



(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 I726894 B

(45) 公告日：中華民國 110 (2021) 年 05 月 11 日

(21) 申請案號：105121507

(22) 申請日：中華民國 105 (2016) 年 07 月 07 日

(51) Int. Cl. : C08K7/14 (2006.01)

C08L23/08 (2006.01)

C08L63/00 (2006.01)

C08L67/02 (2006.01)

H01R13/46 (2006.01)

(30) 優先權：2015/07/16 日本

2015-142207

(71) 申請人：日商寶理塑料股份有限公司 (日本) POLYPLASTICS CO., LTD. (JP)

日本

(72) 發明人：守屋翔太郎 MORIYA, SHOTARO (JP) ; 坂田耕一 SAKATA, KOUICHI (JP)

(74) 代理人：洪澄文

(56) 參考文獻：

CN 101218305A

JP 2008-88203A

WO 2014/103814A1

審查人員：韓薰蘭

申請專利範圍項數：2 項 圖式數：0 共 21 頁

(54) 名稱

提高比較追蹤指數的方法以及環氧化合物及乙烯丙烯酸乙酯共聚物的用途

(57) 摘要

一種聚對苯二甲酸丁二酯樹脂組合物，係含有：聚對苯二甲酸丁二酯樹脂；相對組合物總量為 10~20 質量% 的玻璃纖維；乙烯丙烯酸乙酯共聚物；及環氧當量為 600~1500g/當量之環氧化合物；依據 IEC60112 第 3 版而測定之比較追蹤指數(CTI)為 600V 以上。



I726894

## 發明摘要

※ 申請案號：

※ 申請日：

※IPC 分類：

### 【發明名稱】（中文/英文）

提高比較追蹤指數的方法以及環氧化合物及乙烯丙烯酸乙酯共聚物的用途

### 【中文】

一種聚對苯二甲酸丁二酯樹脂組合物，係含有：聚對苯二甲酸丁二酯樹脂；相對組合物總量為 10~20 質量%的玻璃纖維；乙烯丙烯酸乙酯共聚物；及環氧當量為 600~1500g/當量之環氧化合物；依據 IEC60112 第 3 版而測定之比較追蹤指數 (CTI) 為 600V 以上。

### 【英文】

無。

**【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】**：

無。

# 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】(中文/英文)

提高比較追蹤指數的方法以及環氧化合物及乙烯丙烯酸乙酯共聚物的用途

## 【技術領域】

【0001】本發明的實施形態，係有關於一種含有聚對苯二甲酸丁二酯樹脂之樹脂組合物。

## 【先前技術】

【0002】因為聚對苯二甲酸丁二酯樹脂(以下亦記載為「PBT 樹脂」)，係熱變形溫度較高且具有優異的電特性、機械特性、耐候性、耐藥品性等，所以被廣泛地利用在電機電子零件、汽車零件等各種用途作為工程塑膠。

被使用在繼電器、開關、連接器等、電機電子零件的電源附近的零件，係被要求耐電跡性(tracking resistance)用以確保對於因電負荷造成起火之安全性。因此，對 PBT 樹脂組合物亦進行改良用以提升耐電跡性。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0003】

[專利文獻 1]日本特開 2011-231191 號公報

[專利文獻 2]日本特開 2010-280793 號公報

[專利文獻 3]日本國際公開 2011/148796 號公報

## 【發明內容】

[發明欲解決之課題]

【0004】基於 IEC60112 規格之比較追蹤指數(comparative tracking index)，PBT 樹脂本身係滿足該規格的最高等級 600V 以上之樹脂。但是，PBT 樹脂係為了調整機械強度等的各種特性，通常係使用強化用填充劑、阻燃劑、安定化劑等的各種添加劑，依照添加劑的種類而有損害耐電跡性之情形。尤其是在 PBT 樹脂添加被廣泛地使用作為強化用填充劑之玻璃纖維時，得知依照其添加量而有耐電跡性大幅度地低落之問題。

【0005】因此，本發明的實施形態之課題，係提供一種經使用玻璃纖維強化且具有較高的耐電跡性之 PET 樹脂組合物；及在含有玻璃纖維之 PBT 樹脂組合物，使耐電跡性提升之方法。

[用以解決課題之手段]

