



(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 I624358 B

(45)公告日：中華民國 107 (2018) 年 05 月 21 日

(21)申請案號：103116954

(22)申請日：中華民國 103 (2014) 年 05 月 14 日

(51)Int. Cl. : *B32B15/08 (2006.01)* *B32B7/04 (2006.01)*
C08L81/02 (2006.01) *C08L57/10 (2006.01)*
C08L63/00 (2006.01) *C08K7/18 (2006.01)*
B29C45/00 (2006.01) *B29C45/14 (2006.01)*
B29K63/00 (2006.01) *B29K81/00 (2006.01)*
B29K105/22 (2006.01)

(30)優先權：2013/06/11 日本 2013-122756

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

(72)發明人：大西克平 ONISHI, KATSUHEI (JP)；大竹史幸 OHTAKE, FUMIYUKI (JP)；松田邦明 MATSUDA, KUNIAKI (JP)

(74)代理人：洪澄文

(56)參考文獻：

CN 1292019A

CN 101792533A

審查人員：湯有春

申請專利範圍項數：7 項 圖式數：2 共 32 頁

(54)名稱

金屬樹脂複合成形體及其製造方法

(57)摘要

提供一種嵌入金屬元件與樹脂元件的接合強度強、表面外觀良好且對酸、鹼等具有優異的耐藥品性之金屬樹脂複合成形體及其製造方法。提供一種金屬樹脂複合成形體，其包括嵌入金屬元件及樹脂元件，其中該樹脂元件係由樹脂組成物所構成且被嵌件成形在前述嵌入金屬元件上；前述嵌入金屬元件之與前述樹脂元件接觸之表面的至少一部分係經施行物理處理及/或化學處理。前述樹脂組成物係含有：(A)聚芳硫醚(polyarylene sulfide)樹脂 100 質量份；(B)無機填充劑 10~250 質量份，其係非纖維狀，平均粒徑為 30 μ m 以下且選自由球狀氧化矽及玻璃珠所組成群組；及(C)環氧化合物 3~55 質量份。

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)

金屬樹脂複合成形體及其製造方法

【技術領域】

【0001】 本發明係有關於一種金屬樹脂複合成形體及其製造方法。

【先前技術】

【0002】 將由金屬、合金等所構成的嵌入金屬元件、及由熱可塑性樹脂組成物所構成的樹脂元件一體化而成之金屬樹脂複合成形體，以往，係被使用在儀表板(instrument panel)周圍的控制箱等的汽車的內裝元件、引擎周圍零件、內部零件、數位相機、行動電話等的電子機器的界面連接部、電源端子部等與外界接觸之零件。

【0003】 作為將嵌入金屬元件與樹脂元件一體化之方法，有在嵌入金屬元件側的接合面施行物理處理及/或化學處理，而使嵌入金屬元件與樹脂元件的密著性提升之方法；使用接著劑和雙面膠帶進行接著之方法；在嵌入金屬元件及/或樹脂元件設置折疊片、鉤子等的固定元件且使用該固定元件而使兩者固定之方法；及使用螺桿等而進行接合之方法等。該等之中，就設計金屬樹脂複合成形體的自由度而言，在嵌入金屬元件側的接合面施行物理處理及/或化學處理之方法和使用接著劑係有效的。

【0004】 特別是就不使用昂貴的接著劑方面而言，在嵌入

金屬元件側的接合面施行物理處理及/或化學處理之方法係有利的。作為在嵌入金屬元件側的接合面施行物理處理及/或化學處理之方法，例如，可舉出在專利文獻 1 所記載之方法。該方法係能夠在嵌入金屬元件的表面之所需要的範圍形成粗糙面且作業上亦簡便，乃是有效的方法之一。又，在專利文獻 1 所記載之方法係使用雷射在上述表面形成粗糙面之方法。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0005】 [專利文獻 1] 日本特開 2010-167475 號公報

【發明內容】

[發明欲解決之課題]

【0006】 上述，金屬樹脂複合成形體亦能夠使用在電子機器等之與外界接觸的零件。在此種零件所使用的金屬樹脂複合成形體，不僅被要求嵌入金屬元件與樹脂元件的接合強度強，而且亦被要求表面外觀良好且對酸、鹼等具有優異的耐藥品性。

【0007】 本發明之目的，係提供一種嵌入金屬元件與樹脂元件的接合強度強、表面外觀良好且對酸、鹼等具有優異的耐藥品性之金屬樹脂複合成形體及其製造方法。

[用以解決課題之手段]

【0008】 為了解決前述課題，本發明者等重複專心研討。其結果，發現藉由在嵌入金屬元件之與樹脂元件接觸之表面的至少一部分，施行物理處理及/或化學處理，且使用由含有聚芳硫醚樹脂的特定樹脂組成物所構成之樹脂元件，能夠解決上

述課題而完成了本發明。更具體地，係本發明係提供以下事項。

【0009】 (1)一種金屬樹脂複合成形體，包括嵌入金屬元件及樹脂元件，其中該樹脂元件係由樹脂組成物所構成且被嵌件成形在前述嵌入金屬元件上；前述嵌入金屬元件之與前述樹脂元件接觸之表面的至少一部分係經施行物理處理及/或化學處理；前述樹脂組成物係含有：(A)聚芳硫醚樹脂 100 質量份；(B)無機填充劑 10~250 質量份，其係非纖維狀，平均粒徑為 30 μ m 以下且選自由球狀氧化矽及玻璃珠所組成群組；及(C)含環氧基的烯烴系共聚物 3~55 質量份；而且前述樹脂組成物中之環氧基含量係 0.01~0.80 質量%。

【0010】 (2)如(1)所述之金屬樹脂複合成形體，其中前述(C)含環氧基的烯烴系共聚物係含有源自 α -烯烴的構成單元；及源自 α, β -不飽和酸的環氧丙酯的構成單元之烯烴系共聚物。

【0011】 (3)如(1)或(2)所述之金屬樹脂複合成形體，其中前述(C)含環氧基的烯烴系共聚物，係進一步含有源自(甲基)丙烯酸酯的構成單元之烯烴系共聚物。

【0012】 (4)如(1)至(3)項中任一項所述之金屬樹脂複合成形體，其中進一步含有(D)含環氧基的化合物。

【0013】 (5)如(1)至(4)項中任一項所述之金屬樹脂複合成形體，其中在包括殼體之電機電子(electrical and electronic)機器，具有構成前述殼體的至少一部分且在前述電機電子機器的外部露出之部分。

【0014】 (6)一種金屬樹脂複合成形體之製造方法，係具有一體化步驟之金屬樹脂複合成形體之製造方法，該一體化步驟

係在射出成形用模具內，配置表面的至少一部分經施行物理處理及/或化學處理之嵌入金屬元件，且將樹脂組成物在熔融狀態下射出至前述射出成形用模具內而將前述嵌入金屬元件與樹脂元件一體化，其中前述樹脂組成物係含有：(A)聚芳硫醚樹脂 100 質量份；(B)無機填充劑 10~250 質量份，其係非纖維狀，平均粒徑為 30 μ m 以下且選自由球狀氧化矽及玻璃珠所組成群組；及(C)含環氧基的烯烴系共聚物 3~55 質量份；而且前述樹脂組成物中之環氧基含量係 0.01~0.80 質量%。

