

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大類：
IPC分類：

A6
B6

本案已向：

國(地區) 申請專利，申請日期： 案號： ， 有 無主張優先權

日本 2001年3月30日 2001-098378 有主張優先權

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

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

五、發明說明 ()

技術領域

本發明係有關聚伸芳基硫樹脂之製造方法，更詳細地說，係有關連續製造高分子量且熱安定性優良之 P A S 樹脂的方法。

背景技術

已知聚伸芳基硫（以下簡稱為 P A S），特別是聚伸苯基硫（以下簡稱為 P P S）適用為，具有優良機械強度及耐熱性等，且具有良好電特性及高剛性之工程塑料，而廣泛使用為電子・電器機器部品之材料等各種材料。特別是聚伸苯基硫及無機填料所形成之樹脂組成物的成形品適用於各種用途上。

因目前於 N - 甲基 - 2 - 吡咯烷酮（N M P）等非質子性有機極性溶劑中，使 p - 二氯苯等二鹵芳香族化合物與硫化鈉、硫化鋰等鹼金屬硫化物反應，而得 P A S 之製造方法中，鹼金屬硫化物對極性溶劑為不溶性，故需添加一定量之水。此時，於存在水下將鹼金屬硫化物溶解於極性溶劑時，會將部分化合物加水分解而形成鹼金屬硫化物。因該鹼金屬氫硫化物會抑制 P A S 提升分子量及使聚合物末端為一 S H 等，故會有所生成之 P A S 的熱安定性較差之問題。

為了解決上述問題曾提案，添加水後低溫下進行預聚合而使 P A S 高分子化之方法（特開昭 6 4 - 9 2 2 8 號公報），或加入少量的水進行預聚合，而提升鹼金屬硫化

（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)

物之轉化率，其後加入水進行聚縮合之方法（特開昭 6 1 - 7 3 3 2 號公報）等。

但，就製造高分子量且熱安定性優良之 P A S 而言，上述方法尚不足。

發明揭示

有鑑於此，本發明之目的為，提供一種高分子量且熱安定性優良之 P A S 的連續製造方法，又，本發明之目的為，提供高分子量且熱安定性優良之 P A S 及其組成物。

本發明者們針對上述問題專心檢討後發現，極性溶劑中使二鹵芳香族化合物與金屬硫化物等硫源反應而製造 P A S 時，分複數次添加原料成分用之二鹵芳香族化合物進行聚合反應時，可達成本發明目的，而完成本發明。即，本發明之要旨係有關聚伸芳香硫之製造方法，其特徵為，非質子性有機溶劑中，由硫源及二鹵芳香族化合物製造聚伸芳基硫之方法中，聚合反應時係分複數次添加二鹵芳香族化合物。

實施發明之最佳形態

下面將更詳細說明本發明。

1 . P A S 之製造方法

本發明之製造方法的特徵為，非質子性有機溶劑中，由硫源及二鹵芳香族化合物製造聚伸芳基硫之方法中，聚

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

五、發明說明 (3)

合反應時係分複數次添加二鹵芳香族化合物。

(1) 原料成分

① 二鹵芳香族化合物

本發明製造方法所使用之二鹵芳香族化合物如，*n*-二鹵苯、*p*-二鹵苯等二鹵苯類；2,3-二鹵甲苯、2,5-二鹵甲苯、2,6-二鹵甲苯、3,4-二鹵甲苯、2,5-二鹵二甲苯、1-乙基-2,5-二鹵苯、1,2,4,5-四甲基-3,6-二鹵苯、1-正己基-2,5-二鹵苯、1-環己基-2,5-二鹵苯等二鹵烷基取代苯類或二鹵環烷基取代苯類；1-苯基-2,5-二鹵苯、1-苄基-2,5-二鹵苯、1-*p*-甲苯醯-2,5-二鹵苯等二鹵芳基取代苯類；4,4'-二鹵聯苯類二鹵聯苯類；1,4-二鹵萘、1,6-二鹵萘、2,6-二鹵萘等二鹵萘類等，其中又以 *p*-二氯苯為佳。

