

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号
特許第4911550号
(P4911550)

(45) 発行日 平成24年4月4日 (2012. 4. 4)

(24) 登録日 平成24年1月27日 (2012. 1. 27)

(51) Int. Cl.	F I
CO8L 67/04 (2006. 01)	CO8L 67/04
CO8K 5/098 (2006. 01)	CO8K 5/098
CO8K 5/1515 (2006. 01)	CO8K 5/1515
CO8K 5/29 (2006. 01)	CO8K 5/29
CO8K 5/3472 (2006. 01)	CO8K 5/3472

請求項の数 12 (全 18 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2003-23307 (P2003-23307)	(73) 特許権者	000003159
(22) 出願日	平成15年1月31日 (2003. 1. 31)		東レ株式会社
(65) 公開番号	特開2003-321602 (P2003-321602A)		東京都中央区日本橋室町2丁目1番1号
(43) 公開日	平成15年11月14日 (2003. 11. 14)	(72) 発明者	大目 裕千
審査請求日	平成18年1月27日 (2006. 1. 27)		愛知県名古屋市港区大江町9番地の1 東
審判番号	不服2008-32001 (P2008-32001/J1)		レ株式会社名古屋事業場内
審判請求日	平成20年12月18日 (2008. 12. 18)	(72) 発明者	熊澤 貞紀
(31) 優先権主張番号	特願2002-52440 (P2002-52440)		愛知県名古屋市港区大江町9番地の1 東
(32) 優先日	平成14年2月27日 (2002. 2. 27)		レ株式会社名古屋事業場内
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)	(72) 発明者	熊木 治郎
			愛知県名古屋市港区大江町9番地の1 東
			レ株式会社名古屋事業場内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 樹脂組成物ならびにそれからなる成形品

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

ポリ乳酸樹脂、
ポリアセタール樹脂、
エポキシ化合物、オキサゾリン化合物、オキサジン化合物、カルボジイミド化合物から選ばれる少なくとも一種のカルボキシル基反応性末端封鎖剤、ならびに
ステアリン酸ナトリウム、トリアゾール化合物およびホスフェート系化合物から選ばれる一種以上、
を熔融混練してなることを特徴とする樹脂組成物。

【請求項 2】

前記ポリ乳酸樹脂およびポリアセタール樹脂の合計を100重量部としたときに、前記ポリ乳酸樹脂の含有量が99重量部以下50重量部以上であることを特徴とする請求項1に記載の樹脂組成物。

【請求項 3】

前記ポリ乳酸樹脂およびポリアセタール樹脂の合計を100重量部としたときに、前記ポリアセタール樹脂の含有量が99重量部以下50重量部超であることを特徴とする請求項1に記載の樹脂組成物。

【請求項 4】

前記ポリ乳酸樹脂およびポリアセタール樹脂の合計を100重量部としたときに、前記カルボキシル基反応性末端封鎖剤の量が10重量部以下0.01重量部以上であることを

特徴とする請求項 1～3 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物。

【請求項 5】

樹脂組成物中のポリ乳酸樹脂とポリアセタール樹脂が相溶化していることを特徴とする請求項 1～4 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物。

【請求項 6】

樹脂組成物のポリアセタール樹脂由来の降温時の結晶化温度が、用いたポリアセタール樹脂単独の降温時の結晶化温度よりも低い温度であることを特徴とする請求項 1～5 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物。

【請求項 7】

前記ポリアセタール樹脂がポリアセタールコポリマーであることを特徴とする請求項 1～6 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物。

【請求項 8】

前記カルボキシル基反応性末端封鎖剤が、グリシジルエーテル化合物、グリシジルエステル化合物、グリシジリアミン化合物、グリシジリイミド化合物、脂環式エポキシ化合物の少なくとも一種であることを特徴とする請求項 1～7 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物。

【請求項 9】

ポリ乳酸樹脂が、ポリ乳酸樹脂の総乳酸成分の内、L 体が 90% 以上含まれるかあるいは D 体が 90% 以上含まれるものであることを特徴とする請求項 1～8 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物。

【請求項 10】

前記ポリ乳酸樹脂およびポリアセタール樹脂の合計を 100 重量部としたときに、ステアリン酸ナトリウムの量が 0.001～1 重量部であることを特徴とする請求項 1～9 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物。

【請求項 11】

前記ポリ乳酸樹脂およびポリアセタール樹脂の合計を 100 重量部としたときに、トリアゾール化合物またはホスフェート系化合物の量が 2 重量部以下 0.01 重量部以上であることを特徴とする請求項 1～10 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物。

【請求項 12】

請求項 1～11 のいずれか 1 項に記載の樹脂組成物からなる成形品。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、成形性、機械特性、耐熱性、耐加水分解性に優れた樹脂組成物ならびにそれからなる成形品に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

ポリ乳酸樹脂は、高い融点を持ち、また熔融成形可能であることから、実用上優れた生分解性ポリマーとして期待されている。また、将来的にバイオ原料から作られる汎用ポリマーとしての利用も期待されている。しかしながら、ポリ乳酸樹脂は、結晶化速度が遅いため、結晶化させて成形品として用いるには限界があった。例えばポリ乳酸樹脂を射出成形する場合には、長い成形サイクル時間や成形後の熱処理を必要とすること、および成形時や熱処理時の変形が大きいことなどの実用上大きな問題があった。また、ポリ乳酸樹脂は、耐加水分解特性が悪く、高温高湿下で使用する事が困難であった。そのため、特許文献 1 では、通常のポリエステル耐加水分解改良と同様に、カルボジイミド化合物を用いてポリ乳酸でもカルボキシル末端基を封鎖する方法が試みられているが、その効果は不十分であった。

【0003】

一方、ポリアセタール樹脂は、機械特性や成形性などバランスに優れた樹脂であることから、射出成形品として広く用いられているが、繊維やフィルムなどに加工するのが難しい

10

20

30

40

50

樹脂であった。

【0004】

2種またはそれ以上のポリマーを配合して用いる技術は、ポリマーアロイとして広く知られており、このポリマーアロイは、個々のポリマーの欠点を改良する目的で広く利用されている。しかしながら、2種以上のポリマーを混合した場合、多くはポリマー同士の分散性が悪く、ペレットや成形品の形状に加工できなかつたり、劣った特性を示す傾向となる。

【0005】

しかし、まれに2種のポリマーが均一な非晶相を形成する場合があります、この種のものは一般に相溶性または混和性ポリマーアロイとして優れた特性を示すことが期待されているが、その例は少ない。

10

【0006】

ポリ乳酸樹脂と相溶性のあるポリマーとしては、ポリエチレングリコール（例えば、非特許文献1参照）やポリメチルメタクリレート（例えば、非特許文献2参照）が知られているが、これらのポリマーを混合した場合には、ポリ乳酸樹脂の強度や結晶性が大きく低下するという問題があった。

【0007】

また、ポリアセタールと相溶性のあるポリマーとしては、ポリビニルフェノール（例えば、非特許文献3参照）が知られているが、ポリビニルフェノールは分子量が一般に低いことから、混合後の樹脂物性が低下するという問題があった。

