

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2017-14502

(P2017-14502A)

(43) 公開日 平成29年1月19日 (2017.1.19)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
C08L 69/00 (2006.01)	C08L 69/00	4J002
C08K 3/10 (2006.01)	C08K 3/10	4J029
C08K 5/159 (2006.01)	C08K 5/159	
C08G 64/16 (2006.01)	C08G 64/16	
C08G 64/20 (2006.01)	C08G 64/20	

審査請求 未請求 請求項の数 19 O L (全 60 頁)

(21) 出願番号	特願2016-128509 (P2016-128509)	(71) 出願人	000005968
(22) 出願日	平成28年6月29日 (2016. 6. 29)		三菱化学株式会社
(31) 優先権主張番号	特願2015-131491 (P2015-131491)		東京都千代田区丸の内一丁目1番1号
(32) 優先日	平成27年6月30日 (2015. 6. 30)	(71) 出願人	594196358
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		株式会社ロンビック
(31) 優先権主張番号	特願2015-131492 (P2015-131492)		三重県四日市市塩浜町1番地の69
(32) 優先日	平成27年6月30日 (2015. 6. 30)	(74) 代理人	110000648
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		特許業務法人あいち国際特許事務所
		(72) 発明者	田中 智彦
			三重県四日市市東邦町1番地 三菱化学株式会社内
		(72) 発明者	垣内 麻美
			三重県四日市市東邦町1番地 三菱化学株式会社内

最終頁に続く

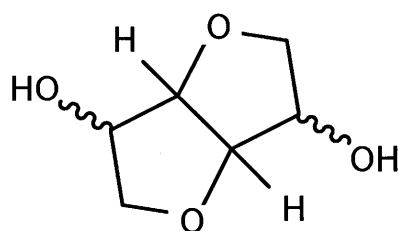
(54) 【発明の名称】 ポリカーボネート樹脂組成物、その製造方法、成形体

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 透明性に優れると共に、生物起源物資含有率、耐熱性、耐湿熱性、及び耐衝撃性を高いレベルでバランスよく兼ね備えたポリカーボネート樹脂組成物、その製造方法、及びポリカーボネート樹脂組成物の成形体を提供すること。

【解決手段】 式(1)で表される化合物に由来する構成単位を含むポリカーボネート樹脂(A)と芳香族ポリカーボネート樹脂(B)と長周期型周期表第I族及び第II族の金属の化合物からなる群から選択される少なくとも1種の化合物(C)とを含有するポリカーボネート樹脂組成物、その製造方法、樹脂組成物の成形体である。化合物(C)の含有量が金属量で0.8重量ppm以上かつ1000重量ppm以下であることが好ましい。樹脂組成物の示差走査熱量分析により測定されるガラス転移温度が単一であることが好ましい。樹脂組成物は、クラウンエーテル化合物(D)を含有することが好ましい。

10



... (1)

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記式（１）で表される化合物に由来する構成単位を含むポリカーボネート樹脂（Ａ）と、

芳香族ポリカーボネート樹脂（Ｂ）と、

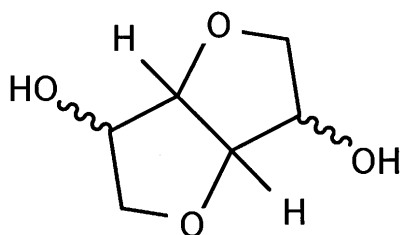
長周期型周期表第Ⅰ族の金属の化合物及び長周期型周期表第Ⅱ族の金属の化合物からなる群から選択される少なくとも１種の化合物（Ｃ）とを含有し、

前記ポリカーボネート樹脂（Ａ）と前記芳香族ポリカーボネート樹脂（Ｂ）との合計量 100 重量部に対する前記化合物（Ｃ）の含有量が、該化合物（Ｃ）中の金属量で 0.8 重量 ppm 以上かつ 1000 重量 ppm 以下であり、

10

示差走査熱量分析により測定されるガラス転移温度が単一である、ポリカーボネート樹脂組成物。

【化 1】



... (1)

20

【請求項 2】

下記式（１）で表される化合物に由来する構成単位を含むポリカーボネート樹脂（Ａ）と、

芳香族ポリカーボネート樹脂（Ｂ）と、

長周期型周期表第Ⅰ族の金属の化合物及び長周期型周期表第Ⅱ族の金属の化合物からなる群から選択される少なくとも１種の化合物（Ｃ）と、

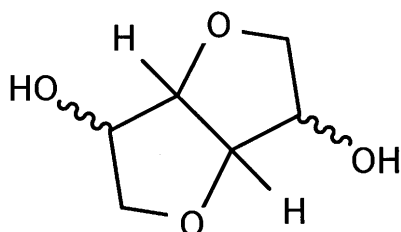
クラウンエーテル化合物（Ｄ）とを含有し、

前記ポリカーボネート樹脂（Ａ）と前記芳香族ポリカーボネート樹脂（Ｂ）との合計量 100 重量部に対する前記化合物（Ｃ）の含有量が、該化合物（Ｃ）中の金属量で 0.8 重量 ppm 以上 1000 重量 ppm 以下であり、

30

前記化合物（Ｃ）の金属換算量に対する前記クラウンエーテル化合物（Ｄ）の含有量が 0.1 倍モル以上 10 倍モル以下である、ポリカーボネート樹脂組成物。

【化 2】



... (1)

40

【請求項 3】

示差走査熱量分析により測定されるガラス転移温度が単一である、請求項 2 に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【請求項 4】

前記ポリカーボネート樹脂組成物を成形してなる厚さ 2 mm の成形体の全光線透過率が 80 % 以上である、請求項 1 ～ 3 のいずれか 1 項に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【請求項 5】

長周期型周期表第Ⅰ族の金属及び長周期型周期表第Ⅱ族の金属を含む、請求項 1 ～ 4 の

50

いずれか 1 項に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【請求項 6】

前記化合物 (C) として、少なくとも長周期型周期表第 I 族の金属の化合物を含有し、前記ポリカーボネート樹脂 (A) と前記芳香族ポリカーボネート樹脂 (B) との合計量 100 重量部に対する長周期型周期表 I 族の金属の化合物の含有量が金属量で 0.8 重量 ppm ~ 1000 重量 ppm である、請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【請求項 7】

前記長周期型周期表第 I 族の金属の化合物がナトリウム化合物、カリウム化合物、及びセシウム化合物からなる群から選ばれる少なくとも 1 種である、請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

10

【請求項 8】

前記化合物 (C) が、無機塩（炭酸塩を含む）、カルボン酸塩、フェノレート、ハロゲン化合物、及び水酸化化合物からなるグループより選ばれる少なくとも 1 種である、請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【請求項 9】

さらに酸性化合物 (E) を含有する、請求項 1 ~ 8 のいずれか 1 項に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【請求項 10】

前記酸性化合物 (E) の含有量が、前記化合物 (C) 中の金属の含有量に対して 0.1 倍モル以上 5 倍モル以下である、請求項 9 に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

20

【請求項 11】

請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載のポリカーボネート樹脂組成物を含有してなる成形体。

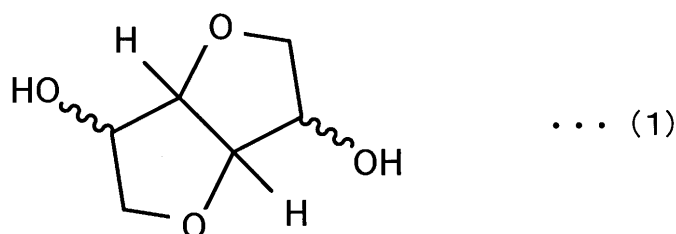
【請求項 12】

下記式 (1) で表される化合物に由来する構成単位を含むポリカーボネート樹脂 (A) と芳香族ポリカーボネート樹脂 (B) との合計量 100 重量部に対して、長周期型周期表第 I 族の金属の化合物及び長周期型周期表第 II 族の金属の化合物からなる群から選択される少なくとも一種の化合物 (C) を金属量換算で 0.5 重量 ppm 以上 1000 重量 ppm 以下添加する添加工程と、

30

該添加工程後に、前記ポリカーボネート樹脂 (A) と前記芳香族ポリカーボネート樹脂 (B) とを溶融反応させる反応工程とを有する、ポリカーボネート樹脂組成物の製造方法。

【化 3】



40

【請求項 13】

前記反応工程における溶融反応を減圧下にて行う、請求項 12 に記載のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法。

【請求項 14】

前記反応工程における溶融反応を真空度 30 kPa 以下という条件で行う、請求項 12 又は 13 に記載のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法。

【請求項 15】

前記化合物 (C) が、無機塩（炭酸塩を含む）、カルボン酸塩、フェノレート、ハロゲ

50

ン化合物、水酸化化合物からなるグループより選ばれる少なくとも１種である、請求項１２～１４のいずれか１項に記載のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法。

【請求項１６】

前記化合物（Ｃ）がナトリウム化合物、カリウム化合物、及びセシウム化合物からなるグループより選ばれる少なくとも１種である、請求項１２～１５のいずれか１項に記載のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法。

【請求項１７】

前記添加工程においては、さらにクラウンエーテル化合物（Ｄ）を添加し、前記化合物（Ｃ）の金属換算量に対する前記クラウンエーテル化合物（Ｄ）の添加量が０．１倍モル以上１０倍モル以下である、請求項１２～１６のいずれか１項に記載のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法。

10

【請求項１８】

前記添加工程において、さらに酸性化合物（Ｅ）を添加する、請求項１２～１７のいずれか１項に記載のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法。

【請求項１９】

前記酸性化合物（Ｅ）の添加量が、前記化合物（Ｃ）の金属の添加量に対して、０．１倍モル以上５倍モル以下である、請求項１８に記載のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

20

【０００１】

本発明は、透明性に優れ、生物起源物資含有率、耐熱性、耐湿熱性、及び耐衝撃性のバランスのとれたポリカーボネート樹脂組成物、その製造方法、及び該樹脂組成物を成形してなる成形体に関する。

【背景技術】

【０００２】

ビスフェノールＡ等に由来する構造を含む従来の芳香族ポリカーボネート樹脂は、石油資源から誘導される原料を用いて製造されるが、近年、石油資源の枯渇が危惧されており、植物などのバイオマス資源から得られる原料を用いたポリカーボネート樹脂の提供が求められている。また、二酸化炭素排出量の増加、蓄積による地球温暖化が気候変動などをもたらしことが危惧されていることから、使用後に廃棄処分をしてもカーボンニュートラルな植物由来モノマーを原料としたポリカーボネート樹脂の開発が求められている。

30

【０００３】

かかる状況下、バイオマス資源から得られるジヒドロキシ化合物であるイソソルビド（ＩＳＢ）をモノマー成分とし、炭酸ジエステルとのエステル交換により、副生するモノヒドロキシ化合物を減圧下で留去しながら、ポリカーボネート樹脂を得る方法が提案されている（例えば特許文献１～７参照）。

【０００４】

ところが、ＩＳＢのようなジヒドロキシ化合物は、従来の芳香族ポリカーボネート樹脂に使用されているビスフェノール化合物類に比べると熱安定性が低く、高温下で行う重縮合反応や成形、加工の際に熱分解により樹脂が着色する問題があった。さらに、特許文献３～６に記載されているＩＳＢとビスフェノール化合物との共重合体は、高いガラス転移温度のポリマーが得られる反面、ＩＳＢの反応性とビスフェノール化合物の反応性の違いにより、ポリマーの末端がビスフェノール化合物となってしまう、さらに色調やＩＳＢの熱安定性を考慮して芳香族ポリカーボネート樹脂の重合温度より低い重合温度を選択すると、一種の末端封止になってしまう、十分に重合度が上がらず、耐衝撃性に乏しいポリマーとなることがある。特に、ポリマー中のビスフェノール化合物の共重合量が２０モル％以上になると顕著になる。

40

【０００５】

さらに、特許文献７には、ＩＳＢに由来する構成単位と脂肪族ジヒドロキシ化合物に由

50

来する構成単位及び芳香族ビスフェノール化合物に由来する構成単位を含むポリカーボネート共重合体が開示されているが、このポリカーボネート共重合体も、耐熱性、成形性及び機械的強度に優れるものの、ビスフェノール化合物に由来する構成単位を含むため、十分な重合度が上がらず、耐衝撃性に乏しいポリマーになることがある。また、生物起源物質含有率が低く、環境面からも好ましくない。

【0006】

バイオマス資源から得られるジヒドロキシ化合物であるイソソルビド（ISB）などのジヒドロキシ化合物からなるポリカーボネート樹脂は、ガラス転移温度が高く耐熱性に優れるが、剛直である上、溶融重合時の溶融粘度が高く、高い分子量のポリマーが得られないため耐衝撃性に乏しいという欠点があった。この靱性を改良するため、脂肪族ジヒドロキシ化合物や芳香族ビスフェノール化合物を共重合することが試みられている。

10

【0007】

具体的には、特許文献8には、ISBに由来する構成単位と脂肪族炭化水素のジヒドロキシ化合物とを含むポリカーボネート樹脂であって、脂肪族炭化水素のジヒドロキシ化合物に由来する構成単位が45モル%以上であるポリカーボネート樹脂と芳香族ポリカーボネート樹脂を含むポリカーボネート樹脂組成物が開示されている。また、特許文献9には、芳香族ポリカーボネート樹脂に、ISBに由来する構成単位と脂肪族炭化水素のジヒドロキシ化合物とを含むポリカーボネート樹脂を混合することによって、鉛筆硬度の優れたポリカーボネート樹脂組成物が開示されている。

20

【先行技術文献】

【特許文献】

【0008】

【特許文献1】国際公開第2004/111106号パンフレット

【特許文献2】国際公開第2007/063823号パンフレット

【特許文献3】国際公開第2005/066239号パンフレット

【特許文献4】国際公開第2006/041190号パンフレット

【特許文献5】特開2009-062501号公報

【特許文献6】特開2009-020963号公報

【特許文献7】特開2011-127108号公報

【特許文献8】国際公開第2011/071162号パンフレット

30

【特許文献9】国際公開第2012/1117212号パンフレット

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

しかしながら、脂肪族ジヒドロキシ化合物共重合体は耐熱性が充分でなく、芳香族ビスフェノール化合物共重合体は、耐熱性は高いが、反応性の問題から十分な分子量のポリカーボネート樹脂が得られないという問題がある。したがって、特許文献8のように、脂肪族ジヒドロキシ化合物を45モル%以上含むISB共重合ポリカーボネート樹脂と芳香族ポリカーボネート樹脂を含む上述の樹脂組成物は、透明性、色相、熱安定性、成形性及び機械的強度に優れるものの、例えば、耐熱性をより高めるためにガラス転移温度が120℃以上の組成物を得ようとする、ポリカーボネート樹脂組成物中の芳香族ポリカーボネート樹脂の含有率を50重量%以上にまで高める必要性が生じる。このことは、生物起源物質含有率が低くなることを意味するため、環境面から好ましくない。また、特許文献9のように、芳香族ポリカーボネート樹脂に、ISBに由来する構成単位と脂肪族炭化水素のジヒドロキシ化合物とを含むポリカーボネート樹脂を混合したポリカーボネート樹脂組成物は、実質、全光線透過率が20%未満であり、透明性に劣っているという問題がある。

40

【0010】

本発明は、かかる背景に鑑みてなされたものであり、透明性に優れると共に、生物起源物質含有率、耐熱性、耐湿熱性、及び耐衝撃性を高いレベルでバランスよく兼ね備えたポ

50

リカーボネート樹脂組成物、その製造方法、及びポリカーボネート樹脂組成物の成形体を提供しようとするものである。

【課題を解決するための手段】

【0011】

本発明者らは、前記課題を解決すべく鋭意検討を重ねた結果、特定のポリカーボネート樹脂（A）と芳香族ポリカーボネート樹脂（B）と特定の化合物（C）等を含むポリカーボネート樹脂組成物が、透明性に優れると共に、生物起源物資含有率、耐熱性、耐湿熱性、及び耐衝撃性を高いレベルでバランスよく兼ね備えることを見出し、本発明及び参考発明に至った。即ち、本発明の要旨は、下記の[1]～[19]に存する。

【0012】

[1] 下記式（1）で表される化合物に由来する構成単位を含むポリカーボネート樹脂（A）と、

芳香族ポリカーボネート樹脂（B）と、

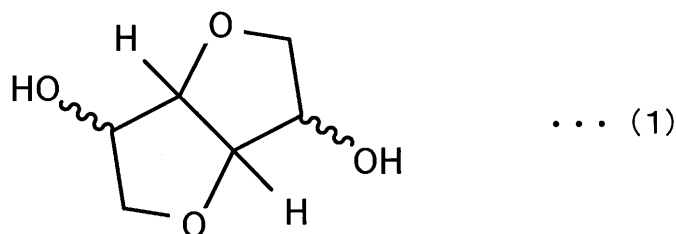
長周期型周期表第I族の金属の化合物及び長周期型周期表第II族の金属の化合物からなる群から選択される少なくとも1種の化合物（C）とを含有し、

前記ポリカーボネート樹脂（A）と前記芳香族ポリカーボネート樹脂（B）との合計量100重量部に対する前記化合物（C）の含有量が、該化合物（C）中の金属量で0.8重量ppm以上、かつ1000重量ppm以下であり、

示差走査熱量分析により測定されるガラス転移温度が単一であるポリカーボネート樹脂組成物。

【0013】

【化1】



【0014】

[2] 下記式（1）で表される化合物に由来する構成単位を含むポリカーボネート樹脂（A）と、

芳香族ポリカーボネート樹脂（B）と、

長周期型周期表第I族の金属の化合物及び長周期型周期表第II族の金属の化合物からなる群から選択される少なくとも1種の化合物（C）と、

クラウンエーテル化合物（D）とを含有し、

前記ポリカーボネート樹脂（A）と前記芳香族ポリカーボネート樹脂（B）との合計量100重量部に対する前記化合物（C）の含有量が、該化合物（C）中の金属量で0.8重量ppm以上1000重量ppm以下であり、

前記化合物（C）の金属換算量に対する前記クラウンエーテル化合物（D）の含有量が0.1倍モル以上10倍モル以下である、ポリカーボネート樹脂組成物。

【0015】

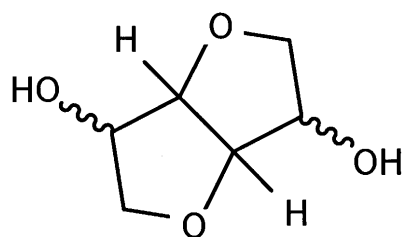
10

20

30

40

【化 2】



... (1)

【0016】

10

〔3〕示差走査熱量分析により測定されるガラス転移温度が単一である、〔2〕に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【0017】

〔4〕前記ポリカーボネート樹脂組成物を成形してなる厚さ2mmの成形体の全光線透過率が80%以上である、〔1〕～〔3〕のいずれか1に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【0018】

〔5〕長周期型周期表第I族の金属及び長周期型周期表第II族の金属を含む、〔1〕～〔4〕のいずれか1に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【0019】

20

〔6〕前記化合物(C)として、少なくとも長周期型周期表第I族の金属の化合物を含有し、前記ポリカーボネート樹脂(A)と前記芳香族ポリカーボネート樹脂(B)との合計量100重量部に対する長周期型周期表I族の金属の化合物の含有量が金属量で0.8重量ppm～1000重量ppmである、〔1〕～〔5〕のいずれか1に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【0020】

〔7〕前記長周期表第I族の金属の化合物がナトリウム化合物、カリウム化合物、セシウム化合物からなる群から選ばれる少なくとも1種である、〔1〕～〔6〕のいずれか1に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【0021】

30

〔8〕前記化合物(C)が、無機塩(炭酸塩を含む)、カルボン酸塩、フェノレート、ハロゲン化合物、及び水酸化化合物からなるグループより選ばれる少なくとも1種である、〔1〕～〔7〕のいずれか1に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【0022】

〔9〕さらに酸性化合物(E)を含有する、〔1〕～〔8〕のいずれか1に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【0023】

〔10〕前記酸性化合物(E)の含有量が、前記化合物(C)中の金属の含有量に対して0.1倍モル以上5倍モル以下である、〔6〕に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【0024】

40

〔11〕〔1〕～〔10〕のいずれか1に記載のポリカーボネート樹脂組成物を含有してなる成形体。

【0025】

〔12〕下記式(1)で表される化合物に由来する構成単位を含むポリカーボネート樹脂(A)と芳香族ポリカーボネート樹脂(B)との合計量100重量部に対して、長周期型周期表第I族の金属の化合物及び長周期型周期表第II族の金属の化合物からなる群から選択される少なくとも一種の化合物(C)を金属量換算で0.5重量ppm以上1000重量ppm以下添加する添加工程と、

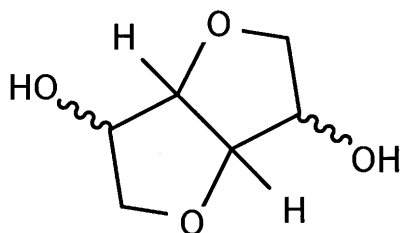
該添加工程後に、前記ポリカーボネート樹脂(A)と前記芳香族ポリカーボネート樹脂(B)とを溶融反応させる反応工程とを有する、ポリカーボネート樹脂組成物の製造方法

50

。

【0026】

【化3】



... (1)

10

【0027】

〔13〕前記反応工程における溶融反応を減圧下にて行う、〔12〕に記載のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法。

【0028】

〔14〕前記反応工程における溶融反応を真空度30kPa以下という条件で行う、〔12〕又は〔13〕に記載のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法。

【0029】

〔15〕前記化合物(C)が、無機塩(炭酸塩を含む)、カルボン酸塩、フェノレート、ハロゲン化合物、水酸化化合物からなるグループより選ばれる少なくとも1種である、〔12〕～〔14〕のいずれか1に記載のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法。

20

【0030】

〔16〕前記化合物(C)がナトリウム化合物、カリウム化合物、及びセシウム化合物からなるグループより選ばれる少なくとも1種である、〔12〕～〔15〕のいずれか1に記載のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法。

【0031】

〔17〕前記添加工程においては、さらにクラウンエーテル化合物(D)を添加し、前記化合物(C)の金属換算量に対する前記クラウンエーテル化合物(D)の添加量が0.1倍モル以上10倍モル以下である、〔12〕～〔16〕のいずれか1に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

30

【0032】

〔18〕前記添加工程において、さらに酸性化合物(E)を添加する、〔12〕～〔17〕のいずれか1に記載のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法。

【0033】

〔19〕前記酸性化合物(E)の添加量が、前記化合物(C)の金属の添加量に対して、0.1倍モル以上5倍モル以下である、〔18〕に記載のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法。

【0034】

また、参考発明の要旨は、下記の〔20〕に存する。

〔20〕全ジオールに由来する構成単位100モル%に対する下記式(1)で表される化合物に由来する構成単位の割合が50モル%を超えるポリカーボネート樹脂(A)と、

40

芳香族ポリカーボネート樹脂(B)と、を含有し、

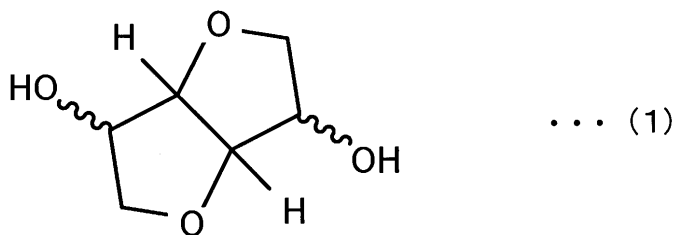
下記条件(I)及び(II)を満足するポリカーボネート樹脂組成物及び該ポリカーボネート樹脂組成物を含有してなる成形体。

(I)厚さ2mmの成形体の全光線透過率が80%以上。

(II)示差走査熱量分析により測定されるガラス転移温度が単一。

【0035】

【化 4】



【発明の効果】

10

【0036】

本発明及び参考発明のポリカーボネート樹脂組成物及びその成形体は、透明性に優れると共に、生物起源物資含有率、耐熱性、耐湿熱性、及び耐衝撃性を高いレベルでバランスよく兼ね備える。本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、上述のように添加工程及び反応工程を行うことにより得られる。

【発明を実施するための形態】

【0037】

以下に本発明の実施の形態を詳細に説明するが、以下に記載する構成要件の説明は、本発明の実施態様の一例（代表例）であり、本発明はその要旨を超えない限り、以下の内容に限定されない。

20

【0038】

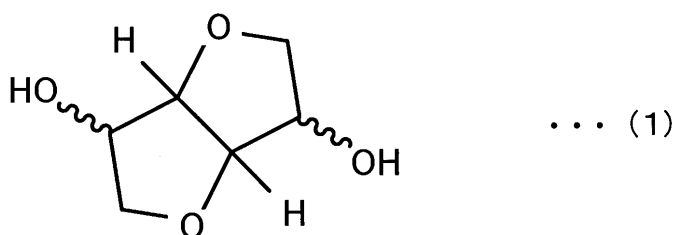
[ポリカーボネート樹脂 (A)]

