布或聚醯胺纖維。上述加熱硬化步驟約在175~225℃，例如約185~215℃進行，約1~4.5小時，例如約1.5~3.5小時，以獲得一高耐熱樹脂複合材料。

【0045】 經上述製備方法所獲得之樹脂複合材料不含鹵

系、磷系耐燃劑，且不需添加氫氧化鋁等無機難燃粉體即可通過UL94V-0耐燃測試，其介電常數(Dk)範圍約介於3.54~4.51，例如約介於3.54~3.90，且其玻璃轉移溫度(Tg)大於約200℃，例如約介於203~256℃。

【0046】 實施例1

【0047】 複合材料之製備(1)

【0048】 使用1000毫升，3口之玻璃反應器，2片葉輪的攪拌棒，加入50.0g TMA(trimellitic anhydride, Fu-Pao Chemical Co.)、65.8g MDI(methylene diphenyl isocyanate, Fu-Pao Chemical Co.)、140.6gPPE(polyphenylene ether, Chang Chun Plastics Co.)(Mw: 16,000)、165.5g雙馬來亞醯胺(bismaleimide, KI Chemical Co.)、295.3g DMF(dimethylformamide, C-ECHO Co.)及295.3g xylene(C-ECHO Co.)，於125℃下攪拌180分鐘，反應結束後待溫度降至室溫，即得到高耐熱配方膠水(varnish)。最後將玻璃纖維布(南亞塑膠股份有限公司，型號：2116)含浸於配方膠水後，經疊層於200℃下加熱加壓3小時，則可得到高耐熱低介電複合材料。此複合材料的組成及物理特性如表1所示。

【0049】 實施例2

【0050】 複合材料之製備(2)

【0051】 使用1000毫升，3口之玻璃反應器，2片葉輪的攪拌棒，加入50.0g TMA(trimellitic anhydride, Fu-Pao Chemical Co.)、65.8g MDI(methylene diphenyl isocyanate, Fu-Pao Chemical Co.)、168.8gPPE(polyphenylene ether, Chang Chun

Plastics Co.)(Mw: 16,000)、165.5g 雙馬來亞醯胺(bismaleimide, KI Chemical Co.)、295.3g DMF(dimethylformamide, C-ECHO Co.)及295.3g xylene(C-ECHO Co.)，於125°C下攪拌180分鐘，反應結束後待溫度降至室溫，即得到高耐熱配方膠水(varnish)。最後將玻璃纖維布(南亞塑膠股份有限公司，型號：2116)含浸於配方膠水後，經疊層於200°C下加熱加壓3小時，則可得到高耐熱低介電複合材料。此複合材料的組成及物理特性如表1所示。

【0052】 實施例3

【0053】 複合材料之製備(3)

【0054】 使用1000毫升，3口之玻璃反應器，2片葉輪的攪拌棒，加入50.0g TMA(trimellitic anhydride, Fu-Pao Chemical Co.)、65.8g MDI(methylene diphenyl isocyanate, Fu-Pao Chemical Co.)、112.5gPPE(polyphenylene ether, Chang Chun Plastics Co.)(Mw: 16,000)、165.5g 雙馬來亞醯胺(bismaleimide, KI Chemical Co.)、295.3g DMF(dimethylformamide, C-ECHO Co.)及295.3g xylene(C-ECHO Co.)，於125°C下攪拌180分鐘，反應結束後待溫度降至室溫，即得到高耐熱配方膠水(varnish)。最後將玻璃纖維布(南亞塑膠股份有限公司，型號：2116)含浸於配方膠水後，經疊層於200°C下加熱加壓3小時，則可得到高耐熱低介電複合材料。此複合材料的組成及物理特性如表1所示。

【0055】 實施例4

【0056】 複合材料之製備(4)