【0006】本發明的實施形態，係有關於一種聚對苯二甲酸丁二酯樹脂組合物，其含有：聚對苯二甲酸丁二酯樹脂；相對組合物總量為 10~20 質量%的玻璃纖維；乙烯丙烯酸乙酯共聚物；及環氧當量為 600~1500g/當量之環氧化合物；依據 IEC60112 第 3 版而測定之比較追蹤指數(CTI)為 600V 以上。

【0007】本發明之另外的實施形態，係有關於一種將上述本發明的實施形態之聚對苯二甲酸丁二酯樹脂組合物成形而成之車載用連接器。

【0008】本發明之另外的實施形態，係有關於一種方法，其係藉由在含有聚對苯二甲酸丁二酯樹脂、及相對於組合物總量為 10~20 質量%的玻璃纖維之聚對苯二甲酸丁二酯樹脂組合物，添加環氧當量為 600~1500g/當量之環氧化合物、乙烯丙烯酸乙酯共聚物，而提高聚對苯二甲酸丁二酯樹脂組合物之依據

IEC60112 第 3 版而測定之比較追蹤指數(CTI)。

**【0009】** 本發明之又另外的實施形態，係有關於一種用途，其係使用環氧當量為 600~1500g/當量之環氧化合物、及乙烯丙烯酸乙酯共聚物，用以提高在含有聚對苯二甲酸丁二酯樹脂、及相對於組合物總量為 10~20 質量%的玻璃纖維之聚對苯二甲酸丁二酯樹脂組合物，依據 IEC60112 第 3 版而測定之比較追蹤指數(CTI)。

**[發明效果]**

**【0010】** 依照本發明的實施形態，能夠提供一種經使用玻璃纖維強化之具有優異的機械特性且具有較高的耐電跡性之 PBT 樹脂組合物。

又，依照本發明的實施形態，在含有玻璃纖維之 PET 樹脂組合物，能夠提供一種使耐電跡性提升之方法。

**【圖式簡單說明】**

無。

**【實施方式】**

**【0011】** 以下，說明本發明的較佳實施形態，但是本發明不被下述的實施形態限定。

本發明的實施形態之 PBT 樹脂組合物，係至少含有 PBT 樹脂、玻璃纖維、乙烯丙烯酸乙酯共聚物(以下亦記載為「EEA 共聚物」)及環氧化合物。

**【0012】 <PBT 樹脂>**

PBT 樹脂(聚對苯二甲酸丁二酯樹脂)，係將至少含有對苯二甲酸或其酯形成性衍生物(C<sub>1-6</sub>的烷酯、酸鹵化物等)之二羧酸

成分、及至少含有碳原子數 4 的烷二醇(1,4-丁二醇)或其酯形成性衍生物(乙醯化物等)之二醇成分進行聚縮合而得到之樹脂。

【0013】 PBT 樹脂係不限定為同元聚對苯二甲酸丁二酯，亦可含有對苯二甲酸單元以外的二羧酸單元且亦可含有 1,4-丁二醇以外的二醇單元。此時，較佳是在總二羧酸單元中含有 70 莫耳%以上的對苯二甲酸單元，特別是 90 莫耳%以上，較佳是在總二醇單元中含有 70 莫耳%以上的 1,4 丁二醇單元，特別是 90 莫耳%以上。

【0014】 PBT 樹脂的末端羧基量係沒有特別限定，從抑制因在濕熱環境下產生水解引起強度低落之觀點而言，以 30meq/kg(毫當量/kg)以下為佳，以 25meq/kg 以下為較佳。

【0015】 PBT 樹脂的固有黏度(IV)係以 0.60~1.20dL/g 為佳，較佳為 0.70dL/g 以上，更佳為 0.90dL/g 以上；另一方面，較佳為 1.10dL/g 以下，更佳為 1.05dL/g 以下。使用此種範圍的固有黏度之 PBT 樹脂時，所得到的 PBT 樹脂組合物係成為具有優異的流動性者，而且在成形品亦能夠得到更良好的機械物性。

【0016】 上述固有黏度，亦可以將具有不同的固有黏度之 PBT 樹脂進行摻合而調整。例如，藉由將固有黏度 0.9dL/g 的 PBT 樹脂與固有黏度 0.7dL/g 的 PBT 樹脂進行摻合，而能夠調製固有黏度 0.8dL/g 的 PBT 樹脂。PBT 樹脂的固有黏度(IV)，係例如能夠在鄰氯苯酚中且溫度 35°C 的條件下進行測定，上述值係在該條件下所測得的。