ポリカーボネート樹脂 (A) は、下記式 (1) で表されるジヒドロキシ化合物に由来する構成単位（これを、適宜「構成単位 (a)」という）を含む。ポリカーボネート樹脂 (A) は、構成単位 (a) のホモポリカーボネート樹脂であってもよいし、構成単位 (a) 以外の構成単位を共重合したポリカーボネート樹脂であってもよい。耐衝撃性により優れるという観点からは、共重合ポリカーボネート樹脂であることが好ましい。

【0039】

【化 5】

30



【0040】

前記式 (1) で表されるジヒドロキシ化合物としては、立体異性体の関係にある、イソソルビド (ISB)、イソマンニド、およびイソイデットが挙げられる。これらは 1 種を単独で用いてもよく、2 種以上を組み合わせ用いてもよい。

40

【0041】

前記式 (1) で表されるジヒドロキシ化合物の中でも、植物由来の資源として豊富に存在し、容易に入手可能な種々のデンプンから製造されるソルビトールを脱水縮合して得られるイソソルビド (ISB) が、入手及び製造のし易さ、耐候性、光学特性、成形性、耐熱性及びカーボンニュートラルの面から最も好ましい。

【0042】

なお、前記式 (1) で表されるジヒドロキシ化合物は、酸素によって徐々に酸化されやすい。したがって、保管中又は製造時の取り扱いの際には、酸素による分解を防ぐため、水分が混入しないようにし、また、脱酸素剤を用いたり、窒素雰囲気下にしたりすること

50

が好ましい。

【0043】

また、ポリカーボネート樹脂（A）は、式（1）で表されるジヒドロキシ化合物に由来する構成単位（a）と、脂肪族炭化水素のジヒドロキシ化合物、脂環式炭化水素のジヒドロキシ化合物、及びエーテル含有ジヒドロキシ化合物からなる群より選ばれる1種以上のジヒドロキシ化合物に由来する構成単位（これを、適宜「構成単位（b）」という）とを含む共重合ポリカーボネート樹脂であることが好ましい。これらのジヒドロキシ化合物は、柔軟な分子構造を有するため、これらのジヒドロキシ化合物を原料として用いることにより、得られるポリカーボネート樹脂（A）の靱性を向上させることができる。これらのジヒドロキシ化合物の中でも、靱性を向上させる効果の大きい脂肪族炭化水素のジヒドロキシ化合物、脂環式炭化水素のジヒドロキシ化合物を用いることが好ましく、脂環式炭化水素のジヒドロキシ化合物を用いることが最も好ましい。脂肪族炭化水素のジヒドロキシ化合物、脂環式炭化水素のジヒドロキシ化合物、及びエーテル含有ジヒドロキシ化合物の具体例としては、以下の通りである。

10

【0044】

脂肪族炭化水素のジヒドロキシ化合物としては、例えば、以下のジヒドロキシ化合物を採用することができる。エチレングリコール、1, 3-プロパンジオール、1, 2-プロパンジオール、1, 4-ブタンジオール、1, 5-ヘプタンジオール、1, 6-ヘキサンジオール、1, 9-ノナンジオール、1, 10-デカンジオール、1, 12-ドデカンジオール等の直鎖脂肪族ジヒドロキシ化合物；1, 3-ブタンジオール、1, 2-ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、ヘキシレングリコール等の分岐鎖を有する脂肪族ジヒドロキシ化合物。

20

【0045】

脂環式炭化水素のジヒドロキシ化合物としては、例えば、以下のジヒドロキシ化合物を採用することができる。1, 2-シクロヘキサジメタノール、1, 3-シクロヘキサジメタノール、1, 4-シクロヘキサジメタノール、トリシクロデカンジメタノール、ペンタシクロペンタデカンジメタノール、2, 6-デカリンジメタノール、1, 5-デカリンジメタノール、2, 3-デカリンジメタノール、2, 3-ノルボルナンジメタノール、2, 5-ノルボルナンジメタノール、1, 3-アダマンタンジメタノール、リモネン等の、テルペン化合物から誘導されるジヒドロキシ化合物等に例示される、脂環式炭化水素の1級アルコールであるジヒドロキシ化合物；1, 2-シクロヘキサジオール、1, 4-シクロヘキサジオール、1, 3-アダマンタンジオール、水添ビスフェノールA、2, 2, 4, 4-テトラメチル-1, 3-シクロブタンジオール等に例示される、脂環式炭化水素の2級アルコール又は3級アルコールであるジヒドロキシ化合物。

30

【0046】

エーテル含有ジヒドロキシ化合物としては、オキシアルキレングリコール類やアセタール環を含有するジヒドロキシ化合物が挙げられる。

オキシアルキレングリコール類としては、例えば、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、ポリエチレングリコール及びポリプロピレングリコール等を採用することができる。

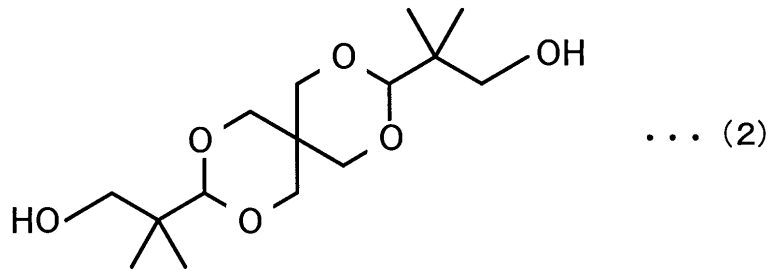
40

【0047】

アセタール環を含有するジヒドロキシ化合物としては、例えば、下記構造式（2）で表されるスピログリコールや、下記構造式（3）で表されるジオキサングリコール等を採用することができる。

【0048】

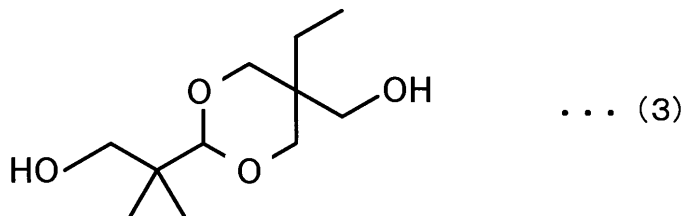
【化 6】



10

【0049】

【化 7】



20

【0050】

前記ポリカーボネート樹脂（A）において、全ジヒドロキシ化合物に由来する構成単位 100 モル％に対する前記構成単位（a）の含有割合は、特に限定されないが、40 モル％を超えることが好ましく、50 モル％を超えることがより好ましく、55 モル％以上 95 モル％以下であることがさらに好ましく、60 モル％以上 90 モル％以下であることが特に好ましく、65 モル％以上 85 モル％以下であることが最も好ましい。これらの場合には、生物起源物質含有率をより高めることができ、耐熱性をより向上させることができる。なお、ポリカーボネート樹脂（A）における構成単位（a）の含有割合は 100 モル％でも良いが、分子量をより高めるという観点及び耐衝撃性をより向上させるという観点からは、ポリカーボネート樹脂（A）においては、構成単位（a）以外の構成単位が共重合されていることが好ましい。

30

【0051】

また、前記ポリカーボネート樹脂（A）は、前記構成単位（a）及び前記構成単位（b）以外の構成単位を更に含んでもよい。このような構成単位（その他のジヒドロキシ化合物）としては、例えば、芳香族基を含有するジヒドロキシ化合物等を採用することができる。ただし、前記ポリカーボネート樹脂（A）に芳香族基を含有するジヒドロキシ化合物に由来する構成単位が多く含まれる場合には、前述の理由により高い分子量のポリカーボネート樹脂（A）が得られなくなり、耐衝撃性の向上効果が低下するおそれがある。したがって、耐衝撃性をより向上させるという観点からは、全ジヒドロキシ化合物に由来する構成単位 100 モル％に対して、芳香族基を含有するジヒドロキシ化合物に由来する構成単位の含有割合は、10 モル％以下であることが好ましく、5 モル％以下であること

40

【0052】

芳香族基を含有するジヒドロキシ化合物としては、例えば以下のジヒドロキシ化合物を採用することができるが、これら以外のジヒドロキシ化合物を採用することも可能である。2, 2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）プロパン、2, 2-ビス（3-メチル-4-ヒドロキシフェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシ-3, 5-ジメチルフェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシ-3, 5-ジエチルフェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシ-（3-フェニル）フェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシ-（3, 5-ジフェニル）フェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシ-3, 5-ジプロモフェニル）プロパン、ビス（4-ヒドロキシフェニル）メタ

50

ン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ブタン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ペンタン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-1-フェニルエタン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)ジフェニルメタン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-2-エチルヘキサン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)デカン、ビス(4-ヒドロキシ-3-ニトロフェニル)メタン、3, 3-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ペンタン、1, 3-ビス(2-(4-ヒドロキシフェニル)-2-プロピル)ベンゼン、1, 3-ビス(2-(4-ヒドロキシフェニル)-2-プロピル)ベンゼン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ヘキサフルオロプロパン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホン、2, 4'-ジヒドロキシジフェニルスルホン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルフィド、ビス(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)スルフィド、ビス(4-ヒドロキシフェニル)ジスルフィド、4, 4'-ジヒドロキシジフェニルエーテル、4, 4'-ジヒドロキシ-3, 3'-ジクロロジフェニルエーテル等の芳香族ビスフェノール化合物；2, 2-ビス(4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル)プロパン、2, 2-ビス(4-(2-ヒドロキシプロポキシ)フェニル)プロパン、1, 3-ビス(2-ヒドロキシエトキシ)ベンゼン、4, 4'-ビス(2-ヒドロキシエトキシ)ビフェニル、ビス(4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル)スルホン等の芳香族基に結合したエーテル基を有するジヒドロキシ化合物；9, 9-ビス(4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル)フルオレン、9, 9-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレン、9, 9-ビス(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)フルオレン、9, 9-ビス(4-(2-ヒドロキシプロポキシ)フェニル)フルオレン、9, 9-ビス(4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3-メチルフェニル)フルオレン、9, 9-ビス(4-(2-ヒドロキシプロポキシ)-3-メチルフェニル)フルオレン、9, 9-ビス(4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3-イソプロピルフェニル)フルオレン、9, 9-ビス(4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3-イソブチルフェニル)フルオレン、9, 9-ビス(4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3-tert-ブチルフェニル)フルオレン、9, 9-ビス(4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3-シクロヘキシルフェニル)フルオレン、9, 9-ビス(4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3-フェニルフェニル)フルオレン、9, 9-ビス(4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3, 5-ジメチルフェニル)フルオレン、9, 9-ビス(4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3-tert-ブチル-6-メチルフェニル)フルオレン、9, 9-ビス(4-(3-ヒドロキシ-2, 2-ジメチルプロポキシ)フェニル)フルオレン等のフルオレン環を有するジヒドロキシ化合物。

10

20

30

【0053】

前記その他のジヒドロキシ化合物は、ポリカーボネート樹脂(A)に要求される特性に応じて適宜選択することができる。また、前記その他のジヒドロキシ化合物は、1種のみを用いてもよく、複数種を併用してもよい。前記その他のジヒドロキシ化合物を前記式(1)で表されるジヒドロキシ化合物と併用することにより、ポリカーボネート樹脂(A)の柔軟性や機械物性の改善、及び成形性の改善などの効果を得ることが可能である。

【0054】

ポリカーボネート樹脂(A)の原料として用いられるジヒドロキシ化合物は、還元剤、抗酸化剤、脱酸素剤、光安定剤、制酸剤、pH安定剤又は熱安定剤等の安定剤を含んでも良い。特に、前記式(1)で表されるジヒドロキシ化合物は、酸性状態において変質しやすい性質を有する。したがって、ポリカーボネート樹脂(A)の合成過程において塩基性安定剤を使用することにより、前記式(1)で表されるジヒドロキシ化合物の変質を抑制することができ、ひいては得られるポリカーボネート樹脂組成物の品質をより向上させることができる。

40

【0055】

塩基性安定剤としては、例えば、以下の化合物を採用することができる。長周期型周期表(Nomenclature of Inorganic Chemistry IUPAC Recommendations 2005)における第I族又は第II族の金属の水酸化物、炭酸塩、リン酸塩、亜リン酸塩、次亜リン酸塩、硼

50

酸塩及び脂肪酸塩；テトラメチルアンモニウムヒドロキシド、テトラエチルアンモニウムヒドロキシド、テトラプロピルアンモニウムヒドロキシド、テトラブチルアンモニウムヒドロキシド、トリメチルエチルアンモニウムヒドロキシド、トリメチルベンジルアンモニウムヒドロキシド、トリメチルフェニルアンモニウムヒドロキシド、トリエチルメチルアンモニウムヒドロキシド、トリエチルベンジルアンモニウムヒドロキシド、トリエチルフェニルアンモニウムヒドロキシド、トリブチルベンジルアンモニウムヒドロキシド、トリブチルフェニルアンモニウムヒドロキシド、テトラフェニルアンモニウムヒドロキシド、ベンジルトリフェニルアンモニウムヒドロキシド、メチルトリフェニルアンモニウムヒドロキシド及びブチルトリフェニルアンモニウムヒドロキシド等の塩基性アンモニウム化合物；ジエチルアミン、ジブチルアミン、トリエチルアミン、モルホリン、N-メチルモルホリン、ピロリジン、ピペリジン、3-アミノ-1-プロパノール、エチレンジアミン、N-メチルジエタノールアミン、ジエチルエタノールアミン、ジエタノールアミン、トリエタノールアミン、4-アミノピリジン、2-アミノピリジン、N, N-ジメチル-4-アミノピリジン、4-ジエチルアミノピリジン、2-ヒドロキシピリジン、2-メトキシピリジン、4-メトキシピリジン、2-ジメチルアミノイミダゾール、2-メトキシイミダゾール、イミダゾール、2-メルカプトイミダゾール、2-メチルイミダゾール及びアミノキノリン等のアミン系化合物、並びにジ-（tert-ブチル）アミン及び2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン等のヒンダードアミン系化合物。

10

【0056】

前記ジヒドロキシ化合物中における前記塩基性安定剤の含有量に特に制限はないが、前記式（1）で表されるジヒドロキシ化合物は酸性状態では不安定であるため、塩基性安定剤を含むジヒドロキシ化合物の水溶液のpHが7付近となるように塩基性安定剤の含有量を設定することが好ましい。

20

【0057】

前記式（1）で表されるジヒドロキシ化合物に対する塩基性安定剤の含有量は、0.0001～1重量%であることが好ましい。この場合には、前記式（1）で表されるジヒドロキシ化合物の変質を防止する効果が十分に得られる。この効果をさらに高めるという観点から、塩基性安定剤の含有量は0.0001～0.1重量%であることがより好ましい。

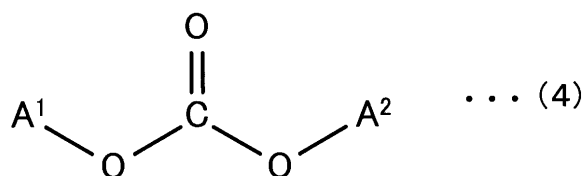
【0058】

前記ポリカーボネート樹脂（A）の原料に用いる炭酸ジエステルとしては、通常、下記一般式（4）で表される化合物を採用することができる。これらの炭酸ジエステルは、1種を単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

30

【0059】

【化8】



40

【0060】

前記一般式（4）において、A¹及びA²は、それぞれ置換もしくは無置換の炭素数1～18の脂肪族炭化水素基又は置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基であり、A¹とA²とは同一であっても異なってもよい。A¹及びA²としては、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基を採用することが好ましく、無置換の芳香族炭化水素基を採用することがより好ましい。

【0061】

前記一般式（4）で表される炭酸ジエステルとしては、例えば、ジフェニルカーボネート（DPC）及びジトリルカーボネート等の置換ジフェニルカーボネート、ジメチルカー

50

ポネート、ジエチルカーボネート並びにジ-tert-ブチルカーボネート等を採用することができる。これらの炭酸ジエステルの中でも、ジフェニルカーボネート又は置換ジフェニルカーボネートを用いることが好ましく、ジフェニルカーボネートを用いることが特に好ましい。なお、炭酸ジエステルは、塩化物イオンなどの不純物を含む場合があり、不純物が重縮合反応を阻害したり、得られるポリカーボネート樹脂（A）の色調を悪化させたりする場合があるため、必要に応じて、蒸留などにより精製したものを使用することが好ましい。

【0062】

ポリカーボネート樹脂（A）は、上述したジヒドロキシ化合物と炭酸ジエステルをエステル交換反応により重縮合させることにより合成できる。より詳細には、重縮合と共に、エステル交換反応において副生するモノヒドロキシ化合物等を系外に除去することによって得ることができる。

10

【0063】

前記エステル交換反応は、エステル交換反応触媒（以下、エステル交換反応触媒を「重合触媒」と言う。）の存在下で進行する。重合触媒の種類は、エステル交換反応の反応速度及び得られるポリカーボネート樹脂（A）の品質に非常に大きな影響を与え得る。

【0064】

重合触媒としては、得られるポリカーボネート樹脂（A）の透明性、色調、耐熱性、耐候性、及び機械的強度を満足させ得るものであれば限定されない。重合触媒としては、例えば、長周期型周期表における第I族又は第II族（一般に、長周期型周期表における第1族又は第2族と表記する場合もあるが、以下、単に「1族」、「2族」と表記する。）の金属化合物、並びに塩基性ホウ素化合物、塩基性リン化合物、塩基性アンモニウム化合物及びアミン系化合物等の塩基性化合物を使用することができ、中でも1族金属化合物及び／又は2族金属化合物が好ましい。

20

【0065】

前記の1族金属化合物としては、例えば、以下の化合物を採用することができる。水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化リチウム、水酸化セシウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム、炭酸水素リチウム、炭酸水素セシウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸リチウム、炭酸セシウム、酢酸ナトリウム、酢酸カリウム、酢酸リチウム、酢酸セシウム、ステアリン酸ナトリウム、ステアリン酸カリウム、ステアリン酸リチウム、ステアリン酸セシウム、水素化ホウ素ナトリウム、水素化ホウ素カリウム、水素化ホウ素リチウム、水素化ホウ素セシウム、フェニル化ホウ素ナトリウム、フェニル化ホウ素カリウム、フェニル化ホウ素リチウム、フェニル化ホウ素セシウム、安息香酸ナトリウム、安息香酸カリウム、安息香酸リチウム、安息香酸セシウム、リン酸水素2ナトリウム、リン酸水素2カリウム、リン酸水素2リチウム、リン酸水素2セシウム、フェニルリン酸2ナトリウム、フェニルリン酸2カリウム、フェニルリン酸2リチウム、フェニルリン酸2セシウム、ナトリウム、カリウム、リチウム、セシウムのアルコレート、フェノレート、ビスフェノールAの2ナトリウム塩、2カリウム塩、2リチウム塩及び2セシウム塩等。

30

1族金属化合物としては、重合活性と得られるポリカーボネート樹脂（A）の色調の観点から、リチウム化合物が好ましい。

40

【0066】

前記の2族金属化合物としては、例えば、以下の化合物を採用することができる。水酸化カルシウム、水酸化バリウム、水酸化マグネシウム、水酸化ストロンチウム、炭酸水素カルシウム、炭酸水素バリウム、炭酸水素マグネシウム、炭酸水素ストロンチウム、炭酸カルシウム、炭酸バリウム、炭酸マグネシウム、炭酸ストロンチウム、酢酸カルシウム、酢酸バリウム、酢酸マグネシウム、酢酸ストロンチウム、ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸バリウム、ステアリン酸マグネシウム及びステアリン酸ストロンチウム等。

ポリカーボネート樹脂組成物を成形してなる成形体の透明性、初期Haze（ヘーズ）、耐衝撃性をより向上できるという観点からは、重合触媒は、2族金属化合物であることがより好ましい。成形体の透明性、初期Haze（ヘーズ）、耐衝撃性をさらにより向上

50

できるという観点からは、2族金属化合物としては、マグネシウム化合物、カルシウム化合物又はバリウム化合物が好ましく、重合活性と得られるポリカーボネート樹脂(A)の色調の観点から、マグネシウム化合物及び／又はカルシウム化合物が更に好ましく、カルシウム化合物が最も好ましい。

【0067】

なお、前記の1族金属化合物及び／又は2族金属化合物と共に補助的に、塩基性ホウ素化合物、塩基性リン化合物、塩基性アンモニウム化合物、アミン系化合物等の塩基性化合物を併用することも可能であるが、1族金属化合物及び／又は2族金属化合物のみを使用することが特に好ましい。

【0068】

前記の塩基性リン化合物としては、例えば、以下の化合物を採用することができる。トリエチルホスフィン、トリーn-プロピルホスフィン、トリイソプロピルホスフィン、トリーn-ブチルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリブチルホスフィン及び四級ホスホニウム塩等。

【0069】

前記の塩基性アンモニウム化合物としては、例えば、以下の化合物を採用することができる。テトラメチルアンモニウムヒドロキシド、テトラエチルアンモニウムヒドロキシド、テトラプロピルアンモニウムヒドロキシド、テトラブチルアンモニウムヒドロキシド、トリメチルエチルアンモニウムヒドロキシド、トリメチルベンジルアンモニウムヒドロキシド、トリメチルフェニルアンモニウムヒドロキシド、トリエチルメチルアンモニウムヒドロキシド、トリエチルベンジルアンモニウムヒドロキシド、トリエチルフェニルアンモニウムヒドロキシド、トリブチルベンジルアンモニウムヒドロキシド、トリブチルフェニルアンモニウムヒドロキシド、テトラフェニルアンモニウムヒドロキシド、ベンジルトリフェニルアンモニウムヒドロキシド、メチルトリフェニルアンモニウムヒドロキシド及びブチルトリフェニルアンモニウムヒドロキシド等。

【0070】

前記のアミン系化合物としては、例えば、以下の化合物を採用することができる。4-アミノピリジン、2-アミノピリジン、N,N-ジメチル-4-アミノピリジン、4-ジエチルアミノピリジン、2-ヒドロキシピリジン、2-メトキシピリジン、4-メトキシピリジン、2-ジメチルアミノイミダゾール、2-メトキシイミダゾール、イミダゾール、2-メルカプトイミダゾール、2-メチルイミダゾール、アミノキノリン及びグアニジン等。

【0071】

前記重合触媒の使用量は、反応に使用した全ジヒドロキシ化合物1mol当たり0.1~300μmolであることが好ましく、0.5~100μmolであることがより好ましく、1~50μmolであることが特に好ましい。

【0072】

重合触媒として、長周期型周期表における第2族金属を含む化合物を用いる場合、特にマグネシウム化合物及び／又はカルシウム化合物を用いる場合は、重合触媒の使用量は、該金属を含む化合物の金属原子量として、反応に使用した全ジヒドロキシ化合物1mol当たり、0.1μmol以上が好ましく、0.3μmol以上がより好ましく、0.5μmol以上が特に好ましい。また上限としては、10μmol以下が好ましく、5μmol以下がより好ましく、3μmol以下が特に好ましい。

なお、重合時に触媒として用いた化合物は、特段の精製作業を行わない場合、ポリカーボネート樹脂自体にも製造時に用いた量と同等の量が残留することとなる。

【0073】

重合触媒の使用量を上述の範囲に調整することにより、重合速度を高めることができるため、重合温度を必ずしも高くすることなく所望の分子量のポリカーボネート樹脂(A)を得ることが可能になるため、ポリカーボネート樹脂(A)の色調の悪化を抑制することができる。また、未反応の原料が重合途中で揮発してジヒドロキシ化合物と炭酸ジエステ

10

20

30

40

50

ルのモル比率が崩れてしまうことを防止することができるため、所望の分子量の樹脂をより確実に得ることができる。さらに、副反応の併発を抑制することができるため、ポリカーボネート樹脂（A）の色調の悪化又は成形加工時の着色をより一層防止することができる。

【0074】

1族金属の中でもナトリウム、カリウム、又はセシウムがポリカーボネート樹脂（A）の色調へ与える悪影響や、鉄がポリカーボネート樹脂（A）の色調へ与える悪影響を考慮すると、ポリカーボネート樹脂（A）中のナトリウム、カリウム、セシウム、及び鉄の合計含有量は、1重量ppm以下であることが好ましい。この場合には、ポリカーボネート樹脂（A）の色調の悪化をより一層防止することができ、ポリカーボネート樹脂（A）の色調をより一層良好なものにすることができる。同様の観点から、ポリカーボネート樹脂（A）中のナトリウム、カリウム、セシウム、及び鉄の合計含有量は、0.5重量ppm以下であることがより好ましい。なお、これらの金属は使用する触媒からのみではなく、原料又は反応装置から混入する場合がある。出所にかかわらず、ポリカーボネート樹脂（A）中のこれらの金属の化合物の合計量は、ナトリウム、カリウム、セシウム及び鉄の合計の含有量として、上述の範囲にすることが好ましい。

