

# 發明專利說明書

(本申請書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：97130074

※申請日期：97年08月07日

※IPC分類：

08K 7/00 (2006.01)

7/18 (2006.01)

7/22 (2006.01)

3/00 (2006.01)

08L 01/00 (2006.01)

6/00 (2006.01)

81/02 (2006.01)

H01B 3/30 (2006.01)

## 一、發明名稱：

(中) 絕緣樹脂組合物及其應用

(英) Insulating resin composition and application thereof

## 二、申請人：(共 1 人)

1. 姓名：(中) 住友化學股份有限公司

(英) SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED

代表人：(中) 1. 米倉弘昌

(英) 1. YONEKURA, HIROMASA

地址：(中) 日本國東京都中央區新川二丁目二七番一號

(英) 27-1, Shinkawa 2-chome, Chuo-ku, Tokyo 104-8260, JAPAN

國籍：(中英) 日本 JAPAN

## 三、發明人：(共 3 人)

1. 姓名：(中) 小松晉太郎

(英) KOMATSU, SHINTARO

國籍：(中) 日本

(英) JAPAN

2. 姓名：(中) 前田光男

(英) MAEDA, MITSUO

國籍：(中) 日本

(英) JAPAN

3. 姓名：(中) 原田博史

(英) HARADA, HIROSHI

國籍：(中) 日本

(英) JAPAN

## 四、聲明事項：

◎本案申請前已向下列國家(地區)申請專利  主張國際優先權：

# 發明專利說明書

(本申請書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：97130074

※申請日期：97年08月07日

※IPC分類：

08K 7/00 (2006.01)

7/18 (2006.01)

7/22 (2006.01)

3/00 (2006.01)

08L 01/00 (2006.01)

6/00 (2006.01)

81/02 (2006.01)

H01B 3/30 (2006.01)

## 一、發明名稱：

(中) 絕緣樹脂組合物及其應用

(英) Insulating resin composition and application thereof

## 二、申請人：(共 1 人)

1. 姓名：(中) 住友化學股份有限公司

(英) SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED

代表人：(中) 1. 米倉弘昌

(英) 1. YONEKURA, HIROMASA

地址：(中) 日本國東京都中央區新川二丁目二七番一號

(英) 27-1, Shinkawa 2-chome, Chuo-ku, Tokyo 104-8260, JAPAN

國籍：(中英) 日本 JAPAN

## 三、發明人：(共 3 人)

1. 姓名：(中) 小松晉太郎

(英) KOMATSU, SHINTARO

國籍：(中) 日本

(英) JAPAN

2. 姓名：(中) 前田光男

(英) MAEDA, MITSUO

國籍：(中) 日本

(英) JAPAN

3. 姓名：(中) 原田博史

(英) HARADA, HIROSHI

國籍：(中) 日本

(英) JAPAN

## 四、聲明事項：

◎本案申請前已向下列國家(地區)申請專利  主張國際優先權：

【格式請依：受理國家（地區）；申請日；申請案號數 順序註記】

1. 日本 ; 2007/09/12 ; 2007-236374 有主張優先權
2. 日本 ; 2008/05/08 ; 2008-122025 有主張優先權

## 九、發明說明

### 【發明所屬之技術領域】

本發明係關於絕緣樹脂組成物，其可提供用於電絕緣之導熱性極佳之模塑物件。

### 【先前技術】

近年來，電力和電子零件的領域中，零件內部產生的熱已造成微小化和以前技術進步之困難。當用以增進熱管理的設備不足以用於此熱生成時，電力和電子零件的效能可能會因熱的累積而降低。欲處理此困難及確保熱生成之安全，較佳地，電力和電子零件中使用一種具有高導熱性的元件。

在須要高導熱性的零件中，目前主要使用金屬材料，但金屬材料具有保留重量和在模塑於採用之微小化的零件上的缺點，因此它們越來越常被樹脂材料所取代。

已針對包括高導熱性填料的導熱性樹脂組成物進行許多研究。導熱性填料以纖維形式（纖維性導熱填料）用於模塑物件中，於物件中提供導熱途徑，使得物件具有極佳的導熱性。例如，曾提出具有導熱性填料的熱塑性組成物，其中具有特定纖維長度的碳纖維成束（請參考，日本未審理的專利申請案第（JP-A-）9-157403號（段落〔0023〕至〔0026〕；相當於US 6,120,894；及熱塑性樹脂與氮化鋁纖維和具有高導熱性的無機粉末之組成物（請參考JP-A-8-283456（申請專利範圍））。

然而，自前文所提出的組成物得到之模塑物件並非皆能符合實際使用的要求。例如，自 JP-A-9-157403 所揭示的組成物得到之模塑物件，其中，導熱途徑主要製自碳纖維，由於自碳纖維製得的導熱途徑具有導電性，所以可能不適用於電絕緣的電力或電子零件。自 JP-A-8-283456 揭示之組成物得到的模塑物件之導熱性不足。

## 【發明內容】

### 發明總論

在這樣的情況下，本發明的目的之一係提供一種絕緣樹脂組成物，其可提供具有用於電力和電子零件之極佳導熱性和足夠電絕緣性的模塑物件。

本發明的發明者致力於研究以達到此目的並已完成本發明。本發明提供一種樹脂組成物包含：

(A) 熱塑性樹脂；

(B) 粒狀材料，其數均粒子直徑為 0.5 至 5 毫米且可藉由將主要具有數均纖維直徑為 1 至 50 微米的氧化鋁之纖維加以粒化而得；和

(C) 填料，其由 300K 的電阻率為  $10^2$  歐姆米或較低的材料所構成。

進一步，本發明提供一種藉由模塑前述樹脂組成物可得之模塑物件。

本發明之樹脂組成物為絕緣樹脂組成物，其可經模塑，例如，藉由已知方法模塑成具有電絕緣性之模塑物件。

此模塑物件的電阻率基本上是  $10^{12}$  歐姆米或較高，並因此，此模塑物件在如電力和電子零件的應用上，具有足夠的電絕緣性。

自本發明之絕緣樹脂組成物，可得到具有高導熱性和極佳電子絕緣性的模塑物件並可作為具有此極佳性質之電力和電子零件。特別地，此模塑物件適用於與電力和電子零件有關的元件，且在工業上非常有用。

### 【實施方式】

本發明之樹脂組成物包含：

(A) 熱塑性樹脂；

(B) 粒狀材料，其數均粒子直徑為 0.5 至 5 毫米且可藉由將主要具有數均纖維直徑為 1 至 50 微米的氧化鋁之纖維加以粒化而得；和

(C) 填料，其由 300K 的電阻率為  $10^2$  歐姆米或較低的材料所構成。

本發明使用的組份 (C) 係由 300K 的電阻率為  $10^2$  歐姆米或較低的材料所構成。

填料的較佳例子包括由材料如，Au ( $3 \times 10^{-8}$  歐姆米)、Ag ( $2 \times 10^{-8}$  歐姆米)、Cu ( $2 \times 10^{-8}$  歐姆米) 等金屬、碳化矽 ( $1 \times 10^{-6}$  歐姆米) 和石墨 ( $1 \times 10^{-5}$  歐姆米) 及碳纖維 ( $3 \times 10^{-6}$  歐姆米) 所構成的填料。特別地，較佳地使用由碳化矽所構的填料、石墨所構成的填料或碳纖維填料。此處，前述括弧內的值各者代表於 300K 測得的電阻率。

