

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2021年8月12日(12.08.2021)



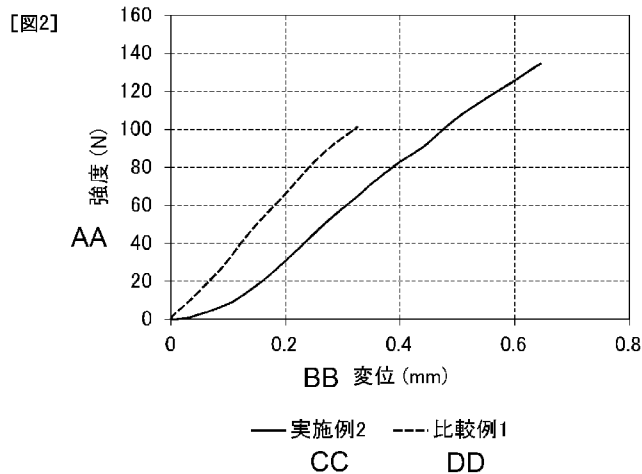
(10) 国際公開番号

WO 2021/157166 A1

- (51) 国際特許分類:
B60R 13/04 (2006.01) *C08K 3/013* (2018.01)
C08L 23/08 (2006.01) *C08K 3/04* (2006.01)
C08L 67/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2020/044433
- (22) 国際出願日: 2020年11月30日(30.11.2020)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2020-016338 2020年2月3日(03.02.2020) JP
- (71) 出願人: ポリプラスチック株式会社 (POLYPLASTICS CO., LTD.) [JP/JP];
- (72) 発明者: 馬場 秀貴 (BABA Hideki); 〒4168533 静岡県富士市宮島973番地 ポリプラスチック株式会社内 Shizuoka (JP). 五島 一也 (GOSHIMA Kazuya); 〒4168533 静岡県富士市宮島973番地 ポリプラスチック株式会社内 Shizuoka (JP).
- (74) 代理人: 正林 真之, 外 (SHOBAYASHI Masayuki et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内1-7-12 サピアタワー Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,

(54) Title: POLYESTER RESIN COMPOSITION FOR AUTOMOTIVE EXTERIOR PARTS, AND MOLDED ARTICLE OBTAINED BY MOLDING SAME

(54) 発明の名称: 自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物及びそれを成形してなる成形体



AA Strength (N)
BB Displacement (mm)
CC Example 2
DD Comparative example 1

(57) Abstract: The purpose of the present invention is to provide a polyester resin composition that is for automotive exterior parts and that has high strength against impact failure and tensile failure, and excellent weather resistance. The purpose of the present invention is achieved by a polyester resin composition which is for automotive exterior parts, which contains at least a thermoplastic polyester resin A, a polyolefin elastomer B, and carbon black C, and in which the polyolefin elastomer B is an epoxy group-containing olefin copolymer and has at least an α -olefin-derived constituent unit

[続葉有]



WO 2021/157166 A1

CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 一 国際調査報告 (条約第21条(3))

and an α,β -unsaturated acid glycidyl ester-derived constituent unit.

(57) 要約: 本発明の目的は、衝撃破壊、引張破壊に対する強度が高くさらに耐候性に優れる自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物を提供することにある。本発明の目的は、少なくとも、熱可塑性ポリエステル樹脂A、ポリオレフィン系エラストマーB及びカーボンブラックCを含有し、該ポリオレフィン系エラストマーBが、エポキシ基含有オレフィン系共重合体であり、少なくとも、 α -オレフィン由来の構成単位及び α , β -不飽和酸グリシジルエステル由来の構成単位を有する自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物、によって達成された。

明 細 書

発明の名称：

自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物及びそれを成形してなる成形体
技術分野

[0001] 本発明は、自動車外装部品用のポリエステル樹脂組成物及び成形体に関し、詳しくは、優れた機械物性、流動性を維持しながら、優れた耐候性を有する自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物及びそれを成形してなる成形体に関するものである。

背景技術

[0002] ポリブチレンテレフタレートやポリエチレンテレフタレートに代表される熱可塑性ポリエステル樹脂は、機械的強度、耐薬品性及び電気絶縁性等に優れており、また優れた耐熱性、成形性、リサイクル性を有していることから、各種の自動車部品その他の電装部品、太陽電池のバックシート、機械部品等に広く用いられている。

[0003] 一般に耐候性を向上させる手段として、紫外線吸収剤や光安定剤の添加、酸化チタンや硫酸バリウム等の光反射剤の添加、カーボンブラック等の光吸収剤の添加等が知られている（特許文献１～４）。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献１：特開２００９－１８８１０５号公報
特許文献２：特開２０１１－７７２５０号公報
特許文献３：特開２０１６－１６６２８２号公報
特許文献４：特開２００２－３０２５９５号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 自動車用部品では、軽量化や意匠性、量産性などの理由で金属から樹脂に代替が進んでいる。自動車部品の中でも機構部品などは強度や耐衝撃性、靱

