

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5168812号  
(P5168812)

(45) 発行日 平成25年3月27日(2013.3.27)

(24) 登録日 平成25年1月11日(2013.1.11)

(51) Int.Cl.

F I

C O 8 L 69/00 (2006.01)

C O 8 L 69/00

C O 8 L 67/02 (2006.01)

C O 8 L 67/02

C O 8 K 9/04 (2006.01)

C O 8 K 9/04

C O 8 L 21/00 (2006.01)

C O 8 L 21/00

C O 8 K 3/32 (2006.01)

C O 8 K 3/32

請求項の数 10 (全 30 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2006-111289 (P2006-111289)  
(22) 出願日 平成18年4月13日(2006.4.13)  
(65) 公開番号 特開2007-284502 (P2007-284502A)  
(43) 公開日 平成19年11月1日(2007.11.1)  
審査請求日 平成21年4月9日(2009.4.9)

(73) 特許権者 594137579  
三菱エンジニアリングプラスチックス株式  
会社  
東京都港区東新橋一丁目9番2号  
(73) 特許権者 597133329  
松村産業株式会社  
大阪府大阪市西淀川区佃7-3-8  
(74) 代理人 100097928  
弁理士 岡田 数彦  
(72) 発明者 中村 充  
神奈川県平塚市東八幡5丁目6番2号 三  
菱エンジニアリングプラスチックス株式会  
社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 熱可塑性樹脂組成物および樹脂成形品

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

芳香族ポリカーボネート樹脂および熱可塑性ポリエステル樹脂からなる群より選ばれる少なくとも一種の熱可塑性樹脂(A成分)100重量部に対して、平均粒子径が0.01~100 $\mu$ mの無機フィラーと水溶性ポリエステル樹脂バインダーとからなる、嵩密度が0.4~1.5g/mlの顆粒状無機フィラー(B成分)1~400重量部を含有する熱可塑性樹脂組成物。

【請求項2】

顆粒状無機フィラー(B成分)が、顆粒状珪酸塩化合物であることを特徴とする請求項1に記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項3】

顆粒状無機フィラー(B成分)が、顆粒状タルクであることを特徴とする請求項1または2に記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項4】

顆粒状無機フィラー(B成分)の粒度において、目開き500 $\mu$ m篩上の割合が55重量%以上であることを特徴とする請求項1~3のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項5】

顆粒状無機フィラー(B成分)中の水溶性ポリエステル樹脂バインダー含有量が、0.1~3重量%であることを特徴とする請求項1~4のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。

10

20

## 【請求項 6】

熱可塑性樹脂（A成分）100重量部中、芳香族ポリカーボネート樹脂および熱可塑性ポリエステル樹脂からなる群より選ばれる少なくとも一種を30重量部以上含有することを特徴とする請求項1～5のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。

## 【請求項 7】

熱可塑性樹脂（A成分）100重量部が、芳香族ポリカ - ボネ - ト樹脂50～85重量部と、熱可塑性ポリエステル樹脂及び／又はスチレン系樹脂50～15重量部からなることを特徴とする請求項6に記載の熱可塑性樹脂組成物。

## 【請求項 8】

更に、ゴム性重合体（C成分）を、熱可塑性樹脂（A成分）100重量部に対して1～40重量部含有することを特徴とする請求項1～7のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。

10

## 【請求項 9】

更に、リン系化合物（D成分）を、顆粒状無機フィラー（B成分）100重量部に対して0.1～5重量部含有することを特徴とする請求項1～8のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。

## 【請求項 10】

請求項1～9の何れかに記載の熱可塑性樹脂組成物を成形して成る樹脂成形品。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

20

## 【0001】

本発明は熱可塑性樹脂組成物および樹脂成形品に関する。詳しくは、顆粒状無機フィラーを含有してなる、押出加工性、剛性、耐衝撃性、熱安定性、色相等の諸物性が向上し物性バランスに優れた、熱可塑性樹脂組成物及びこれを成形してなる樹脂成形品に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

熱可塑性樹脂は、機械的性質、電気的性質、軽量性、成形加工性等に優れることから、電気・電子・OA機器、車輛、建材、農業用資材、雑貨等の幅広い分野で使用されている。さらに、熱可塑性樹脂の剛性、強度、寸法特性などを向上させる方法として、無機フィラーを含有させることが広く一般に行われており、良外観が要求される分野においてはタルクなどの小粒子径の無機フィラーを含有させることが多数提案されている。また近年、車輛内装・外装・外板部品や各種ハウジング部材などの良外観が要求される分野において、成形品の大形化や高剛性化が必要とされ、耐衝撃性に関しては歪速度との関係で、アイゾッド衝撃強度よりも面衝撃強度といった耐衝撃性が重視され、小粒子径無機フィラーを含有させてこれらの耐衝撃性をより向上させた材料が必要とされている。

30

## 【0003】

しかしながら、熱可塑性樹脂に小粒子径無機フィラーを含有させた場合、ホッパーでの詰まり、押出機への食い込み不良等の押出加工性の低下や、無機フィラーの分散不良による耐衝撃性の低下などの問題があり、さらに、エンジニアリングプラスチックにおいては、押出加工温度や成形加工温度が高く、無機フィラーを含有させることで熱安定性や色相の低下を招くという問題があった。特に、芳香族ポリカーボネート樹脂を含有する熱可塑性樹脂組成物にタルクなどの珪酸塩化合物を含有させた場合には、樹脂分解による影響が顕著となり、耐衝撃性、熱安定性、色相等が低下するという問題があった。

40

## 【0004】

この様に、小粒子径無機フィラーを含有する熱可塑性樹脂組成物においては、押出加工性、剛性、耐衝撃性、熱安定性、色相等の諸物性に優れたものが強く求められていた。これらの問題を解決する手段としては、例えばこの小粒子径フィラーとして、機械的に圧縮し嵩比重を増加させたタルクを用いる技術（例えば特許文献1、2参照。）や、特定電気伝導率のタルクを用いる技術（例えば特許文献3参照。）が提案されている。更に特許文献3には、タルクとして圧縮、造粒されたものが好ましいこと、またバインダーを用いて

50

造粒できることが記載されてはいる。しかしこれらの特許文献に具体的に例示されている技術では、未だに押出加工性や熱安定性、耐衝撃性が不十分であった。

【 0 0 0 5 】

一方、バインダーを用いて造粒した顆粒状無機フィラーを用いる技術（例えば特許文献 4 参照。）や、芳香族ポリカーボネート樹脂等のエンジニアリングプラスチックに、特定量のベントナイトを用いて造粒した顆粒状タルクを含有してなる熱可塑性樹脂組成物が提案されている（例えば特許文献 5 参照）。しかしこれらの特許文献に具体的に例示されているバインダーを用いて造粒した顆粒状タルクを芳香族ポリカーボネート樹脂などのエンジニアリングプラスチックに含有させた熱可塑性樹脂組成物は、耐衝撃性、熱安定性、色相において必ずしも満足できるものではなかった。

10

【 0 0 0 6 】

【特許文献 1】特開平 8 - 1 7 6 3 3 9 号公報

【特許文献 2】特開平 1 0 - 1 0 1 9 1 4 号公報

【特許文献 3】特開 2 0 0 2 - 6 0 6 3 7 号公報

【特許文献 4】特開 2 0 0 2 - 2 2 0 5 4 9 号公報

【特許文献 5】特開 2 0 0 6 - 7 7 1 7 6 号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【 0 0 0 7 】

本発明は、上述した様な従来技術の欠点を解消し、押出加工性、剛性、耐衝撃性、熱安定性、色相等の諸物性が共に向上し、物性バランスに優れた、熱可塑性樹脂組成物およびこれを成形してなる樹脂成形品を提供することにある。

20

【課題を解決するための手段】

【 0 0 0 8 】

本発明者らは、上記目的を達成すべく鋭意研究を重ねた結果、熱可塑性樹脂に特定の顆粒状フィラーを含有させた熱可塑性樹脂組成物（以下、単に「樹脂組成物」ということがある。）が、押出加工性、剛性、耐衝撃性、熱安定性、色相等の諸物性が向上し、物性バランスに優れた樹脂組成物となることを見出し、本発明を完成させた。

【 0 0 0 9 】

即ち本発明の第 1 の要旨は、芳香族ポリカーボネート樹脂および熱可塑性ポリエステル樹脂からなる群より選ばれる少なくとも一種の熱可塑性樹脂（A 成分）1 0 0 重量部に対して、平均粒子径が 0 . 0 1 ~ 1 0 0  $\mu$ m の無機フィラーと水溶性ポリエステル樹脂バインダーとからなる、嵩密度が 0 . 4 ~ 1 . 5 g / m l の顆粒状無機フィラー（B 成分）1 ~ 4 0 0 重量部を含有する熱可塑性樹脂組成物に存する。そして本発明の第 2 の要旨は、この熱可塑性樹脂組成物を成形してなる樹脂成形品に存する。

30

【 0 0 1 0 】

本発明は、熱可塑性樹脂に、水溶性ポリエステル樹脂をバインダーとして用いて造粒した顆粒状無機フィラーを含有させることにより、優れた物性の熱可塑性樹脂組成物が得られるとの本発明者の新規な知見に基づいて完成されたものである。

【発明の効果】

40

【 0 0 1 1 】

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、押出加工性、剛性、耐衝撃性、熱安定性、色相等の諸物性が向上し、物性バランスが優れることを特長とする。この様な特長を有する本発明の熱可塑性樹脂組成物は、幅広い分野に使用することが可能であり、電気・電子機器部品、OA 機器、機械部品、車輛部品、建築部材、各種容器、レジャー・用品・雑貨類、携帯電話などの各種ハウジングなどの各種用途に有用であり、特に車輛外装・外板部品、車輛内装部品に適している。

【 0 0 1 2 】

車輛外装・外板部品としては、アウト・ドアハンドル、バンパー、フェンダー、ドアパネル、トランクリッド、フロントパネル、リアパネル、ルーフパネル、ボンネット、ピラ

50

-、サイドモ-ル、ガ-ニッシュ、ホイ-ルキャップ、フ-ドバルジ、フュ-エルリッド、各種スポイラ-、モ-タ-バイクのカウルなどが挙げられる。車輛内装部品としては、インナ-ドアハンドル、センタ-パネル、インストルメンタルパネル、コンソ-ルボックス、ラゲッジフロアボ-ド、カ-ナビゲ-ションなどのディスプレイハウジングなどが挙げられる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0013】

以下、本発明を更に詳細に説明する。尚、本願明細書において各種化合物が有する「基」は、本発明の趣旨を逸脱しない範囲内において、置換基を有していてもよい。

【0014】

#### 熱可塑性樹脂（A成分）

本発明のA成分である熱可塑性樹脂（以下、「A成分」と略記することがある。）としては、ポリアミド-6、ポリアミド-6,6などのポリアミド樹脂；芳香族ポリカーボネート樹脂；ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリプロピレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート樹脂などの熱可塑性ポリエステル樹脂；ポリフェニレンエーテル樹脂；ポリアセタール樹脂；ポリスチレン樹脂、高衝撃ポリスチレン樹脂（HIPS）、アクリロニトリル-スチレン共重合体（AS樹脂）、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体（ABS樹脂）、アクリロニトリル-スチレン-アクリルゴム共重合体（ASA樹脂）、アクリロニトリル-エチレンプロピレン系ゴム-スチレン共重合体（AES樹脂）などのスチレン系樹脂；ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂などのポリオレフィン樹脂；ポリイミド樹脂；ポリエーテルイミド樹脂；ポリウレタン樹脂；ポリフェニレンサルファイド樹脂；ポリスルホン樹脂；ポリメタクリレート樹脂等が挙げられ、これらは1種を単独で用いても2種以上を併用してもよい。

【0015】

これら熱可塑性樹脂の中でも、耐熱性、剛性、耐衝撃性や熱安定性、色相の向上効果の点から、芳香族ポリカーボネート樹脂、熱可塑性ポリエステル樹脂、ポリアミド樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂及びポリアセタール樹脂からなる群より選ばれる少なくとも一種のエンジニアリングプラスチック、又はこれらと他の熱可塑性樹脂からなるポリマーアロイが好ましい。

【0016】

中でも本発明に用いる熱可塑性樹脂（A成分）としては、熱可塑性樹脂（A成分）100重量部中において、芳香族ポリカーボネート樹脂、熱可塑性ポリエステル樹脂、及びポリアミド樹脂からなる群より選ばれる少なくとも一種を30重量部以上含有するものが好ましい。特に熱可塑性樹脂（A成分）100重量部が、芳香族ポリカーボネート樹脂50～85重量部と、熱可塑性ポリエステル樹脂及び/又はスチレン系樹脂50～15重量部からなるものであることが好ましい。

【0017】

以下、本発明に用いる熱可塑性樹脂（A成分）として、好適な熱可塑性樹脂について具体的に説明する。

【0018】

#### 芳香族ポリカーボネート樹脂

本発明に用いる芳香族ポリカーボネート樹脂は、例えば、芳香族ジヒドロキシ化合物とカーボネート前駆体とを、または、これらに併せて少量のポリヒドロキシ化合物等を反応させてなる、直鎖または分岐の熱可塑性の芳香族ポリカーボネート重合体または共重合体である。

【0019】

芳香族ポリカーボネート樹脂の原料として使用される芳香族ジヒドロキシ化合物としては、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン(=ビスフェノールA)、2,2-ビス(3,5-ジブromo-4-ヒドロキシフェニル)プロパン(=テトラブromoビスフェノールA)、ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、1,1-ビス(4-ヒドロキシ

