(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
2021年5月6日(06.05.2021)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2021/085384 A1

(51) 国際特許分類:
C08K 5/43 (2006.01)　*C08K 5/52* (2006.01)
C08K 5/50 (2006.01)　*C08L 69/00* (2006.01)

(21) 国際出願番号：　PCT/JP2020/040122

(22) 国際出願日：　2020年10月26日(26.10.2020)

(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 2019-198569　2019年10月31日(31.10.2019) JP

(71) 出願人：帝人株式会社(**TEIJIN LIMITED**) [JP/JP]；〒5300005 大阪府大阪市北区中之島三丁目２番４号 Osaka (JP).

(72) 発明者：磯江 晋輔(**ISOE, Shinsuke**)；〒5300005 大阪府大阪市北区中之島三丁目２番４号 帝人株式会社内 Osaka (JP).

(74) 代理人：青木　篤，外 (**AOKI, Atsushi** et al.)；〒1050001 東京都港区虎ノ門一丁目２３番１号 虎ノ門ヒルズ森タワー 青和特許法律事務所 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, 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, IT, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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：
— 国際調査報告（条約第21条(3)）

(54) Title: POLYCARBONATE RESIN COMPOSITION AND MOLDED OBJECT THEREOF

(54) 発明の名称： ポリカーボネート樹脂組成物及びその成形体

(57) Abstract: The present invention provides: a polycarbonate resin composition excellent in terms of long-lasting anti-static property and thermal stability; and a molded object of the polycarbonate resin composition. This resin composition comprises (A) an aromatic polycarbonate resin (A ingredient) and (B) an ion-pair compound (B ingredient), the amount of which is 0.3-5 parts by weight per 100 parts by weight of the aromatic polycarbonate resin, and is characterized in that the ion-pair compound has a melting point of 80°C or lower, has a 5% weight loss temperature, as determined by TG-TDA, of 350 ° C or higher, and satisfies the relationship $R_I > R_D - 20$ (1) (wherein R_I is a contact angle (°) between a drop of water and the resin composition having a content of the ion-pair compound of 2 parts by weight and R_D is a contact angle (°) between a drop of water and the aromatic polycarbonate resin).

(57) 要約：本発明は、持続的帯電防止性および熱安定性に優れるポリカーボネート樹脂組成物及びその成形体を提供する。本開示の樹脂組成物は、（Ａ）芳香族ポリカーボネート樹脂（Ａ成分）、及び前記芳香族ポリカーボネート樹脂１００重量部に対し、（Ｂ）イオン対化合物（Ｂ成分）を０．３～５重量部含有する樹脂組成物であって、 前記イオン対化合物が、 融点が８０℃以下であり、 ＴＧ－ＴＤＡで測定される５％重量減少温度が３５０℃以上であり、かつ 下記式（１）$R_1 > R_D - 20$ （１） （式中、R_1は、イオン対化合物の含有量が２重量部である前記樹脂組成物の水滴の接触角（°）であり、R_Dは芳香族ポリカーボネート樹脂の水滴の接触角（°）である。） を満足することを特徴とする。

WO 2021/085384 A1

明　細　書

発明の名称 ： ポリカーボネート樹脂組成物及びその成形体

技術分野

[0001] 本発明はポリカーボネート樹脂組成物に関する。詳細には、良好な持続的帯電防止性および熱安定性が付与されたポリカーボネート樹脂組成物に関する。

背景技術

[0002] ポリカーボネート樹脂は、機械的強度、寸法安定性および難燃性といったその優れた特性から機械部品、自動車部品、電気・電子部品、事務機器部品などの多くの用途に用いられている。その一方で、表面固有抵抗が大きい性質を有するため、ポリカーボネート樹脂の成形体表面に静電気が発生した場合、埃が付着して除去しにくくなり、また電気機器部品とした際に誤作動等の問題を引き起こすおそれがある。そこで、帯電防止性が付与されたポリカーボネート樹脂組成物に関する技術が多く検討されており、スルホン酸ホスホニウム塩を使用する方法（特許文献１参照）や、グリセリン脂肪酸エステル等の界面活性剤を使用する方法（特許文献２参照）が提案されている。

[0003] しかしながら、特許文献１および２に記載されるポリカーボネート樹脂組成物の帯電防止性は、一度の水洗により効果が著しく低下する等の持続性に劣るという欠点がある。一方、持続的帯電防止性を付与する手法として、ポリエーテルエステルアミドを使用する方法（特許文献３参照）が提案されているが、溶融混錬時や射出成形時の熱安定性が悪化するという欠点や、耐熱性（荷重たわみ温度）が低下する欠点、また、良好な透明性との両立が困難になるという欠点がある。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特許第４６０６７６２号公報

特許文献2：特許第６２１５７１７号公報

特許文献3：特開２００２－１２９０２６号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 本発明の目的は、持続的帯電防止性および熱安定性に優れるポリカーボネート樹脂組成物及びその成形体を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明者らは、鋭意研究を重ねた結果、特定のイオン対化合物を含有するポリカーボネート樹脂組成物により、上記課題を解決し得ることを見出した。すなわち、本発明者は、上記課題が下記のポリカーボネート樹脂組成物及びその成形品により達成されることを見出した。

[0007] １．（Ａ）芳香族ポリカーボネート樹脂（Ａ成分）、及び前記芳香族ポリカーボネート樹脂１００重量部に対し、（Ｂ）イオン対化合物（Ｂ成分）を０．３～５重量部含有する樹脂組成物であって、前記イオン対化合物が、

融点が８０℃以下であり、

ＴＧ－ＴＤＡ（熱重量示差熱分析）で測定される５％重量減少温度が３５０℃以上であり、かつ

下記式（１）$R_1 > R_D - 20$ （１）（式中、R_1は、イオン対化合物の含有量が２重量部である前記樹脂組成物の水滴の接触角（°）であり、R_Dは芳香族ポリカーボネート樹脂の水滴の接触角（°）である。）

を満足することを特徴とする樹脂組成物。

２．下記式（２）を満足することを特徴とする前項１記載の樹脂組成物。

$R_1 > R_D - 15$ （２）（式中、R_1は、イオン対化合物の含有量が２重量部である前記樹脂組成物の水滴の接触角（°）であり、R_Dは芳香族ポリカーボネート樹脂の水滴の接触角（°）である。）

３．イオン対化合物が下記式（Ｉ）で表される化合物であることを特徴とする前項１または２に記載の樹脂組成物。

[化1]

$$[(R_1)_3R_2P]^+ \cdot M^- \qquad (I)$$

[式中、R_1は炭素数６～１２のアルキル基を示し、R_2は炭素数１０～２０のアルキル基を示し、M^-は任意のアニオンを示す。]

４．M^-が下記式（ＩＩ）であることを特徴とする前項３に記載の樹脂組成物。

[化2]

$$(R_3SO_2)(R_4SO_2)N^- \qquad (II)$$

[式中、R_3、R_4はそれぞれ炭素数１～４のパーフルオロアルキル基であり、R_3、R_4は同一であっても異なっていてもよい。]

５．R_1が炭素数６～８の直鎖アルキル基であり、R_2が炭素数１２～１６の直鎖アルキル基であり、R_3、R_4がそれぞれ炭素数１～４のパーフルオロアルキル基であることを特徴とする前項３または４に記載の樹脂組成物。

６．R_1が炭素数６の直鎖アルキル基であり、R_2が炭素数１４の直鎖アルキル基であり、R_3、R_4がそれぞれトリフルオロメチル基であることを特徴とする前項３または４に記載の樹脂組成物。

７．Ａ成分１００重量部に対し、（Ｃ）リン系熱安定剤（Ｃ成分）を０．００１～０．５重量部含有することを特徴とする前項１～６のいずれかに記載の樹脂組成物。

８．前項１～７のいずれかに記載の樹脂組成物を成形してなる成形品。

発明の効果

[0008] 本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、持続的帯電防止性および熱安定性に優れているため、埃吸着抑制への要求が高い半導体部品用の搬送トレイ等の情報分野において有用である。また、透明性がさらに求められる車載カメラ、スマートフォン等に用いられるレンズ等の光学分野においても有用である。樹脂材料には埃が付きやすく、画質やセンシング機能の低下を招く欠

点があるが、本発明の樹脂材料は、上記欠点の改善に対して大いに期待できる。さらに、持続的帯電防止性が要求される自動車分野（良好な外観が要求される内装用部品等）にも有用である。したがって本発明の奏する産業上の効果は極めて大である。

発明を実施するための形態

[0009] （Ａ成分：芳香族ポリカーボネート樹脂）

本発明においてＡ成分として使用される芳香族ポリカーボネート樹脂は、二価フェノールとカーボネート前駆体とを反応させて得られるものである。反応方法の一例として界面重合法、溶融エステル交換法、カーボネートプレポリマーの固相エステル交換法、および環状カーボネート化合物の開環重合法などを挙げることができる。

[0010] ここで使用される二価フェノールの代表的な例としては、ハイドロキノン、レゾルシノール、４，４’－ビフェノール、１，１－ビス（４－ヒドロキシフェニル）エタン、２，２－ビス（４－ヒドロキシフェニル）プロパン（通称ビスフェノールＡ）、２，２－ビス（４－ヒドロキシ－３－メチルフェニル）プロパン、２，２－ビス（４－ヒドロキシフェニル）ブタン、１，１－ビス（４－ヒドロキシフェニル）－１－フェニルエタン、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、２，２－ビス（４－ヒドロキシフェニル）ペンタン、４，４’－（ｐ－フェニレンジイソプロピリデン）ジフェノール、４，４’－（ｍ－フェニレンジイソプロピリデン）ジフェノール、１，１－ビス（４－ヒドロキシフェニル）－４－イソプロピルシクロヘキサン、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）スルホキシド、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）ケトン、ビス（４－ヒドロキシフェニル）エステル、ビス（４－ヒドロキシ－３－メチルフェニル）スルフィド、９，９－ビス（４－ヒドロキシフェニル）フルオレンおよび９，９－ビス（４－ヒドロキシ－３－メチ