性といった機械特性が必要なことからポリエステル樹脂が使用されてきたが、外装部品に使用される場合は耐候性なども必要となる。しかし、近年自動車の耐久寿命が延びており前述の添加剤による耐候性の改善では機械特性と両立させることが十分ではなかった。

[0006] 本発明の目的は、衝撃破壊、引張破壊に対する強度が高くさらに耐候性に優れる自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明の目的は、下記によって達成された。

1. 少なくとも、熱可塑性ポリエステル樹脂A、ポリオレフィン系エラストマーB及びカーボンブラックCを含有し、該ポリオレフィン系エラストマーBが、エポキシ基含有オレフィン系共重合体であり、少なくとも、 α -オレフィン由来の構成単位及び α , β -不飽和酸グリシジルエステル由来の構成単位を有する自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物。
2. 前記のカーボンブラックCの1次粒子径が10~20nmかつ窒素吸着比表面積が100m²/g以上であり、該カーボンブラックCの添加量が前記熱可塑性ポリエステル樹脂A100質量部に対し0.5~10質量部である前記1記載の自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物。
3. 前記熱可塑性ポリエステル樹脂Aがポリエチレンテレフタレート又はポリブチレンテレフタレートである前記1又は2記載の自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物。
4. さらに無機充填剤が添加された前記1~3いずれかに記載の自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物。
5. 前記1~4いずれかに記載の自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物からなる自動車外装部品用成形品であり、JIS-Z-8781-4によるL*値が10以下であり、キセノンウェザーメーターによりSAE-J25277に準拠した500hr処理後のJIS-Z-8741による60°光沢度が80%以上である自動車外装部品用成形品。

発明の効果

[0008] 本発明によれば、機械特性に優れさらに耐候性に優れる自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0009] [図1]本発明の圧入評価のための試料および測定装置の概観である。

[図2]本発明の圧入評価のデータである。

発明を実施するための形態

[0010] 本発明の自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物は、少なくとも、熱可塑性ポリエステル樹脂A、ポリオレフィン系エラストマーB及びカーボンブラックCを含有し、該ポリオレフィン系エラストマーBが、エポキシ基含有オレフィン系共重合体であり、少なくとも、 α -オレフィン由来の構成単位及び α 、 β -不飽和酸グリシジルエステル由来の構成単位を有することを特徴とする。

[0011] <熱可塑性ポリエステル樹脂A>

本発明の熱可塑性ポリエステル樹脂A（以下ポリエステル樹脂Aともいう）は、ジカルボン酸成分とジオール成分との重縮合、オキシカルボン酸又はラク톤の重縮合、またはこれらの成分の重縮合などにより得られるホモポリエステル又はコポリエステルである。好ましいポリエステル樹脂は、通常、飽和ポリエステル樹脂、特に芳香族飽和ポリエステル樹脂が含まれる。

[0012] ジカルボン酸成分としては、例えば、脂肪族ジカルボン酸（例えば、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ウンデカンジカルボン酸、ドデカンジカルボン酸、ヘキサデカンジカルボン酸、ダイマー酸などの炭素数4～40程度のジカルボン酸、好ましくは炭素数4～14程度のジカルボン酸）、脂環式ジカルボン酸（例えば、ヘキサヒドロフタル酸、ヘキサヒドロイソフタル酸、ヘキサヒドロテレフタル酸、ハイミック酸などの炭素数8～12程度のジカルボン酸）、芳香族ジカルボン酸（例えば、フタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸などのナフタレンジカルボン酸、4,4'-ジフェニルジカルボン酸、ジフェニルエーテル-4,4'-ジカルボン酸、4,

4'-ジフェニルメタンジカルボン酸、4,4'-ジフェニルケトンジカルボン酸などの炭素数8～16程度のジカルボン酸)、又はこれらの誘導体(例えば、低級アルキルエステル、アリアルエステル、酸無水物などのエステル形成可能な誘導体)などが挙げられる。

[0013] これらのジカルボン酸成分は、単独で又は二種以上組み合わせて使用してもよい。さらに、必要に応じて、トリメリット酸、ピロメリット酸などの多価カルボン酸などを併用してもよい。

[0014] 好ましいジカルボン酸成分には、テレフタル酸、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸などの芳香族ジカルボン酸が含まれる。

