

406106

公告本

971-3761

申請日期	1997.03.26	
案號	86103847	
類別	108L 2%, 6%	Int. Cl ⁶

A4
C4

(以上各欄由本局填註)

發明專利說明書

一、發明 名稱	中 文	樹脂組成物
	英 文	A RESIN COMPOSITION
二、發明 人	姓 名	1. 鈴木康浩 2. 小泉智義 3. 後藤 仁 4. 白井 智
	國 籍	1-4 皆屬日本
	住、居所	1. 福島縣いわき市錦町落合16 吳羽化學工業株式會社 錦總合研究所內 2-4 同上所
三、申請人	姓 名 (名稱)	吳羽化學工業股份有限公司 (吳羽化學工業株式會社)
	國 籍	日本
	住、居所 (事務所)	東京都中央區日本橋堀留町壹丁目九番拾壹號
	代 表 人 姓 名	兒玉俊一郎

裝

訂

線

406106

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大 類：
I P C 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 3月 26日 特 願 平 8-96238號 (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

406106

五、發明說明(1)

技術範疇

本發明係關於聚硫化芳撐樹脂組成物，尤指耐衝擊性和成型性優良的聚硫化芳撐樹脂組成物。本發明聚硫化芳撐樹脂組成物，特別是藉由壓出成型者，可得耐衝擊性優，且殘留應力極小的管狀、板狀、棒狀等各種形狀之壓出成型物。

背景技術

以聚硫化芳撐(以下簡稱PPS)為代表之聚硫化芳撐(以下簡稱PAS)，係耐熱性、耐藥品性、難燃性、電氣特性、尺寸安定性等均優的工程塑膠，廣泛使用於電氣組件或汽車零件。可是一般PAS的耐衝擊性劣，且成型性未達必要的充分，為其缺點，用途有限。

向來為改善PAS耐衝擊性，有各種提案。例如，已知在PAS混配玻纖或碳纖等纖維狀充填劑時，可提高耐衝擊性、剛性、韌性、尺寸安定性等。可是，PAS混配纖維狀充填劑時，仍然脆弱，未得充分的物性改良效果。而混配大量纖維狀充填劑的樹脂組成物，用途或成型法受到限制。

於此，提議在PAS混配 α -烯烴與 α, β -不飽和的縮水甘油酯組成之烯烴系共聚物所得樹脂組成物(日本專利特開昭59-152953, 59-189166和62-1532345號公報)。可是在PAS混配烯烴系共聚物時，熔體黏度會上升，成型性下降，難以獲得充分的耐衝擊性改善效果。

另提議於PPS混配含環氧基的烯烴系聚合物和彈性體

五、發明說明(2)

之樹脂組成物(特公平4-24388號公報)。可是此樹脂組成物可改善熔體流動性，但因混配有彈性體，混合時的大為膨脹，無法形成安定的股料，很難粒化。可是，此樹脂組成物基於上述同樣理由，難以獲得管狀成型物等壓出成型物。

另外提議一種熱塑性樹脂組成物，由(I)聚烯烴99~1重量%，(II)PAS 1~99重量%，以及相對於(I)+(II)100重量%的(III)烯烴(共)聚合物5~95重量%，和至少一種乙烯基單體所得乙烯系(共)聚合物95~5重量%所構成，另方面混配(共)聚合物形成粒徑0.001~10 μ M分散層的多層構造熱塑性樹脂0.1~100重量%(特開平2-129245號公報)。該公報揭示的多層構造熱塑性樹脂(III)，係由至少一種乙烯基單體和自由基(共)聚合性有機過氧化物，於烯烴(共)聚合物粒子中共聚合而得接枝化母質(A)1~100重量%，和烯烴(共)聚合物(B)0~99重量%，以及乙烯系(共)聚合物(C)0~99重量%組成的混合物或接枝化物，另記載烯烴(共)聚合物係使用含環氧基的乙烯共聚物。可是該公報所載樹脂組成物，其中聚烯烴(I)係使用低密度聚乙烯或聚丙烯等，惟混配此等聚烯烴之樹脂組成物，耐衝擊性的改善效果不足，且對管狀成型物等壓出成型物而言，有殘餘應力大、容易發生變形或應力龜裂等問題。

發明概述

本發明之目的，在於提供耐衝擊性和成型性優良的

五、發明說明 (3)

406106

PAS 樹脂組成物。

本發明另一目的，在於提供 PAS 樹脂組成物，藉由壓出成型，可得到有優良耐衝擊性，同時殘留應力極小的管狀、板狀、棒狀等各種壓出成型物。

本發明人等為克服前述習知技術問題點而潛心研究結果，發現 (i) 於 PAS 按特定比例混配聚烯烴和含環氧基的 α -烯烴系共聚物，同時 (ii) 聚烯烴使用選自直鏈低密度聚乙烯和超低密度聚乙烯之至少一種聚乙烯系樹脂，(iii) 令聚烯烴與含環氧基的 α -烯烴系共聚物之混配比率，在選擇範圍內，再者 (IV) 在 PAS 基質中的聚烯烴和含環氧基之 α -烯烴系共聚物，分別以分散狀態在特定選擇的平均粒徑範圍內，可得耐衝擊性和成型性優良的樹脂組成物。使用此樹脂組成物的管狀成型物等壓出成型物，具有殘留應力極小的特徵本發明即基於此等知識而告完成。

如此，按照本發明，提供一種樹脂組成物，包括聚硫化芳撐 (a)、聚烯烴 (b)、和含環氧基的 α -烯烴系共聚物 (c)，其特徵為，

(1) 各成份的混配比例為，聚硫化芳撐 (a) 佔 98~50 質量%，聚烯烴 (b) 佔 1~25 質量%，而含環氧基的 α -烯烴系共聚物 (c) 佔 1~25 質量%，

(2) 聚烯烴 (b) 係選自直鏈低密度聚乙烯和超低密度聚乙烯之至少一種聚乙烯系樹脂，

(3) 聚烯烴 (b) 與含環氧基的 α -烯烴系共聚物 (c) 之

五、發明說明 (4)

質量比 (b:c) 為 1:5~5:1, 而

(4) 聚烯烴 (b) 和含環氧基的 α -烯烴系共聚物 (c), 分別以平均粒徑 0.10~3.00, μm 微粒分散於聚硫化芳撐 (a) 中。

實施發明之最佳具體例

聚硫化芳撐 (PAS)

本發明所用 PAS 係以式 $[-\text{Ar}-\text{S}-]$ (其中 Ar 為芳撐基) 所示硫化芳撐重複單元為主要構成要素之芳香族聚合物。重複單元 $[-\text{Ar}-\text{S}-]$ 1 莫耳 (基本莫耳) 之定義為, 本發明所用 PAS 含此重複單元通常在 50 莫耳% 以上, 以 70 莫耳% 以上為佳, 而以 90 莫耳% 以上更好。