【0057】 使用1000毫升，3口之玻璃反應器，2片葉輪的攪拌棒，加入50.0g TMA(trimellitic anhydride, Fu-Pao Chemical Co.)、65.8g MDI(methylene diphenyl isocyanate, Fu-Pao Chemical Co.)、84.4gPPE(polyphenylene ether, Chang Chun Plastics Co.)(Mw: 16,000)、165.5g雙馬來亞醯胺(bismaleimide, KI Chemical Co.)、295.3g DMF(dimethylformamide, C-ECHO Co.)及295.3g xylene(C-ECHO Co.)，於125℃下攪拌180分鐘，反應結束後待溫度降至室溫，即得到高耐熱配方膠水(vernish)。最後將玻璃纖維布(南亞塑膠股份有限公司，型號：2116)含浸於配方膠水後，經疊層於200℃下加熱加壓3小時，則可得到高耐熱低介電複合材料。此複合材料的組成及物理特性如表1所示。

【0058】 實施例5

【0059】 複合材料之製備(5)

【0060】 使用1000毫升，3口之玻璃反應器，2片葉輪的攪拌棒，加入14.4g TMA(trimellitic anhydride, Fu-Pao Chemical Co.)、65.8g MDI(methylene diphenyl isocyanate, Fu-Pao Chemical Co.)、140.6gPPE(polyphenylene ether, Chang Chun Plastics Co.)(Mw: 16,000)、165.5g雙馬來亞醯胺(bismaleimide, KI Chemical Co.)、295.3g DMF(dimethylformamide, C-ECHO Co.)及295.3g xylene(C-ECHO Co.)，於125℃下攪拌180分鐘，反應結束後待溫度降至室溫，即得到高耐熱配方膠水(vernish)。最後將玻璃纖維布(南亞塑膠股份有限公司，型號：2116)含浸於配方膠水後，經疊層於200℃下加熱加壓3小時，

則可得到高耐熱低介電複合材料。此複合材料的組成及物理特性如表1所示。

【0061】 實施例6

【0062】 複合材料之製備(6)

【0063】 使用1000毫升，3口之玻璃反應器，2片葉輪的攪拌棒，加入60.0g TMA(trimellitic anhydride, Fu-Pao Chemical Co.)、39.1g MDI(methylene diphenyl isocyanate, Fu-Pao Chemical Co.)、140.6gPPE(polyphenylene ether, Chang Chun Plastics Co.)(Mw: 16,000)、165.5g雙馬來亞醯胺(bismaleimide, KI Chemical Co.)、295.3g DMF(dimethylformamide, C-ECHO Co.)及295.3g xylene(C-ECHO Co.)，於125℃下攪拌180分鐘，反應結束後待溫度降至室溫，即得到高耐熱配方膠水(varnish)。最後將玻璃纖維布(南亞塑膠股份有限公司，型號：2116)含浸於配方膠水後，經疊層於200℃下加熱加壓3小時，則可得到高耐熱低介電複合材料。此複合材料的組成及物理特性如表1所示。

【0064】 實施例7

【0065】 複合材料之製備(7)

【0066】 使用1000毫升，3口之玻璃反應器，2片葉輪的攪拌棒，加入14.4g TMA(trimellitic anhydride, Fu-Pao Chemical Co.)、65.8g MDI(methylene diphenyl isocyanate, Fu-Pao Chemical Co.)、140.6gPPE(polyphenylene ether, Chang Chun Plastics Co.)(Mw: 16,000)、114.7g雙馬來亞醯胺(bismaleimide, KI Chemical Co.)、295.3g DMF(dimethylformamide, C-ECHO

Co.)及295.3g xylene(C-ECHO Co.)，於125℃下攪拌180分鐘，反應結束後待溫度降至室溫，即得到高耐熱配方膠水(varnish)。最後將玻璃纖維布(南亞塑膠股份有限公司，型號：2116)含浸於配方膠水後，經疊層於200℃下加熱加壓3小時，則可得到高耐熱低介電複合材料。此複合材料的組成及物理特性如表1所示。

【0067】 實施例8

【0068】 複合材料之製備(8)

【0069】 使用1000毫升，3口之玻璃反應器，2片葉輪的攪拌棒，加入50.0g TMA(trimellitic anhydride, Fu-Pao Chemical Co.)、97.7g MDI(methylene diphenyl isocyanate, Fu-Pao Chemical Co.)、94.0gPPE(polyphenylene ether, Chang Chun Plastics Co.)(Mw: 16,000)、165.5g雙馬來亞醯胺(bismaleimide, KI Chemical Co.)、295.3g DMF(dimethylformamide, C-ECHO Co.)及295.3g xylene(C-ECHO Co.)，於125℃下攪拌180分鐘，反應結束後待溫度降至室溫，即得到高耐熱配方膠水(varnish)。最後將玻璃纖維布(南亞塑膠股份有限公司，型號：2116)含浸於配方膠水後，經疊層於200℃下加熱加壓3小時，則可得到高耐熱低介電複合材料。此複合材料的組成及物理特性如表1所示。