20

【0008】

特許文献2には、ポリアセタールに生分解性を付与する目的で、脂肪族ポリエステルと微量のホルムアルデヒドを含有させた樹脂組成物が開示され、その中で脂肪族ポリエステルの1例として、種々の脂肪族ポリエステルとともにポリ乳酸の使用例が開示されているが、同公報記載の組成物では、上記に記載したポリ乳酸樹脂やポリアセタール樹脂の問題を解決できるものではなかった。また、同公報記載の発明においてポリ乳酸は、他の脂肪族ポリエステルと同等に扱われており、ポリアセタールとの相溶性に関して特別な認識は全くなされていない。

【0009】

【特許文献1】

30

特開平11-80522号公報（第5，6頁）

【特許文献2】

特開平5-43772号公報（第5頁）

【非特許文献1】

Polymer 37（26），5849-5857頁（1996）

【非特許文献2】

Polymer 39（26），6891-6897頁（1998）

【非特許文献3】

Polymer 33（4），760-766頁（1992）

【0010】

40

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、上述した従来技術における問題点の解決を課題として検討した結果達成されたものである。

【0011】

したがって、本発明の目的は、成形性、機械特性、耐熱性、耐加水分解性に優れた樹脂組成物およびそれからなる成形品を提供することにある。

【0012】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、ポリ乳酸樹脂、ポリアセタール樹脂およびカルボキシル基反応性末端封鎖剤を溶融混練してなる樹脂組成物が上記の目的に合致する優れた特性を有することを見い

50

出し、本発明に到達した。

【0013】

すなわち、本発明は、ポリ乳酸樹脂、ポリアセタール樹脂、エポキシ化合物、オキサゾリン化合物、オキサジン化合物、カルボジイミド化合物から選ばれる少なくとも一種のカルボキシル基反応性末端封鎖剤、ならびにステアリン酸ナトリウム、トリアゾール化合物およびホスフェート系化合物から選ばれる一種以上、を溶融混練してなることを特徴とする樹脂組成物を提供するものである。

【0014】

なお、本発明の樹脂組成物においては、

前記ポリ乳酸樹脂およびポリアセタール樹脂の合計を100重量部としたときに、前記ポリ乳酸樹脂の含有量が99重量部以下50重量部以上であること、

前記ポリ乳酸樹脂およびポリアセタール樹脂の合計を100重量部としたときに、前記ポリアセタール樹脂の含有量が99重量部以下50重量部超であること、

前記ポリ乳酸樹脂およびポリアセタール樹脂の合計を100重量部としたときに、前記カルボキシル基反応性末端封鎖剤の量が10重量部以下0.01重量部以上であること、

樹脂組成物中のポリ乳酸樹脂とポリアセタール樹脂が相溶化していること、

樹脂組成物のポリアセタール樹脂由来の降温時の結晶化温度が、用いたポリアセタール樹脂単独の降温時の結晶化温度よりも低い温度であること、

前記ポリアセタール樹脂がポリアセタールコポリマーであること、

前記カルボキシル基反応性末端封鎖剤がグリシジルエーテル化合物、グリシジルエステル化合物、グリシジリアミン化合物、グリシジレイミド化合物、脂環式エポキシ化合物の少なくとも一種であること、

ポリ乳酸樹脂が、ポリ乳酸樹脂の総乳酸成分の内、L体が90%以上含まれるかあるいはD体が90%以上含まれるものであること、

前記ポリ乳酸樹脂およびポリアセタール樹脂の合計を100重量部としたときに、ステアリン酸ナトリウムの量が0.001~1重量部であること、

前記ポリ乳酸樹脂およびポリアセタール樹脂の合計を100重量部としたときに、トリアゾール化合物またはホスフェート系化合物の量が2重量部以下0.01重量部以上であること、

が、いずれも好ましい条件として挙げられ、これらの条件を適用した場合には一層優れた効果の取得を期待することができる。

【0015】

また、本発明の成形品は、上記の樹脂組成物からなることを特徴とする。

【0016】

【発明の実施の形態】

以下、本発明について詳細に説明する。

【0017】

本発明に用いられるポリ乳酸樹脂とは、L-乳酸及び／またはD-乳酸を主たる構成成分とするポリマーであるが、乳酸以外の他の共重合成分を含んでいてもよい。他の共重合成分としては、エチレングリコール、プロピレングリコール、ブタンジオール、ヘプタンジオール、ヘキサンジオール、オクタンジオール、ノナンジオール、デカンジオール、1,4-シクロヘキサンジメタノール、ネオペンチルグリコール、グリセリン、ペンタエリスリトール、ビスフェノールA、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコールおよびポリテトラメチレングリコールなどのグリコール化合物、シュウ酸、アジピン酸、セバシン酸、アゼライン酸、ドデカンジオン酸、マロン酸、グルタル酸、シクロヘキサンジカルボン酸、テレフタル酸、イソフタル酸、フタル酸、ナフタレンジカルボン酸、ビス(p-カルボキシフェニル)メタン、アントラセンジカルボン酸、4,4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸、5-ナトリウムスルホイソフタル酸、5-テトラブチルホスホニウムイソフタル酸などのジカルボン酸、グリコール酸、ヒドロキシプロピオン酸、ヒドロキシ

10

20

30

40

50

酪酸、ヒドロキシ吉草酸、ヒドロシカプロン酸、ヒドロキシ安息香酸などのヒドロシカルボン酸、およびカプロラクトン、バレロラクトン、プロピオラクトン、ウンデカラクトン、1, 5-オキセパン-2-オンなどのラクトン類を挙げることができる。かかる共重合成分は全単体成分のうち、本発明の効果を損なわない程度、例えば20モル%以下であることが好ましく、10モル%以下であることが好ましい。

【0018】

本発明においては、相溶性の点から、乳酸成分の光学純度が高いポリ乳酸樹脂を用いることが好ましい。すなわち、ポリ乳酸樹脂の総乳酸成分の内、L体が80%以上含まれるかあるいはD体が80%以上含まれることが好ましく、L体が90%以上含まれるかあるいはD体が90%以上含まれることが特に好ましく、L体が95%以上含まれるかあるいはD体が95%以上含まれることが更に好ましく、L体が98%以上含まれるかあるいはD体が98%以上含まれることが更に好ましい。また、L体またはD体の含有量の上限は通常100%以下である。

10

【0019】

ポリ乳酸樹脂の分子量や分子量分布については、実質的に成形加工が可能であれば特に制限されるものではないが、重量平均分子量としては、通常1万以上、好ましくは4万以上、さらに8万以上であることが望ましい。ここでいう重量平均分子量とは、ゲルパーミテーションクロマトグラフィーで測定したポリメチルメタクリレート(PMMA)換算の分子量をいう。

【0020】

ポリ乳酸樹脂の融点については、特に制限されるものではないが、120℃以上であることが好ましく、さらに150℃以上であることが好ましく、特に160℃以上であることが好ましい。ポリ乳酸樹脂の融点は、通常乳酸成分の光学純度を高くすることにより高くなり、融点が120℃以上のポリ乳酸樹脂は、L体が90%以上含まれるかあるいはD体が90%以上含まれることにより、また融点が150℃以上のポリ乳酸樹脂は、L体が95%以上含まれるかあるいはD体が95%以上含まれることにより、また融点が160℃以上のポリ乳酸樹脂は、L体が98%以上含まれるかあるいはD体が98%以上含まれることにより、得ることができる。