【0015】 (7)如(6)所述之金屬樹脂複合成形體之製造方法，其中前述(C)含環氧基的烯烴系共聚物係含有選自由源自 α -烯烴的構成單元及源自 α , β -不飽和酸的環氧丙酯的構成單元之烯烴系共聚物。

【0016】 (8)如(6)或(7)所述之金屬樹脂複合成形體之製造方法，其中前述(C)含環氧基的烯烴系共聚物，係進一步含有源自(甲基)丙烯酸酯的構成單元之烯烴系共聚物。

【0017】 (9)如(6)至(8)項中任一項所述之金屬樹脂複合成形體之製造方法，其中進一步含有(D)含環氧基的化合物。

[發明效果]

【0018】 依照本發明，能夠提供一種嵌入金屬元件與樹脂元件的接合強度強、表面外觀良好且對酸、鹼等具有優異的耐藥品性之金屬樹脂複合成形體及其製造方法。

【圖式簡單說明】

【0019】

第 1 圖係示意地顯示在實施例及比較例所使用的金屬樹脂

複合成形體之圖，(a)係分解斜視圖，(b)係斜視圖，(c)係只顯示金屬部之圖。

第2圖係示意地顯示實施例而進行之樹脂部與金屬部之間的接合強度的測定方法之圖。

【實施方式】

【0020】 以下，說明本發明的實施形態。又，本發明係不被以下的實施形態限定。

【0021】 <嵌入金屬元件>

在本發明所使用之嵌入金屬元件，係在與樹脂元件接觸之表面的至少一部分、較佳是在全部施行物理處理及/或化學處理。

【0022】 構成嵌入金屬元件之金屬材料係沒有特別限定，作為其例子，能夠例示銅、鋁、鎂等。又，嵌入金屬元件係可由金屬合金構成。作為金屬合金，例如可舉出銅合金、鋁合金、鎂合金、不鏽鋼等。又，在金屬材料的表面，亦可進行陽極氧化處理等的表面處理和塗裝。

【0023】 在本發明，係使用按照用途等而成形為所需要形狀之嵌入金屬元件。例如，藉由將熔融後的金屬等流入所需要形狀的模具，能夠得到所需要形狀的嵌入金屬元件。又，為了將嵌入金屬元件成形為所需要形狀，亦可使用工作機械等之切削加工等。

【0024】 在如上述進行而得到的嵌入金屬元件的表面，施行物理處理及/或化學處理。施行物理處理及/或化學處理之位置、處理範圍的大小，係能夠考慮形成樹脂元件之位置等而決

定。

【0025】 物理處理及化學處理係沒有特別限定，能夠使用習知的物理處理及化學處理。藉由物理處理而能夠將嵌入金屬元件的表面粗糙面化，而且藉由構成樹脂元件的樹脂組成物進入在粗糙面化區域所形成的孔穴而產生錨固效果，使得在嵌入金屬元件與樹脂元件的界面之密著性容易提升。另一方面，藉由化學處理，因為能夠對嵌入金屬元件與嵌件成形之樹脂元件之間，賦予共價鍵、氫鍵、或分子間力等的化學接著效果，所以在嵌入金屬元件與樹脂元件的界面之密著性係容易提升。因為化學處理亦可帶來嵌入金屬元件表面的粗糙面化，此時，係與物理處理產生同樣的錨固效果，使得在嵌入金屬元件與樹脂元件的界面之密著性更容易提升。

【0026】 作為物理處理，例如可舉出雷射處理、噴砂處理(特開 2001-225346 號公報)等。亦可組合而施行複數種物理處理。雷射處理時，具體而言係照射雷射而將金屬表面進行刻槽加工(grooving)及在使其熔融且再凝固的條件下進行粗糙面加工。

作為化學處理，例如，可舉出電暈放電等的乾式處理、三吡處理(特開 2000-218935 號公報參照)、化學蝕刻(特開 2001-225352 號公報)、陽極氧化處理(特開 2010-64496)、胼處理等。又，構成嵌入金屬元件之金屬材料為鋁時，亦可舉出溫水處理(特開平 8-142110 號公報)。作為溫水處理，可舉出在 100℃ 的水中浸漬 3~5 分鐘。亦可組合而施行複數種化學處理。

【0027】 <樹脂元件>

在本發明所使用之樹脂元件，係由樹脂組成物所構成且被

嵌件成形在嵌入金屬元件上。上述樹脂組成物係含有(A)聚芳硫醚樹脂 100 質量份；(B)無機填充劑 10~250 質量份，其係非纖維狀，平均粒徑為 $30\mu\text{m}$ 以下且選自由球狀氧化矽及玻璃珠所組成群組；及(C)含環氧基的烯烴系共聚物 3~55 質量份；而且前述樹脂組成物中之環氧基含量係 0.01~0.80 質量%。以下，說明在本發明所使用的樹脂組成物所含有之各成分。

【0028】 [(A)聚芳硫醚樹脂]

作為(A)聚芳硫醚樹脂，係沒有特別限定，能夠使用先前習知的聚芳硫醚樹脂。作為(A)聚芳硫醚樹脂，係能夠適合使用聚苯硫(PPS；polyphenylene sulfide)樹脂。(A)聚芳硫醚樹脂係能夠使用單獨 1 種或組合 2 種以上而使用。

【0029】 因為嵌入金屬元件與樹脂元件能夠得到更良好的密著性，(A)聚芳硫醚樹脂之於 310°C 所測得之在剪切速度 1216/秒下的熔融黏度，係以 $8\sim 300\text{Pa}\cdot\text{s}$ 為佳，以 $10\sim 200\text{Pa}\cdot\text{s}$ 為特佳。

【0030】 [(B)無機填充劑]

(B)成分的無機填充劑，係只要非纖維狀，平均粒徑為 $30\mu\text{m}$ 以下且選自由球狀氧化矽及玻璃珠所組成群組，就沒有特別限定。(B)成分的無機填充劑係能夠使用單獨 1 種或組合 2 種以上而使用。

【0031】 (B)成分的無機填充劑之形狀，係只要非纖維狀，例如可舉出球狀、粉粒狀、板狀、鱗片狀、不定形狀等，並無特別限定。無機填充劑的形狀為非纖維狀時，所得到的金屬樹脂複合成形體係容易成為表面外觀和耐藥品性優異者。

【0032】 (B)成分的無機填充劑之平均粒徑為 $30\mu\text{m}$ 以下，以 $0.1\sim 25\mu\text{m}$ 為佳，較佳為 $0.1\sim 10\mu\text{m}$ ，更佳為 $0.1\mu\text{m}\sim 5\mu\text{m}$ 。上述平均粒徑越小，表面外觀越優異。另一方面，上述平均粒徑大於 $30\mu\text{m}$ 時，有無法得到充分的表面外觀之情形。又，在本說明書，平均粒徑係使用雷射繞射·散射法所測得之粒度分布累計值為 50%之粒徑(50%d)。