芳撐基有例如對苯撐基、間苯撐基、取代苯撐基 (取代基以 C_1-C_6 烷基和苯基為佳)、p,p'-二苯撐砜、p,p'-聯苯撐基、p,p'-二苯撐胺基、p,p'-二苯撐醚基、萘撐基等, PAS 以使用具有主要同樣芳撐基的聚合物為佳, 惟從加工性或耐熱性觀點言, 可用含二種以上芳撐基的共聚物。

在此等 PAS 當中, 以對硫化苯撐重複單元為主要構成要件的 PPS 最好, 加工性優良, 且在工業上容易取得。共聚物較佳具體例為, 具有對硫化苯撐重複單元和間硫化苯撐重複單元之無規或嵌段共聚物, 具有硫化苯撐重複單元和硫化苯撐酮重複單元之無規或嵌段共聚物, 具有硫化苯撐和硫化芳撐重複單元之無規或嵌段共聚物。此等 PAS 以結晶性聚合物為佳。又從熔體特性、韌性、

五、發明說明(5)

及強度觀點言，PAS 以直鏈聚合物為佳。

本發明所用 PAS 可由鹼金屬硫化物和二鹵芳香族化合物在極性溶劑中進行聚合反應的已知方製得（例如特公昭 45-3368，52-12240，63-33775 號公報）。鹼金屬硫化物有例如硫化鈉、硫化鉀、硫化鋰、硫化銣、硫化銻、及其混合物等，鹼金屬硫化物可按常法在反應器中原位生成。鹼金屬硫化物可由水合物、水性混合物或無水物的型式。由於微量存在的鹼金屬氫硫化物或鹼金屬硫代硫酸鹽會與鹼金屬硫化物反應，故宜添加少量鹼金屬氫氧化物，以除去此等雜質，或轉化為硫化物。其中以硫化鈉最低廉，在工業上較佳。

二鹵芳香族化合物有例如對二氯苯、間二氯苯、鄰二氯苯、對二溴苯等二鹵苯；2,5-二氯甲苯、1-甲氧基-2,5-二氯苯等取代二鹵苯；1,4-二氯苯等二鹵苯；4,4'-二氯聯苯、3,3'-二氯聯苯等二鹵聯苯；3,5-二氯苯甲酸等二鹵苯甲酸，4,4'-二氯二苯甲酮等二鹵二苯甲酮；4,4'-二氯二苯酮、3,3'-二氯二苯醚等二鹵苯醚等。凡此可分別單獨或二種以上組合使用。其中就經濟性或物性等觀點，以二鹵苯為佳，而以對二氯苯等對二鹵苯更好。尤其是二鹵芳香族化合物含對二鹵苯以 70 重量% 以上為佳，80 重量% 以上更好，而以 90 重量% 以上尤佳。

為了在 PAS 導入若干支鏈構造或交聯構造，可併用少量每分子具有三個以上鹵素取代基之多鹵芳族化合物。此等多鹵芳族化合物有例如 1,2,3-三氯苯、1,2,3-三溴

五、發明說明(6)

苯、1,2,4-三氯苯、1,2,4-三溴苯、1,3,5-三氯苯、1,3,5-三溴苯、1,3-二氯-5-溴苯等三鹵苯、三鹵苯之烷基取代物，及其混合物。其中由經濟性、反應性、物性等觀點以1,2,4-三氯苯、1,3,5-三氯苯、以及1,2,3-三氯苯為佳。

PAS之製法以在含水的極性有機溶劑中，令鹼性金屬硫化物和二鹵芳香族化合物，所需要於多鹵芳香族化合物存下，加以聚縮合反應為佳。水有例如鹼金屬硫化物之水合物、加成水、反應水、鹼金屬硫化物水溶液的水等。有機醯胺溶劑有例如N,N-二甲基甲醯胺、N,N-二甲基乙醯胺等醯胺化合物；N-甲基-ε-己內醯胺、N-甲基-2-吡咯烷酮、N-環己基-2-吡咯烷酮等N-烷有機過氧化物吡咯烷酮化合物或N-環烷基吡咯烷酮化合物；1,3-二烷基-2-咪唑二酮等N,N-二烷基咪唑二酮化合物；四甲基尿素等四烷基尿素化合物；六甲基磷酸三醯胺等六烷基磷酸三醯胺化合物等。此等有機醯胺溶劑可分別單獨使用，或二種以上組合使用。在此等有機醯胺溶劑中，就經濟性或安定性觀點言，以NMP為佳。

充填二鹵芳香族化合物莫耳數a和充填鹼金屬硫化物莫耳數b之比 a/b ，調節到通常為0.98~1.10，以0.95~1.08為佳，而以1.00~1.06範圍更佳。使用每分子具有三個以上鹵素取代基的多鹵芳香族化合物時，相對於充填的鹼金屬硫化物1莫耳，調至0.0002~0.01莫耳，較佳是0.0004~0.009莫耳，更好是0.0005~0.007莫耳。

五、發明說明(7)

範圍內，添加於聚合反應系。於聚合反應系加多鹵芳香族化合物，可在聚合初期或後期為之，初期雖然少量添加，效果卻更顯著。

聚合方法無特別限定，可採用習知方法，具體而言，例如在充填鹼金屬硫化物每1莫耳，有0.5~2.4莫耳的水存在狀態，於150~235℃溫度進行反應，其次，就充填鹼金屬硫化物每1莫耳，在2.5~7.0莫耳水的反應系內存在下，升溫至245℃~280℃溫度繼續反應。極性溶劑的使用量為每1莫耳鹼金屬硫化物通常0.2~2.0公斤，以0.3~1.0公斤為佳。

本發明所用PAS以直鏈狀聚合物為佳，惟二鹵芳香族化合物可少量併用每一分子具有三個以上二鹵素取代基的多鹵芳香族化合物，多少導入支鏈構造或交聯構造的PAS亦可使用。惟低分子量PAS在空氣存在下氧化交聯(熟化)所得交聯型聚合物，除加工性不良外，強度和韌性亦低，故不宜。

本發明所用PAS為在310℃，剪斷速度1200/秒測得熔體黏度，通常為1~2000Pa·s，較佳是10~500Pa·s範圍內之聚合物。PAS熔體黏度太低時，耐衝擊性等強度低，反之，熔體太高時，例如壓出成型性不佳，均非所宜。

聚烯烴

本發明聚烯烴使用選自直鏈狀低~聚乙烯(以下簡稱LLDPE)和超低密度聚乙烯(以下簡稱VLDPE)之至少一

五、發明說明(8)

