

# 公 告 本

申請日期	86.6.17
案 號	86108384
類 別	C08L67/00

A4  
C4

450985

(以上各欄由本局填註)

## 發 明 專 利 說 明 書

一、發明 名稱	中 文	熱塑性樹脂組成物及其模製物件
	英 文	THERMOPLASTIC RESIN COMPOSITION AND ITS MOLDED ARTICLE
二、發明 人	姓 名	(1)永嶋徹 (2)野村秀夫
	國 籍	日本國
	住、居所	(1)日本國茨城縣つくば(筑波)市春日2-40-1-507 (2)日本國茨城縣つくば(筑波)市梅園2-13-1-2-203
三、申請人	姓 名 (名稱)	住友化學工業股份有限公司
	國 籍	日本國
	住、居所 (事務所)	日本國大阪市中央區北浜4丁目5番33號
	代 表 人 姓 名	香西昭夫

450985

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大類：
IPC分類：

A6  
B6

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

1996年6月18日 特願平8-156522(主張優先權)

有關微生物已寄存於： ，寄存日期： ，寄存號碼：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

## 五、發明說明(1)

發明背景

本發明有關一種機械性質優異之熱塑性樹脂組成物。

相關技藝之敘述

液晶聚酯因為其硬質之分子形狀，所以在熔融狀態並不導致糾結，在液晶狀態會形成多晶界(polydomain)，且顯示其分子鏈會顯著以模製時之剪力所造成的流動方向為方向之行為，一般係被稱為液晶聚合物(向熱性液晶聚合物)。

因為此特定行為，液晶聚酯具有極優越之熔融可流動性。根據液晶聚酯之結構，液晶聚酯在負荷下具有高變形溫度及高耐久溫度(連續可用之溫度)，即使在260℃或更高的熔融焊接溫度亦不產生變形或起泡。

據此，樹脂組成物包括填充有纖維補強物(如玻璃纖維)、無機填料(如滑石)、熱安定劑等之液晶聚酯，可適用作為薄或複雜形式之電子及電氣材料，及作為繼電器零件、線圈軸心、連接器、繼電器線圈及IC之密封物、音量零件、整流器、馬達零件等之材料。

為改進熔融操作性、機械強度等，各種液晶聚酯及熱塑性樹脂之摻合組成物已被檢視。

例如，JP-A-56-115357揭示藉由將液晶聚酯與其他熱塑性樹脂摻合而降熔融黏度，而改進熱塑性樹脂之操作性。

JP-A-57-40551揭示藉由將液晶聚酯及聚碳酸酯摻合而得的具有優異機械強度之組成物。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(2)

然而，因為不同的樹脂通常不互容，因此由簡單熔融捏和所獲得的混合物會形成具有不規則海-島結構之粗糙相分離的結構。在多種情況下，物理性質(如機械強度)並不充分，且可能不方便供上述使用。

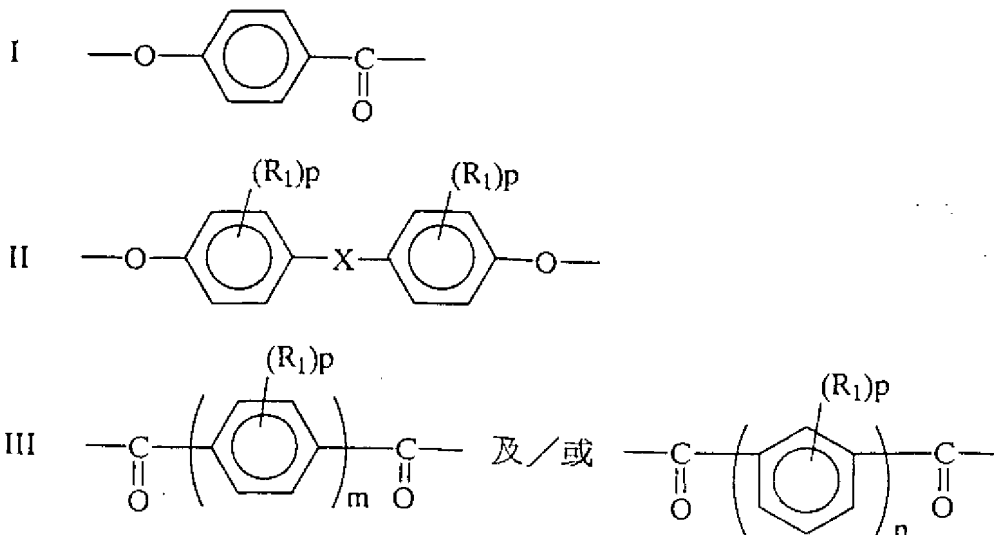
發明概述

本發明目的係提供一種可使用於汽車及飛機零件、工業儀器、家庭電器用品、OA儀器、電子及電氣零件等之高強度及高耐熱之熱塑性樹脂組成物。

吾等發明人致力研究解決上述問題，且發現可藉由使用具有特定結構之聚酯作為樹脂與液晶聚調配，而達成上述目的。

即，以下說明本發明。

[1]一種熱塑性樹脂組成物，包括(a)1至99重量%之液晶聚酯及(b)99至1重量%之聚酯作為不可或缺之成分，其中該聚酯(b)係由下列所示之式I、II、及III之重複單以特定比例所組成：



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

## 五、發明說明(3)

(式中, X 為  $-SO_2-$ 、 $-CO-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-CH_2-$ 、 $-CH_2-CH_2-$ 、 $-C(CH_3)_2-$ 、或單鍵;  $R_1$  示具有 1 至 6 個碳原子之烷基、具有 3 至 10 個碳原子之烯基、苯基、或鹵原子; P 為 0 至 4 之整數; m 及 n 為 1 至 4 之整數; 在相同或不同之核上之多數個  $R_1$  可彼此不同, 且各個 P 可彼此不同), 及該聚酯 (b) 滿足下列式子:

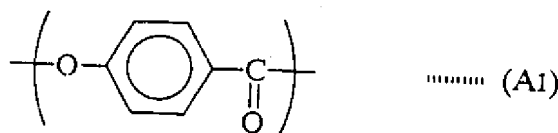
$$0 \leq (I) \leq 95 \quad (\text{莫耳} \%)$$

$$(II) + (III) = 100 - (I) \quad (\text{莫耳} \%) \text{ 及}$$

$$0.9 \leq (II) / (III) \leq 1.1$$

[2] 如 [1] 之熱塑性樹脂組成物, 其中聚酯 (b) 之式 II 中之 X 為  $-SO_2-$  或  $-C(CH_3)_2-$ 。

[3] 如 [1] 或 [2] 之熱塑性樹脂組成物, 其中液晶聚酯 (a) 含有至少 30 莫耳 % 之下式 (A1) 所示之重複單元。



[4] 使用 [1]、[2]、或 [3] 之熱塑性樹脂組成物模塑之模塑物件。

[5] 如 [4] 之模塑物件, 其中該熱塑性樹脂組成物包括 1 至 40 重量 % 之成分 (a) 及 99 至 60 重量 % 之成分 (b) 作為不可或缺之成分, 且成分 (a) 以 1 微米或小於 1 微米之平均分散粒徑精細地分散於模塑物件中。

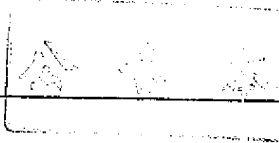
[6] 如 [4] 之模塑物件, 其中熱塑性樹脂組成物包括 60 至 99 重量 % 之成分 (a) 及 40 至 1 重量 % 之成分 (b) 作為不可

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線



## 五、發明說明(4)

或缺之成分，及成分(b)係以1微米或小於1微米之平均分散粒徑精細地分散於模製物件中。

本發明所用之液晶聚酯一般稱為向熱性液晶聚合物。液晶聚酯之實例包含：

- (1)自芳族二羧酸、芳族二醇、芳族羥基羧酸及/或胺基苯甲酸之組合而製得者，
- (2)自二或多個不同芳族羥基羧酸製得者，
- (3)自芳族二羧酸及核經取代之芳族二醇製得者，
- (4)使芳族羥基羧酸等與聚酯如聚對苯二甲酸乙二酯反應而製得者。

此等聚合物在溫度400℃或小於400℃時形成各向異性熔融物。芳族二羧酸、芳族二醇、及芳族羥基羧酸可被其酯衍生物所取代。

液晶聚酯之重複單元如下所示，但不限於此等液晶聚酯。

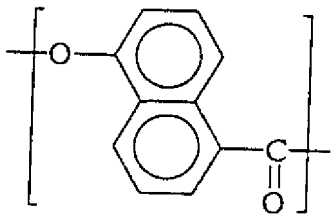
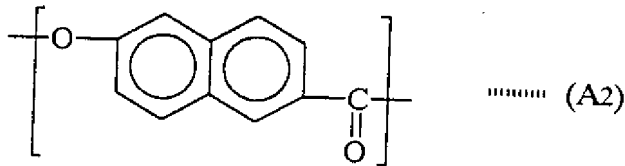
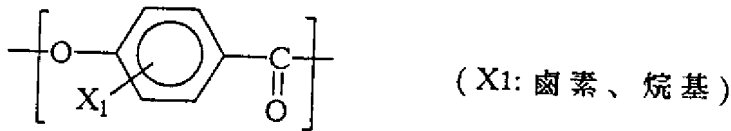
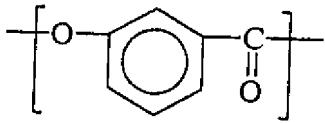
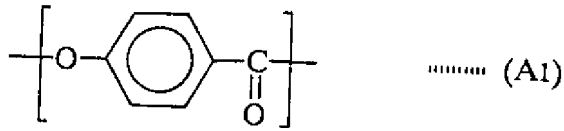
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

五、發明說明(5)

自芳族羧基酸所衍生之重複單元：



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

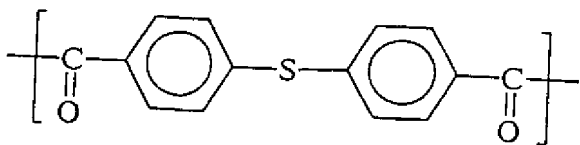
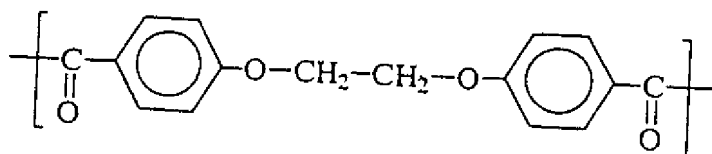
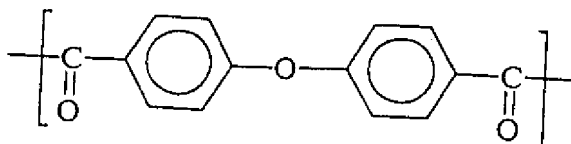
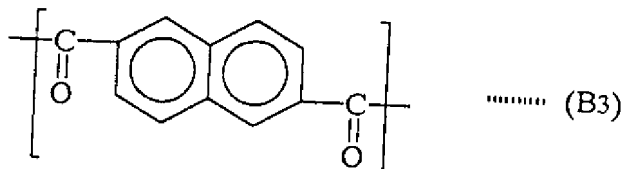
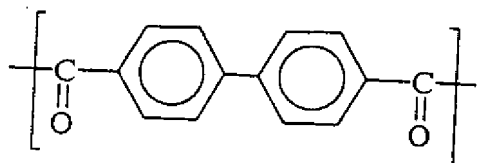
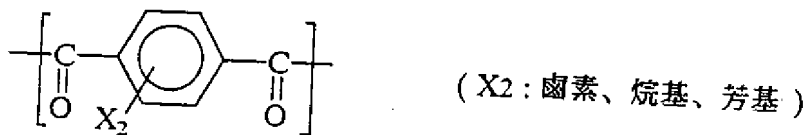
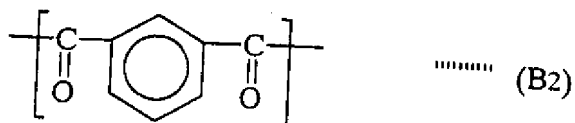
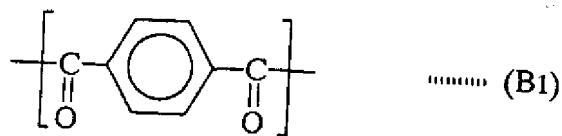
訂

線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明 ( 6 )