【0033】 相對於(A)聚芳硫醚樹脂 100 質量份，(B)成分的無機填充劑之含量係通常為 10~250 質量份，較佳為 20~200 質量份。上述含量小於 10 質量份時，材料的剛性及尺寸精確度容易不足。上述含量大於 250 質量份時，流動性容易變差且與金屬無法得到充分的接合強度之情形。

【0034】 [(C)含環氧基的烯烴系共聚物]

(C)含環氧基的烯烴系共聚物係沒有特別限定。(C)含環氧基的烯烴系共聚物係能夠使用單獨 1 種或組合 2 種以上而使用。

【0035】 作為(C)含環氧基的烯烴系共聚物，例如，可舉出含有源自 α -烯烴的構成單元及源自 α, β -不飽和酸的環氧丙酯的構成單元之烯烴系共聚物，尤其是因為能夠得到特別優異的金屬樹脂複合成形體，以進一步含有源自(甲基)丙烯酸酯的構成單元之烯烴系共聚物為佳。又，以下，將(甲基)丙烯酸酯類亦稱為(甲基)丙烯酸酯。例如，將(甲基)丙烯酸環氧丙酯類亦稱為(甲基)丙烯酸環氧丙酯。又，在本說明書，「(甲基)丙烯酸」係意味著丙烯酸及甲基丙烯酸之雙方，「(甲基)丙烯酸酯」係意味著丙烯酸酯及甲基丙烯酸酯之雙方。

【0036】 作為 α -烯烴，係沒有特別限定，例如可舉出乙烯、丙烯、丁烯等，以乙烯為特佳。 α -烯烴係能夠單獨使用 1 種，亦能夠併用 2 種以上。藉由(C)含環氧基的烯烴系共聚物係含有源自 α -烯烴的構成單元，能夠容易對樹脂元件賦予可撓性。藉由賦予可撓性使得樹脂元件變為柔軟，係有助於改善嵌入金屬元件與樹脂元件之間的接合強度，又，亦有助於改善耐衝擊性。

【0037】 作為 α, β -不飽和酸的環氧丙酯，係沒有特別限定，例如可舉出丙烯酸環氧丙酯、甲基丙烯酸環氧丙酯、乙基丙烯酸環氧丙酯等，以甲基丙烯酸環氧丙酯為特佳。 α, β -不飽和酸的環氧丙酯係能夠單獨使用 1 種，亦能夠併用 2 種以上。藉由(C)含環氧基的烯烴系共聚物係含有源自 α, β -不飽和酸的環氧丙酯的構成單元，嵌入金屬元件與樹脂元件之間的接合強度係容易得到提升的效果。

【0038】 作為(甲基)丙烯酸酯，係沒有特別限定，例如，可舉出丙烯酸甲酯、丙烯酸乙酯、丙烯酸正丙酯、丙烯酸異丙酯、丙烯酸正丁酯、丙烯酸正己酯、丙烯酸正辛酯等的丙烯酸酯；甲基丙烯酸甲酯、甲基丙烯酸乙酯、甲基丙烯酸正丙酯、甲基丙烯酸異丙酯、甲基丙烯酸正丁酯、甲基丙烯酸異丁酯、甲基丙烯酸正戊酯、甲基丙烯酸正辛酯等的甲基丙烯酸酯。尤其是以丙烯酸甲酯為特佳。(甲基)丙烯酸酯係能夠單獨使用 1 種，亦能夠併用 2 種以上。源自(甲基)丙烯酸酯的構成單元係有功於提升嵌入金屬元件與樹脂元件之間的接合強度。

【0039】 含有源自 α -烯烴的構成單元及源自 α, β -不飽和

酸的環氧丙酯的構成單元之烯烴系共聚物、及進一步含有源自(甲基)丙烯酸酯的構成單元之烯烴系共聚物，係能夠藉由先前習知的方法進行共聚合來製造。例如，能夠藉由使用通常已熟知的自由基聚合反應進行共聚合而得到上述共聚物。共聚物的種類係沒有特別限定，例如，可為無規共聚物，亦可為嵌段共聚物。又，例如，亦可以是聚甲基丙烯酸甲酯、聚甲基丙烯酸乙酯、聚丙烯酸甲酯、聚丙烯酸乙酯、聚丙烯酸丁酯、聚丙烯酸 2-乙基己酯、聚苯乙烯、聚丙烯腈、丙烯腈·苯乙烯共聚物、丙烯酸丁酯·苯乙烯共聚物等分枝狀或交聯結構地化學鍵結在上述烯烴系共聚物而成之烯烴系接枝共聚物。作為上述共聚物的種類，係以不是烯烴系接枝共聚物為佳，以無規共聚物及/或嵌段共聚物為較佳。

【0040】 在不損害本發明的效果之範圍，亦能夠在本發明所使用的烯烴系共聚物含有源自其他的共聚成分的構成單元。

【0041】 更具體地，作為(C)含環氧基的烯烴系共聚物，例如，可舉出甲基丙烯酸環氧丙酯改性乙烯系共聚物、環氧丙基醚改性乙烯共聚物等，尤其是以甲基丙烯酸環氧丙酯改性乙烯系共聚物為佳。

【0042】 作為甲基丙烯酸環氧丙酯改性乙烯系共聚物，能夠舉出甲基丙烯酸環氧丙酯接枝改性乙烯聚合物、乙烯-甲基丙烯酸環氧丙酯共聚物、乙烯-甲基丙烯酸環氧丙酯-丙烯酸甲酯共聚物。因為能夠得到特別優異金屬樹脂複合成形體，尤其是以乙烯-甲基丙烯酸環氧丙酯共聚物及乙烯-甲基丙烯酸環氧

丙酯-丙烯酸甲酯共聚物為佳，以乙烯-甲基丙烯酸環氧丙酯-丙烯酸甲酯共聚物為特佳。作為乙烯-甲基丙烯酸環氧丙酯共聚物及乙烯-甲基丙烯酸環氧丙酯-丙烯酸甲酯共聚物的具體例，可舉出「Bondfast」(住友化學(股)製)等。

【0043】 作為環氧丙基醚改性乙烯共聚物，例如，能夠舉出環氧丙基醚接枝改性乙烯共聚物、環氧丙基醚-乙烯共聚物。

【0044】 相對於(A)聚芳硫醚樹脂 100 質量份，(C)含環氧基的烯烴系共聚物的含量係通常為 3~55 質量份，較佳為 3~30 質量份。上述含量小於 3 質量份時，嵌入金屬元件與樹脂元件之間的接合強度有無法充分地得到之情形。又，嵌入金屬元件與樹脂元件的密著性係影響該等元件之間的線膨脹差。認為藉由(C)含環氧基的烯烴系共聚物實現應力緩和，應變變小且上述接合強度能夠改善。韌性對於應力緩和係有效的，韌性係能夠藉由拉伸延伸率來評價。認為作為彈性體的功能之(C)含環氧基的烯烴系共聚物的含量少時，拉伸延伸率小且無法得到充分的應力緩和效果。又，應力緩和亦有助於改善耐衝擊性。另一方面，上述含量大於 55 質量份時，因為(C)含環氧基的烯烴系共聚物與(A)聚芳硫醚樹脂反應致使黏度上升容易變大，所以流動性容易變差且有嵌入金屬元件與樹脂元件之間的接合強度有無法充分地得到之情形。從耐硫酸性的觀點，上述含量為 3~30 質量份時亦佳，容易得到較優異的金屬樹脂複合成形體。