【0017】 在 PBT 樹脂，作為對苯二甲酸及其酯形成性衍生物以外的二羧酸成分(共聚單體成分)，例如可舉出間苯二甲

酸、苯二甲酸、2,6-萘二羧酸、4,4'-二羧基二苯基醚等的  $C_{8-14}$  的芳香族二羧酸；琥珀酸、己二酸、壬二酸、癸二酸等的  $C_{4-16}$  的烷二羧酸；環己烷二羧酸等的  $C_{5-10}$  的環烷二羧酸；該等二羧酸成分的酯形成性衍生物 ( $C_{1-6}$  的烷酯衍生物、及酸鹵化物等)。該等二羧酸成分係能夠單獨組合或 2 種以上而使用。

【0018】該等二羧酸成分之中，係以間苯二甲酸等的  $C_{8-12}$  的芳香族二羧酸、及、己二酸、壬二酸、癸二酸等的  $C_{6-12}$  的烷二羧酸為較佳。

【0019】在 PBT 樹脂，作為 1,4-丁二醇以外的二醇成分(共聚單體成分)，例如可舉出乙二醇、丙二醇、三亞甲二醇、1,3-丁二醇、六亞甲二醇、新戊二醇、1,3-辛烷二醇等的  $C_{2-10}$  的烷二醇；二乙二醇、三乙二醇、二丙二醇等的聚氧烷二醇；環己烷二甲醇、氫化雙酚 A 等的脂環式二醇；雙酚 A、4,4'-二羥基聯苯等的芳香族二醇；雙酚 A 的環氧乙烷 2 莫耳加成物、雙酚 A 的環氧丙烷 3 莫耳加成物等雙酚 A 的  $C_{2-4}$  的環氧烷加成物；或該等二醇的酯形成性衍生物(乙醯化物等)。該等二醇成分係能夠單獨組合或 2 種以上而使用。

【0020】該等二醇成分之中，以乙二醇、三亞甲基二醇等  $C_{2-6}$  的烷二醇、二乙二醇等的聚氧烷二醇、或環己烷二甲醇等的脂環式二醇等為較佳。

【0021】作為除了二羧酸成分及二醇成分以外能夠使用的共聚單體成分(其它共聚單體成分)，例如，可舉出 4-羥基苯甲酸、3-羥基苯甲酸、6-羥基-2-萘甲酸、4-羧基-4'-羥基聯苯等的芳香族羥基羧酸；二醇酸、羥基己酸等的脂肪族羥基羧酸；

丙內酯、丁內酯、戊內酯、己內酯( $\epsilon$ -己內酯等)等的  $C_{3-12}$  內酯；該等共聚單體成分的酯形成性衍生物( $C_{1-6}$  的烷酯衍生物、酸鹵化物、乙醯化物等)。

在總單體成分中，該等其它共聚單體成分係以 10 質量% 以下為佳。

**【0022】** 作為 PBT 樹脂，亦可將複數種 PBT 樹脂組合而使用。

例如，亦可在同元 PBT 樹脂，組合含有對苯二甲酸丁二酯單元以外的二羧酸單元、及/或 1,4-丁二醇單元以外的二醇單元之 PBT 樹脂，亦可將不同的二羧酸及/或二醇成分之 PBT 樹脂組合複數種而使用。

**【0023】** 在不損害本發明的效果之範圍，PBT 樹脂組合物亦可含有 PBT 樹脂以外的樹脂。例如，亦能夠併用聚對苯二甲酸乙二酯(PET)樹脂、聚對苯二甲酸丙二酯(PPT)樹脂、聚萘二甲酸丁二酯(PBN)樹脂、聚萘二甲酸乙二酯(PEN)樹脂等的其它聚酯樹脂。

**【0024】** <玻璃纖維>

玻璃纖維能夠適合使用習知的玻璃纖維。玻璃纖維的長度(切割長度)、直徑、形狀(圓筒、繭形、長圓剖面等)等係沒有特別限定。將股線或粗紗(roving)切斷成為預定長度而成為切股(chopped strand)時的玻璃切割方法亦沒有特別限定。玻璃的種類亦沒有限定，在品質上能夠適合使用 E 玻璃、或在組成中含有鋇元素之耐腐蝕玻。

