

承辦人代碼：
大類：
I P C 分類：

本案已向：

日本國(地區) 申請專利，申請日期： 案號 ， 有 無主張優先權

1999年12月24日特願平11-368370

有關微生物已寄存於： ，寄存日期： ，寄存號碼：

五、發明說明（1）

發明所屬技術領域

本發明係關於聚苯并咪唑樹脂模塑體之加工方法。具體而言，係關於將聚苯并咪唑樹脂所製成的模塑體加以黏合之黏合劑，以及利用黏合加工而得之聚苯并咪唑樹脂模塑體。

習知技術

已知由聚苯并咪唑樹脂製成之模塑體、耐熱性、機械性強度、耐藥品性、耐溶劑性、耐放射線性、難燃性均優，可在廣泛溫度範圍使用，利用範圍極其廣泛。通常，此等聚苯并咪唑樹脂模塑體，係由聚苯并咪唑衍生物之預聚物，以及含聚苯并咪唑為單體成份之聚合物，所構成混合物經充分加熱加壓，燒結製成。

另一方面，一般將樹脂材料燒結模塑時，視熱傳導度和燒結體大小，以及玻璃轉移點，決定壓縮模塑溫度，壓縮模塑時間和壓力。

聚苯并咪唑樹脂具有耐熱性高，熱傳導度低的特性。因此，即使將聚苯并咪唑樹脂加熱，提高熔化溫度，中心部要上升到熔化的溫度，也相當費時。因此，利用燒結模塑製造厚模塑品或大尺寸模塑品時，很費燒結時間，產率不佳，為其問題所在。

相對地，欲得與聚苯并咪唑樹脂一體化之模塑體，可採取將最後要求的形狀分成幾個組件燒成製造後，利用例如聚苯并咪唑樹脂之螺釘將該組件固定，組件間之間

五、發明說明（2）

隙利用密封劑填塞的方法。然而，此種製法很難把組件間之間完全填塞，而且必須形成螺孔的精密機械作業，無法充分改進產率。

發明所要解決之目的

發明概述

要旨

本發明要將聚苯并咪唑樹脂模塑體加以黏合之黏合劑，其特徵為含有選自聚苯并咪唑樹脂、環氧樹脂、聚醯胺樹脂、聚醯亞胺樹脂、聚醯胺醯亞胺樹脂、酚樹脂、酚醛樹脂、三聚氰胺樹脂、丁醛樹脂、聚烯樹脂、聚胺酯樹脂、聚酯樹脂、聚乙烯樹脂、聚碳酸酯樹脂、二甲苯樹脂、聚丁二烯樹脂、可溶酚醛樹脂、聚芳基樹脂、聚丙烯酸酯樹脂、聚噁二唑樹脂、聚苯并噁唑樹脂、聚苯并雙噁唑樹脂、聚苯并噁唑樹脂、聚苯并雙噁唑樹脂、聚苯乙炔樹脂，及其母質，以及此等樹脂之溶液等組群的樹脂成份。

另外，本發明一體化聚苯并咪唑樹脂模塑體之製法，其特徵為包含下列步驟：

- (a) 準備由聚苯并咪唑樹脂製成之複數構件，
- (b) 結合面至少其一塗佈上述黏合劑，
- (c) 藉黏合劑層，將結合面彼此壓接。

又，本發明一體化聚苯并咪唑模塑體，其特徵為以上述黏合劑加以黏合。

五、發明說明 (3)

效果

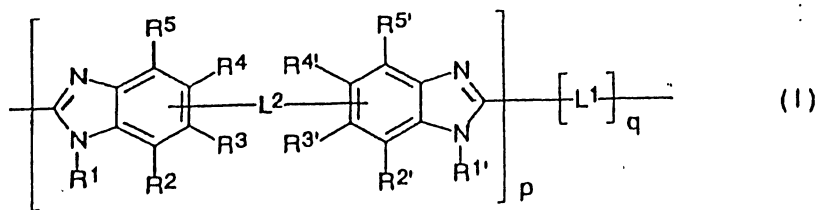
利用本發明黏合劑，可以優良生產性，容易製成大尺寸模塑體，以及形狀複雜之聚苯并咪唑樹脂模塑體。