【0070】 實施例9

【0071】 複合材料之製備(9)

【0072】 使用1000毫升，3口之玻璃反應器，2片葉輪的攪拌棒，加入50.0g TMA(trimellitic anhydride, Fu-Pao Chemical

Co.)、65.8g MDI(methylene diphenyl isocyanate, Fu-Pao Chemical Co.)、140.6gPPE(polyphenylene ether, Chang Chun Plastics Co.)(Mw: 16,000)、69.5g雙馬來亞醯胺(bismaleimide, KI Chemical Co.)、295.3g DMF(dimethylformamide, C-ECHO Co.)及295.3g xylene(C-ECHO Co.)，於125℃下攪拌180分鐘，反應結束後待溫度降至室溫，即得到高耐熱配方膠水(varnish)。最後將玻璃纖維布(南亞塑膠股份有限公司，型號：2116)含浸於配方膠水後，經疊層於200℃下加熱加壓3小時，則可得到高耐熱低介電複合材料。此複合材料的組成及物理特性如表1所示。

【0073】 實施例10

【0074】 複合材料之製備(10)

【0075】 使用1000毫升，3口之玻璃反應器，2片葉輪的攪拌棒，加入50.0g TMA(trimellitic anhydride, Fu-Pao Chemical Co.)、65.8g MDI(methylene diphenyl isocyanate, Fu-Pao Chemical Co.)、140.6gPPE(polyphenylene ether, Chang Chun Plastics Co.)(Mw: 20,000)、165.5g雙馬來亞醯胺(bismaleimide, KI Chemical Co.)、295.3g DMF(dimethylformamide, C-ECHO Co.)及295.3g xylene(C-ECHO Co.)，於125℃下攪拌180分鐘，反應結束後待溫度降至室溫，即得到高耐熱配方膠水(varnish)。最後將玻璃纖維布(南亞塑膠股份有限公司，型號：2116)含浸於配方膠水後，經疊層於200℃下加熱加壓3小時，則可得到高耐熱低介電複合材料。此複合材料的組成及物理特性如表1所示。

【0076】 實施例 11

【0077】 複合材料之製備 (11)

【0078】 使用 1000 毫升，3 口之玻璃反應器，2 片葉輪的攪拌棒，加入 50.0g TMA(trimellitic anhydride, Fu-Pao Chemical Co.)、65.8g MDI(methylene diphenyl isocyanate, Fu-Pao Chemical Co.)、84.4gPPE(polyphenylene ether, Chang Chun Plastics Co.)(Mw: 20,000)、165.5g 雙馬來亞醯胺(bismaleimide, KI Chemical Co.)、295.3g DMF(dimethylformamide, C-ECHO Co.)及 295.3g xylene(C-ECHO Co.)，於 125°C 下攪拌 180 分鐘，反應結束後待溫度降至室溫，即得到高耐熱配方膠水 (varnish)。最後將玻璃纖維布(南亞塑膠股份有限公司，型號：2116)含浸於配方膠水後，經疊層於 200°C 下加熱加壓 3 小時，則可得到高耐熱低介電複合材料。此複合材料的組成及物理特性如表 1 所示。

【0079】 比較實施例 1

【0080】 複合材料之製備 (1)

【0081】 使用 1000 毫升，3 口之玻璃反應器，2 片葉輪的攪拌棒，加入 65.8g MDI(methylene diphenyl isocyanate, Fu-Pao Chemical Co.)、140.6gPPE(polyphenylene ether, Chang Chun Plastics Co.)(Mw: 16,000)、165.5g 雙馬來亞醯胺(bismaleimide, KI Chemical Co.)、295.3g DMF(dimethylformamide, C-ECHO Co.)及 295.3g xylene(C-ECHO Co.)，於 125°C 下攪拌 180 分鐘，反應結束後待溫度降至室溫，即得到高耐熱配方膠水 (varnish)。最後將玻璃纖維布(南亞塑膠股份有限公司，型號：