20

【0021】

このようなポリ乳酸樹脂の製造方法としては、公知の重合方法を用いることができ、乳酸からの直接重合法、およびラクチドを介する開環重合法などを挙げることができる。

30

【0022】

本発明に用いられるポリアセタール樹脂は、オキシメチレン単位を主たる繰り返し単位とするポリマーであり、ホルムアルデヒドもしくはトリオキサンを主原料として、重合反応によって得られる、いわゆるポリアセタールホモポリマー、および主としてオキシメチレン単位からなり、主鎖中に2～8個の隣接する炭素原子を有するオキシアルキレン単位を15重量%以下含有するいわゆるポリアセタールコポリマーのいずれであってもよく、また他の構成単位を含有するコポリマー、つまりブロックコポリマー、ターポリマーおよび架橋ポリマーのいずれであってもよく、これらは1種または2種以上で用いることができるが、熱安定性の観点からはポリアセタールコポリマーであることが好ましい。

40

【0023】

本発明におけるポリアセタール樹脂の製造方法については特に制限はなく、公知の方法により製造することができる。ポリアセタールホモポリマーの代表的な製造方法の例としては、高純度のホルムアルデヒドを有機アミン、有機あるいは無機の錫化合物、金属水酸化物のような塩基性重合触媒を含有する有機溶媒中に導入して重合し、重合体を濾別した後、無水酢酸中、酢酸ナトリウムの存在下で加熱してポリマー末端をアセチル化することにより製造する方法などが挙げられる。

【0024】

また、代表的なポリアセタールコポリマーの製造方法の例としては、高純度のトリオキサンおよびエチレンオキシドや1, 3-ジオキソランなどの共重合成分をシクロヘキサンの

50

ような有機溶媒中に導入し、三弗化ホウ素ジエチルエーテル錯体のようなルイス酸触媒を用いてカチオン重合した後、触媒の失活と末端基の安定化を行うことによる製造する方法、あるいは溶媒を全く使用せずに、セルフクリーニング型攪拌機の中ヘトリオキサン、共重合成分および触媒を導入して塊状重合した後、さらに不安定末端を分解除去することにより製造する方法などが挙げられる。

【0025】

これらポリアセタール樹脂の粘度は、成形材料として使用できる程度のものであれば特に制限はないが、ASTM D1238法によるメルトインデックス(MI)が測定可能であり、温度190℃、荷重2.16kgで測定したMIが1.0~50g/10分の範囲のものであることが好ましく、1.5~35g/10分のものであることが特に好ましい。

10

【0026】

また、ポリアセタール樹脂としては、あらかじめ熱安定剤や発生ガス捕捉剤を含有しているものを用いることが好ましく、2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、カルシウムリシノレート、シアノグアナジン、ヘキサメチレンビス(3,5-tert-ブチル-4-ヒドロキシヒドロシアナメート)、メラミン、メラミン-ホルムアルデヒド樹脂、ナイロン6/66、ナイロン66/610/6、ナイロン612/6、テトラキス[メチレン(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシヒドロシアナメート)]メタン、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]、トリエチレングリコール[3-(3,5-ジ-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]の少なくとも1種が含有されていることが好ましい。

20

【0027】

なお、ポリアセタール樹脂の分解が促進されることにより組成物の耐久性や相溶性を損なうなど、組成物自体の特性に強い影響を与える可能性の高いホルムアルデヒドは配合しないことが好ましく、ポリアセタール樹脂に含まれるホルムアルデヒド量を考慮しても、多くともポリアセタール樹脂に対して、500ppm未満にとどめておくのが好ましく、250ppm以下にとどめておくのがより好ましく、100ppm以下にとどめておくのがさらに好ましく、含有しないことがより好ましい。このようなホルムアルデヒド含有量を達成するには、前述したようにポリアセタールホモポリマーの重合後、ポリマー末端をアセチル化したり、ポリアセタールコポリマーの重合後、不安定末端を分解除去するなどの方法により安定化処理を行ったポリアセタール樹脂を用いることが好ましい。上記樹脂組成物中のホルムアルデヒド含有量は、樹脂組成物を粉碎して得られる粉体1gを、水100ml中、50℃で6時間攪拌して、ホルムアルデヒドを抽出し、アセチルアセトン法で定量することにより測定することができる。

30

【0028】

本発明で使用するカルボキシル基反応性末端封鎖剤としては、ポリマーのカルボキシル末端基を封鎖することのできる化合物であり、ポリマーのカルボキシル末端の封鎖剤として用いられているものを用いることができる。本発明においてかかるカルボキシル基反応性末端封鎖剤は、ポリ乳酸樹脂の末端を封鎖するのみではなく、ポリ乳酸樹脂やポリアセタール樹脂の熱分解や加水分解などで生成する乳酸やギ酸などの酸性低分子化合物のカルボキシル基も封鎖することができる。また、上記末端封鎖剤は、熱分解により酸性低分子化合物が生成する水酸基末端も封鎖できる化合物であることがさらに好ましい。

40

【0029】

このようなカルボキシル基反応性末端封鎖剤としては、エポキシ化合物、オキサゾリン化合物、オキサジン化合物、カルボジイミド化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を使用する。

【0030】

本発明にカルボキシル基反応性末端封鎖剤として用いることのできるエポキシ化合物としては、グリシジルエーテル化合物、グリシジルエステル化合物、グリシジルアミン化合物

50

、グリシジルイミド化合物、脂環式エポキシ化合物を好ましく使用することができる。

【0031】

グリシジルエーテル化合物の例としては、ブチルグリシジルエーテル、ステアрилグリシジルエーテル、アリルグリシジルエーテル、フェニルグリシジルエーテル、*o*-フェニルフェニルグリシジルエーテル、エチレンオキシドラウリルアルコールグリシジルエーテル、エチレンオキシドフェノールグリシジルエーテル、エチレングリコールジグリシジルエーテル、ポリエチレングリコールジグリシジルエーテル、プロピレングリコールジグリシジルエーテル、ポリプロピレングリコールジグリシジルエーテル、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、ポリテトラメチレングリコールジグリシジルエーテル、シクロヘキサンジメタノールジグリシジルエーテル、グリセロールトリグリシジルエーテル、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル、ペンタエリスリトールポリグリシジルエーテル、2, 2-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)メタン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホンなどのビスフェノール類とエピクロルヒドリンとの縮合反応から得られるビスフェノールAジグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、ビスフェノールFジグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、ビスフェノールSジグリシジルエーテル型エポキシ樹脂などを挙げることができる。なかでも、ビスフェノールAジグリシジルエーテル型エポキシ樹脂が好ましい。