ルフェニル）フルオレンなどが挙げられる。好ましい二価フェノールは、ビス（４－ヒドロキシフェニル）アルカンであり、なかでも耐衝撃性の点からビスフェノールＡが特に好ましく、汎用されている。

[0011] 本発明では、汎用のポリカーボネートであるビスフェノールＡ型のポリカーボネート以外にも、他の２価フェノール類を用いて製造した特殊なポリカーボネートをＡ成分として使用することが可能である。

[0012] 例えば、２価フェノール成分の一部又は全部として、４，４’－（ｍ－フェニレンジイソプロピリデン）ジフェノール（以下“ＢＰＭ”と略称することがある）、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（以下“Ｂｉｓ－ＴＭＣ”と略称することがある）、９，９－ビス（４－ヒドロキシフェニル）フルオレン及び９，９－ビス（４－ヒドロキシ－３－メチルフェニル）フルオレン（以下“ＢＣＦ”と略称することがある）を用いたポリカーボネート（単独重合体又は共重合体）は、吸水による寸法変化や形態安定性の要求が特に厳しい用途に適当である。これらのＢＰＡ以外の２価フェノールは、該ポリカーボネートを構成する２価フェノール成分全体の５モル％以上、特に１０モル％以上、使用するのが好ましい。

[0013] 殊に、高剛性かつより良好な耐加水分解性が要求される場合には、樹脂組成物を構成するＡ成分が次の（１）～（３）の共重合ポリカーボネートであるのが特に好適である。

（１）該ポリカーボネートを構成する２価フェノール成分１００モル％中、ＢＰＭが２０～８０モル％（より好適には４０～７５モル％、さらに好適には４５～６５モル％）であり、かつＢＣＦが２０～８０モル％（より好適には２５～６０モル％、さらに好適には３５～５５モル％）である共重合ポリカーボネート。

（２）該ポリカーボネートを構成する２価フェノール成分１００モル％中、ＢＰＡが１０～９５モル％（より好適には５０～９０モル％、さらに好適には６０～８５モル％）であり、かつＢＣＦが５～９０モル％（より好適には

１０～５０モル％、さらに好適には１５～４０モル％）である共重合ポリカーボネート。

（３）該ポリカーボネートを構成する２価フェノール成分１００モル％中、ＢＰＭが２０～８０モル％（より好適には４０～７５モル％、さらに好適には４５～６５モル％）であり、かつＢｉｓ－ＴＭＣが２０～８０モル％（より好適には２５～６０モル％、さらに好適には３５～５５モル％）である共重合ポリカーボネート。

[0014] これらの特殊なポリカーボネートは、単独で用いてもよく、２種以上を適宜混合して使用してもよい。また、これらを汎用されているビスフェノールＡ型のポリカーボネートと混合して使用することもできる。

[0015] これらの特殊なポリカーボネートの製法及び特性については、例えば、特開平６－１７２５０８号公報、特開平８－２７３７０号公報、特開２００１－５５４３５号公報及び特開２００２－１１７５８０号公報等に詳しく記載されている。

[0016] なお、上述した各種のポリカーボネートの中でも、共重合組成等を調整して、吸水率及びＴｇ（ガラス転移温度）を下記（ｉ）または（ｉｉ）の範囲内にしたものは、ポリマー自体の耐加水分解性が良好で、かつ成形後の低反り性においても格段に優れているため、形態安定性が要求される分野では特に好適である。

（ｉ）吸水率が０．０５～０．１５％、好ましくは０．０６～０．１３％であり、かつＴｇが１２０～１８０℃であるポリカーボネート。

（ｉｉ）Ｔｇが１６０～２５０℃、好ましくは１７０～２３０℃であり、かつ吸水率が０．１０～０．３０％、好ましくは０．１３～０．３０％、より好ましくは０．１４～０．２７％であるポリカーボネート。

[0017] ここで、ポリカーボネートの吸水率は、直径４５ｍｍ、厚み３．０ｍｍの円板状試験片を用い、ＩＳＯ６２－１９８０に準拠して２３℃の水中に２４時間浸漬した後の水分率を測定した値である。また、Ｔｇ（ガラス転移温度）は、ＪＩＳ　Ｋ７１２１に準拠した示差走査熱量計（ＤＳＣ）測定により

求められる値である。

[0018] カーボネート前駆体としてはカルボニルハライド、炭酸ジエステルまたはハロホルメートなどが使用され、具体的にはホスゲン、ジフェニルカーボネートまたは二価フェノールのジハロホルメートなどが挙げられる。

[0019] 前記二価フェノールとカーボネート前駆体を界面重合法によってポリカーボネート樹脂を製造するに当っては、必要に応じて触媒、末端停止剤、二価フェノールが酸化するのを防止するための酸化防止剤などを使用してもよい。また本発明のポリカーボネー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ポリカーボネート樹脂、芳香族または脂肪族（脂環式を含む）の二官能性カルボン酸を共重合したポリエステルカーボネート樹脂、二官能性アルコール（脂環式を含む）を共重合した共重合ポリカーボネート樹脂、並びにかかる二官能性カルボン酸および二官能性アルコールを共に共重合したポリエステルカーボネート樹脂を含む。また、得られたポリカーボネート樹脂の２種以上を混合した混合物であってもよい。

[0020] 分岐ポリカーボネート樹脂は、本発明の樹脂組成物に、ドリップ防止性能などを付与できる。かかる分岐ポリカーボネート樹脂に使用される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、フロログルシド、または４，６－ジメチル－２，４，６－トリス（４－ヒドロキシフェニル）ヘプテン－２、２，４，６－トリメチル－２，４，６－トリス（４－ヒドロキシフェニル）ヘプタン、１，３，５－トリス（４－ヒドロキシフェニル）ベンゼン、１，１，１－トリス（４－ヒドロキシフェニル）エタン、１，１，１－トリス（３，５－ジメチル－４－ヒドロキシフェニル）エタン、２，６－ビス（２－ヒドロキシ－５－メチルベンジル）－４－メチルフェノール、４－｛４－［１，１－ビス（４－ヒドロキシフェニル）エチル］ベンゼン｝－α，α－ジメチルベンジルフェノール等のトリスフェノール、テトラ（４－ヒドロキシフェニル）メタン、ビス（２，４－ジヒドロキシフェニル）ケトン、１，４－ビス（４，４－ジヒドロキシトリフェニルメチル）ベンゼン、またはトリメリット酸、ピロメリット酸、ベンゾフェノンテトラカルボン

酸およびこれらの酸クロライド等が挙げられ、中でも１，１，１－トリス（４－ヒドロキシフェニル）エタン、１，１，１－トリス（３，５－ジメチル－４－ヒドロキシフェニル）エタンが好ましく、特に１，１，１－トリス（４－ヒドロキシフェニル）エタンが好ましい。

[0021] 分岐ポリカーボネートにおける多官能性芳香族化合物から誘導される構成単位は、２価フェノールから誘導される構成単位とかかる多官能性芳香族化合物から誘導される構成単位との合計１００モル％中、好ましくは０．０１～１モル％、より好ましくは０．０５～０．９モル％、さらに好ましくは０．０５～０．８モル％である。

[0022] また、特に溶融エステル交換法の場合、副反応として分岐構造単位が生ずる場合があるが、かかる分岐構造単位量についても、２価フェノールから誘導される構成単位との合計１００モル％中、好ましくは０．００１～１モル％、より好ましくは０．００５～０．９モル％、さらに好ましくは０．０１～０．８モル％であるものが好ましい。なお、かかる分岐構造の割合については^{1}Ｈ－ＮＭＲ測定により算出することが可能である。

[0023] 脂肪族の二官能性のカルボン酸は、α，ω－ジカルボン酸が好ましい。脂肪族の二官能性のカルボン酸としては例えば、セバシン酸（デカン二酸）、ドデカン二酸、テトラデカン二酸、オクタデカン二酸、イコサン二酸などの直鎖飽和脂肪族ジカルボン酸、並びにシクロヘキサンジカルボン酸などの脂環族ジカルボン酸が好ましく挙げられる。二官能性アルコールとしては脂環族ジオールがより好適であり、例えばシクロヘキサンジメタノール、シクロヘキサンジオール、およびトリシクロデカンジメタノールなどが例示される。

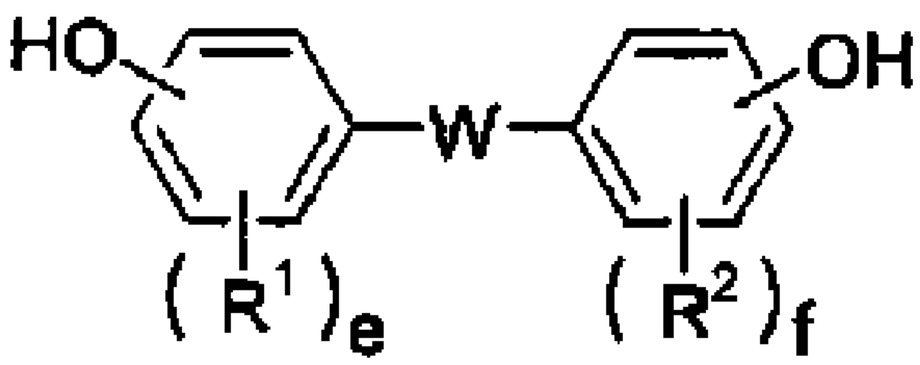
[0024] 本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂の製造方法である界面重合法、溶融エステル交換法、カーボネートプレポリマー固相エステル交換法、および環状カーボネート化合物の開環重合法などの反応形式は、各種の文献および特許公報などで良く知られている方法である。