[0015] ジオール成分には、例えば、脂肪族アルキレンジオール(例えば、エチレングリコール、トリメチレングリコール、プロピレングリコール、1,4-ブタンジオール、1,3-ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、ヘキサレンジオール、オクタレンジオール、デカンジオールなどの炭素数2～12程度の脂肪族グリコール、好ましくは炭素数2～10程度の脂肪族グリコール)、ポリオキシアルキレングリコール[アルキレン基の炭素数が2～4程度であり、複数のオキシアルキレン単位を有するグリコール、例えば、ジエチレングリコール、ジプロピレングリコール、ジテトラメチレングリコール、トリエチレングリコール、トリプロピレングリコール、ポリテトラメチレングリコールなど]、脂環族ジオール(例えば、1,4-シクロヘキサレンジオール、1,4-シクロヘキサンジメタノール、水素化ビスフェノールAなど)などが挙げられる。

[0016] また、ハイドロキノン、レゾルシノール、ビスフェノール、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2,2-ビス-(4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル)プロパン、キシリレングリコールなどの芳香族ジオールを併用してもよい。

[0017] これらのジオール成分は単独で又は二種以上組み合わせて使用してもよい。さらに、必要に応じて、グリセリン、トリメチロールプロパン、トリメチロールエタン、ペンタエリスリトールなどのポリオールを併用してもよい。

- [0018] 好ましいジオール成分には、C₂－6アルキレングリコール（エチレングリコール、トリメチレングリコール、プロピレングリコール、1,4-ブタンジオールなどの直鎖状アルキレングリコール）、繰返し数が2～4程度のオキシアルキレン単位を有するポリオキシアルキレングリコール〔ジエチレングリコール、ポリテトラメチレングリコールなどのポリ（オキシ-C₂－4アルキレン）単位を含むグリコール〕、1,4-シクロヘキサジメタノールなどが含まれる。
- [0019] オキシカルボン酸には、例えば、オキシ安息香酸、オキシナフトエ酸、ヒドロキシフェニル酢酸、グリコール酸、オキシカプロン酸などのオキシカルボン酸又はこれらの誘導体などが含まれる。
- [0020] ラクトンには、プロピオラクトン、ブチロラクトン、バレロラクトン、カプロラクトン（例えば、ε-カプロラクトンなど）などのC₃－12ラクトンなどが含まれる。
- [0021] 好ましいポリエステル樹脂Aには、アルキレンテレフタレート、アルキレンナフタレートなどのアルキレンアリレートの主成分（例えば、50～100質量%、好ましくは75～100質量%程度）とするホモポリエステル又はコポリエステル〔例えば、ポリアルキレンテレフタレート（例えば、ポリ1,4-シクロヘキサジメチレンテレフタレート（PCT）、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリプロピレンテレフタレート（PPT）、ポリブチレンテレフタレート（PBT）などのポリC₂－4アルキレンテレフタレート）、ポリアルキレンナフタレート（例えば、ポリエチレンナフタレート、ポリプロピレンナフタレート、ポリブチレンナフタレートなどのポリC₂－4アルキレンナフタレート）などのホモポリエステル；アルキレンテレフタレート及び／又はアルキレンナフタレート単位を主成分（例えば、50質量%以上）として含有するコポリエステル〕が含まれる。
- [0022] 特に好ましいポリエステル樹脂Aには、ブチレンテレフタレート単位を主成分として含有するポリブチレンテレフタレート樹脂（例えば、ポリブチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレートコポリエステル）やエチレ

ンテレフタレート単位を主成分とするポリエチレンテレフタレート樹脂（例えば、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンテレフタレートコポリエステル）が含まれる。なお、これらのポリエステル樹脂は単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。

[0023] また、コポリエステルにおいて、共重合可能な単量体としては、C 2－6 アルキレングリコール（エチレングリコール、プロピレングリコール、1，4－ブタンジオールなどの直鎖状アルキレングリコールなど）、繰返し数が2～4程度のオキシアルキレン単位を有するポリオキシアルキレングリコール（ジエチレングリコール、ポリテトラメチレングリコールなどのポリ（オキシ－C 2－4 アルキレン）単位を含むグリコールなど）、脂環族ジオール（1，4－シクロヘキサジメタノールなど）、芳香族ジオール〔2，2－ビス（4－（2－ヒドロキシエトキシ）フェニル）プロパンなど〕、C 6－12 脂肪族ジカルボン酸（アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸など）、芳香族ジカルボン酸（フタル酸、イソフタル酸、ジフェニルジカルボン酸など）、オキシカルボン酸（オキシ安息香酸、オキシナフトエ酸など）などが挙げられる。

[0024] なお、ポリエステル樹脂は、溶融成形性などを損なわない限り、直鎖状のみならず分岐鎖構造を有していてもよく、架橋されていてもよい。また、液晶ポリエステルであってもよい。

[0025] ポリエステル樹脂は、慣用の方法、例えば、エステル交換法、直接エステル化法などにより製造できる。

[0026] ＜ポリオレフィン系エラストマーB＞

本発明のポリオレフィン系エラストマーBは、エポキシ基含有オレフィン系共重合体であり、少なくとも、 α -オレフィン由来の構成単位及び α ， β -不飽和酸グリシジルエステル由来の構成単位を有することを特徴とする。

