Microwave Dielectric Properties of Polybenzoxazine Based Composite for Microwave Substrate Application

Wasinee Sapmaneenukul

A Thesis Submitted in Partial Fulfilment of the Requirements
for the Degree of Master of Science
The Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University
in Academic Partnership with
The University of Michigan, The University of Oklahoma,
and Case Western Reserve University
2012

Thesis Title:	Microwave Dielectric Properties Based of Polybenzoxazine Composite for Microwave Substrate Application
By:	Wasinee Sapmaneenukul
Program:	Polymer Science
Thesis Advisors:	Asst. Prof. Hathaikran Manuspiya
	Prof. Hatsuo Ishida

Accepted by The Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University, in partial fulfilment of the requirements for the Degree of Master of Science.

..... College Dean

(Asst. Prof. Pomthong Malakul)

Thesis Committee:

.....

(Asst. Prof. Hathaikarn Manuspiya)

.....

(Prof. Hatsuo Ishida)

.....

(Asst. Prof. Thanyalak Chaisuwan)

.....

(Dr. Pitak Laoratanakul)

ABSTRACT

5372034063: Polymer Science Program
Wasinee Sapmaneenukul: Microwave Dielectric Properties of Polybenzoxazine Based Composite for Microwave Substrate Application.
Thesis Advisors: Prof. Hatthaikarn Manuspiya Prof. Hatso Ishida 123 pp.
Keywords: Microwave dielectric/ Polybenzoxazine composite/ Barium strontium titanate

The composite of polybenzoxazine and barium strontium titanate (BST or $Ba_{0.3}Sr_{0.7}TiO_3$ with different BST loadings up to 80 wt. %) were synthesized and fabricated as a substrate. The effects of volume fraction of ceramic filler on the microstructure and microwave dielectric properties of the composite were studied for frequency and temperature dependence. A dielectric constant of 6.12 and loss tangent of 0.00065 at 1 GHz (room temperature) were obtained for aniline-based polybenzoxazine (PBA-a), which was higher than 4.49 and 0.00089 of the fluorine-based polybenzoxazine (PBA-f), respectively. Subsequently, PBA-a was used as a polymer matrix in the composite. The dielectric constant at 1 GHz could be increased from 6.12 up to 22 (without fillers), by adding BST 80 wt.% (48.8 vol.%). PBA/BST composites exhibited nearly zero temperature coefficient of dielectric constant in the range of -50 °C to 150 °C. The frequency dependence of the dielectric constant of the composite was found at 100 MHz – 1 GHz range. Additionally, the effects of surface modification on the dispersion of BST and microwave dielectric properties were studied using 3 chemical agents (3-aminopropyl-trimethoxysilane, phthalocyanine, and a benzoxazine monomer). The surface modification on BST by a silane compound agent enhanced the adhesion force between the matrix and filler resulted in the increase of the dielectric constant. Surface modification by phthalocyanine and the benzoxazine monomer could fabricate BST fillers dispersion better than the silane compound that leads to the lowering of loss tangent of the composite.

บทคัดย่อ

วศินี ทรัพย์มณีนุกูล : การศึกษาสมบัติไมโครเวฟไดอิเลคตริกของพอลิเบนซอกซาซีนคอมพอสิตสำหรับการใช้งานของไมโครเวฟซับสเตรท (Microwave Dielectric Properties of Polybenzoxazine Based Composite for Microwave Substrate Application) อ. ที่ปรึกษา : ผศ.ดร. หทัยกานต์ มนัสปิยะ และ ศ.ดร. ฮัทซึโอะ อิชิดะ 123 หน้า