2116)含浸於配方膠水後，經疊層於200℃下加熱加壓3小時，則可得到高耐熱低介電複合材料。此複合材料的組成及物理特性如表1所示。

【0082】 比較實施例2

【0083】 複合材料之製備(2)

【0084】 使用1000毫升，3口之玻璃反應器，2片葉輪的攪拌棒，加入140.6gPPE(polyphenylene ether, Chang Chun Plastics Co.)(Mw: 16,000)、165.5g雙馬來亞醯胺(bismaleimide, KI Chemical Co.)、295.3g DMF(dimethylformamide, C-ECHO Co.)及295.3g xylene(C-ECHO Co.)，於125℃下攪拌180分鐘，反應結束後待溫度降至室溫，即得到高耐熱配方膠水(vernish)。最後將玻璃纖維布(南亞塑膠股份有限公司，型號：2116)含浸於配方膠水後，經疊層於200℃下加熱加壓3小時，則可得到高耐熱低介電複合材料。此複合材料的組成及物理特性如表1所示。

【0085】 比較實施例3

【0086】 複合材料之製備(3)

【0087】 使用1000毫升，3口之玻璃反應器，2片葉輪的攪拌棒，加入65.8g MDI(methylene diphenyl isocyanate, Fu-Pao Chemical Co.)、165.5g雙馬來亞醯胺(bismaleimide, KI Chemical Co.)及445g DMF(dimethylformamide, C-ECHO Co.)，於105℃下攪拌180分鐘，反應結束後待溫度降至室溫，即得到高耐熱配方膠水(vernish)。最後將玻璃纖維布(南亞塑膠股份有限公司，型號：2116)含浸於配方膠水後，經疊層於200

℃下加熱加壓3小時，則可得到高耐熱低介電複合材料。此複合材料的組成及物理特性如表1所示。

【0088】 比較實施例4

【0089】 複合材料之製備(4)

【0090】 使用1000毫升，3口之玻璃反應器，2片葉輪的攪拌棒，加入50.0g TMA(trimellitic anhydride, Fu-Pao Chemical Co.)、65.8g MDI(methylene diphenyl isocyanate, Fu-Pao Chemical Co.)、165.5g 雙馬來亞醯胺(bismaleimide, KI Chemical Co.)及532g DMF(dimethylformamide, C-ECHO Co.)，於105℃下攪拌180分鐘，反應結束後待溫度降至室溫，即得到高耐熱配方膠水(varnish)。最後將玻璃纖維布(南亞塑膠股份有限公司，型號：2116)含浸於配方膠水後，經疊層於200℃下加熱加壓3小時，則可得到高耐熱低介電複合材料。此複合材料的組成及物理特性如表1所示。

【0091】 比較實施例5

【0092】 複合材料之製備(5)

【0093】 使用1000毫升，3口之玻璃反應器，2片葉輪的攪拌棒，加入50.0g TMA(trimellitic anhydride, Fu-Pao Chemical Co.)、65.8g MDI(methylene diphenyl isocyanate, Fu-Pao Chemical Co.)、140.6gPPE(polyphenylene ether, Chang Chun Plastics Co.)(Mw: 16,000)、295.3g DMF(dimethylformamide, C-ECHO Co.)及295.3g xylene(C-ECHO Co.)，於125℃下攪拌180分鐘，反應結束後待溫度降至室溫，即得到高耐熱配方膠水(varnish)。最後將玻璃纖維布(南亞塑膠股份有限公司，型號：