自芳族二羧酸衍生之重複單元：



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

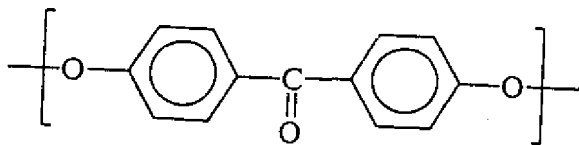
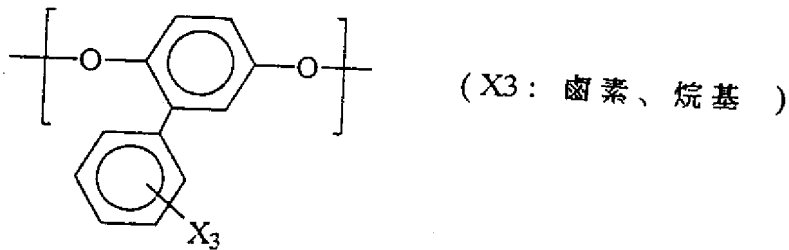
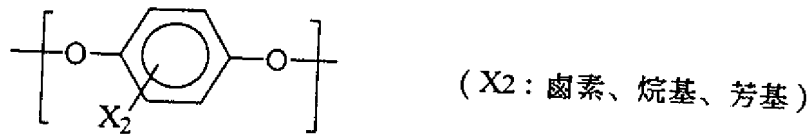
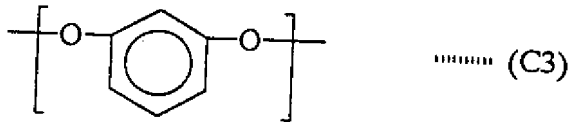
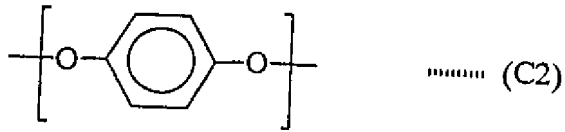
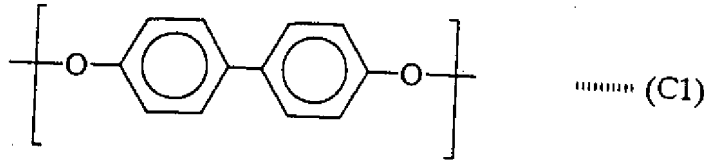
裝

訂

線

五、發明說明(7)

自芳族二醇衍生之重複單元：



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

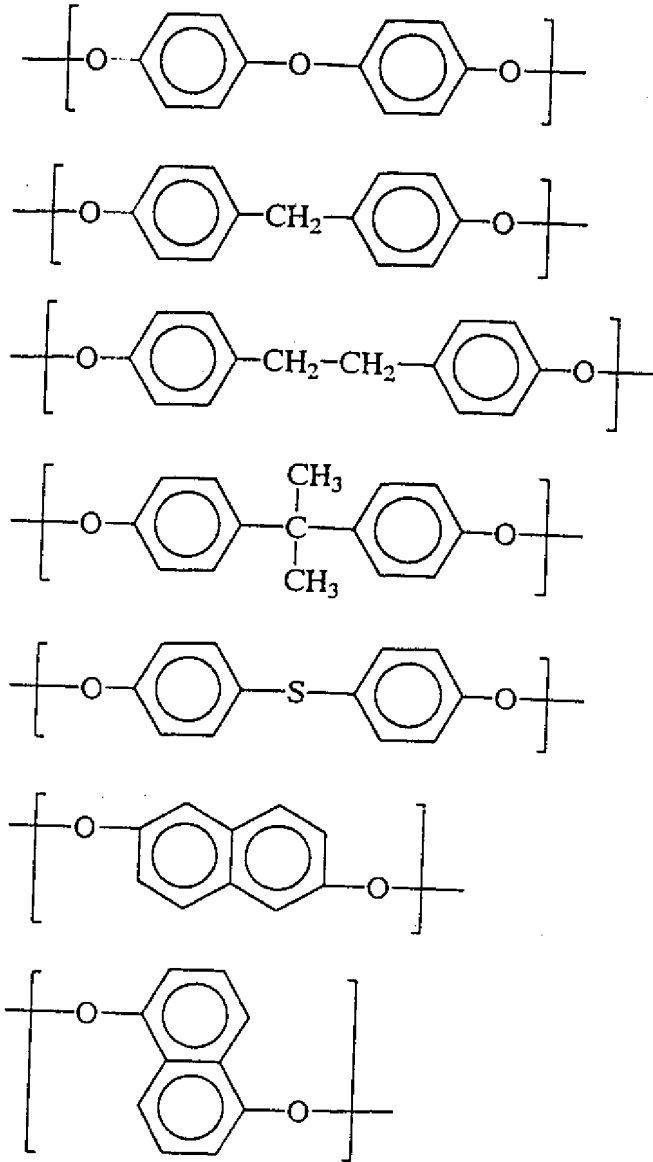
裝

訂

線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明(8)



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製



## 五、發明說明(9)

鑑於耐熱性、機械性質及操作性間之平衡，液晶聚酯較佳含有至少30莫耳%之上述式(A1)所示之重複單元。

詳言之，具有下示之重複單元之組合為較佳者。

[a]: (A1)、(B1)或(B1)及(B2)之混合物、及(C1)

[b]: (A1)、及(A2)

[c]: 組合[a]中之一部分(A1)被(A2)取代之組合

[d]: 組合[a]中之一部分(B1)被(B3)取代之組合

[e]: 組合[a]中之一部分(C1)被(C3)取代之組合

[f]: 進一步添加(B1)及(C2)至組合[b]之組合

藉由下列方法測量之此等液晶聚酯之流動溫度較佳自200℃至400℃，及更佳自250℃至350℃。

當流動溫度超過400℃，模塑性變惡化，且當流動溫度為250℃或較250℃小時，耐熱性不充分。

含有上述[a]及[b]作為基本結構之液晶聚酯見述於例如：JP-B-47-47870、JP-B-63-3888等。

具有特定結構之聚酯(b)由上述式I、II、及III所示之重複單元所組成，且滿足上式。由式(II)所示之重複單元可為2或更多種混合物，其中式中之X彼此不同。

具有量為95莫耳%或更多之式I所表示之重複單元之聚酯具有多種不可熔的晶體部分。而聚酯及熱塑性樹脂在製造組成物過程中不能分散者，係不佳。

若聚酯中之(II)/(III) < 0.9或(II)/(III) > 1.1時，在製造聚酯時未能獲得一足夠高的分子量製品，且係不佳的。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