[0025] 本発明における芳香族ポリカーボネート樹脂のメルトボリュームレート（

３００℃、１．２ｋｇ荷重）は、特に限定されないが、好ましくは１～６０ｃｍ^3／１０ｍｉｎであり、より好ましくは３～３０ｃｍ^3／１０ｍｉｎ、さらに好ましくは５～２０ｃｍ^3／１０ｍｉｎである。メルトボリュームレートが１ｃｍ^3／１０ｍｉｎ未満の芳香族ポリカーボネート樹脂から得られる樹脂組成物は、射出成形時の流動性に劣る点で汎用性に劣る場合がある。一方、メルトボリュームレートが６０ｃｍ^3／１０ｍｉｎを超えるポリカーボネート系樹脂では、良好な機械的特性が得られない場合がある。なお、メルトボリュームレートは「ＭＶＲ」とも呼ばれ、はＩＳＯ１１３３に準拠して測定される。

[0026] 本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂（Ａ成分）としてポリカーボネート－ポリジオルガノシロキサン共重合樹脂を使用することも出来る。ポリカーボネート－ポリジオルガノシロキサン共重合樹脂とは下記一般式（１）で表される二価フェノールおよび下記一般式（３）で表されるヒドロキシアリール末端ポリジオルガノシロキサンを共重合させることにより調製される共重合樹脂であることが好ましい。

[0027] [化3]

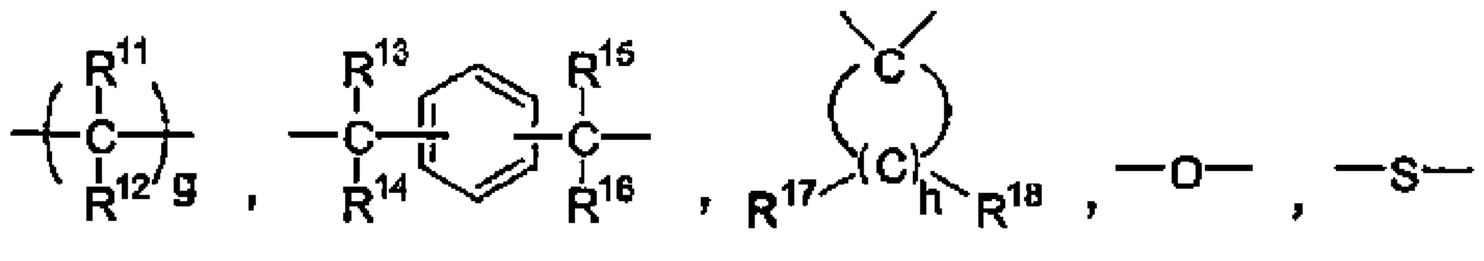


・・・(1)

[0028] ［上記一般式（１）において、Ｒ^{1}及びＲ^{2}は各々独立して水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数１～１８のアルキル基、炭素原子数１～１８のアルコキシ基、炭素原子数６～２０のシクロアルキル基、炭素原子数６～２０のシクロアルコキシ基、炭素原子数２～１０のアルケニル基、炭素原子数６～１４のアリール基、炭素原子数６～１４のアリールオキシ基、炭素原子数７～２０のアラルキル基、炭素原子数７～２０のアラルキルオキシ基、ニトロ基、アルデヒド基、シアノ基及びカルボキシル基からなる群から選ばれる基を表し、それぞれ複数ある場合、それらは同一でも異なっていても良く、ｅ及び

ｆは各々１～４の整数であり、Ｗは単結合もしくは下記一般式（２）で表される基からなる群より選ばれる少なくとも一つの基である。]

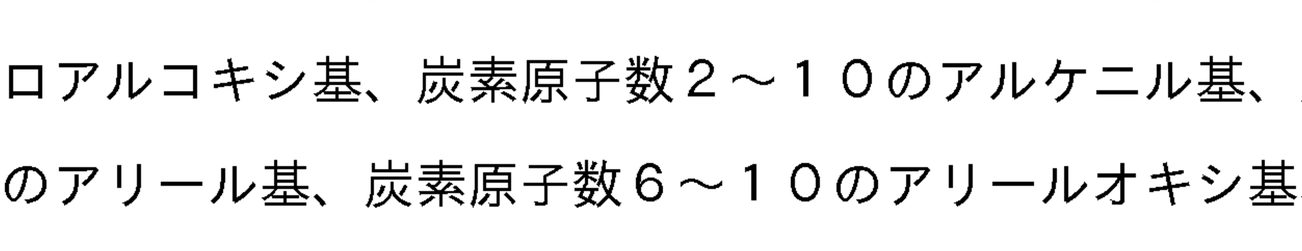
[0029] [化4]



・・・(2)

[0030] [上記一般式（２）においてＲ[11]，Ｒ[12]，Ｒ[13]，Ｒ[14]，Ｒ[15]，Ｒ[16]，Ｒ[17]及びＲ[18]は各々独立して水素原子、炭素原子数１～１８のアルキル基、炭素原子数６～１４のアリール基及び炭素原子数７～２０のアラルキル基からなる群から選ばれる基を表し、Ｒ[19]及びＲ[20]は各々独立して水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数１～１８のアルキル基、炭素原子数１～１０のアルコキシ基、炭素原子数６～２０のシクロアルキル基、炭素原子数６～２０のシクロアルコキシ基、炭素原子数２～１０のアルケニル基、炭素原子数６～１４のアリール基、炭素原子数６～１０のアリールオキシ基、炭素原子数７～２０のアラルキル基、炭素原子数７～２０のアラルキルオキシ基、ニトロ基、アルデヒド基、シアノ基及びカルボキシル基からなる群から選ばれる基を表し、複数ある場合、それらは同一でも異なっていても良く、ｇは１～１０の整数、ｈは４～７の整数である。]

[0031] [化5]



・・・(3)

[0032] [上記一般式（３）において、Ｒ[3]、Ｒ[4]、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]及びＲ[8]は、各々独立して水素原子、炭素数１～１２のアルキル基及び炭素数６～１２の置換若しくは無置換のアリール基からなる群から選ばれる基を表し、Ｒ[9]及びＲ[10]は各々独立して水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数１～１０のアルキル基及

び炭素原子数１～１０のアルコキシ基からなる群から選ばれる基を表し、ｐは自然数であり、ｑは０又は自然数であり、ｐ＋ｑは１０～３００の自然数である。Ｘは炭素数２～８の二価脂肪族基である。]

[0033] 一般式（１）で表される二価フェノール（Ｉ）としては、例えば、４，４’－ジヒドロキシビフェニル、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、１，１－ビス（４－ヒドロキシフェニル）－１－フェニルエタン、２，２－ビス（４－ヒドロキシフェニル）プロパン、２，２－ビス（４－ヒドロキシ－３－メチルフェニル）プロパン、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、２，２－ビス（４－ヒドロキシ－３，３’－ビフェニル）プロパン、２，２－ビス（４－ヒドロキシ－３－イソプロピルフェニル）プロパン、２，２－ビス（３－ｔ－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（３－ブロモ－４－ヒドロキシフェニル）プロパン、２，２－ビス（３，５－ジメチル－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（３－シクロヘキシル－４－ヒドロキシフェニル）シクロヘキサン、ビス（４－ヒドロキシフェニル）ジフェニルメタン、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、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）シクロペンタン、４，４’－ジヒドロキシジフェニルエーテル、４，４’－ジヒドロキシ－３，３’－ジメチルジフェニルエーテル、４，４’－スルホニルジフェノール、４，４’－ジヒドロキシジフェニルスルホキシド、４，４’－ジヒドロキシジフェニルスルフィド、２，２’－ジメチル－４，４’－スルホニルジフェノール、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、４，４’－ジヒドロキシ－３，３’－ジメチルジフェニルスルフィド、２，２’－ジフェニル－４，４’－スルホニ

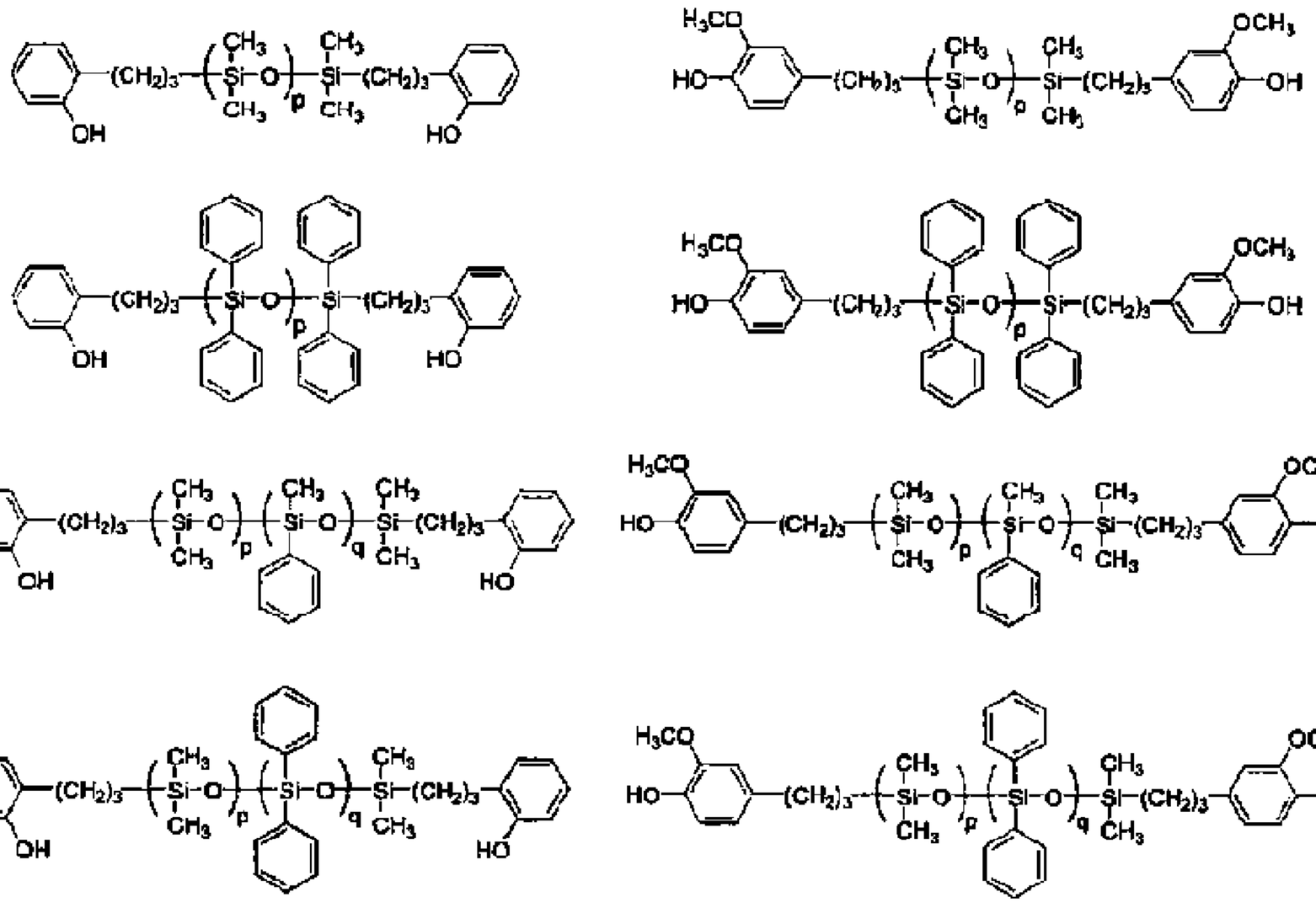
ルジフェノール、４，４’－ジヒドロキシ－３，３’－ジフェニルジフェニルスルホキシド、４，４’－ジヒドロキシ－３，３’－ジフェニルジフェニルスルフィド、１，３－ビス｛２－（４－ヒドロキシフェニル）プロピル｝ベンゼン、１，４－ビス｛２－（４－ヒドロキシフェニル）プロピル｝ベンゼン、１，４－ビス（４－ヒドロキシフェニル）シクロヘキサン、１，３－ビス（４－ヒドロキシフェニル）シクロヘキサン、４，８－ビス（４－ヒドロキシフェニル）トリシクロ［５．２．１．０２，６］デカン、４，４’－（１，３－アダマンタンジイル）ジフェノール、１，３－ビス（４－ヒドロキシフェニル）－５，７－ジメチルアダマンタン等が挙げられる。