**【0025】** 又，為了使玻璃纖維與樹脂基質的界面特性提升之目的，能夠適合使用經使用胺基矽烷化合物等的矽烷化合

物、環氧化合物等的有機處理劑(表面處理劑)進行表面處理之玻璃纖維。該等表面處理劑係能夠適合使用任一種習知物，而沒有特別限定。

【0026】玻璃纖維係用以對樹脂組合物提供所需要的機械特性，在組合物總量中，以在 10~20 質量%的範圍使用為佳。特別是為了充分地確保拉伸伸長率特性，玻璃纖維的含量係以 18 質量%以下為較佳，從進一步提升強度的觀點而言，係以 12 質量%以上為較佳。

【0027】依照本發明者等的研討，雖然由於在 PBT 樹脂調配玻璃纖維，致使 CTI 降低，但是清楚明白此時的玻璃纖維含量與 CTI 降低量之間係沒有相關性，例如相較於玻璃纖維含量為 30 質量%的 PBT 樹脂組成物，玻璃纖維含量為 15 質量%時，其 CTI 的降低程度為較大，特別是在 15 質量%附近，能夠觀察到 CTI 降低。

但是，在本實施形態，藉由組合預定環氧化合物及 EEA 共聚物而使用，能夠充分地抑制因在組合物中調配 10~20 質量%之量的玻璃纖維引起 CTI 低落。

#### 【0028】 <EEA 共聚物>

EEA 共聚物(乙烯丙烯酸乙酯共聚物)係將乙烯與丙烯酸乙酯作為共聚成分之共聚物。共聚合形式係沒有特別限定，可為無規、嵌段、或分枝的任一種共聚物，例如亦可為部分地具有無規構造、嵌段構造及分枝構造之中 2 種以上的構造。

【0029】共聚物中的乙烯與丙烯酸乙酯之比率係沒有特別限定，從確保與 PBT 樹脂的相溶性且抑制製造時的黏結之觀點

而言，EEA 共聚物的熔點係以 85°C 以上為佳，以 88°C 以上為較佳，以 90°C 以上為特佳。

【0030】在本實施形態，為了使耐電跡性提升，係以使用實質上不含有乙烯及丙烯酸乙酯以外的共聚單體成分之 EEA 共聚物為佳，但是在不阻礙本實施形態的效果之範圍，亦可部分地含有其它共聚單體成分。具體而言，例如因為如以 30 質量% 的量含有乙烯及丙烯酸乙酯以外的共聚單體時，有無法充分地得到耐電跡性提升效果之可能性，所以在共聚單體中，以 10 質量% 以下的量為佳。又，作為其它共聚單體，能夠舉出順丁烯二酸酐、丙烯酸丁酯、甲基丙烯酸甲酯等的(甲基)丙烯酸酯等，以不含有環氧丙基等的反應性高的官能基之聚單體為佳。

【0031】EEA 共聚物係能夠使用任意的方法來製造。例如能夠藉由將乙烯及丙烯酸乙酯(及其它共聚單體成分)預定量混合，使用自由基起始劑且藉由常用的方法進行自由基聚合，來得到 EEA 共聚物。

【0032】從使 PBT 樹脂組合物的 CTI 提升的觀點而言，相對於 PBT 樹脂組合物全體，EEA 共聚物的添加量係以 4 質量% 以上為佳，以 5 質量% 以上為較佳。其上限值係沒有特別限定，以 15 質量% 以下左右為佳，以 10 質量% 以下左右為更佳。

#### 【0033】<環氧化合物>

作為環氧化合物，係使用在 1 分子中具有 1 個以上的環氧基且環氧當量為 600~1500g/當量(g/eq)者。環氧當量為該範圍時，在 PBT 樹脂組合物，不會使其成形品產生黑色異物而能夠得到使 CTI 提升之效果，又，成形性(擠製性)亦優異。環氧當量(g/eq)

係依照以下的順序以 650 以上、700 以上為更佳，另一方面，依照以下的順序以 1200 以下、1100 以下、1000 以下為更佳。

【0034】環氧化合物係只要是上述環氧當量者，就沒有特別限定，因為含有溴等的鹵素原子之環氧化合物容易碳化，所以在耐電跡性造成不利。因而，從抑制產生碳化物且抑制耐電跡性低落之觀點、及從抑制黑色異物混入至成形品的觀點而言，係以使用不含有鹵素的環氧化合物為佳。

