

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2002年5月10日 (10.05.2002)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 02/36681 A1

(51) 国際特許分類: C08L 25/00, 51/04, 71/12,
85/02, 91/06, C08K 5/523, G03G 15/08

Toshiya) [JP/JP]; 〒574-0043 大阪府大東市灰塚1-2-5
Osaka (JP). 宮里亮次 (MIYAZATO, Ryoji) [JP/JP]; 〒
599-0201 大阪府阪南市尾崎町1-46-9 Osaka (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP00/07708

(74) 代理人: 弁理士 鎌田充生 (KUWATA, Mitsuo); 〒
530-0047 大阪府大阪市北区西天満6丁目3番19号 フ
ヨウビル10階 Osaka (JP).

(22) 国際出願日: 2000年11月2日 (02.11.2000)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(81) 指定国 (国内): US.

(26) 国際公開の言語: 日本語

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE,
DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): ダイセル
化学工業株式会社 (DAICEL CHEMICAL INDUS-
TRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒590-8501 大阪府堺市鉄砲町1
番地 Osaka (JP).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 清 俊也 (SEI,

2文字コード及び他の略語については、定期発行される
各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語
のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: STYRENE RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称: スチレン系樹脂組成物

(57) Abstract: A flame-retardant styrene resin composition which comprises 100 parts by weight of a resin composition comprising (A) a styrene resin comprising a rubber-modified styrene resin and (B) a polyphenylene ether resin in an (A)/(B) ratio of 70/30 to 95/5 (by weight), 0.01 to 5 parts by weight of (C) a polyethylene wax, and 5 to 20 parts by weight of (D) an oligomer of an aromatic phosphoric ester. It is used as, e.g., a molding material for toner cartridges.

(57) 要約:

(A) 少なくともゴム変性スチレン系樹脂を含むスチレン系樹脂
と (B) ポリフェニレンエーテル系樹脂とを、(A) / (B) = 7
0 / 30 ~ 95 / 5 (重量比) の割合で含む樹脂組成物 100 重量
部に対して、(C) ポリエチレンワックス 0.01 ~ 5 重量部及び
(D) オリゴマー型芳香族リン酸エステル 5 ~ 20 重量部を含む難
燃性スチレン系樹脂組成物を調製する。前記難燃性スチレン系樹脂
組成物は、トナーカートリッジ容器の成形材料などとして用いる。



WO 02/36681 A1

明 細 書

スチレン系樹脂組成物

5

技術分野

本発明は、スチレン系樹脂とポリフェニレンエーテル系樹脂とを主たる樹脂成分とし、離型性及び成形性に優れた樹脂組成物に関する。

10

背景技術

スチレン系樹脂は、成形性、寸法安定性に優れることに加え、耐衝撃性、剛性、電気絶縁性に優れていることから、家電部品、OA機器部品を始めとする多岐の分野で使用されている。しかし、機械的性質や耐薬品性、耐熱性等については充分でなく、これらの点を改良するために、スチレン系樹脂とポリフェニレンエーテル系樹脂とを組み合わせることが行われている。また、これら混合樹脂にさらに難燃性を付与するために、種々の難燃剤が添加されている。

例えば、特開昭55-118957号公報には、ポリフェニレンエーテル系樹脂とスチレン系樹脂との混合物にハロゲン含有芳香族リン化合物を配合した耐炎性組成物が開示されている。この組成物は金型に対する離型性及び成形性が充分でないため、成形効率を低下させる。

また、特開平4-149263号公報には、特定のゴム変性芳香族樹脂とポリフェニレンエーテル系樹脂との混合物に赤リン及び必要によりミネラルオイルを配合した難燃性樹脂組成物が開示され、特開平9-328572号公報には、特定の分子量のポリフェニレンエーテル系樹脂と熱可塑性樹脂との混合物に有機リン化合物及び必要により高級脂肪酸アミド化合物を配合した難燃性樹脂組成物が開示されている。しかし、これらの組成物においても離型性及び成

形性と難燃性は充分ではないうえに、金型汚れが激しい。

このように、スチレン系樹脂とポリフェニレンエーテル系樹脂との両者を混合した樹脂系において、優れた離型性及び成形性を示す組成物を得ることは困難であり、さらに、高度な難燃性をも同時に満たす組成物を得ることも困難である。

従って、本発明の目的は、スチレン系樹脂とポリフェニレンエーテル系樹脂とを主成分としながらも、離型性及び成形性に優れた樹脂組成物及びそれを成形してなるトナーカートリッジ容器を提供することにある。

10 本発明の他の目的は、スチレン系樹脂とポリフェニレンエーテル系樹脂とを主成分とし、難燃性に優れた樹脂組成物及びそれを成形してなるトナーカートリッジ容器を提供することにある。

本発明のさらに他の目的は、スチレン系樹脂とポリフェニレンエーテル系樹脂とを主成分とし、放電による発火を軽減することができる樹脂組成物及びそれを成形してなるトナーカートリッジ容器を提供することにある。

発明の開示

本発明者らは、前記目的を達成するため鋭意検討した結果、スチレン系樹脂とポリフェニレンエーテル系樹脂とを主成分とする樹脂組成物に特定のワックスを配合すると、離型性及び成形性に優れた前記樹脂組成物が得られることを見出し、本発明を完成した。

すなわち、本発明のスチレン系樹脂組成物は、(A) スチレン系樹脂、(B) ポリフェニレンエーテル系樹脂、及び(C) ポリオレフィン系ワックスを含む。また、本発明の難燃性スチレン系樹脂組成物は、前記(A)、(B)、(C)成分と、(D) 難燃剤とを組み合わせることにより構成できる。(A) スチレン系樹脂は、少なくともゴム変性スチレン系樹脂を含んでいてもよい。(C) ポリオレフィン系ワックスは、成形性及び離型性の改善に大きく関与し、

- 140℃での熔融粘度が200～600cps程度、密度0.86～0.98g/ml程度、融点100～160℃程度であり、ポリエチレンワックス、特に140℃での熔融粘度が300～550cps程度、密度0.86～0.96g/ml程度、融点100～130℃程度のポリエチレンワックスが好ましい。(D)難燃剤には、リン系難燃剤、特にオリゴマー型芳香族リン酸エステルなどが含まれる。(A)成分と(B)成分との割合(重量比)は、(A)/(B)=70/30～95/5、好ましくは(A)/(B)=75/25～95/5、さらに好ましくは80/20～95/5程度である。(C)成分の割合は、(A)成分と(B)成分との合計100重量部に対して、0.01～5重量部、好ましくは0.1～2重量部、さらに好ましくは0.1～1重量部程度である。(D)成分の割合は、(A)成分と(B)成分との合計100重量部に対して、1～50重量部、好ましくは3～30重量部程度である。
- 15 本発明には、前記スチレン系樹脂組成物で形成された成形体も含まれる。また、本発明には、前記スチレン系樹脂組成物を成形してなるトナーカートリッジ容器も含まれる。