② 非質子性有機溶劑

本發明所使用之非質子性有機溶劑可為，一般極性有機化合物，例如可單獨使用醯胺化合物、內醯胺化合物、尿素化合物、有機硫化合物、環式有機磷化合物等、或使用其混合溶劑。

該極性溶劑中，醯胺化合物如，*N,N*-二甲基甲醯胺、*N,N*-二乙基甲醯胺、*N,N*-二甲基乙醯胺、*N,N*-二乙基乙醯胺、*N,N*-二丙基乙醯胺、*N,N*-

(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)

二甲基安息香酸醯胺等。

內醯胺化合物如，己內醯胺、N-甲基己內醯胺、N-乙基己內醯胺、N-異丙基己內醯胺、N-異丁基己內醯胺、N-正丙基己內醯胺、N-正丁基己內醯胺、N-環己基己內醯胺等N-烷基己內醯胺類；N-甲基-2-吡咯烷酮(NMP)、N-乙基-2-吡咯烷酮、N-異丙基-2-吡咯烷酮、N-異丁基-2-吡咯烷酮、N-正丙基-2-吡咯烷酮、N-正丁基-2-吡咯烷酮、N-環己基-2-吡咯烷酮、N-甲基-3-甲基-2-吡咯烷酮、N-乙基-3-甲基-2-吡咯烷酮、N-甲基-3,4,5-三甲基-2-吡咯烷酮、N-甲基-2-哌啶酮、N-乙基-2-哌啶酮、N-異丙基-2-哌啶酮、N-甲基-6-甲基-2-哌啶酮、N-甲基-3-乙基-2-哌啶酮等。

尿素化合物如，四甲基尿素、N,N'-二甲基伸乙基尿素、N,N'-二甲基伸丙基尿素等。

有機硫化合物如，二甲基亞碲、二乙基亞碲、二苯基碲、1-甲基-1-羰基環丁碲、1-乙基-1-羰基環丁碲、1-苯基-1-羰基環丁碲等。環式有機磷化合物如，1-甲基-1-羰基正磷、1-正丙基-1-羰基正磷、1-苯基-1-羰基正磷等。

上述各種極性有機化合物可單獨使用或二種以上混用，又，不妨害本發明目的之範圍下，可混用其他溶劑成分。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (5)

上述各種極性溶劑中又以 N - 烷基己內醯胺及 N - 烷基吡咯烷酮為佳，特佳為 N - 甲基 - 2 - 吡咯烷酮。

③ 硫源

本發明所使用之硫源主要為，硫化鈉、硫化鋰、硫化鉀等鹼金屬化合物所代表之金屬硫化物。又，可單獨使用或二種以上混用。另外可併用鹼土類金屬硫化物或其他硫源。

④ 相分離劑

所使用之相分離例如，氯化鈉、乙酸鈉、鋰等鹼金屬鹽、水等，其中又以氯化鋰為佳。

⑤ 其他

本發明於無損其效果之範圍下，可併用共聚用單體、支化劑、末端停止劑等及二鹵化合物。又，可與共聚用單體或支化劑共聚合。共聚用單體如，2，3 - 二氯苯酚、2，3 - 二溴苯酚、2，4 - 二氯苯酚、2，4 - 二溴苯酚、2，5 - 二氯苯酚、2，5 - 二溴苯酚、2，4 - 二氯苯胺、2，4 - 二溴苯胺、2，5 - 二氯苯胺、2，5 - 二溴苯胺、3，3' - 二氯 - 4，4' - 二胺基聯苯、3，3' - 二溴 - 4，4' - 二胺基聯苯、3，3' - 二氯 - 4，4' - 二羥基聯苯、3，3' - 二溴 - 4，4' - 二羥基聯苯、二(3 - 氯 - 4 胺基)苯基甲烷、4，

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (6)

4' - 二氯二苯基醚、4, 4' - 二氯二苯基砒等，支化劑如，2, 5 - 二氯硝基苯、2, 4 - 二硝基氯苯、1, 2, 4 - 三氯苯、1, 3, 5 - 三氯苯、1, 2, 3 - 三氯苯等。

末端停止劑如，p - 溴苯酚、m - 溴苯酚、o - 溴苯酚、p - 氯苯酚、m - 氯苯酚、o - 氯苯酚、p - 氟苯酚、m - 氟苯酚、o - 氟苯酚、p - 碘苯酚、m - 碘苯酚、o - 碘苯酚等鹵化苯酚等，其中又以 p - 溴苯酚、p - 氯苯酚為佳。