## 五、發明說明(10)

式 II 所示之重複單元中，較佳為其 X 為  $-SO_2-$  或  $-C(CH_3)_2-$  者之單元。

甚且，對於式 I 所示之重複單元而言，較佳滿足  $0 \leq (I) \leq 80$  (莫耳%)。

本發明所用製造含有特定結構之聚酯(b)的方法之實例包含：

在觸媒存在下，將溶解於鹼性水溶液中之雙酚成分與溶解於有機溶劑中之對酞醯氯及 / 或異酞醯氯及對羥苯甲醯氯聚合之方法，

在高溫將乙醯化雙酚成分及對苯二酸及 / 或異酞酸及對羥苯甲酸聚合並移除乙酸之方法，

在高溫將雙酚成分之苯酯、對羥苯甲酸苯酯及對苯二酸之苯酯及 / 或異酞酸聚合並去除酚之方法，

進一步於固相中將藉由上述方法所獲得之聚酯聚合之方法。

製造方法不限於此等方法。

聚酯之流動溫度由下示方法測得，較佳自  $150^\circ\text{C}$  至  $450^\circ\text{C}$ ，及更佳自  $280^\circ\text{C}$  至  $400^\circ\text{C}$ 。當調配流動溫度低於  $150^\circ\text{C}$  之聚酯時，在組成物之製造期間或所得組成物之模製處理期間，由於聚酯之低分子量，而導致熱劣化，所以不為所欲。

當調配流動溫度超過  $450^\circ\text{C}$  之流動溫度之聚酯時，在組成物製造期間，由於聚酯之高熔融黏度，而使得聚酯與熱塑性樹脂不分散，所以不為所欲。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明(11)

本案所使用的具有特定結構之聚酯量，以液晶聚酯與聚酯之總重量為準，為1至99重量%。

當其量少於1重量%時，未能達到物理性質之改善。

甚且，當其量大於99重量%時，液晶聚酯之特性被大為破壞，而不為所欲。

當聚酯係為改進液晶聚酯模塑物件之各向異性之目的而調配時，配方量較佳為3至70重量%，及更佳為5至50重量%。

使用本發明之熱塑性樹脂組成物製造模塑物件之方法並無特別限制。含有將樹脂熔融、塑形及固化之程序的模塑方法實例包含擠壓模塑、注模、吹塑。其中，較佳使用注模方法。

由擠壓模塑製得之模塑物件可進一步切割或壓製處理。

成分(a)或(b)在使用本發明之熱塑性樹脂組成物之模製物件中的平均分散粒徑，較佳為1微米或小於1微米，更佳為0.5微米或小於0.5微米。當平均分散粒徑為1微米或大於1微米，會發生如模塑物件強度降低之缺點，不為所欲。

一般使用模塑物件之穿透式電子顯微鏡照片之照片分析作為測量平均分散粒徑之方法，但不限於此。

在本發明之熱塑性樹脂組成物中，可添加1或多種纖維狀或針狀之補強材料(如：玻璃纖維、二氧化矽鋁氧纖維、鋁氧纖維、碳纖維、硼酸鋁鬚晶等)、無機填料(如：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

### 五、發明說明(12)

滑石、雲母、黏土、及玻璃珠)、脫模改質劑(如：氟聚合物及金屬皂)、著色劑(如：染料及顏料)、一般添加劑(如：抗氧化劑、熱安定劑、紫外線吸收劑、抗靜電劑、界面活性劑等)。

甚且，若有需要亦可添加少量之1或多種熱塑性樹脂(如：聚乙烯、聚丙烯、聚氯乙烯、ABS樹脂、聚苯乙烯、甲基丙烯酸樹脂等、熱固性樹脂(如：酚樹脂、環氧樹脂、氰酸酯樹脂、異氰酸酯樹脂、聚醯亞胺樹脂、及橡膠成分)。

獲得本發明樹脂組成物之原料的調配方法無特別限制。

使用韓蘇混合機(Henschel mixer)或轉鼓混合機等混合具有上述特定結構之液晶聚酯(a)、聚酯(b)、及若有需要，補強材料(如：玻璃纖維)、無機填料、脫模改質劑及熱安定劑，並使用擠壓機熔融捏合。

至於熔融捏合之方法，可將所有原料混合並同時饋入擠壓機。

若有需要，亦可將原料如補強材料(如：玻璃纖維)及無機填料與主要含有樹脂之原料分開饋入擠壓機。

本發明熱塑性樹脂組成物可適用於汽車及飛機零件、工業儀器、家庭電器用品、OA儀器、電子及電氣零件等。

#### 實例

下文中雖然顯示本發明之實例，但本發明不限於此等實例。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

### 五、發明說明(13)

此等實例中，抗拉強度，降伏伸長率、撓曲模數、及流動溫度係如下測量。

#### (1) 抗拉強度、降伏伸長率：

使用注模機自本發明之熱塑性樹脂組成物模製 ASTM 4 號噁鈴形試片，並依據 ASTM D638 測量之。

#### (2) 撓曲模數：

使用注模機自本發明之熱塑性樹脂組成物製得長 127 mm，寬 12.7 mm，及厚 6.4 mm 之試片，並依據 ASTM D790 測量之。

#### (3) 流動溫度：

使用島津公司 Koka 型流動測試器 CFT-500 型測量之。流動溫度定義為樹脂顯示 48000 泊之熔融黏度時之溫度，其中樹脂係在溫度上升速率為 4°C/min 之加熱下，自內徑 1 mm 及長度 10 mm 之噴嘴於 100 kg/cm<sup>2</sup> 負載下擠出。