発明を実施するための最良の形態

- 20 本発明では、スチレン系樹脂と、ポリフェニレンエーテル系樹脂と、ポリオレフィン系ワックスとで樹脂組成物を構成することにより、離型性及び成形性を向上できる。さらに、難燃剤を配合することにより、難燃性にも優れた樹脂組成物となる。

[(A)スチレン系樹脂]

- 25 スチレン系樹脂には、ポリスチレン系樹脂及びゴム変性スチレン系樹脂が含まれる。スチレン系樹脂は、単独で又は二種以上組み合わせて使用でき、少なくともゴム変性スチレン系樹脂で構成することが好ましい。

ポリスチレン系樹脂を形成するための芳香族ビニル単量体として

は、例えば、スチレン、アルキル置換スチレン（例えば、*o*-メチル
スチレン、*m*-メチルスチレン、*p*-メチルスチレン等のビニル
トルエン、2,4-ジメチルスチレンなどのビニルキシレン、*p*-
エチルスチレン、*p*-イソプロピルスチレン、ブチルスチレン、*p*-
5 *t*-ブチルスチレン等のモノ乃至ジC₁₋₄アルキルスチレン等）、
ハロゲン置換スチレン（例えば、*o*-クロロスチレン、*p*-クロロ
スチレン、*o*-ブロモスチレン等）、 α 位にアルキル基が置換した
 α -アルキル置換スチレン（例えば、 α -メチルスチレン、 α -エ
チルスチレン等の α -C₁₋₄アルキルスチレンなど）等が例示でき
10 る。これらの芳香族ビニル単量体は、単独で又は二種以上組み合わ
せて使用できる。これらの単量体のうち、通常、スチレン、ビニル
トルエン、 α -メチルスチレン等、特にスチレンが使用される。

ポリスチレン系樹脂は前記芳香族ビニル単量体と共重合可能な単
量体との共重合体であってもよい。共重合可能な単量体としては、
15 例えば、シアン化ビニル系単量体（例えば、アクリロニトリル、メ
タクリロニトリル等）、不飽和多価カルボン酸又はその酸無水物
（例えば、マレイン酸、イタコン酸、シトラコン酸、無水マレイン
酸、無水イタコン酸、無水シトラコン酸等）、イミド系単量体〔例
20 えば、*N*-アルキルマレイミド（例えば、*N*-メチルマレイミド、
N-エチルマレイミド等の*N*-C₁₋₄アルキルマレイミドなど）、
N-シクロアルキルマレイミド（例えば、*N*-シクロヘキシルマレ
イミドなどの*N*-シクロC₃₋₈アルキルマレイミドなど）、*N*-ア
リールマレイミド（例えば、*N*-フェニルマレイミド、*N*-（2-
メチルフェニル）マレイミドなどの*N*-C₁₋₄アルキルフェニルマ
25 レイミド等）〕、及びアクリル系単量体〔例えば、（メタ）アクリ
ル酸、（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸エチル、
（メタ）アクリル酸プロピル、（メタ）アクリル酸ブチル、（メ
タ）アクリル酸アミル、（メタ）アクリル酸ヘキシル、（メタ）ア
クリル酸オクチル、（メタ）アクリル酸2-エチルヘキシル、（メ

タ) アクリル酸ドデシル、(メタ) アクリル酸オクタデシル等の
(メタ) アクリル酸 C_{1-20} アルキルエステル、(メタ) アクリル酸
シクロヘキシルなどの(メタ) アクリル酸シクロ C_{3-8} アルキルエ
ステル、(メタ) アクリル酸フェニルなどの(メタ) アクリル酸ア
5 リールエステル、(メタ) アクリル酸ベンジルなどの(メタ) アク
リル酸アラルキルエステル、(メタ) アクリル酸グリシジル、(メ
タ) アクリル酸 2-ヒドロキシエチル、(メタ) 2-ヒドロキシプ
ロピル等の(メタ) アクリル酸ヒドロキシ C_{2-4} アルキルエステル
等] 等が例示できる。これらの共重合可能な単量体は、単独で又は
10 二種以上組み合わせて使用できる。全単量体中の共重合可能な単量
体の使用量は、1~50重量%、好ましくは5~40重量%、さら
に好ましくは8~30重量%程度の範囲から選択できる。

これらのポリスチレン系樹脂のうち、ポリスチレン(GPPS) ; ポリ(α -メチルスチレン) ; スチレン-アクリロニトリル
15 共重合体(AS樹脂) ; スチレン-無水マレイン酸共重合体(SMA樹脂) ; スチレン-メタクリル酸メチル共重合体(MS樹脂) 等、
特にGPPSが好ましい。

ゴム変性ポリスチレン系樹脂は、前記ポリスチレン系樹脂で構成
されたマトリックス中にゴム状重合体が粒子状に分散した重合体で
20 あり、ブレンドや、共重合(グラフト重合、ブロック重合等) 等によ
りポリスチレン系樹脂中にゴム状重合体を含有させることができ
る。好ましいゴム変性ポリスチレン系樹脂は、通常、ゴム状重合体
の存在下、少なくとも芳香族ビニル単量体を含む単量体又は単量体
混合物を、慣用の方法(塊状重合、塊状懸濁重合、溶液重合、乳化
25 重合等) で重合することにより得られるグラフト共重合体である。

ゴム状重合体としては、例えば、ジエン系ゴム[ポリブタジエン
(低シス型又は高シス型ポリブタジエン)、スチレン-ブタジエン
共重合体、ブタジエン-アクリロニトリル共重合体、スチレン-イ
ソプチレン-ブタジエン系共重合ゴム、ブタジエン-(メタ) アク