[0034] なかでも、１，１－ビス（４－ヒドロキシフェニル）－１－フェニルエタン、２，２－ビス（４－ヒドロキシフェニル）プロパン、２，２－ビス（４－ヒドロキシ－３－メチルフェニル）プロパン、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、４，４’－スルホニルジフェノール、２，２’－ジメチル－４，４’－スルホニルジフェノール、９，９－ビス（４－ヒドロキシ－３－メチルフェニル）フルオレン、１，３－ビス｛２－（４－ヒドロキシフェニル）プロピル｝ベンゼン、１，４－ビス｛２－（４－ヒドロキシフェニル）プロピル｝ベンゼンが好ましく、殊に２，２－ビス（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）シクロヘキサン（ＢＰＺ）、４，４’－スルホニルジフェノール、９，９－ビス（４－ヒドロキシ－３－メチルフェニル）フルオレンが好ましい。中でも強度に優れ、良好な耐久性を有する２，２－ビス（４－ヒドロキシフェニル）プロパンが最も好適である。また、これらは単独または二種以上組み合わせて用いてもよい。

[0035] 上記一般式（３）で表されるヒドロキシアリール末端ポリジオルガノシロキサンとしては、例えば下記に示すような化合物が好適に用いられる。

[0036]

[化6]



[0037] ヒドロキシアリール末端ポリジオルガノシロキサン（ＩＩ）は、オレフィン性の不飽和炭素－炭素結合を有するフェノール類、好適にはビニルフェノール、２－アリルフェノール、イソプロペニルフェノール、２－メトキシ－４－アリルフェノールを所定の重合度を有するポリシロキサン鎖の末端に、ハイドロシリレーション反応させることにより容易に製造される。なかでも、（２－アリルフェノール）末端ポリジオルガノシロキサン、（２－メトキシ－４－アリルフェノール）末端ポリジオルガノシロキサンが好ましく、殊に（２－アリルフェノール）末端ポリジメチルシロキサン、（２－メトキシ－４－アリルフェノール）末端ポリジメチルシロキサンが好ましい。ヒドロキシアリール末端ポリジオルガノシロキサン（ＩＩ）は、その分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が３以下であることが好ましい。さらに優れた高温成形時の低アウトガス性と低温衝撃性を発現させるために、かかる分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）はより好ましくは２．５以下であり、さらに好ましくは２以下である。かかる好適な範囲の上限を超えると高温成形時のアウトガス発生量が多く、また、低温衝撃性に劣る場合がある。

[0038] また、高度な耐衝撃性を実現するためにヒドロキシアリール末端ポリジオ

ルガノシロキサン（ＩＩ）のジオルガノシロキサン重合度（ｐ＋ｑ）は１０～３００が適切である。かかるジオルガノシロキサン重合度（ｐ＋ｑ）は好ましくは１０～２００、より好ましくは１２～１５０、更に好ましくは１４～１００である。かかる好適な範囲の下限未満では、ポリカーボネート－ポリジオルガノシロキサン共重合体の特徴である耐衝撃性が有効に発現せず、かかる好適な範囲の上限を超えると外観不良が現れる。

[0039] ポリカーボネート－ポリジオルガノシロキサン共重合樹脂全重量に占めるポリジオルガノシロキサン含有量は０．１～５０重量％が好ましい。かかるポリジオルガノシロキサン成分含有量はより好ましくは０．５～３０重量％、さらに好ましくは１～２０重量％である。かかる好適な範囲の下限以上では、耐衝撃性や難燃性に優れ、かかる好適な範囲の上限以下では、成形条件の影響を受けにくい安定した外観が得られやすい。かかるポリジオルガノシロキサン重合度、ポリジオルガノシロキサン含有量は、^{1}Ｈ－ＮＭＲ測定により算出することが可能である。

[0040] 本発明において、ヒドロキシアリール末端ポリジオルガノシロキサン（ＩＩ）は１種のみを用いてもよく、また、２種以上を用いてもよい。

[0041] また、本発明の妨げにならない範囲で、上記二価フェノール（Ｉ）、ヒドロキシアリール末端ポリジオルガノシロキサン（ＩＩ）以外の他のコモノマーを共重合体の全重量に対して１０重量％以下の範囲で併用することもできる。

[0042] 本発明においては、あらかじめ水に不溶性の有機溶媒とアルカリ水溶液との混合液中における二価フェノール（Ｉ）と炭酸エステル形成性化合物の反応により末端クロロホルメート基を有するオリゴマーを含む混合溶液を調製する。

[0043] 二価フェノール（Ｉ）のオリゴマーを生成するにあたり、本発明の方法に用いられる二価フェノール（Ｉ）の全量を一度にオリゴマーにしてもよく、又は、その一部を後添加モノマーとして後段の界面重縮合反応に反応原料として添加してもよい。後添加モノマーとは、後段の重縮合反応を速やかに進

行させるために加えるものであり、必要のない場合には敢えて加える必要はない。

[0044] このオリゴマー生成反応の方式は特に限定はされないが、通常、酸結合剤の存在下、溶媒中で行う方式が好適である。

[0045] 炭酸エステル形成性化合物の使用割合は、反応の化学量論比（当量）を考慮して適宜調整すればよい。また、ホスゲン等のガス状の炭酸エステル形成性化合物を使用する場合、これを反応系に吹き込む方法が好適に採用できる。

[0046] 前記酸結合剤としては、例えば、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等のアルカリ金属水酸化物、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等のアルカリ金属炭酸塩、ピリジン等の有機塩基あるいはこれらの混合物などが用いられる。酸結合剤の使用割合も、上記同様に、反応の化学量論比（当量）を考慮して適宜定めればよい。具体的には、オリゴマーの形成に使用する二価フェノール（ｉ）のモル数（通常１モルは２当量に相当）に対して２当量若しくはこれより若干過剰量の酸結合剤を用いることが好ましい。

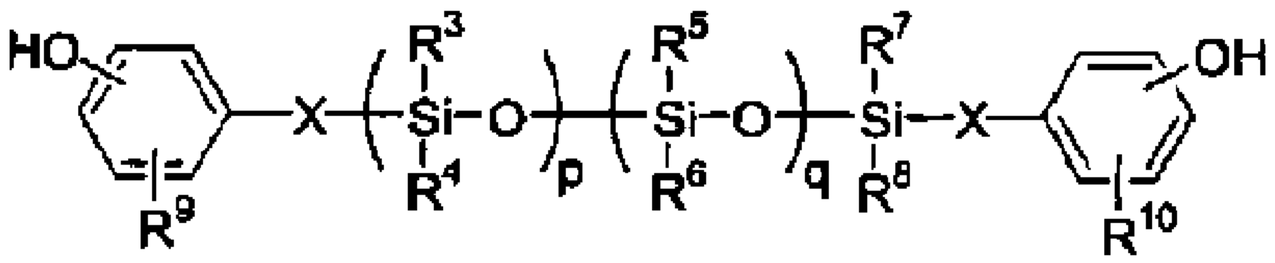
[0047] 前記溶媒としては、公知のポリカーボネートの製造に使用されるものなど各種の反応に不活性な溶媒を１種単独であるいは混合溶媒として使用すればよい。代表的な例としては、例えば、キシレン等の炭化水素溶媒、塩化メチレン、クロロベンゼンをはじめとするハロゲン化炭化水素溶媒などが挙げられる。特に塩化メチレン等のハロゲン化炭化水素溶媒が好適に用いられる。

[0048] オリゴマー生成の反応圧力は特に制限はなく、常圧、加圧、減圧のいずれでもよいが、通常常圧下で反応を行うことが有利である。反応温度は－２０～５０℃の範囲から選ばれ、多くの場合、重合に伴い発熱するので、水冷又は氷冷することが望ましい。反応時間は他の条件に左右され一概に規定できないが、通常、０．２～１０時間で行われる。オリゴマー生成反応のｐＨ範囲は、公知の界面反応条件と同様であり、ｐＨは常に１０以上に調製される。