[0027] 一般的にエラストマーを添加することで耐衝撃性や靱性が改善されるが前記ポリオレフィン系エラストマーは耐候性にも優れている。なお、本発明のポリオレフィン系エラストマーBを用いることで、自動車外装部品において

要求される組み付け性も向上させることができる。ここでいう組み付け性とは自動車部品の組み立てなどで広く使用されている圧入やスナップフィット、ネジ止めによる締結性を指す。この組み付け性は耐衝撃性や靱性と単純に相関するものではなく、強度やウェルド特性などの要因が複合的に影響する指標である。

[0028] α -オレフィンとしては、エチレン、プロピレン等のC 2～4のオレフィンを使用することができ、エチレン、プロピレンであることが好ましい。 α 、 β -不飽和酸グリシジルエステルとしては、グリシジルアクリレート、グリシジルメタクリレートを使用することが好ましい。その他、C 1～12の(メタ)アクリル酸エステル、酢酸ビニル等の第3成分を共重合させてもよい。

[0029] オレフィン及びグリシジルエステルは、共重合体中それぞれ30～90モル%。70～10モル%の範囲で調整することができ、第3成分は0～30モル%の範囲を含有させることができる。

[0030] 本発明では特に、エチレン-グリシジルメタクリレート共重合体であることが好ましい。

エチレンに対するグリシジルメタクリレートの割合は特に制限されるものではないが、共重合体の変性部位を各単量体質量に換算し、共重合体100質量部に対する割合として1～30質量部、好ましくは3～20質量部、更に好ましくは8～15質量部の範囲が好ましい。

[0031] 本発明のポリオレフィン系エラストマーBは、熱可塑性ポリエステル樹脂A 100質量部に対して1～20質量部含有させることができ、好ましくは2～15質量部、さらに好ましくは4～10質量部である。

[0032] <カーボンブラックC>

本発明のカーボンブラックCは、1次粒子径が5～40nm、好ましくは10～20nmであり、かつ窒素吸着比表面積が100m²/g以上のカーボンブラックである。そして、当該カーボンブラックを、熱可塑性ポリエステル樹脂A 100質量部に対して0.1～15質量部含有することができ、0

、 5 ～ 10 質量部であることが好ましい。

[0033] なお、本発明における1次粒子径はカーボンブラックを溶媒中投入し超音波振動にて分散させた後、分散試料を支持膜に固定し、これを透過型電子顕微鏡（TEM）で写真撮影し、直径より粒子径を計測（1000個以上）、それらの値の算術平均により1次粒子径を求めた。

[0034] カーボンブラックは、ファーネスブラック、アセチレンブラック、ケッチェンブラック、チャンネルブラック、ランプブラック、サーマルブラック、ボーンブラックなどを使用することができ、好ましくはファーネスブラック、アセチレンブラック、ケッチェンブラックである。

[0035] ＜無機充填材＞

本発明の成形品において、耐熱性及び機械強度を向上させるために無機充填材を含有することが好ましい。無機充填材の種類は、本願の効果を阻害しない限り特に限定されないが、例えばガラス繊維、ガラスフレーク、ガラスビーズ、シリカ、タルク、マイカ等が挙げられ、ガラス繊維が特に好ましい。ガラス繊維の繊維長（溶融混練などにより組成物に調製する前の状態）は1～10mmのものが好ましく、ガラス繊維の直径は5～20 μ mのものが好ましい。

[0036] 本発明において、無機充填材は、耐熱性及び機械強度を向上させる観点から、熱可塑性ポリエステル樹脂A100質量部に対して20～200質量部含むことが好ましく、30～150質量部含むことがより好ましく、40～120質量部含むことが特に好ましい。

[0037] ＜他の成分＞

本発明においては、本発明の効果を害さない範囲で、上記各成分の他、離型剤、潤滑剤、可塑剤、難燃剤、染料や顔料等の着色剤、結晶化促進剤、結晶核剤、各種酸化防止剤、熱安定剤、耐候性安定剤等を配合してもよい。

[0038] ＜成形品＞

本発明の成形品は、以上説明した自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物を成形してなる。本発明の成形品を作製する方法としては特に限定はなく

、公知の方法を採用することができる。例えば、上記のような樹脂組成物を押出機に投入して溶融混練してペレット化し、このペレットを所定の金型を装備した射出成形機に投入し、射出成形することで作製することができる。

[0039] 本発明の成形品は、自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物からなる自動車外装部品用成形品であり、JIS-Z-8781-4によるL*値が10以下であり、キセノンウェザーメーターによりSAE-J25277に準拠した500hr処理後のJIS-Z-8741による60°光沢度が80%以上であることを特徴とする。本発明の自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物からなる自動車外装部品用成形品であれば、前記の特性を得ることができる。