(2) 製造 P A S

① 原料使用量

本發明之方法的特徵為，以硫源及二鹵芳香族化合物為主原料成分製造 P A S 時，聚合反應時係分複數次添加二鹵芳香族化合物，又以分 2 次或 3 次添加為佳，採用該添加方法時，可有效率製得高分子量且熱安定性優良之 P A S。

本發明之製造方法例如係分 2 次添加二鹵芳香族化合物時，反應開始所添加之二鹵芳香族化合物的第 1 次使用量較佳為，對硫源之莫耳比為 0.90 至 1.04，更佳為 0.93 至 1.02。又，第 2 次添加時，追加之二鹵芳香族化合物對硫源的莫耳比較佳為 0.01 以上，且第 1 次及第 2 次之合計添加量的上述莫耳比為 0.98 以上，又以 1.00 以上為佳。第 1 次及第 2 次之莫耳比超出

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明()

該範圍時，將無法得到高分子量且熱安定性優良之 P A S

。

本發明方法中，二鹵芳香族化合物第 2 次以後之添加時段較佳為，反應開始時第 1 次所添加之二鹵芳香族化合物中 50% 以上反應後，更佳為 60% 以上反應後之時段，若之前添加時，將無法充分表達分批之二鹵芳香族化合物添加效果。

又，分 3 次以上添加二鹵芳香族化合物時，二鹵芳香族化合物之各階段的使用量可為，第 1 次添加量符合上述莫耳比之量，第 2 次以後之添加量的最終合計添加量對硫源之莫耳比為 0.98 以上，更佳為 1.00 以上。

使用水時，水使用量對金屬硫化物之莫耳比較佳為 0.05 至 4.0，更佳為 0.1 至 3.0。該莫耳比低於 0.05 時，反應將不足，又，莫耳比超過 4.0 時，將無法得到高分子量之 P A S。

為了促進反應，本發明除了上述原料外，可添加鹼金屬化合物等金屬氫氧化物、鹼金屬·N-甲基胺基丁酸鹽等金屬 N-甲基胺基丁酸鹽。該添加物使用量對硫源之莫耳比較佳為 0.01 至 1.0，更佳為 0.05 至 0.8。

② 反應條件

本發明之聚合反應可以連續處理或分批處理方式進行，但就製造成本面，又以連續處理進行為佳。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (8)

本發明製造方法之聚合反應可為 230 至 290 °C，又以 240 至 280 °C 為佳，更佳為 250 至 270 °C 之一段式反應，又，聚縮合前可進行 180 至 230 °C，又以 190 至 220 °C 為佳，更佳為 195 至 215 °C 之預聚合。聚縮合之反應時間為 0.5 至 1.0 小時，又以 1.0 至 1.0 小時為佳，更佳為 1.5 至 1.0 小時。反應時間少於 0.5 小時時反應將不足，而無法充分提高分子量，又，反應時間既使超過 1.0 小時，亦無法得到更高之效果。

本發明所使用之聚合槽、攪拌翼並無特別限制，但聚合槽較佳為，能完全混合之形狀，攪拌翼較佳為全域型等大型翼。

聚合後之聚合溶液可於 P A S 未固化下添加水，以進行洗淨步驟。水使用量會依聚合溶液量、溫度而異，但以充分冷卻而使 P A S 固化後未析出之量為佳。洗淨槽較佳為，一般攪拌下聚合溶液能與水充分混合之物。

洗淨溶液可為，溶解附著於聚合物之不純物、副產物時對聚合物無不良影響者，並無特別限制，例如可為甲醇、丙酮、苯、甲苯、水、N M P，其中又以水為佳。

聚合反應結束後，為了分離聚合溶液中聚合物相及溶劑相，可利用分離槽進行分離步驟。

又，為了得到更充分之洗淨、分離效果，可隨意重覆數次洗淨及分離步驟。

本發明結束洗淨及分離步驟後，聚合物相仍含有溶劑

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (9)

，因此以去除溶劑為佳。該溶劑去除方法並無特別限制，可依據已知之 P A S 製造方法所使用的溶劑去除方法（例如特開平 7 - 3 3 8 7 8 號公報等所揭示之閃蒸法）。