由碳化矽所構成的填料以數均粒子直徑為 0.1 至 30 微米為佳（0.5 至 20 微米較佳，1 至 10 微米更佳）的粒狀填料。當粒子直徑在 0.1 至 30 微米範圍內時，所得模塑物件的表面不會明顯退化。因此，將得到具有極佳外觀的此模塑物件，且導熱性的改良效果變得足夠。此外，當粒子直徑在此範圍內，一優點在於絕緣樹脂組合物的模塑性變得良好。

碳化矽粒子的例子包括 OY 系列（註冊名稱：Yakushima Denko Co., Ltd.）。

較佳碳纖維包括以樹脂為基礎的碳纖維。於溫度為 300K 測定時，此碳纖維的導熱率為 100 瓦/米 K，以導熱率為 120 瓦/米 K 或較高為佳，且導熱率為 200 瓦/米 K 或較高更佳。此碳纖維的纖維直徑以 1 至 20 微米為佳，纖維直徑為 5 至 15 微米更佳。

此碳纖維的例子包括 Dialead（Mitsubishi Plastic Inc. 製造）和 Granock（Nippon Graphite Fiber Corporation 製造）。

此石墨可為天然石墨或可為人造石墨。以天然石墨為佳。由此石墨構成的填料（石墨填料）形狀可為鱗屑狀或球狀。此石墨填料的數均粒子直徑以 30 至 300 微米為佳，數均粒子直徑以 30 至 100 微米更佳。數均粒子直徑以 30 至 300 微米為佳，此因當石墨填料混入熱塑性樹脂（特別是下文所述的液晶聚酯）中時，所得樹脂組成物的高導熱性和模塑性均衡極佳之故。數均粒子直徑可藉由使用測

定雷射繞射粒子大小分佈之方法簡便測得。以藉雷射繞射粒子大小分佈方法得到的數均粒子直徑為基礎，可以選擇適用於本發明的石墨填料。

易取得之石墨填料市售品的例子包括鱗屑狀的石墨粉末或粒化的石墨粉末（二者皆製自 Nippon Graphite Industries Co., Ltd）和鱗屑狀的石墨（製自 Nishimura Graphite Inc., Ltd.）。

在這些例示石墨中，以使用鱗屑狀石墨為佳，此由於所得的樹脂組成物具有優良的模塑性之故。此鱗屑狀的石墨之優點在於成本，此由於其比粒狀石墨便宜之故。

已經知道物質的導熱率與電阻率呈反比。當電阻率低的材料（低電阻率材料）（如，金屬材料或碳纖維）作為高導熱填料時，所得模塑物件的電絕緣性有降低的趨勢。因此，用於一般須要電絕緣性的電力和電子零件，低電阻率材料之使用受到限制。另一方面，本發明提供一種樹脂組成物，其可利用由低導電性材料所構成的填料之高導熱性及維持足夠的電絕緣性製成模塑物件。本發明中，藉由使用低電阻率材料所構成的填料與下述組份（B）併用，所得模塑物件具有優點，使得電絕緣性和導熱性高度協調。

本發明之樹脂組成物中，由低電阻率材料構成的填料的使用濃度以與填料彼此接觸而形成導電途徑處之濃度（滲透濃度）相同或較之為低為佳，且組份（B）有效地位於由低電阻率材料構成的填料中。因此，導熱途徑係由組

份（B）（將主要具有氧化鋁的纖維加以粒化的材料）和組份（C）（低電阻率材料）二者所構成，以具有高導熱性並維持導熱途徑的電絕緣性。

此外，即使當導熱途徑的製造方式使得由低電阻率材料構成的填料彼此與適當的電絕緣體連接，仍須注意所謂的樹介電瓦解發生於低電阻率材料構成的填料之間，且所得模塑物件的介電強度電壓明顯變低。然而，關於自本發明的絕緣樹脂組成物得到之模塑物件，令人訝異地，這樣的介電瓦解受到非常足夠的抑制，且容易達得到電力和電子零件所須的介電強度電位（介電瓦解電壓：1 千伏特/毫米或較高）之極佳效果。

如前述者，適當地選擇組份（C）的混合量，使得其為在得到的模塑物件中為滲透濃度或較低，且以組份（A）的種類為基礎，必須使得組份（C）的混合量最適化，以控制混合量為滲透濃度或較少。組份（C）的較佳混合量以組份（A）為基礎，相對於 100 重量份之組份（A）的熱塑性樹脂，組份（C）以 1 至 50 重量份為佳，1 至 40 重量份更佳，5 至 40 重量份又更佳。當組份（C）的混合量在前述範圍中時，電絕緣足以維持，且可得到導熱性較高的模塑物件。

本發明之樹脂組成物包含粒狀材料（組份（B）），其數均粒子直徑為 0.5 至 5 毫米且可藉由將主要具有數均纖維直徑為 1 至 50 微米的氧化鋁之纖維加以粒化而得。

此處，“粒狀材料”中的粒度是指材料為粒狀且縱橫比

(其為材料的主要軸長度與次要軸長度的比值)在 1 至 2 的範圍內。“數均粒子直徑”係使用掃描式電子顯微鏡或光學顯微鏡，針對粒狀材料的主要軸和次要軸外部觀察，以 100 或更多個粒狀材料測得的值之算術平均得到。請注意纖維的 1000 或更多次測定被拍照且藉影像處理裝置二元化，可得到纖維狀填料的數均纖維直徑。

粒狀材料，組份 (B)，是可藉由將主要具有氧化鋁 (如，氧化鋁纖維) 的纖維加以粒化而得的材料。藉此粒狀材料和組份 (C) 的增效效應，電絕緣和導熱性高度協調。

“主要具有氧化鋁”的纖維以含有約 50 重量%或更多氧化鋁 (即，氧化鋁 ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )) 為佳的纖維。纖維中的氧化鋁含量以約 70 重量%或更多為佳，且約 90 重量%或更多最佳。

主要具有氧化鋁之纖維具有氧化鋁以外的組份，如，氧化矽 ( $\text{SiO}_2$ )。

未限制粒狀材料中所用氧化鋁纖維的數均纖維直徑且可在 1 至 50 微米的範圍內，以 1 至 30 微米為佳，1 至 20 微米更佳。當數均纖維直徑在 1 至 50 微米的範圍內時，用以得到粒狀材料的粒化加工性良好，且具有纖維本身在粒化法中難以切割的優點。當直徑過短之氧化鋁的粒狀材料作為組份 (B) 時，導熱性的改良效果將受損。