リル酸エステル共重合体等のブタジエン系重合体、ポリイソプレン、スチレン-イソプレン共重合体、イソブチレン-イソプレン共重合体等のイソプレン系重合体等]、エチレン-酢酸ビニル共重合体、アクリルゴム（ポリブチルアクリレートなど）、エチレン- α -オレフィン系共重合体 [エチレン-プロピレンゴム（EPR）など]、エチレン- α -オレフィン-ポリエン共重合体 [エチレン-プロピレン-ジエンゴム（EPDM）など]、ウレタンゴム、シリコンゴム、ブチルゴム、水添ジエン系ゴム（水素化スチレン-ブタジエン共重合体、水素化ブタジエン系重合体等）、エチレン系アイオノマー等が挙げられる。なお、上記共重合体はランダム又はブロック共重合体であってもよく、ブロック共重合体には、ABA型、AB型、テーパー型、ラジアルテレブロック型の構造を有する共重合体等が含まれる。また、上記水素化ブタジエン系重合体には、上記ブロック共重合体の水素化物のほかに、スチレンブロックとスチレン-ブタジエンランダム共重合体とのブロック体の水素化物、ポリブタジエン中の1,2-ビニル結合量が20重量%以下のブロックと、1,2-ビニル結合量が20重量%を超えるポリブタジエンブロックからなる重合体の水素化物等が含まれる。これらのゴム状重合体は、単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。

20 好ましいゴム状重合体は、共役1,3-ジエン又はその誘導体の重合体、特にジエン系ゴム [ポリブタジエン（ブタジエンゴム）、イソプレングム、スチレン-ブタジエン共重合体等] である。

ゴム変性ポリスチレン系樹脂において、ゴム状重合体の含有量は、例えば、3~80重量%、好ましくは4~70重量%、特に好ましくは5~55重量%（例えば6~60重量%）程度である。

ポリスチレン系樹脂で構成されたマトリックス中に分散するゴム状重合体の形態は、特に制限されず、コア/シェル構造、オニオン構造、サラミ構造等を含んでいてもよい。分散相を構成するゴム状重合体の粒子径は、樹脂組成物の用途に応じて、例えば、体積平均

粒子径 0.05 ~ 30 μm 、好ましくは 0.1 ~ 10 μm 、さらに好ましくは 0.2 ~ 7 μm (特に 0.5 ~ 5 μm) 程度の範囲から選択できる。また、ゴム変性スチレン系樹脂において、ゴム成分に対するグラフト率は、5 ~ 150%、好ましくは 10 ~ 150% 程度である。

これらのゴム変性スチレン系樹脂のうち、ゴム成分にスチレン系単量体をグラフトさせた耐衝撃性ポリスチレン (HIPS)、スチレン-ブタジエン共重合体、スチレン-アクリロニトリル-ブタジエン共重合体 (ABS 樹脂)、 α -メチルスチレン変性 ABS 樹脂、イミド系単量体を共重合させたイミド変性 ABS 樹脂、メタクリル酸メチルを共重合させたメタクリル酸メチル変性 ABS 樹脂等、特に HIPS が好ましい。

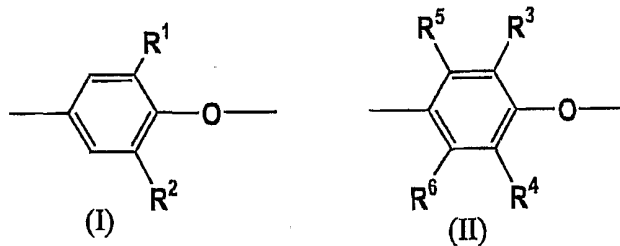
スチレン系樹脂 (グラフト共重合体においてはマトリックスを構成するスチレン系樹脂) の重量平均分子量は、10,000 ~ 1,000,000、好ましくは 50,000 ~ 500,000、さらに好ましくは 100,000 ~ 500,000 程度である。

スチレン系樹脂は、ゴム変性スチレン系樹脂及びポリスチレン系樹脂で構成してもよく、その場合、両者の割合は、前者/後者 = 99/1 ~ 50/50 (重量比)、好ましくは 95/5 ~ 60/40 (重量比)、さらに好ましくは 90/10 ~ 70/30 (重量比) 程度である。ゴム変性スチレン系樹脂と組み合わせて使用されるポリスチレン系樹脂の分子量は、ゴム変性スチレン系樹脂のマトリックスを構成するスチレン系樹脂よりも小さな重量平均分子量、例えば、10,000 ~ 500,000、好ましくは 30,000 ~ 300,000 程度であってよい。

〔(B) ポリフェニレンエーテル系樹脂〕

ポリフェニレンエーテル系樹脂には、下記式 (I) 及び/又は (II) で表される繰り返し単位を有する単独重合体又は共重合体が含まれる。これらのポリフェニレンエーテル系樹脂は単独で又は二

種以上組み合わせて使用できる。



[式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 は、それぞれ独立して、置換基（ヒドロキシル基など）を有してもよい炭素数 1～4 のアルキル基（メチル、エチル、プロピル、ブチル、 t -ブチル基等）、アリール基（フェニル基など）又は水素原子を示す。ただし、 R^5 、 R^6 は同時に水素原子ではない]

ポリフェニレンエーテル系樹脂としては、単独重合体、例えば、ポリ（2，6-ジメチル-1，4-フェニレン）エーテル、ポリ（2-メチル-6-エチル-1，4-フェニレン）エーテル、ポリ（2，6-ジエチル-1，4-フェニレン）エーテル、ポリ（2-メチル-6- n -プロピル-1，4-フェニレン）エーテル、ポリ（2-エチル-6- n -プロピル-1，4-フェニレン）エーテル、ポリ（2，6-ジ- n -プロピル-1，4-フェニレン）エーテル、ポリ（2-メチル-6- n -ブチル-1，4-フェニレン）エーテル、ポリ（2-エチル-6-イソプロピル-1，4-フェニレン）エーテル等のポリ（2，6-ジ C_{1-4} アルキル-1，4-フェニレン）エーテル、ポリ（2-メチル-6-ヒドロキシエチル-1，4-フェニレン）エーテル等のポリ（2，6-ジアルキル-1，4-フェニレン）エーテルが挙げられる。これら樹脂のうちポリ（2，6-ジメチル-1，4-フェニレン）エーテルが特に好ましい。

ポリフェニレンエーテル系共重合体としては、フェニレンエーテル構造を主たる単量単位とする共重合体が使用でき、前記単独重合体を形成する単量体（特に 2，6-ジメチルフェノールなど）と他のフェノール類との共重合体、例えば、2，6-ジアルキルフェノール（特に、2，6-ジメチルフェノール）と、フェノール類（特

に、2, 3, 6-トリメチルフェノール及びo-クレゾール等のモノ乃至テトラC₁₋₄アルキルフェノールから選択された少なくとも一種)との共重合体等が例示できる。

ポリフェニレンエーテル系樹脂の重量平均分子量は、25,000
5 0~60,000、好ましくは30,000~55,000、さらに好ましくは40,000~50,000程度である。