10

20

30

40

50

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)オクタン、2, 2 - ビス(4 - ヒドロキシ - 3 - メチルフェニル)プロパン、1, 1 - ビス(3 - tert - ブチル - 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(3 - ブロモ - 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、2, 2 - 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 - シクロヘキシル - 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、2, 2 - ビス(4 - ヒドロキシフェニル) - 1, 1, 1 - トリクロロプロパン、2, 2 - ビス(4 - ヒドロキシフェニル) - 1, 1, 1, 3, 3, 3 - ヘキサクロロプロパン、2, 2 - ビス(4 - ヒドロキシフェニル) - 1, 1, 1, 3, 3, 3 - ヘキサフルオロプロパン等のビス(ヒドロキシアリ - ル)アルカン類；

#### 【0020】

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、1, 1 - ビス(4 - ヒドロキシフェニル) - 3, 3, 5 - トリメチルシクロヘキサン等で例示されるビス(ヒドロキシアリ - ル)シクロアルカン類；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)フルオレン等のカルド構造含有ビスフェノ - ル類；4, 4' - ジヒドロキシジフェニルエ - テル、4, 4' - ジヒドロキシ - 3, 3' - ジメチルジフェニルエ - テル等で例示されるジヒドロキシジアリ - ルエ - テル類；4, 4' - ジヒドロキシジフェニルスルフィド、4, 4' - ジヒドロキシ - 3, 3' - ジメチルジフェニルスルフィド等で例示されるジヒドロキシジアリ - ルスルフィド類；4, 4' - ジヒドロキシジフェニルスルホキシド、4, 4' - ジヒドロキシ - 3, 3' - ジメチルジフェニルスルホキシド等で例示されるジヒドロキシジアリ - ルスルホキシド類；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 - 3, 3' - ジメチルジフェニルスルホン等で例示されるジヒドロキシジアリ - ルスルホン類；ハイドロキノン、レゾルシン、4, 4' - ジヒドロキシジフェニル等が挙げられる。

#### 【0021】

これらの芳香族ジヒドロキシ化合物は、1種類単独でも、2種類以上を組み合わせてもよい。これらの中でも、ビス(4 - ヒドロキシフェニル)アルカン類を用いることが好ましく、特に耐衝撃性の点から、2, 2 - ビス(4 - ヒドロキシフェニル)プロパン[ = ビスフェノ - ル A ]を用いることが好ましい。

#### 【0022】

芳香族ジヒドロキシ化合物と反応させるカ - ボネ - ト前駆体としては、カルボニルハライド、カ - ボネ - トエステル、ハロホルメ - ト等が使用され、具体的にはホスゲン；ジフェニルカ - ボネ - ト、ジトリルカ - ボネ - ト等のジアリ - ルカ - ボネ - ト類；ジメチルカ - ボネ - ト、ジエチルカ - ボネ - ト等のジアルキルカ - ボネ - ト類；二価フェノ - ルのジハロホルメ - ト等が挙げられる。これらのカ - ボネ - ト前駆体もまた1種類単独でも2種類以上を組み合わせてもよい。

#### 【0023】

また芳香族ポリカ - ボネ - ト樹脂は、三官能以上の多官能性芳香族化合物を共重合した、分岐した芳香族ポリカ - ボネ - ト樹脂であってもよい。三官能以上の多官能性芳香族化合物としては、フロログルシン、4, 6 - ジメチル - 2, 4, 6 - トリ(4 - ヒドロキシフェニル)ヘプテン - 2、4, 6 - ジメチル - 2, 4, 6 - トリ(4 - ヒドロキシフェニル)ヘプタン、2, 6 - ジメチル - 2, 4, 6 - トリ(4 - ヒドロキシフェニル)ヘプテン - 3、1, 3, 5 - トリ(4 - ヒドロキシフェニル)ベンゼン、1, 1, 1 - トリ(4 - ヒドロキシフェニル)エタン等で例示されるポリヒドロキシ化合物類、または、3, 3 - ビス(4 - ヒドロキシアリ - ル)オキシインド - ル( = イサチンビスフェノ - ル)、5 - クロロイサチン、5, 7 - ジクロロイサチン、5 - ブロムイサチン等が挙げられ、これらの中でも1, 1, 1 - トリ(4 - ヒドロキシフェニル)エタンが好ましい。多官能性芳

10

20

30

40

50

香族化合物は、前記芳香族ジヒドロキシ化合物の一部を置換して使用することができ、その使用量は芳香族ジヒドロキシ化合物に対して 0.01 ~ 10 モル%であることが好ましく、中でも 0.1 ~ 2 モル%であることが好ましい。

#### 【0024】

次に、本発明に用いる芳香族ポリカーボネート樹脂の製造方法について説明する。本発明に用いる芳香族ポリカーボネート樹脂の製造方法は特に制限はなく、従来公知の任意の方法により得られた芳香族ポリカーボネート樹脂を用いることが出来る。具体的には例えば、界面重合法、溶融エステル交換法、ピリジン法、環状カーボネート化合物の開環重合法、プレポリマー-固相エステル交換法等の芳香族ポリカーボネート樹脂の製造方法が挙げられる。

10

#### 【0025】

芳香族ポリカーボネート樹脂の製造方法のうち、まず界面重合法について説明する。この製造方法における重合反応は、反応に不活性な有機溶媒、及びアルカリ水溶液の存在下で、通常 pH を 9 以上に保ち、芳香族ジヒドロキシ化合物、必要に応じて分子量調整剤（末端停止剤）、および芳香族ジヒドロキシ化合物の酸化防止のための酸化防止剤を用い、ホスゲンと反応させた後、第三級アミンまたは第四級アンモニウム塩等の重合触媒を添加し、界面重合を行うことによりポリカーボネートを得る。分子量調整剤の添加はホスゲン化時から重合反応開始時までの間であれば特に限定されない。尚、反応温度は例えば 0 ~ 40 °C で、反応時間は例えば数分（例えば 10 分）~ 数時間（例えば 6 時間）である。

#### 【0026】

ここで、反応に不活性な有機溶媒としては、ジクロロメタン、1,2-ジクロロエタン、クロロホルム、モノクロロベンゼン、ジクロロベンゼン等の塩素化炭化水素、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素などが挙げられる。また、アルカリ水溶液に用いられるアルカリ化合物としては、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等のアルカリ金属の水酸化物が挙げられる。

20

#### 【0027】

分子量調整剤としては、一価のフェノール性水酸基を有する化合物が挙げられる。一価のフェノール性水酸基を有する化合物としては、m-メチルフェノール、p-メチルフェノール、m-プロピルフェノール、p-プロピルフェノール、p-tert-ブチルフェノールおよび p-長鎖アルキル置換フェノールなどが挙げられる。分子量調整剤の使用量は、芳香族ジヒドロキシ化合物 100 モルに対して 50 ~ 0.5 モルであることが好ましく、中でも 30 ~ 1 モルであることが好ましい。

30

#### 【0028】

重合触媒としては、トリメチルアミン、トリエチルアミン、トリブチルアミン、トリプロピルアミン、トリヘキシルアミン、ピリジン等の第三級アミン類：トリメチルベンジルアンモニウムクロライド、テトラメチルアンモニウムクロライド、トリエチルベンジルアンモニウムクロライド等の第四級アンモニウム塩などが挙げられる。

#### 【0029】

次に溶融エステル交換法について説明する。この製造方法における重合反応は、例えば、炭酸ジエステルと芳香族ジヒドロキシ化合物とのエステル交換反応である。炭酸ジエステルとしては、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、ジ-tert-ブチルカーボネート等の炭酸ジアルキル化合物、ジフェニルカーボネートおよ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等が挙げられる。炭酸ジエステルは、好ましくはジフェニルカーボネートまたは置換ジフェニルカーボネートであり、中でもジフェニルカーボネートが好ましい。

40

#### 【0030】

また芳香族ポリカーボネート樹脂においては、その末端水酸基量がポリカーボネート樹脂の熱安定性、加水分解安定性、色調等に大きな影響を及ぼすので、従来公知の任意の方法によって、適宜調整してもよい。溶融エステル交換反応においては、通常、炭酸ジエステルと芳香族ジヒドロキシ化合物との混合比率や、エステル交換反応時の減圧度を調整し

50

て、所望の分子量及び末端水酸基量を調整すればよい。

【 0 0 3 1 】

通常、溶融エステル交換反応においては、芳香族ジヒドロキシ化合物 1 モルに対して、炭酸ジエステルを等モル量以上用い、中でも 1 . 0 1 ~ 1 . 3 0 モルとすることが好ましい。またより積極的な調整方法としては、反応時に別途、末端停止剤を添加する方法が挙げられ、この際の末端停止剤としては一価フェノール類、一価カルボン酸類、炭酸ジエステル類が挙げられる。

【 0 0 3 2 】

溶融エステル交換法によりポリカーボネートを製造する際には、通常、エステル交換触媒が使用される。エステル交換触媒は、特に制限はないが、アルカリ金属化合物および / またはアルカリ土類金属化合物が好ましい。また補助的に、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またはアミン系化合物などの塩基性化合物を併用してもよい。上記原料を用いたエステル交換反応としては、1 0 0 ~ 3 2 0 の温度で反応を行い、最終的には 2 m m H g 以下の減圧下、芳香族ジヒドロキシ化合物等の副生成物を除去しながら溶融重縮合反応を行えばよい。

【 0 0 3 3 】

溶融重縮合は、バッチ式、連続式の何れの方法でも行うことができる。中でも、本発明に用いる芳香族ポリカーボネート樹脂や、本発明の樹脂組成物の安定性等を考慮すると、連続式で行うことが好ましい。溶融エステル交換法に用いる触媒失活剤としては、該エステル交換反応触媒を中和する化合物、例えばイオウ含有酸性化合物またはそれより形成される誘導体を使用することが好ましい。この様な触媒失活剤の添加量は、該触媒が含有するアルカリ金属に対して 0 . 5 ~ 1 0 当量とすることが好ましく、中でも 1 ~ 5 当量であることが好ましい。更にこの様な触媒失活剤の添加量は、ポリカーボネートに対して 1 ~ 1 0 0 p p m であることが好ましく、中でも 1 ~ 2 0 p p m であることが好ましい。

【 0 0 3 4 】

本発明に用いる芳香族ポリカーボネート樹脂の分子量は適宜選択して決定すればよいが、溶液粘度から換算した粘度平均分子量 [ M<sub>v</sub> ] が 1 0 0 0 0 ~ 5 0 0 0 0 であることが好ましい。芳香族ポリカーボネートの粘度平均分子量を 1 0 0 0 0 以上とすることで機械的強度がより向上する傾向にあり、機械的強度の要求の高い用途に用いる場合により好ましいものとなる。一方、粘度平均分子量を 5 0 0 0 0 以下とすることで、流動性の低下をより改善できる傾向にあり、成形加工性容易の観点からより好ましい。

【 0 0 3 5 】

粘度平均分子量は、中でも 1 2 0 0 0 ~ 4 0 0 0 0 、特に 1 4 0 0 0 ~ 3 0 0 0 0 であることが好ましい。また粘度平均分子量の異なる 2 種類以上の芳香族ポリカーボネート樹脂を混合してもよい。もちろん、粘度平均分子量が上記好適範囲外である芳香族ポリカーボネート樹脂を混合してもよい。

【 0 0 3 6 】

尚、本発明における粘度平均分子量 [ M<sub>v</sub> ] とは、溶媒としてメチレンクロライドを使用し、ウペローデ粘度計を用いて温度 2 0 での極限粘度 [ ] ( 単位 d l / g ) を求め、S c h n e i l l の粘度式、すなわち、 $\eta_{sp}/c = 1.23 \times 10^{-4} M^{0.83}$ 、から算出される値を意味する。ここで極限粘度 [ ] とは各溶液濃度 [ C ] ( g / d l ) での比粘度 [  $\eta_{sp}$  ] を測定し、下記式により算出した値である。

【 0 0 3 7 】

【 数 1 】

$$\eta = \lim_{c \rightarrow 0} \eta_{sp} / c$$

【 0 0 3 8 】

本発明に用いる芳香族ポリカーボネート樹脂の末端水酸基濃度は、通常 1 0 0 0 p p m 以下であり、中でも 8 0 0 p p m 以下、特に 6 0 0 p p m 以下であることが好ましい。またその下限は、特にエステル交換法で製造する芳香族ポリカーボネート樹脂では、1 0 p

ppm以上、中でも30 ppm以上、特に40 ppm以上であることが好ましい。

【0039】

末端水酸基濃度を10 ppm以上とすることで、分子量の低下が抑制でき、樹脂組成物の機械的特性がより向上する傾向にある。また末端基水酸基濃度を1000 ppm以下とすることで、樹脂組成物の滞留熱安定性や色調がより向上する傾向にあるので好ましい。なお、末端水酸基濃度の単位は、芳香族ポリカーボネート樹脂重量に対する、末端水酸基の重量をppmで表示したものであり、測定方法は、四塩化チタン/酢酸法による比色定量(Macromol. Chem. 88 215 (1965)に記載の方法)である。

【0040】

また、成形品外観の向上や流動性の向上を図るため、本発明に用いる芳香族ポリカーボネート樹脂は、芳香族ポリカーボネートオリゴマーを含有していてもよい。この芳香族ポリカーボネートオリゴマーの粘度平均分子量[Mv]は1500~9500であることが好ましく、中でも2000~9000であることが好ましい。芳香族ポリカーボネートオリゴマーは、芳香族ポリカーボネート樹脂成分の30重量%以下とすることが好ましい。

