

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

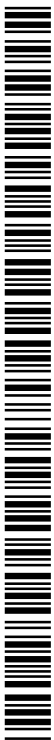
(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2012年12月6日(06.12.2012)



(10) 国際公開番号
WO 2012/165352 A1

- (51) 国際特許分類:
C08L 69/00 (2006.01) C08K 5/3475 (2006.01)
C08K 5/103 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/063537
- (22) 国際出願日: 2012年5月25日(25.05.2012)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2011-122260 2011年5月31日(31.05.2011) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 赤嶺 寛 (AKAMINE, Hiroshi) [JP/JP]; 〒2990193 千葉県市原市姉崎海岸1番地1 Chiba (JP). 長佐 宗廣 (CHOSA, Munehiro) [JP/JP]; 〒2990193 千葉県市原市姉崎海岸1番地1 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 大谷 保, 外(OHTANI, Tamotsu et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目25番2号ブリヂストン虎ノ門ビル6階 特許業務法人大谷特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告(条約第21条(3))
— 補正された請求の範囲(条約第19条(1))



WO 2012/165352 A1

(54) Title: POLYCARBONATE RESIN COMPOSITION AND MOLDED ARTICLE

(54) 発明の名称: ポリカーボネート樹脂組成物及び成形体

(57) Abstract: A resin composition blended with 0.1-0.4 mass parts of a full ester (B) of pentaerythritol and aliphatic carboxylic acid and 0.1-0.4 mass parts of a benzotriazole-based ultraviolet absorber (C), per 100 mass parts of a polycarbonate resin (A), the polycarbonate resin composition having at most 15 ppm each of calcium and sodium contained in the component (B); also, a molded article using the same.

(57) 要約: (A) ポリカーボネート樹脂 100質量部に対して、(B) ペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステル0.1~0.4質量部及び(C) ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤0.1~0.4質量部を配合してなる樹脂組成物であって、該(B)成分中に含まれるカルシウム及びナトリウムが各々15ppm以下であるポリカーボネート樹脂組成物及びそれを用いた成形体である。

明 細 書

発明の名称：ポリカーボネート樹脂組成物及び成形体

技術分野

[0001] 本発明は、ポリカーボネート樹脂組成物及び成形体に関する。さらに詳しくは、優れた耐候性及び透明性に加えて、良好な離型性を有するポリカーボネート樹脂組成物及びそれを用いた成形体に関する。

背景技術

[0002] ポリカーボネート樹脂は、耐衝撃性、耐熱性、透明性に優れており、その特徴を活かして光学ディスク基板、レンズ及び窓ガラス等のガラス代替製品、カーポート屋根、電気・電子機器の各種部品、自動車部品等に幅広く用いられている。しかしながら、ポリカーボネート樹脂は紫外線の影響による耐光性が十分ではなく、例えば屋外での使用または蛍光灯照射での屋内使用においては、製品の変色あるいは強度の低下により使用が制限されていた。このため、従来から種々の紫外線吸収剤が単独であるいは数種組み合わせて用いられており、特に300～350nmの波長領域を中心に紫外線吸収能を持つ、ベンゾトリアゾール骨格を有する分子構造を持つベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤はその効果が比較的大きいので一般的に用いられている（特許文献1又は2参照）。

[0003] 一方、ポリカーボネート樹脂は、成形時の離型性を改善するために離型剤が用いられており、離型剤として脂肪酸エステル、ポリオレフィン系ワックス、フッ素オイル、パラフィンワックス等が知られている。これらの離型剤の中でも脂肪酸エステルを用いる方法が広く知られており、中でもグリセリンモノステアレートが多く使用されている。しかし、成形品の離型性が十分でない場合、単純にグリセリンモノステアレートのみを増量添加した光ディスク基板用ポリカーボネート樹脂組成物では、長期に亘るデータ保存性(耐加水分解性)が損なわれてしまう可能性も有り、光ディスク基板の成形材料を成形するに当たって、ペンタエリスリトール脂肪酸フルエステルをグリセリン

モノステアレート等の脂肪酸モノグリセリドと併用して使用することが知られている（特許文献3参照）。また、ポリカーボネート樹脂に特定のペンタエリスリトール脂肪酸フルエステル及び紫外線吸収剤を併用して用いることにより、透明性、耐候性、離型性、耐熱性等に優れるポリカーボネート樹脂組成物が知られている（特許文献4参照）。そして、ペンタエリスリトール脂肪酸フルエステルをポリカーボネート樹脂に配合するに当たって、該離型剤中の金属元素（スズ、ナトリウム、カルシウム、亜鉛）が特定量以下であるものを用いることにより、耐衝撃性、耐熱性を損なうことなく、優れた離型性および耐加水分解性を有するポリカーボネート樹脂組成物が知られている（特許文献5参照）。

[0004] 本発明者等はポリカーボネート樹脂にペンタエリスリトール脂肪酸フルエステルとベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤を併用した際に、紫外線吸収剤の効果が十分に発揮されないという問題点があることを見出し、本発明をなしたものであるが、前記特許文献3～5には、このような問題点等は示唆されていない。