種聚乙炔系樹脂。

本發明所用LLDPE係含乙炔單元，和 C_3-C_{18} ，較佳為 C_4-C_{12} ，更好是 C_6-C_{10} α -烯烴單元之實質上直鏈共聚物。LLDPE中的 α -烯烴單元含量，通常為1~20質量%，以2~17質量%為佳，而以3~15質量%尤佳。LLDPE密度在 $0.880g/cm^3$ 以上，以 $0.885\sim 0.950g/cm^3$ 為佳，而以 $0.890\sim 0.930g/cm^3$ 範圍更好。LLDPE和VLDPE的密度有部份重複，其界限不一定清楚，惟本發明中，直鏈且低密度的乙炔- α -烯烴共聚物均稱為LLDPE。

LLDPE具體例有例如乙炔/丙烯共聚物，乙炔/1-丁烯共聚物，乙炔/1-己烯共聚物，乙炔/4-甲基-1-戊烯共聚物，乙炔/1-辛烯共聚物等。LLDPE不但可用齊格勒型觸媒或菲律賓型觸媒等多面觸媒製造，亦可適用二絡金屬觸媒等單面觸媒製造。使用多面觸媒製造的LLDPE具體例，以商品名表示，有例如Unipole(ユニポール)(UCC公司)。Dowrex(ダウレックス)(陶氏化學公司)，Scrane(スクレア-)(杜邦加拿大公司)，三菱Polyethy-LL(ポリエチ)LL(三菱化學公司)，Marex(マレックス)(菲利浦公司)，Ultzex(ウルトゼックス)(三井石油化學)等。使用單面觸媒製造的LLDPE具體例，以商品名表示，有例如AFFINITX(陶化化學公司)，EXACT(Exxon公司)等。

LLDPE的構造較習知低密度聚乙炔更具直鏈性，較高密度聚乙炔具更多支鏈，主鏈到處多有基於 α -烯烴的

五、發明說明(9)

烷基側鏈構成的短支鏈。LLDPE 包含本質上不改變上述構造下可加以改質者，例如接枝共聚物等。

本發明所用 VLDPE 為密度在 0.880g/cm^3 以上到 0.915g/cm^3 以下，較好是 $0.885\sim 0.915\text{g/cm}^3$ 的乙烯，和 $\text{C}_3\sim\text{C}_{12}$ α -烯烴之共聚物。

如前所述，LLDPE 和 VLDPE 的密度有部份重疊，不必截然有別，惟本發明明知具有直鏈性(線性)者均稱 LLDPE。LLDPE 和 VLDPE 的密度下限，在 0.880g/cm^3 以上，而以 0.885g/cm^3 以上為佳。密度是根據 ASTM D-1238 測定之值。

密度在 0.880g/cm^3 以下的乙烯- α -烯烴共聚物，為一般彈性體。在本發明樹脂組成物中，LLDPE 或 VLDPE 若改用此彈性體，配料時的膨潤大，無法形成安定的股料，難以製粒。惟含有此等彈性體之樹脂組成物，難以獲得管狀成型物等壓出成型物。

LLDPE 和 VLDPE 可分別單獨或二種以上組合使用。其中就耐衝擊性、成型性，及殘留應力方面言，以 LLDPE 尤佳。

含環氧基 α -烯烴系共聚物

本發明所用含 α -烯烴系共聚物，係至少含來自 α -烯烴的重複單元(即 α -烯烴單元)，和來自含縮水甘油基的不飽和單體的重複單元(即含縮水甘油基的不飽和單體單元)之共聚物。含環氧基的 α -烯烴系共聚物代表例，有 (1) α -烯烴和含縮水甘油基的不飽和單體之共聚物

五、發明說明(10)

，和(2)在 α -烯烴和含縮水甘油基的不飽和單體之共聚物存在下，至少一種乙烯系不飽和單體和自由基(共)聚合性有機過氧化物聚合所得接枝母質。該接枝母質可在與其他成份熔混時接枝，亦可預先溶混接枝，再與其他成份混拌。

α -烯烴與含縮水甘油基的不飽和單體之共聚物，除二者的二元共聚物外，亦包含 α -烯烴和縮水甘油基的不飽和單體及其他不飽和單體單元之三元以上多元共聚物。共聚物中的 α -烯烴單元通常佔50~99.5質量%，以60~99質量%為佳，而以70~98質量%更好。含縮水甘油基的不飽和單體單元，通常佔0.5~50質量%，以1~40質量%為佳，而以2~30質量%更好。其他不飽和單體單元通常為0~40質量%，以0~30質量%為佳，而以0~20質量%更好。含環氧基的 α -烯烴系共聚物的聚合形態，凡無規共聚物、嵌段共聚物、接枝共聚物等均可。

α -烯烴系單體有乙烯、丙烯、1-丁烯、1-己烯、1-辛烯、4-甲基-1-戊烯等，其中以使用乙烯最好。

含縮水甘油基的不飽和單體，有例如丙烯酸縮水甘油酯、異丁烯酸縮水甘油酯、衣康酸單縮水甘油醚、丁烯三羧酸二縮水甘油酯、丁烯三羧酸三縮水甘油酯、馬來酸單縮水甘油酯、丁烯酸單縮水甘油酯、富馬酸單縮水甘油酯等縮水甘油酯類；乙烯基縮水甘油醚、烯丙基縮水甘油醚、縮水甘油基氧乙基乙烯醚、苯乙烯-對縮水

五、發明說明 (11)

甘油醚等縮水甘油醚類；對縮水甘油基苯乙烯等。其中較佳者為 α , β -不飽和酸的縮水甘油酯。

其他不飽和單體有例如乙酸乙烯酯、丙酸乙烯酸等乙烯酯單體、乙烯醚單體、(甲基)丙烯腈、苯乙烯， α -甲基苯乙烯等乙烯基芳香族單體，一氧化碳等。

α -烯烴與含縮水甘油基的不飽和單體之共聚物具體例，有乙烯／異丁烯酸縮水甘油酯共聚物、乙烯／乙酸乙烯酯／異丁烯酸縮水甘油酯共聚物、乙烯／丙烯酸乙酯／異丁烯酸縮水甘油酯共聚物、乙烯／丙烯酸縮水甘油酯共聚物、乙烯／乙酸乙烯酯／丙烯酸縮水甘油酯共聚物等。其中較佳者為乙烯／異丁烯酸縮水甘油酯共聚物、乙烯／丙烯酸／異丁烯酸縮水甘油酯共聚物，以及乙烯／乙烯／乙酸乙烯酯／異丁烯酸縮水甘油酯共聚物。此等共聚物分別單獨或二種以上組合使用。