(A)スチレン系樹脂と(B)ポリフェニレンエーテル系樹脂との割合(重量比)は、(A)/(B)=70/30~95/5、好ましくは75/25~95/5、さらに好ましくは80/20~9
10 5/5(特に、85/15~95/5)程度である。

[(C) ポリオレフィン系ワックス]

スチレン系樹脂とポリフェニレンエーテル系樹脂とで構成された樹脂系にポリオレフィン系ワックスを組み合わせると、脂肪酸エステルなどの慣用の離型剤との組み合わせでは見られない改善、すな
15 わち、成型型に対する離型性、及び成型性を大きく改善できる。

ポリオレフィン系ワックスとしては、ポリエチレンワックス、ポリプロピレンワックス、オレフィン共重合体ワックス(例えば、エチレン共重合体ワックス)等が挙げられ、これらの部分酸化物又はこれらの混合物も含まれる。オレフィン共重合体には、例えば、オ
20 レフィン(エチレン、プロピレン、ブテン-1、ヘキセン-1、デセン-1、4-メチルブテン-1、4-メチルペンテン-1等の α -C₂₋₆オレフィン等)の共重合体、これらのオレフィンと共重合可能なモノマー、例えば、不飽和カルボン酸又はその酸無水物[無水マレイン酸、(メタ)アクリル酸等]、(メタ)アクリル酸エステル
25 テル[(メタ)アクリル酸メチル、(メタ)アクリル酸エチル等の(メタ)アクリル酸C₁₋₆アルキルエステルなど]等の重合性モノマーとの共重合体等が挙げられる。また、これらの共重合体には、ランダム共重合体、ブロック共重合体、又はグラフト共重合体が含まれる。オレフィン共重合体ワックスは、通常、エチレンと、他の

オレフィン及び重合性モノマーから選択された少なくとも一種のモノマーとの共重合体である。これらのポリオレフィン系ワックスのうち、ポリエチレンワックスが好ましい。なお、ポリオレフィン系ワックスは、線状又は分岐構造であってよい。

- 5 ポリオレフィン系ワックスの密度は、 $0.86 \sim 0.98 \text{ g/ml}$ 程度であり、融点は、 $100 \sim 160^\circ\text{C}$ 程度である。特に、ポリエチレンワックスの密度は、 $0.86 \sim 0.96 \text{ g/ml}$ 、好ましくは $0.90 \sim 0.95 \text{ g/ml}$ 、さらに好ましくは $0.92 \sim 0.96 \text{ g/ml}$ 程度であり、 140°C での熔融粘度は、 $200 \sim 60$
10 0 cps 、好ましくは $300 \sim 550 \text{ cps}$ 、さらに好ましくは $400 \sim 500 \text{ cps}$ 程度であり、融点は、 $100 \sim 130^\circ\text{C}$ 、好ましくは $105 \sim 125^\circ\text{C}$ 、さらに好ましくは $110 \sim 120^\circ\text{C}$ 程度であり、重量平均分子量は、 $1,000 \sim 12,000$ 程度である。

- ポリオレフィン系ワックスは慣用の方法で製造することができる。
15 例えば、エチレン、又はエチレンと共重合性モノマーとを、開始剤の存在下重合させることにより得られる。

- (C) ポリオレフィン系ワックスの割合は、(A)成分と(B)成分との合計 100 重量部に対して、 $0.01 \sim 5$ 重量部、好ましくは $0.1 \sim 2$ 重量部(例えば、 $0.2 \sim 1.5$ 重量部)、さらに
20 好ましくは $0.1 \sim 1$ 重量部(例えば、 $0.3 \sim 1$ 重量部)程度である。

[(D) 難燃剤]

- 本発明の樹脂組成物は難燃剤を含んでいてもよい。難燃剤には、リン系難燃剤、ハロゲン系難燃剤、無機系難燃剤等が含まれ、これ
25 らの難燃剤は、単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。

リン系難燃剤は、リン原子を有する化合物であれば特に制限されず、有機リン化合物(リン酸エステル、亜リン酸エステル、ホスフィン、ホスフィンオキシド、ピホスフィン、ホスホニウム塩、ホスフィン酸又はその塩等)、無機系リン酸塩等が含まれる。

有機リン化合物のうち、リン酸エステルとしては、例えば、脂肪族リン酸エステル〔トリメチルホスフェート、トリエチルホスフェート、トリブチルホスフェート、トリ（2-エチルヘキシル）ホスフェート、トリブトキシエチルホスフェート、トリオレイルホスフェート等のトリC₁₋₁₈アルキルホスフェート、ジブチルホスフェート、ジ（2-エチルヘキシル）ホスフェート等のジC₂₋₁₀アルキルホスフェート、モノブチルホスフェート、モノイソデシルホスフェート等のモノC₂₋₁₀アルキルホスフェート、2-アクリロイルオキシエチルアシッドホスフェート、2-メタクリロイルオキシエチルアシッドホスフェート、ジシクロペンチルハイポジフォスフェート等〕、芳香族リン酸エステル〔トリフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェート、トリキシレニルホスフェート、トリス（イソプロピルフェニル）ホスフェート、トリス（*o*-フェニルフェニル）ホスフェート、トリス（*p*-フェニルフェニル）ホスフェート、トリナフチルホスフェート、クレジルジフェニルホスフェート、キシレニルジフェニルホスフェート、ジ（イソプロピルフェニル）フェニルホスフェート、*o*-フェニルフェニルジクレジルホスフェート等のトリC₆₋₁₂アリールホスフェート、ジピロカテコールハイポジフォスフェート等〕、脂肪族-芳香族リン酸エステル〔ジフェニル（2-エチルヘキシル）ホスフェートなどのジC₆₋₁₂アリールモノC₂₋₁₀アルキルホスフェート、ジフェニル-2-アクリロイルオキシエチルホスフェート、ジフェニル-2-メタクリロイルオキシエチルホスフェート等のジC₆₋₁₂アリールモノ（メタ）クリロキシC₂₋₁₀アルキルホスフェート、フェニルネオペンチルホスフェート、エチルピロカテコールホスフェート等のモノC₆₋₁₂アリールモノC₂₋₁₀アルキルホスフェート、ペンタエリスリトールジフェニルジホスフェート等〕等のリン酸エステル及びこれらの縮合物が挙げられる。