發更具體說明

聚苯并咪唑樹脂

本發明黏合劑旨在將聚苯并咪唑樹脂貼合。於此聚苯并咪唑係指含被取代或未被取代之聚苯并咪唑為單體之聚合劑。苯并咪唑具有取代基時，其取代基在無損本發明效果之範圍可任意選擇。

較佳聚苯并咪唑可以如下通式(I)表示。



式中 $R^1 \sim R^5$ 和 $R^{1'} \sim R^{5'}$ 分別為單獨選擇之取代基，

L^1 為 2 價連接基，

L^2 為 $R^1 \sim R^5$ 之任一與 $R^{1'} \sim R^{5'}$ 之任一連結而成之 2 價連接基，

p 和 q 表示聚合度數。

其中 $R^1 \sim R^5$ 和 $R^{1'} \sim R^{5'}$ 分別單獨以氫， $C_1 \sim C_{10}$ 烷基， $C_6 \sim C_{12}$ 芳基，鹵素，羥基， $C_1 \sim C_{10}$ 烷氧基為佳。

L^1 和 L^2 以分別單獨為單鍵，氧族原子，芳族化合物，脂族化合物，脂環族化合物，或雜環化合物組成之 2 價

五、發明說明(4)

連接基為佳。

L^1 或 L^2 為脂族化合物組成之鍵基時，以 $C_1 \sim C_8$ 伸烷基為佳；芳族化合物時，以伸苯基或伸萘基為佳；雜環化合物構成之鍵基時，以伸吡啶基、伸吡嗪基、伸呋喃基、伸奎啉基、伸噻吩基、伸吡喃基、伸茚基、或伸呋喃基為佳，氧族原子構成之鍵基時，以 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-SO_2-$ 為佳。

較佳聚苯并咪唑具體例有：

聚-2,2'-(間伸苯基)-5,5'-二苯并咪唑，

聚-2,2'-(二伸苯基-2'',2''')-5,5'-二苯并咪唑，

聚-2,2'-(二伸苯基-4'',4''')-5,5'-二苯并咪唑，

聚-2,2'-(1'',1'',3''-三甲基伸氫茚基)-3'',5''-對伸苯基-5,5'-二苯并咪

2,2'-(間伸苯基)-5,5'-二苯并咪唑 / 2,2'-(1'',1'',3''-三甲基伸氫茚基)-3'',5''-對伸苯基-5,5'-二苯并咪唑共聚物，

2,2'-(間伸苯基)-5,5'-二苯并咪唑 / 2,2'-(二伸苯基-2'',2'',5,5'-二苯并咪唑共聚物，

聚-2,2'-(伸呋喃基-2'',5''')-5,5'-二苯并咪唑，

聚-2,2'-(伸萘基-1'',6'')-5,5'-二苯并咪唑，

聚-2,2'-(伸萘基-2'',6'')-5,5'-二苯并咪唑，

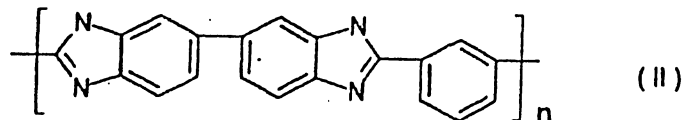
聚-2,2'-伸戊基-5,5'-二苯并咪唑，

聚-2,2'-伸辛基-5,5'-二苯并咪唑，

五、發明說明 (5)

聚-2,2'-伸環己基-5,5'-二苯并咪唑，
 聚-2,2'-(間伸苯基)-5,5'-二(苯并咪唑)醚，
 聚-2,2'-(間伸苯基)-5,5'-二(苯并咪唑)硫化物，
 聚-2,2'-(間伸苯基)-5,5'-二(苯并咪唑)砒，
 聚-2,2'-(間伸苯基)-5,5'-二(苯并咪唑)甲烷，
 聚-2,2'-(間伸苯基)-5,5'-二(苯并咪唑)丙烷 2,2
 聚伸乙基-1,2,2,2''-(間伸苯基)-5,5'-二(苯并咪唑)
 乙烯-1,2 及其他。