上述 α -烯烴和含縮水甘油基的不飽和單體之共聚物，可由含 α -烯烴 50~99.5質量%，含縮水甘油基的不飽和單體 0.5~50質量%，及其他不飽和單體 0~40質量%之單體混合物，在佔全部單體總質量的 0.001~1質量%的自由基聚合引發劑存在下，高壓聚合而得。聚合壓力通常為 5~40kPa，以 10~35kPa 為佳。反應溫度通常 50~400℃，以 100~350℃ 為佳。在此等反應壓力和反應溫度條件於鏈轉移劑和必要時的助劑存在下，利用該單體混合物同時，或階段接觸、聚合之方法，進行聚合反應。

五、發明說明(12)

自由基聚合引發劑有過氧化物、氫過氧化物、偶氮化合物、氧化胺化合物、氧等汽用引發劑。鏈轉移劑有甲烷、乙烷、丁烷、異丁烷、正己烷、正庚烷、氯仿等飽和脂族烴，及其鹵素取代烴；甲醇、乙醇、丙醇、異丙醇等飽和脂族醇；丙酮、丁酮等飽和脂族碳醯化合物；甲苯、二乙苯、二甲苯等芳族化合物；氫等。 α -烯烴非丙烯或1-丁烯時，亦可做為鏈轉移劑使用。

在 α -烯烴和含縮水甘油基的不飽和單體之共聚物存在下，由至少一種乙烯系不飽和單體和自由基(共)聚合性有機過氧化物聚合所得接枝化母質，已知有例如特開平1-131220、1-138214和2-129245號公報所揭示者。此接枝化母質加熱至 $100\sim 300^{\circ}\text{C}$ ，即容易接枝化。接枝化意指乙烯系不飽和單體的聚合物，對 α -烯烴和含縮水甘油基的不飽和單體之共聚物接化反應、交聯反應、及此等混合反應，加以化學性結合。化學性結合是例如利用可溶解其一(共)聚合物的溶劑，無法將二(共)聚合物加以分離。 α -烯烴和含縮水甘油基的不飽和單體之共聚物，和前述同樣，與其他不飽和單體共聚之三元以上共聚物，亦包含在內。

此等接枝化母質中， α -烯烴與含縮水甘油基的不飽和單體之共聚物比例，通常為 $5\sim 95$ 質量%，以 $20\sim 90$ 質量%為佳。此共聚物比例太少時，與PAS的相溶性不夠，反之，太多時，樹脂組成物的耐熱性或尺寸安定性降低。含縮水甘油基的不飽和單體單元佔此共聚物中之

五、發明說明(13)

比，例通常為0.5~50質量%，以1~40質量%為佳，而以2~30質量%更好。在乙烯單體的聚合物中有含縮水甘油基的不飽和單體單元時，可視共聚合比例，縮減上述共聚物中含縮水甘油基的不飽和單體單元比例。

製造接枝化母質所用乙烯系不飽和單體有例如苯乙烯、 α -甲基苯乙烯、氯苯乙烯等乙烯基芳香族單體；(甲基)丙烯酸 C_1-C_7 烷基酯等(甲基)丙烯酸酯單體； α ， β -不飽和酸的縮水甘油酯單體；(甲基)丙烯腈等不飽和腈單體；乙酸乙烯酯等乙烯酯單體等。其中以 α ， β -不飽和酸的縮水甘油酯單體、乙烯基芳香族單體、及不飽和腈單體任一做為主成份較佳。又，(甲基)丙烯酸表示丙烯酸和甲基丙烯酸(即，異丁烯酸)。

乙烯系不飽和單體的聚合物，對 α -烯烴與含縮水甘油基的不飽和單體之共聚物，進行接枝化反應、交聯反應，及其混合反應，而化學性結合的含環氧基之 α -烯烴系共聚物，可利用鏈移動法，電離法放射線照射法等共聚合而得。惟最好是接枝化母質，在 α -烯烴和含縮水甘油基的不飽和單體之共聚物存在下，使用第三丁基過氧異丁烯醯氧乙基碳酸酯等自由基(共)聚合性有機過氧化物，將至少一種乙烯系不飽和單體(共)聚合而得。

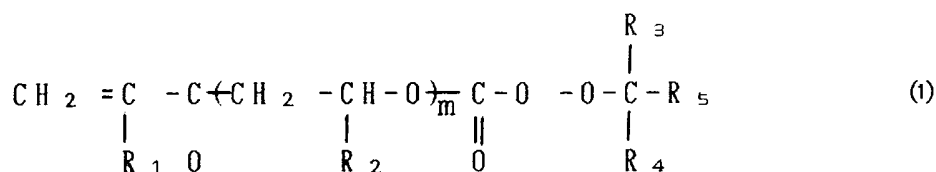
更具體言之，製造接枝化母質，是將 α -烯烴和含縮水甘油基不飽和單體之共聚物100質量份，懸浮於水中，調製成水性懸浮液。另方面，於至少一種乙烯系不飽和單體5~300質量份，相對於乙烯系不飽和單體100

五、發明說明(14)

質量份，將至少一種自由基(共)聚合性有機過氧化物 0.1~10 質量份，以及為得半衰期 10 小時，分解溫度在 40~90℃ 的自由基聚合引發劑，佔乙烯系不飽和單體和自由基(共)聚合性有機過氧化物合計 100 質量份的 0.01~5 質量份，加以溶解，調製成溶液。將該溶液添加於前述水性懸浮液，在自由基聚合引發劑不會實質上發生分解的條件加熱，將乙烯系不飽和單體、自由基(共)聚合性有機過氧化物，以及自由基聚合引發劑，飽浸於 α -烯烴和含縮水甘油基的不飽和單體之共聚物後，提高水性懸浮液的溫度，令乙烯系不飽和單體和自由基(共)聚合性有機過氧化物，在該共聚物中共聚合，製成接枝化母質。

此接枝化母質，在 100~300℃ 熔融下混練時，可得 α -烯烴和含縮水甘油基的不飽和單體之共聚物，與乙烯系不飽和單體的聚合物，進行化學性結合構造之含環氧基的 α -烯烴系共聚物。接枝化母質亦可在 PAS 與其他成份熔混時接枝化。最好是先調製 α -烯烴與含縮水甘油基的不飽和單體之共聚物，以及乙烯系不飽和單體之聚合物，進行化學性結合構成之含環氧基的 α -烯烴系共聚物，再與 PAS 及其他成份熔混。

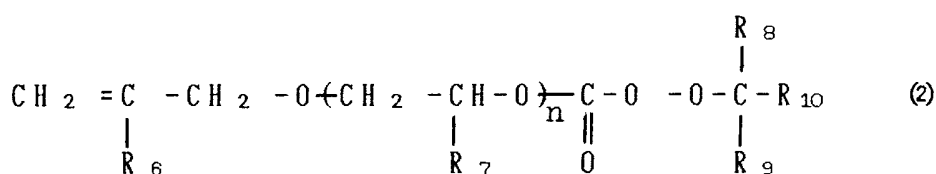
接枝化母質製造中所用自由基(共)聚合性有機過氧化物，有下式所示化合物：



五、發明說明(15)