有機リン化合物のうち亜リン酸エステルには、上記リン酸エステ

ルに対応する化合物、例えば、脂肪族ホスファイト〔トリ C_{1-18} アルキルホスファイト、ジ C_{4-10} アルキルホスファイト、モノ C_{4-10} アルキルホスファイト等〕、芳香族ホスファイト〔トリ C_{6-12} アリールホスファイトなど〕、脂肪族-芳香族ホスファイト〔ジ C_{6-12} アリールモノ C_{2-10} アルキルホスファイトなど〕、脂環式ホスファイト〔水添ビスフェノールAペンタエリスリトールホスファイトポリマーなど〕等の亜リン酸エステル及びこれらの縮合物が含まれる。

有機リン化合物には、ホスフォネート（メチルネオペンチルホスフォネートなどのモノ乃至トリ C_{1-4} アルキルホスフォネート）、ホスフィンオキシド（トリフェニルホスフィンオキシド、トリクレジルホスフィンオキシド等のモノ乃至トリ C_{6-12} アリールホスフィンオキシド）、ホスホン酸エステル（メタンホスホン酸ジフェニルなどの C_{1-4} アルカンホスホン酸ジ C_{6-12} アリールエステル、フェニルホスホン酸ジエチルなどの C_{6-12} アリールホスホン酸ジ C_{1-4} アルキルエステル等）等も含まれる。

これら有機リン化合物は単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。

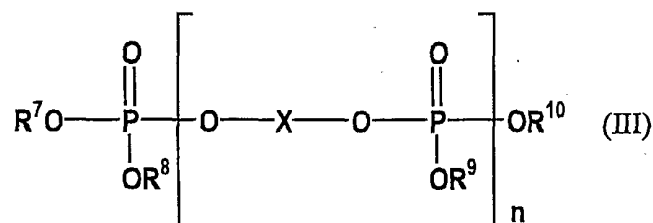
前記リン系難燃剤としての無機系リン酸塩には、例えば、ポリリン酸アンモニウム、赤リン等が含まれる。赤リンは予め表面が処理された赤リンであってもよい。赤リンの表面処理としては、金属水酸化物（水酸化マグネシウム、水酸化亜鉛、水酸化アルミニウム、水酸化チタン等）の被膜による被覆処理、上記金属水酸化物および熱硬化性樹脂の被膜による被覆処理、前記金属水酸化物の被膜と熱硬化性樹脂の被膜とで構成された複数層の被膜による被覆処理等が例示できる。

ハロゲン系難燃剤には、例えば、臭素原子及び／又は塩素原子（特に臭素原子）を含む有機化合物、例えば、ハロゲン化ビスフェノール類（テトラブロモビスフェノールAなど）、ハロゲン化エポキシ樹脂（テトラブロモビスフェノールA型エポキシ樹脂オリゴマ

- 一、ブロム化ビスフェノール型フェノキシ樹脂等)、芳香族ハロゲン化合物(デカブロモジフェニルオキサイドなど)、ハロゲン化ポリカーボネート(ブロム化ビスフェノール系ポリカーボネートなど)、ハロゲン化芳香族ビニル系重合体(ブロム化ポリスチレン、
- 5 ブロム化架橋ポリスチレン等)、ハロゲン化ポリフェニレンエーテル(ブロム化ポリフェニレンオキサイド、ポリジブロモフェニレンオキサイド、デカブロモジフェニルオキサイドビスフェノール縮合物等)、ハロゲン化シアヌレート樹脂、ハロゲン含有リン酸エステル等が挙げられる。
- 10 無機系難燃剤としては、種々の金属化合物、例えば、水酸化カルシウム、水酸化バリウム、水酸化ジルコニウム、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム、ドロマイト、ハイドロタルサイト等の金属水酸化物、三酸化アンチモン、酸化スズ、酸化ジルコニウムなどの金属酸化物、塩基性であってもよい炭酸マグネシウム、炭酸亜鉛、
- 15 炭酸カルシウム、炭酸バリウム等の金属炭酸塩、ホウ酸亜鉛、メタホウ酸亜鉛、メタホウ酸バリウム等の金属ホウ酸塩などが例示できる。これらの無機系難燃剤は単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。

これらの難燃剤のうち、リン系難燃剤が好ましい。リン系難燃剤

20 の中でも、リン酸エステル、特にオリゴマー型芳香族リン酸エステルが好ましい。オリゴマー型芳香族リン酸エステルには、例えば、下記式(III)で表される化合物が含まれる。



- (式中、 R^7 、 R^8 、 R^9 及び R^{10} は互いに独立して、置換されていてもよいアリール基を表す。Xは2価以上の芳香族基を表し、nは
- 25 0以上の整数である)。

- 上記式において、アリアル基としては、例えば、フェニル基、ナフチル基等が挙げられ、フェニル基が好ましい。また、アリアル基の置換基としては、例えば、アルキル基、ヒドロキシル基、アルコキシ基、アルキルチオ基等が挙げられ、C₁₋₄アルキル基（特に、
- 5 メチル基）が好ましい。なお、アルキル基は、複数個（例えば、2個）置換されていてもよい。例えば、アルキル基は、アリアル基の適当な部位（例えば、フェニル基の2-位、3-位、4-位、2,6-位、2,4-位、3,5-位、3,6-位、2,4,6-位等）に置換してもよい。
- 10 また、2価以上の芳香族基とは、芳香族化合物から、炭素原子に結合している水素原子の二個以上を除いてできる2価以上の基を意味する。例えば、置換されていてもよいフェニレン基、多核フェノール類（例えば、ビスフェノール類）から誘導されるものが挙げられ、2以上の遊離原子価の相対的位置は任意である。有機基Xに対応する特に好ましい化合物として、ヒドロキノン、レゾルシノール、
- 15 ビス（4-ヒドロキシフェニル）メタン、2,2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）プロパン〔ビスフェノールA〕、ジヒドロキシジフェニル、p,p'-ジヒドロキシジフェニルスルホン、ジヒドロキシナフタレン、ビス（4-ヒドロキシフェニル）サルファイド、
- 20 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）ケトン、ビス（4-ヒドロキシフェニル）エーテル等が挙げられる。