先行技術文献

特許文献

- [0005] 特許文献1：特開平7-216206号公報
特許文献2：特開2003-301101号公報
特許文献3：特開2007-242126号公報
特許文献4：特開2004-27105号公報
特許文献5：特開2005-42003号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 本発明は、ポリカーボネート樹脂に離型剤としてペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステル及び紫外線吸収剤としてベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤を配合した樹脂組成物について、使用されるベンゾトリ

アゾール系紫外線吸収剤の効果を低減させることがなく、かつ離型性にも優れるポリカーボネート樹脂組成物及びそれを用いた成形体を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明者等は、ポリカーボネート樹脂にペンタエリスリトール脂肪酸フルエステルとベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤を併用した際に、得られるポリカーボネート樹脂組成物について紫外線吸収剤の効果が十分に発揮されないという問題点について、鋭意検討を進めた結果、ペンタエリスリトール脂肪酸フルエステル中に不純物として含まれている特定の金属成分が影響を及ぼしていることをつきとめ、本発明を完成させるに至った。

すなわち、本発明は、下記のポリカーボネート樹脂組成物及び成形体を提供するものである。

- [0008] 1. (A) ポリカーボネート樹脂 100 質量部に対して、(B) ペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステル 0.1~0.4 質量部及び (C) ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤 0.1~0.4 質量部を配合してなる樹脂組成物であって、該 (B) 成分中に含まれるカルシウム及びナトリウムが各々 15 ppm 以下であることを特徴とするポリカーボネート樹脂組成物。
2. (B) 成分がペンタエリスリトールと炭素数 12~22 の脂肪族カルボン酸とのフルエステルである上記 1 記載のポリカーボネート樹脂組成物。
3. (B) 成分がペンタエリスリトールパルミチン酸フルエステル及びペンタエリスリトールステアリン酸フルエステルとの混合物である上記 1 又は 2 記載のポリカーボネート樹脂組成物。
4. (B) 成分のペンタエリスリトールパルミチン酸フルエステル及びペンタエリスリトールステアリン酸フルエステルとの混合比が 9 : 1~1 : 9 である上記 3 に記載のポリカーボネート樹脂組成物。
5. (C) ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤が 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及び/又は 2,2

’-メチレンビス [4-(1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル)-6-(2 N-ベンゾトリアゾール-2-イル)フェノール]である上記1~4のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物。

6. 上記1~5のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物を成形してなる成形品。

発明の効果

[0009] 本発明によれば、ポリカーボネート樹脂に離型剤としてペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステル及び紫外線吸収剤としてベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤を配合した樹脂組成物について、使用されるベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤の効果を低減させることがなく、かつ離型性にも優れるポリカーボネート樹脂組成物及びそれを用いた成形体を得ることができる。

発明を実施するための形態

[0010] 本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、(A)ポリカーボネート樹脂と(B)特定のペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステル及び(C)ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤を配合してなるポリカーボネート樹脂組成物である。以下、各成分及びその他の添加し得る成分について説明する。

[0011] [(A)ポリカーボネート樹脂]

本発明において(A)ポリカーボネート樹脂は、芳香族ポリカーボネート樹脂であっても脂肪族ポリカーボネート樹脂であってもよいが、芳香族ポリカーボネート樹脂を用いることが耐衝撃性、耐熱性がより優れることから好ましい。

(芳香族ポリカーボネート樹脂)

芳香族ポリカーボネート樹脂としては、通常、二価フェノールとカーボネート前駆体との反応により製造される芳香族ポリカーボネート樹脂を用いることができる。芳香族ポリカーボネート樹脂は、他の熱可塑性樹脂に比べて、耐熱性、難燃性及び耐衝撃性が良好であるため樹脂組成物の主成分とする

ことができる。

[0012] 二価フェノールとしては、4, 4'-ジヒドロキシジフェニル；1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタン、及び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〕などのビス(4-ヒドロキシフェニル)アルカン；ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロアルカン；ビス(4-ヒドロキシフェニル)オキシド；ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルフィド；ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホン；ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホキシド；ビス(4-ヒドロキシフェニル)ケトンなどを挙げることができる。なかでも、ビスフェノールAが好ましい。二価フェノールとしては、これらの二価フェノールの一種を用いたホモポリマーでも、二種以上を用いたコポリマーであってもよい。さらに、多官能性芳香族化合物を二価フェノールと併用して得られる熱可塑性ランダム分岐ポリカーボネート樹脂であってもよい。

カーボネート前駆体としては、カルボニルハライド、ハロホーメート、炭酸エステルなどが挙げられ、具体的にはホスゲン、二価フェノールのジハロホーメート、ジフェニルカーボネート、ジメチルカーボネート、及びジエチルカーボネートなどが挙げられる。

[0013] 本発明で用いる芳香族ポリカーボネート樹脂の製造においては、必要に応じて末端停止剤を用いることができる。末端停止剤としては、芳香族ポリカーボネート樹脂の製造における公知の末端停止剤を用いればよく、例えば、その具体的化合物としては、フェノール、p-クレゾール、p-tert-ブチルフェノール、p-tert-オクチルフェノール、p-クミルフェノール、p-ノニルフェノール、及びp-tert-アミルフェノールなどを挙げることができる。これらの一価フェノールはそれぞれ単独で用いてもよいし、二種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0014] 本発明で用いる芳香族ポリカーボネート樹脂は、分岐構造を有していてもよい。分岐構造を導入するためには分岐剤を用いればよく、例えば1, 1,