[0049] 本発明はこのようにして、末端クロロホルメート基を有する二価フェノー

ル（Ｉ）のオリゴマーを含む混合溶液を得た後、該混合溶液を攪拌しながら分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が３以下まで高度に精製された一般式（３）で表わされるヒドロキシアリール末端ポリジオルガノシロキサン（ＩＩ）を二価フェノール（Ｉ）に加え、該ヒドロキシアリール末端ポリジオルガノシロキサン（ＩＩ）と該オリゴマーを界面重縮合させることによりポリカーボネートーポリジオルガノシロキサン共重合体を得る。

[0050] [化7]



・・・(3)

[0051] （上記一般式（３）において、Ｒ[3]、Ｒ[4]、Ｒ[5]、Ｒ[6]、Ｒ[7]及びＲ[8]は、各々独立して水素原子、炭素数１～１２のアルキル基又は炭素数６～１２の置換若しくは無置換のアリール基からなる群から選ばれる基を表し、Ｒ[9]及びＲ[10]は各々独立して水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数１～１０のアルキル基、炭素原子数１～１０のアルコキシ基からなる群から選ばれる基を表し、ｐは自然数であり、ｑは０又は自然数であり、ｐ＋ｑは１０～３００の自然数である。Ｘは炭素数２～８の二価脂肪族基である。）

[0052] 界面重縮合反応を行うにあたり、酸結合剤を反応の化学量論比（当量）を考慮して適宜追加してもよい。酸結合剤としては、例えば、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等のアルカリ金属水酸化物、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等のアルカリ金属炭酸塩、ピリジン等の有機塩基あるいはこれらの混合物などが用いられる。具体的には、使用するヒドロキシアリール末端ポリジオルガノシロキサン（ＩＩ）、又は上記の如く二価フェノール（Ｉ）の一部を後添加モノマーとしてこの反応段階に添加する場合には、後添加分の二価フェノール（Ｉ）とヒドロキシアリール末端ポリジオルガノシロキサン（ＩＩ）との合計モル数（通常１モルは２当量に相当）に対して２当量若しくはこれより過剰量のアルカリを用いることが好ましい。

[0053] 二価フェノール（Ｉ）のオリゴマーとヒドロキシアリール末端ポリジオル

ガノシロキサン（ＩＩ）との界面重縮合反応による重縮合は、上記混合液を激しく攪拌することにより行われる。

[0054] かかる重合反応においては、末端停止剤或いは分子量調節剤が通常使用される。末端停止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、通常のフェノール、ｐ－ｔｅｒｔ－ブチルフェノール、ｐ－クミルフェノール、トリブロモフェノールなどの他に、長鎖アルキルフェノール、脂肪族カルボン酸クロライド、脂肪族カルボン酸、ヒドロキシ安息香酸アルキルエステル、ヒドロキシフェニルアルキル酸エステル、アルキルエーテルフェノールなどが例示される。その使用量は用いる全ての二価フェノール系化合物１００モルに対して、１００～０．５モル、好ましくは５０～２モルの範囲であり、二種以上の化合物を併用することも当然に可能である。

[0055] 重縮合反応を促進するために、トリエチルアミンのような第三級アミン又は第四級アンモニウム塩などの触媒を添加してもよい。

かかる重合反応の反応時間は、好ましくは３０分以上、更に好ましくは５０分以上である。所望に応じ、亜硫酸ナトリウム、ハイドロサルファイドなどの酸化防止剤を少量添加してもよい。

[0056] 分岐化剤を上記の二価フェノール系化合物と併用して分岐化ポリカーボネートーポリジオルガノシロキサンとすることができる。かかる分岐ポリカーボネートーポリジオルガノシロキサン共重合樹脂に使用される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、フロログルシド、または４，６－ジメチル－２，４，６－トリス（４－ヒドロキシフェニル）ヘプテン－２、２，４，６－トリメチル－２，４，６－トリス（４－ヒドロキシフェニル）ヘプタン、１，３，５－トリス（４－ヒドロキシフェニル）ベンゼン、１，１，１－トリス（４－ヒドロキシフェニル）エタン、１，１，１－トリス（３，５－ジメチル－４－ヒドロキシフェニル）エタン、２，６－ビス（２－ヒドロキシ－５－メチルベンジル）－４－メチルフェノール、４－｛４－［１，１－ビス（４－ヒドロキシフェニル）エチル］ベンゼン｝－α，α－ジメチルベンジルフェノール等のトリスフェノール、テトラ（４－ヒ

ドロキシフェニル）メタン、ビス（２，４－ジヒドロキシフェニル）ケトン、１，４－ビス（４，４－ジヒドロキシトリフェニルメチル）ベンゼン、またはトリメリット酸、ピロメリット酸、ベンゾフェノンテトラカルボン酸およびこれらの酸クロライド等が挙げられ、中でも１，１，１－トリス（４－ヒドロキシフェニル）エタン、１，１，１－トリス（３，５－ジメチル－４－ヒドロキシフェニル）エタンが好ましく、特に１，１，１－トリス（４－ヒドロキシフェニル）エタンが好ましい。

[0057] 分岐ポリカーボネート－ポリジオルガノシロキサン共重合樹脂中の多官能性化合物の割合は、ポリカーボネート－ポリジオルガノシロキサン共重合樹脂全量中、好ましくは０．００１～１モル％、より好ましくは０．００５～０．９モル％、さらに好ましくは０．０１～０．８モル％、特に好ましくは０．０５～０．４モル％である。なお、かかる分岐構造量については^{1}Ｈ－ＮＭＲ測定により算出することが可能である。

[0058] 反応圧力は、減圧、常圧、加圧のいずれでも可能であるが、通常は、常圧若しくは反応系の自圧程度で好適に行い得る。反応温度は－２０～５０℃の範囲から選ばれ、多くの場合、重合に伴い発熱するので、水冷又は氷冷することが望ましい。反応時間は反応温度等の他の条件によって異なるので一概に規定はできないが、通常、０．５～１０時間で行われる。

[0059] 場合により、得られたポリカーボネート－ポリジオルガノシロキサン共重合樹脂に適宜物理的処理（混合、分画など）及び／又は化学的処理（ポリマー反応、架橋処理、部分分解処理など）を施して所望の還元粘度［ηＳＰ／ｃ］のポリカーボネート－ポリジオルガノシロキサン共重合樹脂として取得することもできる。

[0060] 得られた反応生成物（粗生成物）は公知の分離精製法等の各種の後処理を施して、所望の純度（精製度）のポリカーボネート－ポリジオルガノシロキサン共重合樹脂として回収することができる。

[0061] ポリカーボネート－ポリジオルガノシロキサン共重合樹脂成形品中のポリジオルガノシロキサンドメインの平均サイズは、１～４０ｎｍの範囲が好ま

しい。かかる平均サイズはより好ましくは１～３０ｎｍ、更に好ましくは５～２５ｎｍである。かかる好適な範囲の下限未満では、耐衝撃性や難燃性が十分に発揮されず、かかる好適な範囲の上限を超えると耐衝撃性が安定して発揮されない場合がある。これにより耐衝撃性および外観に優れた樹脂組成物が提供される。

[0062] 本発明におけるポリカーボネート－ポリジオルガノシロキサン共重合樹脂成形品のポリジオルガノシロキサンドメインの平均ドメインサイズ、小角エックス線散乱法（Ｓｍａｌｌ　Ａｎｇｌｅ　Ｘ－ｒａｙ　Ｓｃａｔｔｅｒｉｎｇ：ＳＡＸＳ）により評価した。小角エックス線散乱法とは、散乱角（２θ）＜１０°以内の小角領域で生じる散漫な散乱・回折を測定する方法である。この小角エックス線散乱法では、物質中に１～１００ｎｍ程度の大きさの電子密度の異なる領域があると、その電子密度差によりエックス線の散漫散乱が計測される。この散乱角と散乱強度に基づいて測定対象物の粒子径を求める。ポリカーボネートポリマーのマトリックス中にポリジオルガノシロキサンドメインが分散した凝集構造となるポリカーボネート－ポリジオルガノシロキサン共重合樹脂の場合、ポリカーボネートマトリックスとポリジオルガノシロキサンドメインの電子密度差により、エックス線の散漫散乱が生じる。散乱角（２θ）が１０°未満の範囲の各散乱角（２θ）における散乱強度Ｉを測定して、小角エックス線散乱プロファイルを測定し、ポリジオルガノシロキサンドメインが球状ドメインであり、粒径分布のばらつきが存在すると仮定して、仮の粒径と仮の粒径分布モデルから、市販の解析ソフトウェアを用いてシミュレーションを行い、ポリジオルガノシロキサンドメインの平均サイズを求める。小角エックス線散乱法によれば、透過型電子顕微鏡による観察では正確に測定できない、ポリカーボネートポリマーのマトリックス中に分散したポリジオルガノシロキサンドメインの平均サイズを、精度よく、簡便に、再現性良く測定することができる。平均ドメインサイズとは個々のドメインサイズの数平均を意味する。

[0063] 本発明に関連して用いる用語「平均ドメインサイズ」は、かかる小角エッ

クス線散乱法により、実施例記載の方法で作製した３段型プレートの厚み１．０ｍｍ部を測定することにより得られる測定値を示す。また、粒子間相互作用（粒子間干渉）を考慮しない孤立粒子モデルにて解析を行う。

[0064] （Ｂ成分：イオン対化合物）

本発明で用いられるイオン対化合物は、帯電防止剤として用いられ、融点が８０℃以下であり、ＴＧ－ＴＤＡで測定される５％重量減少温度が３５０℃以上であり、かつ下記式（１）

$R_1 > R_D - 20$ （１）

（式中、R_1は、イオン対化合物の含有量が２重量部である前記樹脂組成物の水滴の接触角（°）であり、R_Dは芳香族ポリカーボネート樹脂の水滴の接触角（°）である。）

を満足する。なお、イオン対化合物ではない帯電防止剤としては、グリセリン脂肪酸エステル等の界面活性剤があるが、これを使用した樹脂組成物は、持続的帯電防止性および熱安定性に劣る。また、イオン対化合物ではない帯電防止剤として、ポリエーテル等の高分子材料もあるが、これを使用した樹脂組成物は、透明性が出せない欠点や、熱安定性・荷重たわみ温度に劣る欠点がある。