【0035】具體而言，從提高熱安定性及耐水解性的觀點而言，係以使用芳香族環氧化合物為佳。作為芳香族環氧化合物的例子，可舉出聯苯型環氧化合物、雙酚 A 型環氧化合物、苯酚酚醛清漆型環氧化合物、甲酚酚醛清漆型環氧化合物等。作為環氧化合物，亦可將 2 種以上的化合物任意地組合而使用。

【0036】從充分地抑制 CTI 低落且抑制產生黑色異物的觀點而言，在組合物所含有的環氧化合物之環氧基量，係在組合物中以  $0.5 \times 10^{-2} \sim 2.5 \times 10^{-2} \text{mmol/g}$  為佳，以  $1.0 \times 10^{-2} \text{mmol/g}$  以上為較佳，以  $2.1 \times 10^{-2} \text{mmol/g}$  以下為較佳。環氧基量係藉由在組合物中之環氧化合物的添加量乘以環氧當量的倒數而得到的值。

【0037】<其它的任意成分>

在不損害本發明的效果之範圍，PBT 樹脂組合物亦可任意地含有上述成分以外的其它成分。作為其它成分，可舉出抗氧化劑、紫外線吸收劑、安定劑、可塑劑、脫模劑、染料及顏料等的著色劑、近紅外線吸收劑、螢光增白劑、阻燃劑、阻燃助劑、玻璃纖維以外的填充劑等的配合劑。能夠按照必要而加該等 1 種以上。

【0038】<PBT 樹脂組合物的製造方法>

PBT 樹脂組合物，係能夠使用已知作為熱可塑性樹脂組合物的製造方法之各種方法來製造。作為適合的方法，例如可舉出使用單軸或雙軸擠製機等的熔融混煉裝置，將各成分進行熔融混煉且擠製而成為丸粒之方法。

**【0039】 <比較追蹤指數(CTI)>**

本實施形態的 PBT 樹脂組合物，其特徵在於：具有非常高的耐電跡性能，其比較追蹤指數(CTI)為 600V 以上。本實施形態的 PBT 樹脂組合物係藉由具有該特性，安全而不容易產生絕緣破壞，因而，在溫度變化較大且嚴酷的使用條件下被設置車載用各種成形品、特別是車載用連接器，亦能夠適合使用。

**【0040】** CTI 係能夠使用在 IEC(國際電工委員會；International Electrotechnical Commission) 60112 第 3 版所規定的測定方法而求取。具體而言，係能夠使用 0.1 質量%的氯化銨水溶液及鉑電極而測定。更詳細地，將該氯化銨水溶液滴下規定的滴下數(50 滴)，來求取試片(n=5)之全部不產生破壞的電壓，將其設作 CTI。

**【0041】 <PBT 樹脂組合物的成形品>**

因為 PBT 樹脂組合物，係如上述具有非常高的耐電跡性能，所以能夠適合使用作為例如繼電器、開關、連接器、引動器、感測器、變壓器繞線管、端子台、罩蓋、開關、插座、線圈、插塞等的電機電子零件，特別是電源周邊零件。而且，因為具有優異的拉伸特性、查拜式衝擊強度等機械物性，所以亦能夠適合使用作為 ECU 盒、連接器盒等的車載零件盒、車載電組件等汽車零件的成形材料。

【0042】作為使用該 PBT 樹脂組合物而得到成形品之方法，係沒有特別限定，能夠採用習知的方法。例如能夠將 PBT 樹脂組合物投入擠製機而進行熔融混煉且丸粒化，而且將該丸粒投入裝備有預定模具之射出成形機且進行射出成形來製造。

【0043】成形品的 CTI 係以 600V 以上為佳。針對成形品的機械特性，拉伸強度係以 70MPa 以上為佳，以 75MPa 以上為較佳。拉伸伸長率係以 3% 以上為佳，以 3.2% 以上為較佳。彎曲強度係以 120MPa 以上為佳，以 130MPa 以上為較佳。彎曲彈性模數係以 3GPa 以上為佳，以 4GPa 以上為較佳。而且，查拜式衝擊強度係以  $4\text{kJ/m}^2$  以上為佳，以  $5\text{kJ/m}^2$  以上為較佳。

#### 【0044】<CTI 提升方法>

本實施形態，係在 PBT 樹脂、及相對於組合物總量至少含有 10~20 質量% 的玻璃纖維之 PBT 樹脂組合物，添加環氧當量為 600~1500g/當量之環氧化合物、及 EEA 共聚物而使 PBT 樹脂組合物的 CTI 提升之方法。