式中 R_1 為氫原子或 $C_1 - C_2$ 烷基， R_2 為氫原子或甲基， R_3 和 R_4 分別為 $C_1 - C_4$ 烷基， R_5 為 $C_1 - C_{12}$ 烷基，苯基，烷基取代之苯基，或 $C_3 - C_{12}$ 環烷基， m 為 1 或 2。

而自由基(共)聚合性有機過氧化物之其他例，有下式(2)所示化合物：



式中 R_6 為氫或 $C_1 - C_4$ 烷基， R_7 為氫或甲基， R_8 和 R_9 分別為 $C_1 - C_4$ 烷基， R_{10} 為 $C_1 - C_{12}$ 烷基，苯基，烷基取代之苯基，或 $C_3 - C_{12}$ 環烷基， n 為 0，1 或 2。

述式(1)所示自由基(共)聚合性有機過氧化物，有例如第三丁基過氧(甲基)丙烯醯氧(乙氧)乙基碳酸酯、第三戊基過氧(甲基)丙烯醯氧(乙氧基)乙基碳酸酯、第三己基過氧(甲基)丙烯醯氧(乙氧基)乙基碳酸酯、異丙苯基過氧(甲基)丙烯醯氧(乙氧基)乙基碳酸酯、對異丙基過氧(甲基)丙烯醯氧(乙氧基)乙基碳酸酯等。前述式(2)所示自由基(共)聚合性有機過氧化物，有例如第三丁基過氧(甲基)烯丙基碳酸酯、異丙苯基過氧(甲基)烯丙基碳酸酯、第三丁基過氧(甲基)烯丙氧基乙基碳酸酯等。

其中較佳者為第三丁基過氧丙烯醯乙基碳酸酯、第三丁基過氧異丁烯氧基乙基碳酸酯、第三丁基過氧烯丙氧基碳酸酯、第三丁基過氧烯丙碳酸酯、以及第三丁基過氧異丁烯基碳酸酯。

五、發明說明(16)

樹脂組成物

本發明樹脂組成物為含有PAS (a)，聚烯烴(b)，含環氧基 α -烯烴系共聚物(c)之樹脂組成物。

各成份的配合比例為PAS (a) 98~50質量%，聚烯烴(b) 1~25質量%，以及含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c) 1~25質量%。聚烯烴(b)可用取自LLDPE和VLDPE的至少一種聚乙烯系樹脂。

PAS混配比例太少時，有損PAS本來的耐熱性、耐藥品性、難燃性、電氣特性、尺寸安定性等優良特性。PAS混配比例太多時，耐衝擊性等物性改善效果不足。PAS混配比例以95~60質量%為佳，而以90~70質量%更好。

前述聚乙烯系樹脂和含環氧基的 α -烯烴系共聚物，按二者特定混配比例組合混配於PAS，即可得耐衝擊性及成型性優良的樹脂組成物，而且可得殘留應力極小的管狀成型物等壓出成型品。於PAS僅混配聚乙烯系樹脂或含環氧基的 α -烯烴系共聚物任一方時，得不到耐衝擊性和成型性優良的樹脂組成物。另外，聚烯烴(b)使用聚丙烯或低密度聚乙烯等時，耐衝擊性的改善效果不足，而成型為管狀成型物時，殘留應力變大。聚烯烴(b)使用彈性體，得不到良好的壓出成型性。

因此，由於前述聚乙烯系樹脂和含環氧基的 α -烯烴系共聚物併用，而有顯著效果，即使此等混配比例小，亦可能製得具有良好特性的樹脂組成物，因此可高度保

五、發明說明(17)

持PAS本來的諸特性。(b)成份佔前述聚乙烯系樹脂之混配比例，以2~20質量%為佳，而以3~15質量%更好。(c)成份含環氧基的 α -烯烴系共聚物之混配比例，以2~20質量%為佳，而以3~15質量%更好。

本發明聚烯烴(b)(即述乙烯系樹脂)與含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)的質量比(b:c)，必須調至1:5~5:1的範圍內。兩成份在此質量比範圍內組合使用時，可得耐衝擊性等諸特性顯著優良的樹脂組成物。此質量比(b:c)在上述範圍外時，特別是耐衝擊性會降低。此質量比(b:c)以1:3~4:1為佳，而以1:2~3:1更好。

本發明樹脂組成物中，聚烯烴(b)(即前述乙烯系樹脂)和含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)，必須分別以平均粒徑 $0.10\sim 3.00\mu\text{m}$ 的微粒分散於PAS基材中。平均粒徑是由透過型電子顯微鏡求出值。此二成份以此等微細粒子分散於PAS中時，可得耐衝擊性或成型性等諸特性優良的樹脂組成物，而且不得殘留應力極小的管狀成型物。乙烯系樹脂的平均粒徑以 $0.10\sim 3.00\mu\text{m}$ 為佳， $0.13\sim 2.00\mu\text{m}$ 更好，而以 $0.16\sim 1.00\mu\text{m}$ 最好。含環氧基的 α -烯烴系共聚物平均粒徑，以 $0.10\sim 3.00\mu\text{m}$ 為佳， $0.13\mu\text{m}\sim 2.00$ 更好，而以 $0.13\sim 1.00\mu$ 最好。

其中，選自LLDPE和VLDPE的至少一種乙烯系樹脂，使用含環氧基的 α -烯烴系共聚物，其中含環氧基的 α -烯烴系共聚物，與前述接枝化母質熔混接枝化(即 α -烯烴與含縮水甘油基的不飽和單體之共聚物，與乙烯系不

五、發明說明(18)

飽和單體的聚合物，化學性結合構成之含環氧基的 α -烯烴系共聚物)之黏著強度，在30N/20mm以上者，由樹脂組成物製成的成型物，例如管狀成型物或固相壓出成型物，確定其殘留應力極小，耐衝擊性優良。因此，使用所得樹脂組成物，壓出成型外徑115mm、厚度6.2mm的管，則管的殘留應力在4MPa以下，以3MPa以下為佳，而以1MPa以下更好。大多情況下，殘留應力可在0.5MPa以下。黏著強度的測定方法細節，在實施例項中說明。

本發明的樹脂組成物，在無損本發明目的之範圍內，可視需要適當添加其他樹脂或各種添加劑。其他適用樹脂例有芳族聚酯樹脂、聚醯胺系樹脂、聚矽樹脂等。添加劑則有例如紫外線吸收劑、著色劑、氧化防止劑、充填劑等。

