

(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
2018年9月7日(07.09.2018)



(10) 国際公開番号

WO 2018/159487 A1

(51) 国際特許分類:

C08L 67/02 (2006.01) *C08K 3/00* (2018.01)
B29C 45/14 (2006.01) *C08J 5/00* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2018/006697

(22) 国際出願日: 2018年2月23日(23.02.2018)

(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 2017-037208 2017年2月28日(28.02.2017) JP

(71) 出願人: 東洋紡株式会社(TOYOBO CO., LTD.)
[JP/JP]; 〒5308230 大阪府大阪市北区堂島浜
二丁目2番8号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 堀 口 悟 (HORIGUCHI Satoru);
〒5200292 滋賀県大津市堅田二丁目1番1
号 東洋紡株式会社内 Shiga (JP). 神谷 元
暢 (KAMIYA Motonobu); 〒5200292 滋賀県大
津市堅田二丁目1番1号 東洋紡株式
社内 Shiga (JP). 藤井 泰人 (FUJII Yasuto);
〒5200292 滋賀県大津市堅田二丁目1番1
号 東洋紡株式会社内 Shiga (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, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,

CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO,
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT,
HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH,
KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY,
MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ,
NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT,
QA, RO, RS, RU, RW, SA, 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, ST, 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, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告(条約第21条(3))

(54) Title: POLYBUTYLENE TEREPHTHALATE RESIN COMPOSITION FOR MOLDED BODY FOR WELDING
POLYESTER ELASTOMER, AND COMPOSITE MOLDED BODY

(54) 発明の名称: ポリエステルエラストマーを溶着する成形体用ポリブチレンテレ
フタレート樹脂組成物および複合成形体

(57) Abstract: A polybutylene terephthalate resin composition for a molded body for welding a polyester elastomer, said
polybutylene terephthalate resin composition being capable of being bonded by insert-molding and having practical bond-
ing strength even in portions where stress is generated, and said polybutylene terephthalate resin composition comprising
40-95% by mass of (A) a polybutylene terephthalate resin, 4-40% by mass of (B) a polyester block copolymer, 0-50% by
mass of (C) a copolymerized polyester resin different from (B), and 0-55% by mass of (D) an inorganic filler, wherein
the polyester block copolymer (B) has, as a constituent component thereof, a hard segment comprising a polyester having
a specific structure.

(57) 要約: インサート成形で接合することができ、さらに応力発生部位においても実用性のある接合強
度をもつ、ポリエステルエラストマーを接着する成形体用ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物であ
って、該ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物は、ポリブチレンテレフタレート樹脂(A) 40~9
5質量%、ポリエステルブロック共重合体(B) 4~40質量%、(B)とは異なる共重合ポリエステ
ル樹脂(C) 0~50質量%及び無機充填剤(D) 0~55質量%を含有するポリブチレンテレフタレ
ート樹脂組成物であって、前記ポリエステルブロック共重合体(B)は、特定の構造を有するポリエ
ステルからなるハードセグメントを構成成分とするポリエステルブロック共重合体であり、ポリエ
ステルエラストマーを溶着する成形体用であるポリブチレンテレフタレート樹脂組成物である。

WO 2018/159487 A1

明 細 書

発明の名称：

ポリエステルエラストマーを溶着する成形体用ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物および複合成形体

技術分野

[0001] 本発明は、ポリエステルエラストマーに対する溶着性が改善された成形体用のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物に関する。

背景技術

[0002] ポリブチレンテレフタレート樹脂は、機械的性質、電気的性質、その他物理的、化学的特性に優れ、かつ加工性が良好であるため、エンジニアリングプラスチックとして自動車、電気・電子部品などの広範な用途に使用されている。

しかし、射出成形品の成形効率は良いが、その流動特性や金型構造の点から形状に制限があり、例えば、中空成形体などの成形が困難であった。このため、従来、製品形状の複雑な部品同士の接合においては、接着剤による接合、ボルトなどによる機械的接合などが行われてきた。しかしながら、接着剤ではその接着強度が、また、ボルトなどによる機械的接合では、費用、締結の手間、重量増が問題となっている。

[0003] 熱板溶着、振動溶着、レーザー溶着、超音波溶着などの接合方法では、短時間で接合が可能であり、また、接着剤や金属部品を使用する必要がないので、それにかかるコストや重量増、環境汚染等の問題を低減することができるため、これらの方法による部品同士の接合が増大している（特許文献1、2、3、4）。

[0004] 特許文献1では、ポリブチレンテレフタレート樹脂にエラストマー及びガラス繊維を添加することで機械的物性の大きな低下なく振動溶着性が向上することを示している。しかし、これらの方法は振動溶着用の特殊機械を使用しなければならないばかりか、振動溶着時に発生するバリにより、バリの後

処理工程が発生する場合がある。特許文献2では、ポリブチレンテレフタレート樹脂にエラストマー及びガラス繊維を添加することで、冷熱サイクル環境での耐久性と耐加水分解性に優れていることを示している。しかしながら、開示されている組成物は、インサート成形する二次用材料であり、耐加水分解性は向上するものの耐溶着性としては十分ではなく、インサート接合性としても十分ではない。特許文献3では、末端カルボキシル基の限定とカルボジイミドを添加することにより、機械物性の大きな低下なしに、耐加水分解性が向上することを見出している。しかしながら、この組成物は熱溶着用材料として優れているが、特許文献1と同様に接合時に熱溶着用の特殊機械を使用しなければならず、振動溶着と同様に熱溶着部にバリが発生し、バリの後処理工程が発生する場合がある。特許文献4では、ポリブチレンテレフタレート樹脂の分子量と振動溶着強度に相関があり、ある特定の範囲に分子量を調整することで、振動溶着強度を高めつつ、成形品を構成する樹脂組成物の流動性が損なわないことを示している。しかしながら、本特許文献も特許文献1と同様に、接合時に振動溶着用の特殊機械を使用しなければならず、溶着部のバリの発生があり、バリの後処理工程が発生する場合がある。

[0005] ところで、インサート成形で接合できれば、特殊な溶着設備が必要でなく、簡便に複合成形体を成形することができる。さらに、振動溶着等の機械的接合においては、成形条件のバラつきが大きいという問題もある。また、特許文献1～4には、ポリブチレンテレフタレート樹脂系成形体に対して、ポリエステルエラストマーをインサート成形によって接合しようとする技術思想は全く無い。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開2006-176691号公報