【0041】

更に本発明に用いる芳香族ポリカーボネート樹脂は、バージン原料だけでなく、使用済みの製品から再生された芳香族ポリカーボネート樹脂、いわゆるマテリアルリサイクルされた芳香族ポリカーボネート樹脂を使用してもよい。使用済みの製品としては、光学ディスク等の光記録媒体、導光板、自動車窓ガラス・自動車ヘッドランプレンズ・風防等の車両透明部材、水ボトル等の容器、メガネレンズ、防音壁・ガラス窓・波板等の建築部材等が好ましく挙げられる。また、製品の不適合品、スプルー、ランナー等から得られた粉碎品またはそれらを熔融して得たペレット等も使用可能である。再生された芳香族ポリカーボネート樹脂は、芳香族ポリカーボネート樹脂成分の80重量%以下であることが好ましく、より好ましくは50重量%以下である。

【0042】

熱可塑性ポリエステル樹脂

本発明に用いる熱可塑性ポリエステル樹脂は、ジカルボン酸類またはその反応性誘導体からなるジカルボン酸成分と、ジオール類またはそのエステル誘導体からなるジオール成分とを主成分とする縮合反応により得られる重合体または共重合体である。

【0043】

本発明の熱可塑性ポリエステル樹脂の製造は、常法に従い、チタン、ゲルマニウム、アンチモン等を含有する重縮合触媒の存在下、加熱条件下にてジカルボン酸成分とジオール成分とを反応させ、副生する水または低級アルコールを系外に排出して行われる。ここで重合方法はバッチ式、連続式のいずれでもよく、固相重合により重合度を上げてよい。

【0044】

ジカルボン酸類としては、芳香族ジカルボン酸および脂肪族ジカルボン酸のいずれでもよいが、耐熱性、寸法安定性等の点から芳香族ジカルボン酸が好ましい。芳香族ジカルボン酸としては、テレフタル酸、イソフタル酸、オルトフタル酸、1,5-ナフタレンジカルボン酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、4,4'-ビフェニルジカルボン酸、4,4'-ビフェニルエテルジカルボン酸、4,4'-ビフェニルメタンジカルボン酸、4,4'-ビフェニルスルホンジカルボン酸、4,4'-ビフェニルイソプロピリデンジカルボン酸、1,2-ビス(フェノキシ)エタン-4,4'-ジカルボン酸、2,5-アントラセンジカルボン酸、2,6-アントラセンジカルボン酸、4,4'-p-タフェニレンジカルボン酸、2,5-ピリジンジカルボン酸等が挙げられ、これらの置換体(例えば、5-メチルイソフタル酸などのアルキル基置換体など)や反応性誘導体(例えばテレフタル酸ジメチル、テレフタル酸ジエチルなどのアルキルエステル誘導体など)等を用いることもできる。

【0045】

中でもテレフタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸及びそれらのアルキルエステル誘導体が好ましく、特にテレフタル酸およびそのアルキルエステル誘導体が好ましい。こ

10

20

30

40

50



れら芳香族ジカルボン酸は、1種を単独で用いても2種以上を併用してもよく、該芳香族ジカルボン酸と共にアジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカン二酸等の脂肪族ジカルボン酸、シクロヘキサンジカルボン酸等の脂環族ジカルボン酸等の1種以上併用することも可能である。

【0046】

またジオール類としては、エチレングリコール、1,2-プロピレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサジオール、デカメチレングリコール、2,2-ジメチル-1,3-プロパンジオール等の脂肪族ジオール類；1,4-シクロヘキサンジメタノール、1,3-シクロヘキサンジメタノール、シクロヘキサジオール、トランス-またはシス-2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール等の脂環族ジオール類；p-キシレンジオール、ビスフェノールA、テトラブロモビスフェノールA、テトラブロモビスフェノールA-ビス(2-ヒドロキシエチルエテル)等の芳香族ジオール類等が挙げられる。尚、これらの置換体も使用することができる。

【0047】

中でも熱安定性、耐衝撃性、剛性等の点から、エチレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、1,4-シクロヘキサンジメタノールが好ましく、特にエチレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオールが好ましい。これらは1種を単独で用いても2種以上を併用してもよい。またジオール成分として、分子量400~6000の長鎖ジオール類、すなわちポリエチレングリコール、ポリ-1,3-プロピレングリコール、ポリテトラメチレングリコール等の1種以上を上記ジオール類と併用して共重合させてもよい。

【0048】

更には、本発明に用いる熱可塑性ポリエステル樹脂は、少量の分岐剤を導入することにより、分岐させたものをも用いることが出来る。分岐剤の種類に制限はないがトリメシン酸、トリメリチン酸、トリメチロルエタン、トリメチロルプロパン、ペンタエリスリトール等が挙げられる。

【0049】

本発明に用いる熱可塑性ポリエステル樹脂の好適な具体例としては、ポリエチレンテレフタレート樹脂(PET)、ポリプロピレンテレフタレート樹脂(PPT)、ポリブチレンテレフタレート樹脂(PBT)、ポリヘキシレンテレフタレート樹脂、ポリエチレンナフタレート樹脂(PEN)、ポリブチレンナフタレート樹脂(PBN)、ポリ(1,4-シクロヘキサンジメチレンテレフタレート)樹脂(PCT)、ポリシクロヘキシルシクロヘキシル-ト(PCC)等が挙げられる。中でも流動性、耐衝撃性の点から、PET、PPT、PBTが好ましい。

【0050】

本発明に用いる、その他の熱可塑性ポリエステル樹脂の具体例としては、例えばラクTONの開環重合によるポリピバロラクTON樹脂、ポリ(ε-カプロラクTON)樹脂等や、熔融状態で液晶を形成する液晶ポリマ-(Thermotropic Liquid Crystal Polymer; TLCP)等が挙げられる。具体的には、市販の液晶ポリエステル樹脂としてイーストマンコダック社のX7G、ダトコ社のXyday(ザイダ-)、住友化学社のエコノール、セラニ-ズ社のベクトラ等が挙げられる。

【0051】

本発明で用いる熱可塑性ポリエステル樹脂の固有粘度は、好ましくは0.4~1.5 dl/gであり、中でも0.5~1.3 dl/gであることが好ましい。ここで固有粘度とは、フェノール/テトラクロロエタン=50/50(重量比)の溶媒中30℃で測定した値である。固有粘度が0.4未満であると得られる樹脂組成物の耐衝撃性が低下する場合があり、逆に1.5を超えると流動性が低下する場合がある。また熱可塑性ポリエステル樹脂の末端カルボキシル基量は任意だが、少なすぎると得られる樹脂組成物の耐衝撃性が低下しやすく、逆に多すぎても耐湿熱性、熱安定性が不十分となる場合があるので、通、

10

20

30

40

50

5 ~ 50  $\mu\text{eq/g}$  であり、中でも 10 ~ 30  $\mu\text{eq/g}$  であることが好ましい。

【0052】

更に、本発明に用いる熱可塑性ポリエステル樹脂としては、バ - ジン原料だけでなく、使用済みの製品から再生された熱可塑性ポリエステル樹脂、いわゆるマテリアルリサイクルされた熱可塑性ポリエステル樹脂の使用も可能である。使用済みの製品としては、容器、フィルム、シート、繊維等が主として挙げられるが、より好適なものはPETボトル等の容器である。また、再生熱可塑性ポリエステル樹脂としては、製品の不適合品、スプル - 、ランナ - 等から得られた粉碎品またはそれらを溶融して得たペレット等も使用可能である。

【0053】

ポリアミド樹脂

本発明に用いるポリアミド樹脂は、ポリマー主鎖に - CO - NH - 結合を有し、加熱溶融できるものをいう。ポリアミド樹脂としては、3員環以上のラクタム、重合可能な - アミノ酸、又は、二塩基酸とジアミン等の重縮合によって得られるポリアミド樹脂を用いることができる。具体的には例えば、 - カプロラクタム、アミノカプロン酸、エナントラクタム、7 - アミノヘプタン酸、11 - アミノウンデカン酸、9 - アミノノナン酸、 - ピロリドン、 - ピペリドン等の重合体；ヘキサメチレンジアミン、ノナメチレンジアミン、ウンデカメチレンジアミン、ドデカメチレンジアミン、メタキシリレンジアミン等のジアミンと、テレフタル酸、イソフタル酸、アジピン酸、セバシン酸、ドデカン二塩基酸、グルタル酸等の二塩基酸と重縮合せしめて得られる重合体又はこれらの共重合体が

【0054】

ポリアミド樹脂の代表的なものとして、ポリアミド - 4、ポリアミド - 6、ポリアミド - 12、ポリアミド - 6・6、ポリアミド - 4・6、ポリアミド - 6T、ポリアミド - MXD6等の重合体やポリアミド - 6 / 6・6、ポリアミド - 6 / 12、ポリアミド - 6 / 6T、ポリアミド - 6T / 6I等の共重合体が挙げられ、複数種のポリアミド樹脂を用いてもよい。中でもポリアミド - 6、ポリアミド - 6・6、ポリアミド - MXD6が好ましく、これらとポリアミド - 6 / 6・6、ポリアミド - 6T / 6Iを併用してもよい。

【0055】

本発明に用いるポリアミド樹脂は、相対粘度が2 ~ 7 (23 の温度で、98重量%濃硫酸中、1重量%濃度で測定した値。) であることが好ましく、中でも2.2 ~ 5であることが好ましい。また末端基の濃度としては、末端カルボキシル基含量が100  $\mu\text{eq/g}$  以下のものが好ましく、末端カルボキシル基含量と末端アミノ基含量の比 (末端カルボキシル基含量 / 末端アミノ基含量) が0.8 ~ 4であることが好ましい。0.8未満では流動性が不十分となる場合があり、4を超えると耐衝撃性が不十分となる場合がある。

【0056】

スチレン系樹脂

本発明に用いるスチレン系樹脂は、スチレン系単量体からなるスチレン系重合体、該スチレン系単量体と他の共重合可能なビニル系単量体との共重合体、ゴム質重合体の存在下に該スチレン系単量体を又は該スチレン系単量体と他の共重合可能なビニル系単量体との共重合体より選ばれる1種以上の重合体を示す。これらの中でも、ゴム質重合体の存在下に該スチレン系単量体を又は該スチレン系単量体と他の共重合可能なビニル系単量体との共重合体が好ましい。

【0057】

スチレン系単量体の具体例としては、スチレン、 - メチルスチレン、p - メチルスチレン、ジビニルベンゼン、エチルビニルベンゼン、ジメチルスチレン、p - t - ブチルスチレン、プロモスチレン、ジプロモスチレン等のスチレン誘導体が挙げられ、これらのうちスチレンが好ましい。尚、これらは単独、又は2種以上を混合して用いてもよい。

【0058】

上記のスチレン系単量体と共重合可能なビニル系単量体としては、アクリロニトリル、

10

20

30

40

50

メタクリロニトリル等のビニルシアン化合物；メチルアクリレート、エチルアクリレート、プロピルアクリレート、ブチルアクリレート、アミルアクリレート、ヘキシルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート、オクチルアクリレート、シクロヘキシルアクリレート等のアクリル酸アルキルエステル；メチルメタクリレート、エチルメタクリレート、プロピルメタクリレート、ブチルメタクリレート、アミルメタクリレート、ヘキシルメタクリレート、2-エチルヘキシルメタクリレート、オクチルメタクリレート、シクロヘキシルメタクリレート等のメタクリル酸アルキルエステル；フェニルアクリレート、ベンジルアクリレート等のアクリル酸アリールエステル；フェニルメタクリレート、ベンジルメタクリレート等のメタクリル酸アリールエステル；グリシジルアクリレート、グリシジルメタクリレート等のエポキシ基含有アクリル酸エステル又はメタクリル酸エステル；マレイミド、N,N-メチルマレイミド、N-フェニルマレイミド等のマレイミド系単量体；アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、無水マレイン酸、フマル酸、イタコン酸等の、 - 不飽和カルボン酸又はその無水物等が挙げられる。

10

#### 【0059】

さらにスチレン系単量体と共重合可能なゴム質重合体としては、ポリブタジエン、ポリイソプレン、スチレン-ブタジエンランダム共重合体及びブロック共重合体、アクリロニトリル-ブタジエンランダム共重合体及びブロック共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン共重合体、アクリル酸アルキルエステル又はメタクリル酸アルキルエステルとブタジエンとの共重合体、ポリブタジエン-ポリイソブレンジエン系共重合体、エチレン-イソブレンランダム共重合体及びブロック共重合体、エチレン-ブテンランダム共重合体及びブロック共重合体等のエチレンと - オレフィンとの共重合体、エチレン-メタクリレート共重合体、エチレン-ブチルアクリレート共重合体等のエチレンと、 - 不飽和カルボン酸エステルとの共重合体、エチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-プロピレン-ヘキサジエン共重合体等のエチレン-プロピレン-非共役ジエンターポリマー、アクリル系ゴム、ポリオルガノシロキサンゴムとポリアルキルアクリレート又はメタクリレートゴムとからなる複合ゴム等が挙げられる。

20

#### 【0060】

このようなスチレン系樹脂は、具体的には例えば、高衝撃ポリスチレン（HIPS）、アクリロニトリル-スチレン共重合体（AS樹脂）、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体（ABS樹脂）、メチルメタクリレート-アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体（MABS樹脂）、アクリロニトリル-スチレン-アクリルゴム共重合体（ASA樹脂）、アクリロニトリル-エチレンプロピレン系ゴム-スチレン共重合体（AES樹脂）、スチレン-メチルメタクリレート共重合体（MS樹脂）、スチレン-無水マレイン酸共重合体等が挙げられる。