結束溶劑去除步驟之 P A S 可以熔融狀態，或以適當方法冷卻固化後之粒狀取出。該冷卻法可為空冷、水冷、油冷等。

2 . 聚伸芳基硫 (P A S)

本發明製造方法所得之 P A S 係固有粘度 [η] 為 0 . 1 0 以上，又以 0 . 1 4 以上為佳，熔融指數 (M I) 為 0 至 1 0 0 0 g / 1 0 分之高分子量化合物。又，該樹脂因具有優良熱安定性，故適用於各種嚴苛用途上。

上述固有粘度為，將上述方法所得之聚伸芳基硫溶解於 α - 氯萘中，使濃度為 0 . 4 d l / g 後，2 0 6 ° C 下利用馬伯羅德粘度計測得之值。

又，本發明之熱安定性評估方法較佳為，使用 P A S 及 N M P 之混合物，並將該混合物保持於高溫 (2 6 5 ° C) 下 8 小時後，能觀測 P A S 之固有粘度 [η] 變化的方法。此時 P A S 與 N M P 之混合比率可隨意，但為了提高再生性，一般兩者為等量 (質量) ，例如各添加 2 . 5 g 進行。又，考量各種樹脂之溶解性下，以 2 6 0 ° C 下之值表示較為便利。

本發明製造方法所得之 P A S 為，例如含有構造式 - A r - S - (A r 為伸芳基) 所示重覆單位 7 0 莫耳 % 以

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

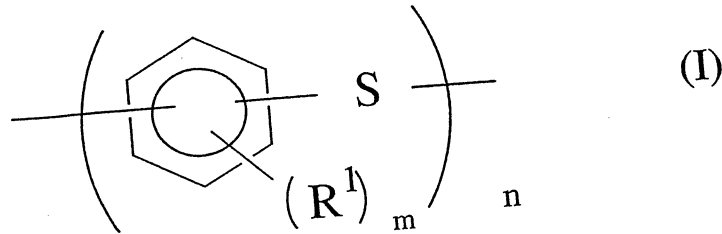
裝

訂

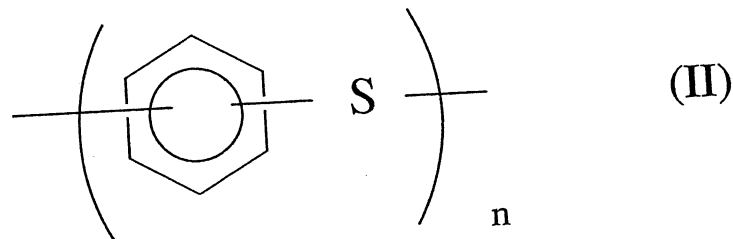
線

五、發明說明 (10)

上之聚合物。其代表例如，具有下列構造式 (I)



(式中， R^1 為碳數 6 以下之烷基、烷氧基、苯基、羧酸之金屬鹽、胺基、硝基或氟、氯、溴等鹵原子中所選出之取代基； m 為 0 至 4 之整數； n 為 10 至 200 之平均聚合度) 所示重覆單位 70 莫耳% 以上之 PPS，或下列構造式 (I I)



(式中， n 同一般式 (I) 之 n) 所示 PPS。

已知以一般製造方法製得之 PAS 為，實質上線狀不具支鏈、交聯構造之分子構造物、或具有支鏈、交聯構造之構造物，又，本發明之製造方法對任何型態物均有效。PAS 可為，含有重覆單位之對伸苯基硫單位 70 莫耳% 以上，又以 80 莫耳% 以上為佳之均聚物或共聚物。該共聚物構造單位如，間伸苯基硫單位、鄰伸苯基硫單位、 p, p' -二伸苯基酮硫單位、 p, p' -二伸苯基砒硫單位、 p, p' -聯伸苯基硫單位、 p, p' -二伸苯基醚硫單位、 p, p' -二伸苯基枯烯基硫單位、萘基硫單位

(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

等。又，本發明之聚伸芳基硫除了實質上為線狀聚合物外，可為混合少量部分單體為具有3個以上官能基之單體聚合而得的支鏈或交聯聚伸芳基硫、或上述線狀聚合物摻混該物而得之聚合物。