特許文献2：国際公開第2009/150831号パンフレット

特許文献3：国際公開第2010/122915号パンフレット

特許文献4：国際公開第2013/047708号パンフレット

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 本発明は、上記の問題点を解決しようとするものであり、特殊な溶着設備を必要とせず、インサート成形で接合（溶着）することができ、さらに応力発生部位においても実用性のある接合強度をもつポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を提供するものである。中でも、ポリブチレンテレフタレート樹脂系成形体に対して、ポリエステルエラストマーをインサート成形によって接合（溶着）して、ポリブチレンテレフタレート樹脂とポリエステルエラストマーの両者の優れた特性を併せ持つ複合成形体が市場から要望され、この複合成形体に必要なポリブチレンテレフタレート樹脂系成形体用の樹脂組成物が求められている。本発明者らが検討したところ、ポリブチレンテレフタレート樹脂成形体に対して、ポリエステルエラストマーはもとより他の樹脂をインサート成形によって接合しようとしても実用に足る接合（溶着）が困難であり、接合できたとしても成形体形状が制約され、接合部に応力がかかる部品には使用できないということが分かった。したがって、本発明は、インサート成形で接合することができ、さらに応力発生部位においても実用性のある接合強度をもつ、ポリエステルエラストマーを溶着する成形体用ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を提供することを課題とする。さらには、溶着するポリエステルエラストマーの硬度によっては、接合（溶着）が不十分な場合があることが分かり、高硬度から低硬度のポリエステルエラストマーを溶着することが可能な成形体用ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を提供することも新たな課題となっている。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明者らは、上記課題を解決するためにポリブチレンテレフタレート樹脂組成物の構成と特性を鋭意検討した結果、本発明を完成するに至ったのである。

[0009] すなわち、本発明は以下の構成を有するものである。

[1] ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）40～95質量%、ポリエ

ステルブロック共重合体（B）4～40質量%、（B）とは異なる共重合ポリエステル樹脂（C）0～50質量%及び無機充填剤（D）0～55質量%を含有するポリブチレンテレフタレート樹脂組成物であって、前記ポリエステルブロック共重合体（B）は、ジカルボン酸成分がテレフタル酸またはそのエステル形成性誘導体（a1）と少なくとも1種以上のテレフタル酸以外のジカルボン酸またはそのエステル形成性誘導体（a2）から構成され、（a1）と（a2）のモル比（（a1）／（a2））が1～4であるポリエステルからなるハードセグメント（a3）と、脂肪族ポリエーテル、脂肪族ポリエステル及び脂肪族ポリカーボネートから選ばれる少なくとも1種のソフトセグメント（a4）とを構成成分とするポリエステルブロック共重合体であり、ポリエステルエラストマーを溶着する成形体用であるポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。

〔2〕 前記共重合ポリエステル樹脂（C）が、エチレンテレフタレート単位またはブチレンテレフタレート単位に、アルキル側鎖含有グリコール及びイソフタル酸の少なくとも一方を共重合したポリエステル樹脂である〔1〕に記載のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。

〔3〕 〔1〕または〔2〕に記載のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物からなる成形体とポリエステルエラストマーが溶着された複合成形体。

〔4〕 〔1〕または〔2〕に記載のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物からなる成形体を金型内にインサート材として配し、ポリエステルエラストマーを射出成形により溶着させる複合成形体の製造方法。

発明の効果

〔0010〕 本発明によれば、ポリブチレンテレフタレート樹脂においても、ポリエステルブロック共重合体を添加することにより、インサート成形でポリエステルエラストマーと接合することができる。本発明のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物からなる成形体とポリエステルエラストマーが溶着された複合成形体は、特殊な設備を必要とせず、インサート成形と言う簡便な方法で得ることができるインサート複合成形体である。また、この複合成形体の接

合部は、ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物からなる成形体とポリエステルエラストマーが、接着剤やボルトなどを介することなく、直接、接合（溶着）されており、その接合部は実用性のある十分な接合強度を有している。さらには、本発明のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物は、高硬度から低硬度のポリエステルエラストマーを溶着することが可能な成形体用ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物である。

発明を実施するための形態

[0011] 以下に本発明を具体的に説明する。

[ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）]

ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）は、テレフタル酸またはそのエステル形成性誘導体を主たる成分とするジカルボン酸と、1、4-ブタンジオールまたはそのエステル形成性誘導体を主たる成分とするジオールとを重縮合反応させるなどの一般的な重合方法によって得ることができる重合体である。ポリブチレンテレフタレート樹脂は、ブチレンテレフタレートの繰返し単位が80モル%以上であることが好ましく、90モル%以上であることがより好ましく、95モル%以上であることがさらに好ましく、100モル%であることが特に好ましい。

[0012] ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）は、その特性を損なわない範囲、たとえば20質量%程度以下で、他の重合成分を含むことができる。他の重合成分を含むポリブチレンテレフタレート樹脂の例としては、ポリブチレン（テレフタレート／イソフタレート）、ポリブチレン（テレフタレート／アジペート）、ポリブチレン（テレフタレート／セバケート）、ポリブチレン（テレフタレート／デカンジカルボキシレート）、ポリブチレン（テレフタレート／ナフタレート）、ポリ（ブチレン／エチレン）テレフタレートなどを挙げることができる。これらの成分を単独で用いてもよいし、2種以上混合して用いてもよい。

[0013] ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）の固有粘度（ η_{sp}/c ）は、特に限定されないが、0.5～1.6 dl/gであることが好適であり、0.7～1

、 3 dl/g であることがより好適であり、 $0.8 \sim 1.1 \text{ dl/g}$ であることがさらに好適である。本発明により製造されるポリブチレンテレフタレート樹脂組成物は、ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）の固有粘度（ $\eta_{\text{sp}}/\text{c}$ ）が $0.5 \sim 1.6 \text{ dl/g}$ であることにより、機械的特性および化学的特性が良好となる。