具有低流動溫度之樹脂有優越的流動性。

#### (4) 穿透式電子顯微鏡之觀察：

由注模所獲得的熱塑性樹脂組成物之模塑物件藉著切片機切下一薄片。

使用超高解析度掃描式電子顯微鏡 (S-900 型，日立製作所股份有限公司之產品) 以 30 kV 加速電壓及 10000 倍放大率觀察穿透式影響。

使用照片分析裝置 (LA-555 型，PIAS 股份有限公司之產品) 測量平均分散粒徑。

#### 參考例 1

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

### 五、發明說明(14)

將對羥苯甲酸、4,4'-二羥二苯砒及對苯二酸以莫耳比60:20:20填料至備有錨型攪拌片之聚合容器。

在添加相對於羥基為1.1當量之乙酐後，以氮氣取代容器內之大氣，將混合物攪拌10分鐘。

然後在氮氣下及攪拌下將反應溫度升高至150℃，以及在乙酐化反應3小時後，以1℃/min之速率將溫度升高至320℃而餾除所形成的副產物。

於320℃下進行聚縮合15分鐘。

自聚合容器取出所得聚合物並予以冷卻後，使用研磨機(Rotoplex R 16/8，細川Micron股份有限公司之產品)將聚合物粉碎成平均粒徑1mm或少於1mm之顆粒。

進一步，在常壓之氮氣下，於260℃之溫度進行固相聚合達4小時，而獲得聚酯1。

此聚酯之流動溫度為355℃。

#### 參考例 2

除在常壓之氮氣下，於230℃之溫度進行固相聚合達4小時外餘與參考例1之相同方式製得聚合物，而得聚酯2。

此聚酯之流動溫度為315℃。

#### 參考例 3

除饋入的對羥苯甲酸、4,4'-二羥二苯砒、對苯二酸及異酞酸之莫耳比為20:40:30:10外，餘與參考例1之相同方式製得聚合物。

自聚合容器取出所得的聚合物並予以冷卻後，使用研

(請先閱讀背面之注意事項，填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 ( 15 )

磨機將聚合物粉碎成平均粒徑 1mm 或小於 1mm 之顆粒。

進一步，在常壓氮氣下及 220℃ 溫度下，進行固相聚合，而得聚酯 3。

此聚酯之流動溫度為 315℃。

實例 1

使用韓蘇混合機將 80 重量 % 之具有流動溫度 360℃ 及含有重複單元 A1、B1、B2 及 C1 (莫耳比 A1:B1:B2:C1 = 60:18:2:20) 之液晶聚酯 (稱為液晶聚酯 A) 與 20 重量 % 之參考例 1 而得的聚酯混合，使用雙螺桿擠壓器 (池貝鐵工所有有限公司，PCM-30) 於擠筒溫度 370℃ 製粒，而得熱塑性樹脂組成物 (實例 1)。

使用注模機 (日成塑膠工業股份有限公司 PS40ES ASE) 於擠筒溫度 380℃ 及模溫 120℃ 下模製熱塑性樹脂組成物，獲得如上述之試片。

測量抗拉強度、降伏伸長率、及撓曲模數，結果示於表 1。

如穿透式電子顯微鏡所觀察的結果，平均分散粒徑為 0.24 微米，且未觀察到粒徑超越 1 微米之顆粒。

表 1

抗拉強度	1530 kg/cm <sup>2</sup>
降伏伸長率	5 %
撓曲模數	56400 kg/cm <sup>2</sup>

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝  
訂

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

## 五、發明說明(16)

實例 2 至 8

使用韓蘇混合機將具有流動溫度 323℃ 及含有重複單元 A1、B1、B2 及 C1 (莫耳比 60:15:5:20) 之液晶聚酯 (稱為液晶聚酯 B)、於參考例 2 或 3 中獲得的聚酯、及玻璃纖維 (朝日纖維玻璃股份有限公司) 以表 2 所示之量混合, 使用雙螺桿擠壓機 (池貝鐵工所有限公司, PCM-30) 於擠柱溫度 340℃ 製粒, 而得熱塑性樹脂組成物 (實例 2-8)。

使用注模機 (日成塑膠工業股份有限公司 PS40E5 ASE) 於擠筒溫度 350℃ 及模溫 120℃ 下模塑熱塑性樹脂組成物, 而得上述試片。

測量抗拉強度、降伏拉長率、及撓曲模數, 結果示於表 2。

因為本發明之熱塑性樹脂組成物機械性質優越, 極適用於汽車及飛機零件、工業儀器、家庭電器產品、OA 儀器、電子及電氣零件。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明(17)

	液晶聚酯 (重量份)	聚酯2 (重量份)	聚酯3 (重量份)	玻璃纖維 (重量份)	抗拉強度 (kg/cm <sup>2</sup> )	降伏伸長率 (%)	撓曲模數 (kg/cm <sup>2</sup> )	平均分散粒徑 ( $\mu$ m)
實例2	80	20			1980	9	55100	0.39
實例3	80		20		2040	9	55700	0.32
實例4	20	80			910	5	44500	0.16
實例5	60	40			1740	7	61800	0.52
實例6	60	40		43	1470	4	110520	0.76
實例7	60		40		1830	7	66600	0.44
實例8	60		40	43	1430	4	115500	0.72

表2

## 四、中文發明摘要(發明之名稱：熱塑性樹脂組成物及其模製物件)

本發明有關一種熱塑性樹脂組成物，機械性質優越，可使用於汽車及飛機之零件、工業儀器、家庭電器用品、OA儀器、電子及電氣零件。

本發明之熱塑性樹脂組成物包括(a)1至99重量%之液晶聚酯及(b)99至1重量%之聚酯作為不可或缺之成分，其中該聚酯(b)係由下列所示之式I、II、及III之重複單元以特定比例所組成：

## 英文發明摘要(發明之名稱：THERMOPLASTIC RESIN COMPOSITION AND ITS MOLDED ARTICLE)

The thermoplastic resin composition is excellent in mechanical properties, and useful for parts of a car and an airplane, an industrial instrument, a household electric appliances product, an OA instrument, electric and electronic parts.