【0075】

（ポリカーボネート樹脂（A）の合成）

ポリカーボネート樹脂（A）は、前記式（1）で表されるジヒドロキシ化合物等のように原料として用いられるジヒドロキシ化合物と、炭酸ジエステルとを、重合触媒の存在下、エステル交換反応により重縮合させることによって得られる。

【0076】

原料であるジヒドロキシ化合物と炭酸ジエステルは、エステル交換反応前に均一に混合することが好ましい。混合の温度は通常80℃以上、好ましくは90℃以上、かつ、通常250℃以下、好ましくは200℃以下、更に好ましくは150℃以下の範囲とし、中でも100℃以上120℃以下が好適である。この場合には、溶解速度を高めたり、溶解度を十分に向上させたりすることができ、固化等の不具合を十分に回避することができる。さらに、この場合には、ジヒドロキシ化合物の熱劣化を十分に抑制することができ、結果的に得られるポリカーボネート樹脂（A）の色調をより一層良好なものにできると共に、耐候性の向上も可能になる。

【0077】

原料のジヒドロキシ化合物と炭酸ジエステルとを混合する操作は、酸素濃度10vol%以下、更には0.0001～10vol%、中でも0.0001～5vol%、特に0.0001～1vol%の雰囲気下で行うことが好ましい。この場合には、色調をより良好なものにできると共に、反応性を高めることができる。

【0078】

ポリカーボネート樹脂（A）を得るためには、反応に用いる全ジヒドロキシ化合物に対して、炭酸ジエステルを0.90～1.20のモル比率で用いることが好ましい。この場合には、ポリカーボネート樹脂（A）のヒドロキシ基末端量の増加を抑制することができるため、ポリマーの熱安定性の向上が可能になる。そのため、成形時の着色をより一層防止したり、エステル交換反応の速度を向上させたりすることができる。また、所望の高分子量体をより確実に得ることが可能になる。さらに炭酸ジエステルの使用量を前記範囲内に調整することにより、エステル交換反応の速度が低下を抑制することができ、所望の分子量のポリカーボネート樹脂（A）のより確実な製造が可能になる。また、この場合には、反応時の熱履歴の増大を抑制することができるため、ポリカーボネート樹脂（A）の色調や耐候性をより一層良好なものにすることができる。さらにこの場合には、ポリカーボネート樹脂（A）中の残存炭酸ジエステル量を減少させることができ、成形時の汚れや臭気の発生を回避又は緩和することができる。以上と同様の観点から、全ジヒドロキシ化合物に対する炭酸ジエステル使用量は、モル比率で、0.95～1.10であることがより好ましい。

【0079】

ジヒドロキシ化合物と炭酸ジエステルとを重縮合させる方法は、上述の触媒存在下、複数の反応器を用いて多段階で実施される。反応の形式は、バッチ式、連続式、あるいはバッチ式と連続式の組み合わせの方法があるが、より少ない熱履歴でポリカーボネート樹脂（A）が得られ、生産性にも優れている連続式を採用することが好ましい。

【0080】

重合速度の制御や得られるポリカーボネート樹脂（A）の品質の観点からは、反応段階に応じてジャケット温度と内温、反応系内の圧力を適切に選択することが重要である。具体的には、重縮合反応の反応初期においては相対的に低温、低真空でプレポリマーを得、反応後期においては相対的に高温、高真空で所定の値まで分子量を上昇させることが好ましい。この場合には、未反応のモノマーの留出を抑制し、ジヒドロキシ化合物と炭酸ジエステルとのモル比率を所望の比率に調整し易くなる。その結果、重合速度の低下を抑制することができる。また、所望の分子量や末端基を持つポリマーをより確実に得ることが可能になる。

10

【0081】

また、重縮合反応における重合速度はヒドロキシ基末端とカーボネート基末端のバランスによって制御される。そのため、未反応モノマーの留出によって末端基のバランスが変動すると、重合速度を一定に制御することが難しくなり、得られる樹脂の分子量の変動が大きくなるおそれがある。樹脂の分子量は溶融粘度と相関するため、得られた樹脂を溶融加工する際に、溶融粘度が変動し、成形品の品質を一定に保つことが難しくなることがある。かかる問題は、特に連続式で重縮合反応を行う場合に起こりやすい。

20

【0082】

留出する未反応モノマーの量を抑制するためには、重合反応器に還流冷却器を用いることが有効であり、特に未反応モノマーが多い反応初期において高い効果を示す。還流冷却器に導入される冷媒の温度は使用するモノマーに応じて適宜選択することができるが、通常、還流冷却器に導入される冷媒の温度は該還流冷却器の入口において45～180℃であり、好ましくは80～150℃、特に好ましくは100～130℃である。冷媒温度をこれらの範囲に調整することにより、還流量を十分に高め、その効果が十分得られると共に、留去すべきモノヒドロキシ化合物の留去効率を十分に向上させることができる。その結果、反応率の低下を防止することができ、得られる樹脂の着色をより一層防止することができる。冷媒としては、温水、蒸気、熱媒オイル等が用いられ、蒸気、熱媒オイルが好ましい。

30

【0083】

重合速度を適切に維持し、モノマーの留出を抑制しながら、得られるポリカーボネート樹脂（A）の色調をより良好なものにするためには、前述の重合触媒の種類と量の選定が重要である。

【0084】

ポリカーボネート樹脂（A）は、重合触媒を用いて、通常、2段階以上の工程を経て製造される。重縮合反応は、1つの重縮合反応器を用い、順次条件を変えて2段階以上の工程で行ってもよいが、生産効率の観点からは、複数の反応器を用い、それぞれの条件を変えて多段階で行うことが好ましい。

40

【0085】

重縮合反応を効率よく行う観点から、反応液中に含まれるモノマーが多い反応初期においては、必要な重合速度を維持しつつ、モノマーの揮散を抑制することが重要である。また、反応後期においては、副生するモノヒドロキシ化合物を十分留去させることにより、平衡を重縮合反応側にシフトさせることが重要になる。従って、反応初期に好適な反応条件と、反応後期に好適な反応条件とは通常異なっている。それ故、直列に配置された複数の反応器を用いることにより、それぞれの条件を容易に変更することができ、生産効率を向上させることができる。

【0086】

50

ポリカーボネート樹脂（Ａ）の製造に使用される重合反応器は、上述の通り、少なくとも２つであればよいが、生産効率などの観点からは、３つ以上、好ましくは３～５つ、特に好ましくは４つである。重合反応器が２つ以上であれば、各重合反応器中で、更に条件の異なる反応段階を複数行ったり、連続的に温度・圧力を変えたりしてもよい。

【００８７】

重合触媒は、原料調製槽や原料貯槽に添加することもできるし、重合反応器に直接添加することもできる。供給の安定性、重縮合反応の制御の観点からは、重合反応器に供給される前の原料ラインの途中に触媒供給ラインを設置し、水溶液で重合触媒を供給することが好ましい。

【００８８】

10

重縮合反応の温度を調整することにより、生産性の向上や製品への熱履歴の増大の回避が可能になる。さらに、モノマーの揮散、及びポリカーボネート樹脂（Ａ）の分解や着色をより一層防止することが可能になる。具体的には、第１段目の反応における反応条件としては、以下の条件を採用することができる。即ち、重合反応器の内温の最高温度は、通常１５０～２５０℃、好ましくは１６０～２４０℃、更に好ましくは１７０～２３０℃の範囲で設定する。また、重合反応器の圧力（以下、圧力とは絶対圧力を表す）は、通常１～１１０ｋＰａ、好ましくは５～７０ｋＰａ、さらに好ましくは７～３０ｋＰａの範囲で設定する。また、反応時間は、通常０．１～１０時間、好ましくは０．５～３時間の範囲で設定する。第１段目の反応は、発生するモノヒドロキシ化合物を反応系外へ留去しながら実施されることが好ましい。

20

【００８９】

第２段目以降は、反応系の圧力を第１段目の圧力から徐々に下げ、引き続き発生するモノヒドロキシ化合物を反応系外へ除きながら、最終的には反応系の圧力（絶対圧力）を１ｋＰａ以下にすることが好ましい。また、重合反応器の内温の最高温度は、通常２００～２６０℃、好ましくは２１０～２５０℃の範囲で設定する。また、反応時間は、通常０．１～１０時間、好ましくは０．３～６時間、特に好ましくは０．５～３時間の範囲で設定する。

【００９０】

ポリカーボネート樹脂（Ａ）の着色や熱劣化をより一層抑制し、色調がより一層良好なポリカーボネート樹脂（Ａ）を得るという観点からは、全反応段階における重合反応器の内温の最高温度を２１０～２４０℃とすることが好ましい。また、反応後半の重合速度の低下を抑止し、熱履歴による劣化を最小限に抑えるためには、重縮合反応の最終段階でプラグフロー性と界面更新性に優れた横型反応器を使用することが好ましい。

30

【００９１】

連続重合において、最終的に得られるポリカーボネート樹脂（Ａ）の分子量を一定水準に制御するには、必要に応じて重合速度を調節することが好ましい。その場合は、最終段の重合反応器の圧力を調整することが操作性の良い方法である。

【００９２】

また、前述したようにヒドロキシ基末端とカーボネート基末端の比率によって重合速度が変化するため、あえて片方の末端基を減らして、重合速度を抑制し、その分、最終段の重合反応器の圧力を高真空に保つことで、モノヒドロキシ化合物をはじめとした樹脂中の残存低分子成分を低減することができる。しかし、この場合には、片方の末端が少なくなると、末端基バランスが少し変動しただけで、極端に反応性が低下し、得られるポリカーボネート樹脂（Ａ）の分子量が所望の分子量に満たなくなるおそれがある。かかる問題を回避するため、最終段の重合反応器で得られるポリカーボネート樹脂（Ａ）は、ヒドロキシ基末端とカーボネート基末端とも１０ｍｏｌ／ｔｏｎ以上含有することが好ましい。一方、両方の末端基が多すぎると、重合速度が速くなり、分子量が高くなりすぎてしまうため、片方の末端基は６０ｍｏｌ／ｔｏｎ以下であることが好ましい。

40

【００９３】

このようにして、末端基の量と最終段の重合反応器の圧力を好ましい範囲に調整するこ

50

とで、重合反応器の出口において、樹脂中のモノヒドロキシ化合物の残存量を低減することができる。重合反応器の出口における樹脂中のモノヒドロキシ化合物の残存量は、2000重量ppm以下であることが好ましく、1500重量ppm以下であることがより好ましく、1000重量ppm以下であることが更に好ましい。このように、重合反応器の出口におけるモノヒドロキシ化合物の含有量を低減することにより、後の工程においてモノヒドロキシ化合物等の脱揮を容易に行うことができる。

【0094】

モノヒドロキシ化合物の残存量は少ない方が好ましいが、100重量ppm未満まで減らそうとすると、片方の末端基の量を極端に少なくし、重合反応器の圧力を高真空に保つような運転条件を取る必要がある。この場合には、前述のとおり、得られるポリカーボネート樹脂(A)の分子量を一定水準に保つことが難しくなるので、モノヒドロキシ化合物の残存量は通常100重量ppm以上、好ましくは150重量ppm以上である。

【0095】

副生したモノヒドロキシ化合物は、資源有効活用の観点から、必要に応じて精製を行った後、他の化合物の原料として再利用することが好ましい。例えば、モノヒドロキシ化合物がフェノールである場合、ジフェニルカーボネートやビスフェノールA等の原料として用いることができる。

【0096】

ポリカーボネート樹脂(A)のガラス転移温度は、90℃以上が好ましい。この場合には、前記ポリカーボネート樹脂組成物の耐熱性と生物起源物質含有率とをバランス良く向上させることができる。同様の観点から、ポリカーボネート樹脂(A)のガラス転移温度は、100℃以上がより好ましく、110℃以上がさらに好ましく、120℃以上が特に好ましい。一方、ポリカーボネート樹脂(A)のガラス転移温度は170℃以下が好ましい。この場合には、前述の熔融重合によって熔融粘度を小さくすることができ、十分な分子量のポリマーを得ることができる。また、重合温度を高くして熔融粘度を下げることににより、分子量を高くしようとした場合には、構成成分(a)の耐熱性が充分でないため、着色し易くなるおそれがある。分子量の向上と着色の防止をよりバランス良く向上できるという観点から、ポリカーボネート樹脂(A)のガラス転移温度は、165℃以下がより好ましく、160℃以下がさらに好ましく、150℃以下が特に好ましい。

【0097】

ポリカーボネート樹脂(A)の分子量は、還元粘度で表すことができ、還元粘度が高いほど分子量が大きいことを示す。還元粘度は、通常0.30dL/g以上であり、0.33dL/g以上が好ましい。この場合には、成形品の機械的強度をより向上させることができる。一方、還元粘度は、通常1.20dL/g以下であり、1.00dL/g以下がより好ましく、0.80dL/g以下が更に好ましい。これらの場合には、成形時の流動性を向上させることができ、生産性や成形性をより向上させることができる。なお、ポリカーボネート樹脂(A)の還元粘度は、塩化メチレンを溶媒として樹脂組成物の濃度を0.6g/dLに精密に調整した溶液を用いて、ウペローデ粘度管により温度20.0℃±0.1℃の条件下で測定した値を使用する。還元粘度の測定方法の詳細は実施例において説明する。

【0098】

ポリカーボネート樹脂(A)の熔融粘度は、400Pa・s以上3000Pa・s以下が好ましい。この場合には、樹脂組成物の成形品が脆くなることを防止し、機械物性をより向上させることができる。さらにこの場合には、成形加工時における流動性を向上させる、成形品の外観が損なわれたり、寸法精度が悪化したりすることを防止することができる。さらにこの場合には、剪断発熱により樹脂温度が上昇することに起因する、着色や発泡をより一層防止することができる。同様の観点から、ポリカーボネート樹脂(A)の熔融粘度は、600Pa・s以上2500Pa・s以下であることがより好ましく、800Pa・s以上2000Pa・s以下であることがさらに好ましい。なお、本明細書において熔融粘度とは、キャピラリーレオメータ〔東洋精機(株)製〕を用いて測定される、

10

20

30

40

50

温度 240℃、切断速度 91.2 sec⁻¹における溶融粘度をいう。溶融粘度の測定方法の詳細は、後述の実施例において説明する。

【0099】

ポリカーボネート樹脂（A）は、触媒失活剤を含むことが好ましい。触媒失活剤としては、酸性物質で、重合触媒の失活機能を有するものであれば特に限定されないが、例えば、リン酸、リン酸トリメチル、リン酸トリエチル、亜リン酸、オクチルスルホン酸テトラブチルホスホニウム塩、ベンゼンスルホン酸テトラメチルホスホニウム塩、ベンゼンスルホン酸テトラブチルホスホニウム塩、ドデシルベンゼンスルホン酸テトラブチルホスホニウム塩、P-トルエンスルホン酸テトラブチルホスホニウム塩のごときホスホニウム塩；デシルスルホン酸テトラメチルアンモニウム塩、ドデシルベンゼンスルホン酸テトラブチルアンモニウム塩のごときアンモニウム塩；およびベンゼンスルホン酸メチル、ベンゼンスルホン酸ブチル、p-トルエンスルホン酸メチル、p-トルエンスルホン酸ブチル、ヘキサデシルスルホン酸エチルのごときアルキルエステル等を挙げることができる。

10

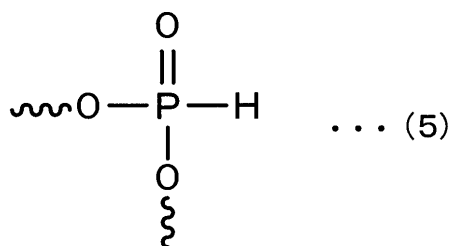
【0100】

前記触媒失活剤は、下記構造式（5）または下記構造式（6）で表される部分構造のいずれかを含むリン系化合物（以下、「特定リン系化合物」という。）を含んでいることが好ましい。前記特定リン系化合物は、重縮合反応が完了した後、即ち、例えば混練工程やペレット化工程等の際に添加することにより後述する重合触媒を失活させ、それ以降に重縮合反応が不要に進行することを抑制できる。その結果、成形工程等においてポリカーボネート樹脂（A）が加熱された際の重縮合の進行を抑制でき、ひいては前記モノヒドロキシ化合物の脱離を抑制することができる。また、重合触媒を失活させることにより、高温下でのポリカーボネート樹脂（A）の着色をより一層抑制することができる。

20

【0101】

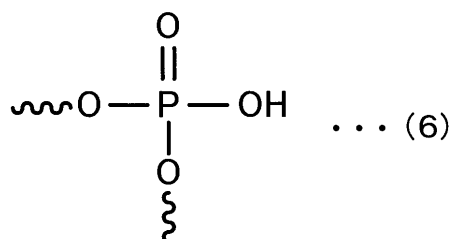
【化9】



30

【0102】

【化10】



40

【0103】

前記構造式（5）または構造式（6）で表される部分構造を含む特定リン系化合物としては、リン酸、亜リン酸、ホスホン酸、次亜リン酸、ポリリン酸、ホスホン酸エステル、酸性リン酸エステル等を採用することができる。特定リン系化合物のうち、触媒失活と着色抑制の効果がさらに優れているのは、亜リン酸、ホスホン酸、ホスホン酸エステルであり、特に亜リン酸が好ましい。

【0104】

ホスホン酸としては、例えば以下の化合物を採用することができる。ホスホン酸（亜リ

50

ン酸)、メチルホスホン酸、エチルホスホン酸、ビニルホスホン酸、デシルホスホン酸、フェニルホスホン酸、ベンジルホスホン酸、アミノメチルホスホン酸、メチレンジホスホン酸、1-ヒドロキシエタン-1, 1-ジホスホン酸、4-メトキシフェニルホスホン酸、ニトリロトリス(メチレンホスホン酸)、プロピルホスホン酸無水物等。

【0105】

ホスホン酸エステルとしては、例えば以下の化合物を採用することができる。ホスホン酸ジメチル、ホスホン酸ジエチル、ホスホン酸ビス(2-エチルヘキシル)、ホスホン酸ジラウリル、ホスホン酸ジオレイル、ホスホン酸ジフェニル、ホスホン酸ジベンジル、メチルホスホン酸ジメチル、メチルホスホン酸ジフェニル、エチルホスホン酸ジエチル、ベンジルホスホン酸ジエチル、フェニルホスホン酸ジメチル、フェニルホスホン酸ジエチル、フェニルホスホン酸ジプロピル、(メトキシメチル)ホスホン酸ジエチル、ビニルホスホン酸ジエチル、ヒドロキシメチルホスホン酸ジエチル、(2-ヒドロキシエチル)ホスホン酸ジメチル、p-メチルベンジルホスホン酸ジエチル、ジエチルホスホノ酢酸、ジエチルホスホノ酢酸エチル、ジエチルホスホノ酢酸tert-ブチル、(4-クロロベンジル)ホスホン酸ジエチル、シアノホスホン酸ジエチル、シアノメチルホスホン酸ジエチル、3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホン酸ジエチル、ジエチルホスホノアセトアルデヒドジエチルアセタール、(メチルチオメチル)ホスホン酸ジエチル等。

10

【0106】

酸性リン酸エステルとしては、例えば以下の化合物を採用することができる。リン酸ジメチル、リン酸ジエチル、リン酸ジビニル、リン酸ジプロピル、リン酸ジブチル、リン酸ビス(ブトキシエチル)、リン酸ビス(2-エチルヘキシル)、リン酸ジイソトリデシル、リン酸ジオレイル、リン酸ジステアリル、リン酸ジフェニル、リン酸ジベンジルなどのリン酸ジエステル、又はジエステルとモノエステルの混合物、クロロリン酸ジエチル、リン酸ステアリル亜鉛塩等。

20

【0107】

前記特定リン系化合物は1種を単独で用いてもよく、2種以上を任意の組み合わせ及び比率で混合して用いてもよい。

【0108】

前記ポリカーボネート樹脂(A)中の特定リン系化合物の含有量は、リン原子として0.1重量ppm以上5重量ppm以下であることが好ましい。この場合には、前記特定リン系化合物による触媒失活や着色抑制の効果を十分に得ることができる。また、この場合には、特に高温・高湿度での耐久試験において、ポリカーボネート樹脂(A)の着色をより一層防止することができる。

30

【0109】

また、前記特定リン系化合物の含有量を重合触媒の量に応じて調節することにより、触媒失活や着色抑制の効果をより確実に得ることができる。前記特定リン系化合物の含有量は、重合触媒の金属原子1molに対して、リン原子の量として0.5倍mol以上5倍mol以下とすることが好ましく、0.7倍mol以上4倍mol以下とすることがより好ましく、0.8倍mol以上3倍mol以下とすることが特に好ましい。

40

なお、ポリカーボネート樹脂組成物中の酸性化合物(E)の含有量は、ICP-MS(誘導結合プラズマ質量分析計)を用いて、酸性化合物(E)に含まれる元素の量として測定できる。

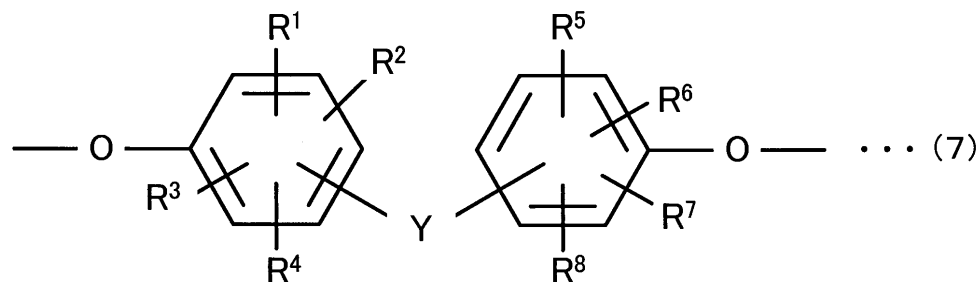
【0110】

[芳香族ポリカーボネート樹脂(B)]

芳香族ポリカーボネート樹脂(B)としては、例えば下記一般式(7)で表される芳香族ジヒドロキシ化合物に由来する構成単位を主構成単位とするポリカーボネート樹脂がある。

【0111】

【化 1 1】



10

【0 1 1 2】

前記一般式（7）中の $R^1 \sim R^8$ は、それぞれ独立に、水素原子または置換基を示す。Y は、単結合または2価基を示す。一般式（7）中の $R^1 \sim R^8$ の置換基としては、置換基を有していてもよい炭素数1～10のアルキル基、置換基を有していてもよい炭素数1～10のアルコキシ基、ハロゲン基、炭素数1～10のハロゲン化アルキル基、または置換基を有していてもよい炭素数6～20の芳香族基を示す。これらの中でも、置換基を有していてもよい炭素数1～10のアルキル基、または置換基を有していてもよい炭素数6～20の芳香族基が好ましい。一般式（7）中の Y の2価基としては、置換基を有していてもよい炭素数1～6の鎖状構造のアルキレン基、置換基を有していてもよい炭素数1～6の鎖状構造のアルキリデン基、置換基を有していてもよい炭素数3～6の環状構造のアルキレン基、置換基を有していてもよい炭素数3～6の環状構造のアルキリデン基、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-CO-$ または $-SO_2-$ があげられる。ここで、置換基としては、本発明の効果を阻害されない限りにおいて、特に限定されないが、通常、分子量が200以下のものである。また、炭素数1～6の鎖状構造のアルキレン基が有する置換基としては、アリール基が好ましく、特にフェニル基が好ましい。

20

【0 1 1 3】

芳香族ポリカーボネート樹脂（B）は、単独重合体であっても共重合体であっても構わないが、共重合体である場合、ジヒドロキシ化合物に由来する全構成単位中、前記一般式（7）で表される芳香族ジヒドロキシ化合物に由来する構成単位が最も多いポリカーボネート樹脂であることが好ましい。芳香族ポリカーボネート樹脂（B）においては、全ジヒドロキシ化合物に由来する全構成単位100モル%に対する、前記一般式（7）で表される芳香族ジヒドロキシ化合物に由来する構成単位の含有割合が、50モル%以上であることがより好ましく、70モル%以上であることがさらに好ましく、90モル%以上であることが特に好ましい。

30

【0 1 1 4】

また、芳香族ポリカーボネート樹脂（B）は、分岐構造であっても、直鎖構造であってもよいし、分岐構造と直鎖構造との混合物であってもよい。さらに、芳香族ポリカーボネート樹脂（B）は、前記式（1）で表される部位を有するジヒドロキシ化合物に由来する構成単位を含むものであっても構わない。ただし、前記式（1）で表される部位を有するジヒドロキシ化合物に由来する構成単位を含むものである場合、ポリカーボネート樹脂（A）とは異なる構成単位のポリカーボネート樹脂が使用される。

40

【0 1 1 5】

芳香族ポリカーボネート樹脂（B）を構成するジヒドロキシ化合物に由来する構成単位は、ジヒドロキシ化合物の水酸基から水素原子を除いたものである。相当する、ジヒドロキシ化合物の具体例としては、下記のものがあげられる。