1-トリス(4-ヒドロキシフェニル)エタン; α , α' , α'' -トリス(4-ヒドロキシフェニル)-1, 3, 5-トリイソプロピルベンゼン; 1-[α -メチル- α -(4'-ヒドロキシフェニル)エチル]-4-[α' , α'' -ビス(4''-ヒドロキシフェニル)エチル]ベンゼン; フロログルシン、トリメリット酸、及びイサチンビス(オクレゾール)などの官能基を三個以上有する化合物などを用いることができる。

本発明で用いる芳香族ポリカーボネート樹脂の粘度平均分子量は、樹脂組成物の物性面から、10,000~40,000であることが好ましく、13,000~30,000であることがより好ましい。

[0015] また、本発明において、芳香族ポリカーボネート樹脂として、芳香族ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体であるか又は芳香族ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体を含むものを用いる場合には、難燃性及び低温における耐衝撃性を向上することができる。該共重合体を構成するポリオルガノシロキサンは、ポリジメチルシロキサンであることが難燃性の点からより好ましい。

[0016] [(B) ペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステル]

本発明において(B)ペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステルは、本発明のポリカーボネート樹脂組成物を成形する際の離型性を向上させるために用いられるものである。このペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステルは、ペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とをエステル化反応させ、フルエステルとすることにより得られるものである。

ここで、フルエステルの構成成分である脂肪族カルボン酸としては、好ましくは、炭素数12~30のものを用いることができる。

[0017] これらの脂肪族カルボン酸は、通常各種の植物性油脂や動物性油脂より製造され、これらの油脂類はその成分として各種の脂肪酸を含んだエステル化合物となっている。そのため、例えば上記植物性油脂や動物性油脂から製造されたステアリン酸は通常パルミチン酸などの他の脂肪酸成分を多量に含ん

でいる。本発明では、このような植物性油脂や動物性油脂より製造される複数の脂肪酸を含む混合脂肪酸を用いたものであってもよいし、精製分離された脂肪酸であってもよい。

そして、炭素数12～30の脂肪族カルボン酸の中でも炭素数12～22の脂肪族カルボン酸が好ましい。また、脂肪族カルボン酸の中でも飽和脂肪酸を用いることが好ましく、特に炭素数12～22の飽和脂肪酸を用いることが更に好ましい。炭素数12～22の飽和脂肪酸の中でもステアリン酸、パルミチン酸、ベヘン酸が好ましい。

[0018] 従って、ペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステルの好ましい具体的な化合物は、ペンタエリスリトールステアリン酸フルエステル、ペンタエリスリトールパルミチン酸フルエステル及びペンタエリスリトールベヘン酸フルエステルである。

また、特にペンタエリスリトールパルミチン酸フルエステルとペンタエリスリトールステアリン酸フルエステルとの混合比が質量比で9：1～1：9、好ましくは、5：5～3：7である混合物を使用することが、欧州REACH規格への適合を考慮する観点等から好ましい。例えば、ペンタエリスリトールステアリン酸フルエステルについては、従来より広く離型剤としても使用されてきた為、REACHでは既存物質として既に予備登録されているのに対し、ペンタエリスリトールパルミチン酸フルエステルは新規物質として新たに予備登録が必要になる。しかし、本登録に要する経費は高価であり、その手続きが更に煩雑となる。その為、ペンタエリスリトールステアリン酸フルエステルの組成比率が高く、ペンタエリスリトールステアリン酸フルエステルとして取り扱える混合物を使用することが好ましい。また、炭素鎖が炭素数18（C18）のペンタエリスリトールステアリン酸フルエステルの方が、炭素数16（C16）のペンタエリスリトールパルミチン酸フルエステルに比べて、樹脂組成物にする場合の離型性能がより優れること等も、ペンタエリスリトールステアリン酸フルエステルの組成比率高いことが好ましい理由として挙げられる。

[0019] 本発明では、上記（B）成分であるペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステル中に含まれるカルシウム及びナトリウムが各々15 ppm以下であることが必要である。カルシウム及びナトリウムが各々15 ppmを超えると、本発明の（C）成分として使用されるベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤の効果が十分に発揮されず、かつ耐衝撃性等の機械的強度も低下する。本発明者らは、種々検討の結果、ポリカーボネート樹脂に、上述の様なペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステル及びベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤を併用して押出機等で熔融混練された際に、分子切断されたポリカーボネート樹脂の末端カルボニル結合部位とベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤とがエステル交換反応を起こすことによるものであることをつきとめた。

この反応メカニズムは定かではないが、ペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステル中に不純物として含まれるカルシウム及びナトリウムが各々ポリカーボネート樹脂の分子切断を促進する一方、紫外線吸収剤を有するベンゾトリアゾール骨格も元来、このような金属イオンを配位し易いものである為、配位によって隣接する紫外線吸収剤の末端OHの求核性が向上したことによるものと推定される。