10

【0032】

グリシジルエステル化合物の例としては、安息香酸グリシジルエステル、*p*-トルイル酸グリシジルエステル、シクロヘキサancarボン酸グリシジルエステル、ステアリン酸グリシジルエステル、ラウリン酸グリシジルエステル、パルミチン酸グリシジルエステル、パーサティック酸グリシジルエステル、オレイン酸グリシジルエステル、リノール酸グリシジルエステル、リノレン酸グリシジルエステル、テレフタル酸ジグリシジルエステル、イソフタル酸ジグリシジルエステル、フタル酸ジグリシジルエステル、ナフタレンジカルボン酸ジグリシジルエステル、ピ安息香酸ジグリシジルエステル、メチルテレフタル酸ジグリシジルエステル、ヘキサヒドロフタル酸ジグリシジルエステル、テトラヒドロフタル酸ジグリシジルエステル、シクロヘキサンジカルボン酸ジグリシジルエステル、アジピン酸ジグリシジルエステル、コハク酸ジグリシジルエステル、セバシン酸ジグリシジルエステル、ドデカンジオン酸ジグリシジルエステル、オクタデカンジカルボン酸ジグリシジルエステル、トリメリット酸トリグリシジルエステル、ピロメリット酸テトラグリシジルエステルなどを挙げることができる。なかでも、安息香酸グリシジルエステルやパーサティック酸グリシジルエステルが好ましい。

20

30

【0033】

グリシジルアミン化合物の例としては、テトラグリシジルアミノジフェニルメタン、トリグリシジル-*p*-アミノフェノール、トリグリシジル-*m*-アミノフェノール、ジグリシジルアニリン、ジグリシジルトルイジン、テトラグリシジルメタキシレンジアミン、ジグリシジルトリプロモアニリン、テトラグリシジلبisアミノメチルシクロヘキサン、トリグリシジルシアヌレート、トリグリシジルイソシアヌレートなどを挙げることができる。

【0034】

グリシジルイミド化合物の例としては、N-グリシジルフタルイミド、N-グリシジル-4-メチルフタルイミド、N-グリシジル-4, 5-ジメチルフタルイミド、N-グリシジル-3-メチルフタルイミド、N-グリシジル-3, 6-ジメチルフタルイミド、N-グリシジル-4-エトキシフタルイミド、N-グリシジル-4-クロルフタルイミド、N-グリシジル-4, 5-ジクロルフタルイミド、N-グリシジル-3, 4, 5, 6-テトラブロムフタルイミド、N-グリシジル-4-*n*-ブチル-5-ブロムフタルイミド、N-グリシジルスクシンイミド、N-グリシジルヘキサヒドロフタルイミド、N-グリシジル-1, 2, 3, 6-テトラヒドロフタルイミド、N-グリシジルマレインイミド、N-グリシジル- α , β -ジメチルスクシンイミド、N-グリシジル- α -エチルスクシンイミド、N-グリシジル- α -プロピルスクシンイミド、N-グリシジルベンズアミド、N-グリシジル-*p*-メチルベンズアミド、N-グリシジルナフトアミド、N-グリシジル

40

50

ステラミドなどを挙げることができる。なかでも、N-グリシジルフタルイミドが好ましい。

【0035】

脂環式エポキシ化合物の例としては、3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル-3, 4-エポキシシクロヘキシルカルボキシレート、ビス(3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル)アジペート、ビニルシクロヘキセンジエポキシド、N-メチル-4, 5-エポキシシクロヘキサン-1, 2-ジカルボン酸イミド、N-エチル-4, 5-エポキシシクロヘキサン-1, 2-ジカルボン酸イミド、N-フェニル-4, 5-エポキシシクロヘキサン-1, 2-ジカルボン酸イミド、N-ナフチル-4, 5-エポキシシクロヘキサン-1, 2-ジカルボン酸イミド、N-トリル-3-メチル-4, 5-エポキシシクロヘキサン-1, 2-ジカルボン酸イミドなどを挙げることができる。

10

【0036】

また、その他のエポキシ化合物として、エポキシ化大豆油、エポキシ化アマニ油、エポキシ化鯨油などのエポキシ変性脂肪酸グリセリド、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂などを用いることができる。

【0037】

本発明で用いるカルボキシル基反応性末端封鎖剤として用いることのできるオキサゾリン化合物の例としては、2-メトキシ-2-オキサゾリン、2-エトキシ-2-オキサゾリン、2-プロポキシ-2-オキサゾリン、2-ブトキシ-2-オキサゾリン、2-ペンチルオキシ-2-オキサゾリン、2-ヘキシルオキシ-2-オキサゾリン、2-ヘプチルオキシ-2-オキサゾリン、2-オクチルオキシ-2-オキサゾリン、2-ノニルオキシ-2-オキサゾリン、2-デシルオキシ-2-オキサゾリン、2-シクロペンチルオキシ-2-オキサゾリン、2-シクロヘキシルオキシ-2-オキサゾリン、2-アリルオキシ-2-オキサゾリン、2-メタアリルオキシ-2-オキサゾリン、2-クロチルオキシ-2-オキサゾリン、2-フェノキシ-2-オキサゾリン、2-クレジル-2-オキサゾリン、2-o-エチルフェノキシ-2-オキサゾリン、2-o-プロピルフェノキシ-2-オキサゾリン、2-o-フェニルフェノキシ-2-オキサゾリン、2-m-エチルフェノキシ-2-オキサゾリン、2-m-プロピルフェノキシ-2-オキサゾリン、2-p-フェニルフェノキシ-2-オキサゾリン、2-メチル-2-オキサゾリン、2-エチル-2-オキサゾリン、2-プロピル-2-オキサゾリン、2-ブチル-2-オキサゾリン、2-ペンチル-2-オキサゾリン、2-ヘキシル-2-オキサゾリン、2-ヘプチル-2-オキサゾリン、2-オクチル-2-オキサゾリン、2-ノニル-2-オキサゾリン、2-デシル-2-オキサゾリン、2-シクロペンチル-2-オキサゾリン、2-シクロヘキシル-2-オキサゾリン、2-アリル-2-オキサゾリン、2-メタアリル-2-オキサゾリン、2-クロチル-2-オキサゾリン、2-フェニル-2-オキサゾリン、2-o-エチルフェニル-2-オキサゾリン、2-o-プロピルフェニル-2-オキサゾリン、2-o-フェニルフェニル-2-オキサゾリン、2-m-エチルフェニル-2-オキサゾリン、2-m-プロピルフェニル-2-オキサゾリン、2-p-フェニルフェニル-2-オキサゾリン、2, 2'-ビス(2-オキサゾリン)、2, 2'-ビス(4-メチル-2-オキサゾリン)、2, 2'-ビス(4, 4'-ジメチル-2-オキサゾリン)、2, 2'-ビス(4-エチル-2-オキサゾリン)、2, 2'-ビス(4, 4'-ジエチル-2-オキサゾリン)、2, 2'-ビス(4-プロピル-2-オキサゾリン)、2, 2'-ビス(4-ブチル-2-オキサゾリン)、2, 2'-ビス(4-ヘキシル-2-オキサゾリン)、2, 2'-ビス(4-フェニル-2-オキサゾリン)、2, 2'-ビス(4-シクロヘキシル-2-オキサゾリン)、2, 2'-ビス(4-ベンジル-2-オキサゾリン)、2, 2'-p-フェニレンビス(2-オキサゾリン)、2, 2'-m-フェニレンビス(2-オキサゾリン)、2, 2'-o-フェニレンビス(2-オキサゾリン)、2, 2'-p-フェニレンビス(4-メチル-2-オキサゾリン)、2, 2'-p-フェニレンビス(4, 4'-ジメチル-2-オキサゾリン)、2, 2'-m-フェニレンビス(4-メチル-2-オキサゾリン)、2, 2'-m-フェニレンビス(4, 4'-ジメチル-2-オキサ