【0045】在含有 PBT 樹脂及玻璃纖維之 PBT 樹脂組合物，只添加 EEA 共聚物，有無法使 CTI 充分地提升之情形；或是在含有 PBT 樹脂及玻璃纖維之 PBT 樹脂組合物只添加環氧化合物，亦同樣；但是藉由併用 EEA 共聚物及預定環氧化合物，能夠充分地抑制因添加玻璃纖維引起 CTI 的低落，而達成 CTI 為 600V 以上之耐電跡性。

【0046】在上述 CTI 的提升方法，環氧化合物的添加量係以組合物中的環氧基量成為  $0.5 \times 10^{-2} \sim 2.5 \times 10^{-2} \text{mmol/g}$  之量為佳。乙烯丙烯酸乙酯共聚物的添加量係以相對於組合物總量成

為 4 質量%以上之量為佳。又，上述 CTI 的提升方法，係以能夠將 CTI 提高至 600V 以上之方法為佳。

**【0047】** <環氧化合物及 EEA 共聚物之使用>

本實施形態係為了提高含有 PBT 樹脂、及相對於組合物總量為 10~20 質量%的玻璃纖維之 PBT 樹脂組合物的 CTI，而使用環氧當量為 600~1500g/當量之環氧化合物及 EEA 共聚物。

**【0048】** 在上述使用，環氧化合物係以組合物中的環氧基量成為  $0.5 \times 10^{-2} \sim 2.5 \times 10^{-2} \text{mmol/g}$  之量被添加在組合物為佳。乙烯丙烯酸乙酯共聚物係以相對於組合物總量成為 4 質量%以上之量被添加在組合物為佳。又，上述使用係以為了將 CTI 提高至 600V 以上而使用為佳。

[實施例]

**【0049】** 以下，藉由實施例而更具體地說明本發明的實施形態，但是本發明係不被以下的實施例限定。

**【0050】** <PBT 樹脂組合物的製造>

在各實施例及比較例，將 PBT 樹脂、玻璃纖維、EEA 共聚物、及環氧化合物，各自以下述表 1 所顯示的量(質量%)進行摻合，使用具有 30mm  $\phi$  的螺桿之雙軸擠製機((股)日本製鋼所製)且於缸筒溫度 260°C 進行熔融混煉，而得到丸粒狀 PBT 樹脂組合物。在比較例 10 係使用順丁烯二酸酐改性聚烯烴代替 EEA 共聚物。所使用的各成分之詳細係如以下。

**【0051】** (1)PBT 樹脂

WINTECH POLYMER(股)製 PBT 樹脂(固有黏度：0.98dL/g、末端羧基量：16meq/kg)

## (2)玻璃纖維

日本電氣硝子(股)製「ECS03T-127」(纖維直徑 13 $\mu$ m)

## (3)EEA 共聚物

EEA 共聚物：(乙烯含量 75 質量%、熔點 91 $^{\circ}$ C)

## (4)環氧化合物

環氧化合物 1：雙酚 A 型環氧樹脂(數量平均分子量：1600、環氧當量：925g/eq)

環氧化合物 2：雙酚 A 型環氧樹脂(數量平均分子量：1300、環氧當量：720g/eq)

環氧化合物 3：三菱化學(股)製「EPICOAT 1001」(數量平均分子量：900、環氧當量：500g/eq)

## 【0052】(5)其它

順丁烯二酸酐改性聚烯烴(順丁烯二酸酐改性乙烯·丙烯共聚物)：三井化學(股)製「TAFMER MP0610」(熔點：100 $^{\circ}$ C以上)

## 【0053】&lt;評價&gt;

使用得到的樹脂丸粒而進行以下的評價。

## (1)耐電跡性

依據 IEC60112 第 3 版，使用 0.1 質量%氯化銨水溶液及鉑電極而測定在試片產生電跡之施加電壓(V:伏特)。將施加 600V 而不產生絕緣破壞者評定為「600V 以上」。

## 【0054】(2)拉伸強度及拉伸伸長率

將所得到的丸粒，在 140 $^{\circ}$ C 乾燥 3 小時後，在成形溫度 260 $^{\circ}$ C 且模具溫度 80 $^{\circ}$ C 進行射出成形，而製造拉伸試片。使用該試片且依據 ISO527-1,2 所規定的評價基準，進行測定拉伸強度