未限制氧化鋁纖維的纖維強度。市售氧化鋁纖維可用於本發明，且市售氧化鋁之纖維強度為 100 微米至 100 毫

米，以 100 微米至 80 毫米為佳，且 150 微米至 60 毫米更佳。纖維強度在 100 微米至 100 毫米範圍中時，所得之本發明之樹脂組成物的模塑性極佳，且導熱性（其為本發明的目的之一）更獲改良。

氧化鋁纖維市售品的例子包括 Altex（Sumitomo Chemical Co., Ltd.製造）、Denka Alcen（Denki Kagaku kogyo 製造）、Maftec bulk fiber（Mitsubishi Plastic Inc.製造）和 Saffil alumina fiber（Saffil Japan Ltd.製造）。

較佳地，氧化鋁纖維是整體密度為 0.2 至 1 克/立方公分的纖維，其可根據 Japanese Industrial Standards（JIS）K5101-12 測定。使用此纖維時，除了較易製造粒狀材料以外，其優點在於自本發明之所得的樹脂組成物得到之模塑物件的導熱性更獲改良。整體密度以 0.2 至 0.5 克/立方公分為佳，0.2 至 0.4 克/立方公分更佳，且 0.2 至 0.35 克/立方公分最佳。雖然具此整體密度的氧化鋁纖維成為叢毛狀，其可於下述製備本發明之樹脂組成物的粒化步驟中變成粒狀材料，而具有較佳的操作性。

藉由將氧化鋁纖維加以粒化，可得到組份（B）的粒狀材料。粒化法的例子包括已知方法，如，攪拌粒化、振動粒化和研磨粒化。其中，以攪拌粒化為佳。用於攪拌粒化之攪拌機的例子包括顛動機、Nauta 混合機、螺條式混合機和 Henschel 混合機。其中，就短時間處理的觀點，以 Henschel 混合機為佳。

如前述者，粒狀材料的數均粒子直徑在 0.5 毫米至 5 毫米的範圍內，以 1 毫米至 2 毫米為佳，1 毫米至 1.5 毫米更佳。當數均粒子直徑為 0.5 毫米或較高時，加工性（特別是得到所得樹脂組成物的加工性）變得良好。當數均粒子直徑為 5 毫米或較低時，粒狀材料在熔融樹脂中之分散性變好，以藉熔化此樹脂組成物得到模塑物件，此二者皆提供良好的模塑性。欲得到具有此數均粒子直徑的粒狀材料，處理條件因攪拌機械而不同，且基本上，它們可以藉攪拌速率和攪拌時間控制，且經由事前實驗可達到最高條件。此外，此粒化處理之後，藉分類操作移除細粒和粗粒，可得到數均粒子直徑為 0.5 至 5 毫米的粒狀材料。分類操作的例子包括使用 Dorco 分粒機、虹吸分粒機、傾斜分粒機、螺旋分粒機..等作為濕式分類操作；和使用離心分類機、慣性分類法、篩網..等作為乾式分類操作。

此攪拌粒化可藉已知方法進行，其粒子包括使用前述攪拌機用於粉末粒化之方法、氧化鋁纖維在適當溶劑中混合之後攪拌和乾燥之方法，及藉混合機或類似者攪拌同時噴灑適當溶劑繼而乾燥之方法。此外，其可為藉混合機或類似者攪拌並同時將適當溶劑噴灑在氧化鋁纖維的粒料上繼而乾燥之方法。此方法中，可用溶劑為，如，水、有機溶劑或它們的混合物。較佳地，適合使用水或水/有機溶劑混合物（其中水為主要組份）作為溶劑。溶劑之中，較佳者是水。

本發明的攪拌粒化中，收斂劑可含於溶劑中。

未特別限制此收斂劑，且可以使用各種種類。收斂劑的例子包括以矽烷為基礎和以鈦酸酯為基礎的偶合劑。

以矽烷為基礎的偶合劑之例子包括，如， $\gamma$ -巰丙基三甲氧基矽烷、2-苯乙烯基乙基三甲氧基矽烷、N- $\beta$ -（胺乙基）- $\gamma$ -胺丙基三甲氧基矽烷、 $\beta$ -（3,4-環氧環己基）乙基三甲氧基矽烷、 $\gamma$ -縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷、苯基三甲氧基矽烷、甲基二甲氧基矽烷，其可以單獨使用或者二或較多種併用。

以鈦酸酯為基礎之偶合劑的例子包括異丙基三異硬脂醯基鈦酸酯、異丙基三辛醯基鈦酸酯、異丙基三（二辛基焦磷酸酯）鈦酸酯、異丙基三（二甲基丙烯醯基）異硬脂醯基鈦酸酯、異丙基三（N,N-二胺基乙基）鈦酸酯、異丙基三（十二烷基苯磺醯基）鈦酸酯、異丙基異硬脂醯基二丙烯醯基鈦酸酯、異丙基三（二辛基磷酸酯）鈦酸酯、異丙基三枯苯基鈦酸酯、四異丙基雙（二辛基磷酸酯）鈦酸酯、四辛基雙（二（十二烷基）磷酸酯）鈦酸酯、四（2,2-二烯丙基氧基甲基-1-丁基）雙（二（十三烷基）磷酸酯）鈦酸酯、雙（二辛基焦磷酸酯）氧乙酸酯鈦酸酯及雙（二辛基焦磷酸酯）鈦酸乙二酯，其可以單獨使用或者二或較多種併用。此外，矽烷偶合劑及鈦酸酯偶合劑可以一起使用。

相對於 100 重量份的氧化鋁纖維總量，偶合劑含量可為 5 重量份或較少，以 2 重量份或較少為佳。本發明之粒狀材料中，難觀察到藉收斂劑（如，偶合劑）改良導熱性

之效果，但當偶合劑的量過大時，將因為自所得樹脂組成物得到之模塑物件的導熱性和機械性變低而非較佳者。然而，就此粒狀材料提高與欲混合的樹脂之親和性，及改良模塑所得樹脂組成物於模塑時的投料性質觀之，可以使用自經少量偶合劑處理的纖維狀填料得到之粒狀材料。

藉此得到組份（B）的粒狀材料時，可以在組份（B）用於本發明之樹脂組成物之前，藉分類操作而使得組份（B）具有本發明的較佳數均粒子直徑。

與組份（C）併用之組份（B）的混合量可以設定在具有高度導熱性和電絕緣性的範圍內。以 100 重量份的熱塑性樹脂（組份（A））計，組份（B）的用量以在 10 至 400 重量份為佳，10 至 300 重量份更佳。當組份（C）的混合量在 10 至 400 重量份範圍中時，電絕緣性和導熱性可高度相容。