上記式中のnはリン酸エステルの縮合度を表す。オリゴマー型リン酸エステルは一般的には縮合度の違ったリン酸エステルの混合物

25 であるので縮合度の平均値で表示されている場合が多く、nの平均値は5以下の場合が一般的であり、好ましくは0.5~3、より好ましくは0.7~2程度である。

オリゴマー型芳香族リン酸エステルとしては、例えば、レゾルシ

ノールビス（ジフェニルホスフェート）、レゾルシノールビス（ジクレジルホスフェート）、レゾルシノールビス（ジキシレニルホスフェート）、レゾルシノールビス（ジ-2, 6-ジメチルフェニルホスフェート）等のレゾルシノール骨格を有するエステル、ハイドロキノンビス（ジフェニルホスフェート）、ハイドロキノンビス（ジクレジルホスフェート）、ハイドロキノンビス（ジキシレニルホスフェート）、ハイドロキノンビス（ジ-2, 6-ジメチルフェニルホスフェート）等のハイドロキノン骨格を有するエステル、ビスフェノールAビス（ジフェニルホスフェート）、ビスフェノールAビス（ジクレジルホスフェート）、ビスフェノールAビス（ジキシレニルホスフェート）、ビスフェノールAビス（ジ-2, 6-ジメチルフェニルホスフェート）等のビスフェノールA骨格を有するエステル等のビスホスフェートやポリホスフェートオリゴマー等が挙げられる。

15 (D) 難燃剤の割合は、(A)成分と(B)成分との合計100重量部に対して、1~50重量部、好ましくは3~30重量部、さらに好ましくは5~20重量部程度である。

20 難燃剤（特にオリゴマー型芳香族リン酸エステルなどのリン酸エステル）を用いることにより、放電による発火を軽減することができ、例えば、IEC 112、3版に準拠して測定した耐トラッキング性は、350V以上、好ましくは400V以上、さらに好ましくは450以上を示し、ASTM D495に準拠して測定した耐アーク性は、10秒以上、好ましくは12秒以上を示す。

[その他の添加剤]

25 本発明のスチレン系樹脂組成物は、必要に応じて、他の熱可塑性樹脂（アクリル系樹脂、オレフィン系樹脂、ビニル系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリアセタール系樹脂、熱可塑性ポリウレタン系樹脂、ポリエーテル系樹脂、ポリケトン系樹脂

等)、難燃助剤、ドリッピング防止剤(フッ素系樹脂など)、充填剤(ガラス繊維、炭素繊維、金属フィラー等)、流動性改良剤、安定剤(酸化防止剤、紫外線吸収剤、耐光安定剤、熱安定剤等)、補強剤、帯電防止剤、滑剤、離型剤、耐衝撃改良剤、補強剤、色相改良剤、着色剤、可塑剤、相溶化剤、分散剤、発泡剤、抗菌剤等を含んでいてもよい。これらの添加剤は、単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。

[製造方法]

本発明のスチレン系樹脂組成物は、所定量の各成分を、例えば、ヘンシェルミキサー、タンブラーミキサー、ニーダーなどの慣用の混合機を用いて乾式又は湿式で混合して調製してもよい。樹脂組成物は、通常、前記混合機で予備混合した後、押出し機で混練したり、加熱ロールやバンバリーミキサーなどの混練機で熔融混練して調製する場合が多い。熔融混練は、各成分に応じた適当な条件、例えば、150~250℃程度の温度で行なうことができる。熔融混練した組成物は、一軸又は二軸の押出機などにより押出して、一旦、ペレット状に調製してもよい。

このようにして得られるスチレン系樹脂組成物は、射出成形、押出成形、真空成形、異型成形、発泡成形、インジェクションプレス、プレス成形、ブロー成形、ガス注入成形等によって各種成形品に成形することができる。また、本発明のスチレン系樹脂組成物は、成形型に対する離型性に優れ、成形可能範囲の幅も広いため、成形サイクルを短縮できると同時に、安定かつ効率よく成形できる。

本発明のスチレン系樹脂組成物は、種々の成形体を成形する上で有用である。スチレン系樹脂組成物は、広範囲の用途、例えば、OA・家電機器分野、電気・電子分野、通信機器分野、サニタリー分野、自動車分野、家具・建材等の住宅関連分野、雑貨分野等の各パーツ、ハウジング、シャーシ等に使用することができるが、耐トラ

ッキング性、耐アーク性等が要求される成形体、例えば、これらの用途のうち、OA機器部品、特に電子写真方式を利用した複写機のトナーカートリッジ容器の成形材料として有用である。

5

産業上の利用可能性

本発明のスチレン系樹脂組成物は、スチレン系樹脂と、ポリフェニレンエーテル系樹脂と、ポリオレフィン系ワックスとを組み合わせているため、離型性及び成形性に優れる。また、さらに難燃剤を含むスチレン系樹脂組成物は、高度な難燃性を有する。特に、リン酸エステルを含むスチレン系樹脂組成物は、放電による発火を軽減することができる。

10

実施例

以下に実施例を挙げて本発明をさらに具体的に説明する。しかし、本発明はこれらの実施例により何ら限定されるものではない。なお、以下の例において、部及び％は重量基準である。

15

実施例 1～7 及び比較例 1～4

表 1 及び表 2 に示した配合で 2 軸押出機を使用して 230℃で熔融混練し、ペレット化した。このようにして得たペレットを充分乾燥した後、射出成形にてテストピースを作成し以下の方法により評価した。結果を表 1 及び表 2 に示す。

20

[アイゾット衝撃強度 (IS)]

ASTM D 256 に準拠し、アイゾット衝撃強度を測定した。

[荷重タワミ温度 (HDT)]

ASTM D 648 に準拠し、荷重 18.6 kg/cm² で測定した。

25

[離型性]

テストピース用金型を使用して離型性評価を行った。射出成形に

おける成形条件は、シリンダー温度 210℃、金型温度 60℃、及び射出時間 15 秒は一定とし、射出圧力と冷却時間を変化させて離型性を評価した。

a) 射出圧力

- 5 冷却時間を 20 秒と固定し、射出圧力をショートショットの状態から離型不良の状態になるまで徐々に上げていく。このとき、射出が可能となる最小射出圧力と射出が不可能となる最大射出圧力を測定し、射出可能な圧力範囲を求めた。射出可能な圧力範囲が広いほど、離型性が良い。

10 b) 冷却時間

- ショートショットにならない最低の射出圧力を射出圧力 1 とし、ゲージ圧力が射出圧力 1 の時のゲージ圧力プラス 5 kg/cm² となるような射出圧力（射出圧力 2）に設定し、冷却時間を 20 秒から離型不良の状態になるまで徐々に減少させていく。このとき、離型不良の状態となる冷却時間を最短冷却時間とした。最短冷却時間が短くなるほど、離型性は良い。

[燃焼性]