(MPa)及拉伸伸長率(%)。

**【0055】 (3)彎曲強度及彎曲彈性模數**

將所得到的丸粒，在 140℃ 乾燥 3 小時後，在成形溫度 260℃ 且模具溫度 80℃ 進行射出成形，而製造彎曲試片。使用該試片且依據 ISO178 所規定的評價基準，進行測定彎曲強度(MPa)及彎曲彈性模數(GPa)。

**【0056】 (4)查拜式衝擊強度**

將所得到的丸粒，在 140℃ 乾燥 3 小時後，在成形溫度 260℃ 且模具溫度 80℃ 進行射出成形，而製造查拜式衝擊試片。使用該試片且依據 ISO179/1eA 所規定的評價基準，進行測定查拜式衝擊強度(附凹口)(kJ/m<sup>2</sup>)。

**【0057】 (5)黑色異物**

將所得到的丸粒，在 140℃ 乾燥 3 小時後，投入射出成形機(東芝製 EC40)，在成形溫度 260℃ 且模具溫度 80℃ 進行射出成形依據 ISO3167 之拉伸試片，且目視觀察有無黑色異物。針對黑色異物，將完全未觀察到的情況評為 A，將幾乎未觀察到的情況評定為 B，將能夠觀察到許多數量的情況評定為 C。將以上的評價結果一併顯示在表 1。

【0058】 [表 1]

	實施例											比較例									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	11	1	2	3	4	5	6	7	9	10		
(調配量係表示質量%)																					
PBT	84.0	81.0	79.0	77.0	75.0	78.5	77.0	76.5	70.0	77.0	100.0	85.0	80.0	84.0	79.3	70.0	65.0	64.0	79.0		
玻璃纖維	10.0	13.0	15.0	15.0	15.0	15.0	17.0	17.0	20.0	17.0		15.0	15.0	15.0	15.0	30.0	30.0	30.0	15.0		
EBA共聚合物	5.0	5.0	5.0	7.0	9.0	5.0	5.0	5.0	9.0	5.0			5.0		5.0		5.0	5.0			
順丁烯二酸酐改性聚烯烴																			5.0		
環氧化合物 1 當量 : 925g/eq	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.5			1.0	1.0				1.0				1.0	1.0		
環氧化合物 2 當量 : 720g/eq							1.0	1.5													
環氧化合物 3 當量 : 500g/eq																					
環氧基量 (x 10 <sup>-2</sup> mmol/g)	1.1	1.1	1.1	1.1	1.1	1.6	1.4	2.1	1.1	1.1				1.1	1.4			1.1	1.1		
比較追蹤指數 (V)	≥600	≥600	≥600	≥600	≥600	≥600	≥600	≥600	≥600	≥600	≥600	325	425	325	375	575	≥600	550			
拉伸強度 (MPa)	80	88	97	98	95	101	100	101	98	100	60	105	103	108	140	128	129	99			
拉伸伸長率 (%)	4.0	4.2	4.4	3.6	3.4	3.4	3.7	3.3	4.0	4.1	50.0	2.5	3.0	2.8	2.2	2.7	2.8	4.1			
彎曲強度 (MPa)	134	145	152	153	147	159	151	160	145	156	95	160	150	160	220	194	198	156.7			
彎曲彈性模數 (GPa)	4.2	4.8	5.0	5.1	4.9	5.2	5.0	5.3	5.2	5.1	2.6	5.3	4.8	5.3	9.0	7.8	7.9	5.4			
查拜式衝擊強度 (kJ/m <sup>2</sup> )	7	11	14	12	13	11	11	10	14	13	3	6	7	6	11	11	12	16			
黑色異物(目視)	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A		

【0059】如表 1 所顯示，在實施例係 CTI 為 600V 以上，而且能夠得到具有優異的各種機械特性之 PBT 樹脂組合物。

相對於此，比較例 1 係未添加玻璃纖維時，PBT 樹脂的 CTI 為 600V 以上，但是顯示無法得到所需要的機械特性(拉伸強度、彎曲特性、查拜式衝擊強度)。比較例 2 係在 PBT 樹脂添加玻璃纖維時，雖然機械特性提升，但是顯示 CTI 為顯著地低落。比較例 3 及 4 係在含有玻璃纖維之 PBT 樹脂組合物，添加 EEA 共聚物或環氧化合物的任一方，但是顯示無法使 CTI 充分地提升。比較例 5 係顯示環氧化合物的環氧當量為太小時，因為軟化點較低，所以在擠製機的投入口產生黏結，而無法製造丸粒。