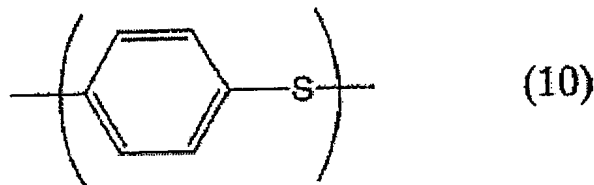
本發明中使用的組份（A）之熱塑性樹脂可以是可在 200 至 450℃ 模塑溫度（熔化溫度）模塑且可作為電絕緣材料的樹脂。作為組份（A）之熱塑性樹脂的例子包括聚烯烴、聚苯乙烯、聚醯胺、鹵化乙烯樹脂、聚縮醛、飽和聚酯、聚碳酸酯、聚芳基砜、聚芳基酮、聚苯醚、聚苯硫醚、聚芳基醚酮、聚醚砜、聚苯硫醚砜、聚烯丙酸酯、芳族聚醯胺、液晶聚酯和氟樹脂。此熱塑性樹脂可以單獨使用，或者可以由二或更多種熱塑性樹脂所構成之聚合物混雜物使用。

熱塑性樹脂中，較佳樹脂是液晶聚酯、聚醚砜、聚烯

丙酯、聚苯硫醚、聚醯胺 4/6 或聚醯胺 6T，其為耐熱性特別佳者。其中，聚苯硫醚和液晶聚酯是特別佳者，此外，就良好薄壁模塑性而言，液晶聚酯更佳。具良好薄壁模塑性的液晶聚酯特別適用以製造電力和電子零件中使用之具有複雜形狀的元件。

下文將更詳細地描述作為適當熱塑性樹脂之聚苯硫醚和液晶聚酯。

基本上，聚苯硫醚是主要包括以下列式 (10) 所示之結構單元的樹脂。至於製造此聚苯硫醚之方法，方法的例子包括經鹵素取代之芳族化合物與鹼金屬硫化物反應之方法（如美國專利案第 2,513,188 號及日本審理中的專利申請案第 44-27671 號所示），噻吩在鹼性觸媒、銅鹽之類之存在下進行縮合反應（如美國專利案第 3,274,165 號所示），或芳族化合物與氯化硫在路易斯酸存在下進行縮合反應（如日本審理中的專利申請案第 46-27255 號所示）。此外，亦可使用易取得之市售的聚苯硫醚（例如自 Dainippon Ink and Chemicals Inc. 取得的聚苯硫醚）。



本發明中使用的液晶聚酯可以稱為熱致液晶聚合物，其於 450°C 或較低的溫度形成熔體。

此液晶聚酯的開始流動溫度為 280°C 或較高。請注意“開始流動溫度”是液晶聚酯之受熱的熔融物於升溫速率為 4

℃ /分鐘，於 100 公斤 /平方公分載量下，自噴嘴被壓出時具有熔黏度為 48000 泊之溫度。

液晶聚酯的例子包括：

(1) 藉芳族羥基羧酸、芳族二羧酸及芳族二醇組合之聚合反應製得者，

(2) 藉不同類型之芳族羥基羧酸的聚合反應製得者，

(3) 藉芳族二羧酸與芳族二醇的聚合反應製得者，和

(4) 藉晶狀聚酯（如，聚對苯二甲酸乙二酯）與芳族羥基羧酸的反應製得者。

藉由使用它們之生酯衍生物代替這些芳族羥基羧酸、芳族二羧酸或芳族二醇，液晶聚酯之產製變得容易，此為較佳者。

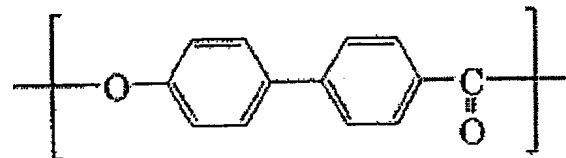
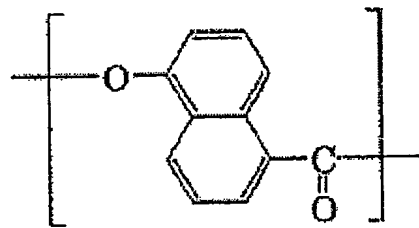
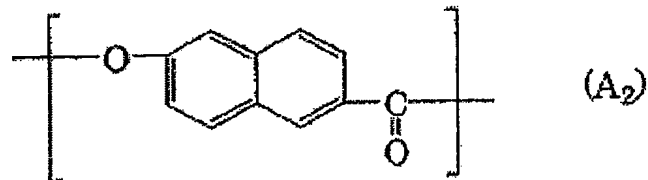
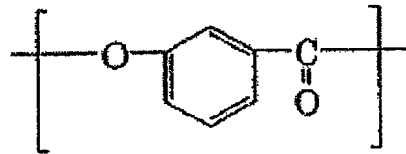
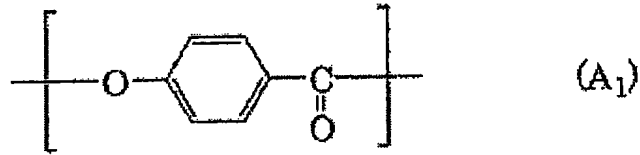
當所用之芳族羥基羧酸及芳族二羧酸具有分子內的羧基時，生酯衍生物的例子包括藉羧基團轉化成高反應性基團（如，酸醯鹵基團及酸酐）之轉化反應製得者，及可藉轉酯化作用生成聚酯之具有醇及乙二醇的酯類。當所用之芳族羥基羧酸及芳族二醇具有分子內的酚系羥基時，生酯衍生物的例子包括酚系羥基與低碳羧酸之可藉轉酯化作用生成聚酯之酯類。

此芳族羥基羧酸、芳族二羧酸及芳族二醇的芳環上可具有鹵素原子（如，氯原子和氟原子）、烷基（如，甲基和乙基）和芳基（如，苯基），其具有的程度不會過度干

擾其生酯性質。

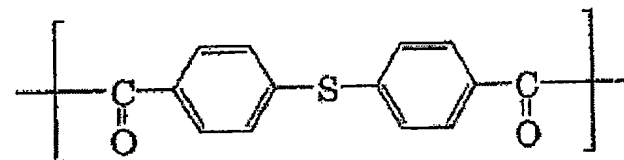
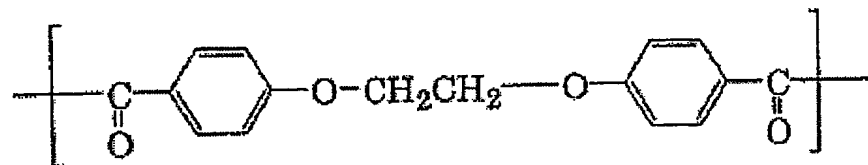
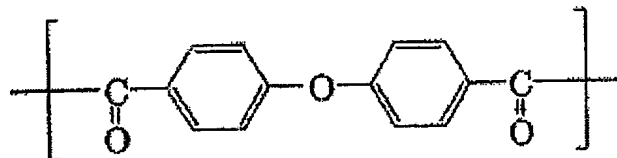
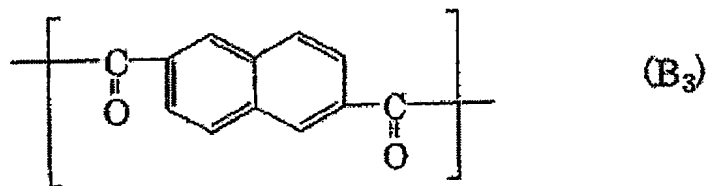
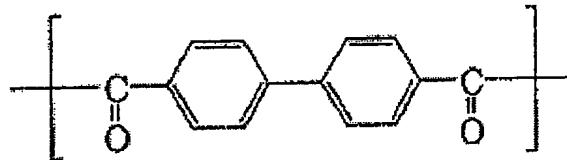
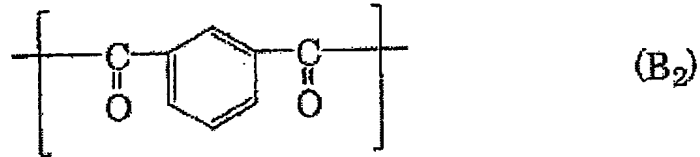
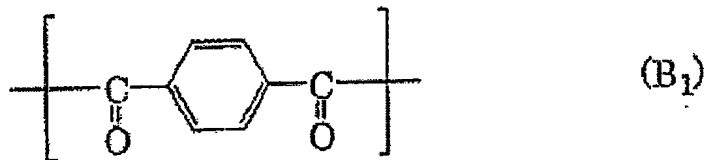
本發明之液晶聚酯中的結構單元的例子包括下列者：