30

#### 【0061】

これらの中でも、AS樹脂、ABS樹脂、ASA樹脂、AES樹脂が好ましく、中でもABS樹脂、ASA樹脂、AES樹脂が好ましく、特にABS樹脂が好ましい。これらは単独、又は2種以上を混合して使用することができる。

#### 【0062】

本発明に用いるスチレン系樹脂の製造方法は任意であり、従来公知の任意の方法、具体的には例えば、乳化重合、溶液重合、塊状重合、懸濁重合又は塊状・懸濁重合等の方法を用いることができる。中でも本発明においては、いわゆるスチレン系重合体、又はスチレン系ランダム共重合体あるいはブロック共重合体の場合は塊状重合、懸濁重合又は塊状・懸濁重合を用いることが好ましく、スチレン系グラフト共重合体の場合は塊状重合、塊状・懸濁重合又は乳化重合を用いることが好ましい。

40

#### 【0063】

本発明に用いるスチレン系樹脂の内、ABS樹脂とは、ブタジエンゴム成分にアクリロニトリルとスチレンをグラフト重合した熱可塑性グラフト共重合体とアクリロニトリルとスチレンの共重合体の混合物である。ブタジエンゴム成分の含有量は、ABS樹脂成分100重量%中、5～40重量%であることが好ましく、中でも10～35重量%であるこ

50

とが好ましく、特に13～25重量%であることが好ましい。またゴム粒子径は0.1～5 μmであることが好ましく、中でも0.2～3 μm、さらには0.3～1.5 μm、特に0.4～0.9 μmであることが好ましく、ゴム粒子径の分布は単一分布でも二山以上の複数の分布を有するもののいずれでもよい。

【0064】

顆粒状タルク（B成分）

本発明に用いるB成分である顆粒状無機フィラー（以下、単に「B成分」と言うことがある。）は、平均粒子径0.01～100 μmの無機フィラーと、水溶性ポリエステル樹脂バインダーとからなる、嵩密度0.4～1.5 g/mlの顆粒状無機フィラーである。

【0065】

本発明に用いる顆粒状無機フィラーの原料である無機フィラーの平均粒子径は、0.01～100 μmであり、中でも0.05～50 μm、更には0.1～25 μmであることが好ましい。平均粒子径が小さすぎると補強効果が不十分となり易く、逆に大きすぎても製品外観に悪影響を与えやすく、更に耐衝撃性も不十分となる場合がある。よって平均粒子径は、中でも0.2～15 μm、特に0.3～10 μmであることが好ましい。ここで平均粒子径とは、X線透過による液相沈降方式で測定されたD<sub>50</sub>をいう。このような測定ができる装置としては、Sedigraph粒子径分析器（Micromeritics Instruments社製「モデル5100」）が挙げられる。

【0066】

本発明に用いる顆粒状無機フィラーの原料である無機フィラーとしては、ウォラストナイト、タルク、マイカ、ゾノトライト、セピオライト、アタパルジャイト、カオリナイトなどの珪酸塩化合物；チタン酸カリウム、酸化チタン、酸化アルミナ、酸化亜鉛などの複合酸化物；炭酸カルシウムなどの炭酸塩化合物；硫酸バリウム、硫酸カルシウムなどの硫酸塩化合物；黒鉛、カーボンブラックなどの炭素系フィラー；シリカ；ガラスフレーク、ガラスビーズなどのガラス系フィラー；硼酸アルミニウム等が挙げられ、これらは1種を単独で用いても2種以上を併用してもよい。

【0067】

本発明に用いる顆粒状無機フィラーの中でも、剛性、流動性、耐衝撃性、製品外観のバランスの点から、ウォラストナイト、タルク、マイカ、ゾノトライト、セピオライト、アタパルジャイト、カオリナイトなどの顆粒状珪酸塩化合物が好ましく、特に顆粒状タルクを用いることが好ましい。

【0068】

本発明に用いる顆粒状無機フィラー（B成分）である顆粒状タルクは、層状構造を持つ含水ケイ酸マグネシウムであって、化学式は $4\text{SiO}_2 \cdot 3\text{MgO} \cdot \text{H}_2\text{O}$ で表され、通常 $\text{SiO}_2$ を58～66重量%、 $\text{MgO}$ を28～35重量%、 $\text{H}_2\text{O}$ を約5重量%含むものである。その他少量成分として $\text{Fe}_2\text{O}_3$ が0.03～1.2重量%、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ が0.05～1.5重量%、 $\text{CaO}$ が0.05～1.2重量%、 $\text{K}_2\text{O}$ が0.2重量%以下、 $\text{Na}_2\text{O}$ が0.2重量%以下等を含含有しており、比重は約2.7である。

【0069】

また、本発明に用いる顆粒状無機フィラー（B成分）は、A成分等の樹脂との親和性を高めるために、原料である無機フィラー表面が処理されていてもよい。表面処理剤としては、具体的には例えば、トリメチロールエタン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール等のアルコール類、トリエチルアミン等のアルカノールアミン、オルガノポリシロキサン等の有機シリコン系化合物、ステアリン酸等の高級脂肪酸、ステアリン酸カルシウムやステアリン酸マグネシウム等の脂肪酸金属塩、ポリエチレンワックス、流動パラフィン等の炭化水素系滑剤、リジン、アルギニン等の塩基性アミノ酸、ポリグリセリン及びそれらの誘導体、シラン系カップリング剤、チタネート系カップリング剤、アルミニウム系カップリング剤等のカップリング剤等が挙げられる。

【0070】

次に、本発明に用いる顆粒状無機フィラー（B成分）を造粒する際に用いるバインダー

10

20

30

40

50

である、水溶性ポリエステル樹脂について説明する。水溶性ポリエステル樹脂は、ジカルボン酸類またはその反応性誘導体からなるジカルボン酸成分と、ジオール類またはそのエステル誘導体からなるジオール成分と、水溶性付与成分とを原料主成分とし、これらを縮合反応させることにより得られる共重合体であり、水に対する溶解度を有するものを言う。水に対する溶解度は、適宜選択して決定すれば良く、水溶性付与成分の含有量で調整することができる。

#### 【0071】

水溶性ポリエステル樹脂の原料であるジカルボン酸類としては、芳香族ジカルボン酸および脂肪族ジカルボン酸のいずれでもよいが、樹脂組成物の耐熱性の点から、芳香族ジカルボン酸が好ましい。芳香族ジカルボン酸としては、具体的には例えば、テレフタル酸、10  
イソフタル酸、オルトフタル酸、1,5-ナフタレンジカルボン酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、4,4'-ビフェニルジカルボン酸、4,4'-ビフェニルエーテルジカルボン酸、4,4'-ビフェニルメタンジカルボン酸、4,4'-ビフェニルスルホンジカルボン酸、4,4'-ビフェニルイソプロピリレンジカルボン酸、1,2-ビス(フェノキシ)エタン-4,4'-ジカルボン酸、2,5-アントラセンジカルボン酸、2,6-アントラセンジカルボン酸、4,4'-p-タフェニレンジカルボン酸、2,5-ピリジンジカルボン酸等が挙げられ、これらの置換体(例えば、5-メチルイソフタル酸などのアルキル基置換体など)や反応性誘導体(例えばテレフタル酸ジメチル、テレフタル酸ジエチルなどのアルキルエステル誘導体など)等を用いることもできる。

#### 【0072】

中でも、テレフタル酸、イソフタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、及びこれらのアルキルエステル誘導体が、より好ましい。これら芳香族ジカルボン酸は1種を単独で用いても、2種以上を併用してもよく、該芳香族ジカルボン酸と共にアジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカン二酸等の脂肪族ジカルボン酸、シクロヘキサンジカルボン酸等の脂環族ジカルボン酸等の1種以上併用してもよい。

#### 【0073】

水溶性ポリエステル樹脂の原料であるジオール類としては、エチレングリコール、1,2-プロピレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサジオール、デカメチレングリコール、2,2-ジメチル-1,3-プロパンジオール等の脂肪族ジオール類；  
1,4-シクロヘキサンジメタノール、1,3-シクロヘキサンジメタノール、シクロヘキサジオール、トランス-またはシス-2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール等の脂環族ジオール類；p-キシレンジオール、ビスフェノールA、テトラプロモビスフェノールA、テトラプロモビスフェノールA-ビス(2-ヒドロキシエチルエーテル)等の芳香族ジオール類等を挙げることができ、これらの置換体も使用することができる。

#### 【0074】

中でも、樹脂組成物の耐熱性の点から、エチレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、1,4-シクロヘキサンジメタノールが好ましく、更にはエチレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオールが好ましく、  
特にエチレングリコールが好ましい。これらは1種を単独で用いても、2種以上を併用してもよい。またジオール成分として、分子量400~6000の長鎖ジオール類、つまりポリエチレングリコール、ポリ-1,3-プロピレングリコール、ポリテトラメチレングリコール等の1種以上をジオール類と併用して共重合させてもよい。

#### 【0075】

水溶性ポリエステル樹脂の原料である水溶性付与成分としては、例えば金属スルホネート基を有するジカルボン酸類、ポリエチレングリコール等が挙げられ、中でも耐熱性の点から金属スルホネート基を有するジカルボン酸類が好ましい。

#### 【0076】

金属スルホネート基を有するジカルボン酸類としては、例えば5-スルホイソフタル酸

10

20

30

40

50

、2 - スルホイソフタル酸、4 - スルホイソフタル酸、スルホテレフタル酸、4 - スルホナフタレン - 2 , 6 - ジカルボン酸等のナトリウム、カリウムなどのアルカリ金属塩又はこれらのエステル形成性誘導体が挙げられ、水溶性の点から5 - ナトリウムスルホイソフタル酸又はそのエステル誘導体が好ましい。

【0077】

金属スルホネート基を有するジカルボン類の含有量としては、少なすぎると得られるポリエステル樹脂の水溶性が不十分となり、逆に多すぎても、水溶性ポリエステル樹脂の耐熱性が不十分となることがあるので、この含有量は、水溶性ポリエステル樹脂の原料である全カルボン酸成分に対して、1 ~ 40 モル%であることが好ましく、中でも5 ~ 35 モル%であることが好ましい。

10

【0078】

本発明に用いる顆粒状無機フィラー（B成分）のバインダーである水溶性ポリエステル樹脂の好適な具体例としては、テレフタル酸、エチレングリコール、5 - ナトリウムスルホイソフタル酸からなる共重合体が挙げられ、互応化学工業社製「プラスコートZ - 221」「プラスコートZ - 561」「プラスコートZ - 446」等が挙げられる。

【0079】

本発明に用いる顆粒状無機フィラー（B成分）における水溶性ポリエステル樹脂バインダーの含有量は、適宜選択して決定すればよいが、通常、顆粒状無機フィラー（B成分）100重量%中、0.01 ~ 5重量%であることが好ましい。バインダー含有量を0.01重量%以上とすることで、顆粒状タルクが崩れ難くなり、本発明の樹脂組成物の物性、具体的には押出加工性、剛性、耐衝撃性、熱安定性等が、より向上する傾向にあり、一方、バインダー含有量を5重量%以下とすることで、本発明に用いるB成分である顆粒状無機フィラー、とりわけ顆粒状タルクの樹脂組成中への分散がより良好になり、樹脂組成物の成形品外観や耐衝撃性がより向上する傾向にある。

20

【0080】

よって、本発明に用いる顆粒状無機フィラー（B成分）における水溶性ポリエステル樹脂バインダーの含有量は、中でも0.05 ~ 3.5重量%、特に0.1 ~ 3重量%であることが好ましい。

【0081】

本発明に用いる顆粒状無機フィラー（B成分）の嵩密度は、0.4 ~ 1.5 g / mlである。嵩密度を0.4 g / ml以上とすることで、本発明の樹脂組成物の物性、具体的には押出加工性、剛性、耐衝撃性、熱安定性等が、より向上する傾向にあり、一方、嵩密度を1.5 g / ml以下とすることで樹脂組成物の成形品外観や耐衝撃性がより向上する傾向にある。よって本発明に用いる顆粒状無機フィラー（B成分）の嵩密度は、中でも0.5 ~ 1.3 g / ml、特に0.6 ~ 1.1 g / mlであることが好ましい。

30

【0082】

ここで嵩密度とは、以下の(1) ~ (3)の方法により求めた値である。

(1) 顆粒状無機フィラーを目開き1.4 mmの篩に乗せ、ハケで均等に軽く掃きながら篩を通す。

(2) 篩に通した顆粒状無機フィラーをJIS K 5101に規定された嵩密度測定装置に付属する受器に山盛りになるまで投入する。

40

(3) 受器の投入口から上部の山盛りになった顆粒状無機フィラーをヘラで削り取り、受器内の顆粒状無機フィラーの重量を測定し、下式にて嵩密度を算出する。

嵩密度 (g / ml) = 受器内の顆粒状無機フィラーの重量 (g) / 受器の容量 (ml)

【0083】

本発明に用いる顆粒状無機フィラー（B成分）の粒度は、目開き500 μm篩上の割合が55重量%以上であることが好ましく、中でも60重量%以上、更には70重量%以上、特に90重量%以上であることが好ましい。顆粒状無機フィラー粒度において、目開き500 μm篩上の割合が55重量%以上とすることで樹脂組成物の耐衝撃性、熱安定性がより向上する傾向にある。

50

ここで本発明に用いる顆粒状無機フィラー（Ｂ成分）の粒度は、ＪＩＳ Ｚ ８ ８ ０ １ に準拠し、以下の（１'）～（３'）の方法により求めた値である。

（１'）顆粒状無機フィラーを目開き 2 mm の篩に乗せ、ハケで均等に軽く掃きながら篩を通す。

（２'）篩に通した上記顆粒状無機フィラーを 2 0 0 m l のピーカー一杯に入れ、吉田製作所製試料縮分器「１ 3 0 5 ６号」（溝幅 6 mm）を用いて、3 0 m l 程度になるまで縮分を行った。