[0014] ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）の末端カルボキシル基量は、接合性には影響がないため特に限定されない。しかし、末端カルボキシル基は、ポリマーの加水分解反応において触媒的な役割を担うため、末端カルボキシル基量の増加に伴って加水分解が加速される。このため、この末端カルボキシル基の濃度は低いことが好ましい。ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）の末端カルボキシル基の濃度（酸価）は、 40 eq/ton 以下であることが好ましく、より好ましくは 30 eq/ton 以下であり、さらに好ましくは 25 eq/ton 以下であり、特に好ましくは 20 eq/ton 以下である。

[0015] ポリブチレンテレフタレート樹脂の末端カルボキシル基の濃度（単位： eq/ton ）は、たとえば、所定量のポリブチレンテレフタレート樹脂をベンジルアルコールに溶解し、水酸化ナトリウムの 0.01 mol/l ベンジルアルコール溶液を使用して滴定することにより測定することができる。指示薬は、たとえば、フェノールフタレイン溶液を用いればよい。

[0016] 上記ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）の含有量は、ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物中、 $40 \sim 95 \text{ 質量\%}$ であり、好ましくは $45 \sim 90 \text{ 質量\%}$ であり、より好ましくは $45 \sim 80 \text{ 質量\%}$ である。この範囲内にポリブチレンテレフタレート樹脂（A）を配合することにより、実用性のある接合強度をもつポリエステルエラストマー接合可能なポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を得ることが可能となる。

[0017] [ポリエステルブロック共重合体（B）]

本発明に用いられるポリエステルブロック共重合体（B）は、ジカルボン酸と脂肪族及び／又は脂環族のグリコールを構成成分とするポリエステルか

らなるハードセグメント（a 3）と、脂肪族ポリエーテル、脂肪族ポリエステル及び脂肪族ポリカーボネートから選ばれる少なくとも1種のソフトセグメント（a 4）が結合したポリエステルブロック共重合体である。ハードセグメント（a 3）となるポリエステルを構成するジカルボン酸成分は、テレフタル酸またはそのエステル形成性誘導体（a 1）と少なくとも1種以上のテレフタル酸以外のジカルボン酸またはそのエステル形成性誘導体（a 2）から構成され、（a 1）と（a 2）のモル比（（a 1）／（a 2））が1～4である。エステル形成性誘導体とは、例えばジメチルエステル体などを指す。

ポリエステルブロック共重合体（B）は、一般的にポリエステルエラストマーとも称されるものである。

[0018] テレフタル酸以外のジカルボン酸としては、イソフタル酸、オルソフタル酸、2，6－ナフタレンジカルボン酸、1，5－ナフタレンジカルボン酸、1，2－ビス（フェノキシ）エタン－p，p’－ジカルボン酸、ジフェニル－p，p－ジカルボン酸等の芳香族ジカルボン酸、アジピン酸、セバシン酸、コハク酸、グルタル酸、ダイマー酸等の脂肪族ジカルボン酸、ヘキサヒドロテレフタル酸、ヘキサヒドロイソフタル酸、シクロヘキサンジカルボン酸等の脂環族ジカルボン酸が挙げられる。テレフタル酸以外のジカルボン酸としては、ポリエステルエラストマーを溶着することが可能な成形体用ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を得ると言う観点から、ポリエステルブロック共重合体（B）の結晶性を低下させる低分が好ましい。よって、テレフタル酸以外のジカルボン酸としては、イソフタル酸、オルトフタル酸が好ましく、特にイソフタル酸が好ましい。

[0019] ジカルボン酸成分のモル比（（a 1）／（a 2））は、2～4であることが好ましい。モル比が1未満であると、成形加工性が悪化し、また4を超えると期待する接合（溶着）性が得られない。

[0020] 本発明に用いられるポリエステルブロック共重合体（B）のハードセグメント（a 3）のポリエステルを構成する脂肪族又は脂環族グリコールは、一

般の脂肪族又は脂環族グリコールが広く用いられ、特に限定されないが、主として炭素数2～8のアルキレングリコール類であることが望ましい。好ましくは、エチレングリコール、1, 3-プロピレングリコール、1, 4-ブタンジオール、1, 6-ヘキサジオール、1, 4-シクロヘキサジメタノールであり、特に好ましくは、エチレングリコール、1, 4-ブタンジオールのいずれかである。

[0021] また、本発明で使用するポリエステルブロック共重合体（B）におけるハードセグメント（a3）を構成するポリエステルとして好適な芳香族ポリエステルを事前に製造し、その後ソフトセグメント成分と共重合させる場合、該芳香族ポリエステルは、通常のポリエステルの製造法に従って容易に得ることができる。また、かかるポリエステルは、数平均分子量10000～40000を有しているものが望ましい。

[0022] 本発明に用いられるポリエステルブロック共重合体（B）のソフトセグメント（a4）は、脂肪族ポリエーテル、脂肪族ポリエステル、脂肪族ポリカーボネートから選ばれる少なくとも1種である。脂肪族ポリエーテルとしては、ポリオキシエチレングリコール、ポリオキシプロピレングリコール、ポリオキシテトラメチレングリコール、ポリオキシヘキサメチレングリコール、ポリオキシトリメチレングリコール、エチレンオキシドとプロピレンオキシドの共重合体、ポリオキシエチレングリコールのエチレンオキシド付加物、エチレンオキシドとテトラヒドロフランの共重合体などが挙げられる。

また、脂肪族ポリエステルとしては、ポリ（ ϵ -カプロラクトン）、ポリエナントラクトン、ポリカプリロラクトン、ポリブチレンアジペートなどが挙げられる。

[0023] また、脂肪族ポリカーボネートは、主として炭素数2～12の脂肪族ジオール残基からなるものであることが好ましい。これらの脂肪族ジオールとしては、例えば、エチレングリコール、1, 3-プロピレングリコール、1, 4-ブタンジオール、1, 5-ペンタンジオール、1, 6-ヘキサジオール、1, 8-オクタンジオール、2, 2-ジメチル-1, 3-プロパンジオール

ール、3-メチルー1, 5-ペンタンジオール、2, 4-ジエチルー1, 5-ペンタンジオール、1, 9-ノナンジオール、2-メチルー1, 8-オクタンジオールなどが挙げられる。特に、得られるポリエステルブロック共重合体(B)の柔軟性や低温特性の点より炭素数5~12の脂肪族ジオールが好ましい。これらの成分は、以下に説明する事例に基づき、単独で用いてもよいし、必要に応じて2種以上を併用してもよい。