[0065] イオン対化合物の融点が８０℃以下である必要性を下記に説明する。イオン対化合物は、融点が低いもの、特に、常温で液状のものを樹脂に添加することで、樹脂組成物が帯電防止性を持つようになることが知られている。その理由として、融点が低いイオン対化合物は、ある程度サイズの大きい有機化合物部位を有しているため、正電荷と負電荷のクーロン力が弱まることと、マトリックス樹脂との親和性が高まることにより、樹脂組成物中で適度に分散して、帯電防止性を発揮すると考えられている。特に、ポリカーボネート樹脂への添加を考える場合、融点が８０℃以下のものが、良好な帯電防止性を付与するのに適切である。反対に、融点が８０℃を超えるイオン対化合物は、上記クーロン力が強い、もしくは有機化合物部位が小さく樹脂との親和性が低いため、芳香族ポリカーボネート樹脂中で分散しにくく、良好な帯

電防止性を発揮しない。なお、イオン対化合物の融点は３０℃以下であることが好ましく、０℃以下であることがより好ましい。

[0066] ＴＧ－ＴＤＡで測定される５％重量減少温度が３５０℃以上である必要性を下記に説明する。この温度が低い場合、溶融混錬や射出成形など、樹脂化合物が高温に晒される環境にて、イオン対化合物の熱分解が発生しやすくなり、その熱分解で生成した化合物が樹脂高分子の熱分解にも寄与し、分子量低下などの不具合を生じさせる。特に、ポリカーボネート樹脂の場合、溶融混錬や射出成形などでの処理温度が３００～３５０℃に達する場合も多いため、３５０℃以上が適切である。なお、イオン対化合物のＴＧ－ＴＤＡで測定される５％重量減少温度は３５５℃以上であることが好ましく、３６０℃以上であることがより好ましい。

[0067] 式（１）を満足すべき理由を下記に説明する。イオン対化合物は、より疎水性を示すほど、イオン対化合物を含む樹脂組成物が水に接触する際の、イオン対化合物の水への溶出が抑えられるため、持続的帯電防止性が向上する。そして、イオン対化合物の疎水性の度合いは、イオン対化合物を添加した樹脂組成物に対する、水滴の接触角によって定義できる。もし式（１）を満足しない場合、イオン対化合物がより親水性を示すことを意味するため、樹脂組成物が水に接触する際の、イオン対化合物の水への溶出が多くなり、持続的帯電防止性を確保できない。さらに、より良好な持続的帯電防止性を確保するためには、下記式（２）を満足していることが好ましく、下記式（３）を満足することがより好ましい。

$R_1 > R_D - 15$ （２）

$R_1 \geqq R_D - 10$ （３）

（式中、R_1は、イオン対化合物の含有量が２重量部である前記樹脂組成物の水滴の接触角（°）であり、R_Dは熱可塑樹脂の水滴の接触角（°）である。）

[0068] 融点が８０℃以下であり、ＴＧ－ＴＤＡで測定される５％重量減少温度が３５０℃以上であり、かつ式（１）を満足するイオン対化合物は、下記式（

Ｉ）を満たすホスホニウム塩であることが好ましい。

[0069] [化8]

$$[(R_1)_3R_2P]^+ \cdot M^- \qquad (I)$$

（式中、Ｒ$_1$は炭素数６～１２のアルキル基を示し、Ｒ$_2$は炭素数１０～２０のアルキル基を示し、Ｍ$^-$は任意のアニオンを示す。）

また、上記式（Ｉ）におけるＭ$^-$は、下記式（ＩＩ）であることが好ましい。

[0070] [化9]

$$(R_3SO_2)(R_4SO_2)N^- \qquad (II)$$

（式中、Ｒ$_3$、Ｒ$_4$はそれぞれ炭素数１～４のパーフルオロアルキル基を示し、Ｒ$_3$、Ｒ$_4$は同一であっても異なっていてもよい。）

[0071] なお、上記式（Ｉ）において、Ｒ$_1$が炭素数６～８の直鎖アルキル基、Ｒ$_2$が炭素数１２～１６の直鎖アルキル基、Ｒ$_3$、Ｒ$_4$がそれぞれ炭素数１～４のパーフルオロアルキル基であることが好ましく、Ｒ$_1$が炭素数６の直鎖アルキル基、Ｒ$_2$が炭素数１４の直鎖アルキル基、Ｒ$_3$、Ｒ$_4$がそれぞれトリフルオロメチル基であることがより好ましい。

[0072] Ｂ成分の含有量はＡ成分１００重量部に対し、０．３～５重量部であり、好ましくは０．４～４重量部であり、より好ましくは０．５～３重量部である。Ｂ成分の含有量が０．３重量部未満では良好な帯電防止性が発現せず、５重量部より多いと、樹脂粘度が低下し、加工性が不安定になる。

[0073] （Ｃ成分：リン系熱安定剤）

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、加水分解性を促進させない程度において、リン系熱安定剤が配合されることが好ましい。かかるリン系熱安定剤は製造時または成形加工時の熱安定性を向上させ、機械的特性、色相、および成形安定性を向上させる。リン系熱安定剤としては、亜リン酸、リン酸、亜ホスホン酸、ホスホン酸およびこれらのエステル、並びに第３級ホス

フィンなどが例示される。

[0074] 具体的にはホスファイト化合物としては、例えば、トリフェニルホスファイト、トリス（ノニルフェニル）ホスファイト、トリデシルホスファイト、トリオクチルホスファイト、トリオクタデシルホスファイト、ジデシルモノフェニルホスファイト、ジオクチルモノフェニルホスファイト、ジイソプロピルモノフェニルホスファイト、モノブチルジフェニルホスファイト、モノデシルジフェニルホスファイト、モノオクチルジフェニルホスファイト、２，２－メチレンビス（４，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）オクチルホスファイト、トリス（ジエチルフェニル）ホスファイト、トリス（ジ－ｉｓｏ－プロピルフェニル）ホスファイト、トリス（ジ－ｎ－ブチルフェニル）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、トリス（２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）ホスファイト、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－ｔｅｒｔ－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－ｔｅｒｔ－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、ビス（２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－エチルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、フェニルビスフェノールＡペンタエリスリトールジホスファイト、ビス（ノニルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、ジシクロヘキシルペンタエリスリトールジホスファイトなどが挙げられる。

[0075] 更に他のホスファイト化合物としては二価フェノール類と反応し環状構造を有するものも使用できる。例えば、２，２’－メチレンビス（４，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）ホスファイト、２，２’－メチレンビス（４，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）（２－ｔｅｒｔ－ブチル－４－メチルフェニル）ホスファイト、２，２’－メチレンビス（４－メチル－６－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）（２－ｔｅｒｔ－ブチル－４－メチルフェニル）ホスファイト、２，２’－エチリデンビス（４－メチル－６－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）（２－ｔｅｒｔ

－ブチル－４－メチルフェニル）ホスファイトなどを挙げることができる。

[0076] ホスフェート化合物としては、トリブチルホスフェート、トリメチルホスフェート、トリクレジルホスフェート、トリフェニルホスフェート、トリクロルフェニルホスフェート、トリエチルホスフェート、ジフェニルクレジルホスフェート、ジフェニルモノオルソキセニルホスフェート、トリブトキシエチルホスフェート、ジブチルホスフェート、ジオクチルホスフェート、ジイソプロピルホスフェートなどを挙げることができ、好ましくはトリフェニルホスフェート、トリメチルホスフェートである。

[0077] ホスホナイト化合物としては、テトラキス（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－４，４’－ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－４，３’－ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－３，３’－ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス（２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－４，４’－ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス（２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－４，３’－ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス（２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－３，３’－ビフェニレンジホスホナイト、ビス（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－４－フェニル－フェニルホスホナイト、ビス（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－３－フェニル－フェニルホスホナイト、ビス（２，６－ジ－ｎ－ブチルフェニル）－３－フェニル－フェニルホスホナイト、ビス（２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－４－フェニル－フェニルホスホナイト、ビス（２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－３－フェニル－フェニルホスホナイト等が挙げられ、テトラキス（ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－ビフェニレンジホスホナイト、ビス（ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－フェニル－フェニルホスホナイトが好ましく、テトラキス（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－ビフェニレンジホスホナイト、ビス（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－フェニル－フェニルホスホナイトがより好ましい。かかるホスホナイト化合物は上記アルキル基が２以上置

換したアリール基を有するホスファイト化合物との併用可能であり好ましい。

[0078] ホスホネイト化合物としては、ベンゼンホスホン酸ジメチル、ベンゼンホスホン酸ジエチル、およびベンゼンホスホン酸ジプロピル等が挙げられる。第３級ホスフィンとしては、トリエチルホスフィン、トリプロピルホスフィン、トリブチルホスフィン、トリオクチルホスフィン、トリアミルホスフィン、ジメチルフェニルホスフィン、ジブチルフェニルホスフィン、ジフェニルメチルホスフィン、ジフェニルオクチルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリ－ｐ－トリルホスフィン、トリナフチルホスフィン、およびジフェニルベンジルホスフィンなどが例示される。特に好ましい第３級ホスフィンは、トリフェニルホスフィンである。上記リン系安定剤は、１種のみならず２種以上を混合して用いることができる。

[0079] 上記リン系安定剤の中でもトリメチルホスフェートに代表されるアルキルホスフェート化合物が配合されることが好ましい。またかかるアルキルホスフェート化合物と、ホスファイト化合物および／またはホスホナイト化合物との併用も好ましい態様である。リン系熱安定剤の含有量は、Ａ成分１００重量部に対して、好ましくは０．００１～０．５重量部、より好ましくは０．００５～０．３重量部、さらに好ましくは０．０１～０．２重量部である。

[0080] （その他の添加剤）

本発明のポリカーボネート樹脂組成物、その熱安定性、意匠性の改良のために、これらの改良に使用されている添加剤が有利に使用される。以下これら添加剤について具体的に説明する。