本發明之PAS樹脂組成物係由上述方法所得之PAS 20至90重量%及無機填料80至10重量%所形成，又以PAS 20至70重量%及無機填料80至30重量%為佳，更佳為PAS 40至70重量%及無機填料60至30重量%所形成。無機填料如，玻璃纖維、碳纖維、芳香族聚醯胺纖維、鈦酸鉀晶鬚、碳化矽晶鬚、雲母陶瓷纖維、矽灰石、雲母、滑石、二氧化矽、氧化矽、高嶺土、滑石、矽鋁、碳黑、碳酸鈣、氧化鈦、碳酸鋰、二硫化鉬、黑鉛、氧化鐵、玻璃珠、磷酸鈣、硫酸鈣、碳酸鎂、磷酸鎂、氮化矽、水滑石等。又，該無機填料可一種或二種以上組合使用。其中又以玻璃纖維為佳。

所使用之玻璃纖維並無特別限制，可為鹼玻璃、低鹼玻璃或無鹼玻璃，又，纖維長較佳為0.1至8mm，更佳為0.3至6mm，纖維徑較佳為0.1至30 μ m，更佳為0.5至25 μ m。纖維長小於0.1mm時會降低補強效果，又，大於8mm時會降低流動性。纖維徑小於0.1 μ m時會降低流動性，又，大於30 μ m時會降低強度。玻璃纖維之形態並無特別限制，例如可為粗紗、軟玻璃纖維、短玻璃纖維等各種形態。該玻璃纖維可單獨使用或二種以上組合使用。

(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)

又，爲了提高與樹脂之親合性、玻璃纖維可爲，以胺基矽烷系、環氧矽烷系、乙烯基矽烷系、甲基丙烯基矽烷系等矽烷系偶合劑、或四甲基·鄰鈦酸酯、四乙基·鄰鈦酸酯等鈦酸酯系偶合劑，或鉻錯合物、硼化合物表面處理之物。

本發明之 P A S 樹脂組成物的調製方法並無特別限制，例如可由添加 P A S、無機填料及必要時所使用之矽烷偶合劑、防氧化劑、熱安定劑、滑劑、可塑劑、導電性賦予劑、著色劑、含量等添加劑後，利用轉鼓混合機、漢氏混合機等混合，再利用單軸擠押機或多軸擠押機熔融混煉造粒、或利用捏和機、班伯里混合機等熔融混煉造粒而得。

本發明之成形品可利用射出成形法或擠押成形法等方法，由上述 P A S 樹脂組成物製得。

因本發明之製造方法係於聚合反應時，分複數次添加原料成分用之二鹵芳香族化合物，故可得高分子量且熱安定性優良之 P A S。

本發明所得之 P A S 適用爲各種成形品之材料，例如薄膜、纖維、機械部品、電器部品、電子部品等之材料。

下面將以實施例具體說明本發明。又，以下列方法評估 P D C B 濃度、P A S 之固有粘度及熱安定性。

[測定 P D C B 濃度]

利用氣相色譜以內部標準法定量。所使用之稀釋溶劑

(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)

為氯仿，內部標準為 1, 2, 4 - 三氯苯。

〔測定固有粘度〕

23.5 °C 下以 15 分鐘將試料 0.04 ± 0.001 g 溶解於 α - 氯萘 10 毫升中，再測定 20.6 °C 之恆溫槽內所得之粘度與未溶解聚合物之 α - 氯萘粘度的相對粘度。其後利用下列式由該值算出固有粘度 $[\eta]$ 。

$$[\eta] \text{ (分升/g)} = \eta \text{ (相對粘度)} / \text{聚合物濃度}$$

〔熱安定性評估方法〕

將 PAS 2.5 g 及 N - 甲基 - 2 - 吡咯烷酮 (NMP) 2.5 g 投入內容積 10 毫升之小型耐壓容器 (SUS 316 製) 中，密栓後於油浴中將容器升溫至 265 °C 並保持 8 小時。其後取出容器，冷卻後取出 PAS，再以上述方法測定水洗、乾燥後之固有粘度 $[\eta]$ ，並以 $\Delta \eta$ 表示固有粘度 $[\eta]$ 之變化量。