充填劑可混配粉粒狀、平板狀、以及纖維狀等無機充填劑。相對於本發明組成物100質量份，可混配無機充填劑，通常0~150質量份，以0~100質量份範圍為佳。無機充填劑有例如硫酸鈣、矽酸鈣、黏土、矽藻土、滑粉、氧化鋁、矽砂、玻璃粉、氧化鐵、金屬粉、石墨、碳化矽、氮化矽、氧化矽、氮化硼、氮化鋁、碳黑等粉粒；雲母、絹雲母、葉蠟石、鋁粉等金屬箔，黑鉛等平板狀或鱗片狀物；玻璃球、金屬球、西拉斯(シラス)球、輕石等中空狀物；玻纖，碳纖、石墨纖維、晶鬚、金屬纖維、碳化矽纖維、石棉、矽灰石等礦物纖維等。有機充填劑有硬脂酸、油酸、棕櫚酸、或其金屬鹽、石

五、發明說明(19)

蠟、有機矽烷、有機鈦酸酯等，宜用來表面處理。

本發明樹脂組成物可由各成份，在（PAS 結晶融點） $\sim 350^{\circ}\text{C}$ ，較好是（PAS 結晶融點） $\sim 320^{\circ}\text{C}$ 的溫度範圍熔混而得。熔混順序可將全部成份同時熔混，亦可預先將（b）成份和（c）成份熔混後，再與PAS熔混。其中可利用振動器、恒氏混合器等預先機械性混合後，利用壓出機熔混。

本發明樹脂組成物可利用射出成型或壓出成型等一般熔融成型加工法，成型為片、膜、管、板、棒等各種成型物。本發明樹脂組成物利用壓出成型，製成管狀體、板狀體、棒狀體等壓出成型物時，可得殘留應力極小的成型物。

實施例

茲以下列製造例、實施例及比較例，具體說明本發明較佳實施方式。

物性之測定法如下。

(1) 平均粒徑

使用從射出成型所得試驗片切取的樣品，拍攝透過型電子顯微鏡照片，由此照片分別測定分散粒子的粒徑（ $n=30$ ），求出其平均值。

(2) Izod衝擊強度

使用射出成型所得試驗片，按照ASTM D-256測定Izod衝擊強度（附設缺口）。

(3) 黏著強度

五、發明說明(20)

聚烯烴(b)、含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)間之黏著強度，按下述方法測定。

各聚合物6~7克，以附設聚四氟乙烯片的鐵板夾持，加壓製成各聚合物片材。壓機溫度150℃，壓機在無負荷進行1分鐘，其次在負荷2MPa進行5秒後，從壓機取出片材，在空氣中放冷。

上述所得聚烯烴(b)片材，與含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)片材合在一起，其間夾持塗佈離可劑(Daikin公司製商品名Daidlee(ダイフリ-))的鋁箔，達片材面積的1/3。其次，將合併材料放入0.5mm厚的框內，以附設聚四氟乙烯片(厚300 μ m)的鐵板夾持加壓。壓機溫度200℃。壓機在無負荷進行2分鐘，其次在負荷0.98MPa進行10秒後，將貼合片從壓機取出，於空氣中放冷。

如此所得貼合片的剝離試驗，是利用テンシロン進行。試樣尺寸寬度20mm，剝離部位長度40mm，テンシロンの測定條件為負載，5公斤，拉離速度50mm/min，夾頭間距10mm。從預先用予剝離寬2~3mm左右處進行剝離。此剝離強度即為二聚合物成份的黏著強度(N/20mm)。

(4) 撓曲彈性率

撓曲彈性率是按照ASTM D-790測定。

(5) 殘留壓力

壓出成型所得管狀成型物，按壓出方法切成50mm長度，測定其外徑(D_o ; cm)及厚度(t , cm)。其次，切斷的

五、發明說明(21)

管狀物之一部份圓周，按照平行於壓出方向的寬度40mm間隔切取，形成在圓筒有縱溝的形狀，測定其外徑(D_1 ；cm)。

管狀物的殘留應力按下述求出：

$$S = E \times t \times [(1/D_1) - (1/D_0)]$$

其中S：殘留應力，MPa

E：撓曲彈性率，MPa

t：管厚，cm

D_0 ：切斷前的管外徑，cm

D_1 ：切斷前的管外徑

製造例1

含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c-1)

在容量5公升的不銹鋼製壓熱器內，放入純水2500克，再溶解聚乙烯醇2.5克懸浮劑。其中加入700克乙烯／異丁烯酸縮水甘油酯共聚物（異丁烯酸縮水甘油酯含量15質量%，日本石油化學公司製日石レクスパ-ルJ3700），做為含環氧基的 α -烯烴系共聚物，於氮大氣下攪拌，分散。另取自由劑聚合引發劑的苯甲醯過氧1.5克，自由基聚合性有機過氧化物的第三丁基過氧異丁烯醯氧基乙基碳酸酯6克，溶於苯乙烯300克。此苯乙烯溶液投入前述壓熱器內，加以攪拌。

壓熱器升溫到60～65℃攪拌2小時，將含自由基聚合引發劑和自由基聚合性有機過氧化物的苯乙烯溶液，飽浸於乙烯／異丁烯酸縮水甘油酯共聚物中。其次，溫度

五、發明說明(22)

提高到 80~85℃ 維持 7 小時完成聚合後，經水洗、乾燥，而得接枝化母質。

接著，此接枝化母質以單軸壓出機在 200℃ 壓出，利用化學反應得含環氧基的 α -烯烴系共聚物 (c-1)。

製造例 2

含環氧基的 α -烯烴系共聚物 (c-2)

重複製造例 1 的同樣操作，惟分別係乙烯／異丁烯酸縮水甘油酯共聚物（異丁烯酸縮水甘油酯含量 15 質量%）700 克改為 600 克，苯乙烯 300 克改為 400，得含環氧基的 α -烯烴系共聚物。

實施例 1

將表 1 所示混配比例的各成份，以振動器預混後，於雙軸壓出機在胴部溫度 280~320℃ 熔混，壓出股狀冷卻後，裁切製粒，使用所得顆粒，以射出成型機在汽缸溫度 280~320℃ 射出成型，製作試驗片，供測定樹脂組成物的性狀。結果如表 1 所示。

實施例 2~19 和比較例 1~7

除各成份及其混配比例按表 1 所示改變外，悉和實施例 1 同樣，製成試驗片和管。結果如表 1 所示。

各聚合物成份

此等實施例和比較例所用各聚合物成份如下：

(1) PAS

吳羽化學工業公司製品，商品名 フォートロン KPS
(聚硫化苯撐；310℃，剪斷速度 1200/秒測定熔體黏度

五、發明說明(23)

380Pa·s)。

(2) LL1

三菱化學公司製品，商品名三菱 Polycethyl-LL (ポリエチ-LL) UF240 (直鏈低密度聚乙烯；密度 0.920g/cm^3)