其中，本發明組成物使用上更佳者為如下通式(II)



其中 n 表示聚合度數。

此等聚苯并咪唑樹脂可視其構造或分子量等，取得廣泛之固有黏度，惟固有黏度以 0.2 以上為佳。

本發明黏合劑適用之聚苯并咪唑樹脂模塑體，係由前述聚苯并咪唑樹脂模塑而得。模塑方法可採用任意方法，例如燒結模塑，超音波粉末模塑，冷作加壓模塑，熔化模塑，及其他，而以在高溫條件下加壓進行為佳。此等條件視所用聚苯并咪唑樹脂的種類等而定，惟以 350~600℃，更好是 400~500℃ 溫度條件，和 140~1,400 kg/cm²，更好是 500~1,000kg/cm² 壓力條件進行模塑為佳。

五、發明說明 (6)

黏合劑

本發明黏合劑者在將前述聚苯并咪唑樹脂加以貼合。此等黏合劑有含聚苯并咪唑樹脂、環氧樹脂、聚醯胺樹脂、聚醯亞胺樹脂、聚醯胺醯亞胺樹脂、酚樹脂、酚醛樹脂、三聚氰胺樹脂、丁醛樹脂、聚烯樹脂、聚胺酯樹脂、聚酯樹脂、聚乙烯樹脂、聚碳酸酯樹脂、二甲苯樹脂、聚丁二烯樹脂、可溶酚醛樹脂、聚芳基樹脂、聚丙烯酸酯樹脂、聚噁二唑樹脂、聚苯并噁唑樹脂、聚苯并雙噁唑樹脂、聚苯并噁唑樹脂、聚苯并雙噁唑樹脂、聚苯乙烯樹脂，及其母質，以及此等樹脂之溶液為黏合成份者。此等黏合劑可視需要將兩種以上組合使用。

其中，聚苯并咪唑樹脂或其母質，在與模塑體之親和性或耐熱性方面尤佳。較佳聚苯并咪唑有前述聚苯并咪唑樹脂項內所列。尤以聚-2,2'-(間伸苯基)-5,5'-二苯并咪唑為較佳黏合劑。另外，聚醯胺樹脂、聚醯亞胺樹脂、聚醯胺醯亞胺樹脂、環氧樹脂，或其母質亦佳，因與模塑體之親和性或耐熱性均優。

此等黏合劑在常溫為液體時，可就此使用。而常溫為固體時，可加熱熔化使用，或溶於適當溶劑內，呈溶液狀態使用。使用溶劑時，在無損本發明效果之範圍，可以任意選擇，惟就溶解性而言，以非極性溶劑為佳。此等溶劑有 N-甲基四氫吡咯酮，二甲基乙醯胺， γ -丁內酯，卡必醇，及其他。

五、發明說明（7）

此等黏合劑當中最好是將前述聚苯并咪唑溶於 N-甲基四氫吡咯酮者。N-甲基四氫吡咯酮係可充分溶解聚苯并咪唑的少數溶劑之一。使用此黏合劑時，在貼合後可連續模塑，製成模塑體。即，此貼合模塑體具有與燒結模塑一體同樣的強度。

黏合劑使用溶劑形成溶液時，從黏合強度避免受到殘存溶劑的影響之觀點言，溶液中的樹脂濃度以高濃度為佳。可是，濃度過大時，黏合劑溶液之黏度會提高，處理性能會惡化。為避免此等處理性能劣化，最好使用低濃度黏合劑溶液，塗佈後，利用預乾將溶劑蒸發，以降低黏合時的殘存溶劑量。另外，亦可在儲存或輸送時呈高濃度，而使用時才用溶劑稀釋之使用形態。