A thermoplastic resin composition comprising (a) 1 to 99 % by weight of a liquid crystalline polyester and (b) 99 to 1 % by weight of a polyester as indispensable components, wherein the polyester is composed of the repeating units represented by the following formulas I, II and III in a specific ratio,

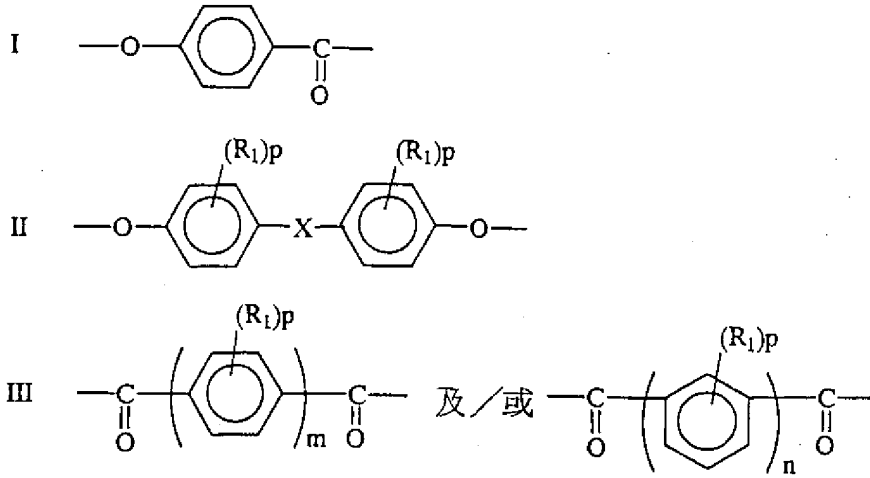
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

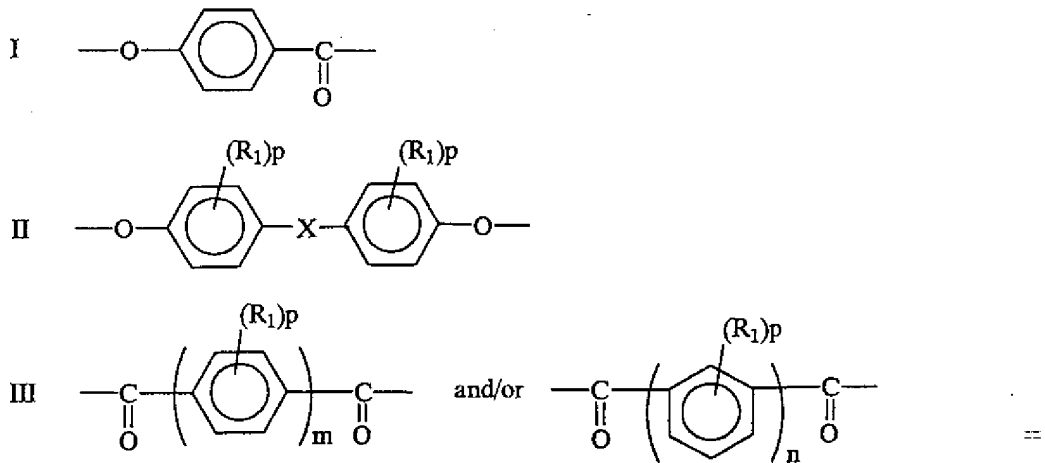
線

四、中文發明摘要 (發明之名稱: )



(式中, X 為  $-SO_2-$ 、 $-CO-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-CH_2-$ 、 $-CH_2-CH_2-$ 、 $-C(CH_3)_2-$ 、或單鍵;  $R_1$  示具有 1 至 6 個碳原子之烷基

英文發明摘要 (發明之名稱: )



(in the formula, X is  $-SO_2-$ 、 $-CO-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-CH_2-$ 、 $-CH_2-CH_2-$ 、 $-C(CH_3)_2-$ 、or a single bond;  $R_1$  represents an alkyl group having 1 to 6 carbon atoms,

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

四、中文發明摘要 (發明之名稱: )

、具有 3 至 10 個碳原子之烯基、苯基、或鹵原子；P 為 0 至 4 之整數；m 及 n 為 1 至 4 之整數；在相同或不同之核上之多數個 R<sub>1</sub> 可彼此不同，且各個 P 可彼此不同)。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

英文發明摘要 (發明之名稱: )

an alkenyl group having 3 to 10 carbon atoms,  
a phenyl group, or a halogen atom; p is an integer of 0 to 4;  
m and n are integers of 1 to 4; a plurality of R<sub>1</sub> on the same  
or different nuclei may be different each other, and each p may  
be different each other).

89. 5. 5  
修正  
補充

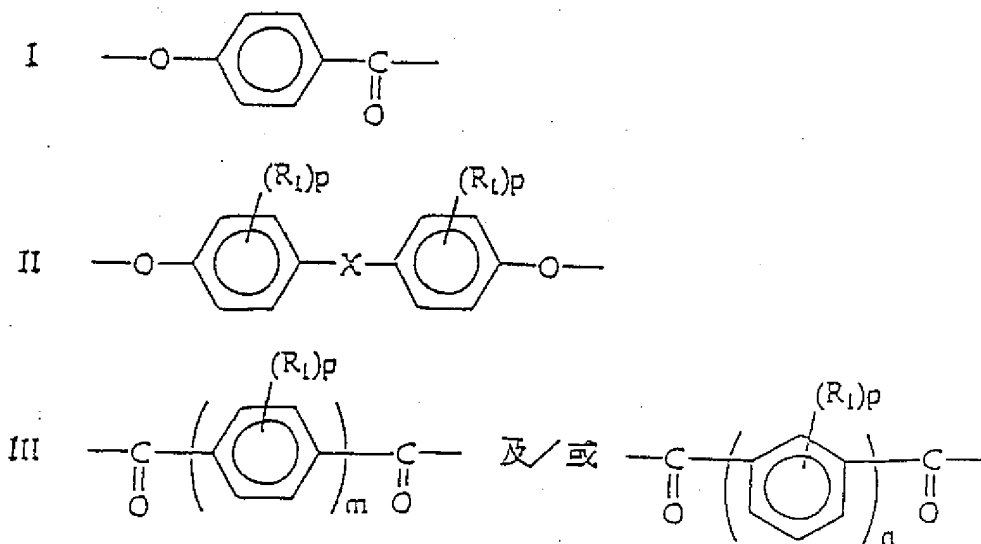
第 86108384 號專利申請案

申請專利範圍修正本

(89年5月5日)

1. 一種熱塑性樹脂組成物，包括 20 至 80 重量 % 之液晶聚酯 (a) 及 80 至 20 重量 % 之聚酯 (b) 作為不可或缺之成分，及可添加選自由纖維狀或針狀之補強材料，無機填料、脫模改質劑、著色劑、抗氧化劑、熱安定劑、紫外線吸收劑、抗靜電劑及界面活性劑而成之群體中的一種或多種添加劑，其中