[0020] その結果、配合されたベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤の内、樹脂組成物内に残存する未反応ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤量が減少し、本来の紫外線吸収剤の効果が十分に発揮されず、かつカーボネート樹脂の分子切断による耐衝撃性等の機械的強度も低下するものと考えられる。このような現象は、（B）成分であるペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステルと（C）成分として使用されるベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤とを併用した際の特有の現象であるものと考えられる。

上記の影響を避けるため、本発明では（B）成分であるペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステル中に含まれるカルシウム及びナトリウムが各々15 ppm以下であることを必要とするが、より好ましくはカルシウムが1 ppm以下、ナトリウムが12 ppm以下、更に好ましくはカ

ルシウムが0.5 ppm以下、ナトリウムが10 ppm以下であることが望ましい。

[0021] 本発明では、(B)成分の離型剤中に含有されるカルシウムやナトリウムのみならず、(A)成分のポリカーボネート及び／または(C)成分の紫外線吸収剤に含まれるカルシウムやナトリウムも問題になる可能性があるが、本発明者らが調べた限りにおいては、(B)成分の離型剤を含まない(A)成分のポリカーボネート、(C)成分の紫外線吸収剤、更に(D)成分として酸化防止剤を配合してなる樹脂組成物では、(B)成分の存在下に比べて、耐衝撃性等の機械的強度も低下するという問題点が顕著には認められなかった。

[0022] 本発明においては、トリアゾール骨格への配位により反応が起こることから、ナトリウム及び／またはカルシウムの含有量に留意しているが、その他にも、スズ、亜鉛等はエステル交換を促進する触媒の代表的なものであること、また、チタン等は、脱水触媒にも使われることも広く知られており、スズ、亜鉛、チタン等の含有量を、本発明で記載されたナトリウム、カルシウムのレベルと同等、或いはそれ以下にしておくことが望ましい。

[0023] 本発明に使用されるカルシウム及びナトリウムが各々15 ppm以下であるペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステルについては、市販されているものはカルシウム及びナトリウムのどちらかは15 ppmを超えている状況にある。本発明では、カルシウム及びナトリウムの片方又は両方共15 ppmを超えている市販のペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステルを、例えば、特開2004-137423号の製造例でも記載されているように、マグネシウム、アルミニウム、珪素等を主成分とする吸着剤で精製し、カルシウム及びナトリウムが各々15 ppm以下として使用することができる。

[0024] [(C)ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤]

本発明においては、紫外線吸収剤として、(C)ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤が使用される。

本発明において、使用される (C) ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤の例としては、2-(5-メチル-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-4-オクチロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-[2-ヒドロキシ-3,5-ビス(α , α -ジメチルベンジル)フェニル]-2H-ベンゾトリアゾール、2-(3,5-ジ-*t*-ブチル-2-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3-*t*-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-(3,5-ジ-*t*-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-(3,5-ジ-*t*-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-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-3-(3,4,5,6-テトラヒドロフタルイミドメチル)-5-メチルフェニル]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-(2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)フェノール]、メチル-3-[3-*t*-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(分子量約300)との縮合物等が上げられる。これらの中でも、特に、2-[2-ヒドロキシ-3,5-ビス(α , α -ジメチルベンジル)フェニル]-2H-ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-5'-*t*-オクチルフェニル)ベンゾトリアゾールあるいは2,2'-メチレンビス[4-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)-6-(2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)フェノール]を用いることが好ましい。紫外線吸収剤は単独でも2種もしくはそれ以上の混合物として用いることが出来る。

[0025] [(A)、(B)、(C)成分の配合割合について]

(A) ポリカーボネート樹脂、(B) ペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステル及び(C) ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤との配合割合は、(A)成分100質量部に対して、(B)成分は0.1~0.4質量部、好ましくは0.13~0.35質量部、(C)成分は0.1~0

． 4 質量部、好ましくは 0.2～0.35 質量部である。(B)成分が 0.1 質量部より少ないと離型性が劣ることとなり、0.4 質量部を超えると組成物の着色や分子量低下などの問題を生じる場合がある。また、(C)成分が 0.1 質量部より少ないと紫外線吸収能が劣ることとなり、耐候性が悪くなる。また、0.4 質量部を超えると、金型を汚染する恐れがあり好ましくない。

[0026] [その他の添加成分について]

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、(A)成分、(B)成分及び(C)成分とともに、フェノール系、リン系、イオウ系酸化防止剤を(A)成分に対して、30～1000質量ppm、好ましくは100～600質量ppm添加することにより、組成物の熱安定性を向上させることができる。

フェノール系酸化防止剤としては、特に制限はないが、ヒンダードフェノール系が好適に用いられる。代表的な例としては、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、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]、N,N'-ヘキサメチレンビス[(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシ)-ヒドロキシナマミド]、2,2-チオージエチレンビス[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]、2,4-ビス(n-オクチルチオ)-6-(4-ヒドロキシ-3,5-ジ-tert-ブチルアニリノ)-1,3,5-トリアジン、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、トリス-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-イソシアヌレート及びビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホン酸エチル)カルシウムなどが挙げら