[0040] 前記の60°光沢度は、キセノンウェザーメーターによる処理前の時点で90%以上であることが好ましい。また、前記のL*値はキセノンウェザーメーターによるSAE-J25277に準拠した500hr処理後の時点で24以下であることが好ましい。

[0041] また本発明の成形品は、組付けやすさにおいても優れた特性を有している。特に他の成形品への挿入時には、発生する変位に対して十分な強度を有する。組付け性は、スナップフィットや樹脂クリップなど最大変形時に破壊しないことや、挿入時の強度が低いことが求められる。またネジ止めによる締結では、ネジ穴部でウェルド割れがしない強度などが求められる。

実施例

[0042] 以下、実施例により本発明をさらに詳しく説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0043] <材料>

A ポリエチレンテレフタレート樹脂 (PET) : Indorama Polymers

Public Company Limited 社製

B1 エチレンーグリシジルメタクリレート樹脂 : 住友化学社製 ボンドフ

ァースト E

B 2 アイオノマー樹脂：三井・デュポン ポリケミカル社製 ハイミラン
1 7 0 7

B 3 ポリエステルエラストマー：東洋紡績社製 ペルプレン P-65C

B 4 コアシエルエラストマー：ダウ・ケミカル日本製 パラロイド EX
L 2 3 1 4

B 5 無水マレイン酸変性ポリオレフィン樹脂 三井化学社製 Nタフマー
M P 0 6 1 0 B 6 MBS樹脂：カネカ社製 カネカエース M 7 1 1

C カーボンブラック：三菱ケミカル社製 # 9 6 0

D ガラス繊維：日本電気硝子製 ECS 0 3 T-1 2 7

E エポキシ樹脂：三菱ケミカル社製 エピコート J E R 1 0 0 4 K

F タルク：日本タルク社製 3 A

G 酸化防止剤：BASF ジャパン社製 イルガノックス 1 0 1 0

H 滑剤：理研ビタミン社製 リケマール B 7 4

[0044] <ポリエチレンテレフタレート樹脂組成物の製造>

上記の材料を以下の表 1 及び 2 に示す割合（単位は質量部）でドライブレンドし、30mmφのスクリーを有する2軸押出機（（株）日本製鋼所製）にホッパーから供給して280℃で溶融混練し、ペレット状の熱可塑性ポリエステル樹脂組成物を得た。

[0045] <評価>

評価は以下の通り行った。結果を表 1 及び 2 に示す。なお特に断りの無い限り測定は、23℃50%RH雰囲気下で行った。

《引張特性》

ISO 527-1, 2 に定められている評価基準に従い、引張強さ、引張破壊ひずみを評価した。

《曲げ破壊ひずみ》

ISO 178 に定められている評価基準に従い、曲げ破壊ひずみを評価した。

《シャルピー衝撃強さ》

ISO 179に定められている評価基準に従い、シャルピー衝撃強さを評価した。

[0046] 《光沢及びL*値》

SAE 2527に準拠し、ATLAS社製スーパーキセノンウェザーメーターで500hr処理を行った試料について、光沢とL*値を測定した。

(光沢)

日本電色工業(株)製、反D時グロスメータPG-11(60°)を用いてJIS-Z-8741に準拠して測定した。

(色相)

スガ試験機社製のSM-P型カラーコンピューターを用いてJIS-Z-8781-4に準拠しL*値を測定した。

[0047] [表1]

材料	実施例			比較例				
	1	2	3	1	2	3	4	5
A	100	100	100	100	100	100	100	100
B1	4.7	8.1	4.4					
B2					4.7	8.1		
B3							4.7	8.1
B4								
B5								
B6								
C	2.4	2.4	2.2	2.3	2.4	2.4	2.4	2.4
D	47	49	37	45	47	49	47	49
E	0.5	0.5	0.4	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
F	1.6	1.6	1.5	1.5	1.6	1.6	1.6	1.6
G	0.5	0.5	0.4	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
H	0.8	0.8	0.7	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8

[0048]

[表2]

材料	比較例					
	6	7	8	9	10	11
A	100	100	100	100	100	100
B1						
B2						
B3						
B4	4.7	8.1				
B5			4.7	8.1		
B6					4.7	8.1
C	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4
D	47	49	47	49	47	49
E	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
F	1.6	1.6	1.6	1.6	1.6	1.6
G	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
H	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8

[0049] <評価結果>

結果を表3及び4に示す

[0050] [表3]