20

30

40

50

ゾリン)、2, 2'-エチレンビス(2-オキサゾリン)、2, 2'-テトラメチレンビス(2-オキサゾリン)、2, 2'-ヘキサメチレンビス(2-オキサゾリン)、2, 2'-オクタメチレンビス(2-オキサゾリン)、2, 2'-デカメチレンビス(2-オキサゾリン)、2, 2'-エチレンビス(4-メチル-2-オキサゾリン)、2, 2'-テトラメチレンビス(4, 4'-ジメチル-2-オキサゾリン)、2, 2'-9, 9'-ジフェノキシエタンビス(2-オキサゾリン)、2, 2'-シクロヘキシレンビス(2-オキサゾリン)、2, 2'-ジフェニレンビス(2-オキサゾリン)などが挙げられる。さらには、上記した化合物をモノマー単位として含むポリオキサゾリン化合物なども挙げることができる。

【0038】

本発明で用いることのできるカルボキシル基反応性末端封鎖剤としてのオキサジン化合物の例としては、2-メトキシ-5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン、2-エトキシ-5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン、2-プロポキシ-5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン、2-ブトキシ-5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン、2-ペンチルオキシ-5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン、2-ヘキシルオキシ-5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン、2-ヘプチルオキシ-5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン、2-オクチルオキシ-5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン、2-ノニルオキシ-5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン、2-デシルオキシ-5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン、2-シクロペンチルオキシ-5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン、2-シクロヘキシルオキシ-5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン、2-アリルオキシ-5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン、2-メタアリルオキシ-5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン、2-クロチルオキシ-5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジンなどが挙げられ、さらには、2, 2'-ビス(5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン)、2, 2'-メチレンビス(5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン)、2, 2'-エチレンビス(5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン)、2, 2'-プロピレンビス(5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン)、2, 2'-ブチレンビス(5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン)、2, 2'-ヘキサメチレンビス(5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン)、2, 2'-p-フェニレンビス(5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン)、2, 2'-m-フェニレンビス(5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン)、2, 2'-ナフチレンビス(5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン)、2, 2'-P, P'-ジフェニレンビス(5, 6-ジヒドロ-4H-1, 3-オキサジン)などが挙げられる。さらには、上記した化合物をモノマー単位として含むポリオキサジン化合物などが挙げられる。

【0039】

上記オキサゾリン化合物やオキサジン化合物の中では、2, 2'-m-フェニレンビス(2-オキサゾリン)、2, 2'-p-フェニレンビス(2-オキサゾリン)が好ましい。

【0040】

本発明でカルボキシル基反応性末端封鎖剤として使用することのできるカルボジイミド化合物とは、分子内に少なくともひとつの(-N=C=N-)で表されるカルボジイミド基を有する化合物であり、例えば適当な触媒の存在下に、有機イソシアネートを加熱し、脱炭酸反応で製造できる。

【0041】

カルボジイミド化合物の例としては、ジフェニルカルボジイミド、ジシクロヘキシルカルボジイミド、ジ-2, 6-ジメチルフェニルカルボジイミド、ジイソプロピルカルボジイミド、ジオクチルデシルカルボジイミド、ジ-ortho-トルイルカルボジイミド、ジ-p-トルイルカルボジイミド、ジ-p-ニトロフェニルカルボジイミド、ジ-p-アミノフェニルカルボジイミド、ジ-p-ヒドロキシフェニルカルボジイミド、ジ-p-クロルフェニルカルボジイミド、ジ-o-クロルフェニルカルボジイミド、ジ-3, 4-ジクロルフェニルカルボジイミド、ジ-2, 5-ジクロルフェニルカルボジイミド、p-フェニレン

10

20

30

40

50

ービスーオートリルカルボジイミド、pーフェニレンービスージシクロヘキシルカルボジイミド、pーフェニレンービスージーpークロルフェニルカルボジイミド、2, 6, 2', 6'ーテトライソプロピルジフェニルカルボジイミド、ヘキサメチレンービスーシクロヘキシルカルボジイミド、エチレンービスージフェニルカルボジイミド、エチレンービスージーシクロヘキシルカルボジイミド、N, N'ージーオートリルカルボジイミド、N, N'ージフェニルカルボジイミド、N, N'ージオクチルデシルカルボジイミド、N, N'ージー2, 6ージメチルフェニルカルボジイミド、NートリイルーN'ーシクロヘキシルカルボジイミド、N, N'ージー2, 6ージイソプロピルフェニルカルボジイミド、N, N'ージー2, 6ージーtertーブチルフェニルカルボジイミド、NートリイルーN'ーフェニルカルボジイミド、N, N'ージーpーニトロフェニルカルボジイミド、N, N'ージーpーアミノフェニルカルボジイミド、N, N'ージーpーヒドロキシフェニルカルボジイミド、N, N'ージーシクロヘキシルカルボジイミド、N, N'ージーpートリイルカルボジイミド、N, N'ーベンジルカルボジイミド、NーオクタデシルーN'ーフェニルカルボジイミド、NーベンジルーN'ーフェニルカルボジイミド、NーオクタデシルーN'ートリルカルボジイミド、NーシクロヘキシルーN'ートリルカルボジイミド、NーフェニルーN'ートリルカルボジイミド、NーベンジルーN'ートリルカルボジイミド、N, N'ージーoーエチルフェニルカルボジイミド、N, N'ージーpーエチルフェニルカルボジイミド、N, N'ージーoーイソプロピルフェニルカルボジイミド、N, N'ージーpーイソプロピルフェニルカルボジイミド、N, N'ージーoーイソブチルフェニルカルボジイミド、N, N'ージーpーイソブチルフェニルカルボジイミド、N, N'ージー2, 6ージエチルフェニルカルボジイミド、N, N'ージー2ーエチルー6ーイソプロピルフェニルカルボジイミド、N, N'ージー2ーイソブチルー6ーイソプロピルフェニルカルボジイミド、N, N'ージー2, 4, 6ートリメチルフェニルカルボジイミド、N, N'ージー2, 4, 6ートリイソプロピルフェニルカルボジイミド、N, N'ージー2, 4, 6ートリイソブチルフェニルカルボジイミドなどのモノ又はジカルボジイミド化合物、ポリ(1, 6ーヘキサメチレンカルボジイミド)、ポリ(4, 4'ーメチレンビスシクロヘキシルカルボジイミド)、ポリ(1, 3ーシクロヘキシレンカルボジイミド)、ポリ(1, 4ーシクロヘキシレンカルボジイミド)、ポリ(4, 4'ージフェニルメタンカルボジイミド)、ポリ(3, 3'ージメチルー4, 4'ージフェニルメタンカルボジイミド)、ポリ(ナフチレンカルボジイミド)、ポリ(pーフェニレンカルボジイミド)、ポリ(mーフェニレンカルボジイミド)、ポリ(トリルカルボジイミド)、ポリ(ジイソプロピルカルボジイミド)、ポリ(メチルージイソプロピルフェニレンカルボジイミド)、ポリ(トリエチルフェニレンカルボジイミド)、ポリ(トリイソプロピルフェニレンカルボジイミド)などのポリカルボジイミドなどが挙げられる。なかでもN, N'ージー2, 6ージイソプロピルフェニルカルボジイミド、2, 6, 2', 6'ーテトライソプロピルジフェニルカルボジイミドが好ましく、また、ポリカルボジイミドが好ましい。