[0024] 本発明において、使用可能なポリエステルブロック共重合体(B)のソフトセグメント(a4)を構成する、低温特性が良好な脂肪族ポリカーボネートジオールとしては、融点が低く(例えば、70℃以下)かつ、ガラス転移温度が低いものが好ましい。一般に、ポリエステルブロック共重合体のソフトセグメント(a4)を形成するのに用いられる1, 6-ヘキサジオールからなる脂肪族ポリカーボネートジオールは、ガラス転移温度が-60℃前後と低く、融点も50℃前後となるため、低温特性が良好なものとなる。その他にも、上記脂肪族ポリカーボネートジオールに、例えば、3-メチルー1, 5-ペンタンジオールを適当量共重合して得られる脂肪族ポリカーボネートジオールは、元の脂肪族ポリカーボネートジオールに対してガラス転移点が若干高くなるものの、融点が低下もしくは非晶性となるため、低温特性が良好な脂肪族ポリカーボネートジオールに相当する。また、例えば、1, 9-ノナンジオールと2-メチルー1, 8-オクタンジオールからなる脂肪族ポリカーボネートジオールは融点が30℃程度、ガラス転移温度が-70℃前後と十分に低いため、低温特性が良好な脂肪族ポリカーボネートジオールに相当する。

[0025] 本発明に用いるポリエステルブロック共重合体(B)は、経済性、耐熱性、耐寒性の理由から、テレフタル酸、イソフタル酸、1, 4-ブタンジオール、及びポリオキシテトラメチレングリコールを主たる成分とする共重合体であることが好ましい。ポリエステルブロック共重合体(B)を構成するジカルボン酸成分中、テレフタル酸とイソフタル酸の合計が40モル%以上であることが好ましく、70モル%以上であることがより好ましく、80モル

%以上であることがさらに好ましく、90モル%以上であることが特に好ましい。ポリエステルブロック共重合体（B）を構成するグリコール成分中、1,4-ブタンジオールとポリオキシテトラメチレングリコールの合計が40モル%以上であることが好ましく、70モル%以上であることがより好ましく、80モル%以上であることがさらに好ましく、90モル%以上であることが特に好ましい。

[0026] 前記ポリオキシテトラメチレングリコールの数平均分子量が、500～4000であることが好ましい。数平均分子量が500未満であると、エラストマー特性を発現しづらくなることがある。一方、数平均分子量が4000を超えると、ポリエステルブロック共重合体（B）のハードセグメント（a3）を構成するポリエステル部分との相溶性が低下し、ブロック状に共重合することが難しくなる場合がある。ポリオキシテトラメチレングリコールの数平均分子量は、800以上3000以下であることがより好ましく、1000以上2500以下がさらに好ましい。

[0027] 本発明に用いられるポリエステルブロック共重合体（B）のハードセグメント（a3）とソフトセグメント（a4）の共重合量は、ハードセグメント（a3）とソフトセグメント（a4）の質量比（（a3）／（a4））が、85／15～35／65であることが好ましく、より好ましくは、75／25～50／50である。

[0028] 本発明で使用するポリエステルブロック共重合体（B）の硬度（表面硬度）は特に限定されないが、例えばショアA硬度25程度の低硬度のものからショアD硬度75程度の高硬度まで広い範囲のポリエステルブロック共重合体を使用可能であり、好ましくはショアD硬度25～65、さらに好ましくはショアD硬度30～60のものである。

[0029] 本発明に用いるポリエステルブロック共重合体（B）の還元粘度は、後記する測定方法で測定した場合、0.5dl/g以上3.5dl/g以下であることが好ましい。0.5dl/g未満では、樹脂としての耐久性が低く、3.5dl/gを超えると、射出成形などの加工性が不十分になる可能性が

ある。ポリエステルブロック共重合体（B）の還元粘度は、 1.0 dl/g 以上 3.0 dl/g 以下であることがより好ましく、 1.5 dl/g 以上 2.8 dl/g 以下であることがさらに好ましい。また、ポリエステルブロック共重合体（B）の酸価は 200 eq/t 以下が好ましく、 50 eq/t 以下が特に好ましい。

[0030] 本発明に用いられるポリエステルブロック共重合体（B）は、公知の方法で製造することができる。例えば、ジカルボン酸の低級アルコールジエステル、過剰量の低分子量グリコール、およびソフトセグメント成分を触媒の存在下エステル交換反応せしめ、得られる反応生成物を重縮合する方法、あるいはジカルボン酸と過剰量のグリコールおよびソフトセグメント成分を触媒の存在下エステル化反応せしめ、得られる反応生成物を重縮合する方法、また、あらかじめハードセグメントを作っておき、これにソフトセグメント成分を添加してエステル交換反応によりランダム化せしめる方法、ハードセグメントとソフトセグメントを鎖連結剤でつなぐ方法、さらにポリ（ ϵ -カプロラクトン）をソフトセグメントに用いる場合は、ハードセグメントに ϵ -カプロラクトンモノマを付加反応させるなど、いずれの方法をとってもよい。

[0031] 上記ポリエステルブロック共重合体（B）の含有量は、ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物中、 $4 \sim 40$ 質量%であり、好ましくは $5 \sim 35$ 質量%であり、より好ましくは $15 \sim 30$ 質量%である。この範囲内にポリエステルブロック共重合体（B）を配合することにより、実用性のある接合強度をもつポリエステルエラストマー接合可能なポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を得ることが可能となる。上述のとおりポリエステルブロック共重合体（B）を含有することにより、接合（溶着）性を改良することが可能となるが、ポリエステルブロック共重合体（B）の含有量が 40 質量%を超えると、生産性が悪化するので好ましくない。

[0032] [共重合ポリエステル樹脂（C）]

本発明における共重合ポリエステル樹脂（C）としては、上記したポリブ

チレンテレフタレート樹脂（Ａ）やポリエステルブロック共重合体（Ｂ）と異なる共重合ポリエステル樹脂であれば、特に限定されない。例えば、上記モル比（（a 1）／（a 2））が４を超えるポリエステルブロック共重合体でも良い。