實施例 1

預聚合

將 N - 甲基 - 2 - 吡咯烷酮 (NMP) 633 kg 及氫氧化鋰 ($\text{LiOH} \cdot \text{H}_2\text{O}$) 100 kg (2.38 千莫耳) 放入附有攪拌機之 1 m^3 鈦製原料合成槽中，升溫後保持於 140 °C 下進行間歇蒸餾以去除原料氫氧化鋰中所含之水分。其後將溫度保持於 130 °C，再吹入 65 N 千升

(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)

之氣體狀硫化氫以合成氫硫化鋰。

接著停止吹入硫化氫，再將聚合槽升溫至 205℃。升溫的同時進行間歇蒸餾以去除吹入硫化氫時副產物之水及，由氫硫化鋰生成硫化鋰。

結束反應後，反應物含有硫化鋰 1.08 千莫耳及 N-甲基丁酸鋰 0.214 千莫耳。205℃下將對二氯苯 (PDCB) 154.0 kg (1.048 千莫耳) 及純水 5.3 kg 投入反應物中，再升溫至 210℃反應 3 小時。

將反應液冷卻至 60℃以下，由反應器之 20 L 容器取出反應混合物，結果 PDCB 之轉化率為 90%。

其後對反應器追加 PDCB 11.1 kg (0.076 千莫耳)，充分攪拌後由 20 L 容器取出反應混合物。

連續聚合

將相分離利用之氯化鋰 855 g，NMP 5145 g 放大裝有全域翼之 10 L 高壓鍋後升溫至 260℃，再利用齒輪泵以 33.3 g / 分之速度將保持為 60℃之上述所得預聚物連續供應反應器。

又，由保持一定液面水平用之取液嘴以 5 分鐘 1 次之方式，由反應器取出約 150 至 200 g 之聚合混合物。連續操作 24 小時後，對取出之試料進行傾斜過濾以分離聚合物及聚合液，再測定聚合液中 PDCB 濃度。又，依

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (15)

序以熱水 2 次、丙酮 1 次方式洗淨聚合物後，120℃下真空乾燥 12 小時，再評估固有粘度〔 η 〕、熱安定性 η 。結果如表 1 所示。

實施例 2

除了將追加之 P D C B 量由 11.1 kg (0.076 千莫耳) 改為 7.9 kg (0.054 千莫耳) 外，其他同實施例 1，得 P A S 聚合混合物。其後同實施例 1 進行評估，結果如表 1 所示。

實施例 3

除了將預聚物合成時間由 3 小時改為 2 小時及，追加 P D C B 之時段的 P D C B 反應率為 60% 外，其他同實施例 1，得 P A S 聚合混合物。其後同實施例 1 進行評估，結果如表 1 所示。

實施例 4

除了將預聚物合成時之 P D C B 量由 154.0 kg (1.048 千莫耳) 改為 147.7 kg (1.004 千莫耳) 及，將追加之 P D C B 量由 11.1 kg (0.076 千莫耳) 改為 17.5 kg (0.119 千莫耳) 外，其他同實施例 1，得 P A S 聚合混合物。其後同實施例 1 進行評估，結果如表 1 所示。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (16)

比較例 1

除了將預聚物合成時之 P D C B 量由 1 5 4 . 0 k g (1 . 0 4 8 千莫耳) 改爲 1 6 5 . 1 k g (1 . 1 2 3 千莫耳) 及，不追加 P D C B 外，其他同實施例 1，得 P A S 聚合混合物。其後同實施例 1 進行評估，結果如表 1 所示。

比較例 2

除了將預聚物合成時之 P D C B 量由 1 5 4 . 0 k g (1 . 0 4 8 千莫耳) 改爲 1 6 1 . 9 k g (1 . 1 0 2 千莫耳) 及，不追加 P D C B 外，其他同實施例 1，得 P A S 聚合混合物。其後同實施例 1 進行評估，結果如表 1 所示。