（３'）目開き 5 0 0 μ m の篩を用いて、縮分した上記顆粒状無機フィラーの篩分けを行い、5 0 0 μ m の篩を通過しないもの（篩上）の重量を求め、全体量からの割合を求めた。なお、篩分けは、筒井理化学器機製「電磁式振動篩い器 M - 1 0 0 形」を用い、振動数 1 2 0 回 / 秒で 1 0 分間行った。

10

#### 【 0 0 8 4 】

本発明に用いる顆粒状無機フィラー（Ｂ成分）の大きさや形状は任意であり、棒状、円柱状、針状、球状、粒状、フレーク状、不定形等、その用途に応じて成形条件や整粒条件により種々の大きさ、形状を適宜選択して決定すればよく、またその製造方法も任意である。具体的には例えば、棒状又は円柱状の顆粒状無機フィラーを製造する場合には、スクリーン式押出成形機のスクリーン目開きの大きさを変えることで軸径を適宜設定でき、成形後整粒して所望の軸長に裁断することができる。

#### 【 0 0 8 5 】

本発明に用いる顆粒状無機フィラー（Ｂ成分）は、上述した嵩密度の範囲内であれば、その大きさにも特に制限はないが、熔融混練や成形に用いる樹脂ペレットより小さい方が熔融混練機や成形機で分散する際に有利である。例えば、棒状や円柱状の顆粒状無機フィラーでは、平均軸径 0 . 2 ~ 6 mm、平均軸長 2 ~ 6 mm であることが好ましく、平均軸径：平均軸長の比が 1 : 0 . 5 ~ 2 であることが好ましい。

20

#### 【 0 0 8 6 】

本発明で用いる顆粒状無機フィラー（Ｂ成分）の製造方法（造粒方法）は任意であり、従来公知の任意の造粒方法を使用できるが、原料である無機フィラーとバインダーである水溶性ポリエステル樹脂との混練性を高めるとともに、顆粒製造時における混練物に可塑性を与え、製造を容易にし、かつ、造粒機の摩耗を低減し、さらに顆粒状物の硬さを調製するために湿潤剤を加えることが好ましい。

30

#### 【 0 0 8 7 】

通常、無機フィラーと水溶性ポリエステル樹脂とに潤滑剤を加え、また必要に応じて分散剤やその他の添加剤を加えて、ヘンシェルミキサー、スーパーミキサー等の混合機で攪拌しながら混合物とする。この混合物を一軸や二軸等のスクリュウ式押出機等で混練後、ストランド状に押し出し、カッティングして造粒し、流動式乾燥機やバンドヒーター等を用いて乾燥して、顆粒状無機フィラーを製造する。乾燥した後に分級を行ってもよい。

#### 【 0 0 8 8 】

本発明で用いる潤滑剤としては、水や有機溶媒等が挙げられるが、中でも価格や作業性の点から、水が好ましい。水を用いる際には、水にアルコール類を混合したものや、また水に予め水溶性ポリエステル樹脂を溶解または懸濁させて用いてもよい。更には必要に応じて、各種添加剤等、例えば分散剤、界面活性剤、各種合成樹脂用添加剤、染料等を、溶解又は懸濁させて用いることにより、より均一性を高めてもよい。

40

#### 【 0 0 8 9 】

潤滑剤として水を用いた場合には、得られた顆粒状無機フィラー（Ｂ成分）を流動式乾燥機等を用いて水分を乾燥し、含水率を 1 % 以下、中でも 0 . 5 % 以下とすることが好ましい。乾燥温度は適宜選択して決定すればよいが、通常 8 0 ~ 1 5 0 であり、中でも 8 0 ~ 1 1 0 であることが好ましい。

#### 【 0 0 9 0 】

潤滑剤の使用量は適宜選択して決定すればよいが、少なすぎてもその効果が小さく、逆に多すぎても潤滑剤の除去に時間とエネルギーがかかり過ぎる場合がある。よってその使

50

用量は、本発明に用いる顆粒状無機フィラー（Ｂ成分）の原料である、無機フィラーと水溶性ポリエステル樹脂の合計１００重量部に対して１０～１５０重量部、中でも１５～１００重量部、特に２０～６０重量部であることが好ましい。

#### 【００９１】

更に本発明においては、顆粒状無機フィラー（Ｂ成分）に分散剤を含有させ、樹脂組成物や樹脂成形品中での分散性を向上させることが出来る。分散剤の含有量は適宜選択して決定すればよいが、通常、顆粒状無機フィラー（Ｂ成分）中、０．０５～２．０重量％であり、中でも０．１～０．５重量％であることが好ましい。

#### 【００９２】

本発明に用いる分散剤は従来公知の任意のものを使用できる。具体的には例えば前述のアルコール類、アルカノールアミン、有機シリコン系化合物、高級脂肪酸、脂肪酸金属塩、炭化水素系滑剤、塩基性アミノ酸、ポリグリセリン及びそれらの誘導体が挙げられ、一種又は二種以上を用いることができる。更には、顆粒状無機フィラー（Ｂ成分）の原料である無機フィラーとして、前述の様に表面処理を行ったものを用い、さらに分散剤を加えて造粒し、本発明に用いる顆粒状無機フィラー（Ｂ成分）としてもよい。

#### 【００９３】

更に、本発明に用いる顆粒状無機フィラー（Ｂ成分）には、上述した分散剤の他、必要に応じて、本発明の特徴を損なわない範囲で、種々の添加剤を含有させてもよい。このような添加剤として、具体的には例えば、ヒンダードフェノール系等の各種酸化防止剤、ホスファイト系等の各種熱安定剤、ベンゾトリアゾール系、ベンゾフェノン系、トリアジン系等の各種紫外線吸収剤、リン酸エステル系、シリコン系、金属塩系等の各種難燃剤、オレフィンワックス系、脂肪酸エステル系等の各種離型剤、フェノール系等の抗菌・抗カビ剤、アニオン系、カチオン系、非イオン系等の帯電防止剤、着色剤、光安定剤、可塑剤、発泡剤等が挙げられる。これら添加剤は、複数種を含有させてもよい。

#### 【００９４】

#### ゴム性重合体（Ｃ成分）

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、該樹脂組成物の耐衝撃性を改良する目的で、更にＣ成分としてゴム性重合体（以下、「Ｃ成分」と略記することがある。）を含有することが好ましい。本発明に用いるゴム性重合体は、ガラス転移温度が０℃以下、中でも－２０℃以下のものであることが好ましく、ゴム性重合体にこれと共重合可能な単量体成分とを共重合した重合体をも含む。本発明に用いるＣ成分は、一般に熱可塑性樹脂組成物等に配合されて、その機械的特性を改良し得る、従来公知の任意のものを使用することができる。

#### 【００９５】

ゴム性重合体としては、具体的には例えば、ポリブタジエン、ポリイソプレン、ジエン系共重合体（スチレン・ブタジエン共重合体、アクリロニトリル・ブタジエン共重合体、アクリル・ブタジエンゴム等）、エチレンとα-オレフィンとの共重合体（エチレン・プロピレン共重合体、エチレン・ブテン共重合体、エチレン・オクテン共重合体等）、エチレンと不飽和カルボン酸エステルとの共重合体（エチレン・メタクリレ-ト共重合体、エチレン・ブチルアクリレ-ト共重合体等）、エチレンと脂肪族ビニル化合物との共重合体、エチレンとプロピレンと非共役ジエンとのタ-ポリマ-、アクリルゴム（ポリブチルアクリレ-ト、ポリ（２-エチルヘキシルアクリレ-ト）、ブチルアクリレ-ト・２-エチルヘキシルアクリレ-ト共重合体等）、シリコン系ゴム（ポリオルガノシロキサンゴム；ポリオルガノシロキサンゴムとポリアルキル（メタ）アクリレ-トゴムとからなるＩＰＮ型複合ゴム等）等が挙げられる。これらは１種を単独で用いても２種以上を併用してもよい。なお、「（メタ）アクリレ-ト」は「アクリレ-ト」と「メタクリレ-ト」を意味し、後述の「（メタ）アクリル酸」は「アクリル酸」と「メタクリル酸」を意味する。

#### 【００９６】

かかるゴム性重合体に必要に応じ共重合される単量体成分としては、芳香族ビニル化合物、シアン化ビニル化合物、（メタ）アクリル酸エステル化合物、（メタ）アクリル酸化合物等が好適に挙げられる。その他の単量体成分としては、グリシジル（メタ）アクリレ



- ト等のエポキシ基含有（メタ）アクリル酸エステル化合物；マレイミド、N - メチルマレイミド、N - フェニルマレイミド等のマレイミド化合物；マレイン酸、フタル酸、イタコン酸等の、 - 不飽和カルボン酸化合物およびそれらの無水物、例えば無水マレイン酸等を挙げることができる。これらの単量体成分についても、1 種を単独で用いても2 種以上を併用してもよい。

#### 【0097】

本発明の熱可塑性樹脂組成物の耐衝撃性改良には、C 成分のゴム性重合体としてコア/シェル型グラフト共重合体タイプのものを用いることが好ましい。中でもブタジエン含有ゴム、ブチルアクリレ - ト含有ゴム、2 - エチルヘキシルアクリレ - ト含有ゴム、シリコ - ン系ゴムから選ばれる少なくとも1 種のゴム性重合体のコア層とし、その周囲に、アクリル酸エステル、メタクリル酸エステル、芳香族ビニル化合物から選ばれる少なくとも1 種の単量体成分を共重合して形成されたシェル層からなるコア/シェル型グラフト共重合体が特に好ましい。

#### 【0098】

より具体的には、メチルメタクリレ - ト - ブタジエン - スチレン重合体（MBS）、メチルメタクリレ - ト - ブタジエン重合体（MB）、メチルメタクリレ - ト - アクリルゴム重合体（MA）、メチルメタクリレ - ト - アクリル・ブタジエンゴム共重合体、メチルメタクリレ - ト - アクリル・ブタジエンゴム - スチレン共重合体、メチルメタクリレ - ト - （アクリル・シリコ - ンIPN（interpenetrating polymer network）ゴム）重合体等を挙げることができる。このようなゴム性重合体は、1 種を単独で用いても2 種以上を併用してもよい。

#### 【0099】

この様コア/シェル型グラフト共重合体としては例えば、ローム・アンド・ハース・ジャパン社製のパラロイドEXL2315、EXL2602、EXL2603等のEXLシリーズ、KM330、KM336PなどのKMシリーズ、KCZ201等のKCZシリーズ、三菱レイヨン社製のメタブレンS - 2001、SRK - 200等が挙げられる。

#### 【0100】

ゴム性重合体にこれと共重合可能な単量体成分とを共重合したゴム性重合体のその他の具体例としては、ポリブタジエンゴム、スチレン - ブタジエン共重合体（SBR）、スチレン - ブタジエン - スチレンブロック共重合体（SSB）、スチレン - エチレン/ブチレン - スチレンブロック共重合体（SEBS）、スチレン - エチレン/プロピレン - スチレンブロック共重合体（SEPS）、エチレン - エチルアクリレート共重合体（EEA）、エチレン - メチルアクリレート共重合体（EMA）、エチレン - ブテン共重合体（EBR）、エチレン - オクテン共重合体（EOR）等が挙げられる。

#### 【0101】

#### リン系化合物（D成分）

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、本発明の効果を損なわない範囲において熱安定性や色相を向上するために、更にD成分としてリン系化合物（以下、「D成分」と略記することがある。）を含有させることが好ましい。リン系化合物としては、従来公知の任意のものを使用できる。具体的には、リン酸、ホスホン酸、亜リン酸、ホスフィン酸、ポリリン酸などのリンのオキソ酸、酸性ピロリン酸ナトリウム、酸性ピロリン酸カリウム、酸性ピロリン酸カルシウムなどの酸性ピロリン酸金属塩、リン酸カリウム、リン酸ナトリウム、リン酸セシウム、リン酸亜鉛など第1族または第2B族金属のリン酸塩、有機ホスフェート化合物、有機ホスファイト化合物、有機ホスホナイト化合物などを挙げることができる。

これらの中で、下記一般式（I）で表される有機ホスフェート化合物及び/又は下記一般式（II）で表される有機ホスファイト化合物が好ましい。

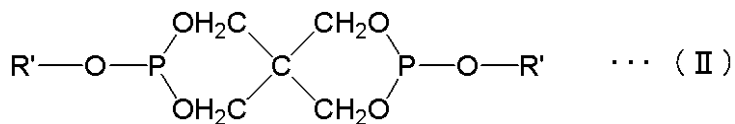
#### 【0102】



（一般式（I）中、Rはアルキル基またはアリール基であり、それぞれ同一であっても異なってもよい。mは0～2の整数である。）

【 0 1 0 3 】

【 化 1 】



( 式中、R' はアルキル基又はアリール基を示し、各々同一でも異なってもよい。 )

【 0 1 0 4 】

上記一般式 ( I ) 中、R は、好ましくは、炭素原子数 1 ~ 3 0 のアルキル基または炭素原子数 6 ~ 3 0 のアリール基であり、より好ましくは、炭素原子数 2 ~ 2 5 のアルキル基である。また m は、好ましくは 1 及び / 又は 2 である。

10

【 0 1 0 5 】

また、上記一般式 ( I I ) 中、R' は、好ましくは、炭素原子数 1 ~ 3 0 のアルキル基または炭素原子数 6 ~ 3 0 のアリール基である。上記一般式 ( I I ) で表される亜リン酸エステル的好ましい具体例としては、ジステアリルペンタエリスリトールジホスファイト、ビス ( 2 , 4 - ジ - t e r t - 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 - t e r t - 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を挙げることができる。