【0060】比較例 6 及 7 係玻璃纖維的量為 30 質量%時，從比較例 2、3 的對比，得知玻璃纖維量為 30 質量%時，CTI 降低程度比 15 質量%時更小，而且藉由只添加 EEA 共聚物，而能夠得到某種程度的 CTI 提升效果。比較例 9 係顯示玻璃纖維的量為 30 質量%時，藉由添加 EEA 共聚物及環氧化合物的雙方而能夠得到 CTI 的提升效果，但是拉伸伸長率不充分(小於 3%)，就機械特性而言，乃是較差。又，比較例 10 係添加其它烯烴共聚物來代替 EEA 共聚物之實驗例，但是顯示未添加 EEA 共聚物時，無法得到 CTI 提升效果。

【0061】而且，就實施例 10 而言，係製造使實施例 3 的 PBT 樹脂量成為 77.5 質量%、環氧化合物 1 的量成為 2.5 質量%之(玻璃纖維及 EEA 共聚物的調配為相同)PBT 樹脂組合物(組合物中的環氧基量為  $2.7 \times 10^{-2} \text{mmol/g}$ )，上述同樣地進行耐電跡性及黑

色異物試驗。其結果，比較追蹤指數為 600V 以上，但是因為組合物中的環氧基量為較大，所以能夠觀察到混入黑色異物。

【0062】又，就比較例 8 而言，係製造使實施例 3 的 PBT 樹脂量成為 74.5 質量%、調配 0.7 質量%的下述環氧化合物 4 而成之(玻璃纖維及 EEA 共聚物的調配為相同)PBT 樹脂組合物(組合物中的環氧基量為  $1.4 \times 10^{-2}$  mmol/g)，上述同樣地進行黑色異物的試驗。

環氧化合物 4：三菱化學(股)EPICOAT1010(數量平均分子量：5500、環氧當量：4000g/eq)其結果，清楚明白環氧化合物的環氧當量太大時，產生黑色異物的混入(評定為 C)。

【0063】本申請案的揭示，係與 2015 年 7 月 16 日提出申請之特願 2015-142207 號所記載的主題有關聯，該等的全部的揭示內容係引用的方式援用在此。

除了已經敘述的事項以外，應注意只要不從本發明新穎且有利的特徵脫離，亦可對上述的實施形態施加各式各樣的修正和變更。因而，意圖將此種全部的修正和變更包含在附加的申請專利範圍。

#### 【符號說明】

無。

## 申請專利範圍

1. 一種提高比較追蹤指數的方法，包括：在含有聚對苯二甲酸丁二酯樹脂、及相對於組合物總量為 10~20 質量%的玻璃纖維之聚對苯二甲酸丁二酯樹脂組合物添加環氧當量為 600~1500g/當量之環氧化合物和乙烯丙烯酸乙酯共聚物，而提高聚對苯二甲酸丁二酯樹脂組合物之依據 IEC60112 第 3 版而測定之比較追蹤指數，其中前述環氧化合物的添加量，係組合物中的環氧基量成為  $0.5 \times 10^{-2} \sim 2.5 \times 10^{-2} \text{mmol/g}$  之量，相對於組合物總量，前述乙烯丙烯酸乙酯共聚物的添加量係成為 4 質量%以上之量。
2. 一種環氧化合物及乙烯丙烯酸乙酯共聚物的用途，使用環氧當量為 600~1500g/當量之環氧化合物、及乙烯丙烯酸乙酯共聚物，用以提高在含有聚對苯二甲酸丁二酯樹脂、及相對於組合物總量為 10~20 質量%的玻璃纖維之聚對苯二甲酸丁二酯樹脂組合物，依據 IEC60112 第 3 版而測定之比較追蹤指數，其中以組合物中的環氧基量成為  $0.5 \times 10^{-2} \sim 2.5 \times 10^{-2} \text{mmol/g}$  之量使用前述環氧化合物，以相對於組合物總量成為 4 質量%以上之量使用前述乙烯丙烯酸乙酯共聚物。

圖式

無。