れる。

[0027] リン系酸化防止剤としては、特に制限はない。代表的な例としては、トリス（ノニルフェニル）ホスファイト、2-エチルヘキシジフェニルホスファイトの他、トリメチルホスファイト、トリエチルホスファイト、トリブチルホスファイト、トリオクチルホスファイト、トリノニルホスファイト、トリデシルホスファイト、トリオクタデシルホスファイト、ジステアリルペンタエリスチルジホスファイト、トリス（2-クロロエチル）ホスファイト、トリス（2,3-ジクロロプロピル）ホスファイト等のトリアルキルホスファイト、トリシクロヘキシルホスファイト等のトリシクロアルキルホスファイト、トリフェニルホスファイト、トリクレジルホスファイト、トリス（エチルフェニル）ホスファイト、トリス（ブチルフェニル）ホスファイト、トリス（ヒドロキシフェニル）ホスファイト、トリス（2,4-ジ-tert-ブチルフェニル）ホスファイト等のトリアリールホスファイト、トリメチルホスフェイト、トリエチルホスフェイト、トリブチルホスフェイト、トリオクチルホスフェイト、トリデシルホスフェイト、トリオクタデシルホスフェイト、ジステアリルペンタエリスリチルジホスフェイト、トリス（2-クロロエチル）ホスフェイト、トリス（2,3-ジクロロプロピル）ホスフェイト等のトリアルキルホスフェイト、トリシクロヘキシー-1-ホスフェイト等のトリシクロアルキルホスフェイト、トリフェニルホスフェイト、トリクレジルホスフェイト、トリス（ノニルフェニル）ホスフェイト、2-エチルフェニルジフェニルホスフェイト等のトリアリールホスフェイトなどが挙げられる。この中では、トリアリールホスファイト及びトリアリールホスフェイトが好適に用いられる。

[0028] 本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、更に必要に応じ、その他の添加剤として、ガラス繊維、ガラス粉、炭素繊維、タルク、マイカ等の無機充填剤、難燃剤、難燃助剤、帯電防止剤、ポリアミドポリエーテルブロック共重合体（永久帯電防止性能付与）、抗菌剤、相溶化剤、着色剤（染料、顔料）などを適宜添加することができる。

[0029] [混練・成形]

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、前記の（A）成分、（B）成分及び（C）成分を前記割合で、さらに必要に応じて用いられる添加剤成分を適当な割合で配合し、混練することにより得られる。このときの配合及び混練は、通常用いられている機器、例えばリボンブレンダー、ドラムタンブラーなどで予備混合して、ヘンシェルミキサー、バンバリーミキサー、単軸スクリー推し機、二軸スクリー推し機、多軸スクリー推し機、及びコーニダなどを用いる方法で行うことができる。

混練の際の加熱温度は、通常240～300℃の範囲で適宜選択される。本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、上記の溶融混練成形機、あるいは、得られたペレットを原料として、射出成形法、射出圧縮成形法、押出成形法、ブロー成形法、プレス成形法、真空成形法、及び発泡成形法などにより各種成形品を製造することができる。特に、上記溶融混練方法により、ペレット状の成形原料を製造し、次いでこのペレットを用いて、射出成形あるいは射出圧縮成形による射出成形品の製造に好適に用いることができる。

[0030] 本発明は、また前述した本発明のポリカーボネート樹脂組成物を成形してなる成形体をも提供する。本発明のポリカーボネート樹脂組成物を成形してなる成形体、好ましくは、射出成形体（射出圧縮を含む）は、光ディスク基板等の光学材料、複写機、ファックス、テレビ、ラジオ、テープレコーダー、ビデオデッキ、パソコン、プリンター、電話機、情報端末機、冷蔵庫、電子レンジなどのOA機器、家庭電化製品、電気・電子機器のハウジングやその構造部材、自動車部材、建築部材等の各種部材などに用いられる。

実施例

[0031] 本発明を実施例によりさらに詳しく説明するが、本発明はこれらにより何ら限定されるものではない。

各例で得られた樹脂組成物の性能試験は、次のとおり行った。

（1）粘度数

ISO 1628に準拠して得られたペレットの粘度数を測定した。また

、使用したポリカーボネート樹脂の粘度数から、その差 ($\Delta V N$) を求めた。

(2) PC-UVA反応率 (%) 及び残存UVA (ppm) の測定

PC-UVA反応率は、使用されたベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤がポリカーボネートと反応した割合を示すものである。その測定方法は、 $^1\text{H-NMR}$ にて (A) 成分であるポリカーボネート樹脂原料のビスフェノールA及びp-tert-ブチルフェノール、(B) 成分のペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステル及び (C) 成分のベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤のシグナル強度からペレット中の夫々の組成を算出した。この組成比率から紫外線吸収剤である全 (C) 分量を算出した。次いで、 $^1\text{H-NMR}$ スペクトルで、紫外線吸収剤特有のシグナルが8.41 ppmに観測される。このシグナルは紫外線吸収剤がポリカーボネートと反応すると8.25 ppmに観測される。両者のシグナル強度比からポリカーボネート-紫外線吸収剤反応率 [PC-UVA反応率 (%)] を算出した。また、この反応比率と全 (C) 分量とから残存紫外線吸収剤量 [残存UVA (ppm)] を算出した。なお、 $^1\text{H-NMR}$ の測定方法は、試料40 mgを径5ミリのNMR試料管に採取し、重クロロホルム0.5ミリリットルに室温下で試料を均一に溶解させ、日本電子株式会社製500MHz NMR (ECA-500) を使用し、パルス幅: 45度、パルス繰り返し時間: 9秒、積算回数: 256回、化学シフト基準: テトラメチルシラン、測定温度: 室温、BF値: 0.1の条件で測定した。