2116)含浸於配方膠水後，經疊層於200℃下加熱加壓3小時，則可得到高耐熱低介電複合材料。此複合材料的組成及物理特性如表1所示。

表 1

	TMA (g)	MDI (g)	PPE1 (g)	PPE2 (g)	BMI (g)	Dk @2GHz	Df @2GHz	Tg (°C)	Td _{5%} (°C)	UL-94
實施例1	50.0	65.8	140.6	X	165.5	3.55	0.011	256	413	V0
實施例2	50.0	65.8	168.8	X	165.5	3.54	0.010	205	454	V0
實施例3	50.0	65.8	112.5	X	165.5	3.73	0.012	217	443	V0
實施例4	50.0	65.8	84.4	X	165.5	3.71	0.012	216	446	V0
實施例5	14.4	65.8	140.6	X	165.5	3.62	0.010	213	403	V0
實施例6	60.0	39.1	140.6	X	165.5	3.81	0.015	245	404	V0
實施例7	14.4	65.8	140.6	X	114.7	3.87	0.013	203	405	V0
實施例8	50.0	97.7	94.0	X	165.5	3.90	0.018	241	425	V0
實施例9	50.0	65.8	140.6	X	69.5	3.69	0.011	214	412	V0
實施例10	50.0	65.8	X	140.6	165.5	3.54	0.011	206	408	V0
實施例11	50.0	65.8	X	84.4	165.5	3.88	0.017	213	407	V0
比較例1	X	65.8	140.6	X	165.5	4.23	0.019	186	388	V2
比較例2	X	X	140.6	X	165.5	4.28	0.018	195	394	V1
比較例3	X	65.8	X	X	165.5	4.51	0.025	206	407	V2
比較例4	50.0	65.8	X	X	165.5	4.22	0.019	258	461	V0
比較例5	50.0	65.8	140.6	X	X	3.53	0.010	194	398	V0

TMA: 苯三甲酸酐(trimellitic anhydride)

MDI: 二異氰酸二苯甲烷(methylene diphenyl diisocyanate)

PPE1: 聚氧化二甲苯(polyphenylene ether)(Mw: 16,000)

PPE2: 聚氧化二甲苯(polyphenylene ether)(Mw: 20,000)

BMI: 雙馬來亞醯胺(bismaleimide)

Dk: 介電常數(dielectric constant)

Df: 散逸因子(dissipation factor)

T_g: 玻璃轉換溫度(glass transition temperature)

T_{d5%}: 分解溫度(decomposition temperature)

【0094】 由表1可知實施例1~11皆具有良好耐燃特性，明顯優於比較例。上述實施例所提供之樹脂複合材料兼具環保、高耐熱及低介電之特性，其T_g超過200℃，且其環保高耐熱特性使其適應於更高溫無鉛材料製程，可對未來之高溫無鉛的需求提供助益，其化學組成及物理性質可與電子元件系統結合且相配合，具有環保綠色材料的機械性質，為極佳的高耐熱低介電絕緣複合材料。

【0095】 雖然本發明已以數個較佳實施例揭露如上，然其並非用以限定本發明，任何所屬技術領域中具有通常知識者，在不脫離本發明之精神和範圍內，當可作任意之更動與潤飾，因此本發明之保護範圍當視後附之申請專利範圍所界定者為準。

【符號說明】

【0096】

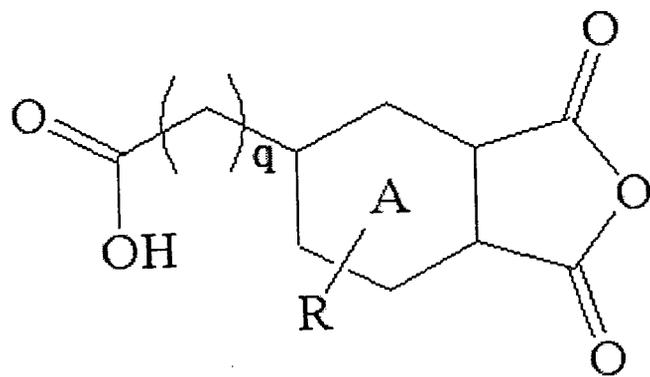
無。

修正
對號
頁(本)
日期
年

申請專利範圍

1. 一種樹脂配方，包括：

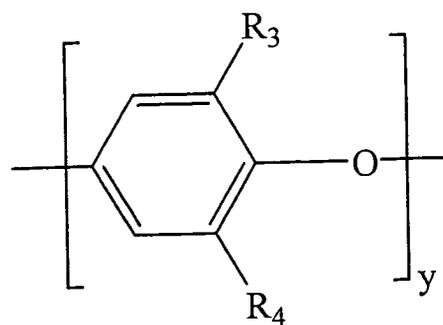
5~150重量份羧酸酐(carboxy anhydride)衍生物，其中該羧酸酐衍生物具有化學式