。

(3) LL2

三井化學公司製品，商品名 ウルトゼックス 1520L (直鏈低密度聚乙烯；密度 0.915g/cm^3)。

(4) LL3

陶化學公司製品，商品名 Affihity PF1140 (直鏈低密度聚乙烯；密度 0.895g/cm^3)。

(5) LL4

Exxon公司製品，商品名 Exact 3027 (直鏈低密度聚乙烯；密度 0.900g/cm^3)。

(6) VL

日本石油化學公司製品，商品名日石 D9010 (超低密度聚乙烯；密度 0.900g/cm^3)。

(7) L

日本石油化學公司製品，商品名日石 レクスロン J40 (低密度聚乙烯；密度 0.920g/cm^3)。

(8) c-1

由製造例1所製成含環氧基的 α -烯烴系共聚物。

(9) c-2

由製造例2所製成含環氧基的 α -烯烴系共聚物。

五、發明說明 (24)

表1

	樹 脂 組 成 物										物 性
	(a) 成份		(b) 成份			(c) 成份			(b):(c) 質量比	(b)/(c) 黏著強度 (N/20mm)	衝擊強度 (J/m)
	種類	比例 (%)	種類	比例 (%)	平均 粒徑 (μ m)	種類	比例 (%)	平均 粒徑 (μ m)			
實施例1	PPS	90	LL1	2	0.29	C-1	8	0.33	1:4	43	175
比較例1	PPS	90	L	2	0.35	C-1	8	0.33	1:4	0.25	120
實施例2	PPS	90	LL1	5	0.25	C-1	5	0.19	1:1	43	180
實施例3	PPS	75	LL1	5	0.41	C-1	20	0.80	1:4	43	600
比較例2	PPS	75	L	5	0.68	C-1	20	0.98	1:4	0.25	410
實施例4	PPS	85	LL1	10	0.62	C-1	5	0.28	2:1	43	250
實施例5	PPS	85	LL2	10	0.61	C-1	5	0.29	2:1	44	260
實施例6	PPS	85	LL3	10	0.58	C-1	5	0.26	2:1	46	270
實施例7	PPS	85	LL4	10	0.57	C-1	5	0.28	2:1	45	270
實施例8	PPS	85	VL	10	0.73	C-1	5	0.29	2:1	31	200
比較例3	PPS	85	L	10	0.88	C-1	5	0.28	2:1	0.25	115
實施例9	PPS	85	LL1	10	0.58	C-2	5	0.23	2:1	44	245
實施例10	PPS	85	LL3	10	0.55	C-2	5	0.29	2:1	45	280
實施例11	PPS	85	VL	10	0.76	C-2	5	0.32	2:1	32	195
比較例4	PPS	85	L	10	0.92	C-2	5	0.31	2:1	0.20	110
實施例12	PPS	75	LL1	10	0.69	C-1	15	0.56	2:3	43	455
實施例13	PPS	75	LL2	10	0.65	C-1	15	0.58	2:3	44	435
實施例14	PPS	75	LL3	10	0.60	C-1	15	0.52	2:3	46	455
實施例15	PPS	75	LL4	10	0.61	C-1	15	0.79	2:3	45	460
實施例16	PPS	75	VL	10	0.89	C-1	15	0.63	2:3	31	390
比較例5	PPS	75	L	10	0.98	C-1	15	0.70	2:3	0.25	250
實施例17	PPS	75	LL2	10	0.61	C-2	15	0.56	2:3	43	445
實施例18	PPS	75	LL4	10	0.60	C-2	15	0.60	2:3	43	450
比較例6	PPS	75	L	10	1.10	C-2	15	0.73	2:3	0.20	290
實施例19	PPS	75	LL1	20	1.20	C-1	5	0.32	4:1	43	300
比較例7	PPS	75	L	20	1.40	C-1	5	0.37	4:1	0.25	90

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

五、發明說明(25)

管狀成型物之物性

使用從前述實施例和比較例當中選出代表例，按上述所得顆粒，於汽缸和模具溫度設定 $280 \sim 320^{\circ}\text{C}$ 的單軸壓出機，利用外徑尺寸矯正法，成型為表2所示外徑(D_0)和厚度的管狀成型物，測定其撓曲彈性率、管切斷後的外徑(D_1)及殘留應力。結果如表2所示。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

五、發明說明 (26)

表 2

	管 狀 成 型 物 的 物 性				
	管 厚 (mm)	撓 曲 彈 性 率 (MPa)	D ₀ (mm)	D ₁ (mm)	殘 留 應 力 (MPa)
實 施 例 4	6.15	3000	115.02	114.94	0.11
實 施 例 12	6.17	2800	115.00	114.96	0.05
實 施 例 5	6.23	3050	114.96	114.88	0.12
實 施 例 6	6.24	2950	115.02	114.84	0.25
比 較 例 3	6.20	3100	115.04	107.34	11.98
比 較 例 5	6.21	2800	114.95	108.49	9.01

比 較 例 8 ~ 10

除 聚 烯 烴 (b) 改 用 彈 性 體 ， 使 用 表 3 所 示 混 配 比 例 的

五、發明說明 (27)

各成份外，和實施例 1 同樣，製成試驗和管狀成型物。
彈性體 (E) 使用三井石油化學公司製品，商品名 クフマ
A-4085 (乙烯 / 丁烯 共聚物，密度 0.880 g/cm^3)。結果如
表 3 所示，表 3 中與此等比較例 8 ~ 10 併列相對應的實
施例 12, 17, 19 結果。

成型性

樹脂組成物的成型性按下述基準判定。

A: 安定製粒，且管可壓出成型。

B: 製粒和管的壓出成型稍微不安定。

C: 配料的膨潤太大，無法安定熔融壓出股料，難以製
粒，且管的壓出成型無法進行。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂
線

五、發明說明(28)

表3

	樹 脂 組 成 物								成 型 性
	(a) 成份		(b) 成份		(c) 成份		(b) : (c) 質 量 比	(b) / (c) 黏 著 強 度 (N/20mm)	
	種類	比例 (%)	種類	比例 (%)	種類	比例 (%)			
實施例12	PPS	75	LL1	10	C-1	15	2:3	43	A
實施例17	PPS	75	LL2	10	C-2	15	2:3	43	A
實施例19	PPS	75	LL1	20	C-1	5	4:1	43	A
比較例8	PPS	75	E	20	C-1	5	4:1	30	C
比較例9	PPS	75	E	10	C-1	15	2:3	30	C
比較例10	PPS	75	E	10	C-2	15	2:3	32	C

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明(29)

產業上利用價值

按照本發明提供的樹脂組成物，可保持高度的PAS耐熱性，耐藥品性，難燃性，電氣特性，尺寸安定性等諸特定性，且耐衝擊性和成型性有顯著改善。本發明樹脂組成物為管等管狀成型物，其他壓出成型物等時，可賦予殘留應力極小的成型物。本發明樹脂組成物可活化其優良特性，適用於電氣零件、汽車零件等廣泛範疇。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