4, 4'-ビフェノール、2, 4'-ビフェノール、3, 3'-ジメチル-4, 4'-ジヒドロキシ-1, 1'-ビフェニル、3, 3'-ジメチル-2, 4'-ジヒドロキシ-1, 1'-ビフェニル、3, 3'-ジ-（*t*-ブチル）-4, 4'-ジヒドロキシ-1, 1'-ビフェニル、3, 3', 5, 5'-テトラメチル-4, 4'-ジヒドロキシ-1, 1'-ビフェニル、3, 3', 5, 5'-テトラ-（*t*-ブチル）-4, 4'-ジヒドロ

50

キシ-1, 1'-ビフェニル、2, 2', 3, 3', 5, 5'-ヘキサメチル-4, 4'-ジヒドロキシ-1, 1'-ビフェニル等のビフェニル化合物。

【0116】

ビス-(4-ヒドロキシ-3, 5-ジメチルフェニル)メタン、ビス-(4-ヒドロキシフェニル)メタン、ビス-(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)メタン、1, 1'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)エタン、1, 1'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2'-ビス-(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)プロパン、2, 2'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)ブタン、2, 2'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)ペンタン、2, 2'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-3-メチルブタン、2, 2'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)ヘキサン、2, 2'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-4-メチルペンタン、1, 1'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)シクロペンタン、1, 1'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、ビス-(3-フェニル-4-ヒドロキシフェニル)メタン、1, 1'-ビス-(3-フェニル-4-ヒドロキシフェニル)エタン、1, 1'-ビス-(3-フェニル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2'-ビス-(3-フェニル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、1, 1'-ビス-(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)エタン、2, 2'-ビス-(4-ヒドロキシ-3-エチルフェニル)プロパン、2, 2'-ビス-(4-ヒドロキシ-3-イソプロピルフェニル)プロパン、2, 2'-ビス-(4-ヒドロキシ-3-sec-ブチルフェニル)プロパン、1, 1'-ビス-(4-ヒドロキシ-3, 5-ジメチルフェニル)エタン、2, 2'-ビス-(4-ヒドロキシ-3, 5-ジメチルフェニル)プロパン、1, 1'-ビス-(4-ヒドロキシ-3, 6-ジメチルフェニル)エタン、ビス-(4-ヒドロキシ-2, 3, 5-トリメチルフェニル)メタン、1, 1'-ビス-(4-ヒドロキシ-2, 3, 5-トリメチルフェニル)エタン、2, 2'-ビス-(4-ヒドロキシ-2, 3, 5-トリメチルフェニル)プロパン、ビス-(4-ヒドロキシ-2, 3, 5-トリメチルフェニル)フェニルメタン、1, 1'-ビス-(4-ヒドロキシ-2, 3, 5-トリメチルフェニル)フェニルエタン、1, 1'-ビス-(4-ヒドロキシ-3, 3, 5-トリメチルフェニル)シクロヘキサン、ビス-(4-ヒドロキシフェニル)フェニルメタン、1, 1'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-1-フェニルエタン、1, 1'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-1-フェニルプロパン、ビス-(4-ヒドロキシフェニル)ジフェニルメタン、ビス-(4-ヒドロキシフェニル)ジベンジルメタン、4, 4'-[1, 4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス-[フェノール]、4, 4'-[1, 4-フェニレンビスメチレン]ビス-[フェノール]、4, 4'-[1, 4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス-[2, 6-ジメチルフェノール]、4, 4'-[1, 4-フェニレンビスメチレン]ビス-[2, 6-ジメチルフェノール]、4, 4'-[1, 4-フェニレンビスメチレン]ビス-[2, 3, 6-トリメチルフェノール]、4, 4'-[1, 4-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス-[2, 3, 6-トリメチルフェノール]、4, 4'-[1, 3-フェニレンビス(1-メチルエチリデン)]ビス-[2, 3, 6-トリメチルフェノール]、4, 4'-ジヒドロキシジフェニルエーテル、4, 4'-ジヒドロキシジフェニルスルホン、4, 4'-ジヒドロキシジフェニルスルフィド、3, 3', 5, 5'-テトラメチル-4, 4'-ジヒドロキシジフェニルエーテル、3, 3', 5, 5'-テトラメチル-4, 4'-ジヒドロキシジフェニルスルホン、3, 3', 5, 5'-テトラメチル-4, 4'-ジヒドロキシジフェニルスルフィドフェノールフタルレイン、4, 4'-[1, 4-フェニレンビス(1-メチルビニリデン)]ビスフェノール、4, 4'-[1, 4-フェニレンビス(1-メチルビニリデン)]ビス[2-メチルフェノール]、(2-ヒドロキシフェニル)(4-ヒドロキシフェニル)メタン、(2-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)メタン、1, 1'-(2-ヒドロキシフェニル)(4-ヒドロキシフェニル)エタン、2, 2'-(2-ヒドロキシフェニル)(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、1, 1'-(2-ヒドロキシフェニル)(4-ヒドロキシフェニル)プロパンなどのビスフェノール化合物。

【0117】

10

20

30

40

50

2, 2-ビス(3, 5-ジブromo-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2-ビス(3, 5-ジクロロ-4-ヒドロキシフェニル)プロパンなどのハロゲン化ビスフェノール化合物。

これらの中でも好ましいジヒドロキシ化合物としては、ビス-(4-ヒドロキシ-3, 5-ジメチルフェニル)メタン、ビス-(4-ヒドロキシフェニル)メタン、ビス-(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)メタン、1, 1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)エタン、2, 2-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2-ビス-(4-ヒドロキシ-3, 5-ジメチルフェニル)プロパン、1, 1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、1, 1-ビス-(4-ヒドロキシ-3, 3, 5-トリメチルフェニル)シクロヘキサン、ビス-(4-ヒドロキシフェニル)フェニルメタン、1, 1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-1-フェニルエタン、1, 1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-1-フェニルプロパン、ビス-(4-ヒドロキシフェニル)ジフェニルメタン、2-ヒドロキシフェニル(4-ヒドロキシフェニル)メタン、2, 2-(2-ヒドロキシフェニル)(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、があげられる。

【0118】

これらの中でも特に、ビス-(4-ヒドロキシフェニル)メタン、ビス-(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)メタン、ビス-(4-ヒドロキシ-3, 5-ジメチルフェニル)メタン、2, 2-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2-ビス-(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)プロパン、2, 2-ビス-(4-ヒドロキシ-3, 5-ジメチルフェニル)プロパン、1, 1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、1, 1-ビス-(4-ヒドロキシ-3, 3, 5-トリメチルフェニル)シクロヘキサンが好ましい。

【0119】

芳香族ポリカーボネート樹脂(B)の製造方法は、ホスゲン法、エステル交換法、ピリジン法等、従前知られるいずれの方法を用いてもかまわない。以下一例として、エステル交換法による芳香族ポリカーボネート樹脂(B)の製造方法を説明する。

エステル交換法は、ジヒドロキシ化合物と炭酸ジエステルとを塩基性触媒、さらにはこの塩基性触媒を中和する酸性物質を添加し、溶融エステル交換縮重合を行う製造方法である。ジヒドロキシ化合物としては、前記例示のビフェニル化合物、ビスフェノール化合物があげられる。

【0120】

炭酸ジエステルの代表例としては、ジフェニルカーボネート、ジトリルカーボネート、ビス(クロロフェニル)カーボネート、m-クレジルカーボネート、ジナフチルカーボネート、ビス(ビフェニル)カーボネート、ジエチルカーボネート、ジメチルカーボネート、ジブチルカーボネート、ジシクロヘキシルカーボネートなどが挙げられる。これらのうち、特にジフェニルカーボネートが好ましく用いられる。

【0121】

芳香族ポリカーボネート樹脂(B)の粘度平均分子量は、力学特性と成形加工性のバランスから、通常、8,000以上、30,000以下、好ましくは10,000以上、25,000以下の範囲である。又、芳香族ポリカーボネート樹脂(B)の還元粘度は、溶媒として塩化メチレンを用い、ポリカーボネート濃度を0.60 g/dlに精密に調整し、温度20.0℃±0.1℃で測定され、通常、0.23 dl/g以上0.72 dl/g以下で、好ましくは0.27 dl/g以上0.61 dl/g以下の範囲内である。

【0122】

なお、本発明においては、芳香族ポリカーボネート樹脂(B)を1種のみを単独、又は2種以上を混合して使用してもよい。

【0123】

[化合物(C)]

ポリカーボネート樹脂組成物に対して配合する化合物(C)は、ポリカーボネート樹脂

10

20

30

40

50

(A)と芳香族ポリカーボネート樹脂(B)とのエステル交換反応を促進することができる。エステル交換反応は、前記樹脂組成物を作製する際に、例えばポリカーボネート樹脂(A)と芳香族ポリカーボネート樹脂(B)との混練時における加熱により起こり、化合物(C)により促進される。その結果、樹脂組成物におけるポリカーボネート樹脂(A)と芳香族ポリカーボネート樹脂(B)との相溶性が向上するため、樹脂組成物の透明性を高めることが可能になる。そして、高い透明性を備えつつも、生物起源物質含有率を下げることなく、耐熱性、耐湿熱性、及び耐衝撃性等の特性に優れた樹脂組成物の実現が可能になる。化合物(C)は、長周期型周期表の1族の金属及び2族の金属からなる群から選択される少なくとも一種を含む化合物であれば良く、少なくとも長周期型周期表の1族の金属の化合物を含むことが、ヘーズが低く、耐湿熱性、耐熱性が良好となるという観点から好ましい。特に、後述の通り、前記化合物(C)として、少なくとも長周期型周期表第I族の金属の化合物を含有し、前記ポリカーボネート樹脂(A)と前記芳香族ポリカーボネート樹脂(B)との合計量100重量部に対する長周期型周期表第I族の金属の化合物の含有量が金属量で0.8重量ppm以上1000重量ppm以下であることが、さらに、ヘーズが低く、耐湿熱性、耐熱性も良好となり、好色調、耐湿熱性、透明性もより向上させることができ好ましい。

10

【0124】

化合物(C)における金属の例としては、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルジビウム、セシウム、ベリリウム、マグネシウム、カルシウム、ストロンチウム、バリウム等が挙げられる。

20

【0125】

前記化合物(C)における金属は、1族及び2族の金属の中でも、電気陰性度が0.7~1.1のものが好ましく、0.75~1.0のものがより好ましく、0.75~0.98のものがさらに好ましい。具体的には、セシウム(0.79)、カリウム(0.82)、ナトリウム(0.93)、リチウム(0.98)、バリウム(0.89)、ストロンチウム(0.95)、カルシウム(1.0)が挙げられる。括弧内の数値は電気陰性度である。電気陰性度が前記範囲であれば、カウンターイオンの求核性が高くなるため、ポリカーボネート樹脂(A)と芳香族ポリカーボネート樹脂(B)とのエステル交換反応をさらに促進することができるものと推察される。従って、電気陰性度が前記範囲にある金属を採用することにより、前記ポリカーボネート樹脂組成物の透明性をより向上させることができ、さらに耐衝撃性をより向上させることができる。

30

【0126】

化合物(C)としては、無機塩(炭酸塩を含む)、カルボン酸塩、フェノレート、ハロゲン化合物、及び水酸化化合物を挙げることができ、これらからなる群より選ばれる少なくとも1種を用いることができる。具体的には、前記金属と、活性水素を有する化合物、例えば、カルボン酸、炭酸、フェノール等の有機酸、硝酸、リン酸、ホウ酸、珪酸等の無機酸、アルコール、チオール、1級および2級アミン等から成る金属塩が挙げることができる。これらの活性水素を有する化合物としては1分子中に同一官能基の複数の活性水素を含有していてもよく、また1分子中に2種以上の官能基を有していてもよい、これらは、ポリカーボネート樹脂(A)や芳香族ポリカーボネート樹脂(B)への分散性が良好であるため、ポリカーボネート樹脂(A)と芳香族ポリカーボネート樹脂(B)とのエステル交換反応をさらに促進することができるものと推察される。また、これらのなかでも、好ましくは、カルボン酸、炭酸、フェノール等の有機酸、硝酸、リン酸、ホウ酸等から成る無機酸との金属塩を挙げることができ、さらに好ましくは、カルボン酸、炭酸等の有機酸、硝酸、リン酸、ホウ酸等から成る無機酸との金属塩を挙げることができる。また、金属塩としては、前記金属のハロゲン化物、水酸化物等も挙げられる。

40

【0127】

化合物(C)における金属イオンの対イオンの酸解離定数(pKa)は2~16であることが好ましい。この場合には、金属換算の触媒量を多くすることなく、ポリカーボネート樹脂組成物の透明性を高めことができ、色相が悪化することをより一層防止することが

50

できる。同様の観点から、化合物（C）における金属イオンの対イオンの酸解離定数（ pK_a ）は3～11であることがより好ましく、5～10であることが特に好ましい。

【0128】

化合物（C）として用いられる1族の金属の化合物としては、例えば、以下の化合物を採用することができる。水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化リチウム、水酸化セシウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム、炭酸水素リチウム、炭酸水素セシウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸リチウム、炭酸セシウム、酢酸ナトリウム、酢酸カリウム、酢酸リチウム、酢酸セシウム、ステアリン酸ナトリウム、ステアリン酸カリウム、ステアリン酸リチウム、ステアリン酸セシウム、水素化ホウ素ナトリウム、水素化ホウ素カリウム、水素化ホウ素リチウム、水素化ホウ素セシウム、フェニル化ホウ素ナトリウム、フェニル化ホウ素カリウム、フェニル化ホウ素リチウム、フェニル化ホウ素セシウム、安息香酸ナトリウム、安息香酸カリウム、安息香酸リチウム、安息香酸セシウム、リン酸水素2ナトリウム、リン酸水素2カリウム、リン酸水素2リチウム、リン酸水素2セシウム、フェニルリン酸2ナトリウム、フェニルリン酸2カリウム、フェニルリン酸2リチウム、フェニルリン酸2セシウム、ナトリウム、カリウム、リチウム、セシウムのアルコール、フェノレート、ビスフェノールAの2ナトリウム塩、2カリウム塩、2リチウム塩及び2セシウム塩等。これらの中でも、色相、衝撃性、反応性をより向上させるという観点より、リチウム化合物、ナトリウム化合物、カリウム化合物、及びセシウム化合物からなるグループから選ばれる少なくとも1種が好ましい。これらの化合物は、電気陰性度が適正な範囲であるため、ポリカーボネート樹脂（A）と芳香族ポリカーボネート樹脂（B）とのエステル交換反応をさらに促進することができるものと推察される。さらに、透明性、色調及び耐湿熱性をより向上させるという観点より、ナトリウム化合物、カリウム化合物、及びセシウム化合物からなるグループから選ばれる少なくとも1種が好ましく、カリウム化合物及び／又はセシウム化合物がより好ましい。特に好ましくは、炭酸水素カリウム、炭酸水素セシウム、炭酸カリウム、炭酸セシウム、酢酸カリウム、酢酸セシウム、ステアリン酸カリウム、ステアリン酸セシウムである。

【0129】

化合物（C）として用いられる2族の金属の化合物としては、例えば、以下の化合物を採用することができる。水酸化カルシウム、水酸化バリウム、水酸化マグネシウム、水酸化ストロンチウム、炭酸水素カルシウム、炭酸水素バリウム、炭酸水素マグネシウム、炭酸水素ストロンチウム、炭酸カルシウム、炭酸バリウム、炭酸マグネシウム、炭酸ストロンチウム、酢酸カルシウム、酢酸バリウム、酢酸マグネシウム、酢酸ストロンチウム、ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸バリウム、ステアリン酸マグネシウム及びステアリン酸ストロンチウム等。これらの中でも、透明性及び色調をより向上させるという観点より、カルシウム化合物が好ましい。特に好ましくは、水酸化カルシウム、炭酸水素カルシウム、酢酸カルシウムである。

【0130】

ポリカーボネート樹脂組成物中に含まれる化合物（C）に由来する金属量は、前記ポリカーボネート樹脂（A）と前記芳香族ポリカーボネート樹脂（B）との合計量100重量部に対して、0.8重量ppm以上、かつ1000重量ppm以下であることが好ましい。金属種にもよるが、1000重量ppmを超えると、樹脂組成物の色調が悪化し、また耐湿熱性が低下する。0.8重量ppm未満では、樹脂組成物の透明性が不十分になる。色調、耐湿熱性、透明性をより向上させるという観点から、化合物（C）に由来する金属量は、0.9重量ppm以上、かつ100重量ppm以下であることがより好ましく、1重量ppm以上、かつ10重量ppm以下であることが特に好ましい。なお、原料であるポリカーボネート樹脂（A）の重合触媒や芳香族ポリカーボネート樹脂（B）の重合触媒より、ポリカーボネート樹脂組成物中に導入される化合物（C）は、一般に、例えば、重合工程後に、p-トルエンスルホン酸ブチルのような酸性化合物によって失活させられている場合が多いので、後述のように別途化合物（C）を添加することが好ましい。ポリカーボネート樹脂組成物中に含まれる化合物（C）は、ポリカーボネート樹脂（A）及び芳

香族ポリカーボネート樹脂（Ｂ）の製造時に用いられて各樹脂（Ａ）及び樹脂（Ｂ）から樹脂組成物中にもたらされる化合物（Ｃ）に相当する重合触媒と、樹脂組成物の作製時に別途添加される化合物（Ｃ）との両方を含む概念である。

したがって、本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、長周期型周期表第Ⅰ族の金属の化合物及び長周期型周期表第Ⅱ族の金属の化合物を含むことが、ヘーズが低く、耐湿熱性、耐熱性も良好となり、好色調、耐湿熱性、透明性もより向上させることができるという観点から好ましい。

なお、ポリカーボネート樹脂組成物中の化合物（Ｃ）の含有量は、ＩＣＰ－ＭＳ（誘導結合プラズマ質量分析計）を用いて、金属量として測定できる。

【０１３１】

樹脂組成物の製造時における前記化合物（Ｃ）の添加量は、金属種にもよるが、ポリカーボネート樹脂（Ａ）と芳香族ポリカーボネート樹脂（Ｂ）との合計量１００重量部に対して、金属換算で０．５重量ｐｐｍ～１０００重量ｐｐｍ、好ましくは１重量ｐｐｍ～１００重量ｐｐｍ、特に好ましくは１重量ｐｐｍ～１０重量ｐｐｍである。０．５重量ｐｐｍ未満では、樹脂組成物の透明性が充分でなくなる。一方、１０００重量ｐｐｍより多いと、透明にはなるものの、着色が激しく、また樹脂組成物の分子量（溶融粘度）が低下し、耐衝撃性に優れた樹脂組成物が得られない。

【０１３２】

前記化合物（Ｃ）の添加方法は、固体のものは固体のままで供給してもよいし、水や溶媒に溶解可能なものは、水溶液や溶液にして供給してもよい。また、ポリカーボネート樹脂原料に添加してもよいし、水溶液や溶液の場合は、押出機の原料投入口から投入しても、ポンプ等を使用してシリンダーから液添加しても良い。

[クラウンエーテル化合物（Ｄ）]

【０１３３】

クラウンエーテル化合物（Ｄ）（以下、適宜「化合物（Ｄ）」ともいう）としては、クラウンエーテルとして一般的に知られる種々のものから目的に応じて任意のものを選択することができる。クラウンエーテルとして、最も単純な構造を有するものは、一般式（ $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{O}-$ ）_nで表されるものである。これらのうち、nが４～７のものが好ましい。クラウンエーテルは、環を構成する原子総数をx、そのうちに含まれる酸素原子数をyとして、x－クラウン－y－エーテルと呼ばれることがある。x＝１２、１５、１８、または２１、y＝x／３であるクラウンエーテル、これらのベンゾ縮合物、及びシクロヘキシル縮合物からなる群から選択される少なくとも１種を用いることが好ましい。より好ましいクラウンエーテルの具体例としては、２１－クラウン－７エーテル、１８－クラウン－６エーテル、１５－クラウン－５エーテル、１２－クラウン－４エーテル、ジベンゾ－２１－クラウン－７エーテル、ジベンゾ－１８－クラウン－６エーテル、ジベンゾ－１５－クラウン－５エーテル、ジベンゾ－１２－クラウン－４エーテル、ジシクロヘキシル－２１－クラウン－７エーテル、ジシクロヘキシル－１８－クラウン－６エーテル、ジシクロヘキシル－１５－クラウン－５エーテル、ジシクロヘキシル－１２－クラウン－４エーテル等がある。これらのうち、１８－クラウン－６エーテル、１５－クラウン－５エーテルから選択されることが最も好ましい。

【０１３４】

前記化合物（Ｄ）の含有量は、前述の化合物（Ｃ）の金属換算量に対して、０．１倍モル以上、かつ１０倍モル以下である。０．１倍モル未満の場合には、化合物（Ｄ）を添加することによる化合物（Ｃ）の添加量削減の効果が不十分になる。その結果、樹脂組成物の透明性が損なわれるおそれがある。一方、１０倍モルを超える場合には、透明性の向上が可能になるものの、着色が激しくなるおそれがある。さらに、樹脂組成物の分子量（溶融粘度）が低下し、耐衝撃性が不十分になるおそれがある。透明性、耐衝撃性をより向上させ、着色をより抑制するという観点からは、前記化合物（Ｄ）の含有量は、前述の化合物（Ｃ）の金属換算量に対して、０．５倍モル以上５倍モル以下であることが好ましく、０．７倍モル以上４倍モル以下であることがより好ましく、１倍モル以上３倍モル以下で

あることが特に好ましい。

【0135】

前記化合物（D）の添加方法は、固体のものは固体のままで供給してもよいし、水や溶媒に溶解可能なものは、水溶液や溶液にして供給してもよい。また、ポリカーボネート樹脂原料に添加してもよいし、水溶液や溶液の場合は、押出機の原料投入口から投入しても、ポンプ等を使用してシリンダーから液添加しても良い。

なお、クラウンエーテル化合物（D）は、例えば、以下のとおり検出することができる。具体的には、まず、ポリカーボネート樹脂組成物を塩化メチレン等の溶媒に溶解させる。次いで、溶解物をアセトンに加え、ポリマー成分を沈殿させる。その後、アセトン可溶分を採取し、ガスクロマトグラフ質量分析計などによりアセトン可溶分中に含まれるクラウンエーテル化合物（D）を検出することができる。

10

【0136】

〔酸性化合物（E）〕

ポリカーボネート樹脂組成物は、さらに酸性化合物（E）を含有することが好ましい。この酸性化合物（E）は、ポリカーボネート樹脂（A）と芳香族ポリカーボネート樹脂（B）とを配合する際に添加されるものであり、ポリカーボネート樹脂（A）及び芳香族ポリカーボネート樹脂（B）の製造時に用いられる上述の触媒失活剤を含まない概念である。これらの触媒失活剤は、ポリカーボネート樹脂（A）及び芳香族ポリカーボネート樹脂（B）の製造段階においてその効果自体が失われているためである。なお、酸性化合物（E）としては、上述の触媒失活剤と同様の物質を用いることができる。

20

【0137】

酸性化合物（E）の含有量は、ポリカーボネート樹脂組成物中に含まれる化合物（C）中の金属の含有量1モルに対して、0.1倍モル以上かつ5倍モル以下であることが好ましい。この場合には、耐湿熱性をより一層向上させることができると共に、成形時等の熱安定性をより一層向上させることができる。同様の観点から、酸性化合物（E）の含有量は、化合物（C）中の金属の含有量1モルに対して、0.5倍モル以上2倍モル以下であることがより好ましく、0.6倍モル以上1.5倍モル以下であることがさらに好ましく、0.7倍モル以上1倍モル以下であることが最も好ましい。

なお、ポリカーボネート樹脂組成物中の酸性化合物（E）の含有量は、ICP-MS（誘導結合プラズマ質量分析計）を用いて、酸性化合物（E）に含まれる元素の量として測定できる。

30

【0138】

〔ポリカーボネート樹脂組成物〕

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、これを成形してなる厚さ2mmの成形体の厚さ方向の全光線透過率が80%以上であることが好ましい。また、透明用途への適用性と原着時の鮮映性が良好になるという観点から、前記全光線透過率は、85%以上がより好ましく、88%以上がさらに好ましく、90%以上が特に好ましい。また、厚さ2mmの成形体のヘーズは、1%以下が好ましく、0.5%以下がより好ましく、0.3%以下がさらに好ましい。なお、全光線透過率の測定方法は、後述の実施例において説明する。ヘーズも全光線透過率と同様の方法により測定することができる。

40

【0139】

また、ポリカーボネート樹脂組成物においては、DSC法（示差走査熱量測定法）で測定したガラス転移温度のピークが単一であることが好ましい。

【0140】

ポリカーボネート樹脂組成物のガラス転移温度が単一であるとは、具体的には、以下の方法により、ポリカーボネート樹脂組成物の示差走査熱量計（DSC）を用いてガラス転移温度を測定した際に、ガラス転移温度を示す変曲点が1つだけ現れるものである。ポリカーボネート樹脂組成物のガラス転移温度が単一であることにより、得られる成形体が優れた透明性を実現できる。