【0042】

上記カルボキシル基反応性末端封鎖剤は1種または2種以上の化合物を任意に選択して使用することができる。

【0043】

本発明の樹脂組成物では、成形品にして使用する用途に応じて適度にカルボキシル末端や酸性低分子化合物の封鎖を行えばよいが、具体的なカルボキシル末端や酸性低分子化合物の封鎖の程度としては組成物中の酸濃度が10当量/10⁶kg以下であることが耐加水分解性の点から好ましく、5当量/10⁶g以下であることがさらに好ましく、1当量/10⁶g以下であることが特に好ましい。ポリマー組成物中の酸濃度は、ポリマー組成物を適当な溶媒に溶解させた後、濃度既知の水酸化ナトリウムなどのアルカリ化合物溶液で滴定することにより測定したり、NMRにより測定することができる。

【0044】

カルボキシル基反応性末端封鎖剤の量は、ポリ乳酸樹脂およびポリアセタール樹脂の合計を100重量部としたときに、10重量部以下0.01重量部以上であることが好ましく、

5重量部以下0.05重量部以上であることがさらに好ましい。

【0045】

本発明においては、さらにステアリン酸ナトリウムを添加することが好ましい。ここでステアリン酸ナトリウムは、カルボキシル基反応性末端封鎖剤と、ポリマー末端や酸性低分子化合物のカルボキシル基との反応を促進する効果のある化合物であり、少量の添加で反応を促進する効果のある化合物である。

【0046】

ステアリン酸ナトリウムの添加量は、特に限定されるものではないが、ポリ乳酸樹脂およびポリアセタール樹脂の合計を100重量部としたときに、0.001～1重量部が好ましく、また0.01～0.1重量部がより好ましく、さらには0.02～0.1重量部が最も好ましい。

10

【0047】

本発明においては、カルボキシル末端基反応性末端封鎖剤、特にカルボジイミド化合物を使用した際に生じる着色を防止するために、さらにトリアゾール化合物またはホスフェート化合物から選ばれる金属不活性化剤を添加することが好ましい。トリアゾール系化合物の具体例としては、ベンゾトリアゾール、3-(N-サリシロイル)アミノ-1,2,4-トリアゾールなどが挙げられる。

【0048】

ホスフェート系化合物の具体例としては、モノステアリルアシッドホスフェート、ジステアリルアシッドホスフェート、メチルアシッドホスフェート、イソプロピルアシッドホスフェート、ブチルアシッドホスフェート、オクチルアシッドホスフェート、イソデシルアシッドホスフェートなどが挙げられる。

20

【0049】

中でも3-(N-サリシロイル)アミノ-1,2,4-トリアゾール、モノステアリルアシッドホスフェート、ジステアリルアシッドホスフェートが好ましい。

【0050】

本発明においてトリアゾール化合物またはホスフェート化合物から選ばれる金属不活性化剤は、1種類で用いても良いし、2種類以上を組み合わせて用いても良い。また、金属不活性化剤の配合量は、ポリ乳酸樹脂およびポリアセタール樹脂の合計100重量部に対して、2重量部以下0.01重量部以上が好ましく、1重量部以下0.03重量部以上がさらに好ましい。

30

【0051】

本発明においては、成形性、機械特性、耐熱性、耐加水分解性に優れた組成物が得られることを特徴とするが、ポリ乳酸とポリアセタール樹脂との配合組成によって特に効果を奏する特性が異なる。

【0052】

すなわち、ポリ乳酸樹脂およびポリアセタール樹脂の合計を100重量部としたときに、ポリ乳酸樹脂99重量部以下50重量部以上、特に99重量部以下60重量部以上を含有してなる樹脂組成物においては、ポリ乳酸樹脂の特性を改良する点で有用であり、この組成物は特に成形性、耐熱性、耐加水分解性の改良効果が特に顕著である。また、この組成物においては、ポリ乳酸樹脂が有する特性を活かして、生分解性を伴ってもかまわない。

40

【0053】

一方、ポリ乳酸樹脂およびポリアセタール樹脂の合計を100重量部としたときに、ポリアセタール樹脂99重量部以下50重量部超、特に99重量部以下60重量部以上を含有してなる樹脂組成物においては、ポリアセタール樹脂の特性を改良することが可能であり、特に加工性の改良に効果がある。

【0054】

本発明の樹脂組成物においては、ポリ乳酸樹脂とポリアセタール樹脂とが相溶性配合物となることが好ましい。ここでいう「相溶性」とは、分子レベルで非晶相内に均一相を形成する重合体の混合物を説明するために用いられる。つまり、配合物の一方または両方が結

50

晶相および非晶相の両方を形成する場合、相溶性とは、非晶相が分子レベルで混合していることを意味する。

【0055】

配合物中の相溶性の判断は、いくつかの方法で行うことができる。相溶性について判断する最も一般的な方法は、ガラス転移温度で判断する方法である。相溶性配合物中では、ガラス転移温度が各々単独のものより変化し、多くの場合単一のガラス転移温度を示す。ガラス転移温度の測定方法としては、差動走査熱量計（DSC）で測定する方法、および動的粘弾性試験により測定する方法のいずれも用いることができる。

【0056】

しかしながら、ポリアセタール樹脂は高結晶性であるために、ポリアセタール樹脂の含有量が多い場合には、ガラス転移温度が不明確になるという問題がある。この場合の相溶性の判断としては、ポリアセタール樹脂の結晶化温度を用いることができる。すなわち、ポリアセタール樹脂がそれ自体よりも結晶化速度の遅い樹脂と相溶性配合物を形成した場合には、ポリアセタール樹脂の結晶化速度が単体の場合よりも低下するからである。したがって、この結晶化速度の低下を、DSCで測定した降温時の結晶化温度で判断することができる。

10

【0057】

例えば、Polymer 38 (25), 6135-6143 (1997) には、脂肪族ポリエステルであるポリ(3-ヒドロキシブチレート)とポリメチレンオキサイド(ポリアセタール)のブレンドが非相溶性であることが報告されているが、この場合、DSCで測定した組成物中のポリアセタールの降温時の結晶化温度は、ポリアセタール単体の結晶化温度とほとんど変わらないことが示されている。

20

【0058】

一方、前記非特許文献3には、ポリアセタールとポリビニルフェノールが相溶性であることが報告されているが、この場合、組成物中のポリアセタールの降温時の結晶化温度が、ポリアセタール単体の結晶化温度に比べて、低下することが示されている。

【0059】

本発明の樹脂組成物では、樹脂組成物中のポリアセタール樹脂の降温時の結晶化温度が、ポリアセタール樹脂単独の結晶化温度よりも低い温度を示す。好ましい結晶化温度の低下は組成によって異なる。そして、この結晶化温度は、用いるポリ乳酸樹脂の光学純度が高くなると、低下の程度が大きくなる傾向にある。