又，使用樹脂母質時，由於樹脂生成反應之副產物，會降低黏合強度。在此情況下，宜塗佈後利用加熱。在真空條件下放置，於除去副產物到某種程度後再貼合。

一體化聚苯并咪唑樹脂模塑體

本發明一體化聚苯并咪唑樹脂模塑體，係由前述聚苯并咪唑樹脂製成之組件，利用前述黏合劑貼合成一體化者。

本發明一體化模塑體，係利用下述方法形成：

- (a) 準備由聚苯并咪唑樹脂製成之複數構件，
- (b) 在結合面至少其一，塗佈前述黏合劑，
- (c) 藉黏合劑層，將結合面彼此壓接。

五、發明說明（8）

黏合劑雖塗佈在要結合面之至少其一，但以二者均塗佈為佳。另外，為了從所塗佈之黏合劑，除去過剩溶劑，發生樹脂母質的樹脂形成反應般之預備反應，先將面彼此結合和壓接，必要時可加熱，放置，或在真空下放置等。此等條件視所用黏合劑種類等而異，例如使用聚苯并咪唑樹脂溶於 N-甲基四氫吡咯酮所得黏合劑時，以在 80~350°C 加熱 1~300 分鐘為佳。

再者，面彼此結合後，為了將黏合劑凝固，以獲得具有充分強度之一體化模塑體，以加熱為佳。此項加熱亦視所用黏合劑種類等而異，例如使用聚苯并咪唑樹脂溶於 N-甲基四氫吡咯酮所得黏合劑時，以在 80~350°C 加熱 1~300 分鐘為佳。此項加熱亦可利用在面彼此結合前加熱之餘熱。如前所述，由於聚苯并咪唑樹脂之熱傳導性低，所採用組件形狀，宜使用彼此結合後所進行加熱之熱容易傳至結合處者。

本發明一體化模塑體，普通是按照前述順序形成，但步驟 (b) 和步驟 (c) 亦顛倒為之。即亦可將所要結合的面彼此結合，然後，將黏合劑注入面彼此之間隙。可是，在此情況下除去過剩溶劑等都會有困難，必須加以注意。

利用本發明黏合劑一體化的模塑體之黏合強度，視用途而異，一般以 $1\text{kgf}/\text{cm}^2$ 以上為佳。

發明之實施具體例

五、發明說明 (9)

實施例

準備在 N-甲基四氫吡咯酮溶解聚-2,2'-(間伸苯基)-5,5'-二苯并咪唑，至 10 重量 % 濃度之黏合劑。

準備兩枚利用燒結模塑所得之模塑聚-2,2'-(間伸苯基)-5,5'-二苯并咪唑模塑體製成之組件(尺寸 320×320×50mm)，分別在結合面塗佈前述黏合劑。各組件在 150℃ 加熱 1 分鐘，將溶劑預乾，並將塗佈黏合劑的面彼此壓接。對此等組合沿結合面夾持方向施壓，在 200℃ 加熱 30 分鐘。接著將爐放冷，得厚度 100mm 之一體化模塑體。此模塑體是以充分強度黏合。

申請日期	89.12.22
案 號	89127676
類 別	C09J179/00, C09J5/00



(以上各欄由本局填註)

TP14596
(2005年06月22日修正)

發 明 專 利 說 明 書

新 型

一、發明 新型 名稱	中 文	聚苯并咪唑樹脂模塑體用黏合劑，及其製造之一體化聚苯并咪唑模塑體
	英 文	Adhesive for the Integrally Molded Article of a Polybenzimidazole Resin and Process for the Production of Integrally Molded Article Using the Same
二、發明 創作 人	姓 名	1. 丹羽宣行 2. 相澤雅美
	國 籍	1.-2. 皆屬日本
三、申請人	住、居所	1. 東京都文京區本駒込 2丁目 28番 8號 クラリアントジャパン株式會社內 2. 同上
	姓 名 (名稱)	AZ 電子材料股份有限公司 (AZ エレクトロニックマテリアルズ株式会社) AZ Electronic Materials (Japan) K.K.
代 表 人 姓 名	國 籍	日本
	住、居所 (事務所)	日本國東京都文京區本駒込二丁目 28-8 文京グリーンコート
代 表 人 姓 名	代 表 人 姓 名	福澤純一 FUKUZAWA, JUNICHI