【0045】 又，樹脂組成物中之環氧基含量係通常為 0.01~0.80 質量%，以 0.03~0.60 質量%為佳。上述環氧基含量為 0.01~0.80 質量%時，嵌入金屬元件與樹脂元件之間的接合

強度能夠容易維持良好，又，就嵌件成形時的脫模性不容易變差、及具有能夠抑制氣體產生量且模具維修的頻率容易降低而言，乃是較佳。又，所謂上述樹脂組成物中之環氧基含量，係(C)含環氧基的烯烴系共聚物中之環氧基含量、及後述(D)含環氧基的化合物中之環氧基含量之合計。上述樹脂組成物係只含有(C)含環氧基的烯烴系共聚物作為含環氧基的成分時，上述樹脂組成物中之環氧基含量，係與(C)含環氧基的烯烴系共聚物中之環氧基含量相等。(C)含環氧基的烯烴系共聚物中之環氧基含量，係在總組成物中以 0.02~0.60 質量%為佳，以 0.02~0.50 質量%為較佳。

【0046】 [(D)含環氧基的化合物]

在本發明所使用之樹脂組成物，亦可含有(D)含環氧基的化合物。在本發明所使用之樹脂組成物添加(D)含環氧基的化合物時，在所得到的金屬樹脂複合成形體，嵌入金屬元件與樹脂元件之間的接合強度係更容易提升。(D)含環氧基的化合物係只要上述(C)含環氧基的烯烴系共聚物以外之含環氧基的化合物，就沒有特別限定。(D)含環氧基的化合物係能夠使用單獨 1 種或組合 2 種以上而使用。

【0047】 (D)含環氧基的化合物係可以是在 1 分子內含有 1 個環氧基的化合物，亦可以是在 1 分子內含有 2 個以上的環氧基之化合物。作為(D)含環氧基的化合物，例如，可舉出使雙酚 A 與表氯醇反應而得到之雙酚型環氧化合物；使酚醛清漆樹脂與表氯醇反應而得到之酚醛清漆型環氧樹脂；使聚羧酸與表氯醇反應而得到之聚環氧丙酯類；從脂環化合物得到之脂環化

合物型環氧化合物；使具有酚性羥基的脂肪族化合物與表氯醇反應而得到之環氧丙基醚類；及使具有環氧化丁二烯及雙鍵的化合物與過氧化物反應而得到之環氧化合物。作為具體例，可舉出雙酚 A 型環氧化合物、甲基環氧丙基醚、苯基環氧丙基醚、各種的脂肪酸環氧丙酯、乙二醇二環氧丙基醚、酞酸二環氧丙酯、六氫酞酸二環氧丙酯、環氧化聚丁二烯、環氧化 SBS 等。尤其是以雙酚 A 型環氧化合物等的雙酚型環氧化合物為佳。

【0048】 相對於(A)聚芳硫醚樹脂 100 質量份，(D)含環氧基的化合物之含量，係以 0.01~10 質量份為佳，較佳為 0.01~5 質量份。上述含量為 0.01~10 質量份時，嵌入金屬元件與樹脂元件之間的接合強度係更容易提升。

【0049】 又，(D)含環氧基的化合物中之環氧基含量係如上述，只要(C)含環氧基的烯烴系共聚物中之環氧基含量、與(D)含環氧基的化合物中之環氧基含量的合計係總組成物中之 0.01~0.80 質量%，就沒有特別限定，(D)含環氧基的化合物中之環氧基含量係以總組成物中之 0.5 質量%以下(例如，大於 0 質量%且 0.5 質量%以下)為佳，以 0.35 質量%以下(例如，大於 0 質量%且 0.35 質量%以下)為較佳。上述環氧基含量係總組成物中之 0.5 質量%以下時，嵌入金屬元件與樹脂元件之間的耐剝離性係不容易低落。特別是在嵌件成形時，即便位於熔融狀態的樹脂組成物之流動末端，亦不容易產生界面剝離。又，因為嵌件成形時脫模性不容易變差，就容易得到目標成形品而言及就生產性不容易低落而言，乃是較佳。

【0050】 [其他成分]

在本發明所使用的樹脂組成物，爲了賦予所需要的物性，在損害本發明的效果不大的範圍，除了上述成分以外，亦可含有(B)成分以外的無機填充劑、有機填充劑、阻燃劑、紫外線吸收劑、熱安定劑、光安定劑、著色劑、碳黑、脫模劑、可塑劑等的添加劑。

【0051】 [樹脂組成物之製造方法]

在本發明所使用的樹脂組成物之製造方法，係只要能夠均勻地混合該樹脂組成物中之成分，就沒有特別限定，能夠從先前已知的樹脂組成物之製造方法適當地選擇。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而擠製之後，將所得到的樹脂組成物加工成爲粉末、碎片、丸粒等所需要的形態之方法。

【0052】 <金屬樹脂複合成形體>

本發明之金屬樹脂複合成形體係包括：嵌入金屬元件；及樹脂元件，其係由上述樹脂組成物所構成且被嵌件成形在上述嵌入金屬元件上。上述嵌入金屬元件之與上述樹脂元件接觸之表面的至少一部分，係經施行物理處理及/或化學處理。因爲本發明之金屬樹脂複合成形體係使用含有(C)含環氧基的烯烴系共聚物且將環氧基含量調整爲預定範圍而成之樹脂組成物，所以嵌入金屬元件與樹脂元件的接合強度強。又，因爲含有(B)成分的無機填充劑，所以表面外觀良好且對酸、鹼等具有優異的耐藥品性。

【0053】 因爲具有如上述的特性，所以本發明的金屬樹脂

複合成形體，係能夠適合使用在被要求不僅是嵌入金屬元件與樹脂元件的接合強度強，而且表面的外觀良好且具對酸、鹼等亦具有優異的耐藥品性之用途。例如，本發明的金屬樹脂複合成形體，係適合作為在內部包括容易因濕度和水分而引起不良影響的電機電子零件等之金屬樹脂複合成形體。特別是適合使用作為設想被使用在高水準要求防水的領域，例如河流、池塘、滑雪場、浴室等水分和濕氣的侵入與故障有關聯之電機或電子機器用零件。又，本發明的金屬樹脂複合成形體，係例如使用作為電機電子機器用殼體的至少一部分亦是有用的。上述電機電子機器用殼體亦可在內部包括樹脂製的軸套(boss)、保持元件等。在此，作為電機電子機器用殼體，能夠舉出行動電話、以及照相機、攝錄一體型照相機、數位相機等的攜帶圖像電子機器的殼體；筆記型個人電腦、口袋電腦、電子式桌上計算機、電子記事簿、PDC、PHS、行動電話等攜帶用資訊或通信終端設備的殼體；MD、卡匣式立體聲耳機、收音機等的攜帶用音響電子機器的殼體；及液晶 TV·監視器、電話、傳真機、手持式掃描器等的家庭用電化機器的殼體等。