[0081] （Ｉ）リン系熱安定剤以外の熱安定剤

（ｉ）ヒンダードフェノール系安定剤

本発明のポリカーボネート樹脂組成物には、ヒンダードフェノール系安定剤を配合することができる。かかる配合は例えば成形加工時の色相悪化や長期間の使用における色相の悪化などを抑制する効果が発揮される。ヒンダー

ドフェノール系安定剤としては、例えば、α－トコフェロール、ブチルヒドロキシトルエン、シナピルアルコール、ビタミンＥ、ｎ－オクタデシル－β－（４’－ヒドロキシ－３’，５’－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェル）プロピオネート、２－ｔｅｒｔ－ブチル－６－（３’－ｔｅｒｔ－ブチル－５’－メチル－２’－ヒドロキシベンジル）－４－メチルフェニルアクリレート、２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－（Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノメチル）フェノール、３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシベンジルホスホネートジエチルエステル、２，２’－メチレンビス（４－メチル－６－ｔｅｒｔ－ブチルフェノール）、２，２’－メチレンビス（４－エチル－６－ｔｅｒｔ－ブチルフェノール）、４，４’－メチレンビス（２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェノール）、２，２’－メチレンビス（４－メチル－６－シクロヘキシルフェノール）、２，２’－ジメチレン－ビス（６－α－メチル－ベンジル－ｐ－クレゾール）２，２’－エチリデン－ビス（４，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェノール）、２，２’－ブチリデン－ビス（４－メチル－６－ｔｅｒｔ－ブチルフェノール）、４，４’－ブチリデンビス（３－メチル－６－ｔｅｒｔ－ブチルフェノール）、トリエチレングリコール－Ｎ－ビス－３－（３－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシ－５－メチルフェニル）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］、ビス［２－ｔｅｒｔ－ブチル－４－メチル６－（３－ｔｅｒｔ－ブチル－５－メチル－２－ヒドロキシベンジル）フェニル］テレフタレート、３，９－ビス｛２－［３－（３－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシ－５－メチルフェニル）プロピオニルオキシ］－１，１，－ジメチルエチル｝－２，４，８，１０－テトラオキサスピロ［５，５］ウンデカン、４，４’－チオビス（６－ｔｅｒｔ－ブチル－ｍ－クレゾール）、４，４’－チオビス（３－メチル－６－ｔｅｒｔ－ブチルフェノール）、２，２’－チオビス（４－メチル－６－ｔｅｒｔ－ブチルフェノール）、ビス（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシベンジル）スルフィド、４，４’－ジ－チオビス（２，６－ジ－ｔ

ｅｒｔ－ブチルフェノール）、４，４’－トリ－チオビス（２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェノール）、２，２－チオジエチレンビス－［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、Ｎ，Ｎ’－ヘキサメチレンビス－（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシヒドロシンナミド）、Ｎ，Ｎ’－ビス［３－（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオニル］ヒドラジン、１，１，３－トリス（２－メチル－４－ヒドロキシ－５－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）ブタン、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－ヒドロキシフェニル）イソシアヌレート、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、１，３，５－トリス（４－ｔｅｒｔ－ブチル－３－ヒドロキシ－２，６－ジメチルベンジル）イソシアヌレート、１，３，５－トリス２［３（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオニルオキシ］エチルイソシアヌレート、およびテトラキス［メチレン－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］メタンなどが例示される。これらはいずれも入手容易である。上記ヒンダードフェノール系安定剤は、単独でまたは２種以上を組合せて使用することができる。ヒンダードフェノール系安定剤の含有量は、Ａ成分１００重量部に対して、好ましくは０．０００１～１重量部、より好ましくは０．００１～０．５重量部である。

[0082] （ｉｉ）前記以外の熱安定剤

本発明のポリカーボネート樹脂組成物には、前記リン系安定剤およびヒンダードフェノール系安定剤以外の他の熱安定剤を配合することもできる。かかる他の熱安定剤としては、例えば３－ヒドロキシ－５，７－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－フラン－２－オンとｏ－キシレンとの反応生成物に代表されるラ

クトン系安定剤が好適に例示される。かかる安定剤の詳細は特開平７－２３３１６０号公報に記載されている。かかる化合物はＩｒｇａｎｏｘ　ＨＰ－１３６（商標、ＣＩＢＡ　ＳＰＥＣＩＡＬＴＹ　ＣＨＥＭＩＣＡＬＳ社製）として市販され、該化合物を利用できる。更に該化合物と各種のホスファイト化合物およびヒンダードフェノール化合物を混合した安定剤が市販されている。例えば前記社製のＩｒｇａｎｏｘＨＰ－２９２１が好適に例示される。ラクトン系安定剤の含有量は、Ａ成分１００重量部に対して、好ましくは０．０００５～０．０５重量部、より好ましくは０．００１～０．０３重量部である。

[0083] またその他の安定剤としては、ペンタエリスリトールテトラキス（３－メルカプトプロピオネート）、ペンタエリスリトールテトラキス（３－ラウリルチオプロピオネート）、およびグリセロール－３－ステアリルチオプロピオネートなどのイオウ含有安定剤が例示される。かかるイオウ含有安定剤の含有量は、Ａ成分１００重量部に対して、好ましくは０．００１～０．１重量部、より好ましくは０．０１～０．０８重量部である。

[0084] 本発明のポリカーボネート樹脂組成物には、必要に応じてエポキシ化合物を配合することができる。かかるエポキシ化合物は、金型腐食を抑制するという目的で配合されるものであり、基本的にエポキシ官能基を有するもの全てが適用できる。好ましいエポキシ化合物の具体例としては、３，４－エポキシシクロヘキシルメチル－３’，４’－エポキシシクロヘキシルカルボキシレート、２，２－ビス（ヒドロキシメチル）－１－ブタノールの１，２－エポキシ－４－（２－オキシラニル）シクロセキサン付加物、メチルメタクリレートとグリシジルメタクリレートの共重合体、スチレンとグリシジルメタクリレートの共重合体等が挙げられる。かかるエポキシ化合物の含有量は、Ａ成分１００重量部に対して、０．００３～０．２重量部が好ましく、より好ましくは０．００４～０．１５重量部であり、さらに好ましくは０．００５～０．１重量部である。

[0085] （ＩＩ）難燃剤

本発明のポリカーボネート樹脂組成物には、難燃剤を配合することができる。かかる化合物の配合は難燃性の向上をもたらすが、それ以外にも各化合物の性質に基づき、例えば帯電防止性、流動性、剛性、および熱安定性の向上などがもたらされる。かかる難燃剤としては、（ｉ）有機金属塩系難燃剤（例えば有機スルホン酸アルカリ（土類）金属塩、有機ホウ酸金属塩系難燃剤、および有機錫酸金属塩系難燃剤など）、（ｉｉ）有機リン系難燃剤（例えば、有機基含有のモノホスフェート化合物、ホスフェートオリゴマー化合物、ホスホネートオリゴマー化合物、ホスホニトリルオリゴマー化合物、およびホスホン酸アミド化合物など）、（ｉｉｉ）シリコーン化合物からなるシリコーン系難燃剤、（ｉｖ）フィブリル化ＰＴＦＥが挙げられ、その中でも有機金属塩系難燃剤、有機リン系難燃剤が好ましい。これらは一種または二種複合して使用しても良い。

[0086] （ｉ）有機金属塩系難燃剤

有機金属塩化合物は炭素原子数１～５０、好ましくは１～４０の有機酸のアルカリ（土類）金属塩、好ましくは有機スルホン酸アルカリ（土類）金属塩であることが好ましい。この有機スルホン酸アルカリ（土類）金属塩には、炭素原子数１～１０、好ましくは２～８のパーフルオロアルキルスルホン酸とアルカリ金属またはアルカリ土類金属との金属塩の如きフッ素置換アルキルスルホン酸の金属塩、並びに炭素原子数７～５０、好ましくは７～４０の芳香族スルホン酸とアルカリ金属またはアルカリ土類金属との金属塩が含まれる。金属塩を構成するアルカリ金属としてはリチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウムおよびセシウムが挙げられ、アルカリ土類金属としては、ベリリウム、マグネシウム、カルシウム、ストロンチウムおよびバリウムが挙げられる。より好適にはアルカリ金属である。かかるアルカリ金属の中でも、透明性の要求がより高い場合にはイオン半径のより大きいルビジウムおよびセシウムが好適である一方、これらは汎用的でなくまた精製もし難いことから、結果的にコストの点で不利となる場合がある。一方、リチウムおよびナトリウムなどのより小さいイオン半径の金属は逆に難燃性の点で不利

な場合がある。これらを勘案してスルホン酸アルカリ金属塩中のアルカリ金属を使い分けることができるが、いずれの点においても特性のバランスに優れたスルホン酸カリウム塩が最も好適である。かかるカリウム塩と他のアルカリ金属からなるスルホン酸アルカリ金属塩とを併用することもできる。

[0087] パーフルオロアルキルスルホン酸アルカリ金属塩の具体例としては、トリフルオロメタンスルホン酸カリウム、パーフルオロブタンスルホン酸カリウム、パーフルオロヘキサンスルホン酸カリウム、パーフルオロオクタンスルホン酸カリウム、ペンタフルオロエタンスルホン酸ナトリウム、パーフルオロブタンスルホン酸ナトリウム、パーフルオロオクタンスルホン酸ナトリウム、トリフルオロメタンスルホン酸リチウム、パーフルオロブタンスルホン酸リチウム、パーフルオロヘプタンスルホン酸リチウム、トリフルオロメタンスルホン酸セシウム、パーフルオロブタンスルホン酸セシウム、パーフルオロオクタンスルホン酸セシウム、パーフルオロヘキサンスルホン酸セシウム、パーフルオロブタンスルホン酸ルビジウム、およびパーフルオロヘキサンスルホン酸ルビジウム等が挙げられ、これらは１種もしくは２種以上を併用して使用することができる。ここでパーフルオロアルキル基の炭素数は、１～１８の範囲が好ましく、１～１０の範囲がより好ましく、更に好ましくは１～８の範囲である。