(3) 耐候性

耐候性試験を以下の方法で行った。

ブラックパネル温度63℃、湿度50%、降雨サイクル12/60分 (60分のうち降雨時間が12分)、照射強度 (300~400 nm) 78.5 W/m²に設定したサンシャインウェザーメーター (SUGA SUNSHINE SUPER LONG-LIFE WEATHER) にテストピースを放置して500時間後に取り出したサンプルの目視観察を行なった。

○は、表面外観が良好である状態を示す。

△は、表面に曇りが観察される状態を示す。

×は、著しい表面荒れが観察される状態を示す。

(4) 残存離型剤 (ppm) の測定

$^1\text{H-NMR}$ にて (A) 成分であるポリカーボネート樹脂原料のビスフェノールA及びp-tert-ブチルフェノール、(B) 成分のペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステル及び(C) 成分のベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤のシグナル強度からペレット中の夫々の組成を算出した。この組成比率から離型剤である全(B)成分量を測定した。次いで、 $^1\text{H-NMR}$ スペクトルで離型剤特有のシグナルが4.12 ppmに観測される。このシグナルは離型剤がポリカーボネートと反応すると4.18 ppmに観測される。両者のシグナル強度比からポリカーボネート-離型剤反応率を算出し、全離型剤量〔全(B)成分量〕から残存離型剤量を算出した。

(5) 離型性

離型性試験を以下の方法で行った。

80 mm × 160 mm、深さ40 mm、抜き勾配 0° 、基本肉厚3 mmの箱型形状で、ピン製品中央部に1点のピンポイントゲートを有する射出成形用金型を使用し、射出成形機のシリンダー温度 300°C 、金型温度 40°C の条件で成形を行った際に、成形品を金型から突き出すために必要な離型圧を測定する。離型圧は、標準条件と標準条件に対して製品重量を増減させる条件の少なくとも3条件で測定を行う。評価材料ごとに成形して得られる製品重量と離型圧の関係を比較し、離型性の差を評価・判断した。

○は、標準条件での離型圧が 45 kg/cm^2 未満の状態を示す。

△は、標準条件での離型圧が 45 kg/cm^2 以上且つ 50 kg/cm^2 未満の状態を示す。

×は、標準条件での離型圧が 50 kg/cm^2 以上の状態を示す。

[0032] また、各例で用いた各成分は次のとおりである。

(A) ポリカーボネート樹脂：

FN2200：ビスフェノールAポリカーボネート樹脂、粘度数56.5、粘度平均分子量22000（出光興産株式会社製）

(B) ペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステル

(B-1)：ペンタエリスリトールステアリン酸フルエステルとペンタエリスリトールパルミチン酸フルエステルと混合物（混合比は、C16：C18=1：1.1）で、カルシウム含有量が0.5ppm未満（検出下限未満）、ナトリウム含有量が1ppmであるものを使用した。この（B-1）は、市販品である理研ビタミン製EW440Aをキョーワード600（協和化学株式会社製）で吸着を行い、濾過分離したものである。

(B-2)：ペンタエリスリトールステアリン酸フルエステルとペンタエリスリトールパルミチン酸フルエステルと混合物（混合比は、C16：C18=1：1.1）で、カルシウム含有量が0.5ppm未満（検出下限未満）、ナトリウム含有量が10ppmであるものを使用した。この（B-2）は、市販品である理研ビタミン製EW480Aをキョーワード600（協和化学株式会社製）で吸着を行い、濾過分離したものである。

(B-3)：ペンタエリスリトールステアリン酸フルエステルとペンタエリスリトールパルミチン酸フルエステルと混合物（混合比は、C16：C18=1：1.1）で、カルシウム含有量が0.8ppm、ナトリウム含有量が18ppmであるものを使用した。この（B-3）は、市販品であるコグニスジャパン製のコグニスVPG861をキョーワード600（協和化学株式会社製）で吸着を行い、濾過分離したものである。

(B-4)：ペンタエリスリトールステアリン酸フルエステルとペンタエリスリトールパルミチン酸フルエステルと混合物〔リケスターEW-440A：理研ビタミン株式会社製〕（混合比は、C16：C18=1：1.1）で、カルシウム含有量が2.0ppm、ナトリウム含有量が24ppmであるものを使用した。