【0054】 <金屬樹脂複合成形體的製造方法>

金屬樹脂複合成形體的製造方法之具體的步驟，係沒有特別限定，只要藉由透過上述嵌入金屬元件之經施行物理處理及/或化學處理之表面的至少一部分使嵌入金屬元件與樹脂元件密著，而使樹脂元件與嵌入金屬元件一體化即可。

【0055】 例如，可舉出將表面的至少一部分係經物理處理及/或化學處理之嵌入金屬元件配置在射出成形用模具內，將

在本發明所使用的樹脂組成物以熔融狀態射出至射出成形用模具內，來製造樹脂元件與嵌入金屬元件一體化而成之金屬樹脂複合成形體之方法。射出成形的條件係沒有特別限定，能夠按照聚芳硫醚樹脂的物性等而適當地設定較佳條件。又，使用轉移成形、壓縮成形等之方法，亦是形成樹脂元件與嵌入金屬元件一體化而成的金屬樹脂複合成形體之有效的方法。在該等方法，上述嵌入金屬元件之與上述樹脂元件接觸之表面的至少一部分、較佳是全部係經施行物理處理及/或化學處理。

【0056】 作為其他例子，可舉出預先使用射出成形法等通常的成形方法製造樹脂元件，藉由使經物理處理及/或化學處理之嵌入金屬元件與上述樹脂元件，在所需要的接合位置碰接且對碰接面供給熱量使樹脂元件碰接面附近熔融，而製造樹脂元件與嵌入金屬元件一體化而成的金屬樹脂複合成形體之方法。在該方法，上述嵌入金屬元件之與上述樹脂元件接觸之表面的至少一部分、較佳是全部係經施行物理處理及/或化學處理。

[實施例]

【0057】 以下，揭示實施例及比較例而具體地說明本發明，但是本發明係不被該等的實施例限定。

【0058】 將在實施例及比較例所使用的金屬樹脂複合成形體之示意圖顯示在第 1 圖。(a)為分解斜視圖，(b)為斜視圖，(c)為只顯示金屬部之圖。使用以下的方法製造該金屬樹脂複合成形體。又，圖中的尺寸單位為 mm。

【0059】 <樹脂組成物的調製>

將銅製的嵌入金屬元件之表面浸漬於下述組成的蝕刻液 A(水溶液) 1 分鐘而進行除去防鏽皮膜，其次，浸漬於下述組成的蝕刻液 B(水溶液) 5 分鐘而蝕刻金屬零件表面。

・蝕刻液 A(溫度 20℃)

過氧化氫 26g/L

硫酸 90g/L

・蝕刻液 B(溫度 25℃)

過氧化氫 80g/L

硫酸 90g/L

苯并三唑 5g/L

氯化鈉 0.2g/L

【0065】 [化學處理 2]

將鋁製的嵌入金屬元件之表面浸漬於下述組成的鹼脫脂液(水溶液) 5 分鐘而進行脫脂處理，其次，浸漬於下述組成的蝕刻液 A(水溶液) 3 分鐘而將金屬零件表面蝕刻。

・鹼脫脂液(溫度 40℃)

AS-165F(荏原 UDYLLITE 製)50ml/L

・蝕刻液 A(溫度 40℃)

OF-901(荏原 UDYLLITE 製)12g/L

氫氧化鎂 25g/L

【0066】 <金屬樹脂複合成形體的製造>

將經物理處理或化學處理之嵌入金屬元件配置在模具，進行將該嵌入金屬元件與在實施例 1~19 及比較例 1~12 的任一者所調製之由聚苯硫樹脂組成物所構成的樹脂元件一體化之一

體化步驟。成形條件係如以下。金屬樹脂複合成形體的形狀係如第 1 圖所顯示。

[成形條件]

成形機：

SODICK TR-40VR(縱型射出成形機)

缸筒溫度：320℃

模具溫度：150℃

射出速度：100mm/s

保壓力：49MPa×5 秒

【0067】 <金屬樹脂複合成形體的評價>

針對使用上述方法所製成之金屬樹脂複合成形體，係進行評價接合部分的接合強度、剝離後的破壞形態、及耐剝離性。具體的評價方法係如以下。

[接合強度]

將具有在第 1 圖所顯示的形狀之金屬樹脂複合成形體，如第 2 圖所顯示地配置在底座(治具)上，以 1mm/分鐘的速度移動治具而使樹脂元件在箭號方向從嵌入金屬元件推動剝下。測定樹脂元件從嵌入金屬元件剝落的時點之強度且設作接合強度。又，使用 TENSILON UTA-50kN((股)ORIENTEC 製)作為測定機器。將測定結果顯示在表 1~表 3(數值係在 3 次試驗之平均值)。

【0068】 [破壞形態]

在接合強度測定後，目視觀察接合部分區域且進行評價，破壞係在嵌入金屬元件與樹脂元件的界面產生者(界面剝離，

以×表示)，係在嵌入金屬元件或樹脂元件中產生者(凝集破壞，以○表示)。將結果顯示在表 1~表 3。

【0069】 [耐剝離性]

接合強度測定後，目視觀察接合部分區域的嵌入金屬元件側，而且求取附著在嵌入金屬元件上之樹脂元件所佔有的面積與接合部分區域全體的面積之比且依照以下的基準進行評價。將結果顯示在表 1~表 3。

◎：上述的比為 50%以上，耐剝離性係非常良好。

○：上述的比為 20%以上且小於 50%，耐剝離性良好。

△：上述的比大於 0%且小於 20%，耐剝離性不良。

×：上述的比為 0%，耐剝離性係非常不良。

【0070】 <其他的評價>

[表面外觀]

使用射出成形，在缸筒溫度 320℃、模具溫度 150℃ 下進行製造厚度 4mmt 的啞鈴狀體試驗片且目視觀察表面外觀。將依照以下的評價基準之表面外觀的結果顯示在表 1~表 3。評價係 5~3 的任一者時，能夠使用作為製品而沒有問題，評價為 2 或 1 時，不是能夠使用作為製品之水準。

5：無法觀察到源自所添加的無機填充劑之表面粗糙，無混濁而具有光澤。

4：無法觀察到源自所添加的無機填充劑之表面粗糙，能夠觀察到一部分少許混濁，但是整體而言係具有光澤。

3：無法觀察到源自所添加的無機填充劑之表面粗糙，但是能夠觀察到稍微混濁。

2：相對於全面，源自所添加的無機填充劑之表面粗糙係能夠觀察到 1/3 左右。

1：大致全面能夠觀察到源自所添加的無機填充劑之表面粗糙。

【0071】 [耐硫酸性]

將與在觀察表面外觀所使用者同樣地製成之啞鈴狀體試驗片，於室溫浸漬於 10 質量%硫酸水溶液 1 小時之後，進行水洗、乾燥且目視觀察表面外觀。將依照以下的評價基準進行評價之耐硫酸性的結果顯示在表 1~表 3。