四、中文發明摘要（發明之名稱： 聚苯并咪唑樹脂模塑體用黏合劑，
及用其製造之一體化聚苯并咪唑模
塑體

目的：提供一體化聚苯并咪唑樹脂模塑體用黏合劑，
以及使用此黏合劑製造產率良好的一體化模塑體之方
法。

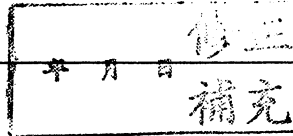
解決手段：含聚苯并咪唑樹脂，環氧樹脂，聚醯胺樹
脂，聚醯亞胺樹脂，聚醯胺醯亞胺樹脂，及其他樹脂成
份構成之黏合劑。將此黏合劑塗佈於聚苯并咪唑樹脂製
成之組件，加以壓接，製成一體化之模塑體。

英文發明摘要（發明之名稱：)

Adhesive for the Integrally Molded Article of a Polybenzimidazole
Resin and Process for the Production of Integrally Molded Article
Using the Same

[Purpose] The present invention is to provide an adhesive for the integrally molded article of a polybenzimidazole resin, and a process for producing the integrally molded article with a good yield.

[Constitution] A adhesive comprises a polybenzimidazole resin, an epoxy resin, a polyamide resin, a polyimide resin, a polyamide-imide resin, and other resin components. Said adhesive is coated on a polybenzimidazole resin-made part and pressed to form an integrally molded article.



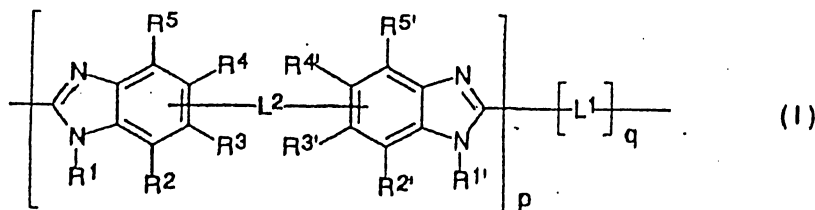
六、申請專利範圍

第 89127676 號「聚苯并咪唑樹脂模塑體用黏合劑，及其製造之一體化聚苯并咪唑模塑體」專利案

(93 年 3 月 11 日修正)

六申請專利範圍：

1. 一種用於黏合聚苯并咪唑樹脂模塑體用之黏合劑，其含有選自由聚苯并咪唑樹脂及其母質和這些之樹脂溶液所組成族群之樹脂成份，其中該模塑體係為聚苯并咪唑的燒結模塑體、超音波粉末模塑體、冷作加壓模塑體或熔融模塑體溶液，該溶液之溶劑係選自由 N-甲基四氫吡咯酮、二甲基乙醯胺、 γ -丁內酯和卡必醇所組成族群，該聚苯并咪唑樹脂係由以下通式(I)所示：



式中 $R^1 \sim R^5$ 和 $R^{1'} \sim R^{5'}$ 分別為單獨選擇之取代基，

L^1 為 2 價連接基，

L^2 為 $R^1 \sim R^5$ 之任一與 $R^{1'} \sim R^{5'}$ 之任一連結而成之 2 價連接基，

p 和 q 表示聚合度之數。

2. 如申請專利範圍第 1 項之黏合劑，其中聚苯并咪唑樹脂係溶於 N-甲基四氫吡咯酮。
3. 如申請專利範圍第 2 項之黏合劑，其中聚苯并咪唑樹脂係聚-2,2'-(間伸苯基)-5,5'-二苯并咪唑。

六、申請專利範圍

4. 一種製造一體化聚苯并咪唑樹脂模塑體之方法，其特徵為包括下列步驟：
 - (a) 準備由聚苯并咪唑樹脂製成之複數構件，
 - (b) 在結合面至少其一，塗佈申請專利範圍第 1 項之黏合劑，
 - (c) 藉黏合劑層，將結合面彼此壓接。
5. 一種一體化之聚苯并咪唑模塑體，其特徵為以申請專利範圍第 1 至 3 項中任一項中所記載之黏合劑加以黏合者。