(A包括苯環或環己烷，R包括-H或-CH₃，q介於0~8)；

6~200重量份二異氰酸(diisocyanate)衍生物，其中該二異氰酸衍生物包括二異氰酸二苯甲烷(methylene diphenyl diisocyanate, MDI)、二異氰酸甲苯(toluene diisocyanate, TDI)、二異氰酸異佛爾酮(isophorone diisocyanate, IPDI)或其組合；

13~440重量份聚氧化二甲苯(polyphenylene ether, PPE)衍生物，其中該聚氧化二甲苯衍生物具有化學式

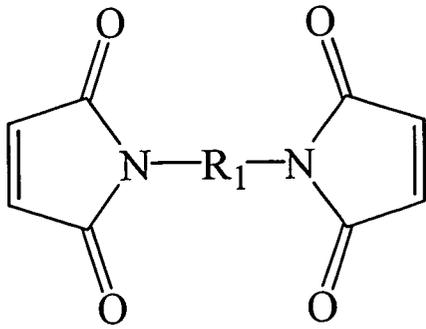


(R₃與R₄獨立地包括碳數1~5之烷基，y

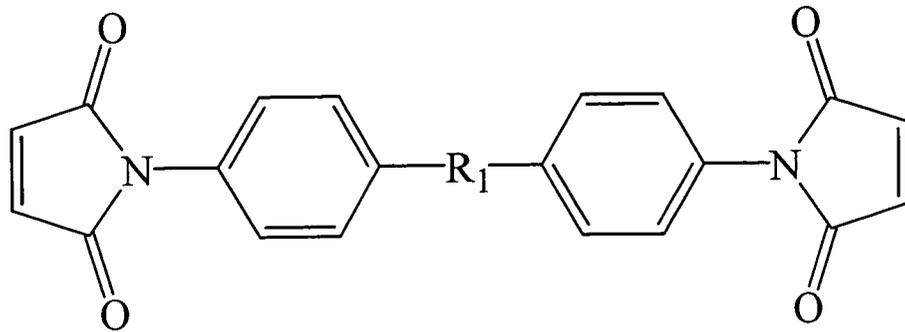
介於20~230)；以及

15~520重量份雙馬來亞醯胺(bismaleimide, BMI)衍生

物，其中該雙馬來亞醯胺衍生物具有化學式



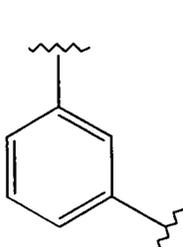
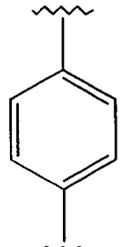
或



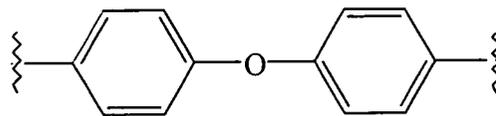
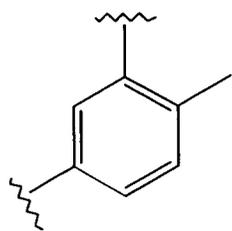
(R₁獨立地包括

$-(\text{CH}_2)_2-$ 、 $-(\text{CH}_2)_6-$ 、 $-(\text{CH}_2)_8-$ 、 $-(\text{CH}_2)_{12}-$ 、

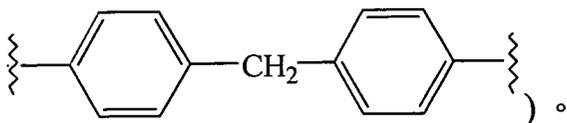
$-\text{CH}_2-\text{C}(\text{CH}_3)_2-\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$ 、

、



或



2. 一種樹脂聚合物，係由如申請專利範圍第1項所述之樹脂配方經加熱製備而成。

3. 一種複合材料，包括：

一基材；以及

一如申請專利範圍第2項所述之樹脂聚合物，形成於該基材上。

4. 如申請專利範圍第3項所述之複合材料，其中該基材包括纖維或金屬。