衍生自芳族羧基酸的結構單元：



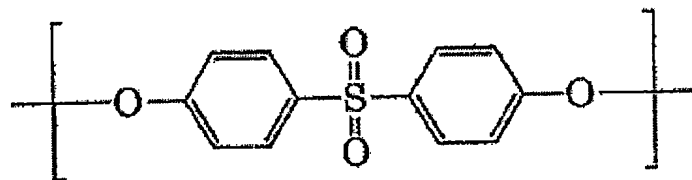
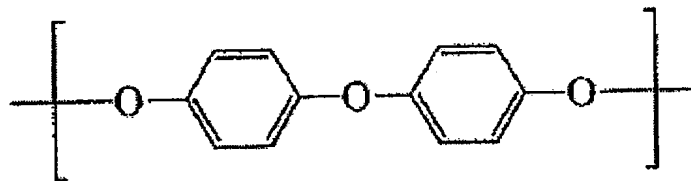
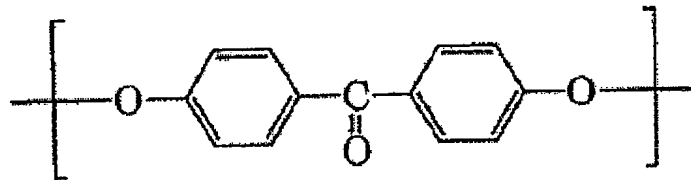
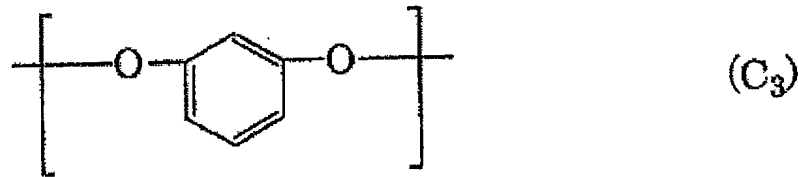
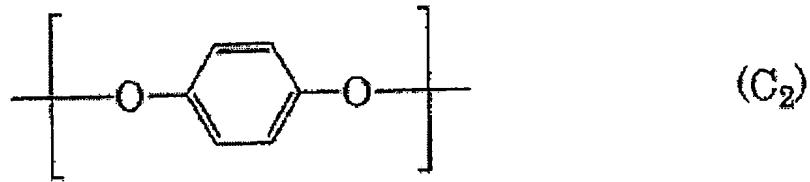
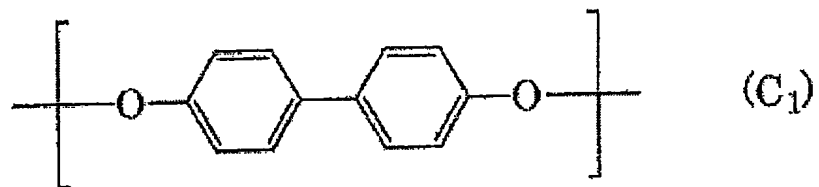
前述結構單元可以具有鹵素原子、烷基或芳基作為取代基。

衍生自芳族二羧酸的結構單元：



前述結構單元可以具有鹵素原子、烷基或芳基作為取代基。

衍生自芳族二醇的結構單元：



前述結構單元可以具有鹵素原子、烷基或芳基作為取代基。

選自前示單元的結構單元之組合的例子構成包括下面的組合 (a) 至 (h) 之液晶聚酯。

(a) : (A<sub>1</sub>)、(B<sub>1</sub>) 及 (C<sub>1</sub>) 的組合，或者 (A<sub>1</sub>)、(B<sub>1</sub>)、(B<sub>2</sub>) 及 (C<sub>1</sub>) 的組合；

(b) : (A<sub>2</sub>)、(B<sub>3</sub>) 及 (C<sub>2</sub>) 的組合，或者 (A<sub>2</sub>)、(B<sub>1</sub>)、(B<sub>3</sub>) 及 (C<sub>2</sub>) 的組合；

(c) : (A<sub>1</sub>) 及 (A<sub>2</sub>) 的組合 ;

(d) : 將結構單元組合 (a) 之部分或全部的 (A<sub>1</sub>) 以 (A<sub>2</sub>) 替代所得到的組合 ;

(e) : 將結構單元組合 (a) 之部分或全部的 (B<sub>1</sub>) 以 (B<sub>3</sub>) 替代所得到的組合 ;

(f) : 將結構單元組合 (a) 之部分或全部的 (C<sub>1</sub>) 以 (C<sub>3</sub>) 替代所得到的組合 ;

(g) : 將結構單元組合 (b) 之部分或全部的 (A<sub>2</sub>) 以 (A<sub>1</sub>) 替代所得到的組合 ;

(h) : 將 (B<sub>1</sub>) 及 (C<sub>2</sub>) 加至結構單元組合 (c) 所得到的組合。

就耐熱性、機械性質和加工性之間平衡的觀點，特別佳的液晶聚酯具有 (A<sub>1</sub>) 所示結構單元的量為以液晶聚酯總結構單元計之至少 30 莫耳%。

相當於組合 (a) 和 (b) 之液晶聚酯分別揭示於，例如，日本審理的專利申請案第 47-47870 和 63-3888 號，且可藉揭示於，例如，日本未審理的專利申請案第 2002-146003 號，中之方法製備。例如，製備此液晶聚酯之方法的步驟包含單體（芳族羧基羧酸、芳族二羧酸、芳族二醇或其生酯衍生物）進行熔融聚縮合反應以製得分子量相當低的芳族液晶聚酯（在下文中簡稱為“預聚物”），之後，將預聚物製成粉末，並將粉末加熱以引發固相聚合反應。進行此固相聚合反應時，可進一步聚合，得到較高分子量的聚合物。此外，藉合併熔融聚合反應和固相聚合反應而