本発明における共重合ポリエステル樹脂（Ｃ）としては、構成する全酸成分を１００モル％、構成する全グリコール成分を１００モル％としたとき、エチレングリコールが４０モル％以上かつ、テレフタル酸とエチレングリコールの合計が８０～１８０モル％を占める樹脂、または１，４－ブタンジオールが４０モル％以上かつ、テレフタル酸と１，４－ブタンジオールの合計が８０～１８０モル％を占める樹脂が好ましい。共重合成分として、イソフタル酸、セバシン酸、アジピン酸、トリメリット酸、２，６－ナフタレンジカルボン酸、ジエチレングリコール、ネオペンチルグリコール、１，４－シクロヘキサンジメタノール、１，４－ブタンジオール、１，２－プロパンジオール、１，３－プロパンジオール、エチレングリコール及び２－メチルー１，３－プロパンジオールからなる群より選ばれる少なくとも１種以上が挙げられる。エチレングリコール、１，４－ブタンジオールは、主成分に含まれないポリエステル樹脂において、共重合成分となり得る。

[0033] 共重合ポリエステル樹脂（Ｃ）としては、エチレンテレフタレート単位またはブチレンテレフタレート単位に、アルキル側鎖含有グリコール及びイソフタル酸の少なくとも一方を共重合したポリエステル樹脂であることが好ましく、非晶性であることが好ましい。アルキル側鎖含有グリコールとしては、ネオペンチルグリコール、１，２－プロパンジオール、及び２－メチルー１，３－プロパンジオールが挙げられる。中でも共重合成分として各種特性の観点から好ましいのは、ネオペンチルグリコールやイソフタル酸など結晶性を低下させる成分である。

[0034] 共重合ポリエステル樹脂（Ｃ）を構成する全グリコール成分を１００モル％としたとき、アルキル側鎖含有グリコールの共重合割合は２０～６０モル％が好ましく、２５～５０モル％がより好ましい。

共重合ポリエステル樹脂（C）を構成する全酸成分を100モル%としたとき、イソフタル酸の共重合割合は20～60モル%が好ましく、25～50モル%がより好ましい。

[0035] 共重合ポリエステル樹脂（C）の重合度としては、具体的な共重合組成により若干異なるが、固有粘度（0.1gのサンプルをフェノール／テトラクロロエタン（質量比6／4）の混合溶媒25mlに溶解し、ウベローデ粘度管を用いて30℃で測定）が0.4～1.5dl/gであることが好ましく、0.4～1.3dl/gがより好ましい。0.4dl/g未満ではタフネス性が低下する傾向があり、1.5dl/gを超えると流動性が低下する傾向がある。

[0036] 上記共重合ポリエステル樹脂（C）の含有量は、ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物中、0～50質量%であり、好ましくは0～25質量%であり、より好ましくは5～25質量%であり、さらに好ましくは5～20質量%である。この範囲内に共重合ポリエステル樹脂（C）を配合することにより、ポリエステルブロック共重合体（B）を同添加量含有したポリブチレンテレフタレート樹脂組成物と比較すると、共重合ポリエステル樹脂（C）を添加することにより接合強さを上昇させることが可能となる。含有量が50質量%を超えると、接合強度が良好になるものの、耐熱性が低下するため好ましくない。

[0037] [無機充填剤（D）]

本発明のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物には、耐熱性および剛性を向上させる目的で、本発明の効果が損なわれない範囲において、（D）無機充填剤を配合することができる。（D）無機充填剤としては、繊維状充填剤と非繊維状充填剤とがあり、本発明で用いられる繊維状充填剤としては、ガラス繊維、炭素繊維、チタン酸カリウム繊維、シリカ・アルミナ繊維、ジルコニア繊維、金属繊維等が挙げられるが、ガラス繊維が好ましい。

[0038] ガラス繊維としては、公知のガラス繊維がいずれも好ましく用いられ、ガラス繊維径や、円形、繭形断面、長円断面等の形状、あるいはチョップドス

トランドやロービング等の製造に用いる際の長さやガラスカットの方法にはよらない。本発明では、ガラスの種類も限定されないが、品質上、Eガラスや、組成中にジルコニウム元素を含む耐腐食ガラスが好ましく用いられる。

[0039] また、本発明では、繊維状充填剤と樹脂マトリックスの界面特性を向上させる目的で、アミノシラン化合物やエポキシ化合物等の有機処理剤で表面処理された繊維状充填剤が好ましく用いられる。かかる繊維状充填剤に用いられるアミノシラン化合物やエポキシ化合物としては、公知のものがいずれも好ましく用いることができ、本発明で繊維状充填剤の表面処理に用いられるアミノシラン化合物、エポキシ化合物の種類には依存しない。

[0040] 板状や粒状の非繊維状無機充填剤としては、例えばガラスビーズ、ガラスフレーク、シリカ、カオリン、タルク、マイカ、ワラストナイト、酸化チタン、酸化亜鉛、アルミナ、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウムが挙げられる。耐衝撃性、流動性、製品外観のバランスの観点から、ガラスビーズ、カオリン、タルク、マイカが好ましく、カオリン、マイカがさらに好ましい。板状や粒状の非繊維状無機充填剤は単独で使用した場合に十分な強度が得られないため、繊維状充填剤と併用することが好ましい。

[0041] 上記無機充填剤（D）の含有量は、ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物中、0～55質量%であり、好ましくは10～55質量%であり、より好ましくは15～50質量%であり、さらに好ましくは20～40質量%である。この範囲内に無機充填剤（D）を配合することにより、ポリエステルエラストマーとの接合強度を損なわず、かつ耐熱性および剛性を向上させたポリエステルエラストマー接合可能なポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を得ることが可能となる。

[0042] [その他の添加剤]

その他、本発明のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物には、必要に応じて、本発明としての特性を損なわない範囲において、公知の各種添加剤を含有させることができる。公知の添加剤としては、例えば顔料等の着色剤、離型剤、耐熱安定剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤、可塑剤、変性