【0141】

50

(ガラス転移温度 T_g の測定)

ポリカーボネート樹脂組成物の T_g は、パーキン・エルマー社製示差走査熱量計「DSC 7」を用い、窒素ガス雰囲気下、 25°C から 200°C まで加熱速度 $20^\circ\text{C}/\text{分}$ で昇温し、 200°C で3分間保持した後、 25°C まで冷却速度 $20^\circ\text{C}/\text{分}$ で降温を行い、 25°C で3分間保持した後、再度 200°C まで加熱速度 $5^\circ\text{C}/\text{分}$ で昇温した際、得られたDSC曲線からJIS-K7121(1987年)の方法に準拠して求めた $T_m g$ の値とする。また、ガラス転移温度の単一性の評価としては、具体的には、DSC曲線のピークが単一(ガラス転移温度を示す変曲点が1つだけ現れる)である場合をガラス転移温度が単一であると評価し、DSC曲線のピークが複数(ガラス転移温度を示す変曲点が複数現れる)である場合をガラス転移温度が単一ではないと評価する。

10

【0142】

一般的にポリマーブレンド組成物のガラス転移温度が単一であるということは、混合する樹脂がナノメートルオーダー(分子レベル)で相溶した状態にあることを意味し、相溶している系と認めることができる。

【0143】

また、ポリカーボネート樹脂組成物のガラス転移温度は、 100°C 以上 200°C 以下が好ましい。この場合には、耐熱性をより向上させることができるため、成形品の変形をより防止することができる。また、この場合には、樹脂組成物の製造時におけるポリカーボネート樹脂(A)の熱劣化をより一層抑制することができ、耐衝撃性をより向上させることができる。さらに、成形時における樹脂組成物の熱劣化をより一層抑制することができる。同様の観点から、ポリカーボネート樹脂組成物のガラス転移温度は、 110°C 以上 190°C 以下がより好ましく、 120°C 以上 180°C 以下がさらに好ましい。

20

【0144】

前記所定の全光線透過率及びガラス転移温度を示すポリカーボネート樹脂組成物は、前記式(1)で表される化合物に由来する構成単位を含むポリカーボネート樹脂(A)と、芳香族ポリカーボネート樹脂(B)と、前記特定の化合物(C)とを含有し、該化合物(C)の含有量を前記所定の範囲に調整することにより、実現が可能である。また、前記所定の全光線透過率及びガラス転移温度を示すポリカーボネート樹脂組成物は、前記式(1)で表される化合物に由来する構成単位を含むポリカーボネート樹脂(A)と、芳香族ポリカーボネート樹脂(B)と、前記特定の化合物(C)と、前記特定の化合物(D)とを含有し、化合物(C)の含有量及び化合物(D)の含有量を前記所定の範囲に調整することによっても、実現が可能である。

30

【0145】

前記ポリカーボネート樹脂組成物におけるポリカーボネート樹脂(A)と芳香族ポリカーボネート樹脂(B)との配合比は、所望の物性によって任意に選択することができる。生物起源物質含有率をより高めるという観点からは、ポリカーボネート樹脂(A)と芳香族ポリカーボネート樹脂(B)との重量比(A/B)は、 $95/5 \sim 50/50$ であることが好ましく、 $90/10 \sim 60/40$ であることがより好ましい。これにより、耐熱性、耐衝撃性、および生物起源物質含有率をよりバランスよく高めることができる。

【0146】

前記ポリカーボネート樹脂組成物の溶融粘度は、ポリカーボネート樹脂(A)の溶融粘度と芳香族ポリカーボネート樹脂(B)の溶融粘度にそれぞれの重量比を掛けたものの和を理想溶融粘度とした場合、理想溶融粘度に対して40%以上が好ましい。この場合には、衝撃強度をより向上させることができる。同様の観点から、ポリカーボネート樹脂組成物の溶融粘度は、理想溶融粘度に対して60%以上がより好ましく、80%以上が特に好ましい。尚、溶融粘度とは、キャピラリーレオメータ[東洋精機(株)製]を用いて測定される、温度 240°C 、剪断速度 91.2 sec^{-1} における溶融粘度をいう。溶融粘度の測定方法の詳細は、後述の実施例において説明する。

40

【0147】

[その他の添加剤]

50

前記ポリカーボネート樹脂組成物には、種々の添加剤を添加することができる。前記添加剤としては、染料、酸化防止剤、UV吸収剤、光安定剤、離型剤、熱安定剤、難燃剤、難燃助剤、無機充填剤、衝撃改良剤、加水分解抑制剤、発泡剤、核剤等があり、ポリカーボネート樹脂に通常用いられる添加剤を使用することができる。

【0148】

「染料」

染料としては、無機染料、有機染料、及び有機染料等の有機染料が挙げられる。

無機染料としては具体的には例えば、カーボンブラック；酸化チタン、亜鉛華、弁柄、酸化クロム、鉄黒、チタンイエロー、亜鉛-鉄系ブラウン、銅-クロム系ブラック、銅-鉄系ブラック等の氧化物系染料等；が挙げられる。

有機染料及び有機染料等の有機染料としては具体的には例えばフタロシアニン系染料；アゾ系、チオインジゴ系、ペリノン系、ペリレン系、キナクリドン系、ジオキサジン系、イソインドリノン系、キノフタロン系等の縮合多環染料；アンスラキノン系、ペリノン系、ペリレン系、メチン系、キノリン系、複素環系、メチル系の染料等；が挙げられる。

これら染料は1種を単独で用いてもよく、2種以上を混合して用いてもよい。

【0149】

前記無機染料、有機染料及び有機染料等の有機染料の中でも、無機染料が好ましい。無機染料を着色剤として使用することにより、成形品を屋外等で使用しても鮮映性等の劣化が少なく、長期間の保持が可能になる。

染料の量は、ポリカーボネート樹脂（A）及び芳香族ポリカーボネート樹脂（B）の合計100重量部に対して、0.05重量部以上5重量部以下であることが好ましい。より好ましくは0.05重量部以上3重量部以下、さらに好ましくは0.1重量部以上2重量部以下がよい。着色剤の量が0.05重量部未満では鮮映性のある原着成形品が得られづらい。5重量部より多いと、成形品の表面粗さが大きくなり、鮮映性のある原着成形品が得られづらい。

【0150】

「酸化防止剤」

酸化防止剤としては、樹脂に使用される一般的な酸化防止剤が使用できるが、酸化安定性、熱安定性観点から、ホスファイト系酸化防止剤、イオウ系酸化防止剤、およびフェノール系酸化防止剤が好ましい。ここで、酸化防止剤の添加量は、ポリカーボネート樹脂（A）及び芳香族ポリカーボネート樹脂（B）の合計100重量部に対し、5重量部以下が好ましい。この場合には、成形時における金型の汚染をより確実に防止し、表面外観のより優れた成形品を得ることが可能になる。同様の観点から、酸化防止剤の添加量は、ポリカーボネート樹脂（A）及び芳香族ポリカーボネート樹脂（B）の合計100重量部に対し、3重量部以下がより好ましく、2重量部以下が更に好ましい。また、酸化防止剤の添加量は、ポリカーボネート樹脂（A）及び芳香族ポリカーボネート樹脂（B）の合計100重量部に対し、0.001重量部以上が好ましい。この場合には、成形安定性に対する改良効果を十分に得ることができる。同様の観点から、酸化防止剤の添加量は、ポリカーボネート樹脂（A）及び芳香族ポリカーボネート樹脂（B）の合計100重量部に対し、0.002重量部以上がより好ましく、0.005重量部以上が更に好ましい。

【0151】

（ホスファイト系酸化防止剤）

ホスファイト系酸化防止剤としては、トリフェニルホスファイト、トリス（ノニルフェニル）ホスファイト、トリス（2,4-ジ-tert-ブチルフェニル）ホスファイト、トリデシルホスファイト、トリオクチルホスファイト、トリオクタデシルホスファイト、ジデシルモノフェニルホスファイト、ジオクチルモノフェニルホスファイト、ジイソプロピルモノフェニルホスファイト、モノブチルジフェニルホスファイト、モノデシルジフェニルホスファイト、モノオクチルジフェニルホスファイト、ビス（2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、2,2-メチレ

ンビス（４，６－ジ－*tert*－ブチルフェニル）オクチルホスファイト、ビス（ノニルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス（２，４－ジ－*tert*－ブチルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、ジステアリルペンタエリスリトールジホスファイト等が挙げられる。

これらの中でも、トリスノニルフェニルホスファイト、トリス（２，４－ジ－*tert*－ブチルフェニル）ホスファイト、ビス（２，４－ジ－*tert*－ブチルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス（２，６－ジ－*tert*－ブチル－４－メチルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイトが好ましく使用される。これらの化合物は、１種又は２種以上を併用することができる。

【０１５２】

（イオウ系酸化防止剤）

イオウ系酸化防止剤としては、例えば、ジラウリル－３，３’－チオジプロピオン酸エステル、ジトリデシル－３，３’－チオジプロピオン酸エステル、ジミリスチル－３，３’－チオジプロピオン酸エステル、ジステアリル－３，３’－チオジプロピオン酸エステル、ラウリルステアリル－３，３’－チオジプロピオン酸エステル、ペンタエリスリトールテトラキス（３－ラウリルチオプロピオネート）、ビス〔２－メチル－４－（３－ラウリルチオプロピオニルオキシ）－５－*tert*－ブチルフェニル〕スルフィド、オクタデシルジスルフィド、メルカプトベンズイミダゾール、２－メルカプト－６－メチルベンズイミダゾール、１，１’－チオビス（２－ナフトール）などをあげることができる。前記のうち、ペンタエリスリトールテトラキス（３－ラウリルチオプロピオネート）が好ましい。これらの化合物は、１種又は２種以上を併用することができる。

【０１５３】

（フェノール系酸化防止剤）

フェノール系酸化防止剤としては、例えばペンタエリスリトールテトラキス（３－メルカプトプロピオネート）、ペンタエリスリトールテトラキス（３－ラウリルチオプロピオネート）、グリセロール－３－ステアリルチオプロピオネート、トリエチレングリコール－ビス〔３－（３－*tert*－ブチル－５－メチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート〕、１，６－ヘキサンジオール－ビス〔３－（３，５－ジ－*tert*－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート〕、ペンタエリスリトール－テトラキス〔３－（３，５－ジ－*tert*－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート〕、オクタデシル－３－（３，５－ジ－*tert*－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート、１，３，５－トリメチル－２，４，６－トリス（３，５－ジ－*tert*－ブチル－４－ヒドロキシベンジル）ベンゼン、*N*，*N*－ヘキサメチレンビス（３，５－ジ－*tert*－ブチル－４－ヒドロキシ－ヒドロシナマイド）、３，５－ジ－*tert*－ブチル－４－ヒドロキシ－ベンジルホスホネート－ジエチルエステル、トリス（３，５－ジ－*tert*－ブチル－４－ヒドロキシベンジル）イソシアヌレート、４，４’－ビフェニレンジホスフィン酸テトラキス（２，４－ジ－*tert*－ブチルフェニル）、３，９－ビス〔１，１－ジメチル－２－〔β－（３－*tert*－ブチル－４－ヒドロキシ－５－メチルフェニル）プロピオニルオキシ〕エチル〕－２，４，８，１０－テトラオキサスピロ（５，５）ウンデカン、２，６－ジ－*tert*－ブチル－*p*－クレゾール、２，６－ジ－*tert*－ブチル－４－エチルフェノール等の化合物が挙げられる。

これらの化合物の中でも、炭素数５以上のアルキル基によって１つ以上置換された芳香族モノヒドロキシ化合物が好ましく、具体的には、オクタデシル－３－（３，５－ジ－*tert*－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート、ペンタエリスリチル－テトラキス〔３－（３，５－ジ－*tert*－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート〕、１，６－ヘキサンジオール－ビス〔３－（３，５－ジ－*tert*－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート〕、１，３，５－トリメチル－２，４，６－トリス（３，５－ジ－*tert*－ブチル－４－ヒドロキシベンジル）ベンゼン等が好ましく、ペンタエリスリチル－テトラキス〔３－（３，５－ジ－*tert*－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート〕が更に好ましい。これらの化合物は、１種又は２種以上を併用することができ

10

20

30

40

50

る。

【0154】

「UV吸収剤」

紫外線吸収剤としては、ベンゾトリアゾール系化合物、ベンゾフェノン系化合物、トリアジン系化合物、ベンゾエート系化合物、ヒンダードアミン系化合物、サリチル酸フェニルエステル系化合物、シアノアクリレート系化合物、マロン酸エステル系化合物、シュウ酸アニリド系化合物等が挙げられる。これらは、単独又は2種以上を併用してもよい。

【0155】

ベンゾトリアゾール系化合物のより具体的な例としては、2-(2'-ヒドロキシ-3'-メチル-5'-ヘキシルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3'-t-ブチル-5'-ヘキシルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-t-ブチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3'-メチル-5'-t-オクチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-5'-t-ドデシルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3'-メチル-5'-t-ドデシルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-5'-t-ブチルフェニル)ベンゾトリアゾール、メチル-3-(3-(2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)-5-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート等が挙げられる。

10

【0156】

トリアジン系化合物としては、2-[4-[(2-ヒドロキシ-3-ドデシルオキシプロピル)オキシ]-2-ヒドロキシフェニル]-4, 6-ビス(2, 4-ジメチルフェニル)-1, 3, 5-トリアジン、2, 4-ビス(2, 4-ジメチルフェニル)-6-(2-ヒドロキシ-4-イソオクチルオキシフェニル)-s-トリアジン、2-(4, 6-ジフェニル-1, 3, 5-トリアジン-2-イル)-5-[(ヘキシル)オキシ]-フェノール(BASF・ジャパン社製、Tinuvin 1577FF)などが挙げられる。

20

【0157】

ヒドロキシベンゾフェノン系化合物としては、2, 2'-ジヒドロキシベンゾフェノン、2, 2', 4, 4'-テトラヒドロキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-オクトキシベンゾフェノン等が挙げられる。

シアノアクリレート系化合物としては、エチル-2-シアノ-3, 3-ジフェニルアクリレート、2'-エチルヘキシル-2-シアノ-3, 3-ジフェニルアクリレート等が挙げられる。

30

マロン酸エステル系化合物としては、2-(1-アリーラルアルキリデン)マロン酸エステル類等が挙げられる。なかでも、マロン酸[(4-メトキシフェニル)-メチレン]-ジメチルエステル(Clarisant社製、Hostavin PR-25)、2-(パラメトキシベンジリデン)マロン酸ジメチルが好ましい。

シュウ酸アニリド系化合物としては、2-エチル-2'-エトキシ-オキサリド(Clarisant社製、Sanduvor VSU)等が挙げられる。

【0158】

これらの中でも、2-(2'-ヒドロキシ-3'-t-ブチル-5'-ヘキシルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-5'-t-ブチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-[4-[(2-ヒドロキシ-3-ドデシルオキシプロピル)オキシ]-2-ヒドロキシフェニル]-4, 6-ビス(2, 4-ジメチルフェニル)-1, 3, 5-トリアジン、2, 2', 4, 4'-テトラヒドロキシベンゾフェノンが好ましい。

40

【0159】

「光安定剤」

光安定剤としては、ヒンダードアミン系光安定剤が挙げられ、その分子量は、1000以下が好ましい。この場合には、成形品の耐候性をより向上させることができる。同様の観点から光安定剤の分子量は900以下がより好ましい。また、光安定剤の分子量は300以上が好ましい。この場合には、耐熱性をより向上させることができ、成形時における

50

金型の汚染をより確実に防止することができる。その結果、表面外観のより優れた成形品を得ることができる。同様の観点から、光安定剤の分子量は400以上がより好ましい。さらに、光安定剤は、ピペリジン構造を有する化合物であることが好ましい。ここで規定するピペリジン構造とは、飽和6員環のアミン構造となっていればよく、ピペリジン構造の一部が置換基により置換されているものも含む。置換基としては、炭素数4以下のアルキル基があげられ、特にはメチル基が好ましい。特に、ピペリジン構造を複数有する化合物が好ましく、それら複数のピペリジン構造がエステル構造により連結されている化合物が好ましい。

【0160】

そのような光安定剤としては、4-ピペリジノール、2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ベンゾエート、ビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-ピペリジル)セバケート、ビス(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル)セバケート、テトラキス(2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン-4-カルボン酸)1, 2, 3, 4-ブタンテトライル、2, 2, 6, 6-テトラメチル-ピペリジノールとトリデシルアルコールと1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸の縮合物、1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル、及びトリデシルアルコールとトリデシル-1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボキシレート、ビス(1, 2, 3, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル)[[3, 5-ビス(1, 1-ジメチルエチル)-4-ヒドロキシフェニル]メチル]ブチルマロネート、デカン二酸ビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-1-(オクチルオキシ)-4-ピペリジニル)エステル、1, 1-ジメチルエチルヒドロペルオキシドとオクタンの反応生成物、1-[2-[3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオニルオキシ]エチル]-4-[3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-4-ヒドロキシフェニル)プロピオニルオキシ]エチル]-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン、テトラキス(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル)1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボキシレート、ポリ[{6-(1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル)アミノ-1, 3, 5-トリアジン-2, 4-ジイル}{(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル)イミノ}]ヘキサメチレン{(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル)イミノ}]、N, N'-ビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル)-1, 6-ヘキサンジアミンポリマーと2, 4, 6-トリクロロ-1, 3, 5-トリアジン、1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸と2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジノールとβ, β, β, β-テトラメチル-3, 9-(2, 4, 8, 10-テトラオキサスピロ[5, 5]ウンデカン-ジエタノールとの縮合物、N, N'-ビス(3-アミノプロピル)エチレンジアミン-2, 4-ビス[N-ブチル-N-(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル)アミノ]-6-クロロ-1, 3, 5-トリアジン縮合物、コハク酸ジメチル-1-(2-ヒドロキシエチル)-4-ヒドロキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン重縮合物等が挙げられる。

【0161】

光安定剤の含有量は、ポリカーボネート樹脂(A)及び芳香族ポリカーボネート樹脂(B)の合計100重量部に対して、0.001重量部以上5重量部以下であることが好ましい。この場合には、ポリカーボネート樹脂組成物の着色をより一層防止することができる。その結果、例えば着色剤を添加した場合には、深みと清澄感のある漆黒を得ることができる。また、この場合には、ポリカーボネート樹脂組成物の耐光性をより向上させることができ、ポリカーボネート樹脂組成物を例えば自動車内外装品用途に適用しても優れた耐光性を発揮することができる。光安定剤の含有量は、ポリカーボネート樹脂(A)及び芳香族ポリカーボネート樹脂(B)の合計100重量部に対して、0.005重量部以上3重量部以下であることがより好ましく、0.01重量部以上1重量部以下であることがさらに好ましい。尚、芳香族ポリカーボネート樹脂(B)は、ヒンダードアミン系光安定剤によって分解しやすい傾向にある。したがって、ポリカーボネート樹脂(A)と芳香族ポリカーボネート樹脂(B)との比率において、芳香族ポリカーボネート樹脂(B)が多くなる場合は、光安定剤の添加量を控えめに設定することが好ましい。

【0162】

「離型剤」

ポリカーボネート樹脂組成物は、成形時における離型性を付与するための離型剤として、前記ポリカーボネート樹脂100重量部に対して、多価アルコールの脂肪酸エステルを0.0001重量部以上2重量部以下含有してもよい。多価アルコールの脂肪酸エステルの量をこの範囲に調整することにより、添加効果が十分に得られ、成形加工における離型の際に、離型不良により成形品が割れることをより確実に防止することができる。さらにこの場合には、樹脂組成物の白濁や成形加工時に金型に付着する付着物の増大をより一層抑制することができる。多価アルコールの脂肪酸エステルの含有量は、0.01重量部以上、1.5重量部以下であることがより好ましく、0.1重量部以上、1重量部以下であることがさらに好ましい。

10

【0163】

多価アルコールの脂肪酸エステルとしては、炭素数1～炭素数20の多価アルコールと炭素数10～炭素数30の飽和脂肪酸との部分エステル又は全エステルが好ましい。かかる多価アルコールと飽和脂肪酸との部分エステル又は全エステルとしては、ステアリン酸モノグリセリド、ステアリン酸ジグリセリド、ステアリン酸トリグリセリド、ステアリン酸モノソルビテート、ベヘニン酸モノグリセリド、ペンタエリスリトールモノステアレート、ペンタエリスリトールジステアレート、ペンタエリスリトールテトラステアレート、ペンタエリスリトールテトラベラルゴネート、プロピレングリコールモノステアレート、イソプロピルパルミテート、ソルビタンモノステアレート等が挙げられる。なかでも、ステアリン酸モノグリセリド、ステアリン酸トリグリセリド、ペンタエリスリトールテトラステアレートが好ましく用いられる。

20

また、耐熱性及び耐湿性の観点から、多価アルコールの脂肪酸エステルとしては、全エステルがより好ましい。

【0164】

脂肪酸としては、高級脂肪酸が好ましく、炭素数10～炭素数30の飽和脂肪酸がより好ましい。かかる脂肪酸としては、ミリスチン酸、ラウリン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、ベヘニン酸等が挙げられる。

【0165】

また、多価アルコールの脂肪酸エステルにおいて、多価アルコールは、エチレングリコールであることが好ましい。この場合には、樹脂に添加した際に、樹脂の透明性を損なわずに離型性を向上させることができる。

30

【0166】

また、前記多価アルコールの脂肪酸エステルは、2価アルコールの脂肪酸ジエステルであることが好ましい。この場合には、樹脂に添加した際に、湿熱環境下における樹脂組成物の分子量の低下を抑制することができる。

【0167】

本実施の形態において、ポリカーボネート樹脂組成物に配合する離型剤の添加時期、添加方法は特に限定されない。添加時期としては、例えば、エステル交換法でポリカーボネート樹脂を製造した場合は重合反応終了時；さらに、重合法に関わらず、ポリカーボネート樹脂組成物と他の配合剤との混練途中等のポリカーボネート樹脂組成物が溶融した状態；押出機等を用い、ペレットまたは粉末等の固体状態のポリカーボネート樹脂組成物とブレンド・混練する際等が挙げられる。添加方法としては、ポリカーボネート樹脂組成物に離型剤を直接混合または混練する方法；少量のポリカーボネート樹脂組成物または他の樹脂等と離型剤を用いて作成した高濃度のマスターバッチとして添加することもできる。

40

【0168】

「その他の樹脂」

また前記ポリカーボネート樹脂組成物は、本発明の効果を損なわない範囲で、例えば芳香族ポリエステル、脂肪族ポリエステル、ポリアミド、ポリスチレン、ポリオレフィン、アクリル、アモルファスポリオレフィン、ABS、ASなどの合成樹脂、ポリ乳酸、ポリ

50

ブチレンスクシネートなどの生分解性樹脂などの1種又は2種以上と混練して、ポリマーアロイとしても用いることもできる。

【0169】

「無機充填剤、有機充填剤」

前記ポリカーボネート樹脂組成物には、意匠性を維持できる範囲において、ガラス繊維、ガラスミルドファイバー、ガラスフレーク、ガラスビーズ、シリカ、アルミナ、酸化チタン、硫酸カルシウム粉体、石膏、石膏ウィスカー、硫酸バリウム、タルク、マイカ、ワラストナイト等の珪酸カルシウム、カーボンブラック、グラファイト、鉄粉、銅粉、二硫化モリブデン、炭化ケイ素、炭化ケイ素繊維、窒化ケイ素、窒化ケイ素繊維、黄銅繊維、ステンレス繊維、チタン酸カリウム繊維、これらのウィスカー等の無機充填剤や、木粉、竹粉、ヤシ澱粉、コルク粉、パルプ粉などの粉末状有機充填剤；架橋ポリエステル、ポリスチレン、スチレン・アクリル共重合体、尿素樹脂などのバルン状・球状有機充填剤；炭素繊維、合成繊維、天然繊維などの繊維状有機充填剤を添加することもできる。

10

【0170】

〔ポリカーボネート樹脂組成物の製造方法〕

前記ポリカーボネート樹脂組成物は、前記特定のポリカーボネート樹脂（A）及び芳香族ポリカーボネート樹脂（B）に、前記特定の化合物（C）を金属量換算で0.5重量ppm以上1000重量ppm以下添加する添加工程を行い、その後、ポリカーボネート樹脂（A）と芳香族ポリカーボネート樹脂（B）とを溶融反応させる反応工程を行うことにより製造できる。反応工程においては、化合物（C）の存在により、ポリカーボネート樹脂（A）と芳香族ポリカーボネート樹脂（B）とのエステル交換反応が促進され、相溶性の高い樹脂組成物が得られる。なお、ポリカーボネート樹脂（A）、芳香族ポリカーボネート樹脂（B）、化合物（C）としては、前述と同様のものを使用することができる。