材料	実施例			比較例				
	1	2	3	1	2	3	4	5
引張強さ(MPa)	147	142	132	162	156	152	153	150
引張破壊ひずみ (%)	2.2	2.3	2.1	1.9	2.1	2.2	2	2.1
曲げ破壊ひずみ (%)	2.8	2.9	2.6	2.3	2.5	2.7	2.6	2.5
シャルピー衝撃 (kJ/m ²)	7.9	8.5	7	7.2	7.2	7.5	7.4	7.8
光沢500hr前(ブランク)	94.3	91.8	94.9	91.8	93	91.7	91.6	92.5
光沢500hr後	84.7	80.9	85.2	82.4	71.9	59.4	73.1	71.5
L*500hr前(ブランク)	8.7	9.3	9.1	10.3	9.9	10.3	10	9.8
L*500hr後	21.5	23.8	21.3	21.3	25.4	27.4	24.5	25.6

[0051]

[表4]

	比較例					
	6	7	8	9	10	11
引張強さ(MPa)	152	145	146	128	142	140
引張破壊ひずみ(%)	1.9	2.0	2.0	1.8	1.8	1.9
曲げ破壊ひずみ(%)	2.5	2.5	2.5	2.2	2.4	2.3
シャルピー衝撃(kJ/m ²)	7.2	7.4	8.1	7.8	7.7	7.6
光沢500hr前(ブランク)	94.1	94.4	93.1	89.0	94.7	95.2
光沢500hr後	64.6	59.5	48.4	38.2	54.3	49.5
L * 値500hr前(ブランク)	9.7	9.6	11.0	12.3	9.2	9.0
L * 値500hr後	24.5	25.1	25.3	26.8	26.8	27.4

[0052] 表3及び4に示すように、本発明では、衝撃破壊、引張破壊に対する強度が高くさらに耐候性に優れることが判る。

[0053] 《圧入試験》

表5に記載の試料について、外径4mm、内径1.8mmの筒状の成形片（図1および2参照）を成形し、先端角21°、直径φ8のテーパーピンを用い、島津製作所性万能試験機オートグラフを用いて、2mm/min圧入し、成形片の破壊強度、破壊時の変位を測定した（図1参照）。また、組付けやすさ（挿入のしやすさ）として変位0.2mmでの強度値を測定した。下記基準により判断した。

（破壊時の変位）

○：0.4mm以上

×：0.4mm未満

（破壊強度）

○：100N以上

×：100N未満

（挿入力）

○：50N以下

×：50Nを超える

[0054]

[表5]

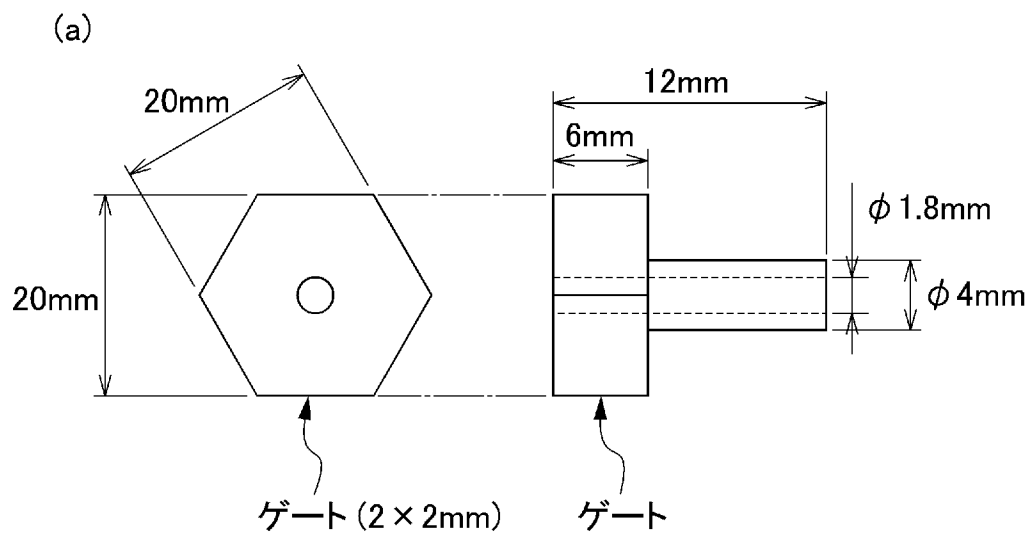
材料	実施例			比較例			
	1	2	3	1	3	4	8
破壊強度(N)	○	○	○	×	×	×	○
破壊時の変位(mm)	○	○	○	×	○	×	×
挿入力(N)	○	○	○	×	○	○	○