◎：與浸漬前沒有變化。

○：表面稍微有混濁，但是表面平滑性係沒有變化。

x：能夠觀察到表面白化，同時表面平滑性變差。

【0072】 [脫模性]

在製造觀察表面外觀所使用的啞鈴狀體試驗片時，依照以下的基準進行評價從模具的脫模性。將結果顯示在表 1~表 3。

○：能夠沒有問題地從模具脫模，脫模性良好。

x：難以從模具脫模，脫模性不良。無法評價表面外觀。

【0073】 [表 1]

		實施例								
		1	2	3	4	5	6	7	8	9
PPS	A-1	—	—	—	—	—	—	100	100	100
	A-2	100	100	100	100	100	100	—	—	—
無機填充劑	B-1	58	—	—	—	—	—	—	—	—
	B-2	—	58	—	—	—	—	—	33	33
	B-3	—	—	58	—	58	33	171	78	—
	B-4	—	—	—	58	—	—	—	—	78
含環氧基的 烯烴系 共聚物	C-1	—	—	—	—	8	33	14	11	—
	C-2	8	8	8	8	—	—	—	—	11
環氧基 含有化合物	D-1	—	—	—	—	—	—	—	—	—
總組成物中之 環氧基 含量(質量%)	(C)成分中	0.29	0.29	0.29	0.29	0.07	0.30	0.13	0.10	0.40
	(D)成分中	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
	合計	0.29	0.29	0.29	0.29	0.07	0.30	0.13	0.10	0.40
表面處理方法		化 2	化 2	化 2	化 2	化 2	化 2	化 2	化 2	化 2
金屬樹脂接合	接合強度 (MPa)	30	29	33	31	33	31	25	29	30
	破壞形態	○	○	○	○	○	○	○	○	○
	耐剝離性	○	○	○	○	○	○	○	○	○
表面外觀		5	3	5	5	5	5	5	3	3
耐硫酸性		◎	◎	◎	◎	◎	○	◎	◎	◎
脫模性		○	○	○	○	○	○	○	○	○

【0074】 [表 2]

		實施例									
		10	11	12	13	14	15	16	17	18	19
PPS	A-1	—	—	100	—	—	—	—	—	—	—
	A-2	100	100	—	100	100	100	100	100	100	100
無機填充劑	B-1	58	—	—	—	—	—	—	—	—	58
	B-2	—	—	33	—	—	—	—	—	—	—
	B-3	—	58	78	56	56	60	61	63	61	—
含環氧基的 烯烴系 共聚物	C-1	—	8	11	3	5	9	9	9	—	—
	C-2	8	—	—	—	—	—	—	—	7	8
環氧基 含有化合物	D-1	—	—	—	—	—	3	5	7	7	—
總組成物中之 環氧基 含量(質量%)	(C)成分中	0.29	0.07	0.10	0.03	0.05	0.08	0.08	0.08	0.26	0.29
	(D)成分中	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.14	0.23	0.33	0.33	0.00
	合計	0.29	0.07	0.10	0.03	0.05	0.22	0.31	0.41	0.58	0.29
表面處理方法		化 1	化 1	化 1	化 2	化 2	化 2	化 1	化 2	化 2	物理
金屬樹脂接合	接合強度 (MPa)	27	28	26	30	33	35	33	37	38	25
	破壞形態	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
	耐剝離性	○	○	○	○	○	◎	◎	◎	◎	○
表面外觀		5	5	3	5	5	5	5	5	5	5
耐硫酸性		◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
脫模性		○	○	○	○	○	○	○	○	○	○

【0075】 [表 3]

		比較例											
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
PPS	A-2	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
無機填充劑	B-1	—	—	—	—	58	—	—	—	—	58	58	—
	B-3	—	—	—	—	—	—	—	58	39	—	—	—
	B-5	58	—	—	—	—	58	—	—	—	—	—	—
	B-6	—	58	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	B-7	—	—	58	58	—	—	58	—	—	—	—	58
含環氧基的 烯烴系 共聚物	C-1	11	11	11	—	—	11	—	1	49	—	—	11
	C-2	—	—	—	11	—	—	11	—	—	—	—	—
	C-3	—	—	—	—	8	—	—	—	—	—	—	—
環氧基 含有化合物	D-1	—	—	—	—	—	—	—	—	8	3	—	—
總組成物中之 環氧基 含量(質量%)	(C)成分中	0.10	0.10	0.10	0.40	0.00	0.10	0.40	0.01	0.45	0.00	0.00	0.10
	(D)成分中	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.37	0.14	0.00	0.00
	合計	0.10	0.10	0.10	0.40	0.00	0.10	0.40	0.01	0.82	0.14	0.00	0.10
表面處理方法		化 2	化 2	化 2	化 2	化 2	化 1	化 1	化 2	化 2	化 2	化 2	物理
金屬樹脂接合	接合強度 (MPa)	30	25	29	29	5	25	25	7	38	2	0	24
	破壞形態	○	○	○	○	×	○	○	×	○	×	×	○
	耐剝離性	○	○	○	○	△	○	○	△	◎	△	×	○
表面外觀		5	2	2	2	5	5	2	5	3	5	5	2
耐硫酸性		×	◎	◎	◎	◎	×	◎	◎	◎	◎	◎	◎
脫模性		○	○	○	○	○	○	○	○	×	○	○	○

【0076】 如表 1 及表 2 所顯示，將(B)球狀氧化矽及/或玻璃珠及(C)含環氧基的烯烴系共聚物併用且將各成分的含量調整成為預定範圍之實施例 1~19，能夠確認在金屬樹脂複合成形體之嵌入金屬元件與樹脂元件之間的接合強度強且具有優良的表面外觀及耐硫酸性。而且，將(C)含環氧基的烯烴系共聚物及(D)含環氧基的化合物併用且將該等各成分中之環氧基含

量調整成爲預定範圍之實施例 15~18 的金屬樹脂複合成形體，係在嵌入金屬元件與樹脂元件之間的接合強度強且具有優異的耐剝離性。

又，能夠確認只使用平均粒徑爲 $10\mu\text{m}$ 以下的球狀氧化矽及/或玻璃珠時，表面外觀較優異。

【0077】 相對於此，如表 3 所顯示，相較於實施例 1~19，使用碳酸鈣代替(B)球狀氧化矽及/或玻璃珠之比較例 1 及 6 係耐硫酸性較差。又，相較於實施例 1~19，使用玻璃碎片或玻璃纖維代替(B)球狀氧化矽及/或玻璃珠之比較例 2~4 及 7，係表面外觀較差。

又，雖然將(C)含環氧基的烯烴系共聚物及(D)含環氧基的化合物併用，但是該等各成分中之環氧基含量的合計爲大於總組成物中的 0.80 質量%之比較例 9，係脫模性差。