剤、帯電防止剤、難燃剤、染料等が挙げられる。

離型剤としては、長鎖脂肪酸またはそのエステルや金属塩、アミド系化合物、ポリエチレンワックス、シリコン、ポリエチレンオキシド等が挙げられる。長鎖脂肪酸としては、特に炭素数12以上が好ましく、例えばステアリン酸、12-ヒドロキシステアリン酸、ベヘン酸、モンタン酸等が挙げられ、部分的もしくは全カルボン酸が、モノグリコールやポリグリコールによりエステル化されていてもよく、または金属塩を形成していても良い。アミド系化合物としては、エチレンビステレフタルアミド、メチレンビスステアリルアミド等が挙げられる。これら離型剤は、単独であるいは混合物として用いても良い。

これら各種添加剤は、ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を100質量%とした時、合計で5質量%まで含有させることができる。つまり、ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物100質量%中、前記(A)、(B)、(C)、(D)の合計は95～100質量%であることが好ましい。

[0043] [ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物]

本発明のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を製造する製造法としては、上記配合組成にて任意の配合順列で配合した後、タンブラー或いはヘンシェルミキサー等で混合し、溶融混練される。溶融混練方法は、当業者に周知のいずれかの方法が可能であり、単軸押出機、2軸押出機、ニーダー、バンバリーミキサー、ロール等が使用できるが、なかでも2軸押出機を使用することが好ましい。また、加工時の揮発成分、分解低分子成分を除去するため、ガラス繊維投入部分のサイド口と押し出し機先端のダイヘッドとの間で真空ポンプによる吸引を行うことが望ましい。

[0044] 本発明のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物は、ポリエステルエラストマーを溶着する成形体用であり、特に、ポリエステルエラストマーをインサート成形により溶着する成形体用である。

本発明のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物は、射出成形等の公知の成形方法により、成形体とすることができる。この成形体は、以下に説明す

る複合材料に供することができる。

[0045] [複合材料]

以下、本発明のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物からなる成形体とポリエステルエラストマーが溶着された複合成形体について説明する。この複合成形体は、ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物からなる成形体を金型内にインサート材として配し、ポリエステルエラストマーを射出成形により溶着させることにより得られる。インサート成形において、金型内に配置される材料（インサート材）は、一次材料と呼ばれ、本発明においては、ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物からなる成形体がこれに相当する。インサート材が配置された金型に、射出される材料は、二次材料と呼ばれ、本発明においては、ポリエステルエラストマーが該当する。

[0046] 二次材料のポリエステルエラストマーは、上記で説明した一次材料に使用されるポリエステルブロック共重合体（B）と同一のものでも異なっているものでも良い。二次材料のポリエステルエラストマーは、特に限定されないが、芳香族ジカルボン酸と脂肪族及び／又は脂環族のグリコールを構成成分とするポリエステルからなるハードセグメントと、脂肪族ポリエーテル、脂肪族ポリエステル及び脂肪族ポリカーボネートから選ばれる少なくとも１種のソフトセグメントが結合したポリエステルエラストマーであれば良い。上記で説明した一次材料に使用されるポリエステルブロック共重合体（B）、またはポリエステルブロック共重合体（B）においてモル比（（a 1）／（a 2））が４を超えるポリエステルブロック共重合体を使用可能である。二次材料のポリエステルエラストマーの硬度（表面硬度）は、ショアA硬度６５程度の低硬度のものからショアD硬度７５程度の高硬度まで広い範囲のポリエステルエラストマーが使用可能であり、好ましくはショアD硬度２５～６５、より好ましくはショアD硬度３０～６０のものである。二次材料のポリエステルエラストマーと一次材料に使用されるポリエステルブロック共重合体（B）とで、同じ種類のソフトセグメントを用いることは好ましい態様である。

二次材料のポリエステルエラストマーとして、低硬度のものから高硬度のものまで広い範囲のポリエステルエラストマーが接合（溶着）可能である点が、本発明の大きな特徴である。

[0047] インサート成形により、一次材料のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物からなる成形体と二次材料のポリエステルエラストマーが、優れた接合（溶着）性を示す理由は、以下のように考えられる。一次材料において、ポリエステルブロック共重合体（B）が特定量含有されることで、ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）内に海島構造で分散しているポリエステルブロック共重合体（B）が、二次材料として導入されたポリエステルエラストマーの熔融熱で溶かされ、一次材料側の分散しているポリエステルブロック共重合体と二次材料側のポリエステルエラストマーが混合し接着性をもたらしていると考えられる。共重合ポリエステル樹脂（C）を含有させることで、一次材料中のポリブチレンテレフタレート樹脂（A）が動きやすくなり、より混合が起こりやすくなっていると考えられる。

[0048] 本発明の複合材料は、その特性を活かし、エアダクト、軸受、ローラー、カバー、各種筐体、コネクタ、グリップ、キャスター等に使用可能である。

実施例

[0049] 実施例および比較例を用いて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、実施例に記載された測定値は、以下の方法によって測定したものである。

[0050] （１）ポリブチレンテレフタレート樹脂、共重合ポリエステルの固有粘度

0.1 g のサンプルをフェノール／テトラクロロエタン（質量比 6／4）の混合溶媒 25 ml に溶解し、ウベローデ粘度管を用いて 30℃ で測定した。（単位：dl／g）

（２）ポリエステルブロック共重合体、ポリエステルエラストマーの還元粘度

0.05 gのサンプルを25 mlの混合溶媒（フェノール／テトラクロロエタン＝60／40（質量比））に溶かし、オストワルド粘度計を用いて30℃で測定した。（単位：dl／g）

（3）ポリエステルブロック共重合体、ポリエステルエラストマーの硬度（表面硬度）

JIS K7215（－1986）に準じて測定した。試験片は、シリンダー温度240℃、金型温度50℃にて作製した射出成形品（長さ100 mm、幅100 mm、厚み2 mm）を3枚重ねたものを使用し、測定圧5000 g、タイプDの圧子を用いたデュロメーターにより測定し、測定開始5秒後の値をD硬度（ショアD硬度）とした。

[0051]（4）インサート成形用ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物の半ダンベルの作製

コンパウンドして得られたポリブチレンテレフタレート樹脂組成物ペレットを射出成形機（日本製鋼所社製J110AD－110H）で、シリンダー温度＝260℃、金型温度＝50℃、射出速度＝50 mm／sec、保圧40 MPaでISO3167に準じた引張試験ダンベルの半分の形状のものを得た。