[0055] 図2は、実施例2と比較例1の荷重－変位曲線を示す。本発明では圧入に対して高い強度を有しており、挿入時の強度が低いため挿入しやすいことが判る。

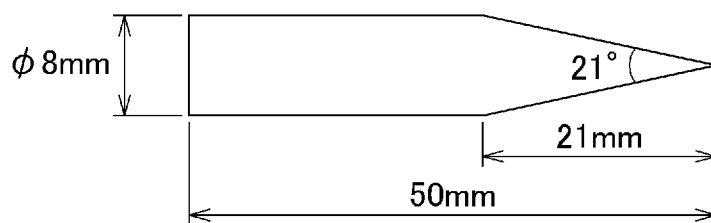
請求の範囲

- [請求項1] 少なくとも、熱可塑性ポリエステル樹脂A、ポリオレフィン系エラストマーB及びカーボンプラックCを含有し、該ポリオレフィン系エラストマーBが、エポキシ基含有オレフィン系共重合体であり、少なくとも、 α -オレフィン由来の構成単位及び α , β -不飽和酸グリシジルエステル由来の構成単位を有する自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物。
- [請求項2] 前記のカーボンプラックCの1次粒子径が10～20nmかつ窒素吸着比表面積が100m²/g以上であり、該カーボンプラックCの添加量が前記熱可塑性ポリエステル樹脂100質量部に対し0.5～10質量部である請求項1記載の自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物。
- [請求項3] 前記熱可塑性ポリエステル樹脂Aがポリエチレンテレフタレート又はポリブチレンテレフタレートである請求項1又は2記載の自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物。
- [請求項4] さらに無機充填剤が添加された請求項1～3いずれかに記載の自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物。
- [請求項5] 請求項1～4いずれかに記載の自動車外装部品用ポリエステル樹脂組成物からなる自動車外装部品用成形品であり、JIS-Z-8781-4によるL*値が10以下であり、キセノンウェザーメーターによりSAE-J25277に準拠した500hr処理後のJIS-Z-8741による60°光沢度が80%以上である自動車外装部品用成形品。

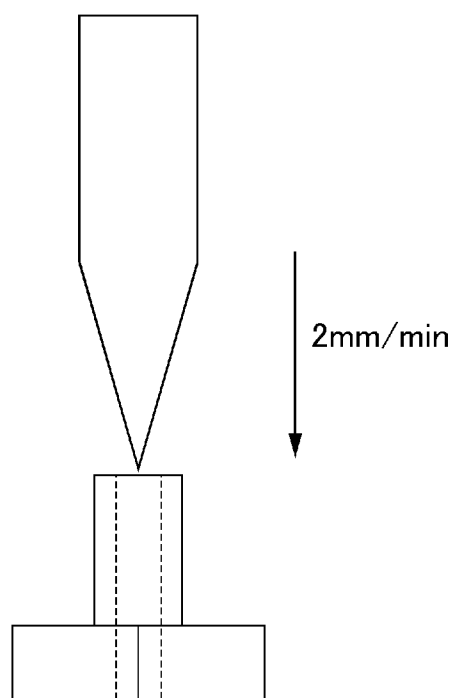
[図1]



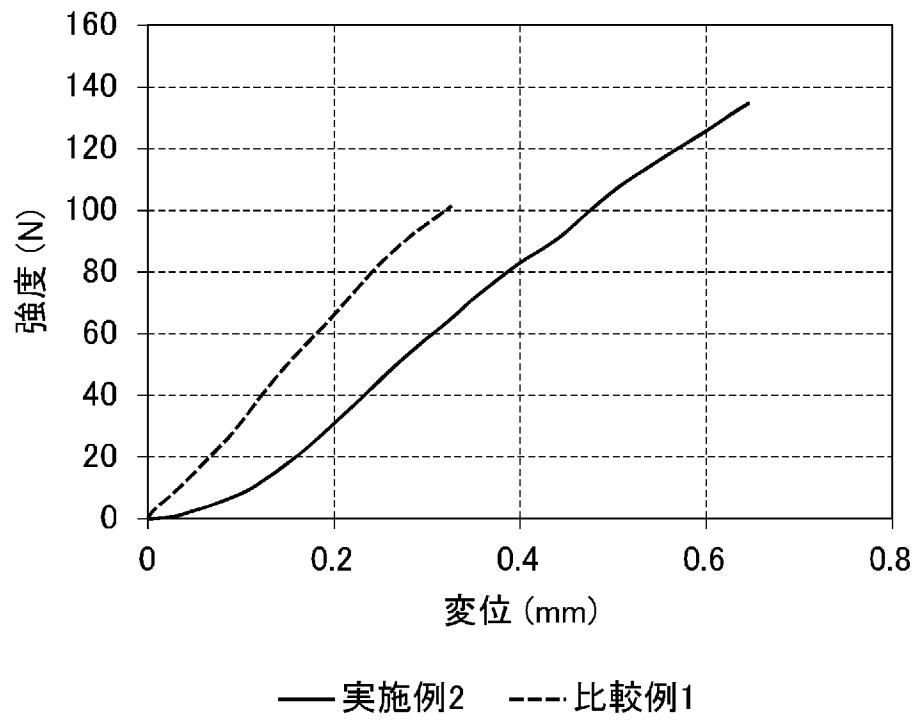
(b)