該聚酯 (b) 係由下列所示之式 I、II、及 III 之重複單元所組成：



(式中，X 為  $-SO_2-$ ； $R_1$  示具有 1 至 6 個碳原子之烷基、具有 3 至 10 個碳原子之烯基、苯基、或鹵原子； $p$  為 0 至 4 之整數； $m$  及  $n$  為 1 至 4 之整數；在相同或不同之核上之多數個  $R_1$  可彼此不同，且各個  $p$  可彼此不同)，及該聚酯 (b) 之流動溫度為 280 至 400℃ 且滿足下列式子：

$$0 \leq (I) \leq 95 \quad (\text{莫耳 \%})$$

$$(II) + (III) = 100 - (I) \quad (\text{莫耳 \%}) \text{ 及}$$

$$0.9 \leq (II) / (III) \leq 1.1;$$

及該聚酯 (a) 具有選自下列 [a] 至 [f] 組合之重複單元：

[a]：(A1)、(B1)，或 (B1) 與 (B2) 混合物，及 (C1)

[b]：(A1) 及 (A2)，

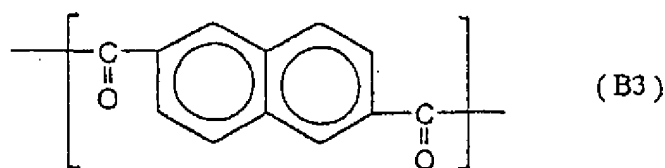
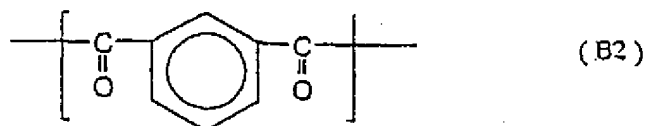
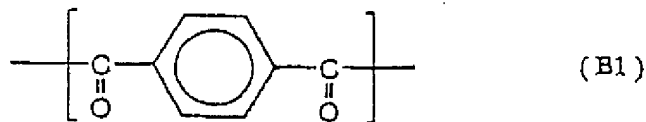
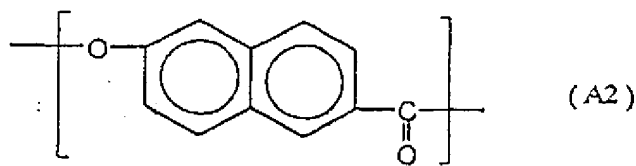
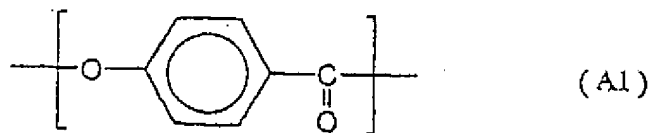
[c]：組合 [a] 中部份 (A1) 經 (A2) 置換之組合，

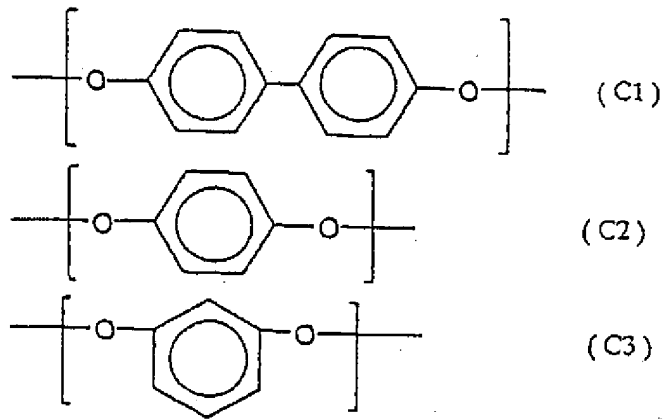
[d]：組合 [a] 中部份 (B1) 經 (B3) 置換之組合，

[e]：組合 [a] 中部份 (C1) 經 (C3) 置換之組合，

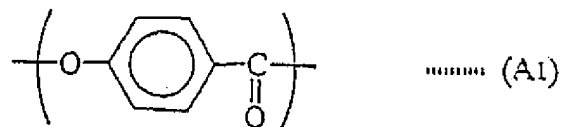
[f]：組合 [b] 中又添加 (B1) 及 (C2) 之組合，

其中各重複單元以下列表示：

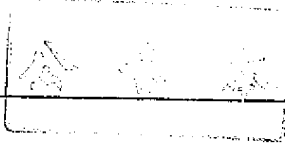




2. 如申請專利範圍第1項之熱塑性樹脂組成物，其中液晶聚酯(a)含有至少30莫耳%之下式(A1)所示之重複單元：



3. 一種模塑物件，係使用如申請專利範圍第1或2項之熱塑性樹脂組成物模塑而成。
4. 如申請專利範圍第3項之模塑物件，其中該熱塑性樹脂組成物包括20至40重量%之成分(a)及80至60重量%之成分(b)作為不可或缺之成分，且成分(a)以1微米或小於1微米之平均分散粒徑精細地分散於模塑物件中。
5. 如申請專利範圍第3項之模塑物件，其中熱塑性樹脂組成物包括60至80重量%之成分(a)及40至20重量%之成分(b)作為不可或缺之成分，且成分(b)以1微米或小於1微米之平均分散粒徑精細地分散於模塑物件中。



## 五、發明說明(4)

或缺之成分，及成分(b)係以1微米或小於1微米之平均分散粒徑精細地分散於模製物件中。

本發明所用之液晶聚酯一般稱為向熱性液晶聚合物。液晶聚酯之實例包含：

- (1)自芳族二羧酸、芳族二醇、芳族羥基羧酸及/或胺基苯甲酸之組合而製得者，
- (2)自二或多個不同芳族羥基羧酸製得者，
- (3)自芳族二羧酸及核經取代之芳族二醇製得者，
- (4)使芳族羥基羧酸等與聚酯如聚對苯二甲酸乙二酯反應而製得者。

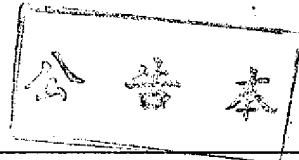
此等聚合物在溫度400℃或小於400℃時形成各向異性熔融物。芳族二羧酸、芳族二醇、及芳族羥基羧酸可被其酯衍生物所取代。