20

【0171】

添加工程においては、さらにクラウンエーテル化合物（D）を添加することができる。クラウンエーテル化合物（D）の添加量は、上述のように、化合物（C）の金属換算量に対して0.1倍モル以上10倍モル以下であることが好ましい。

【0172】

ポリカーボネート樹脂組成物は、前記成分を所定の割合で同時に、または任意の順序でタンブラー、V型ブレンダー、ナウターミキサー、パンバリーミキサー、混練ロール、押出機等の混合機により混合して製造することができる。中でも、溶融混合の際、減圧の状態では混合できるものが、より好ましい。

30

【0173】

前記の溶融混練機については、減圧状態での混合を達成できる構成であれば二軸押出機もしくは単軸押出機の種別の如何を限定するものではないが、用いる前記特定のポリカーボネート樹脂（A）及び芳香族ポリカーボネート樹脂（B）の特性に応じて反応混合を達成する目的の下では二軸押出機がより好ましい。

ポリカーボネート樹脂組成物の混合温度は200℃～300℃が好ましい。この場合には、反応混練に要する時間の短縮が可能になり、反応に必要な化合物（C）の量を抑制することができる。その結果、樹脂の劣化に伴う色調が悪化をより確実に防止することができる。同様の観点から、混合温度は220℃～280℃であることがより好ましい。

40

また混合時間については、前記同様の樹脂劣化をより確実に回避するという観点から無用な長大化は回避されるべきであり、化合物（C）の量や混合温度との兼ね合いとなるが、10秒以上150秒以下が好ましく、より好ましくは10秒以上25秒以下であり、これを満たすような化合物（C）の量や混合温度の条件設定が必要となる。

【0174】

反応工程における溶融反応を真空度30kPa以下という条件で行うことが好ましい。より好ましくは真空度は25kPa以下、さらに好ましくは真空度は15kPa以下であることがよい。ここでいう真空度とは絶対圧力を表し、真空圧力計を読み取り、換算式（

50

101kPa（真空圧力計数値）により算出したものである。

【0175】

前記反応工程を減圧下にて行い、その減圧条件を前記特定の範囲に制御することにより、前記反応工程において、ポリカーボネート樹脂（A）と芳香族ポリカーボネート樹脂（B）とのエステル交換反応時に生じる副生成物が取り除かれ易くなる。その結果、エステル交換反応が進行し易くなり、ポリカーボネート樹脂（A）と芳香族ポリカーボネート樹脂（B）との相溶性がより高い樹脂組成物を製造することが可能になる。

【0176】

〔成形体〕

ポリカーボネート樹脂組成物は、射出成形法、押出成形法、圧縮成形法等の通常知られている方法で成形することができる。成形によって得られる成形体は、透明性に優れると共に、生物起源物資含有率、耐熱性、耐湿熱性、及び耐衝撃性を高いレベルでバランスよく兼ね備える。また、ポリカーボネート樹脂組成物を成形してなる成形体においては、色調、耐候性、機械的強度等の向上や、残存低分子成分や異物の低減も可能である。したがって、成形体は車両用内装部品に好適である。

【0177】

前記ポリカーボネート樹脂組成物は、色相、透明性、耐熱性、耐候性、機械的強度等に優れ、さらに湿熱下での色相や光学特性の安定性にも優れるため、電気・電子部品、自動車用部品、ガラス代替用途等の射出成形分野；フィルム、シート分野、ボトル、容器分野などの押出成形分野；カメラレンズ、ファインダーレンズ、CCD（Charged Coupled Device）やCMOS（Complementary Metal Oxide Semiconductor）用レンズなどのレンズ用途；液晶や有機EL（Electro Luminescence）ディスプレイなどに利用される位相差フィルム、拡散シート、導光板、偏光フィルム等の光学フィルム、光学シート；光ディスク、光学材料、光学部品；色素及び電荷移動剤等を固定化するバインダー用途といった幅広い分野へ適用が可能である。

【0178】

前記ポリカーボネート樹脂組成物は、透明性、耐熱性、耐候性、機械的強度等に優れるため、着色剤等で着色しても鮮映性に優れるため、自動車内外装部品や電気・電子部品、筐体等の用途に適用できる。自動車外装部品としては、例えばフェンダー、バンパー、フェーシャ、ドアパネル、サイドガーニッシュ、ピラー、ラジエータグリル、サイドプロテクター、サイドモール、リアプロテクター、リアモール、各種スポイラー、ボンネット、ルーフパネル、トランクリッド、デタッチャブルトップ、ウインドリフレクター、ミラーハウジング、アウタードアハンドル等がある。自動車内装部品としては、例えばインストルメントパネル、センターコンソールパネル、メーター部品、各種スイッチ類、カーナビゲーション部品、カーオーディオビジュアル部品、オートモバイルコンピュータ部品等がある。電気・電子部品、筐体としては、例えばデスクトップパソコン、ノートパソコンなどのパソコン類の外装部品、プリンター、コピー機、スキャナーおよびファックス（これらの複合機を含む）等のOA（Office Automation）機器の外装部品、ディスプレイ装置（CRT、液晶、プラズマ、プロジェクタ、および有機ELなど）の外装部品、マウスなどの外装部品、キーボードのキーや各種スイッチなどのスイッチ機構部品、ゲーム機（家庭用ゲーム機、業務用ゲーム機、およびパチンコ、およびスロットマシンなど）の外装部品などがある。さらに、携帯情報端末（いわゆるPDA）、携帯電話、携帯書籍（辞書類等）、携帯テレビ、記録媒体（CD、MD、DVD、次世代高密度ディスク、ハードディスクなど）のドライブ、記録媒体（ICカード、スマートメディア、メモリースティックなど）の読取装置、光学カメラ、デジタルカメラ、パラボラアンテナ、電動工具、VTR、アイロン、ヘアードライヤー、炊飯器、電子レンジ、ホットプレート、音響機器、照明機器、冷蔵庫、エアコン、空気清浄機、マイナスイオン発生器、および時計など電気・OA機器、家庭用電化製品を挙げることができる。

【実施例】

【0179】

以下、実施例により本発明を更に詳細に説明するが、本発明は、その要旨を超えない限り、以下の実施例により限定されるものではない。まず、ポリカーボネート樹脂（Ａ）と、芳香族ポリカーボネート樹脂（Ｂ）と、化合物（Ｃ）とを含有するポリカーボネート樹脂組成物の実施例等について説明する。

【０１８０】

〔評価方法Ⅰ〕

以下の各製造例、実施例１－１～１－２４、比較例１－１～比較例１－４において、ポリカーボネート樹脂（Ａ）、芳香族ポリカーボネート樹脂（Ｂ）及び樹脂組成物の物性ないし特性の評価は次の方法により行った。

【０１８１】

（Ⅰ－１）還元粘度の測定

ポリカーボネート樹脂（Ａ）又は芳香族ポリカーボネート樹脂（Ｂ）のサンプルを塩化メチレンに溶解させ、 0.6 g/dL の濃度のポリカーボネート樹脂溶液を調製した。森友理化工業社製ウベローデ型粘度管を用いて、温度 $20.0^{\circ}\text{C}\pm 0.1^{\circ}\text{C}$ の条件で溶媒の通過時間 t_0 と溶液の通過時間 t とを測定し、次式（ⅰ）に基づいて相対粘度 η_{rel} を算出した。次いで、相対粘度 η_{rel} から、次式（ⅱ）に基づいて比粘度 η_{sp} を求めた。

$$\eta_{\text{rel}} = t / t_0 \quad \cdots (i)$$

$$\eta_{\text{sp}} = \eta_{\text{rel}} - 1 \quad \cdots (ii)$$

得られた比粘度 η_{sp} を溶液の濃度 c （ g/dL ）で割ることにより、還元粘度（ η_{sp}/c ）を求めた。この還元粘度の値が高いほど分子量が大きいことを意味する。

【０１８２】

（Ⅰ－２）溶融粘度の測定

ポリカーボネート樹脂組成物の溶融粘度は、（株）東洋精機製作所製キャピラリーレオメータ「キャピログラフ１Ｂ」を用い、ダイス直径 1 mm 、長さ 10 mm 、流入角 90°C 、予熱時間 2 分 、測定温度 240°C にてせん断速度 $12.16\sim 6080\text{ sec}^{-1}$ の範囲で測定し、せん断速度（ SR ） 91.2 sec^{-1} の時の粘度である。また、ポリカーボネート樹脂の溶融粘度の測定においては、測定に用いるポリカーボネート樹脂は予め 90°C で 4 時間 以上乾燥したものを使用する。理想粘度は、ポリカーボネート樹脂組成物の各成分の溶融粘度に配合率（重量％）を掛けて足し合わせたものであり、理想粘度に対する比率は、ポリカーボネート樹脂組成物の溶融粘度を理想粘度で割り、 100 をかけたものである。

【０１８３】

（Ⅰ－３）ガラス転移温度（ T_g ）の測定

ポリカーボネート樹脂組成物の T_g は、パーキン・エルマー社製示差走査熱量計「DSC7」を用い、窒素ガス雰囲気下、 25°C から 200°C まで加熱速度 $20^{\circ}\text{C}/\text{分}$ で昇温し、 200°C で 3 分間 保持した後、 25°C まで冷却速度 $20^{\circ}\text{C}/\text{分}$ で降温を行い、 25°C で 3 分間 保持した後、再度 200°C まで加熱速度 $5^{\circ}\text{C}/\text{分}$ で昇温した際、得られたDSC曲線からJIS-K7121（1987年）の方法に準拠して求めた $T_m g$ の値である。また、ガラス転移温度の単一性の評価を行った。具体的には、DSC曲線のピークが単一である場合を単一性が「○」であると評価し、DSC曲線のピークが複数である場合を単一性が「×」であると評価した。

【０１８４】

（Ⅰ－４）ポリカーボネート樹脂組成物中の金属量測定

ポリカーボネート樹脂組成物中の金属量は、ICP-MS（誘導結合プラズマ質量分析計）を用いて、測定した。具体的には、ポリカーボネート樹脂組成物の試料約 0.5 g を正確に秤量し、硫酸・硝酸で加圧密閉分解した。加圧密閉分解には、マイクロウェーブ分解装置パーキン・エルマー社製MULTIWAVEを使用した。分解液を適宜純水で希釈して、ICP-MS（サーモクエスト社製ELEMENT）で測定した。なお、測定したアルカリ、アルカリ土類金属はLi、Na、K、Cs、Mg、Ca、Baである。なお、後述の実施例１－１～実施例１－２４における金属量は、化合物（Ｃ）由来の金属だけでな

10

20

30

40

50

く、ポリカーボネート樹脂（A）由来の金属（例えばCa）や芳香族ポリカーボネート樹脂（B）由来の金属（例えばCs）を含む。

【0185】

（I-5）全光線透過率の測定

ポリカーボネート樹脂組成物のペレットを、熱風乾燥機を用いて、90℃で4時間以上乾燥した。次に、乾燥したペレットを射出成形機（日本製鋼所社製J75EII型）に供給し、樹脂温度240℃、金型温度60℃、成形サイクル50秒間の条件で成形を行うことにより、射出成形板（幅100mm×長さ100mm×厚さ2mm）を得た。JIS K7136（2000年）に準拠し、日本電色工業（株）製ヘーズメータ「NDH2000」を使用し、D65光源にて、射出成形板の全光線透過率を測定した。なお、全光線透過率は、80%以上を合格とし、目視にて射出成形板が不透明であることが明かな場合には、全光線透過率の測定値の代わりに、評価結果を「不透明」とした。

10

【0186】

（I-6）耐湿熱試験

楠本化成（株）製の恒温恒湿槽「HIFLEX FX224P」の設定を80℃、95%RH、又は85℃、85%RHとし、槽内に、幅100mm（又は50mm）×長さ100mm×厚さ2mmの試験片を120時間又は240時間静置して湿熱処理を施した。その後、試験片を取り出し、ヘーズを測定し、耐湿熱試験前のヘーズとの差（ $\Delta Haze$ ）を求めた。尚、ヘーズの測定は、日本電色工業（株）製ヘーズメータ「NDH2000」を用いてJIS-K7136（2000年）に準拠して行った。 $\Delta Haze$ が大きいほど耐湿熱性が悪く、小さいほど耐湿熱性が良好であることを意味する。なお、上述の全光線透過率の測定において、目視にて射出成形板が不透明であった場合には、本試験（耐湿熱試験）の実施を省略した。

20

【0187】

（I-7）耐熱性試験

ポリカーボネート樹脂組成物のペレットを、熱風乾燥機を用いて、90℃で4時間以上乾燥した。次に、乾燥したペレットを射出成形機（日本製鋼所社製J75EII型）に供給し、樹脂温度240℃、金型温度60℃、成形サイクル50秒間の条件で成形を行うことにより、JIS-K7139（2009年）記載の多目的試験片A型を得た。得られた多目的試験片から長さ80mm、幅10mm、厚さ4mmの試験片を切削し、JIS-K7191-2（2007年）に準拠し、A法（試験片に加える曲げ応力1.80MPa）にて荷重たわみ温度を測定した。なお、本試験では、90℃以上を合格とするが、好ましくは95℃以上がよく、さらに好ましくは100℃以上がよい。

30

【0188】

（I-8）ハイレート試験

ポリカーボネート樹脂組成物のペレットを、熱風乾燥機を用いて、90℃で4時間以上乾燥した。次に、乾燥したペレットを射出成形機（日本製鋼所社製J75EII型）に供給し、樹脂温度240℃、金型温度60℃、成形サイクル50秒間の条件で成形を行うことにより、射出成形板（幅100mm×長さ100mm×厚さ2mm）を得た。得られた射出成形板を（株）島津製作所製「島津ハイドロショットHITS-P10形」を使用し、温度23℃または-20℃、ストライカ径5/8インチ、支持台径40mm、試験速度4.4m/sの条件にてハイレート試験を実施した。延性破壊率は5点評価したサンプルのうち、延性破壊した点数を評価点数で割り100を掛けて求めた。

40

【0189】

（I-9）生物起源物質含有率の測定

放射線炭素14（ C^{14} ）は、大気中で宇宙線により一定速度で生成され、一定の速度で失われているので（半減期：5370年）、自然界には一定量が存在している。大気中の二酸化炭素を吸収している植物はこの C^{14} を一定量含有するが、伐採等により炭酸同化作用が起こらなくなると一定の速度で消失していくので、この性質を利用して放射性炭素年代測定法が作られている。化石燃料は、宇宙線の影響を長時間受けていないので、すべて

50

の C^{14} が消失している。一方、バイオ由来の化学品は C^{14} の供給が止まってから、短時間しかたっていないので、 C^{14} の含有量はほぼ一定の値であるといえる。

【0190】

前記の方法を用いて、具体的に生物起源物質含有量の算出方法を説明する。まず、ISB-PCのISBカーボネート構成単位には、バイオ由来のISBの炭素が6個と化石燃料のDPC由来の炭素1個とからなるので、ISB-PCの生物起源物質含有率は、バイオ由来の炭素数：6／全炭素数：7＝85.7％となる。ここで、末端の影響は、ポリマー鎖が十分に長いので無視した。また、後述の製造例1-1のように共重合ポリカーボネート樹脂の場合には、CHDMは化石燃料由来原料であるので、CHDM-PCの生物起源由来物質含有量は、バイオ由来の炭素数：0／全炭素数：9＝0％となる。製造例1-1のISB／CHDM＝70／30mol％の場合は、ISB-PC成分のみがバイオ由来なので、その生物起源物質含有率は、85.7％×70mol％＝60％となる。

次に、実施例のように、ポリカーボネート樹脂（A）と芳香族ポリカーボネート樹脂（B）のブレンドの場合の生物起源物質含有率は、芳香族ポリカーボネート樹脂（B）は化石燃料由来原料より製造されたポリマーであるので、その生物起源物質含有率は0％である。実施例は重量比でブレンドしているので、それぞれのポリカーボネート樹脂のモル質量（単位：g／mol）を計算し、それぞれ重量をモル質量で除して、それよりモル分率に変換する。これに前述のポリカーボネート樹脂（A）の生物起源物質含有量とそのモル分率の積よりブレンドの生物起源物質含有量を計算する。尚、生物起源由来物質の算出に関しては、樹脂成分のみで算出し、化合物（C）、熱安定剤、離型剤等の成分については考慮しない。

【0191】

〔使用原料〕

以下の各製造例、実施例1-1～1-24及び比較例1-1～1-4で用いた化合物の略号、及び製造元は次の通りである。

【0192】

<ジヒドロキシ化合物>

- ・ISB：イソソルビド〔ロケットフルーレ社製〕
- ・CHDM：1, 4-シクロヘキサジメタノール〔SK Chemical社製〕
- ・TCDDM：トリシクロデカンジメタノール〔OXEA社製〕
- ・BPC：2, 2-ビス（4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル）プロパン（本州化学社製）

<炭酸ジエステル>

- ・DPC：ジフェニルカーボネート〔三菱化学（株）製〕

<触媒失活剤（酸性化合物（E））>

- ・亜リン酸〔太平化学産業（株）製〕（分子量82.0）

【0193】

<熱安定剤（酸化防止剤）>

- ・Irganox 1010：ペンタエリスリトール-テトラキス〔3-（3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル）プロピオネート〕〔BASF社製〕
- ・AS2112：トリス（2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル）ホスファイト〔（株）ADEKA製〕（分子量646.9）

<離型剤>

- ・E-275：エチレングリコールジステアレート〔日油（株）製〕

【0194】

〔ポリカーボネート樹脂（A）の製造例1-1〕

縦型攪拌反応器3器と横型攪拌反応器1器、並びに二軸押出機からなる連続重合設備を用いて、ポリカーボネート樹脂の重合を行った。具体的には、まず、ISB、CHDM、及びDPCをそれぞれタンクで溶融させ、ISBを35.2kg／hr、CHDMを14.9kg／hr、DPCを74.5kg／hr（モル比でISB／CHDM／DPC＝0

． 700/0.300/1.010) の流量で第1 縦型攪拌反応器に連続的に供給した。同時に、触媒としての酢酸カルシウム1 水和物の添加量が全ジヒドロキシ化合物1 mol に対して1.5 μmol となるように酢酸カルシウム1 水和物の水溶液を第1 縦型攪拌反応器に供給した。各反応器の反応温度、内圧、滞留時間はそれぞれ、第1 縦型攪拌反応器：190℃、25 kPa、90分、第2 縦型攪拌反応器：195℃、10 kPa、45分、第3 縦型攪拌反応器：210℃、3 kPa、45分、第4 横型攪拌反応器：225℃、0.5 kPa、90分とした。得られるポリカーボネート樹脂の還元粘度が0.41 dL/g～0.43 dL/g となるように、第4 横型攪拌反応器の内圧を微調整しながら運転を行った。

【0195】

第4 横型攪拌反応器より60 kg/hr の量でポリカーボネート樹脂を抜き出し、続いて樹脂を溶融状態のままベント式二軸押出機〔(株) 日本製鋼所製TEX30α、L/D：42.0、L(mm)：スクリュの長さ、D(mm)：スクリュの直径〕に供給した。押出機を通過したポリカーボネート樹脂を、引き続き溶融状態のまま、目開き10 μm のキャンドル型フィルター(SUS316 製)に通して、異物を濾過した。その後、ダイスからストランド状にポリカーボネート樹脂を排出させ、水冷、固化させた後、回転式カッターでペレット化し、ISB/CHDM のモル比が70/30 mol % の共重合ポリカーボネート樹脂のペレットを得た。

【0196】

前記押出機は3つの真空ベント口を有しており、ここで樹脂中の残存低分子成分を脱揮除去した。第2ベントの手前で樹脂に対して2000重量ppmの水を添加し、注水脱揮を行った。第3ベントの手前でIrganox1010、AS2112、E-275をポリカーボネート樹脂100重量部に対して、それぞれ0.1重量部、0.05重量部、0.3重量部を添加した。以上により、ISB/CHDM共重合体ポリカーボネート樹脂を得た。前記ポリカーボネート樹脂に対して、触媒失活剤として0.65重量ppmの亜リン酸(リン原子の量として0.24重量ppm)を添加した。なお、亜リン酸は次のようにして添加した。製造例1-1において得られたポリカーボネート樹脂のペレットに、亜リン酸のエタノール溶液をまぶして混合したマスターバッチを調製し、押出機の第1ベント口の手前(押出機の樹脂供給口側)から、押出機中のポリカーボネート樹脂100重量部に対して、マスターバッチを1重量部となるように供給した。

製造例1-1において得られたポリカーボネート樹脂(A)を「PC-A1」という。PC-A1の溶融粘度(240℃、せん断速度91.2 sec⁻¹)は720 Pa・sである。

【0197】

〔ポリカーボネート樹脂(A)の製造例1-2〕

反応器への各原料の供給量を、ISBを25.4 kg/hr、CHDMを25.0 kg/hr、DPCを74.8 kg/hr(モル比でISB/CHDM/DPC=0.500/0.500/1.006)、全ジヒドロキシ化合物1 mol に対する酢酸カルシウム1 水和物を1.5 μmol とし、得られるポリカーボネート樹脂の還元粘度を0.60 dL/g から0.63 dL/g となるようにした以外は、上述の製造例1-1と同様に樹脂を作製し、ISB/CHDM のモル比が50/50 mol % のポリカーボネート樹脂を得た。前記ポリカーボネート樹脂に対して、触媒失活剤として0.65重量ppmの亜リン酸(リン原子の量として0.24重量ppm)を添加した。なお、亜リン酸は次のようにして添加した。製造例1-2において得られたポリカーボネート樹脂のペレットに、亜リン酸のエタノール溶液をまぶして混合したマスターバッチを調製し、押出機の第1ベント口の手前(押出機の樹脂供給口側)から、押出機中のポリカーボネート樹脂100重量部に対して、マスターバッチを1重量部となるように供給した。

製造例1-2において得られたポリカーボネート樹脂(A)を「PC-A2」という。PC-A2の溶融粘度(240℃、せん断速度91.2 sec⁻¹)は1120 Pa・sである。

10

20

30

40

50

【0198】

[ポリカーボネート樹脂 (A) の製造例 1-3]

温度 100℃ に制御された還流冷却器と攪拌翼とを具備した重合反応装置に、ISB、CHDM、及び蒸留精製して塩化物イオン濃度を 10 ppb 以下にした DPC を、モル比率で ISB/CHDM/DPC = 0.27/0.73/1.00 になるように仕込み、さらに全ジヒドロキシ化合物 1 mol に対する触媒としての酢酸カルシウム 1 水和物の添加量が 1.5 μmol となるように、酢酸カルシウム 1 水和物の水溶液を仕込んだ後、窒素置換を十分に行った。続いて熱媒で加温を行い、内温が 100℃ になった時点で攪拌を開始し、内温が 100℃ になるように制御しながら内容物を融解させ均一にした。その後、昇温を開始し、40 分かけて内温を 210℃ に調節し、内温が 210℃ に到達した時点でこの温度を保持するように制御すると同時に、減圧を開始し、210℃ に到達してから 90 分かけて内圧を 13.3 kPa (絶対圧力、以下同様) に調節し、この圧力を保持しながら、さらに 30 分間保持した。重合反応とともに副生するフェノール蒸気は、還流冷却器への入口温度が 100℃ に制御された蒸気を冷媒として用いた還流冷却器に導き、フェノール蒸気中に若干量含まれるモノマー成分を重合反応器に戻し、凝縮しないフェノール蒸気は続いて 45℃ の温水を冷媒として用いた凝縮器に導いて回収した。このようにしてオリゴマー化させた内容物を、一旦大気圧にまで復圧させた後、攪拌翼および前記同様に制御された還流冷却器を具備した別の重合反応装置に移し、昇温および減圧を開始して、60 分かけて内温を 210℃、圧力を 200 Pa に調節した。その後、20 分かけて内温を 220℃、圧力を 133 Pa 以下に調節し、所定の攪拌動力になった時点で復圧し、重合反応装置出口より押し出される溶融状態のポリカーボネート樹脂をペレタイザーによりペレット化することにより、ペレットを得た。還元粘度は 0.63 dl/g であった。

このようにして、ISB/CHDM のモル比が 27/73 mol % のポリカーボネート樹脂を得た。製造例 1-3 において得られたポリカーボネート樹脂 (A) を「PC-A3」という。PC-A3 の溶融粘度 (240℃、せん断速度 91.2 sec⁻¹) は 640 Pa·s である。

【0199】

[ポリカーボネート樹脂 (A) の製造例 1-4]