UL-94 試験法に準拠し、1.3 mm 厚みのテストピースを使用して評価した。

20 [放電燃焼性]

1/8 インチ厚みのテストピースを 23 ± 2℃、50 ± 5 RH、雰囲気下で 48 時間調節し、耐トラッキング性と耐アーク性によって評価した。

a) 耐トラッキング性

- 25 0.1 重量%の塩化アンモニウム溶液の 50 滴を滴下させて、材料の上にトラッキングを発生させる電圧の高さであり、IEC 112、3 版に準拠して測定した。

b) 耐アーク性

高電圧低電流特性による間欠的なアークを発生させ、表面上の導

通路の形成に対する材料の抵抗の秒数であり、ASTM D 495に準拠して測定した。

[実施例、比較例で使用した成分]

(A) スチレン系樹脂

5 ・HIPS：東洋スチレン（株）製、H53C

・GPPS：東洋スチレン（株）製、#10

(B) ポリフェニレンエーテル系樹脂

10 ・ポリ（2，6-ジメチル-1，4-フェニレン）エーテル（PPE）：三菱エンジニアリングプラスチック（株）製、YPX100F、Mw48，000

(C) ポリオレフィン系ワックス

・ポリエチレンワックス：アライドシグナル社製、A-C9A、140℃での熔融粘度450cps、密度0.93g/ml

(D) 難燃剤

15 ・リン系難燃剤1 [1，3-フェニレンビス（ジ-2，6-ジメチルフェニルホスフェート）]：大八化学工業（株）製、PX-200

・リン系難燃剤2 [1，3-フェニレンビス（ジフェニルホスフェート）]：大八化学工業（株）製、CR-733S

20 ・ハロゲン系難燃剤：アルベマール社製、SAYTEX8010
その他の添加剤

・モンタン酸エステル：クリアントジャパン（株）製、ET132

・ステアリン酸エステル1：日本油脂（株）製、H-476

25 ・ステアリン酸エステル2：日本油脂（株）製、H-476D

表 1

	比較 例 1	実施 例 1	実施 例 2	実施 例 3	比較 例 2	比較 例 3	比較 例 4
HIPS	80 部	80 部	80 部	80 部	80 部	80 部	80 部
GPPS	20 部	20 部	20 部	20 部	20 部	20 部	20 部
PPE	12 部	12 部	12 部	12 部	12 部	12 部	12 部
ポリエチレンワックス	—	0.5 部	1 部	0.5 部	—	—	—
モンタン酸エステル	—	—	—	—	0.5 部	—	—
ステアリン酸エステル 1	—	—	—	—	—	0.5 部	—
ステアリン酸エステル 2	—	—	—	—	—	—	0.5 部
リン系難燃剤 1	12 部	12 部	12 部	—	12 部	12 部	12 部
リン系難燃剤 2	—	—	—	11 部	—	—	—
(一般物性)							
IS(kg/cm ²)	6.3	6.5	6.2	6.4	6.2	6.1	6.2
HDT(°C)	77	77	77	77	77	77	76
(離型性)							
最小射出圧力(%)	26	26	26	26	26	26	26
最大射出圧力(%)	30	33	34	33	30	30	30
射出可能範囲(%)	4	7	8	7	4	4	4
最短冷却時間(秒)	20	17	16	17	20	20	20
(燃焼性)							
UL-94	V-2	V-2	V-2	V-2	V-2	V-2	V-2

表 1 の結果より、ポリエチレンワックスの代わりに、脂肪酸エステルを使用した場合は、離型性が向上しないことがわかる。

表 2

	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7
HIPS	80 部	80 部	80 部	80 部
GPPS	20 部	20 部	20 部	20 部
PPE	12 部	25 部	12 部	12 部
ポリエチレンワックス	0.5 部	0.5 部	0.5 部	0.5 部
リン系難燃剤 1	12 部	12 部	—	—
リン系難燃剤 2	—	—	11 部	—
ハロゲン系難燃剤	—	—	—	12 部
(一般物性)				
IS(kg/cm ²)	6.5	7.5	6.4	7.5
HDT(°C)	77	85	77	79
(燃焼性)				
UL-94	V-2	V-2	V-2	V-2
(放電燃焼性)				
耐トラッキング性(V)	475	350	460	325
耐アーク性(秒)	12	10	12	12

5 表 2 の結果より、HIPS に GPPS を少量配合し、かつポリフェニレンエーテルの配合を少量に抑えること、また、さらにオリゴマー型芳香族リン酸エステルを用いることによっても、放電燃焼性

に優れることがわかる。

請求の範囲

1. (A) スチレン系樹脂、(B) ポリフェニレンエーテル系樹脂、及び(C) ポリオレフィン系ワックスを含むスチレン系樹脂組成物。
5
2. さらに(D) 難燃剤を含む請求項1記載のスチレン系樹脂組成物。
3. (A) スチレン系樹脂が、少なくともゴム変性スチレン系樹脂を含む請求項1記載のスチレン系樹脂組成物。
- 10 4. (C) ポリオレフィン系ワックスが、ポリエチレンワックスである請求項1記載のスチレン系樹脂組成物。
5. (D) 難燃剤が、リン系難燃剤である請求項2記載のスチレン系樹脂組成物。
6. (D) 難燃剤が、オリゴマー型芳香族リン酸エステルである請求項2記載のスチレン系樹脂組成物。
15
7. IEC112、3版に準拠して測定した耐トラッキング性が350V以上であり、かつASTM D495に準拠して測定した耐アーク性が10秒以上である請求項1記載のスチレン系樹脂組成物。
- 20 8. (C) ポリオレフィン系ワックスの140℃での熔融粘度が、200～600cpsである請求項1記載のスチレン系樹脂組成物。
9. (C) ポリオレフィン系ワックスの密度が0.86～0.98g/mlである請求項1記載のスチレン系樹脂組成物。
- 25 10. (C) ポリオレフィン系ワックスの融点が100～140℃である請求項1記載のスチレン系樹脂組成物。
11. (A) 成分と(B)成分との割合が、(A)/(B) = 70/30～95/5(重量比)である請求項1記載のスチレン系樹脂組成物。

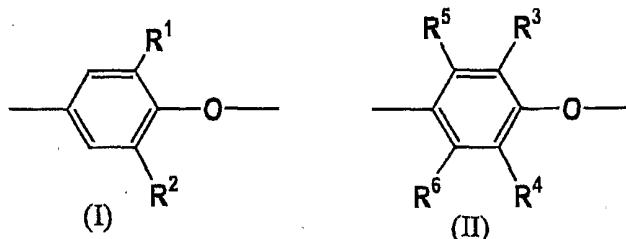
12. (A) 成分と (B) 成分との割合が、 $(A) / (B) = 75 / 25 \sim 95 / 5$ (重量比) である請求項 1 記載のスチレン系樹脂組成物。