（5）インサート成形

前記で得たISOの引張試験の半ダンベルを、接合面に触れないようISO引張試験ダンベル成形金型キャビティに装着後、ポリエステルエラストマーをシリンダー温度260℃、金型温度60℃、射出速度＝50 mm／secで残りのダンベル部分を射出成形し、ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物とポリエステルエラストマーとが中央部で接合（溶着）したISO引張試験ダンベルを得た。ポリエステルエラストマーとしては、表1、2に示す各種ポリエステルエラストマーを用いた。

（6）接合性の評価

前記で得られたポリブチレンテレフタレート樹脂組成物とポリエステルエラストマーとが中央部で接合したISO引張試験ダンベルをISO－527

ー 1, 2 に準じて測定し、当該ダンベルの破断伸度 (%) を求め、さらにポリエステルエラストマーの状態を評価した。

上記引張試験において、伸度 10% 以上の試験後試験片を確認すると、ポリブチレンテレフタレート組成物の接合部にポリエステルエラストマーが付着しており、接合の痕跡が確認された。よって、伸度 10% 以上の場合、応力発生部位において十分な接合強度を有していると判断した。

[0052] 実施例、比較例において使用した配合成分を次に示す。

ポリブチレンテレフタレート樹脂 (A) :

(A) ポリブチレンテレフタレート樹脂 東洋紡社製 固有粘度 0.90 d l / g

ポリエステルブロック共重合体 (B) :

(B-1) TPA / IPA / 1,4-BD / PTMG 1000 = 75 / 25 / 92 / 8 (モル%) の組成比の共重合体、東洋紡社製、ペルpren (登録商標) の試作品、還元粘度 1.51 d l / g、ショア D 硬度 50、(a 1) / (a 2) = 3

(B-2) TPA / IPA / 1,4-BD / PTMG 1000 = 73 / 27 / 87 / 13 (モル%) の組成比の共重合体、東洋紡社製、ペルpren (登録商標) の試作品、還元粘度 1.95 d l / g、ショア D 硬度 39、(a 1) / (a 2) = 2.7

[0053] 共重合ポリエステル樹脂 (C) :

(C-1) TPA / EG / NPG = 100 / 70 / 30 (モル%) の組成比の共重合体、東洋紡社製、バイロン (登録商標) の試作品、固有粘度 0.83 d l / g

(C-2) TPA / IPA / EG / NPG = 50 / 50 / 50 / 50 (モル%) の組成比の共重合体、東洋紡社製、バイロン (登録商標) の試作品、固有粘度 0.53 d l / g

(略号はそれぞれ、TPA : テレフタル酸、IPA : イソフタル酸、1,4-BD : 1,4-ブタンジオール、PTMG 1000 : ポリオキシテトラメチ

レングリコール（数平均分子量：1000）、EG：エチレングリコール、NPG：ネオペンチルグリコール成分を示す。）

[0054] 無機充填剤（D）（繊維径、繊維長は電子顕微鏡観察による測定値、平均粒子径はレーザー回折法により測定した値（重量（体積）累積粒度分布の50%径）を示す。）：

（D-1）ガラス繊維（平均繊維長3mm、平均繊維径11 μ m）、T-120H（日本電気硝子社製）

（D-2）タルク（平均粒子径：12.0 μ m）、タルカンPK-C（林化成社製）

[0055] （E）ポリエステルエラストマー：

（E-1）TPA//1,4-BD/PTMG2000=100//75/25（モル%）の組成比の共重合体、東洋紡社製、ペルpren（登録商標）の試作品、還元粘度2.50dl/g、ショアD硬度31

（E-2）TPA//1,4-BD/PTMG1000=100//88/12（モル%）の組成比の共重合体、東洋紡社製、ペルpren（登録商標）の試作品、還元粘度1.75dl/g、ショアD硬度52

（E-3）TPA//1,4-BD/PTMG1000=100//93/7（モル%）の組成比の共重合体、東洋紡社製、ペルpren（登録商標）の試作品、還元粘度1.52dl/g、ショアD硬度57

（略号はそれぞれ、TPA：テレフタル酸、1,4-BD：1,4-ブタンジオール、PTMG1000：ポリオキシテトラメチレングリコール（数平均分子量：1000）、PTMG2000：ポリオキシテトラメチレングリコール（数平均分子量：2000）成分を示す。）

その他のエラストマー：

（E-4）日油（株）製、モディパーA5300（エチレンエチルアクリレート-グラフト-ブチルアクリレート/メチルメタクリレート）

[0056] <実施例1～11、比較例1～7>

実施例、比較例のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物は、上記原料を

表 1、2 に示した配合比率（質量部）に従い計量して、35φ二軸押出機（東芝機械社製）でシリンダー温度 260℃、スクリー回転数 200 rpm にて熔融混練した。無機充填剤以外の原料はホッパーから二軸押出機へ投入し、無機充填剤はベント口からサイドフィードで投入した（無機充填剤を 2 種以上使用した場合は別々のサイドフィードから投入した）。得られたポリブチレンテレフタレート樹脂組成物のペレットは、乾燥後、射出成形機にて各種評価用サンプルを成形した。評価結果は表 1、2 に示した。

[0057]

[表1]

種類	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 10	実施例 11
(A)ポリブチレンテレフタレート樹脂	90	80	70	90	70	80	80	65	65	45	45
(B-1)ポリエステルブロック共重合体	10	20	30			20	20	20	20	15	15
(B-2)ポリエステルブロック共重合体				10	30						
(C-1)共重合ポリエステル樹脂								15		10	10
(C-2)共重合ポリエステル樹脂									15		
(D-1)無機充填剤										30	20
(D-2)無機充填剤											10
接合するポリエステルエラストマー	(E-2)	(E-2)	(E-2)	(E-2)	(E-2)	(E-1)	(E-3)	(E-2)	(E-2)	(E-2)	(E-2)
破断伸度(%)	10	22	39	15	43	93	10	56	47	52	38

[0058]

[表2]