【符號說明】

無。

發明摘要

※ 申請案號：103116954

※ 申請日：103/05/14

※IPC 分類：

B32B 15/08 (2006.01)
B32B 7/04 (2006.01)
C08L 81/02 (2006.01)
C08L 57/10 (2006.01)
C08L 63/00 (2006.01)
C08K 7/18 (2006.01)
B29C 45/00 (2006.01)
B29C 45/14 (2006.01)
B29K 63/00 (2006.01)
B29K 81/00 (2006.01)
B29K 105/22 (2006.01)

【發明名稱】(中文/英文)

金屬樹脂複合成形體及其製造方法

【中文】

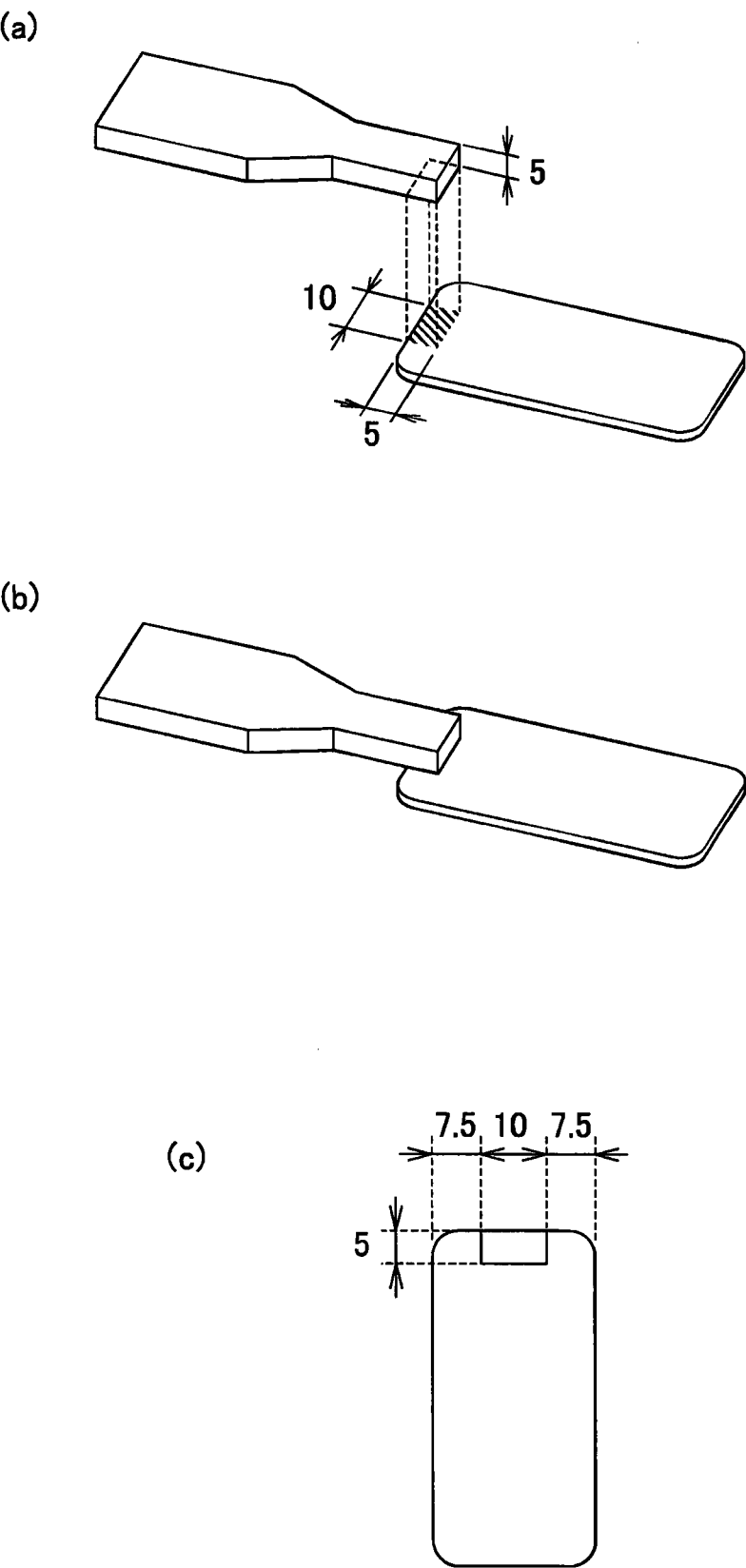
〔課題〕 提供一種嵌入金屬元件與樹脂元件的接合強度強、表面外觀良好且對酸、鹼等具有優異的耐藥品性之金屬樹脂複合成形體及其製造方法。

〔解決手段〕 提供一種金屬樹脂複合成形體，其包括嵌入金屬元件及樹脂元件，其中該樹脂元件係由樹脂組成物所構成且被嵌件成形在前述嵌入金屬元件上；前述嵌入金屬元件之與前述樹脂元件接觸之表面的至少一部分係經施行物理處理及/或化學處理。前述樹脂組成物係含有：(A)聚芳硫醚(polyarylene sulfide)樹脂 100 質量份；(B) 無機填充劑 10~250 質量份，其係非纖維狀，平均粒徑為 30 μ m 以下且選自由球狀氧化矽及玻璃珠所組成群組；及(C)環氧化合物 3~55 質量份。