温度 100℃ に制御された還流冷却器と攪拌翼とを具備した重合反応装置に、ISB、TCDDM、及び蒸留精製して塩化物イオン濃度を 10 ppb 以下にした DPC を、モル比率で ISB/TCDDM/DPC = 0.70/0.30/1.00 になるように仕込み、さらに全ジヒドロキシ化合物 1 mol に対する触媒としての酢酸カルシウム 1 水和物の添加量が 1.5 μmol となるように、酢酸カルシウム 1 水和物の水溶液を仕込んだ後、窒素置換を十分に行うことにより、反応装置内の酸素濃度を 0.0005~0.001 体積 % に調節した。続いて熱媒で加温を行い、内温が 100℃ になった時点で攪拌を開始し、内温が 100℃ になるように制御しながら内容物を融解させ均一にした。その後、昇温を開始し、40 分かけて内温を 210℃ に調節し、内温が 210℃ に到達した時点でこの温度を保持するように制御すると同時に、減圧を開始し、210℃ に到達してから 90 分で 13.3 kPa にして、この圧力を保持するようにしながら、さらに 60 分間保持した。重合反応とともに副生するフェノール蒸気は、還流冷却器への入口温度が 100℃ に制御された蒸気を冷媒として用いた還流冷却器に導き、フェノール蒸気中に若干量含まれるジヒドロキシ化合物や炭酸ジエステルを重合反応器に戻し、凝縮しないフェノール蒸気は続いて 45℃ の温水を冷媒として用いた凝縮器に導いて回収した。このようにしてオリゴマー化させた内容物を、一旦大気圧にまで復圧させた後、攪拌翼及び前記同様に制御された還流冷却器を具備した別の重合反応装置に移し、昇温及び減圧を開始して、60 分かけて内温を 220℃、圧力を 200 Pa に調節した。その後、20 分かけて内温を 230℃、圧力を 133 Pa 以下に調節して、所定の攪拌動力になった時点で大気圧に復圧し、内容物をストランドの形態で拔出し、回転式カッターによりカーボネート共重合体をペレット状にした。このようにして、ISB/TCDDM のモル比が 70/30 mol % のポリカーボネート樹脂を得た。前記ポリカーボネート樹脂に対して 0.65 重量 ppm の亜リン

酸（リン原子の量として0.24重量ppm）を添加した。なお、亜リン酸は次のようにして添加した。製造例1-1において得られたポリカーボネート樹脂のペレットに、亜リン酸のエタノール溶液をまぶして混合したマスターバッチを調製し、押出機の第1ベント口の手前（押出機の樹脂供給口側）から、押出機中のポリカーボネート樹脂100重量部に対して、マスターバッチを1重量部となるように供給した。

製造例1-4において得られたポリカーボネート樹脂（A）を「PC-A4」という。PC-A4の溶融粘度（240℃、せん断速度91.2sec⁻¹）は1120Pa・sである。

【0200】

〔芳香族ポリカーボネート樹脂（B）〕

・PC-B1：三菱エンジニアリングプラスチックス社製ノバレックス7022J（ビスフェノールA構成単位100モル%の芳香族ポリカーボネート樹脂、溶融粘度（240℃、せん断速度91.2sec⁻¹）3260Pa・s）

・PC-B2：下記の製造例によって得られる芳香族ポリカーボネート樹脂

・PC-B3：バイエルマテリアルサイエンス社製APEC1897（ビスフェノールAと1,1-ビス（4-ヒドロキシ-3,3,5-トリメチルフェニル）シクロヘキサンとの共重合体からなる芳香族ポリカーボネート樹脂、溶融粘度（240℃、せん断速度91.2sec⁻¹）は粘度が高すぎて測定不能）

【0201】

〔芳香族ポリカーボネート樹脂（PC-B2）の製造例〕

181.8kgのBPCと57.7kgのDPCとの混合物に、炭酸セシウム水溶液を添加した。添加量は、ジヒドロキシ化合物であるBPC1mol当たりの炭酸セシウム量が2.0μmolとなるように調整した。次に、攪拌機、熱媒ジャケット、真空ポンプ、及び還流冷却器を具備した内容量400Lの第1反応器に混合物を投入した。次に、第1反応器内を圧力1.33kPa（10Torr）に減圧し、続いて、窒素で大気圧に復圧する操作を10回繰り返すことにより、第1反応器の内部を窒素置換した。その後、熱媒ジャケットに温度230℃の熱媒を通すことにより第1反応器の内温を徐々に昇温させ、混合物を溶解させた。その後、この溶融混合物を第2反応器に移送した。尚、第2反応器は、内容量が400Lであり、攪拌機、熱媒ジャケット、真空ポンプ、及び還流冷却管を具備する。回転速度60rpmに調節した攪拌機により第2反応器内の溶融混合物を攪拌すると共に、熱媒ジャケット内の温度をコントロールすることにより第2反応器の内温を220℃に保った。そして、第2反応器の内部で行われるBPCとDPCのオリゴマー化反応により副生するフェノールを留去しながら、第2反応器内の圧力を絶対圧で101.3kPa（760Torr）から13.3kPa（100Torr）まで減圧した。次に、第2反応器の内部を30rpmの回転速度で攪拌し、熱媒ジャケットにて内温を昇温し、第2反応器内を絶対圧で101.3kPaから13.3kPaまで減圧した。その後、昇温を継続し、内圧を絶対圧で13.3kPaから399Pa（3Torr）まで減圧して留出を行うことにより、フェノールを系外に除去した。さらに、昇温を続け、第2反応器内の絶対圧が70Pa（約0.5Torr）に到達後、この圧力（70Pa）を保持し、重縮合反応を行った。その際、攪拌動力に応じて攪拌回転数を10rpmとし、第2反応器内の最終的な内部温度は275℃とした。第2反応器の攪拌機が予め定めた所定の攪拌動力となったときに、重縮合反応を終了した。第2反応器での重合反応時間は310分であった。このようにして、芳香族ポリカーボネート樹脂（PC-B2）を得た。PC-B2の溶融粘度（240℃、せん断速度91.2sec⁻¹）は3040Pa・sである。

【0202】

〔実施例1-1〕

本例においては、ポリカーボネート樹脂（A）としてPC-A1を用い、芳香族ポリカーボネート樹脂（B）としてPC-B1を用い、化合物（C）として、粉末状の炭酸水素ナトリウム（和光純薬（株）製 試薬特級）を用いた。そして、70重量部のポリカーボネート樹脂（A）と、30重量部の芳香族ポリカーボネート樹脂（B）と、金属換算（Na

10

20

30

40

50

換算)で20重量ppmの化合物(C)とを配合し、二軸混練機(日本製鋼所社製、TEX-30α(L/D=52.5、L(mm):スクリュの長さ、D(mm):スクリュの直径))を用いて混練を行い、ポリカーボネート樹脂(A)と芳香族ポリカーボネート樹脂(B)との溶融反応を行った。混練機スクリュの直径D(mm)に対するニーディングゾーンの合計長さLtの比は6であり(Lt/D=6)、混練条件は、流量:20kg/h、スクリュ回転速度:200rpm、シリンダー温度:230℃である。前記押出機に2つの真空ベント口を有しており、ベント真空度:11kPaの条件で行った。混練による溶融反応後に樹脂組成物をストランド状に押し出し、水冷工程を経てペレット状にカッティングを行いポリカーボネート樹脂組成物のペレットを得た。

【0203】

10

次いで、得られたペレットを温度100℃の熱風乾燥機で5時間乾燥した後、75トン射出成形機(東芝機械社製 EC-75)を用いて、ペレットの射出成形を行った。成形条件は、金型温度:60℃、シリンダー温度:240℃である。このようにして、幅100mm×長さ100mm×厚さ2mmの板状の成形体からなる試験片を得た。また、同様に成形を行うことにより、ISO引張試験片を得た。これらの試験片を用いて前記の評価を行い、その結果を表1に示す。

【0204】

[実施例1-2]

下記の(1)及び(2)に示す変更点を除いては、実施例1-1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体(試験片)を作製した。本例の評価結果を表1に示す。

20

(1) 化合物(C)として用いられる炭酸水素ナトリウムの添加量(Na換算量)を20ppmから10ppmに変更した。

(2) ベント真空度を11kPaから6kPaに変更した。

【0205】

[実施例1-3]

下記の(1)～(3)に示す変更点を除いては、実施例1-1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体(試験片)を作製した。本例の評価結果を表1に示す。

(1) 化合物(C)として用いられる炭酸水素ナトリウムの添加量(Na換算量)を20ppmから10ppmに変更した。

30

(2) 実施例1-1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製した後、再度、溶融混練を行う際に、触媒失活剤として、亜リン酸からなる酸性化合物(E)を添加した。添加量は、化合物(C)の添加量に対して0.5倍モルである。

(3) ベント真空度を11kPaから6kPaに変更した。

【0206】

[実施例1-4]

下記の(1)～(3)に示す変更点を除いては、実施例1-1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体(試験片)を作製した。本例の評価結果を表1に示す。

40

(1) 化合物(C)として用いられる炭酸水素ナトリウムの添加量(Na換算量)を20ppmから10ppmに変更した。

(2) 実施例1-1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製した後、再度、溶融混練を行う際に、触媒失活剤として、亜リン酸からなる酸性化合物(E)を添加した。添加量は、化合物(C)の添加量に対して1倍モルである。

(3) ベント真空度を11kPaから6kPaに変更した。

【0207】

[実施例1-5]

下記の(1)～(3)に示す変更点を除いては、実施例1-1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体(試験片)を作製した。本例の評価結果

50

を表 1 に示す。

(1) 化合物 (C) として用いられる炭酸水素ナトリウムの添加量 (Na 換算量) を 20 ppm から 10 ppm に変更した。

(2) 実施例 1-1 と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製した後、再度、溶融混練を行う際に、触媒失活剤として、亜リン酸からなる酸性化合物 (E) を添加した。添加量は、化合物 (C) の添加量に対して 1.5 倍モルである。

(3) ベント真空度を 11 kPa から 6 kPa に変更した。

【0208】

[実施例 1-6]

下記の (1) ~ (3) に示す変更点を除いては、実施例 1-1 と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体 (試験片) を作製した。本例の評価結果を表 1 に示す。

(1) 化合物 (C) として用いられる炭酸水素ナトリウムの添加量 (Na 換算量) を 20 ppm から 10 ppm に変更した。

(2) 実施例 1-1 と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製した後、再度、溶融混練を行う際に、触媒失活剤として、亜リン酸からなる酸性化合物 (E) を添加した。添加量は、化合物 (C) の添加量に対して 2 倍モルである。

(3) ベント真空度を 11 kPa から 6 kPa に変更した。

【0209】

[実施例 1-7]

下記の (1) ~ (5) に示す変更点を除いては、実施例 1-1 と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体 (試験片) を作製した。本例の評価結果を表 1 に示す。

(1) 化合物 (C) として用いられる炭酸水素ナトリウムを濃度 0.4 重量%の水酸化ナトリウム水溶液に変更した。添加量 (Na 換算量) は 100 ppm である。

(2) 混練機スクリュのニーディングゾーンの合計長さを $L/D = 6$ から $L/D = 21.5$ に変更した。

(3) 真空ベント口を 2 つから 1 つに変更した。

(4) ベント真空度を 11 kPa から 21 kPa に変更した。

(5) 混練条件における流量を 20 kg/h から 10 kg/h に変更した。

【0210】

[実施例 1-8]

下記の (1) 及び (2) に示す変更点を除いては、実施例 1-1 と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体 (試験片) を作製した。本例の評価結果を表 1 に示す。

(1) 化合物 (C) として用いられる炭酸水素ナトリウムを炭酸セシウム (粉末) に変更した。添加量 (Cs 換算量) は、10 重量 ppm である。

(2) ベント真空度を 11 kPa から 6 kPa に変更した。

【0211】

[実施例 1-9]

下記の (1) 及び (2) に示す変更点を除いては、実施例 1-1 と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体 (試験片) を作製した。本例の評価結果を表 1 に示す。

(1) 化合物 (C) として用いられる炭酸水素ナトリウムを炭酸セシウム (粉末) に変更した。添加量 (Cs 換算量) は、5 重量 ppm である。

(2) ベント真空度を 11 kPa から 6 kPa に変更した。

【0212】

[実施例 1-10]

下記の (1) ~ (3) に示す変更点を除いては、実施例 1-1 と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体 (試験片) を作製した。本例の評価結果

10

20

30

40

50

を表 1 に示す。

(1) 化合物 (C) として用いられる炭酸水素ナトリウムを炭酸セシウム (粉末) に変更した。添加量 (Cs 換算量) は 5 重量 ppm である。

(2) 実施例 1-1 と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製した後、再度、熔融混練を行う際に、触媒失活剤として、亜リン酸からなる酸性化合物 (E) を添加した。添加量は、化合物 (C) の添加量に対して 2 倍モルである。

(3) ベント真空度を 11 kPa から 6 kPa に変更した。

【0213】

[実施例 1-11]

下記の (1) ~ (3) に示す変更点を除いては、実施例 1-1 と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体 (試験片) を作製した。本例の評価結果を表 1 に示す。

(1) 化合物 (C) として用いられる炭酸水素ナトリウムを塩化ナトリウム (粉末) に変更した。添加量 (Na 換算量) は 100 重量 ppm である。

(2) 混練機スクリュのニーディングゾーンの合計長さを $L/D = 6$ から $L/D = 18$ に変更した。

(3) ベント真空度を 11 kPa から 21 kPa に変更した。

【0214】

[実施例 1-12]

下記の (1) 及び (2) に示す変更点を除いては、実施例 1-1 と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体 (試験片) を作製した。本例の評価結果を表 2 に示す。

(1) 化合物 (C) として用いられる炭酸水素ナトリウムを炭酸カリウム (粉末) に変更した。添加量 (K 換算量) は 3 重量 ppm である。

(2) ベント真空度を 11 kPa から 6 kPa に変更した。

【0215】

[実施例 1-13]

下記の (1) ~ (3) に示す変更点を除いては、実施例 1-1 と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体 (試験片) を作製した。本例の評価結果を表 2 に示す。

(1) 化合物 (C) として用いられる炭酸水素ナトリウムを炭酸カリウム (粉末) に変更した。添加量 (K 換算量) は 3 重量 ppm である。

(2) 実施例 1-1 と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製した後、再度、熔融混練を行う際に、触媒失活剤として、亜リン酸からなる酸性化合物 (E) を添加した。添加量は、化合物 (C) の添加量に対して 2 倍モルである。

(3) ベント真空度を 11 kPa から 6 kPa に変更した。

【0216】

[実施例 1-14]

下記の (1) ~ (4) に示す変更点を除いては、実施例 1-1 と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体 (試験片) を作製した。本例の評価結果を表 2 に示す。

(1) ポリカーボネート樹脂 (A) の配合割合を 90 重量部に変更し、芳香族ポリカーボネート樹脂 (B) の配合割合を 10 重量部に変更した。

(2) 化合物 (C) として用いられる炭酸水素ナトリウムを炭酸カリウム (粉末) に変更した。添加量 (K 換算量) は 3 重量 ppm である。

(3) 混練条件における流量を 20 kg/h から 10 kg/h に変更した。

(4) ベント真空度を 11 kPa から 6 kPa に変更した。

【0217】

[実施例 1-15]

下記の (1) ~ (4) に示す変更点を除いては、実施例 1-1 と同様にしてポリカーボ

10

20

30

40

50

ネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体（試験片）を作製した。本例の評価結果を表2に示す。

（１）ポリカーボネート樹脂（Ａ）の配合割合を５０重量部に変更し、芳香族ポリカーボネート樹脂（Ｂ）の配合割合を５０重量部に変更した。

（２）化合物（Ｃ）として用いられる炭酸水素ナトリウムを炭酸カリウム（粉末）に変更した。添加量（Ｋ換算量）は３重量ｐｐｍである。

（３）混練条件における流量を２０ｋｇ／ｈから１０ｋｇ／ｈに変更した。

（４）ベント真空度を１１ｋＰａから６ｋＰａに変更した。

【０２１８】

〔実施例１－１６〕

下記の（１）～（４）に示す変更点を除いては、実施例１－１と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体（試験片）を作製した。本例の評価結果を表2に示す。

（１）ポリカーボネート樹脂（Ａ）として用いられるＰＣ－Ａ１をＰＣ－Ａ４に変更した。

（２）化合物（Ｃ）として用いられる炭酸水素ナトリウムを炭酸カリウム（粉末）に変更した。添加量（Ｋ換算量）は３重量ｐｐｍである。

（３）混練条件における流量を２０ｋｇ／ｈから１０ｋｇ／ｈに変更した。

（４）ベント真空度を１１ｋＰａから６ｋＰａに変更した。

【０２１９】

〔実施例１－１７〕

下記の（１）～（４）に示す変更点を除いては、実施例１－１と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体（試験片）を作製した。本例の評価結果を表2に示す。

（１）芳香族ポリカーボネート樹脂（Ｂ）として用いられるＰＣ－Ｂ１をＰＣ－Ｂ２に変更した。添加量は５重量ｐｐｍである。

（２）化合物（Ｃ）として用いられる炭酸水素ナトリウムを炭酸カリウム（粉末）に変更した。添加量（Ｋ換算量）は５重量ｐｐｍである。

（３）流量を２０ｋｇ／ｈから１０ｋｇ／ｈに変更した。

（４）ベント真空度を１１ｋＰａから６ｋＰａに変更した。

【０２２０】

〔実施例１－１８〕

下記の（１）～（４）に示す変更点を除いては、実施例１－１と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体（試験片）を作製した。本例の評価結果を表2に示す。

（１）芳香族ポリカーボネート樹脂（Ｂ）として用いられるＰＣ－Ｂ１をＰＣ－Ｂ３に変更した。

（２）化合物（Ｃ）として用いられる炭酸水素ナトリウムを炭酸カリウム（粉末）に変更した。添加量（Ｋ換算量）は５重量ｐｐｍである。

（３）流量を２０ｋｇ／ｈから１０ｋｇ／ｈに変更した。

（４）ベント真空度を１１ｋＰａから６ｋＰａに変更した。

【０２２１】

〔実施例１－１９〕

下記の（１）～（４）に示す変更点を除いては、実施例１－１と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体（試験片）を作製した。本例の評価結果を表2に示す。

（１）ポリカーボネート樹脂（Ａ）として用いられるＰＣ－Ａ１をＰＣ－Ａ２に変更した。

（２）化合物（Ｃ）として用いられる炭酸水素ナトリウムを炭酸カリウム（粉末）に変更した。添加量（Ｋ換算量）は３重量ｐｐｍである。

- (3) 流量を 20 kg/h から 10 kg/h に変更した。
(4) ベント真空度を 11 kPa から 6 kPa に変更した。

【0222】

[実施例1-20]

下記の(1)～(4)に示す変更点を除いては、実施例1-1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体(試験片)を作製した。本例の評価結果を表2に示す。

- (1) ポリカーボネート樹脂(A)として用いられるPC-A1をPC-A2に変更した。

- (2) 化合物(C)として用いられる炭酸水素ナトリウムを水酸化カルシウム(粉末)に変更した。添加量(K換算量)は500重量ppmである。

- (3) 流量を 20 kg/h から 10 kg/h に変更した。

- (4) ベント真空度を 11 kPa から 6 kPa に変更した。

【0223】

[実施例1-21]

下記の(1)に示す変更点を除いては、実施例1-1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体(試験片)を作製した。本例の評価結果を表3に示す。

- (1) 化合物(C)として用いられる炭酸水素ナトリウムを塩化ナトリウム(粉末)に変更した。添加量(Na換算量)は10重量ppmである。

【0224】

[実施例1-22]

下記の(1)に示す変更点を除いては、実施例1-1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体(試験片)を作製した。本例の評価結果を表3に示す。

- (1) 化合物(C)として用いられる炭酸水素ナトリウムを酢酸リチウムに変更した。添加量(Li換算量)は10重量ppmである。

【0225】

[実施例1-23]

下記の(1)に示す変更点を除いては、実施例1-1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体(試験片)を作製した。本例の評価結果を表3に示す。

- (1) 化合物(C)として用いられる炭酸水素ナトリウムをステアリン酸リチウムに変更した。添加量(Li換算量)は3重量ppmである。

【0226】

[実施例1-24]

下記の(1)に示す変更点を除いては、実施例1-1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体(試験片)を作製した。本例の評価結果を表3に示す。

- (1) 化合物(C)として用いられる炭酸水素ナトリウムをオルトケイ酸ナトリウムに変更した。添加量(Na換算量)は10重量ppmである。

【0227】

[比較例1-1]

下記の(1)及び(2)に示す変更点を除いては、実施例1-1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体(試験片)を作製した。本例の評価結果を表4に示す。なお、本例のポリカーボネート樹脂組成物中のセシウム量は0.2重量ppm、カルシウム量は0.2重量ppmであった。金属量は、上述のICP-MSにより測定した。本例においては、樹脂組成物の製造時にポリカーボネート樹脂(A)及び芳香族ポリカーボネート樹脂(B)に対して別途化合物(C)を添加していないため、これらの金属量は、ポリカーボネート樹脂(A)及び芳香族ポリカーボネート樹脂(B)由来

10

20

30

40

50

のものである。本例におけるポリカーボネート樹脂組成物中に含まれる長周期型周期表第Ⅰ族、第Ⅱ族の金属化合物から選択される少なくとも１種類の化合物（Ｃ）の含有量は０．４重量ｐｐｍであった。ポリカーボネート樹脂（Ａ）及び芳香族ポリカーボネート樹脂（Ｂ）由来の金属量については、後述の比較例１－２～１－４も同様である。

（１）樹脂組成物の製造時に添加される化合物（Ｃ）の添加量を０に変更した。

（２）ベント真空度を１１ｋＰａから２１ｋＰａに変更した。

【０２２８】

〔比較例１－２〕

下記の（１）～（４）に示す変更点を除いては、実施例１－１と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体（試験片）を作製した。本例の評価結果を表４に示す。

10

（１）ポリカーボネート樹脂（Ａ）として用いられるＰＣ－Ａ１をＰＣ－Ａ３に変更した。

（２）化合物（Ｃ）の添加量を０に変更した。

（３）流量を２０ｋｇ／ｈから１０ｋｇ／ｈに変更した。

（４）ベント真空度を１１ｋＰａから６ｋＰａに変更した。

【０２２９】

〔比較例１－３〕

下記の（１）に示す変更点を除いては、実施例１－１と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体（試験片）を作製した。本例の評価結果を表４に示す。

20

（１）化合物（Ｃ）として用いられる炭酸水素ナトリウムをテトラ－ｎ－ブトキシチタン（以後、ＴＢＴと略記する）に変更した。添加量は１０００重量ｐｐｍである。

【０２３０】

〔比較例１－４〕

下記の（１）及び（２）に示す変更点を除いては、実施例１－１と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体（試験片）を作製した。本例の評価結果を表４に示す。

（１）ベント真空度を６ｋＰａから１０１ｋＰａへ変更した。

（２）化合物（Ｃ）として用いられる炭酸水素ナトリウム量（Ｎａ換算量）を１０重量ｐｐｍに変更した。

30

【０２３１】

【表 1】

(表 1)

実施例No.		実施例1-1	実施例1-2	実施例1-3	実施例1-4	実施例1-5	実施例1-6	実施例1-7	実施例1-8	実施例1-9	実施例1-10
配合	ポリカーボネート樹脂(A) (重量部)	PC-A1	70	70	70	70	70	70	70	70	70
		PC-A2	—	—	—	—	—	—	—	—	—
		PC-A3	—	—	—	—	—	—	—	—	—
		PC-A4	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	芳香族 ポリカーボネート樹脂(B) (重量部)	PC-B1	30	30	30	30	30	30	30	30	30
		PC-B2	—	—	—	—	—	—	—	—	—
		PC-B3	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	化合物(C)	種類	炭酸水素ナトリウム(粉末)	炭酸水素ナトリウム(粉末)	炭酸水素ナトリウム(粉末)	炭酸水素ナトリウム(粉末)	炭酸水素ナトリウム(粉末)	炭酸水素ナトリウム(粉末)	水酸化ナトリウム(水溶液)	炭酸セシウム(粉末)	炭酸セシウム(粉末)
		添加量(重量ppm)	20	10	10	10	10	10	100	10	5
		5	—	—	亜硝酸	亜硝酸	亜硝酸	亜硝酸	—	—	亜硝酸
酸性化合物(E)	種類	—	—	亜硝酸	亜硝酸	亜硝酸	亜硝酸	—	—	—	
	添加量(モル当量)	—	—	0.5	1	1.5	2	—	—	2	
	重量ppm	20.5	10.5	10.5	10.5	10.5	10.5	100.7	10.5	5.5	
特性	溶融粘度 @240°C,SR=91.2s ⁻¹ 理想粘度に対する 粘度比率(/2020Pa s)	Pa・s	920	1390	1520	1500	1470	1500	1000	1680	1600
		%	62	94	103	101	99	101	—	67	113
		単一性	○	○	○	○	○	○	○	○	○
	ガラス転移温度 (DSC法)	°C	125	125	125	125	125	125	125	125	125
		%	89.5	89.8	90.1	90.0	89.9	89.9	80.4	85.7	88.8
		%	0.7	0.5	0.4	0.6	0.4	0.3	1.8	0.3	0.6
	耐湿熱性 (80°C/95%RH_120hr)	Haze	67.3	51.6	23.5	8.4	6.1	6.1	97.4	—	—
		ΔHaze	—	—	—	—	—	—	—	0.1	0.2
		°C	105	107	107	106	106	105	104	108	107
	耐熱性 (DTUL_1.80MPa)	%	80	100	100	100	100	100	0	100	100
延性破壊率		20	20	80	20	40	60	0	40	0	
生物起源物質含有率 (C ¹⁴ 推算法)		%	46.5	46.5	46.5	46.5	46.5	46.5	46.5	46.5	