(c)



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/044433

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl. B60R13/04 (2006.01) i, C08L23/08 (2006.01) i, C08L67/02 (2006.01) i, C08K3/013 (2018.01) i, C08K3/04 (2006.01) i

FI: C08L67/02, C08L23/08, C08K3/04, C08K3/013, B60R13/04 Z

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl. C08L23/08, C08L67/00-67/08, C08K3/00-3/40, C08L33/14

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996

Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2021

Registered utility model specifications of Japan 1996-2021

Published registered utility model applications of Japan 1994-2021

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2008-524404 A (E. I. DU PONT DE NEMOURS & CO.) 10 July 2008, claims, paragraphs [0020], [0030], [0031], examples 2-7, B, 11, 12	1-5
X	JP 2008-138132 A (MITSUBISHI ENGINEERING-PLASTICS CORP.) 19 June 2008, claims, paragraphs [0024], [0066], [0082], examples 1-12	1-5
X	WO 2016/076135 A1 (TOYOBO CO., LTD.) 19 May 2016, claims, paragraph [0035], examples 1-6	1-5
X A	JP 2007-118416 A (TORAY INDUSTRIES, INC.) 17 May 2007, claims, paragraph [0039], examples 11, 13	1, 3, 4 2, 5



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
22.01.2021

Date of mailing of the international search report
02.02.2021

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2020/044433

Patent Documents referred to in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2008-524404 A	10.07.2008	US 2006/0142488 A1 claims, paragraphs [0023], [0032], [0033], examples 2-7, B, 11, 12 WO 2006/081017 A2 CA 2592440 A1	
JP 2008-138132 A	19.06.2008	(Family: none)	
WO 2016/076135 A1	19.05.2016	JP 2020-73658 A	
JP 2007-118416 A	17.05.2007	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） B60R 13/04(2006.01)i; C08L 23/08(2006.01)i; C08L 67/02(2006.01)i; C08K 3/013(2018.01)i; C08K 3/04(2006.01)i FI: C08L67/02; C08L23/08; C08K3/04; C08K3/013; B60R13/04 Z														
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） C08L23/08; C08L67/00-67/08; C08K3/00-3/40; C08L33/14 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2021年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2021年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2021年</td> </tr> </table> 国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2021年	日本国実用新案登録公報	1996-2021年	日本国登録実用新案公報	1994-2021年				
日本国実用新案公報	1922-1996年													
日本国公開実用新案公報	1971-2021年													
日本国実用新案登録公報	1996-2021年													
日本国登録実用新案公報	1994-2021年													
C. 関連すると認められる文献														
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号												
X	JP 2008-524404 A（イー・アイ・デュボン・ドウ・ヌムール・アンド・カンパニー） 10.07.2008（2008-07-10） 特許請求の範囲，[0020]，[0030]，[0031]，実施例2-7，実施例B，実施例11，実施例12	1-5												
X	JP 2008-138132 A（三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社）19.06.2008 （2008-06-19） 特許請求の範囲，[0024]，[0066]，[0082]，実施例1-12	1-5												
X	WO 2016/076135 A1（東洋紡株式会社）19.05.2016（2016-05-19） 特許請求の範囲，[0035]，実施例1-6	1-5												
X	JP 2007-118416 A（東レ株式会社）17.05.2007（2007-05-17） 特許請求の範囲，[0039]，実施例11，実施例13	1, 3, 4												
A		2, 5												
☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。														
<table border="0"> <tr> <td>* 引用文献のカテゴリー</td> <td>“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</td> </tr> <tr> <td>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの</td> <td>“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの</td> </tr> <tr> <td>“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの</td> <td>“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの</td> </tr> <tr> <td>“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）</td> <td>“&” 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td></td> </tr> <tr> <td>“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献</td> <td></td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー	“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの	“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの	“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの	“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）	“&” 同一パテントファミリー文献	“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献		“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献	
* 引用文献のカテゴリー	“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの													
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの													
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの													
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）	“&” 同一パテントファミリー文献													
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献														
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献														
国際調査を完了した日 22.01.2021		国際調査報告の発送日 02.02.2021												
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 内田 靖恵 4J 9553 電話番号 03-3581-1101 内線 3457												

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2020/044433

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2008-524404	A	10.07.2008	US 2006/0142488 A1 特許請求の範囲, [0023], [0032], [0033], 実施例2- 7, 実施例B, 実施例11, 実 施例12 WO 2006/081017 A2 CA 2592440 A1	
JP	2008-138132	A	19.06.2008	(ファミリーなし)	
WO	2016/076135	A1	19.05.2016	JP 2020-73658 A	
JP	2007-118416	A	17.05.2007	(ファミリーなし)	