30

【0060】

ポリ乳酸樹脂とポリアセタール樹脂の合計を100重量部としたときに、ポリ乳酸樹脂99重量部以下50重量部以上およびポリアセタール樹脂1重量部以上50重量部以下を配合する場合には、DSCにより降温速度20℃/分で測定したポリアセタール樹脂の結晶化温度の低下が2℃以上であることが好ましく、3℃以上であることがさらに好ましく、4℃以上であることが特に好ましい。特に、ポリ乳酸樹脂とポリアセタール樹脂の合計を100重量部としたときに、ポリ乳酸樹脂99重量部以下60重量部超およびポリアセタール樹脂1重量部以上40重量部未満を配合する場合には、DSCにより降温速度20℃/分で測定したポリアセタール樹脂の結晶化温度の低下が5℃以上であることが好ましく、7℃以上であることがさらに好ましく、10℃以上であることが特に好ましい。

40

【0061】

ポリ乳酸樹脂とポリアセタール樹脂の合計を100重量部としたときに、ポリ乳酸樹脂50重量部未満1重量部以上およびポリアセタール樹脂50重量部超99重量部以下を配合する場合には、DSCにより降温速度20℃/分で測定したポリアセタール樹脂の結晶化温度の低下は0.2℃以上であることが好ましく、0.5℃以上であることがさらに好ましく、1℃以上であることが特に好ましい。特に、ポリ乳酸樹脂とポリアセタール樹脂の合計を100重量部としたときに、ポリ乳酸樹脂50重量部未満40重量部以上およびポリアセタール樹脂50重量部超60重量部以下を配合した場合には、DSCにより降温速度20℃/分で測定したポリアセタール樹脂の結晶化温度の低下は0.5℃以上であるこ

50

とが好ましく、1℃以上であることがさらに好ましく、2℃以上であることが特に好ましい。

【0062】

本発明においては、ポリ乳酸樹脂とポリアセタール樹脂とカルボキシ基反応性末端封鎖剤の3者を併用して熔融混練することで、特に耐加水分解性が向上する。この原因は、明らかではないが、ポリ乳酸樹脂とポリアセタール樹脂が非晶層で相溶化することで、カルボキシ基反応性末端封鎖剤の効果が高まっているものと推定される。

【0063】

本発明の樹脂組成物に対しては、本発明の目的を損なわない範囲で、充填剤（ガラス繊維、炭素繊維、天然繊維、有機繊維、セラミックスファイバー、セラミックビーズ、アスベスト、ワラストナイト、タルク、クレー、マイカ、セリサイト、ゼオライト、ベントナイト、モンモリロナイト、ドロマイト、カオリン、微粉ケイ酸、長石粉、チタン酸カリウム、シラスパルーン、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、硫酸バリウム、酸化カルシウム、酸化アルミニウム、酸化チタン、ケイ酸アルミニウム、酸化ケイ素、石膏、ノバキュライト、ドーソナイト、木粉、紙粉および白土など）、安定剤（酸化防止剤、光安定剤など）、難燃剤（臭素系難燃剤、燐系難燃剤、アンチモン化合物、メラミン化合物など）、滑剤、離形剤、染料や顔料を含む着色剤、核化剤（タルク、有機カルボン酸金属塩、有機カルボン酸アミドなど）および可塑剤（ポリエステル系可塑剤、グリセリン系可塑剤、多価カルボン酸エステル系可塑剤、リン酸エステル系可塑剤、ポリアルキレングリコール系可塑剤およびエポキシ系可塑剤など）などを添加することができる。

【0064】

また、本発明の樹脂組成物に対しては、本発明の目的を損なわない範囲で、他の熱可塑性樹脂（例えばポリエチレン、ポリプロピレン、ポリアミド、アクリル樹脂、ポリフェニレンサルファイド樹脂、ポリエーテルエーテルケトン樹脂、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキサイド、ポリイミド、ポリエーテルイミドなど）および熱硬化性樹脂（例えばフェノール樹脂、メラミン樹脂、ポリエステル樹脂、シリコーン樹脂、エポキシ樹脂など）及び軟質熱可塑性樹脂（例えばエチレン／グリシジルメタクリレート共重合体、エチレン／プロピレンターポリマー、エチレン／ブテンー1共重合体などの軟質ポリオレフィン系ポリマー、各種コアシェル型エラストマー、ポリエステルエラストマー、ポリアミドエラストマーなど）などの1種以上をさらに含有させることができる。

【0065】

本発明の樹脂組成物の製造方法については特に限定されるものではないが、例えばポリ乳酸樹脂、ポリアセタール樹脂、カルボキシ基反応性末端封鎖剤および必要に応じてその他の添加剤を予めブレンドした後、樹脂の融点以上において、1軸または2軸押出機を用いて均一に熔融混練する方法を好ましくあげることができる。また、予めポリ乳酸樹脂とカルボキシ基反応性末端封鎖剤を熔融混練した後に、ポリアセタール樹脂、カルボキシ基反応性末端封鎖剤および必要に応じてその他の添加剤を熔融混練する方法も用いることができる。

【0066】

本発明の樹脂組成物は、独特の特性を持つ組成物であり、射出成形や押出成形などの方法によって、各種成形品に加工し利用することができる。

【0067】

上記の樹脂組成物から得られる本発明の成形品としては、射出成形品、押出成形品、ブロー成形品、フィルム、シート、ボトルおよび繊維などが挙げられ、未延伸フィルム・シート、一軸延伸フィルム、二軸延伸フィルム、ラミネートフィルム、発泡シートなどの各種フィルム・シート、および未延伸糸、延伸糸、超延伸糸など各種繊維として、いずれも好適に利用することができる。また、これらの成形品は、電気・電子部品（各種ハウジング、歯車、ギアなど）、建築土木部材、自動車部品（内装・外装部品など）、農業資材、包装材料衣料および日用品など各種用途に利用することができる。

【0068】

【実施例】

以下に、実施例によって本発明を更に詳細に説明するが、これらは本発明を限定するものではない。

【0069】

[実施例1～3、比較例1～12]

D体の含有量が1.2%であり、ヘキサフルオロイソプロパールを溶媒に、ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定したPMMA換算の重量平均分子量が16万であるポリL乳酸樹脂、ASTMD1238法に従い190℃、2.16kg荷重で測定したメルトインデックス値が27g/10分であり融点が170℃であるポリアセタールコポリマー（東レ株式会社製“アミラス”S731）および下記に示した各種カルボキシル基反応性末端封鎖剤、反応触媒、金属不活性化剤を、それぞれ表1、表2に示した割合で混合し、30mm径の2軸押出機により、シリンダー温度210℃、回転数150rpmの条件で溶融混練を行い、樹脂組成物を得た。