製造液晶聚酯之方法可改良所得液晶聚酯的開始流動溫度。特別地，藉由適當地使固相聚合反應之聚合條件最適化，能夠簡便地製得具有所欲開始流動溫度的液晶聚酯。

就具有液晶性的觀點，較佳地，本發明中使用的液晶聚酯是衍生自對-羥基苯甲酸的結構單元和衍生自 2-羥基-6-萘酸的結構單元共為以液晶聚酯總結構單元計之 30 至 80 莫耳%；衍生自氫醌的結構單元和衍生自 4,4'-二羥基聯苯的結構單元共為以液晶聚酯總結構單元計之 10 至 35 莫耳%；及衍生自對酞酸的結構單元、衍生自異酞酸的結構單元和衍生自 2,6-萘二羧酸的結構單元共為以液晶聚酯總結構單元計之 10 至 35 莫耳%的液晶聚酯。

本發明之樹脂組成物包含組份 (A)、(B) 和 (C)。使用該組成物，可得到具電絕緣性和高導熱性的模塑物件。本發明之樹脂組成物可進一步包含 (D) 氧化鋁細粒 (組份 (D)) 作為導熱填料。此包含氧化鋁細粒的樹脂組成物更能進一步改良導熱性。此外，當液晶聚酯作為組份 (A) 的熱塑性樹脂時，所得模塑物件的導熱性具有各向異性。藉由含有組份 (D) 作為導熱填料，在導熱性質方面具有的此各向異性可被可以適當地降低。

作為組份 (D) 氧化鋁細粒以由氧化鋁 ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) 含量為 96 重量%或更多且數均粒子直徑為 0.1 至 100 微米的  $\alpha$ -氧化鋁所構成的細粒為佳。就導熱性的觀點，氧化鋁含量越高越有利，以 99 重量%或較多為佳，99.5 重量%或較多更佳。此外，數均粒子直徑在前述範圍中時，模塑性

極佳的原因與在組份 ( B ) 中相同，這樣的數均粒子直徑以 0.1 至 70 微米為佳，0.1 至 50 微米更佳，0.1 至 20 微米特別佳。此處，數均粒子直徑係使用掃描式電子顯微鏡取得粉狀細粒的照片並自照片選擇 50 至 100 個粒子以進行影像分析而得的平均值。此外，較佳地，測定累積的粒子大小分佈時，此氧化鋁細粒具有窄的粒子大小分佈， $D_{90/10}$  ( 自細粒側之 10% 累積的粒子直徑和 90% 累積的粒子直徑分別定義為  $D_{10}$  和  $D_{90}$  ) 為 7 或較小。 $D_{10}$  和  $D_{90}$  係藉，例如，使用 Mastersizer ( Malvern Instruments Ltd. 製造 ) 之雷射繞射粒子大小分佈測定法測定。

只要氧化鋁細粒滿足前述氧化鋁含量和前述數均粒子直徑，未特別限制其形狀，但以球狀、約球狀或多面體形狀為佳。此外，較佳地，將氧化鋁細粒的主軸長度視為  $L$  ( 微米 ) 和次要軸長度視為  $S$  ( 微米 ) ，其  $L/S$  比是 1.0 至 3.0 。

此氧化鋁細粒可為市售的氧化鋁細粒。市售氧化鋁細粒的例子包括 Sumitomo Chemical Co., Ltd 生產的 Sumikorandom。此外，可以使用市售品 ( 如 Showa Denko K.K. 生產的氧化鋁細粒或 Nippon Light Metal Co., Ltd. 生產的氧化鋁細粒 ) 作為組份 ( D ) 。

當本發明之樹脂組成物除了組份 ( A ) 至 ( C ) 以外，另含有組份 ( D ) 時，以 100 重量份組份 ( A ) 計，組份 ( D ) 的用量以 5 至 250 重量份為佳，10 至 200 重量份更佳，20 至 150 重量份最佳。

組份（D）的用量是 5 至 250 重量份時，其優點在於導熱性的改良效果極佳，且模塑性未明顯受損。

如前述者，本發明之樹脂組成物含有組份（B）和（C），或組份（B）、（C）和（D），及組份（A），並提供具有良好導熱性的模塑物件。

模塑物件可藉各種已知方法製造。方法的例子包括擠壓模塑、射出模塑、加壓模塑和吹塑。

此外，本發明之模塑組成物中，在不會損及本發明所欲效果的範圍內，一種類型或多種慣用添加劑可添加使用，包括填料（如，玻璃纖維）、氟樹脂、脫模劑（如，金屬皂）、著色劑（如，染料和顏料）、抗氧化劑、熱安定劑、UV 吸收劑、抗靜電劑、界面活性劑..等。此外，一種類型或具有外在潤滑效果的更多物質可添加使用，如，高碳脂肪酸、高碳脂肪酸酯、高碳脂肪酸金屬鹽和以氟化碳為基礎的界面活性劑。

未特別限制本發明之絕緣樹脂組成物之製法，其例子包括，合併組份（A）至（C）的方法，或使用 Henschel 混合機、顛動機或類似者混合組份（A）至（D），之後使用擠壓機熔融捏和。此外，例子包括藉擠壓機熔融捏和的方法，組份（A）自第一投料處投入，在其他組份使用 Henschel 混合機、顛動機或類似者混合之後，它們自側投料處投料，並熔融捏和。

藉此而得的樹脂組成物可以取決於標的零件形狀地選擇適當的模塑方法，但以射出模塑為佳。至於藉射出模塑

得到的模塑物件，可得到具有複雜形狀的模塑物件，如，薄壁零件。

藉前述方式得到的模塑物件可為 300K 的電阻率為  $10^{12}$  歐姆米或較高，且 1 毫米厚的介電瓦解電壓為 2 千伏特/毫米或較高的模塑物件。此模塑物件具高度導熱性，即使使用組份 (C) 表示之具低電阻率的填料亦然，作為電力和電子零件時，其具有極佳的電絕緣性和足夠的介電瓦解電壓，因此其在與此零件有關的應用方面非常有用。

此外，自本發明之絕緣樹脂組成物得到尺寸為 64 毫米×64 毫米×3 毫米厚的模塑物件之後，根據 ASTM D257 測定此模塑物件的電阻率。

此外，自本發明之絕緣樹脂組成物得到尺寸為 64 毫米×64 毫米×1 毫米厚的模塑物件之後，根據 JIS C2110 中描述的短期瓦解試驗測定此模塑物件的瓦解電壓。

至於自本發明之樹脂組成物得到的模塑物件之較佳應用，下列應用可為例示。

關於自本發明之絕緣樹脂組成物得到的模塑物件之應用，適當的應用包括用於電力和電子裝置的外殼，及電力設備（如，發電機、馬達、變壓機、交流發電機、電壓調整器、整流器、變極器、中繼器、電力介面、開關、斷路器、刀形開關、電桿（pole rod）、電力零件箱、插座、繼電器箱）的零件。此外，其適合用於操作時生熱的電子零件，如，偵測器、LED 燈、燈座、燈反射燈、燈罩、連接器、小尺寸開關、線圈軸、電容器、振盪器、多種端子