【表 2】

(表2)

実施例No.		実施例1-11	実施例1-12	実施例1-13	実施例1-14	実施例1-15	実施例1-16	実施例1-17	実施例1-18	実施例1-19	実施例1-20
ポリカーボネート樹脂 (A) (重量部)	PC-A1	70	70	70	90	50	—	70	70	—	—
	PC-A2	—	—	—	—	—	—	—	—	70	70
	PC-A3	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	PC-A4	—	—	—	—	—	70	—	—	—	—
芳香族 ポリカーボネート樹脂 (B) (重量部)	PC-B1	30	30	30	10	50	30	—	—	30	30
	PC-B2	—	—	—	—	—	—	30	—	—	—
	PC-B3	—	—	—	—	—	—	—	30	—	—
化合物 (C)	種類	塩化ナトリウム (粉末)	炭酸カリウム (粉末)	炭酸カリウム (粉末)	炭酸カリウム (粉末)	炭酸カリウム (粉末)	炭酸カリウム (粉末)	炭酸カリウム (粉末)	炭酸カリウム (粉末)	炭酸カリウム (粉末)	水酸化カルシウム (粉末)
	添加量 (重量ppm)	100	3	3	3	3	3	5	5	3	500
	種類	—	—	亜リン酸	—	—	—	—	—	—	—
	添加量 (モル当量)	—	—	2	—	—	—	—	—	—	—
金属量 (合計)		100.4	3.5	3.5	3.3	3.4	3.4	5.8	5.3	3.5	500.5
特性											
特性	溶解粘度 @240°C, SR=91.2s ⁻¹	680	1470	1540	850	1300	1200	300	1220	780	1060
	理想粘度に対する 粘度比率 (/2020Pa s)	46	99	104	87	65	68	21	—	43	59
	ガラス転移温度 (DSC法)	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
	単一性	125	125	125	121	130	130	120	133	111	111
	°C	81.1	89	89.1	88	86.5	86.9	82.2	82.8	83.9	89.7
	全光線透過率	1.5	0.2	0.3	0.5	1.8	0.6	0.8	1	1.8	8
	Haze	31	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	耐湿熱性 (80°C95%RH 120hr)	—	3.5	1.6	0	0	3.8	3.3	1.9	0.2	5.3
	耐湿熱性 (85°C85%RH 240hr)	105	106	106	100	110	111	98	110	92	92
	耐熱性 (DTUL_1.80MPa)	100	100	100	100	100	100	80	60	100	100
	ハイレート試験(23°C) 延性破壊率	0	80	60	20	80	0	0	0	100	40
	ハイレート試験(-20°C) 延性破壊率	46.5	46.5	46.5	56	35.8	45.6	47.6	—	33.3	33.3
	生物起源物質含有率 (C ¹⁴ 推算法)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—

【表 3】

(表3)

実施例No.			実施例1-21	実施例1-22	実施例1-23	実施例1-24
配合	ポリカーボネート樹脂(A) (重量部)	PC-A1	70	70	70	70
		PC-A2	—	—	—	—
		PC-A3	—	—	—	—
		PC-A4	—	—	—	—
	芳香族 ポリカーボネート樹脂(B) (重量部)	PC-B1	30	30	30	30
		PC-B2	—	—	—	—
		PC-B3	—	—	—	—
	化合物(C)	種類	塩化ナトリウム (粉末)	酢酸リチウム	ステアリン酸 リチウム	オルトケイ酸 ナトリウム
		添加量 (重量ppm)	10	10	3	10
	酸性化合物(E)	種類	—	—	—	—
添加量 (モル当量)		—	—	—	—	
金属量(合計)		重量ppm	10.4	10.4	10.4	10.4
特性	熔融粘度 @240℃,SR=91.2s ⁻¹	Pa・s	1100	820	860	680
	理想粘度に対する 粘度比率(/2020Pa s)	%	74	55	58	46
	ガラス転移温度 (DSC法)	単一性	○	○	○	○
		℃	125	125	125	125
	全光線透過率	%	88.0	88.0	90.0	87.0
	Haze	%	0.3	0.3	0.2	1.0
	耐湿熱性 (80℃95%RH_120hr)	Δ Haze	—	—	—	—
	耐湿熱性 (85℃85%RH_240hr)	Δ Haze	1.13	1.13	1.1	2.1
	耐熱性 (DTUL_1.80MPa)	℃	107	107	107	107
	ハイレート試験(23℃) 延性破壊率	%	100	100	100	100
	ハイレート試験(-20℃) 延性破壊率	%	0	0	0	0
	生物起源物質含有率 (C ¹⁴ 推算法)	%	46.5	46.5	46.5	46.5

【 0 2 3 4 】

【表 4】

(表4)

比較例No.			比較例1-1	比較例1-2	比較例1-3	比較例1-4
配合	ポリカーボネート樹脂(A) (重量部)	PC-A1	70	—	70	70
		PC-A2	—	—	—	—
		PC-A3	—	70	—	—
		PC-A4	—	—	—	—
	芳香族 ポリカーボネート樹脂(B) (重量部)	PC-B1	30	30	30	30
		PC-B2	—	—	—	—
		PC-B3	—	—	—	—
	化合物(C)	種類	—	—	TBT (液体)	炭酸水素ナトリウム(粉末)
		添加量 (重量ppm)	—	—	1000	10
	酸性化合物(E)	種類	—	—	—	—
		添加量 (モル当量)	—	—	—	—
	金属量(合計)	重量ppm	0.4	0.4	0.4	10.4
特性	溶融粘度 @240°C, SR=91.2s ⁻¹	Pa・s	1070	820	1100	1200
	理想粘度に対する 粘度比率(/2020Pa s)	%	72	58	74	81
	ガラス転移温度 (DSC法)	単一性	×	○	×	×
		°C	122、137	89	121、136	122、136
	全光線透過率	%	不透明	89.74	不透明	不透明
	Haze	%	—	1.9	—	—
	耐湿熱性 (80°C95%RH_120hr)	ΔHaze	—	—	—	—
	耐湿熱性 (85°C85%RH_240hr)	ΔHaze	—	1.3	—	—
	耐熱性 (DTUL_1.80MPa)	°C	107	75	108	108
	ハイレート試験(23°C) 延性破壊率	%	0	100	0	0
	ハイレート試験(-20°C) 延性破壊率	%	0	100	0	0
	生物起源物質含有率 (C ¹⁴ 推算法)	%	46.5	18	46.5	46.5

【0235】

表1～表4より知られるように、実施例のポリカーボネート樹脂組成物は、前述の式(1)で表される化合物に由来する構成単位を含むポリカーボネート樹脂(A)と、芳香族ポリカーボネート樹脂(B)と、長周期型周期表第I族の金属の化合物及び長周期型周期表第II族の金属の化合物からなる群から選択される少なくとも1種の化合物(C)と、を含有し、化合物(C)の含有量が、該化合物(C)中の金属量で0.5重量ppm以上1000重量ppm以下である。かかるポリカーボネート樹脂組成物は、厚さ2mmの成形体の全光線透過率が80%以上であり、示差走査熱量分析により測定されるガラス転移温度が単一であった。そして、このようなポリカーボネート樹脂組成物は、透明性に優れると共に、生物起源物質含有率、耐熱性、耐湿熱性、及び耐衝撃性を高いレベルでバランス

よく兼ね備えていた。

【0236】

次に、ポリカーボネート樹脂（A）と、芳香族ポリカーボネート樹脂（B）と、化合物（C）と、クラウンエーテル化合物（D）とを含有するポリカーボネート樹脂組成物の実施例等について説明する。なお、以下の実施例2-1～実施例2-7、比較例2-1～比較例2-4、参考例2-1、及び参考例2-2においては、ポリカーボネート樹脂（A）として、上述の製造例1-1において作製したPC-A1、又は上述の製造例1-3において作製したPC-A3を用いた。芳香族ポリカーボネート樹脂（B）としては、上述のPC-B1を用いた。具体的には、後述の表5及び表6に示す。

【0237】

〔評価方法II〕

以下の実施例、比較例、参考例において、ポリカーボネート樹脂（A）、芳香族ポリカーボネート樹脂（B）及び樹脂組成物の物性ないし特性の評価は次の方法により行った。

【0238】

（II-1）還元粘度の測定

上述のI-1と同様の方法により測定した。

【0239】

（II-2）ガラス転移温度（T_g）の測定

上述のI-3と同様の方法により測定した。

【0240】

（II-3）ポリカーボネート樹脂組成物中の金属量測定

上述のI-4と同様の方法により測定した。なお、後述の実施例2-1～実施例2-7、比較例2-1～2-4、参考例2-1～2-2における金属量は、化合物（C）由来の金属だけでなく、ポリカーボネート樹脂（A）由来の金属（例えばCa）や芳香族ポリカーボネート樹脂（B）由来の金属（例えばCs）を含む。

【0241】

（II-4）全光線透過率の測定

上述のI-5と同様の方法により測定した。

【0242】

（II-5）耐湿熱試験

楠本化成（株）製の恒温恒湿槽「HIFLEX FX224P」の設定を85℃、85%RHとし、槽内に、幅100mm（又は50mm）×長さ100mm×厚さ2mmの試験片を480時間静置して湿熱処理を施した。その後、試験片を取り出し、ヘーズを測定し、耐湿熱試験前のヘーズとの差（ΔHaze）を求めた。尚、ヘーズの測定は、日本電色工業（株）製ヘーズメータ「NDH2000」を用いてJIS-K7136（2000年）に準拠して行った。ΔHazeが大きいほど耐湿熱性が悪く、小さいほど耐湿熱性が良好であることを意味する。なお、上述の全光線透過率の測定において、目視にて射出成形板が不透明であった場合には、本試験（耐湿熱試験）の実施を省略した。

【0243】

（II-6）耐熱性試験

上述のI-7と同様の方法により測定した。なお、本試験では、90℃以上を合格とするが、好ましくは95℃以上がよく、さらに好ましくは100℃以上がよい。

【0244】

（II-7）ハイレート試験

上述のI-8と同様の方法により測定した。

【0245】

（II-8）曲げ弾性率

ポリカーボネート樹脂組成物のペレットを、熱風乾燥機を用いて、90℃で4時間以上乾燥した。次に、乾燥したペレットを射出成形機（日本製鋼所社製J75EII型）に供給し、樹脂温度240℃、金型温度60℃、成形サイクル50秒間の条件で成形を行うこ

10

20

30

40

50

とにより、J I S - K 7 1 3 9 (2 0 0 9 年) に記載の多目的試験片 A 型を得た。得られた多目的試験片から長さ 8 0 m m 、幅 1 0 m m 、厚さ 4 m m の試験片を切削し、J I S - K 7 1 7 1 (2 0 0 8 年) に準拠し、曲げ弾性率を測定した。

【 0 2 4 6 】

(II - 9) 生物起源物質含有率の測定

上述の I - 9 と同様の方法により測定した。

【 0 2 4 7 】

以下の実施例、比較例、及び参考例で用いた化合物 (C) 、化合物 (D) 、酸性化合物 (E) の詳細は次の通りである。

【 0 2 4 8 】

[化合物 (C)]

- ・炭酸カリウム (和光純薬工業社製 試薬特級)
- ・炭酸水素ナトリウム (和光純薬工業社製 試薬特級)
- ・炭酸セシウム (ナカライテスク社製 試薬特級)

【 0 2 4 9 】

[化合物 (D)]

- ・ 1 8 C 6 E (1 8 - クラウン - 6 - エーテル) : 1 , 4 , 7 , 1 0 , 1 3 , 1 6 - ヘキサオキサシクロオクタデカン (東京化成工業社製)
- ・ 1 5 C 5 E (1 5 - クラウン - 5 - エーテル) : 1 , 4 , 7 , 1 0 , 1 3 - ペンタオキサシクロペンタデカン (東京化成工業社製)

【 0 2 5 0 】

[酸性化合物 (E)]

- ・亜リン酸 (和光純薬工業社製 試薬特級)

【 0 2 5 1 】

[実施例 2 - 1]

本例においては、ポリカーボネート樹脂 (A) として上述の P C - A 1 を用い、芳香族ポリカーボネート樹脂 (B) として上述のノバレックス 7 0 2 2 J (すなわち、P C - B 1) を用い、化合物 (D) として 1 8 - クラウン - 6 - エーテルを用い、化合物 (C) として炭酸カリウムを用いた。そして、7 0 重量部のポリカーボネート樹脂 (A) と、3 0 重量部の芳香族ポリカーボネート樹脂 (B) と、化合物 (C) に対して 1 倍モルの化合物 (D) と、金属換算 (K 換算) で 2 重量 p p m の化合物 (D) とを配合し、二軸混練機 (日本製鋼所社製、T E X - 3 0 α ($L / D = 5 2 . 5$ 、 L (m m) : スクリュの長さ、 D (m m) : スクリュの直径)) を用いて混練を行い、ポリカーボネート樹脂 (A) と芳香族ポリカーボネート樹脂 (B) との溶融反応を行った。混練機スクリュの直径 D (m m) に対するニーディングゾーンの合計長さ L_t の比は 6 であり ($L_t / D = 6$) 、混練条件は、流量 : 1 0 k g / h 、スクリュ回転速度 : 2 0 0 r p m 、シリンダー温度 : 2 3 0 ° C である。前記押出機は 2 つの真空ベント口を有しており、ベント真空度 : 1 1 k P a の条件で行った。混練による溶融反応後に樹脂組成物をストランド状に押し出し、水冷工程を経てペレット状にカッティングを行いポリカーボネート樹脂組成物のペレットを得た。

【 0 2 5 2 】

次いで、得られたペレットを温度 1 0 0 ° C の熱風乾燥機で 5 時間乾燥した後、7 5 トン射出成形機 (東芝機械社製 E C - 7 5) を用いて、ペレットの射出成形を行った。成形条件は、金型温度 : 6 0 ° C 、シリンダー温度 : 2 4 0 ° C である。このようにして、幅 1 0 0 m m × 長さ 1 0 0 m m × 厚さ 2 m m の板状の成形体からなる試験片を得た。また、同様に成形を行うことにより、I S O 引張試験片を得た。これらの試験片を用いて上記の評価を行い、その結果を表 5 に示す。

【 0 2 5 3 】

[実施例 2 - 2]

実施例 2 - 1 において得られたポリカーボネート樹脂組成物のペレットに、酸性化合物 (E) である亜リン酸の 1 5 重量 % エタノール溶液を均一にまぶした。なお、酸性化合物

(E)の添加量は、化合物(C)として添加した炭酸カリウム中の金属(K)量に対して2倍モルとなるように調整した。その後、エタノールを風乾により除去した。このようにして得られたペレットを実施例2-1と同様に溶融押出し、ペレット化を行った。さらに実施例2-1と同様にポリカーボネート樹脂組成物の乾燥、成形、評価を行った。その結果を表5に示す。

【0254】

[実施例2-3]

本例においては、化合物(D)として15-クラウン-5-エーテルを用い、化合物(C)として炭酸水素ナトリウムを用い、化合物(C)の量を金属換算(Na換算)で3重量ppmに変えた以外は、実施例1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物のペレットを作製し、このペレットに、酸性化合物(E)である亜リン酸の15重量%エタノール溶液を均一にまぶした。なお、酸性化合物(E)の添加量は、化合物(C)として添加した炭酸水素ナトリウム中の金属(Na)量に対して2倍モルとなるように調整した。その後、エタノールを風乾により除去した。このようにして得られたペレットを実施例2-1と同様に溶融押出し、ペレット化を行った。さらに実施例1と同様にポリカーボネート樹脂組成物の乾燥、成形、評価を行った。その結果を表5に示す。

【0255】

[実施例2-4]

本例においては、化合物(C)に対する化合物(D)の量を2倍モルに変更し、化合物(C)として炭酸セシウムを用い、化合物(C)の量を金属換算(Cs換算)で7重量ppmに変えた以外は、実施例1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体(試験片)を作製し、さらに実施例2-1と同様の評価を行った。その結果を表5に示す。

【0256】

[実施例2-5]

実施例2-4において得られたポリカーボネート樹脂組成物のペレットに、酸性化合物(E)である亜リン酸の15重量%エタノール溶液を均一にまぶした。なお、酸性化合物(E)の添加量は、化合物(C)として添加した炭酸セシウム中の金属(Cs)量に対して2倍モルとなるように調整した。その後、エタノールを風乾により除去した。このようにして得られたペレットを実施例2-1と同様に溶融押出し、ペレット化を行った。さらに実施例1と同様にポリカーボネート樹脂組成物の乾燥、成形、評価を行った。その結果を表5に示す。

【0257】

[実施例2-6]

本例においては、化合物(C)に対する化合物(D)の量を0.1倍モルに変更し、化合物(C)として炭酸リチウムを用い、化合物(C)の量を金属換算(Cs換算)で10重量ppmに変えた以外は、実施例1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体(試験片)を作製し、さらに実施例2-1と同様の評価を行った。その結果を表5に示す。

【0258】

[実施例2-7]

本例においては、化合物(C)に対する化合物(D)の量を0.1倍モルに変更し、化合物(C)としてステアリン酸リチウムを用い、化合物(C)の量を金属換算(Cs換算)で3重量ppmに変えた以外は、実施例2-1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体(試験片)を作製し、さらに実施例2-1と同様の評価を行った。その結果を表5に示す。

【0259】

[比較例2-1]

本例においては、化合物(D)を添加しなかった以外は、実施例1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体(試験片)を作製し、さらに実施例

2-1と同様の評価を行った。その結果を表6に示す。

【0260】

[参考例2-1]

本例においては、化合物(D)を添加せず、化合物(C)として用いる炭酸カリウムの量を金属換算で5重量ppmに変更した以外は、実施例2-1と同様に行った。その結果を表6に示す。

【0261】

[比較例2-2]

本例においては、化合物(D)を添加せず、化合物(C)として炭酸水素ナトリウムを用い、化合物(C)の量を金属換算(Na換算)で5重量ppmに変えた以外は、実施例2-1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体(試験片)を作製し、さらに実施例2-1と同様の評価を行った。その結果を表6に示す。

【0262】

[参考例2-2]

本例においては、化合物(D)を添加せず、化合物(C)として炭酸水素ナトリウムを用い、化合物(C)の量を金属換算(Na換算)で10重量ppmに変更した以外は、実施例2-1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体(試験片)を作製し、さらに実施例2-1と同様の評価を行った。その結果を表6に示す。

【0263】

[比較例2-3]

本例においては、化合物(C)及び化合物(D)を添加しなかった以外は、実施例2-1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体(試験片)を作製し、さらに実施例2-1と同様の評価を行った。その結果を表6に示す。

【0264】

[比較例2-4]

本例においては、芳香族ポリカーボネート樹脂(B)の代わりにポリカーボネート樹脂(A)である上述のPC-A3を用い、化合物(C)及び化合物(D)を添加しなかった以外は、実施例2-1と同様にしてポリカーボネート樹脂組成物を作製し、これを用いて成形体(試験片)を作製し、さらに実施例2-1と同様の評価を行った。その結果を表6に示す。

【0265】

10

20

30

【表 5】

(表5)

実施例No.			実施例2-1	実施例2-2	実施例2-3	実施例2-4	実施例2-5	実施例2-6	実施例2-7
配合	ポリカーボネート樹脂(A)	重量部	70	70	70	70	70	70	70
		重量部	—	—	—	—	—	—	—
	芳香族ポリカーボネート樹脂(B)	重量部	30	30	30	30	30	30	30
		種類	炭酸カリウム	炭酸カリウム	炭酸水素ナトリウム	炭酸セシウム	炭酸セシウム	酢酸リチウム	ステアリン酸リチウム
	化合物(C)	重量ppm	2	2	3	7	7	10	3
		種類	18C6E	18C6E	15C5E	18C6E	18C6E	18C6E	18C6E
	クラウンエーテル化合物(D)	倍mol	1	1	1	2	2	0.1	0.1
		種類	—	亜リン酸	亜リン酸	—	亜リン酸	—	—
	酸性化合物(E)	倍mol	—	2	2	—	2	—	—
		重量ppm	2	2	3	7	7	10	3
特性	金属量(合計)		—	—	—	—	—	—	—
	ガラス転移温度(DSC法)	単一性	○	○	○	○	○	○	○
		Tg	125	125	125	125	125	120	120
	全光線透過率	%	88.9	88.7	89.8	87.6	87.7	87.4	87.8
		%	0.3	0.3	0.2	0.3	0.1	0.3	0.2
	耐湿熱性(85°C/85RH%) △Haze@480hr	%	0.2	0.1	1.1	0.3	0.1	0.8	0.8
		%	100	100	100	100	100	100	100
	ハイレート衝撃試験	23°C条件	80	100	60	80	80	0	0
		-20°C条件	2800	2800	2800	2750	2800	2800	2800
	曲げ弾性率	MPa	104	107	108	108	108	107	107
		°C	46.5	46.5	46.5	46.5	46.5	46.5	46.5
	耐熱性(DTUL@1.80MPa)		—	—	—	—	—	—	—
	生物起源物質含有率(C ¹⁴ 推算法)		—	—	—	—	—	—	—

【0 2 6 6】

10

20

30

40

【表 6】

(表6)

比較例No.			比較例2-1	参考例2-1	比較例2-1	比較例2-2	比較例2-2	比較例2-3	比較例2-4
配合	ポリカーボネート樹脂(A)	PC-A1	重量部	70	70	70	70	70	70
		PC-A3	重量部	—	—	—	—	—	30
		PC-B1	重量部	30	30	30	30	30	—
	化合物(C)	種類	炭酸カリウム	炭酸カリウム	炭酸カリウム	炭酸カリウム	炭酸カリウム	炭酸カリウム	炭酸カリウム
		添加量	重量ppm	2	5	5	10	10	—
	クラウンエーテル化合物(D)	種類	—	—	—	—	—	—	—
		添加量	倍mol	—	—	—	—	—	—
	酸性化合物(E)	種類	—	—	—	—	—	—	—
		添加量	倍mol	—	—	—	—	—	—
	金属量(合計)		重量ppm	2	5	5	10	10	0.4
特性	ガラス転移温度(DSC法)	単一性	×	○	×	○	×	×	○
		Tg	℃	122、136	125	121、136	124	122、137	89
	全光線透過率		%	不透明	85.8	不透明	89.8	不透明	89.7
		Haze	%	不透明	1	不透明	0.5	不透明	1.9
	耐湿熱性(85℃/85RH%) ∠Haze@480hr		%	—	1.4	—	93.2	—	1.7
		ハイレート衝撃試験		%	0	80	0	0	0
	曲げ弾性率			%	0	0	0	0	0
				MPa	2750	2800	2700	2650	2750
	耐熱性(DTUL@1.80MPa)		℃	108	107	108	107	108	75
	生物起源物質含有率(C ¹⁴ 推算法)		%	46.5	46.5	46.5	46.5	46.5	18

【0267】

表5及び表6より知られるように、実施例のポリカーボネート樹脂組成物は、前述の式(1)で表される化合物に由来する構成単位を含むポリカーボネート樹脂(A)と、芳香族ポリカーボネート樹脂(B)と、クラウンエーテル化合物(D)と、長周期型周期表第I族の金属の化合物及び長周期型周期表第II族の金属の化合物からなる群から選択される少なくとも1種の化合物(C)とを含有し、ポリカーボネート樹脂(A)と前記芳香族ポリカーボネート樹脂(B)との合計量100重量部に対する化合物(C)の含有量が、該化合物(C)中の金属量で0.8重量ppm以上1000重量ppm以下であり、化合物

(C) に対する前記クラウンエーテル化合物 (D) の含有量が 0.1 倍モル以上 10 倍モル以下である。かかるポリカーボネート樹脂組成物は、透明性に優れると共に、生物起源物資含有率、耐熱性、耐湿熱性、及び耐衝撃性を高いレベルでバランスよく兼ね備えている。

フロントページの続き

(72)発明者 久野 貴雄

三重県四日市市塩浜町1番地の69 株式会社ロンビック内

(72)発明者 森 久徳

三重県四日市市塩浜町1番地の69 株式会社ロンビック内

Fターム(参考) 4J002 CG001 CG002 DE057 DE227 DH028 DH047 DK007 EG027 EG077 EL116
FD010 FD050 FD060 FD070 FD090 FD160
4J029 AA09 AB04 AC04 AD01 AE01 BB12A BD07A BD10 BF30 HA01
HC05A JB171 JF023 JF033 JF043 JF053 JF113 JF141 KC02 KE12
LA16

【要約の続き】

【選択図】 なし