種類	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6	比較例 7
(A)ポリブチレンテフタレート樹脂	90	90	80	90	90	65	45
(B-1)ポリエステルブロック共重合体							
(B-2)ポリエステルブロック共重合体							
(C-1)共重合ポリエステル樹脂						15	10
(C-2)共重合ポリエステル樹脂							
(D-1)無機充填剤							30
(D-2)無機充填剤							
(E-1)ポリエステルエラストマー	10						
(E-2)ポリエステルエラストマー		10	20			20	15
(E-3)ポリエステルエラストマー				10			
(E-4)エラストマー					10		
接合するポリエステルエラストマー	(E-2)	(E-2)	(E-2)	(E-2)	(E-2)	(E-2)	(E-2)
破断伸度(%)	4	2	4	1	1	4	3

[0059] 実施例の樹脂組成物は、接合されたポリエステルエラストマーの種類に限定されることなく破断伸度（％）が１０％以上であり、十分に接合（溶着）されていることがわかる。共重合ポリエステル樹脂（Ｃ）を使用した実施例８、９は、使用しなかった実施例２に比べ、破断伸度（％）が向上した（接合強度が向上した）。無機充填剤（Ｄ）を含んでいる実施例１０、１１も、優れた接合性を示した。すなわち、ポリエステルブロック共重合体（Ｂ）を含有することで、広い硬度範囲のポリエステルエラストマーが接合可能である。

[0060] 一方、比較例１～７では、ポリエステルブロック共重合体（Ｂ）を含まないため、比較的高硬度のポリエステルエラストマーとの接合（溶着）性が悪い結果となった。ポリエステルエラストマー以外のエラストマーを添加した比較例５は、十分な接合強度が発現しない。

産業上の利用可能性

[0061] 本発明の樹脂組成物は、従来のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物に比べ、実用に足る接合強度を持つため、ポリエステルエラストマーとのインサート成形による接合可能な成形品用の成形材料として有用である。

請求の範囲

- [請求項1] ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）40～95質量%、ポリエステルブロック共重合体（B）4～40質量%、（B）とは異なる共重合ポリエステル樹脂（C）0～50質量%及び無機充填剤（D）0～55質量%を含有するポリブチレンテレフタレート樹脂組成物であって、前記ポリエステルブロック共重合体（B）は、ジカルボン酸成分がテレフタル酸またはそのエステル形成性誘導体（a1）と少なくとも1種以上のテレフタル酸以外のジカルボン酸またはそのエステル形成性誘導体（a2）から構成され、（a1）と（a2）のモル比（ $(a1)/(a2)$ ）が1～4であるポリエステルからなるハードセグメント（a3）と、脂肪族ポリエーテル、脂肪族ポリエステル及び脂肪族ポリカーボネートから選ばれる少なくとも1種のソフトセグメント（a4）とを構成成分とするポリエステルブロック共重合体であり、ポリエステルエラストマーを溶着する成形体用であるポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。
- [請求項2] 前記共重合ポリエステル樹脂（C）が、エチレンテレフタレート単位またはブチレンテレフタレート単位に、アルキル側鎖含有グリコール及びイソフタル酸の少なくとも一方を共重合したポリエステル樹脂である請求項1に記載のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。
- [請求項3] 請求項1または2に記載のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物からなる成形体とポリエステルエラストマーが溶着された複合成形体。
- [請求項4] 請求項1または2に記載のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物からなる成形体を金型内にインサート材として配し、ポリエステルエラストマーを射出成形により溶着させる複合成形体の製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/006697

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C08L67/02 (2006.01)i, B29C45/14 (2006.01)i, C08K3/00 (2018.01)i,
C08J5/00 (2006.01)n

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.Cl. C08L67/02, B29C45/14, C08K3/00, C08J5/00

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

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996

Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2018

Registered utility model specifications of Japan 1996-2018

Published registered utility model applications of Japan 1994-2018

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

CAlus/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2012/014823 A1 (TOYOCO BOSEKI KABUSHIKI KAISHA) 02 February 2012, claims, paragraphs [0015], [0056]-[0059], tables 2-3 & TW 201229112 A	1-4
A	JP 2013-189550 A (DU PONT-TORAY CO., LTD.) 26 September 2013, claims, paragraphs [0001]-[0002], [0009]-[0011], [0043]-[0048], tables 1, 3 (Family: none)	1-4
A	JP 4-119810 A (POLYPLASTICS CO., LTD.) 21 April 1992, claims & US 5354532 A1, claims & KR 10-1994-0009886 B & TW 201325 B	1-4
A	JP 61-133381 A (TORAY INDUSTRIES, INC.) 20 June 1986, claims, page 7, lower left column, line 18 to page 8, upper left column, line 13, table 2 (Family: none)	1-4

☐	Further documents are listed in the continuation of Box C.	☐	See patent family annex.
* Special categories of cited documents:		"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance		"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date		"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
"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)		"&"	document member of the same patent family
"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			

Date of the actual completion of the international search 11 April 2018 (11.04.2018)	Date of mailing of the international search report 24 April 2018 (24.04.2018)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C08L67/02(2006.01)i, B29C45/14(2006.01)i, C08K3/00(2018.01)i, C08J5/00(2006.01)n

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. C08L67/02, B29C45/14, C08K3/00, C08J5/00

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	1971-2018年
日本国実用新案登録公報	1996-2018年
日本国登録実用新案公報	1994-2018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）

CAplus/REGISTRY (STN)

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
A	WO 2012/014823 A1（東洋紡績株式会社）2012.02.02, 特許請求の範囲、[0015]、[0056]-[0059]、表2-表3 & TW 201229112 A	1-4
A	JP 2013-189550 A（東レ・デュポン株式会社）2013.09.26, 特許請求の範囲、[0001]-[0002]、[0009]-[0011]、[0043]-[0048]、 表1、表3（ファミリーなし）	1-4

☒ 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

の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

11.04.2018

国際調査報告の発送日

24.04.2018

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）

尾立 信広

4 J

8380

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

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
A	JP 4-119810 A (ポリプラスチックス株式会社) 1992. 04. 21, 特許請求の範囲 & US 5354532 A1 Claims & KR 10-1994-0009886 B & TW 201325 B	1-4
A	JP 61-133381 A (東レ株式会社) 1986. 06. 20, 特許請求の範囲、第 7 頁左下欄第 18 行-第 8 頁左上欄第 13 行、 第 2 表 (ファミリーなし)	1-4