【 0 1 0 6 】

本発明の熱可塑性樹脂組成物においては、熱可塑性樹脂 ( A 成分 ) 1 0 0 重量部に対する顆粒状無機フィラー ( B 成分 ) の含有量が 1 ~ 4 0 0 重量部である。1 重量部未満では剛性が十分でなく、逆に 4 0 0 重量部を超えると耐衝撃性や熱安定性が低下する。よって熱可塑性樹脂 ( A 成分 ) 1 0 0 重量部に対する顆粒状無機フィラー ( B 成分 ) の含有量は、中でも 1 ~ 2 0 0 重量部、更には 1 ~ 1 0 0 重量部、そして 3 ~ 8 0 重量部、特に 5 ~ 6 0 重量部であることが好ましい。

20

【 0 1 0 7 】

本発明においてゴム性重合体 ( C 成分 ) を用いる際、C 成分の含有量は、熱可塑性樹脂 ( A 成分 ) 1 0 0 重量部に対して 1 ~ 4 0 重量部であることが好ましく、中でも 3 ~ 3 5 重量部、特に 5 ~ 3 0 重量部であることが好ましい。C 成分を 1 重量部以上配合することで耐衝撃性が良好になる傾向にあり、4 0 重量部を超えると熱安定性や剛性が低下する場合がある。

30

【 0 1 0 8 】

また、本発明においてリン系化合物 ( D 成分 ) を用いる際、D 成分の含有量は、顆粒状無機フィラー ( B 成分 ) 1 0 0 重量部に対して 0 . 1 ~ 5 重量部であることが好ましく、中でも 0 . 3 ~ 4 重量部、特に 0 . 5 ~ 3 重量部であることが好ましい。D 成分を 0 . 1 重量部以上配合することで耐衝撃性や熱安定性、色相が良好になる傾向にあり、5 重量部を超えると熱安定性が低下する場合がある。

【 0 1 0 9 】

#### その他の成分

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、必要に応じ、本発明の目的を損なわない範囲において、各種樹脂添加剤を含有していてもよい。各種樹脂添加剤としては、酸化防止剤、離型剤、紫外線吸収剤、染料、難燃剤、滴下防止剤、帯電防止剤、防曇剤、滑剤・アンチブロッキング剤、流動性改良剤、可塑剤、分散剤、防菌剤などが挙げられる。これらは 2 種以上を併用してもよい。以下、本発明の熱可塑性樹脂組成物に好適な添加剤の一例について具体的に説明する。

40

【 0 1 1 0 】

酸化防止剤としては、ヒンダ - ドフェノール系酸化防止剤が挙げられる。その具体例としては、ペンタエリスリトールテトラキス [ 3 - ( 3 , 5 - ジ - t e r t - 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 - t e r t - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル ) プロピオネート、チオジエチレンビス [ 3 - ( 3 , 5

50

- ジ - t e r t - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル) プロピオネート]、N, N' - ヘキサン - 1, 6 - ジイルピス [ 3 - ( 3, 5 - ジ - t e r t - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニルプロピオナミド)、2, 4 - ジメチル - 6 - ( 1 - メチルペンタデシル) フェノール、ジエチル [ [ 3, 5 - ピス ( 1, 1 - ジメチルエチル) - 4 - ヒドロキシフェニル] メチル] ホスフォエート、3, 3', 3'', 5, 5', 5'' - ヘキサ - t e r t - ブチル - a, a', a'' - (メシチレン - 2, 4, 6 - トリイル) トリ - p - クレゾール、4, 6 - ピス (オクチルチオメチル) - o - クレゾール、エチレンピス (オキシエチレン) ピス [ 3 - ( 5 - t e r t - ブチル - 4 - ヒドロキシ - m - トリル) プロピオネート]、ヘキサメチレンピス [ 3 - ( 3, 5 - ジ - t e r t - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル) プロピオネート]、1, 3, 5 - トリス ( 3, 5 - ジ - t e r t - ブチル - 4 - ヒドロキシベンジル) - 1, 3, 5 - トリアジン - 2, 4, 6 ( 1 H, 3 H, 5 H) - トリオン、2, 6 - ジ - t e r t - ブチル - 4 - ( 4, 6 - ピス (オクチルチオ) - 1, 3, 5 - トリアジン - 2 - イルアミノ) フェノール等が挙げられ、これらは 2 種以上を併用してもよい。

#### 【 0 1 1 1 】

上記の中では、ペンタエリスリトールテトラキス [ 3 - ( 3, 5 - ジ - t e r t - 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 - t e r t - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル) プロピオネートが好ましい。これら 2 つのフェノール系酸化防止剤は、チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社より、「イルガノックス 1 0 1 0」及び「イルガノックス 1 0 7 6」の名称で市販されている。

#### 【 0 1 1 2 】

酸化防止剤の含有量は、A 成分と B 成分の合計 1 0 0 重量部に対し、通常 0 . 0 0 1 ~ 1 重量部、好ましくは 0 . 0 1 ~ 0 . 5 重量部である。酸化防止剤の含有量が 0 . 0 0 1 重量部未満の場合は抗酸化剤としての効果が不十分であり、1 重量部を超える場合は効果が頭打ちとなり経済的ではない。

#### 【 0 1 1 3 】

離型剤としては、脂肪族カルボン酸、脂肪族カルボン酸とアルコールとのエステル、数平均分子量 2 0 0 ~ 1 5 0 0 0 の脂肪族炭化水素化合物、ポリシロキサン系シリコンオイルの群から選ばれる少なくとも 1 種の化合物が挙げられる。

#### 【 0 1 1 4 】

脂肪族カルボン酸としては、飽和または不飽和の脂肪族 1 価、2 価または 3 価カルボン酸を挙げることが出来る。ここで脂肪族カルボン酸とは、脂環式のカルボン酸も包含する。これらの中では、好ましい脂肪族カルボン酸は、炭素数 6 ~ 3 6 の 1 価または 2 価カルボン酸であり、炭素数 6 ~ 3 6 の脂肪族飽和 1 価カルボン酸が更に好ましい。斯かる脂肪族カルボン酸の具体例としては、パルミチン酸、ステアリン酸、カブロン酸、カプリン酸、ラウリン酸、アラキン酸、ベヘン酸、リグノセリン酸、セロチン酸、メリシン酸、テトラリアコンタン酸、モンタン酸、アジピン酸、アゼライン酸などが挙げられる。

#### 【 0 1 1 5 】

脂肪族カルボン酸とアルコールとのエステルにおける脂肪族カルボン酸としては、前記脂肪族カルボン酸と同じものが使用できる。一方、アルコールとしては、飽和または不飽和の 1 価または多価アルコールが挙げられる。これらのアルコールは、フッ素原子、アリール基などの置換基を有していてもよい。これらの中では、炭素数 3 0 以下の 1 価または多価の飽和アルコールが好ましく、炭素数 3 0 以下の脂肪族飽和 1 価アルコール又は多価アルコールが更に好ましい。ここで脂肪族とは、脂環式化合物も含有する。斯かるアルコールの具体例としては、オクタノール、デカノール、ドデカノール、ステアリルアルコール、ベヘニルアルコール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、グリセリン、ペンタエリスリトール、2, 2 - ジヒドロキシペルフルオロプロパノール、ネオペンチレングリコール、ジトリメチロールプロパン、ジペンタエリスリトール等が挙げられる。

#### 【 0 1 1 6 】

なお、上記のエステル化合物は、不純物として脂肪族カルボン酸及び/又はアルコールを含有していてもよく、複数の化合物の混合物であってもよい。

10

20

30

40

50

## 【 0 1 1 7 】

脂肪族カルボン酸とアルコールとのエステル具体例としては、蜜ロウ（ミリスルパルミテートを主成分とする混合物）、ステアリン酸ステアリル、ベヘン酸ベヘニル、ベヘン酸ステアリル、グリセリンモノパルミテート、グリセリンモノステアレート、グリセリンジステアレート、グリセリントリステアレート、ペンタエリスリトールモノパルミテート、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トリステアレート、ペンタエリスリトールテトラステアレート等が挙げられる。

## 【 0 1 1 8 】

数平均分子量 200 ~ 15000 の脂肪族炭化水素としては、流動パラフィン、パラフィンワックス、マイクロワックス、ポリエチレンワックス、フィッシャートロプシュワックス、炭素数 3 ~ 12 の - オレフィンオリゴマー等が挙げられる。ここで脂肪族炭化水素としては、脂環式炭化水素も含まれる。また、これらの炭化水素化合物は部分酸化されていてもよい。これらの中では、パラフィンワックス、ポリエチレンワックス又はポリエチレンワックスの部分酸化物が好ましく、パラフィンワックス、ポリエチレンワックスが更に好ましい。数平均分子量は、好ましくは 200 ~ 5000 である。これらの脂肪族炭化水素は単一物質であっても、構成成分や分子量が様々なものの混合物であっても、主成分が上記の範囲内であればよい。

## 【 0 1 1 9 】

ポリシロキサン系シリコンオイルとしては、例えば、ジメチルシリコンオイル、フェニルメチルシリコンオイル、ジフェニルシリコンオイル、フッ素化アルキルシリコン等が挙げられる。これらは 2 種類以上を併用してもよい。

## 【 0 1 2 0 】

離型剤の含有量は、A 成分と B 成分の合計 100 重量部に対し、通常 0.001 ~ 2 重量部、好ましくは 0.01 ~ 1 重量部である。離型剤の含有量が 0.001 重量部未満の場合は離型性の効果が十分でない場合があり、2 重量部を超える場合は、耐加水分解性の低下、射出成形時の金型汚染などの問題がある。

## 【 0 1 2 1 】

紫外線吸収剤の具体例としては、酸化セリウム、酸化亜鉛などの無機紫外線吸収剤の他、ベンゾトリアゾール化合物、ベンゾフェノン化合物、トリアジン化合物などの有機紫外線吸収剤が挙げられる。これらの中では有機紫外線吸収剤が好ましい。特に、ベンゾトリアゾール化合物、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、2 - [4, 6 - ビス(2, 4 - ジメチルフェニル) - 1, 3, 5 - トリアジン - 2 - イル] - 5 - (オクチロキシ)フェノール、2, 2' - (1, 4 - フェニレン)ビス[4H - 3, 1 - ベンゾキサジン - 4 - オン]、[(4 - メトキシフェニル) - メチレン] - プロパンジオイックアシッド - ジメチルエステルの群から選ばれる少なくとも 1 種が好ましい。

## 【 0 1 2 2 】

ベンゾトリアゾール化合物の具体例としては、メチル - 3 - [3 - tert - ブチル - 5 - (2H - ベンゾトリアゾール - 2 - イル) - 4 - ヒドロキシフェニル]プロピオネート - ポリエチレングリコールとの縮合物が挙げられる。また、その他のベンゾトリアゾール化合物の具体例としては、2 - ビス(5 - メチル - 2 - ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2 - (3, 5 - ジ - tert - ブチル - 2 - ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2 - (3', 5' - ジ - tert - ブチル - 2' - ヒドロキシフェニル) - 5 - クロロベンゾトリアゾール、2 - (3 - tert - ブチル - 5 - メチル - 2 - ヒドロキシフェニル) - 5 - クロロベンゾトリアゾール、2 - (2' - ヒドロキシ - 5' - tert - オクチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2 - (3, 5 - ジ - tert - アミル - 2 - ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2 - [2 - ヒドロキシ - 3, 5 - ビス( , - ジメチルベンジル)フェニル] - 2H - ベンゾトリアゾール、2, 2' - メチレン - ビス[4 - (1, 1, 3, 3 - テトラメチルブチル) - 6 - (2N - ベンゾトリアゾ

10

20

30

40

50

ール2 - イル)フェノール][メチル - 3 - {3 - tert - ブチル - 5 - (2H - ベンゾトリアゾール - 2 - イル) - 4 - ヒドロキシフェニル}プロピオネート - ポリエチレングリコール]縮合物などが挙げられる。これらは2種以上を併用してもよい。

【0123】

上記の中では、好ましくは、2 - (2' - ヒドロキシ - 5' - tert - オクチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2 - [2 - ヒドロキシ - 3, 5 - ビス( , - ジメチルベンジル)フェニル] - 2H - ベンゾトリアゾール、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、2 - [4, 6 - ビス(2, 4 - ジメチルフェニル) - 1, 3, 5 - トリアジン - 2 - イル] - 5 - (オクチロキシ)フェノール、2, 2' - メチレン - ビス[4 - (1, 1, 3, 3 - テトラメチルブチル) - 6 - (2N - ベンゾトリアゾール2 - イル)フェノール]である。

10

【0124】

紫外線吸収剤の含有量は、A成分とB成分の合計100重量部に対し、通常0.01～3重量部、好ましくは0.1～1重量部である。紫外線吸収剤の含有量が0.01重量部未満の場合は耐候性の改良効果が不十分の場合があり、3重量部を超える場合はモールドデボジット等の問題が生じる場合がある。