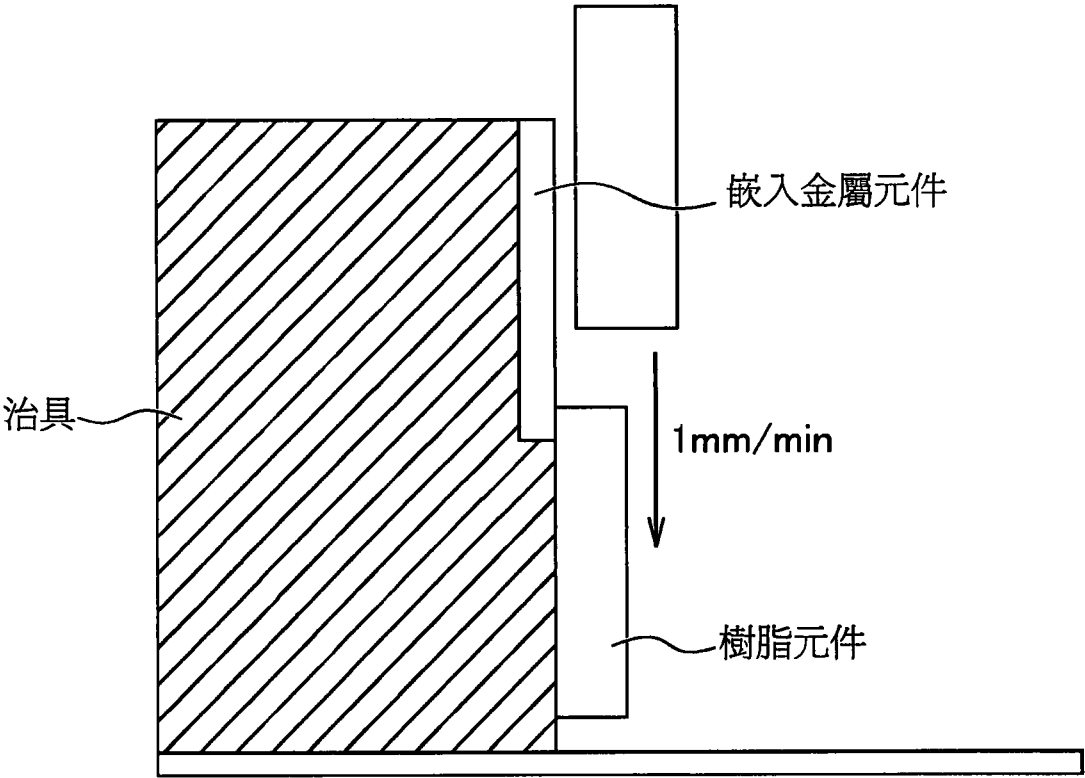
【英文】

無。

圖式



第 1 圖



第 2 圖

【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。

將下述的原料成分乾式摻合之後，投入缸筒溫度 320℃ 的雙軸擠製機且進行熔融混煉，而得到經丸粒化之熱可塑性樹脂組成物。各成分的調配量(質量份)係如表 1~表 3 所顯示。

·聚苯硫樹脂

A-1：(股)KUREHA 製、Fortron KPS W202A(製品名)、熔融黏度：20Pa·s(剪切速度：1216sec⁻¹、溫度：310℃)

A-2：(股)KUREHA 製、Fortron KPS W214A(製品名)、熔融黏度：130Pa·s(剪切速度：1216sec⁻¹、溫度：310℃)

·無機填充劑

B-1：玻璃珠(Potters-Ballotini(股)製、EMB-10(平均粒徑：5μm))

B-2：玻璃珠(Potters-Ballotini(股)製、GL-BS(平均粒徑：20μm))

B-3：球狀氧化矽((股)ADMATECHS 製、SO-C2(平均粒徑：0.55μm))

B-4：球狀氧化矽((股)ADMATECHS 製、SO-C6(平均粒徑：2.2μm))

B-5：碳酸鈣(白石工業(股)製、Brilliant-1500(平均粒徑 50%d：0.7μm))

B-6：玻璃碎片(日本板硝子(股)製、REFG-401(平均粒徑：300μm、平均厚度：5μm))

B-7：玻璃纖維(OWENS CORNING 製造(股)製、03DE-FT798(纖維直徑 6μm、纖維長度 3mm))

·含環氧基的烯烴系共聚物

C-1：乙烯-甲基丙烯酸環氧丙酯-丙烯酸甲酯共聚物(住友化學(股)製、Bondfast7L)

C-2：乙烯-甲基丙烯酸環氧丙酯共聚物(住友化學(股)製、BondfastE)

C-3：乙烯丙烯酸乙酯共聚物(日本 UNICAR(股)製、NUC-6570)
·含環氧基的化合物

D-1：雙酚 A 型環氧樹脂(三菱化學(股)製、jER(舊「EPICOAT」，任一者均是註冊商標)1004K(製品名))、環氧基含量：4.6 質量%、環氧當量 925、分子量：1650

又，熔融黏度的測定方法係如以下。

【0060】 [熔融黏度]

使用東洋精機(股)製流動特性儀(CAPIROGRAPH)且使用 1mm ϕ x 20mm L/平模(Flat die)作為毛細管，來測定在料筒溫度 310℃、剪切速度 1216/秒下的熔融黏度。

【0061】 <嵌入金屬元件的物理處理或化學處理>

【0062】 使用由銅(C-1100P、厚度 2mm)或鋁(A5052、厚度 2mm)所構成且如下述進行而經施行物理處理或化學處理之板狀物作為嵌入金屬元件。該等板狀的嵌入金屬元件係在如第 1 圖(a)的斜線所顯示之部分具有接合面。又，表 1~表 3 中，「物理」、「化 1」、及「化 2」係各自指下述的物理處理、化學處理 1、及化學處理 2。

【0063】 [物理處理]

使用市售的液體搪磨(honing)裝置，將粒度為 #1000(中心粒徑：14.5~18 μ m)的氧化鋁研磨劑在濃度 20%、錶壓 0.4Mpa 的條件下對鋁製的嵌入金屬元件進行吹附、粗化處理。

【0064】 [化學處理 1]

公告本**申請專利範圍**

1. 一種金屬樹脂複合成形體，包括嵌入金屬元件及樹脂元件，其中該樹脂元件係由樹脂組成物所構成且被嵌件成形在前述嵌入金屬元件上；前述嵌入金屬元件之與前述樹脂元件接觸之表面的至少一部分係經施行物理處理及/或化學處理；
前述樹脂組成物係含有：(A)聚芳硫醚樹脂 100 質量份；(B)無機填充劑 10~111 質量份，其係非纖維狀，平均粒徑為 30 μ m 以下且選自由球狀氧化矽及玻璃珠所組成群組；及(C)含環氧基的烯烴系共聚物 3~55 質量份；
其中前述(C)含環氧基的烯烴系共聚物係含有源自(甲基)丙烯酸酯的構成單元；而且
前述樹脂組成物中之環氧基含量係 0.01~0.80 質量%。
2. 如申請專利範圍第 1 項所述之金屬樹脂複合成形體，其中前述(C)含環氧基的烯烴系共聚物係含有源自 α -烯烴的構成單元、及源自 α, β -不飽和酸的環氧丙酯的構成單元之烯烴系共聚物。
3. 如申請專利範圍第 1 或 2 項所述之金屬樹脂複合成形體，其中進一步含有(D)含環氧基的化合物。
4. 如申請專利範圍第 1 或 2 項所述之金屬樹脂複合成形體，其中在包括殼體之電機電子(electrical and electronic)機器，具有構成前述殼體的至少一部分且在前述電機電子機器的外部露出之部分。
5. 一種金屬樹脂複合成形體之製造方法，係具有一體化步驟之金屬樹脂複合成形體之製造方法，

該一體化步驟係在射出成形用模具內，配置表面的至少一部分經施行物理處理及/或化學處理之嵌入金屬元件，且將樹脂組成物在熔融狀態下射出至前述射出成形用模具內而將前述嵌入金屬元件與樹脂元件一體化，其中

前述樹脂組成物係含有：(A)聚芳硫醚樹脂 100 質量份；(B)無機填充劑 10~111 質量份，其係非纖維狀，平均粒徑為 30 μ m 以下且選自由球狀氧化矽及玻璃珠所組成群組；及(C)含環氧基的烯烴系共聚物 3~55 質量份；

其中前述(C)含環氧基的烯烴系共聚物係含有源自(甲基)丙烯酸酯的構成單元；而且

前述樹脂組成物中之環氧基含量係 0.01~0.80 質量%。

6. 如申請專利範圍第 5 項所述之金屬樹脂複合成形體之製造方法，其中前述(C)含環氧基的烯烴系共聚物係含有由源自 α -烯烴的構成單元、及源自 α, β -不飽和酸的環氧丙酯的構成單元之烯烴系共聚物。
7. 如申請專利範圍第 5 或 6 項所述之金屬樹脂複合成形體之製造方法，其中進一步含有(D)含環氧基的化合物。