なお、カルシウム含有量及びナトリウム含有量の測定は、（B-1）～（B-4）の各試料0.5gを電子工業用NMP25gに溶解した溶液を高周

波誘導結合プラズマ質量分析装置〔セイコー電子工業株式会社製 ICP-MS、SPQ9000〕を用い、検量線を作成、定量測定した。

(C) ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤

(C-1) : 2-(2'-ヒドロキシ-5'-t-オクチルフェニル)ベンゾトリアゾール〔シプロ化成株式会社製、SEESORB 709G〕

(D) 酸化防止剤

(D-1) : リン系酸化防止剤、トリス(2,4-ジ-t-ブチルフェニル)ホスファイト〔チバ・スペシャリティケミカルズ社製、イルガフォス168〕

(D-2) : フェノール系酸化防止剤、〔チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社製、イルガノックス1076〕

[0033] 実施例1～4及び比較例1～6

第1表に示す割合で各成分を配合し、ベント式二軸押出し機(東芝機械株式会社製TEM37SS、押出部の径50mm)に供給し、シリンダー温度280℃でペレット化した。得られたペレットを120℃で4時間乾燥した後、射出成形を行い、試験片を作製した。成形は、射出成形機(機種名:IS-100EN、東芝機械株式会社製)を用い、成形温度280℃、金型温度80℃にて行った。得られたペレット及び試験片について、性能を前記各種評価試験によって評価した。結果を第1表に示す。また、使用した(B-1)～(B-4)中の金属成分を第2表に示す。

[0034]

[表1]

第1表

	実施例				比較例					
	1	2	3	4	1	2	3	4	5	6
(A) ポリカーボネート(質量部)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
(B) ペンタエリスリトールと脂肪酸カルボン酸とのフルエステル(質量部)	(B-1)	0.2	-	0.3	-	-	-	-	-	-
	(B-2)	-	0.2	-	0.3	-	-	-	-	-
	(B-3) 比較品	-	-	-	-	0.2	-	-	-	-
	(B-4) 比較品	-	-	-	-	-	0.2	0.2	0.15	0.1
(C) ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤(質量部)	0.3	0.3	0.2	0.2	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
(D) 酸化防止剤(ppm)	(D-1)	230	230	230	230	230	500	230	230	230
	(D-2)	-	-	-	-	-	-	170	-	-
性能評価	ペレット粘度数(VN)	56.2	56.2	56.2	56.1	54.1	51.5	51.4	52.3	56.2
	ΔVN	-0.3	-0.3	-0.3	-0.4	-2.4	-5.0	-5.1	-4.2	-0.3
	PC-UVA反応率(%)	0	0	0	0	23	81	83	79	3
	残存UVA(ppm)	2850	2460	2610	2520	2300	530	480	610	2460
	耐候性	○	○	○	○	○	×	×	×	△
	残存離型剤(ppm)	2060	2160	2040	2030	1900	1970	1940	1930	1620
離型性	○	○	○	○	○	○	○	○	△	
										×

(B)成分及び(C)成分の配合量は、(A)成分100質量部に対する質量部である。

(D)成分の配合量は、(A)成分100質量部に対する質量ppmである。

[表2]

第2表

	(B-1)	(B-2)	(B-3)	(B-4)
Na	1	10	18	24
Ti	10	<0.5	<0.5	<0.5
Sn	0.7	<0.5	1	<0.5
Ca	<0.5	<0.5	0.8	2.0
Zn	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5

(ppm)

[0036] 第1表より次のことが分かった。実施例1～4では、(A)ポリカーボネート樹脂に、(B)ペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステル及び(C)ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤を配合するに当たり、(B)成分中に含まれるカルシウム及びナトリウムが各々15ppm以下であれば、使用されるベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤の効果を低減させることがなく、かつ離型性にも優れるポリカーボネート樹脂組成物及びそれを用いた成形体を得ることができる。また、比較例1～6では、(B)成分中のカルシウム及びナトリウムが各々15ppmを超えると、残存するベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤が減少し、減少した紫外線吸収剤はポリカーボネート樹脂と反応していることがわかる。

産業上の利用可能性

[0037] 本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、ペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステルとベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤を併用した際に、紫外線吸収剤の効果を低減させることがなく、かつ離型性にも優れる成形体を与える。本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、これらの特性を必要とする産業部材、とりわけ光ディスク基板等の光学材料、電子・電気機器、情報・通信機器、OA機器等のハウジングやその構造部材、自動車部材、建材部材などに好適に使用することができる。

請求の範囲

- [請求項1] (A) ポリカーボネート樹脂100質量部に対して、(B) ペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステル0.1~0.4質量部及び(C) ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤0.1~0.4質量部を配合してなる樹脂組成物であって、該(B)成分中に含まれるカルシウム及びナトリウムが各々15ppm以下であることを特徴とするポリカーボネート樹脂組成物。
- [請求項2] (B)成分がペンタエリスリトールと炭素数12~22の脂肪族カルボン酸とのフルエステルである請求項1に記載のポリカーボネート樹脂組成物。
- [請求項3] (B)成分がペンタエリスリトールパルミチン酸フルエステル及びペンタエリスリトールステアリン酸フルエステルとの混合物である請求項1または2に記載のポリカーボネート樹脂組成物。
- [請求項4] (B)成分のペンタエリスリトールパルミチン酸フルエステル及びペンタエリスリトールステアリン酸フルエステルとの混合比が9:1~1:9である請求項3に記載のポリカーボネート樹脂組成物。
- [請求項5] (C)ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤が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及び/又は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]である請求項1~4のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物。
- [請求項6] 請求項1~5のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物を成形してなる成形品。