13. (A) 成分と (B) 成分との合計 100 重量部に対して、(C) 成分の割合が 0.01 ~ 5 重量部である請求項 1 記載のスチレン系樹脂組成物。

14. (A) 成分と (B) 成分との合計 100 重量部に対して、(C) 成分の割合が 0.1 ~ 2 重量部である請求項 1 記載のスチレン系樹脂組成物。

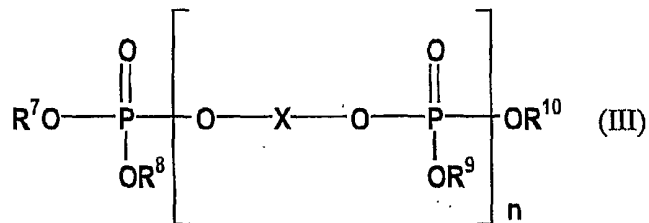
15. (A) 成分と (B) 成分との合計 100 重量部に対して、(D) 成分の割合が 1 ~ 50 重量部である請求項 2 記載のスチレン系樹脂組成物。

16. ゴム変性スチレン系樹脂及びポリスチレン系樹脂で構成され、両者の割合 (重量比) が、前者 / 後者 = $99 / 1 \sim 50 / 50$ であるスチレン系樹脂組成物 (A) と、下記式 (I) 及び / 又は (II) で表される繰り返し単位を有するポリフェニレンエーテル系樹脂 (B) とを、 $(A) / (B) = 80 / 20 \sim 95 / 5$ (重量比) の割合で含む樹脂組成物 100 重量部に対して、(C) 密度が $0.86 \sim 0.96 \text{ g/ml}$ 、 140°C での熔融粘度が $300 \sim 550 \text{ cps}$ 、かつ融点が $100 \sim 130^\circ\text{C}$ のポリエチレンワックス $0.1 \sim 1$ 重量部及び (D) 下記式 (III) で表されるオリゴマー型芳香族リン酸エステル $3 \sim 30$ 重量部を含む難燃性スチレン系樹脂組成物。



[式中、 $R^1, R^2, R^3, R^4, R^5, R^6$ は、それぞれ独立して、置換基 (ヒドロキシル基など) を有してもよい炭素数 1 ~ 4 のアルキ

ル基（メチル、エチル、プロピル、ブチル、t-ブチル基等）、アリール基（フェニル基など）又は水素原子を示す。ただし、 R^5 、 R^6 は同時に水素原子ではない]



（式中、 R^7 、 R^8 、 R^9 及び R^{10} は互いに独立して、置換されていてもよいアリール基を表す。Xは2価以上の芳香族基を表し、nは0以上の整数である）。

17. 請求項1記載のスチレン系樹脂組成物で形成された成形体。

18. 請求項1記載のスチレン系樹脂組成物を成形してなるトナーカートリッジ容器。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/07708

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
 Int.Cl⁷ C08L25/00, C08L51/04, C08L71/12, C08L85/02, C08L91/06, C08K5/523, G03G15/08

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C08L25/00-25/18, C08L51/04, C08L55/02, C08L71/12, C08L85/02, C08L91/06, C08K3/02, C08K3/32, C08K5/49-5/5399, G03G15/08

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

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 10-36604, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 10 February, 1998 (10.02.98), Claims; Par. Nos. [0017], [0026] to [0033], [0048]; Column 29, line 45 (Family: none)	1-7 11-15 17, 18
Y	JP, 10-36604, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 10 February, 1998 (10.02.98), Claims; Par. Nos. [0017], [0026] to [0033], [0048]; Column 29, line 45 (Family: none)	8-10 16
Y	Kenzo FUSEKAWA ed., "Wax no Seishitsu to Ouyou", the 1 st edition, the 1 st printing, 10 September, 1983 (10.09.83) Saiwai Shobou, p.126	8-10 16
A	EP, 979843, A2 (IDEMITSU PETROCHEM CO LTD), 16 February, 1999 (16.02.99), Full text & JP, 2000-63649, A	1-18
A	EP, 624621, A2 (GENERAL ELECTRIC CO), 17 November, 1994 (17.11.94), Full text	1-18

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 document but published on or after the international filing date
 "I" 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
 15 February, 2001 (15.02.01)

Date of mailing of the international search report
 27 February, 2001 (27.02.01)

Name and mailing address of the ISA/
 Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/07708

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
	& US, 5384353, A & DE, 699419812, E	

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
 Int. C1⁷ C08L25/00, C08L51/04, C08L71/12, C08L85/02, C08L91/06, C08K5/523, G03G15/08

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. C1⁷ C08L25/00-25/18, C08L51/04, C08L55/02, C08L71/12, C08L85/02, C08L91/06, C08K3/02, C08K3/32, C08K5/49-5/53.99, G03G15/08

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

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)
 WPI

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 請求の範囲の番号
X	JP, 10-36604, A (旭化成工業株式会社) 10. 2月. 1998 (10. 02. 98), 特許請求の範囲, 【0017】, 【0026】 - 【0033】, 【0048】 段落, 第29欄第45行 (ファミリーなし)	1-7 11-15 17, 18
Y	JP, 10-36604, A (旭化成工業株式会社) 10. 2月. 1998 (10. 02. 98), 特許請求の範囲, 【0017】, 【0026】 - 【0033】, 【0048】 段落, 第29欄第45行 (ファミリーなし)	8-10 16

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
 15. 02. 01

国際調査報告の発送日
 27.02.01

国際調査機関の名称及びあて先
 日本国特許庁 (ISA/JP)
 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)
 三谷 祥子
 4 J 9739
 印
 電話番号 03-3581-1101 内線 6835

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 請求の範囲の番号
Y	府瀬川健蔵監修「ワックスの性質と応用」初版第1刷, 10. 9 月. 1983 (10. 09. 83) 幸書房, p 126	8-10 16
A	EP, 979843, A2 (IDEMITSU PETROCHEM CO LTD) 1 6. 2月. 1999 (16. 02. 99) 全文&JP, 2000- 63649, A	1-18
A	EP, 624621, A2 (GENERAL ELECTRIC CO) 17. 11 月. 1994 (17. 11. 94) 全文&US, 5384353, A&DE, 699419812, E	1-18