10

【0070】

なお、表1、表2におけるカルボキシル基反応性末端封鎖剤（A）、反応触媒（B）、金属不活性化剤（C）の符号は、次の内容を示すものである。

【0071】

A-1：ビスフェノールA型グリシジルエーテル化合物（ジャパンエポキシレジン社製“エピコート”819）

A-2：パーサティック酸グリシジルエステル（ジャパンエポキシレジン社製“カージュラE”）

20

A-3：ビス（2,6-ジイソプロピルフェニル）カルボジイミド（ラシッヒ社製“スタビライザー7000”）

A-4：2,2'-m-フェニレンビス（2-オキサゾリン）（武田薬品社製）

A-5：ポリカルボジイミド化合物（日清紡績社製“カルボジライト”）

B-1：ステアリン酸ナトリウム（片山化学社製）

B-2：トリフェニルホスフィン（片山化学社製）

C-1：モノー及びジーステアリルアシッドホスフェート（旭電化工業社製“アデカスタブ”AX-71）

C-2：3-（N-サリチロイル）アミノ-1,2,4-トリアゾール（旭電化工業社製“アデカスタブ”CDA-1）

30

得られた樹脂組成物について、ガラス転移温度（T_g）およびポリアセタール樹脂の降温時の結晶化温度（T_c）を、差動走査熱量計（DSC）を用い、昇降温速度20℃/分で測定した結果を表1、表2に併せて示す。なお、用いたポリアセタール樹脂単独のT_cは140℃であった。

【0072】

また、得られた樹脂組成物について、シリンダー温度210℃、金型温度60℃で射出成形を行ない、3.2mm厚の引張試験用の試験片を得た。このとき、成形時の試験片の変形及び着色を目視で観察した。また、得られた試験片を用い、ASTM法D638に準じて引張試験を行い引張弾性率および引張強度を測定した。さらに、試験片を温度60℃、湿度95%の条件で200時間湿熱処理した後、試験片の変形を目視で観察するとともに、引張強度を測定し、引張強度保持率を導出した。これらの結果を表1、表2に併せて示す。

40

【0073】

【表1】

表1

		比較例			実施例		
		1	2		1	2	3
ポリ乳酸	重量部	80	80		80	80	80
	重量部	20	20		20	20	20
ポリアセタール	種類	A-1	A-5		A-1	A-5	A-5
	重量部	0.8	0.8		0.8	0.8	0.8
末端封鎖剤	種類	—	—		B-1	B-2	—
	重量部	—	—		0.05	0.05	—
反応触媒	種類	—	—		—	—	—
	重量部	—	—		—	—	—
金属不活性化剤	種類	—	—		—	C-1	C-2
	重量部	—	—		—	0.1	0.1
ガラス転移温度	℃	39	39		39	39	39
降溫結晶化温度	℃	125	125		125	125	125
成形時の変形		変形なし	変形なし		変形なし	変形なし	変形なし
成形品の着色		なし	あり		なし	なし	なし
引張弾性率	MPa	2670	2620		2690	2630	2630
湿熱処理後の変形		変形なし	変形なし		変形なし	変形なし	変形なし
引張強度保持率	%	55	75		64	61	74

A-1: ビスフェノールA型グリシジルエーテル(ジャパンエポキシレジン社製エポコート819)

A-2: パーサティック酸グリシジルエステル(ジャパンエポキシレジン社製カーキュラE)

A-3: ビス(2, 6-ジイソプロピルフェニル)カルボジイミド(ラシッヒ社製スタビライザー7000)

A-4: 2, 2'-m-フェニレンビス(2-オキザゾリン)(武田薬品社製)

A-5: ポリカルボジイミド化合物(日清紡社製カルボジライト)

B-1: ステアリン酸ナトリウム(片山化学社製)

B-2: トリフェニルホスフィン(片山化学社製)

C-1: モノ-及びジ-ステアリン酸ナトリウムホスフェート(旭電化工業社製AX-71)

C-2: 3-(N-サリチロイル)アミノ-1, 2, 4-トリアゾール(旭電化工業社製CDA-1)

【0074】

【表2】

表2

		比較例										
		4	5	6	7	8	9	10	11	12		
ポリ乳酸	重量部	100	100	100	100	100	100	80	—	20		
ポリアセタール	重量部	—	—	—	—	—	—	20	100	80		
末端封鎖剤	種類	—	A-1	A-2	A-3	A-4	A-5	—	—	—		
	重量部	—	0.8	0.5	0.5	0.5	0.5	—	—	—		
反応触媒	種類	—	—	—	—	—	—	—	—	—		
	重量部	—	—	—	—	—	—	—	—	—		
金属不活性化剤	種類	—	—	—	—	—	—	—	—	—		
	重量部	—	—	—	—	—	—	—	—	—		
ガラス転移温度	℃	62	62	62	62	62	62	39	—	—		
降溫結晶化温度	℃	—	—	—	—	—	—	125	140	139		
成形時の変形		大きく変形*	大きく変形*	大きく変形*	大きく変形*	大きく変形*	大きく変形*	変形なし	変形なし	変形なし		
成形品の着色		なし	なし	なし	あり	あり	あり	なし	なし	なし		
引張弾性率	MPa	2400	2370	2380	2380	2360	2330	2590	1950	2250		
湿熱処理後の変形		変形あり**	変形あり**	変形あり**	変形あり**	変形あり**	変形あり**	変形なし	変形なし	変形なし		
引張強度保持率	%	15	35	41	41	36	45	20	91	77		

*:試験片の厚み方向に大きく反る

**:試験片の幅方向に反る

表1、表2の結果から明らかなように、本発明のポリ乳酸樹脂、ポリアセタール樹脂、ステアリン酸ナトリウム、トリアゾール化合物およびホスフェート系化合物から選ばれる一種以上を熔融混練してなる樹脂組成物は、比較例に示した、ポリ乳酸樹脂にカルボキシル基反応性末端封鎖剤のみを熔融混練したものやポリ乳酸樹脂とポリアセタール樹脂のみを熔融混練したものよりも、高い加水分解特性を示しており、また、成形時や湿熱処理時の変形も少なく、優れた成形性、機械特性、耐熱性、耐加水分解性を有している。また、さらに金属触媒不活性化剤を用いることで、特性を低下させることなく着色を防止できる。

【0076】

【発明の効果】

以上説明したように、本発明の樹脂組成物は、優れた成形性、機械特性、耐熱性、耐加水分解性を有するものであり、この樹脂組成物からなる本発明の成形品は、上記の特性を生かして、電気・電子部品、建築土木部材、自動車部品、農業資材、包装材料および日用品など各種用途に有効に利用することができる。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I		
<i>C 0 8 K</i>	<i>5/353</i>	<i>(2006.01)</i>	<i>C 0 8 K</i>	<i>5/353</i>
<i>C 0 8 K</i>	<i>5/357</i>	<i>(2006.01)</i>	<i>C 0 8 K</i>	<i>5/357</i>
<i>C 0 8 K</i>	<i>5/526</i>	<i>(2006.01)</i>	<i>C 0 8 K</i>	<i>5/526</i>
<i>C 0 8 L</i>	<i>59/00</i>	<i>(2006.01)</i>	<i>C 0 8 L</i>	<i>59/00</i>

合議体

審判長 小林 均

審判官 小野寺 務

審判官 近藤 政克

(56)参考文献 特開2000-17153 (JP, A)
特開平5-43772 (JP, A)
特開2002-30208 (JP, A)
特開平11-80522 (JP, A)
特開平10-7880 (JP, A)
特開2003-286400 (JP, A)
特開2001-81296 (JP, A)
特開平11-116789 (JP, A)
特開2001-335623 (JP, A)
特開2000-7774 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C08K 5/00- 5/59

C08L 1/00-101-16