結

四、中文發明摘要 (發明名稱: 406106)

樹脂組成物

一種耐衝擊性和成型性優良的樹脂組成物，包括聚硫化芳撐(a)，聚烯烴(b)及含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)，其特徵為，(1)各成份的混配比例為，聚硫化芳撐(a)佔98~50質量%，聚烯烴(b)佔1~25質量%，及含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)1~25質量%，(2)聚烯烴(b)係選自直鏈低密度聚乙烯及超低密度聚乙烯之至少一種聚乙烯系樹脂，(3)聚烯烴(b)與含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)的質量比(b:c)為1:5~5:1，且(4)聚烯烴(b)和含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)，係分別以平均粒徑0.10~3.00 μm 之微粒，分散於聚硫化芳撐(a)內。

英文發明摘要 (發明之名稱: A RESIN COMPOSITION)

A resin composition with excellent impact-resistance and forming characteristics, comprising polyarylene sulfide(a), polyolefin(b) and epoxy group-containing α -olefinic copolymer(c), characterized in that (1) the constitutive ratios for each component is polyarylene sulfide (a) in 98~50 W%, polyolefin (b) in 1~25 W%, (2) and epoxy group-containing α -olefinic copolymer (c) 1~25 W%, (2) polyolefin(b) is at least one polyethylenic resin selected from the group consisting of linear low density polyethylene and very low density polyethylene, (3) the weight ratios (b:c) between polyolefin (b) and epoxy group-containing α -olefinic copolymer (c) is 1:5~5:1, and (4) polyolefin (b) and epoxy group-containing α -olefinic copolymer (c) are dispersed in polyarylene sulfide (a) in the microparticle forms with average particle diameter of 0.10 3.00 μm , respectively.

406106

六、申請專利範圍

88年9月13日 修正
補充

第 86103847 號「樹脂組成物」專利案

(88年9月13日修正)

六 申請專利範圍：

1. 一種樹脂組成物，包括聚硫化芳撐(a)、聚烯烴(b)、和含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)，其特徵為，

(1) 各成份的混配比例為，聚硫化芳撐(a)佔 96~60 質量%，聚烯烴(b) 佔 2~20 質量%，而含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c) 佔 2~20 質量%，

(2) 聚硫化芳撐(a)係聚硫化苯撐，

(3) 聚烯烴(b) 係選自密度超過 0.880g/cm^3 且小於 0.950g/cm^3 之直鏈低密度聚乙烯及密度超過 0.880g/cm^3 且小於之 0.915g/cm^3 之超低密度聚乙烯中至少一種聚乙烯系樹脂，

(4) 聚烯烴(b) 與含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)之質量比(b:c) 為 1:5~5:1，及

(5) 聚烯烴(b) 和含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)，分別以平均粒徑 $0.10\sim 3.00\mu\text{m}$ 微粒分散於聚硫化芳撐(a) 中。

2. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中聚烯烴(b) 為使用單面觸媒聚合之直鏈低密度聚乙烯。

3. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中直鏈低密度聚乙烯為乙烯和 $\text{C}_6\sim\text{C}_{10}$ α -烯烴之共聚物。

4. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中含環氧基

六、申請專利範圍

的 α -烯烴系共聚物(c)，係 α -烯烴 / α, β -不飽和酸縮水甘油酯共聚物，含 α -烯烴單元之 50.0~99.5 質量%，和 α, β -不飽和酸縮水甘油酯單元 0.5~50.0 質量%。

5. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)，係由至少一種乙烯系不飽和單體和至少一種自由基(共)聚合性有機過氧化物，在 α -烯烴 / α, β -不飽和酸縮水甘油酯共聚物存在下聚合而成之接枝化母質。
6. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)，係由至少一種乙烯系不飽和單體和至少一種自由基(共)聚合性有機過氧化物，在 α -烯烴 / α, β -不飽和酸縮水甘油酯共聚物存在下聚合而成之接枝化母質，在熔融條件下接枝化而得。
7. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中聚烯烴(b)與含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)間之黏著強度，在 30N/20mm 以上。
8. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)的混配比例為 3~15 質量%。
9. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中聚烯烴(b)與含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)之質量比(b:c)為 1:2~3:1。
10. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中聚

406106

六、申請專利範圍

- 烯烴(b)係以平均粒徑 $0.13\sim 2.00\mu\text{m}$ 的微粒，分散於聚硫化芳撐(a)中。
11. 如申請專利範圍第1項之樹脂組成物，其中聚烯烴(b)係以平均粒徑 $0.16\sim 1.00\mu\text{m}$ 的微粒，分散於聚硫化芳撐(a)中。
12. 如申請專利範圍第1項之樹脂組成物，其中含環氧基的 α -烯烴系共聚物，係以平均粒徑 $0.13\sim 2.00\mu\text{m}$ 的微粒，分散於聚硫化芳撐(a)中。
13. 如申請專利範圍第1項之樹脂組成物，其中含環氧基的 α -烯烴系共聚物，係以平均粒徑 $0.16\sim 1.00\mu\text{m}$ 的微粒，分散於聚硫化芳撐(a)中。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

406106

六、申請專利範圍

88年9月13日 修正
補充

第 86103847 號「樹脂組成物」專利案

(88年9月13日修正)

六 申請專利範圍：

1. 一種樹脂組成物，包括聚硫化芳撐(a)、聚烯烴(b)、和含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)，其特徵為，
 - (1) 各成份的混配比例為，聚硫化芳撐(a)佔 96~60 質量%，聚烯烴(b) 佔 2~20 質量%，而含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c) 佔 2~20 質量%，
 - (2) 聚硫化芳撐(a)係聚硫化苯撐，
 - (3) 聚烯烴(b) 係選自密度超過 0.880g/cm^3 且小於 0.950g/cm^3 之直鏈低密度聚乙烯及密度超過 0.880g/cm^3 且小於之 0.915g/cm^3 之超低密度聚乙烯中至少一種聚乙烯系樹脂，
 - (4) 聚烯烴(b) 與含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)之質量比(b:c) 為 1:5~5:1，及
 - (5) 聚烯烴(b) 和含環氧基的 α -烯烴系共聚物(c)，分別以平均粒徑 $0.10\sim 3.00\mu\text{m}$ 微粒分散於聚硫化芳撐(a) 中。
2. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中聚烯烴(b) 為使用單面觸媒聚合之直鏈低密度聚乙烯。
3. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中直鏈低密度聚乙烯為乙烯和 $\text{C}_6\sim\text{C}_{10}$ α -烯烴之共聚物。
4. 如申請專利範圍第 1 項之樹脂組成物，其中含環氧基