液晶聚酯之重複單元如下所示，但不限於此等液晶聚酯。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂



## 五、發明說明(9)

鑑於耐熱性、機械性質及操作性間之平衡，液晶聚酯較佳含有至少30莫耳%之上述式(A1)所示之重複單元。

詳言之，具有下示之重複單元之組合為較佳者。

[a]: (A1)、(B1)或(B1)及(B2)之混合物、及(C1)

[b]: (A1)、及(A2)

[c]: 組合[a]中之一部分(A1)被(A2)取代之組合

[d]: 組合[a]中之一部分(B1)被(B3)取代之組合

[e]: 組合[a]中之一部分(C1)被(C3)取代之組合

[f]: 進一步添加(B1)及(C2)至組合[b]之組合

藉由下列方法測量之此等液晶聚酯之流動溫度較佳自200℃至400℃，及更佳自250℃至350℃。

當流動溫度超過400℃，模塑性變惡化，且當流動溫度為250℃或較250℃小時，耐熱性不充分。

含有上述[a]及[b]作為基本結構之液晶聚酯見述於例如：JP-B-47-47870、JP-B-63-3888等。

具有特定結構之聚酯(b)由上述式I、II、及III所示之重複單元所組成，且滿足上式。由式(II)所示之重複單元可為2或更多種混合物，其中式中之X彼此不同。

具有量為95莫耳%或更多之式I所表示之重複單元之聚酯具有多種不可熔的晶體部分。而聚酯及熱塑性樹脂在製造組成物過程中不能分散者，係不佳。

若聚酯中之(II)/(III) < 0.9或(II)/(III) > 1.1時，在製造聚酯時未能獲得一足夠高的分子量製品，且係不佳的。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

### 五、發明說明 ( 15 )

磨機將聚合物粉碎成平均粒徑  $1\mu\text{m}$  或小於  $1\mu\text{m}$  之顆粒。

進一步，在常壓氮氣下及  $220^\circ\text{C}$  溫度下，進行固相聚合，而得聚酯 3。

此聚酯之流動溫度為  $315^\circ\text{C}$ 。

#### 實例 1

使用韓蘇混合機將 80 重量 % 之具有流動溫度  $360^\circ\text{C}$  及含有重複單元 A1、B1、B2 及 C1 (莫耳比  $A1:B1:B2:C1 = 60:18:2:20$ ) 之液晶聚酯 (稱為液晶聚酯 A) 與 20 重量 % 之參考例 1 而得的聚酯混合，使用雙螺桿擠壓器 (池貝鐵工所有有限公司，PCM-30) 於擠筒溫度  $370^\circ\text{C}$  製粒，而得熱塑性樹脂組成物 (實例 1)。

使用注模機 (日成塑膠工業股份有限公司 PS40ES ASE) 於擠筒溫度  $380^\circ\text{C}$  及模溫  $120^\circ\text{C}$  下模製熱塑性樹脂組成物，獲得如上述之試片。

測量抗拉強度、降伏伸長率、及撓曲模數，結果示於表 1。

如穿透式電子顯微鏡所觀察的結果，平均分散粒徑為  $0.24\mu\text{m}$ ，且未觀察到粒徑超越  $1\mu\text{m}$  之顆粒。

表 1

抗拉強度	$1530\text{ kg/cm}^2$
降伏伸長率	5 %
撓曲模數	$56400\text{ kg/cm}^2$

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

附件二

89. 5. 5  
修正  
補充

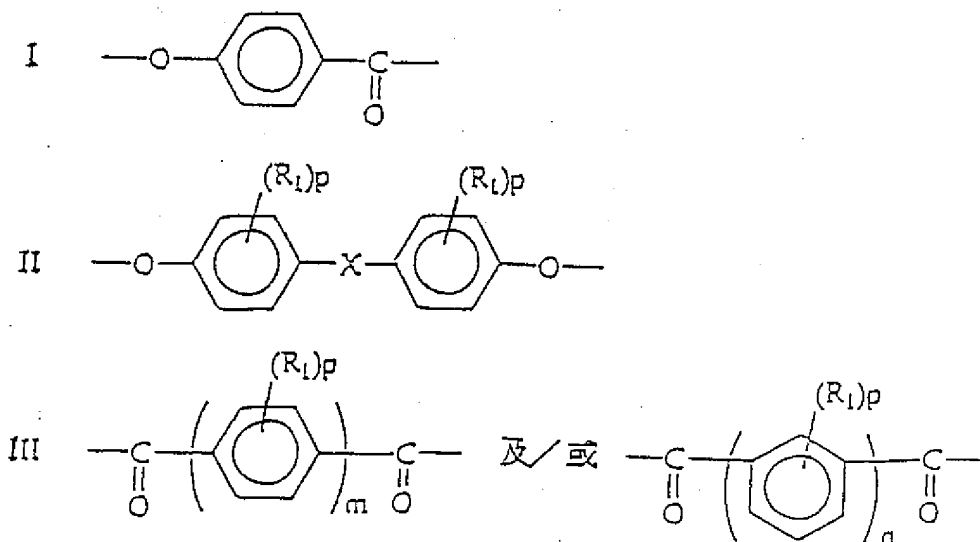
第 86108384 號專利申請案

申請專利範圍修正本

(89年5月5日)

1. 一種熱塑性樹脂組成物，包括 20 至 80 重量 % 之液晶聚酯 (a) 及 80 至 20 重量 % 之聚酯 (b) 作為不可或缺之成分，及可添加選自由纖維狀或針狀之補強材料，無機填料、脫模改質劑、著色劑、抗氧化劑、熱安定劑、紫外線吸收劑、抗靜電劑及界面活性劑而成之群體中的一種或多種添加劑，其中

該聚酯 (b) 係由下列所示之式 I、II、及 III 之重複單元所組成：



(式中，X 為  $-SO_2-$ ； $R_1$  示具有 1 至 6 個碳原子之烷基、具有 3 至 10 個碳原子之烯基、苯基、或鹵原子； $p$  為 0 至 4 之整數； $m$  及  $n$  為 1 至 4 之整數；在相同或不同之核上之多數個  $R_1$  可彼此不同，且各個  $p$  可彼此不同)，及該聚酯 (b) 之流動溫度為 280 至 400℃ 且滿足下列式子：