、變壓器、插頭、印刷電路板、小尺寸馬達、磁頭機座、電力模組、硬碟驅動零件（硬碟驅動輪轂、執行器、硬碟基板..等）、DVD零件（如，光學讀寫頭..等）和電腦相關零件。

此外，其可用於供半導體元件、線圈..等使用的包封樹脂、供光學設備（如，相機）使用的光學零件、產生高摩擦熱的零件（如，滾輪軸承）、供車和與載具相關的零件使用的照射組件及電力組件絕緣板。

已藉此描述本發明，顯見其可以多種方式變化。這些變化應視為在本發明之精神與範圍內，意欲將嫻於本技藝之人士顯見的所有該等修飾含括於下列申請專利範圍的範圍內。

茲將 2007 年 9 月 12 日提出申請的日本專利申請案第 2007-236374 號、2008 年 5 月 8 日提出申請的日本專利申請案第 2008-122025 號所揭示者（包括專利說明書、申請專利範圍及概述）全數併於本文中作為參考。

#### 實例

藉以下實例詳細說明本發明，但不應以這些實例限制本發明之範圍。

使用下列者作為組份（C）。

碳化矽 1：OY-3，Yakushima Denko Co., Ltd. 生產。

碳纖維 1：Dialead K223HG，Mitsubishi Plastic Inc. 生產。

石墨 1：CB-150，Nippon Graphite Fiber Corporation 生產。

使用下列者作為組份（D）。

氧化鋁細粒 1：Advanced alumina AA-18，Sumitomo Chemical Co., Ltd.生產，數均粒子直徑 18 微米，氧化鋁含量為 99.6 重量%。

氧化鋁細粒 2：Advanced alumina AA-1.5，Sumitomo Chemical Co., Ltd.生產，數均粒子直徑 1.5 微米，氧化鋁含量為 99.6 重量%。

氧化鋁細粒 3：Low-soda alumina ALM-41，Sumitomo Chemical Co., Ltd.生產，數均粒子直徑 1.5 微米，氧化鋁含量為 99.9 重量%。

氧化鋁細粒 4：Advanced alumina AA-03，Sumitomo Chemical Co., Ltd.生產，數均粒子直徑 0.3 微米，氧化鋁含量為 99.6 重量%。

#### 產製例 1

〔微粒材料 1 之製法〕

氧化鋁纖維（Denka Alcen，Denki Kagaku Kogyo K.K.生產，氧化鋁含量 100 重量%，數均纖維直徑 3.2 微米，整體密度 0.28 克/立方公分）投入 Henschel 混合機（Super mixer G100，Kawata MGF Co., Ltd.生產）中，並攪拌和粒化而得到微粒材料 1。藉光學顯微鏡測得微粒材料 1 的數均粒子直徑為 1.0 毫米。

## 產製例 2

〔液晶聚酯之產製〕

在配備攪拌設備、扭矩計、通氮氣的管、溫度計和迴餾冷凝器的反應器中投入 994.5 克 (7.2 莫耳) 的對-羥基苯甲酸、446.9 克 (2.4 莫耳) 的 4,4'-二羥基聯苯、299.0 克 (1.8 莫耳) 的對酞酸、99.7 克 (0.6 莫耳) 的異酞酸和 1347.86 克 (13.2 莫耳) 的醋酸酐，反應器內側以氮氣充份替代，之後在氮氣流下，提高至 150°C 達 30 分鐘，並在維持此溫度時迴餾 1 小時。

之後，提高至 320°C 達 2 小時 50 分鐘，同時蒸除經蒸餾的副產物醋酸和未反應的醋酸酐，藉此得到預聚物，此時觀察到扭矩提高並將此視為反應完全。

所得的預聚物冷卻至室溫，以粗研磨機研磨，之後在氮氣下，以一小時自室溫提高至 250°C，之後再以 5 小時自 250°C 提高至 285°C，並維持於 285°C 3 小時，以進行固態聚合反應。所得液晶聚酯的開始流動溫度是 327°C。此藉此而得的液晶聚酯以 LCP1 表示。

## 實例 1 至 7 和比較例 1 至 4

產製例 1 中得到的微粒材料 1、產製例 2 中得到的液晶聚酯、選自氧化鋁細粒 1 至 4 中之一者、氮化矽 1、碳纖維 1 或石墨 1 藉表 1 中所示之組成，使用相同方向的雙螺旋擠壓機 (PCM-30, Ikegai Iron Works, Ltd. 生產) 於

340℃捏和及粒化。使用射出機（PS40E5ASE，Nissei Plastic Industrial Co., Ltd.生產），所得粒狀物於圓筒溫度350℃和模具溫度130℃射出模塑，得到模塑物件1：126毫米×12毫米×6毫米，模塑物件2：64毫米×64毫米×3毫米厚，模塑物件3：64毫米×64毫米×1毫米厚。在以垂直於模塑物件1主軸的方向切下厚度1毫米的板（MD），以其作為導熱性評估的樣品。使用此樣品，以雷射閃光法的熱恆定測定設備（TC-7000，Ulvac-Riko Inc.製造）量測這些樣品的熱擴散率。並以DSC（DSC7，PERKINELMER Japan Co., Ltd.製造）量測比熱，以自動比重量測設備（ASG-320K，Kanto-measure Co., Ltd.）量測比重。樣品的導熱率係熱擴散率×比熱×比重而得。

使用模塑物件2，根據ASTMD257，測定300K的電阻率。使用模塑物件3，根據JIS C2110中描述的短期瓦解試驗測定介電瓦解電壓。

其結果示於表1。

表 1

	實例 1	實例 2	實例 3	實例 4	實例 5	實例 6	實例 7	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4
LCPI(重量份)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
微粒材料 1(重量份)	256	154	165	210	156	165	195				
碳化矽 1(重量份)	23							233			
碳纖維 1(重量份)		20	23	26	23	23	14		14	107	41
石墨 1(重量份)											
氧化鋁細粒 1(重量份)			26	28	26						
氧化鋁細粒 2(重量份)											
氧化鋁細粒 3(重量份)											
氧化鋁細粒 4(重量份)					26	26					
導熱率(MD)(瓦/米 K)	5.8	6.0	9.4	8.0	9.8	9.7	6.0	2.1	3.1	23.9	4.2
電阻率(歐姆米)	$4.0 \times 10^{13}$	$3.0 \times 10^{13}$	$9.0 \times 10^{12}$	$9.0 \times 10^{12}$	$1.0 \times 10^{13}$	$6.0 \times 10^{12}$	$3.0 \times 10^{13}$	$1.0 \times 10^{10}$	$3.0 \times 10^{13}$	13	$3.0 \times 10^9$
介電瓦解電壓(千伏特/毫米)	10.0	3.0	4.0	4.3	3.6	4.0	3.0	0.8	2.8	-	0.5