【0125】

染顔料としては、無機顔料、有機顔料、有機染料などが挙げられる。無機顔料としては、例えば、カーボンブラック、カドミウムレッド、カドミウムイエロ - 等の硫化物系顔料；群青などの珪酸塩系顔料；酸化チタン、亜鉛華、弁柄、酸化クロム、鉄黒、チタンイエロ - 、亜鉛 - 鉄系ブラウン、チタンコバルト系グリーン、コバルトグリーン、コバルトブルー - 、銅 - クロム系ブラック、銅 - 鉄系ブラック等の酸化物系顔料；黄鉛、モリブデ - トオレンジ等のクロム酸系顔料；紺青などのフェロシアン系顔料が挙げられる。有機顔料および有機染料としては、銅フタロシアニンブルー - 、銅フタロシアニングリーン等のフタロシアニン系染顔料；ニッケルアゾイエロ - 等のアゾ系染顔料；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、キノフタロン系などの縮合多環染顔料；アンスラキノ系、複素環系、メチル系の染顔料などが挙げられる。これらは2種以上を併用してもよい。これらの中では、熱安定性の点から、酸化チタン、カーボンブラック、シアニン系、キノリン系、アンスラキノ系、フタロシアニン系化合物などが好ましい。

20

30

【0126】

染顔料の含有量は、A成分とB成分の合計100重量部に対し、通常5重量部以下、好ましくは3重量部以下、更に好ましくは2重量部以下である。染顔料の含有量が5重量部を超える場合は耐衝撃性が十分でない場合がある。

【0127】

難燃剤としては、ハロゲン化ビスフェノールAのポリカーボネート、ブロム化ビスフェノール系エポキシ樹脂、ブロム化ビスフェノール系フェノキシ樹脂、ブロム化ポリスチレンなどのハロゲン系難燃剤、リン酸エステル系難燃剤、ジフェニルスルホン - 3, 3' - ジスルホン酸ジカリウム、ジフェニルスルホン - 3 - スルホン酸カリウム、パ - フルオロブタンスルホン酸カリウム等の有機金属塩系難燃剤、ポリオルガノシロキサン系難燃剤などが挙げられるが、リン酸エステル系難燃剤が特に好ましい。

40

【0128】

リン酸エステル系難燃剤の具体例としては、トリフェニルホスフェ - ト、レゾルシノールビス(ジキシレニルホスフェ - ト)、ハイドロキノンビス(ジキシレニルホスフェ - ト)、4, 4' - ビフェノールビス(ジキシレニルホスフェ - ト)、ビスフェノールAビス(ジキシレニルホスフェ - ト)、レゾルシノールビス(ジフェニルホスフェ - ト)、ハイドロキノンビス(ジフェニルホスフェ - ト)、4, 4' - ビフェノールビス(ジフェニルホスフェ - ト)、ビスフェノールAビス(ジフェニルホスフェ - ト)等が挙げられる。これらは2種以上を併用してもよい。これらの中では、レゾルシノールビス(ジキシレニルホスフェ - ト)、ビスフェノールAビス(ジフェニルホスフェ - ト)が好ましい。

50

## 【 0 1 2 9 】

難燃剤の含有量は、A成分とB成分の合計100重量部に対し、通常1～30重量部、好ましくは3～25重量部、更に好ましくは5～20重量部である。難燃剤の含有量が1重量部未満の場合は難燃性が十分でない場合があり、30重量部を超える場合は耐熱性が低下する場合がある。

## 【 0 1 3 0 】

滴下防止剤としては、例えば、ポリフルオロエチレン等のフッ素化ポリオレフィンが挙げられ、特にフィブリル形成能を有するポリテトラフルオロエチレンが好ましい。これは、重合体中に容易に分散し、且つ重合体同士を結合して繊維状材料を作る傾向を示す。フィブリル形成能を有するポリテトラフルオロエチレンはASTM規格でタイプ3に分類される。ポリテトラフルオロエチレンは、固体形状の他、水性分散液形態のものも使用可能である。フィブリル形成能を有するポリテトラフルオロエチレンとしては、例えば三井・デュポンフロロケミカル社製「テフロン（登録商標）6J」や「テフロン（登録商標）30J」、ダイキン工業社製「ポリフロン（商品名）」等が挙げられる。

10

## 【 0 1 3 1 】

滴下防止剤の含有量は、A成分とB成分の合計100重量部に対し、通常0.02～4重量部、好ましくは0.03～3重量部である。滴下防止剤の配合量が5重量部を超える場合は成形品外観の低下が生じる場合がある。

## 【 0 1 3 2 】

熱可塑性樹脂組成物の製造方法

20

本発明の熱可塑性樹脂組成物は任意であり、従来公知の任意の、熱可塑性樹脂組成物の製造方法を適宜選択して使用できる。具体的には例えば、前記A成分、B成分および必要に応じて用いるC成分、D成分やその他添加成分を、タンブラーやヘンシェルミキサなどの各種混合機を用い予め混合した後、バンバリミキサ、ローラー、ブラベンダー、単軸混練押出機、二軸混練押出機、二ダなどで熔融混練する方法が挙げられる。

## 【 0 1 3 3 】

また、各成分を予め混合せずに、または、一部の成分のみ予め混合してフィーダーを用いて押出機に供給して熔融混練して樹脂組成物を製造することもでき、B成分を他の成分を混合せずにフィーダーを用いて押出機に供給して熔融混練して樹脂組成物を製造する方が顆粒状無機フィラーの飛散・粉塵の発生による作業環境の悪化を低減できるので押出作業性からは好ましい方法である。更にB成分が熔融混練により繊維破断しやすい顆粒状無機フィラーであるときは、B成分以外を上流部分に一括投入し、中流以降でB成分を添加し樹脂成分と熔融混練する方法も、得られる樹脂組成物の機械物性の点から好ましい。

30

## 【 0 1 3 4 】

樹脂成形品の製造

本発明の樹脂成形品の製造方法は任意であり、従来公知の任意の樹脂成形方法から適宜選択して使用すればよい。具体的には例えば、一般的な射出成形法、超高速射出成形法、射出圧縮成形法、二色成形法、ガスアシスト等の中空成形法、断熱金型を使用した成形法、急速加熱金型を使用した成形法、発泡成形（超臨界流体も含む）、インサート成形、IMC（インモールドコテイング成形）成形法、押出成形法、シート成形法、熱成形法、回転成形法、積層成形法、プレス成形法などを採用することが出来る。また、ホットランナー方式を使用した成形法を採用することも出来る。

40

## 【 0 1 3 5 】

また本発明においては、廃棄物低減などの環境負荷低減やコスト低減の観点から、樹脂組成物から樹脂成形品を製造する際に、製品の不適合品、スプルー、ランナー、使用済みの製品などのリサイクル原料をバージン材料と混合してリサイクル化（所謂マテリアルリサイクル化）することが出来る。この際、リサイクル原料は、粉碎して使用することが成形品を製造する際に不具合を少なく出来るので好ましい。リサイクル原料の含有比率は、リサイクル原料とバージン原料の合計量に対し、通常70重量%以下、好ましくは50重量%以下、更に好ましくは30重量%以下である。

50

## 【実施例】

## 【0136】

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、以下の実施例に限定されるものではない。なお、以下の実施例および比較例において、配合量は重量部を意味する。

## 【0137】

実施例および比較例の各樹脂組成物を得るに当たり、次に示す原料を準備した。尚、相対粘度は、23 98重量%濃硫酸中濃度1重量%で測定したときの相対粘度である。

## 【0138】

## &lt;ポリアミド樹脂&gt;

ポリアミド-6(1):三菱エンジニアリングプラスチックス社製「ノバミッド1020J」、相対粘度3.5、末端カルボキシル基含量/末端アミノ基含量比1.0

## 【0139】

ポリアミド-6(2):三菱エンジニアリングプラスチックス社製「ノバミッド1010J」、相対粘度2.5、末端カルボキシル基含量/末端アミノ基含量比2.6

## 【0140】

## &lt;芳香族ポリカーボネート樹脂&gt;

芳香族ポリカーボネート樹脂(1):界面重合法で製造されたビスフェノールA型芳香族ポリカーボネート(三菱エンジニアリングプラスチックス社製「ユーピロンS-3000FN」、粘度平均分子量22500、末端水酸基濃度=150ppm)

## 【0141】

芳香族ポリカーボネート樹脂(2):界面重合法で製造されたビスフェノールA型芳香族ポリカーボネート(三菱エンジニアリングプラスチックス社製「ユーピロンH-4000FN」、粘度平均分子量15500、末端水酸基濃度=150ppm)

## 【0142】

芳香族ポリカーボネート樹脂(3):界面重合法で製造されたビスフェノールA型芳香族ポリカーボネート(三菱エンジニアリングプラスチックス社製「ユーピロンE-2000FN」、粘度平均分子量28000、末端水酸基濃度=150ppm)

## 【0143】

## &lt;熱可塑性ポリエステル樹脂&gt;

ポリブチレンテレフタレート樹脂(1):三菱エンジニアリングプラスチックス社製「ノバデュラン5020」、固有粘度1.20dl/g

## 【0144】

ポリブチレンテレフタレート樹脂(2):三菱エンジニアリングプラスチックス社製「ノバデュラン5008」、固有粘度0.85dl/g

## 【0145】

ポリエチレンテレフタレート樹脂:三菱化学社製「ノバペックスGG500」、固有粘度0.76dl/g

## 【0146】

## &lt;スチレン系樹脂&gt;

ABS樹脂:アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体、日本エイアンドエル社製「サンタックAT-08」、ブタジエンゴム含有量18重量%

## 【0147】

## &lt;顆粒状無機フィラー&gt;

顆粒状タルク(1):製造例1

平均粒子径1.8μmのタルク(松村産業社製、ハイフィラー#5000PJ)4000gを20リットルヘンシェルミキサーに入れ、攪拌羽根を1500rpmの高速回転で攪拌しながら、テレフタル酸、エチレングリコール、5-ナトリウムスルホイソフタル酸からなる水溶性ポリエステル樹脂を20重量%含有する水溶性ポリエステル水溶液(互応化学工業社製「プラスコートZ-221」)を100g、上水を1520g2分間で添加し

10

20

30

40

50

た。更に、水溶液添加後3分間攪拌し、粘土状の混練物を得た。

【0148】

次に、混練物を目開き1.2mmのスクリーンを装着したロールバスケット型造粒機で押出し造粒化し、熱風温度100の流動層乾燥機で約60分乾燥し顆粒状タルクを得た。更に、整粒機で粒子を揃え、平均軸径1.2mm、平均軸長1.5mmの円柱状顆粒物(以下、顆粒状タルク(1)と略す)を得た。得られた顆粒状タルク(1)は、水溶性ポリエステル樹脂含有量/0.5重量%、嵩密度0.70g/ml、粒度/目開き500μm篩上の割合が95重量%、含水率/0.2%であった。

【0149】

顆粒状タルク(2):製造例2

10

製造例1において、水溶性ポリエステル水溶液(Z-221)を200g、上水を1440gとした以外は製造例1と同様にして造粒を行い、顆粒状タルク(2)を得た。得られた顆粒状タルク(2)は、水溶性ポリエステル樹脂含有量が1重量%、嵩密度0.70g/ml、粒度は目開き500μm篩上の割合が98重量%、含水率0.4%であった。

【0150】

顆粒状タルク(3):製造例3

製造例1において、テレフタル酸、エチレングリコール、5-ナトリウムスルホイソフタル酸からなる水溶性ポリエステル樹脂を25重量%含有する水溶性ポリエステル水溶液(互応化学工業社製「プラスコートZ-561」)を80g、上水を1540gとした以外は製造例1と同様にして造粒を行い、顆粒状タルク(3)を得た。得られた顆粒状タルク(3)は、水溶性ポリエステル樹脂含有量が0.5重量%、嵩密度0.68g/ml、粒度は目開き500μm篩上の割合が94重量%、含水率0.3%であった。

20

【0151】

<比較例用顆粒状無機フィラー>

顆粒状タルク(4):松村産業社製「MTB-12」、タルク平均粒子径1.8μm、嵩密度0.74g/ml、粒度は目開き500μm篩上の割合が98重量%、粒子形状は円柱状、平均軸径1.2mm、平均軸長1.5mm、バインダー種はCMC(第一工業製薬社製、セロゲン7A)、バインダー含有量0.3重量%、潤滑剤として水を0.11%含有する。

【0152】

30

顆粒状タルク(5):松村産業社製「MTB-11」、タルク平均粒子径1.8μm、嵩密度0.72g/ml、粒度は目開き500μm篩上の割合が97重量%、粒子形状は円柱状、平均軸径1.2mm、平均軸長1.5mm、バインダー種は、にかわ2種(JISK6503、AGX-5195B新田ゼラチン社製品)、バインダー含有量0.5重量%、潤滑剤として水を0.12%含有する。

【0153】

顆粒状タルク(6):松村産業社製「MTB-5」、タルク平均粒子径1.8μm、嵩密度0.69g/ml、粒度は目開き500μm篩上の割合が92重量%、粒子形状は円柱状、平均軸径1.2mm、平均軸長1.5mm、バインダー種はベントナイト、バインダー含有量0.5重量%、潤滑剤として水を0.15%含有する。

40

【0154】

<比較例用無機フィラー>

粉末状タルク:松村産業社製「ハイフィラー#5000PJ」、平均粒子径1.8μm、嵩密度0.12g/ml、粒度は目開き500μm篩上の割合が0重量%。

【0155】

圧縮タルク:林化成社製「UPN HS-T0.8」、脱気圧縮品、平均粒子径2μm、嵩密度0.8g/ml、粒度は目開き500μm篩上の割合が32重量%。

【0156】

<ゴム性重合体>

ゴム性重合体(1):ポリアクリル酸アルキル(コア)/アクリル酸アルキル・メタクリ

50



ル酸アルキル共重合体（シェル）からなるコア／シェル型グラフト共重合体、ロ・ム・アンド・ハ・ス・ジャパン社製「E X L 2 3 1 5」

【0157】

ゴム性重合体（2）：ポリブタジエン（コア）／アクリル酸アルキル・メタクリル酸アルキル共重合体（シェル）からなるコア／シェル型グラフト共重合体、ロ・ム・アンド・ハ・ス・ジャパン社製「E X L 2 6 0 3」