วัสดุคอมพอสิตระหว่างพอลิเบนซอกซาซีนและผงแบเรียมสตรอนเทียมไตตาเนต (BST or $Ba_{0.3}Sr_{0.7}TiO_3$ ศึกษาที่สัดส่วน BST สูงสุดถึง 80 เปอร์เซนต์โดยน้ำหนัก) ถูกเตรียมขึ้นเพื่อใช้ในงานซับสเตรท โดยทำการศึกษาอิทธิพลของสัดส่วนผงเซรามิกต่อสมบัติไมโครเวฟไดอิเลคตริกในสารคอมพอสิตพร้อมทั้งศึกษาการขึ้นกับความถี่และอุณหภูมิ จากการศึกษาพบว่าที่ 1 จิกะเฮิร์ท (อุณหภูมิห้อง) ค่าไดอิเล็กตริกและค่าลอสเทนแจนต์ของแอนนิลีนเบสพอลิเบนซอกซาซีนอยู่ที่ 6.12 และ 0.00065 ตามลำดับ ซึ่งสูงกว่า 4.49 และ 0.00089 ของฟลูออรีนเบสพอลิเบนซอกซาซีน ทำให้แอนนิลีนเบสพอลิเบนซอกซาซีนถูกใช้เป็นตัวพอลิเมอร์เมทริกซ์ในสารคอมพอสิต และพบว่าค่าไดอิเล็กตริกที่ 1 จิกะเฮิร์ทสามารถเพิ่มขึ้นจาก 6.12 (ไม่เติมสารเซรามิกในสารคอมพอสิต) เป็น 22 ได้โดยการใส่แบเรียมสตรอนเทียมไตตาเนต 80 เปอร์เซนต์โดยน้ำหนัก หรือ 48.8 เปอร์เซนต์โดยปริมาตร ทั้งนี้ยังพบว่าสารคอมพอสิตระหว่างพอลิเบนซอกซาซีนและแบเรียมสตรอนเทียมไตตาเนตแสดงสมบัติไดอิเล็กตริกที่ไม่เปลี่ยนแปลงตามอุณหภูมิในช่วง -50 ถึง 150 องศาเซสเซียส ในขณะที่พบการเปลี่ยนแปลงของสมบัติไดอิเล็กตริกในช่วงความถี่ 100 เมกกะเฮิร์ท ถึง 1 จิกะเฮิร์ท ยิ่งไปกว่านั้นได้ทำการศึกษาถึงอิทธิพลของการปรับปรุงพื้นผิวผงแบเรียมสตรอนเทียมไตตาเนตต่อสมบัติการกระจายตัวของผงแบเรียมสตรอนเทียมไตตาเนตและสมบัติไมโครเวฟไดอิเลคตริกในคอมพอสิตโดยใช้สาร 3 ชนิด ได้แก่ 3-อะมิโนโพรพิว-ไตรเมตทอกซีไซเลน พทาโลไซยาไนต์และเบนซอกซาซีนมอนอเมอร์ โดยพบว่าการปรับปรุงพื้นผิวผงแบเรียมสตรอนเทียมไตตาเนตด้วยสารประกอบไซเลนช่วยเพิ่มแรงยึดติดระหว่างเนื้อพอลิเมอร์และเซรามิก ส่งผลให้สารคอมพอสิตมีค่าไดอิเล็กตริกที่เพิ่มขึ้น ในขณะที่การปรับปรุงพื้นผิวผงแบเรียมสตรอนเทียมไตตาเนตด้วยพทาโลไซยาไนต์และเบนซอกซาซีนมอนอเมอร์ช่วยทำให้แบเรียมสตรอนเทียมไตตาเนตกระจายตัวในคอมพอสิตได้ดีกว่าสารประกอบไซเลน ทำให้มีค่าลอสเทนแจนต์ที่ต่ำกว่า

ACKNOWLEDGEMENTS

This thesis work is partially funding and scholarship provided by the Petroleum and Petrochemical College; and Center of Excellence on Petrochemical and Materials Technology (PETRO-MAT), Thailand; and the 90th Anniversary of Chulalongkorn University Fund (through the Ratchadaphiseksomphot Fund).

First of all, the author would like to gratefully give special thanks to my advisors, Asst. Prof. Dr. Hathaikarn Manuspiya for her intensive suggestion, valuable guidance, encouragement and vital help throughout this research work and Prof. Hatsuo Ishida for his constructive suggestions and valuable guidance. Gratitude is also eatended to all other committee members, Asst. Prof. Thanyalak Chaisuwan and Dr. Pitak Laoratanakul for taking time to serve on the committee their valuable comments on thesis.

Special acknowledgement is given to Mr. Natthaphon Bunnak for his useful suggestion and his assistance.

Finally, the author wishes to take this opportunity to thank her friends and the college staff at petroleum and Petrochemical College for their friendly help, cheerfulness, creative suggestions, particularly to her parents and a friend who have always loved, encouraged and given worthy moral support throughout this thesis work.

TABLE OF CONTENTS

LIST OF TABLES

APPENDIX E

APPENDIX F

LIST OF FIGURES

CHAPTER III

CHAPTER IV

CHAPTER V