表 1

	PDCB/Li ₂ S 莫耳比			[η] (dl/g)	Δ [η] (dl/g)
	初期	追加	合計		
實施例 1	0.97	0.07	1.04	0.28	0.01
實施例 2	0.97	0.05	1.02	0.30	0.02
實施例 3	0.97	0.07	1.04	0.26	0.01
實施例 4	0.93	0.11	1.04	0.27	0.03
比較例 1	1.04	0.00	1.04	0.28	0.17
比較例 2	1.02	0.00	1.02	0.26	0.18

(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)

產業上利用可能性

聚伸芳基硫，特別是聚伸苯基硫適用為，具有優良機械強度及耐熱性等，且具有良好電特性、高剛性之工程塑料，因此廣泛使用為電子電器部品之材料等各種材料。特別是聚伸苯基硫及無機填料所形成之樹脂組成物的成形品適用於各種用途上。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

四、中文發明摘要(發明之名稱:

聚伸芳基硫之製造方法)

本發明係有關聚伸芳基硫之製造方法，其特徵為，非質子性有機溶劑中，由硫源及二鹵芳香族化合物製造聚伸芳基硫之方法中，聚合反應時係分複數次添加二鹵芳香族化合物，因此，本發明可提供高分子量且熱安定優良之聚伸芳基硫的製造方法。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

英文發明摘要(發明之名稱:Process for producing polyarylene sulfide)

There is disclosed a process for producing a polyarylene sulfide which comprises reacting a sulfur source with a dihalogenated aromatic compound in an aprotic organic solvent, characterized by adding the dihalogenated aromatic compound by dividing the same into a plurality of times at the time of polymerization reaction. It is made possible by the present invention to provide a process for efficiently producing polyarylene sulfide which has a high molecular weight and is excellent in thermal stability.

申請日期	91年3月25日
案號	91105767
類別	C08G75/02

A4
C4

(以上各欄由本局填註)

發 明 專 利 說 明 書

新 型

一、發明 名稱	中 文	聚伸芳基硫之製造方法
	英 文	
二、發明 創作人	姓 名	(1) 菅浩一 Suga, Koichi
	國 籍	(1) 日本 (1) 日本國千葉縣市原市姉崎海岸一一一 1-1, Anesakikaigan, Ichihara-shi, Chiba, Japan
	住、居所	
三、申請人	姓 名 (名稱)	(1) 財團法人石油產業活性化中心 Petroleum Energy Center, a Juridical Incorporated Foundation (2) 出光興產股份有限公司 Idemitsu Kosan Co., Ltd.
	國 籍	(1). 日本 (2) 日本
	住、居所 (事務所)	(1) 日本國東京都港區虎之門四丁目三-九 3-9, Toranomom 4-chome, Minato-ku, Tokyo, Japan (2) 日本國東京都千代田區丸之內三丁目一番一號
	代 表 人 姓 名	1-1, Marunouchi 3-chome, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8321 Japan (1) 工藤富之 Kudo, Tomiyuki (2) 天坊昭彦 Tembo, Akihiko

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

裝 訂 線

六、申請專利範圍

第 91105767 號專利申請案

中文申請專利範圍修正本

民國 92 年 12 月 30 日修正

1. 一種聚伸芳基硫之製造方法，其為於非質子性有機溶劑中，由硫源及二鹵芳香族化合物製造聚伸芳基硫之方法中，聚合反應時係分複數次添加二鹵芳香族化合物。

2. 如申請專利範圍第 1 項之製造方法，其中，所添加之二鹵芳香族化合物中 50% 以上反應後，再添加二鹵芳香族化合物。

3. 如申請專利範圍第 1 項之製造方法，其中，所添加之二鹵芳香族化合物中 60% 以上反應後，再添加二鹵芳香族化合物。

4. 如申請專利範圍第 1 項之製造方法，其中，聚合反應時係分 2 次添加二鹵芳香族化合物。

5. 如申請專利範圍第 4 項之製造方法，其中，二鹵芳香族化合物第 1 次之使用量對硫源的莫耳比為 0.90 至 1.04，第 2 次使用量對硫源之莫耳比為 0.01 以上。

6. 如申請專利範圍第 1 項之製造方法，其係連續進行聚合。

7. 如申請專利範圍第 1 項之製造方法，其係於存在相分離劑下進行聚合。

8. 如申請專利範圍第 1 項之製造方法，其中，聚伸芳基硫之固有粘度 $[\eta]$ 為 0.1 以上。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