【0158】

<リン系化合物>

リン系化合物：化学式  $O = P(OH)_n \cdot (OC_{18}H_{37})_{3-n} \cdot (n' \text{ が } 1 \text{ と } 2 \text{ の混合物})$ 、旭電化工業社製「アデカスタブAX-71」

10

【0159】

<その他成分>

酸化防止剤：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]（チバスペシャリティーケミカルズ社製「イルガノックス1010」）

離型剤：ペンタエリスリトールテトラステアレート（日本油脂社製「ユニスターH476」）

【0160】

<樹脂組成物の調製および試験片の作製>

実施例1～3および比較例1～5

20

表1に示す各成分を同表に示す割合にてタンブラー・ミキサで均一に混合した後、二軸押出機（日本製鋼所製「TEX30XCT」、 $L/D = 42$ 、バレル数12）を使用し、シリンダ温度250、スクリュ回転数300rpmにてバレル1より押出機に供給して熔融混練することにより、樹脂組成物のペレットを作製した。

【0161】

上記で得られた樹脂組成物のペレットを120で6時間以上乾燥した後、名機製作所製M150AII-SJ型射出成形機を使用し、シリンダ温度250、金型温度80、成形サイクル55秒の条件で、ASTM試験片及び100mmの円盤状成形品（厚さ3mm）を作成した。

【0162】

30

実施例4～10および比較例6～10

表2および表3に示す各成分を同表に示す割合にてタンブラー・ミキサで均一に混合した後、二軸押出機（日本製鋼所製「TEX30XCT」、 $L/D = 42$ 、バレル数12）を使用し、シリンダ温度260、スクリュ回転数300rpmにてバレル1より押出機に供給して熔融混練することにより、樹脂組成物のペレットを作製した。

【0163】

上記で得られた樹脂組成物のペレットを110で6時間以上乾燥した後、名機製作所製M150AII-SJ型射出成形機を使用し、シリンダ温度260、金型温度80、成形サイクル55秒の条件で、ASTM試験片及び100mmの円盤状成形品（厚さ3mm）を作成した。また、滞留成形を1サイクル4分で行い、5ショット目以降の円板状成形品について評価を行った。

40

【0164】

実施例11～18および比較例11～15

表4および表5に示す各成分を同表に示す割合にてタンブラー・ミキサで均一に混合した後、二軸押出機（日本製鋼所製「TEX30XCT」、 $L/D = 42$ 、バレル数12）を使用し、シリンダ温度260、スクリュ回転数300rpmにてバレル1より押出機に供給して熔融混練することにより、樹脂組成物のペレットを作製した。

【0165】

上記で得られた樹脂組成物のペレットを110で6時間以上乾燥した後、名機製作所製M150AII-SJ型射出成形機を使用し、シリンダ温度280、金型温度80

50

、成形サイクル55秒の条件で、ASTM試験片及び100mmの円盤状成形品（厚さ3mm）を作成した。また、滞留成形を1サイクル5分で行い、5ショット目以降の円板状成形品について評価を行った。

【0166】

<評価方法>

(1) 押出加工性

前記樹脂組成物の調整に際し、ホッパーでの詰まり、押出機への食い込み不良等の問題がなく、吐出量40k/h以上で容易にストランド化・ペレット化できるものを、吐出量40k/hではホッパーでの詰まり、押出機への食い込み不良等の問題が生じ、吐出量を落として何とかストランド化・ペレット化できるものを×として評価した。

10

【0167】

(2) 剛性（曲げ弾性率）

ASTM D790に準拠して、厚さ6.4mmの試験片を用いて、23において曲げ弾性率（単位：MPa）を測定した。

【0168】

(3) 耐衝撃性

a. Izod衝撃強度

ASTM D256に準拠して、厚み3.2mmのノッチ付き試験片を用いて、23においてIzod衝撃強度（単位：J/m）を測定した。

【0169】

20

b. 面衝撃強度

上記で作製した円盤状成形品（通常成形品）について、ハイレート衝撃試験機（島津製作所製）を用いて、ポンチ径1/2インチ、サポート径3インチ、打ち抜き速度1m/sにて打ち抜き衝撃試験を行った。面衝撃強度（破壊エネルギー、単位：J）が大きい程、耐衝撃性に優れている。

【0170】

(4) 色相

上記で作製した円盤状成形品（通常成形品）について、分光式色彩計（日本電色工業社製、SE2000型）を用い反射法（抑え板；白色板）によりYI値を測定した。YI値が、小さいほど色相に優れている。

30

【0171】

(5) 滞留熱安定性

a. 表面外観

上記で作製した円盤状成形品（滞留成形品）の表面外観を目視にて観察し、シルバーストリックによる肌荒れのほとんどないものを、シルバーストリックによる肌荒れのあるものを×として評価した。

【0172】

b. 面衝撃強度

上記で作製した円盤状成形品（滞留成形品）について、ハイレート衝撃試験機（島津製作所製）を用いて、ポンチ径1/2インチ、サポート径3インチ、打ち抜き速度1m/sにて打ち抜き衝撃試験を行った。面衝撃強度（破壊エネルギー、単位：J）が大きい程、耐衝撃性に優れている。

40

【0173】

<実施例1～18および比較例1～15>

表1～表5に記載の各々の樹脂組成物を製造し、上述の方法により評価した。結果を表1～表5に示す。

【0174】

【表 1】

表 1			実 施 例			比 較 例				
			1	2	3	1	2	3	4	5
組成 (重量部)	ポリアミドー6樹脂(1)		50	50	50	50	50	50	50	50
	ポリアミドー6樹脂(2)		50	50	50	50	50	50	50	50
	顆粒状タルク(1)		25							
	顆粒状タルク(2)			25						
	顆粒状タルク(3)				25					
	顆粒状タルク(4)					25				
	顆粒状タルク(5)						25			
	顆粒状タルク(6)							25		
	粉末状タルク								25	
	圧縮タルク									25
評価結果	押出加工性		○	○	○	○	○	○	×	×
	剛性	曲げ弾性率(MPa)	5340	5330	5310	5320	5290	5330	5200	5230
	耐衝撃性	Izod衝撃強度(J/m)	48	47	48	39	39	40	35	33
		面衝撃強度(J)	15	16	15	8	7	9	5	4
	色相	YI値	4.5	4.2	4.4	19.3	27.3	10.3	6.5	6.4

10

【 0 1 7 5 】

【表 2】

表2			実 施 例			比 較 例				
			4	5	6	6	7	8	9	10
組成 (重量部)	芳香族ポリカーボネート樹脂(1)		35	35	35	35	35	35	35	35
	芳香族ポリカーボネート樹脂(2)		35	35	35	35	35	35	35	35
	ABS樹脂		30	30	30	30	30	30	30	30
	顆粒状タルク(1)		25							
	顆粒状タルク(2)			25						
	顆粒状タルク(3)				25					
	顆粒状タルク(4)					25				
	顆粒状タルク(5)						25			
	顆粒状タルク(6)							25		
	粉末状タルク								25	
	圧縮タルク									25
	リン系化合物		0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25
	酸化防止剤		0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
	離型剤		0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4
評価結果	押出加工性		○	○	○	○	○	○	×	×
	剛性	曲げ弾性率(MPa)	4530	4520	4510	4550	4500	4540	4420	4450
	耐衝撃性	Izod衝撃強度(J/m)	62	64	63	54	56	53	47	48
		面衝撃強度(J)	51	54	52	45	44	40	34	33
	色相	YI値	11.7	10.3	11.4	27.5	36.5	20.3	18.5	18.6
	滞留熱安定性	表面外観: 目視	○	○	○	×	×	×	×	×
		面衝撃強度(J)	42	47	43	1	1	1	1	1

20

30

【 0 1 7 6 】

40

【表 3】

表3			実 施 例			
			7	8	9	10
組成 (重量部)	芳香族ポリカーボネート樹脂(1)		75	65	35	10
	芳香族ポリカーボネート樹脂(2)				35	
	芳香族ポリカーボネート樹脂(3)					65
	ABS樹脂		25	35	30	25
	顆粒状タルク(2)		11	25	11	30
	リン系化合物		0.1	0.25	0.1	0.3
	酸化防止剤		0.1	0.1	0.1	0.1
	離型剤		0.4	0.4	0.4	0.4
評価結果	押出加工性		○	○	○	○
	剛性	曲げ弾性率(MPa)	3270	4430	3200	4880
	耐衝撃性	Izod衝撃強度(J/m)	610	140	210	185
		面衝撃強度(J)	71	66	68	65
	色相	YI値	7.2	12.5	7.5	13.5
	滞留熱安定性	表面外観:目視	○	○	○	○
		面衝撃強度(J)	64	51	59	53

10

【 0 1 7 7 】

【表 4】

表4			実 施 例			比 較 例				
			11	12	13	11	12	13	14	15
組成 (重量部)	芳香族ポリカーボネート樹脂(1)		28	28	28	28	28	28	28	28
	芳香族ポリカーボネート樹脂(2)		42	42	42	42	42	42	42	42
	ポリブチレンテレフタレート樹脂(1)		30	30	30	30	30	30	30	30
	顆粒状タルク(1)		30							
	顆粒状タルク(2)			30						
	顆粒状タルク(3)				30					
	顆粒状タルク(4)					30				
	顆粒状タルク(5)						30			
	顆粒状タルク(6)							30		
	粉末状タルク								30	
	圧縮タルク									30
	ゴム性重合体(1)		15	15	15	15	15	15	15	15
	リン系化合物		0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
評価結果	押出加工性		○	○	○	○	○	○	×	×
	剛性	曲げ弾性率(MPa)	3860	3850	3840	3860	3810	3830	3640	3630
	耐衝撃性	Izod衝撃強度(J/m)	86	85	85	81	79	77	45	46
		面衝撃強度(J)	56	55	55	51	52	49	31	33
	色相	YI値	5.4	5.1	5.3	16.5	26.5	11.3	8.8	8.7
	滞留熱安定性	表面外観:目視	○	○	○	×	×	×	×	×
		面衝撃強度(J)	41	43	40	23	21	18	3	3

20

30

【 0 1 7 8 】

【表 5】

表5		実 施 例					
		14	15	16	17	18	
組成物 (重量部)	芳香族ポリカーボネート樹脂(1)		15	35	12	28	28
	芳香族ポリカーボネート樹脂(2)			35	18	42	42
	芳香族ポリカーボネート樹脂(3)		55				
	ポリブチレンテレフタレート樹脂(1)		15	20	40		
	ポリブチレンテレフタレート樹脂(2)		15	10	30		
	ポリエチレンテレフタレート樹脂					30	30
	顆粒状タルク(2)		6	13	30	30	13
	ゴム性重合体(1)				15	15	13
	ゴム性重合体(2)		6	13			
	リン系化合物		0.05	0.1	0.3	0.3	0.1
評価結果	押出加工性		○	○	○	○	○
	剛性	曲げ弾性率(MPa)	2650	2830	4100	4030	2930
	耐衝撃性	Izod衝撃強度(J/m)	630	145	45	53	90
		面衝撃強度(J)	70	66	51	44	59
	色相	YI値	4.1	4.6	6.8	3.8	3.1
	滞留熱安定性	表面外観: 目視	○	○	○	○	○
		面衝撃強度(J)	65	51	35	33	53

10

## 【 0 1 7 9 】

表 1 ~ 表 5 に示した実施例および比較例の結果から以下のことがわかる。本発明の実施例 1 ~ 3 に記載の樹脂組成物は、押出加工性、剛性、耐衝撃性、色相に優れている。これに対し、B 成分が本特許規定の範囲外である比較例 1 ~ 5 に記載の樹脂組成物は、耐衝撃性、色相に劣り、比較例 4、5 に記載の樹脂組成物は、押出加工性にも劣る。

20

## 【 0 1 8 0 】

実施例 4 ~ 10 に記載の樹脂組成物は、押出加工性、剛性、耐衝撃性、色相、熱安定性に優れている。これに対し、B 成分が本特許規定の範囲外である比較例 6 ~ 10 に記載の樹脂組成物は、耐衝撃性、色相、熱安定性に劣り、比較例 9、10 に記載の樹脂組成物は、押出加工性、剛性にも劣る。

## 【 0 1 8 1 】

実施例 11 ~ 18 に記載の樹脂組成物は、押出加工性、剛性、耐衝撃性、色相、熱安定性に優れている。これに対し、B 成分が本特許規定の範囲外である比較例 11 ~ 15 に記載の樹脂組成物は、耐衝撃性、色相、熱安定性に劣り、比較例 14、15 に記載の樹脂組成物は押出加工性、剛性にも劣る。

30

## フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I  
C 0 8 K 5/49 (2006.01) C 0 8 K 5/49

- (72)発明者 中野 博  
神奈川県平塚市東八幡5丁目6番2号 三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社内
- (72)発明者 大塚 勝弘  
東京都千代田区内神田3丁目2番12号クリハラビル 松村産業株式会社東京営業所内
- (72)発明者 松村 一豊  
大阪市西淀川区佃7丁目3番8号 松村産業株式会社内

審査官 佐々木 秀次

- (56)参考文献 特開2006-111822(JP,A)  
特開2006-077176(JP,A)  
特開2005-104794(JP,A)  
国際公開第2002/042382(WO,A1)  
特開平10-101914(JP,A)

- (58)調査した分野(Int.Cl.,DB名)  
C 0 8 L 1 / 0 0 - 1 0 1 / 1 6  
C 0 8 K 3 / 0 0 - 1 3 / 0 8