由實例 1 至 7 的絕緣樹脂組成物可清楚看出，所得模塑物件在 MD 方向上的導熱率是 5 瓦/米 K 或較高，具有極佳的導熱性。此外，電阻率皆為  $10^{12}$  歐姆米或較高，並顯示足以作為電力和電子零件中所用之絕緣元件的電阻值，且介電瓦解電壓皆為 2 千伏特/毫米或較高，此極佳。

在使用碳化矽填料或碳纖維的比較例 1 和 2 之樹脂組成物中，所得模塑物件的導熱性不足，而在混合大量碳纖維或石墨的比較例 3、4 中，所得模塑物件的電阻率變小，且電絕緣性不足。

#### 實例 8

聚苯硫醚 PPS1 ( T-3G , Dainippon Ink and Chemicals Inc. 生產 ) 、 產製例 1 中得到的微粒材料 1、碳纖維 1 和氧化鋁粒子 2 藉表 2 中所示之組成，使用相同方向的雙螺旋擠壓機 ( PCM-30 , Ikegai Iron Works, Ltd. 生產 ) 於 300 °C 捏和及粒化。使用射出機 ( PS40E5ASE , Nissei Plastic Industrial Co., Ltd. 生產 ) ，所得粒狀物於圓筒溫度 350 °C 和模具溫度 130 °C 射出模塑，得到模塑物件 1 : 126 毫米 x 12 毫米 x 6 毫米，模塑物件 2 : 64 毫米 x 64 毫米 x 3 毫米厚，模塑物件 3 : 64 毫米 x 64 毫米 x 1 毫米厚。在以垂直於模塑物件 1 主軸的方向切下厚度 1 毫米的板 ( MD ) ，以其作為導熱性評估的樣品。使用此樣品，以雷射閃光法的熱恆定測定設備 ( TC-7000 , Ulvac-Riko Inc. 製造 ) 量測這些樣品的熱擴散率。並以 DSC ( DSC7 , PERKINELMER

Japan Co., Ltd.製造) 量測比熱，以自動比重量測設備 (ASG-320K, Kanto-measure Co., Ltd.) 量測比重。樣品的導熱率係熱擴散率 $\times$ 比熱 $\times$ 比重而得。

使用模塑物件 2，根據 ASTM D257，測定 300K 的電阻率。使用模塑物件 3，根據 JIS C2110 中描述的短期瓦解試驗測定介電瓦解電壓。

其結果示於表 2。

表 2

	實例 8
PPS1 (重量份)	100
粒狀材料 1 (重量份)	190
碳纖維 1 (重量份)	17
氧化鋁細粒 2 (重量份)	27
導熱率 (MD) (瓦/米 K)	6.2
電阻率 (歐姆米)	$1.0 \times 10^{13}$
介電瓦解電壓 (千伏特/毫米)	2.0

由使用聚苯硫醚作為組份 (A) 的實例 8 之絕緣樹脂組成物可清楚看出，所得模塑物件的導熱率為 5 瓦/米 K 或較高，具有極佳的導熱性，且亦具有良好的電阻率和介電瓦解電壓結果。

### 五、中文發明摘要

發明之名稱：絕緣樹脂組合物及其應用

本發明提供一種樹脂組成物包含：(A) 熱塑性樹脂；(B) 粒狀材料，其數均粒子直徑為 0.5 至 5 毫米且可藉由將主要具有數均纖維直徑為 1 至 50 微米的氧化鋁之纖維加以粒化而得；和 (C) 填料，其由 300K 的電阻率為  $10^2$  歐姆米或較低的材料所構成。此樹脂組成物可以模塑成電絕緣的模塑物件。此模塑物件的電阻率在如，電力和電子零件的應用中具有足夠的電絕緣性。

### 六、英文發明摘要

發明之名稱：

INSULATING RESIN COMPOSITION AND APPLICATION THEREOF

The present invention provides a resin composition comprising: (A) a thermoplastic resin, (B) a granular material which has a number average particle diameter of 0.5 to 5 mm and is obtainable by granulating a fiber mainly having alumina with a number average fiber diameter of 1 to 50  $\mu\text{m}$ , and (C) a filler composed of a material of which electric resistivity at 300 K is  $10^2 \Omega\text{m}$  or less. The resin composition can be molded into a molded article with electric insulation. The electric resistivity of the molded article has sufficient electric insulation in applications such as in electric and electronic parts.

## 十、申請專利範圍

1. 一種樹脂組成物包含：

(A) 熱塑性樹脂；

(B) 粒狀材料，其數均粒子直徑為 0.5 至 5 毫米且可藉由將主要具有數均纖維直徑為 1 至 50 微米的氧化鋁之纖維加以粒化而得；和

(C) 填料，其由 300K 的電阻率為  $10^2$  歐姆米或較低的材料所構成。

2. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中以 100 重量份組份 (A) 計，組份 (C) 在組成物中之含量由 1 至 50 重量份。

3. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中組份 (C) 係填料，其選自碳化矽所構成的填料、由石墨所構成的填料或碳纖維填料。

4. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中組份 (B) 為可藉由將主要具有整體密度為 0.2 至 1 克 / 立方公分的氧化鋁之纖維加以粒化而得粒狀材料。

5. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中組份 (B) 係可藉由在攪拌時將主要具有氧化鋁的纖維加以粒化而得的粒狀材料。

6. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中以 100 重量份組份 (A) 計，組份 (B) 在組成物中之含量由 10 至 400 重量份。

7. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中組份

(A) 包含聚苯硫。

8. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中組份 (A) 包含液晶聚酯。

9. 如申請專利範圍第 8 項之樹脂組成物，其中液晶聚酯為開始流動溫度為 280°C 或較高的液晶聚酯。

10. 如申請專利範圍第 8 或 9 項之樹脂組成物，其中液晶聚酯為下列液晶聚酯：

以液晶聚酯的總結構單元計，衍生自對-羥基苯甲酸的結構單元和衍生自 2-羥基-6-萘酸的結構單元的總和為 30 至 80 莫耳%；

以液晶聚酯的總結構單元計，衍生自氫醌的結構單元和衍生自 4,4'-二羥基聯苯的結構單元的總和為 10 至 35 莫耳%；和

以液晶聚酯的總結構單元計，衍生自對酞酸的結構單元、衍生自異酞酸的結構單元和衍生自 2,6-萘二羧酸的結構單元的總和為 10 至 35 莫耳%。

11. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中進一步包含 (D) 數均粒子直徑為 0.1 至 100 微米的氧化鋁細粒。

12. 如申請專利範圍第 11 或 12 項之樹脂組成物，其中以 100 重量份組份 (A) 計，組份 (D) 之含量由 5 至 250 重量份。

13. 一種模塑物件，其藉由模塑申請專利範圍第 1 項之組成物而得。

14. 如申請專利範圍第 13 項之模塑物件，其中模塑物件的 300K 的電阻率為  $10^{12}$  歐姆米或較高，且 1 毫米厚的介電瓦解電壓為 2 千伏特 / 毫米或較高。

七、指定代表圖：

(一)、本案指定代表圖為：無

(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：無