補正された請求の範囲
[2012年11月1日(01.11.2012)国際事務局受理]

- [請求項 1] (A) ポリカーボネート樹脂100質量部に対して、(B) ペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステル0.1~0.4質量部及び(C) ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤0.1~0.4質量部を配合してなる樹脂組成物であって、該(B)成分中に含まれるカルシウム及びナトリウムが各々15ppm以下であることを特徴とするポリカーボネート樹脂組成物。
- [請求項 2] (B)成分がペンタエリスリトールと炭素数12~22の脂肪族カルボン酸とのフルエステルである請求項1に記載のポリカーボネート樹脂組成物。
- [請求項 3] (B)成分がペンタエリスリトールパルミチン酸フルエステル及びペンタエリスリトールステアリン酸フルエステルとの混合物である請求項1または2に記載のポリカーボネート樹脂組成物。
- [請求項 4] (B)成分のペンタエリスリトールパルミチン酸フルエステル及びペンタエリスリトールステアリン酸フルエステルとの混合比が9:1~1:9である請求項3に記載のポリカーボネート樹脂組成物。
- [請求項 5] (C)ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤が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及び/又は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]である請求項1~4のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物。
- [請求項 6] (追加) (B)ペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸とのフルエステルが精製されたものである請求項1~5のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物。
- [請求項 7] (追加) 前記精製がマグネシウム、アルミニウム、又は珪素を主成分とする吸着剤による精製である請求項6に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

[請求項 8] (追加) (B) 成分中に含まれるカルシウムが 1 p p m 以下であり、ナトリウムが 1 2 p p m 以下である請求項 1 ~ 7 のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物。

[請求項 9] (追加) (B) 成分中に含まれるカルシウムが 0. 5 p p m 以下であり、ナトリウムが 1 0 p p m 以下である請求項 8 に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

[請求項 10] (補正後) 請求項 1 ~ 9 のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物を成形してなる成形品。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/063537

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L69/00 (2006.01) i, *C08K5/103* (2006.01) i, *C08K5/3475* (2006.01) i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C08L69/00, *C08K5/103*, *C08K5/3475*

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2006-154783 A (Teijin Chemicals Ltd.), 15 June 2006 (15.06.2006), claims 1, 3, 4, 7, 8, 15, 16; paragraphs [0001], [0114] to [0173] & US 2007/0299168 A1 & EP 1808726 A1 & WO 2006/049228 A1 & CN 101057171 A & AT 534933 T	1-6
Y	JP 2004-137471 A (Teijin Chemicals Ltd.), 13 May 2004 (13.05.2004), claims 1, 3 to 6, 10 to 13; paragraphs [0022], [0078], [0151] to [0181] (Family: none)	1-6

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

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

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

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

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

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

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

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

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

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
21 August, 2012 (21.08.12)

Date of mailing of the international search report
04 September, 2012 (04.09.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/063537

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2009/145241 A1 (Teijin Chemicals Ltd.), 03 December 2009 (03.12.2009), claims 1 to 4; page 7, line 28 to page 8, line 4; page 8, line 11 to page 9, line 17; page 16, line 8 to page 24 & US 2011/0128494 A1 & EP 2287655 A1 & CN 102047171 A & KR 10-2011-0015554 A & TW 201002510 A	1-6
A	JP 2005-042003 A (Sumitomo Dow Ltd.), 17 February 2005 (17.02.2005), entire text (Family: none)	1-6

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. C08L69/00(2006.01)i, C08K5/103(2006.01)i, C08K5/3475(2006.01)i

B. 調査を行った分野
 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. C08L69/00, C08K5/103, C08K5/3475

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの
 日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2012年
 日本国実用新案登録公報 1996-2012年
 日本国登録実用新案公報 1994-2012年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2006-154783 A (帝人化成株式会社) 2006.06.15, 請求項 1, 3, 4, 7, 8, 15, 16, 【0001】, 【0114】 - 【0173】 & US 2007/0299168 A1 & EP 1808726 A1 & WO 2006/049228 A1 & CN 101057171 A & AT 534933 T	1-6
Y	JP 2004-137471 A (帝人化成株式会社) 2004.05.13, 請求項 1, 3-6, 10-13, 【0022】, 【0078】, 【0151】 - 【0181】 (ファミリーなし)	1-6

C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー
 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献
 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 21.08.2012	国際調査報告の発送日 04.09.2012
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 福井 美穂 電話番号 03-3581-1101 内線 3457

4 J 4 7 7 1

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	WO 2009/145241 A1 (帝人化成株式会社) 2009. 12. 03, 請求項 1-4, 第 7 頁第 28 行-第 8 頁第 4 行, 第 8 頁第 11 行-第 9 頁第 17 行, 第 16 頁第 8 行-第 24 頁 & US 2011/0128494 A1 & EP 2287655 A1 & CN 102047171 A & KR 10-2011-0015554 A & TW 201002510 A	1-6
A	JP 2005-042003 A (住友ダウ株式会社) 2005. 02. 17, 全文 (ファミリーなし)	1-6