[0088] これらの中で特にパーフルオロブタンスルホン酸カリウムが好ましい。アルカリ金属からなるパーフルオロアルキルスルホン酸アルカリ（土類）金属塩中には、通常少なからず弗化物イオン（Ｆ－）が混入する。かかる弗化物イオンの存在は難燃性を低下させる要因となり得るので、できる限り低減されることが好ましい。かかる弗化物イオンの割合はイオンクロマトグラフィー法により測定できる。弗化物イオンの含有量は、１００ｐｐｍ以下が好ましく、４０ｐｐｍ以下が更に好ましく、１０ｐｐｍ以下が特に好ましい。また製造効率的に０．２ｐｐｍ以上であることが好適である。かかる弗化物イオン量の低減されたパーフルオロアルキルスルホン酸アルカリ（土類）金属塩は、製造方法は公知の製造方法を用い、かつ含フッ素有機金属塩を製造す

る際の原料中に含有される弗化物イオンの量を低減する方法、反応により得られた弗化水素などを反応時に発生するガスや加熱によって除去する方法、並びに含フッ素有機金属塩を製造に再結晶および再沈殿等の精製方法を用いて弗化物イオンの量を低減する方法などによって製造することができる。特に有機金属塩系難燃剤は比較的水に溶けやすいことから、イオン交換水、特に電気抵抗値が１８ＭΩ・ｃｍ以上、すなわち電気伝導度が約０．５５μＳ／ｃｍ以下を満足する水を用い、かつ常温よりも高い温度で溶解させて洗浄を行い、その後冷却させて再結晶化させる工程により製造することが好ましい。

[0089] 芳香族スルホン酸アルカリ（土類）金属塩の具体例としては、例えばジフェニルサルファイド－４，４’－ジスルホン酸ジナトリウム、ジフェニルサルファイド－４，４’－ジスルホン酸ジカリウム、５－スルホイソフタル酸カリウム、５－スルホイソフタル酸ナトリウム、ポリエチレンテレフタル酸ポリスルホン酸ポリナトリウム、１－メトキシナフタレン－４－スルホン酸カルシウム、４－ドデシルフェニルエーテルジスルホン酸ジナトリウム、ポリ（２，６－ジメチルフェニレンオキシド）ポリスルホン酸ポリナトリウム、ポリ（１，３－フェニレンオキシド）ポリスルホン酸ポリナトリウム、ポリ（１，４－フェニレンオキシド）ポリスルホン酸ポリナトリウム、ポリ（２，６－ジフェニルフェニレンオキシド）ポリスルホン酸ポリカリウム、ポリ（２－フルオロ－６－ブチルフェニレンオキシド）ポリスルホン酸リチウム、ベンゼンスルホネートのスルホン酸カリウム、ベンゼンスルホン酸ナトリウム、ベンゼンスルホン酸ストロンチウム、ベンゼンスルホン酸マグネシウム、ｐ－ベンゼンジスルホン酸ジカリウム、ナフタレン－２，６－ジスルホン酸ジカリウム、ビフェニル－３，３’－ジスルホン酸カルシウム、ジフェニルスルホン－３－スルホン酸ナトリウム、ジフェニルスルホン－３－スルホン酸カリウム、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－３，４’－ジスルホン酸ジカリウム、α，α，α－トリフルオロアセトフェノン－４－スルホン酸ナトリウム、ベンゾフェノ

ン－３，３’－ジスルホン酸ジカリウム、チオフェン－２，５－ジスルホン酸ジナトリウム、チオフェン－２，５－ジスルホン酸ジカリウム、チオフェン－２，５－ジスルホン酸カルシウム、ベンゾチオフェンスルホン酸ナトリウム、ジフェニルスルホキサイド－４－スルホン酸カリウム、ナフタレンスルホン酸ナトリウムのホルマリン縮合物、およびアントラセンスルホン酸ナトリウムのホルマリン縮合物などを挙げることができる。これら芳香族スルホン酸アルカリ（土類）金属塩では、特にカリウム塩が好適である。これらの芳香族スルホン酸アルカリ（土類）金属塩の中でも、ジフェニルスルホン－３－スルホン酸カリウム、およびジフェニルスルホン－３，３’－ジスルホン酸ジカリウムが好適であり、特にこれらの混合物（前者と後者の重量比が１５／８５～３０／７０）が好適である。

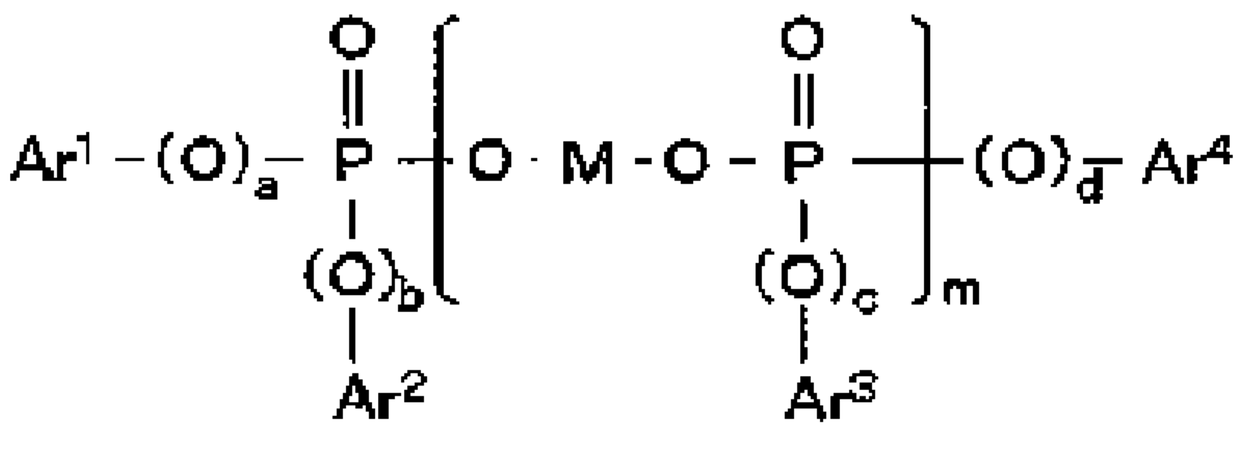
[0090] スルホン酸アルカリ（土類）金属塩以外の有機金属塩としては、硫酸エステルのアルカリ（土類）金属塩および芳香族スルホンアミドのアルカリ（土類）金属塩などが好適に例示される。硫酸エステルのアルカリ（土類）金属塩としては、特に一価および／または多価アルコール類の硫酸エステルのアルカリ（土類）金属塩を挙げることができ、かかる一価および／または多価アルコール類の硫酸エステルとしては、メチル硫酸エステル、エチル硫酸エステル、ラウリル硫酸エステル、ヘキサデシル硫酸エステル、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテルの硫酸エステル、ペンタエリスリトールのモノ、ジ、トリ、テトラ硫酸エステル、ラウリン酸モノグリセライドの硫酸エステル、パルミチン酸モノグリセライドの硫酸エステル、およびステアリン酸モノグリセライドの硫酸エステルなどを挙げることができる。これらの硫酸エステルのアルカリ（土類）金属塩として好ましくはラウリル硫酸エステルのアルカリ（土類）金属塩が挙げられる。芳香族スルホンアミドのアルカリ（土類）金属塩としては、例えばサッカリン、Ｎ－（ｐ－トリルスルホニル）－ｐ－トルエンスルホイミド、Ｎ－（Ｎ’－ベンジルアミノカルボニル）スルファニルイミド、およびＮ－（フェニルカルボキシル）スルファニルイミドのアルカリ（土類）金属塩などが挙げられる。有機金属塩系難燃剤

の含有量は、Ａ成分１００重量部に対して、好ましくは０．００１～１重量部、より好ましくは０．００５～０．５重量部、さらに好ましくは０．０１～０．３重量部、特に好ましくは０．０３～０．１５重量部である。

[0091] （ｉｉ）有機リン系難燃剤

有機リン系難燃剤としては、アリールホスフェート化合物、ホスファゼン化合物が好適に用いられる。これらの有機リン系難燃剤は可塑化効果があるため、成形加工性を高められる点で有利である。アリールホスフェート化合物は、従来難燃剤として公知の各種ホスフェート化合物が使用できるが、より好適には特に下記一般式（４）で表される１種または２種以上のホスフェート化合物を挙げることができる。

[0092] [化10]



・・・(4)

（但し上記式中のＭは、二価フェノールから誘導される二価の有機基を表し、Ａｒ[1]、Ａｒ[2]、Ａｒ[3]、およびＡｒ[4]はそれぞれ一価フェノールから誘導される一価の有機基を表す。ａ、ｂ、ｃ及びｄはそれぞれ独立して０または１であり、ｍは０～５の整数であり、重合度ｍの異なるリン酸エステルの混合物の場合、ｍはその平均値を表し、０～５の値である。）

[0093] 前記式のホスフェート化合物は、異なるｍ数を有する化合物の混合物であってもよく、かかる混合物の場合、平均のｍ数は好ましくは０．５～１．５、より好ましくは０．８～１．２、更に好ましくは０．９５～１．１５、特に好ましくは１～１．１４の範囲である。

[0094] 上記Ｍを誘導する二価フェノールの好適な具体例としては、ハイドロキノン、レゾルシノール、ビス（４－ヒドロキシジフェニル）メタン、ビスフェノールＡ、ジヒドロキシジフェニル、ジヒドロキシナフタレン、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、およびビス（４－ヒドロキシフェニル）サルファイドが例示され、中でも好ましくはレゾルシノール、ビスフェノールＡ、およびジヒドロキシジフェニルである。

[0095] 上記Ａｒ[1]、Ａｒ[2]、Ａｒ[3]、およびＡｒ[4]を誘導する一価フェノールの好適な具体例としては、フェノール、クレゾール、キシレノール、イソプロピルフェノール、ブチルフェノール、およびｐ－クミルフェノールが例示され、中でも好ましくはフェノール、および２，６－ジメチルフェノールである。

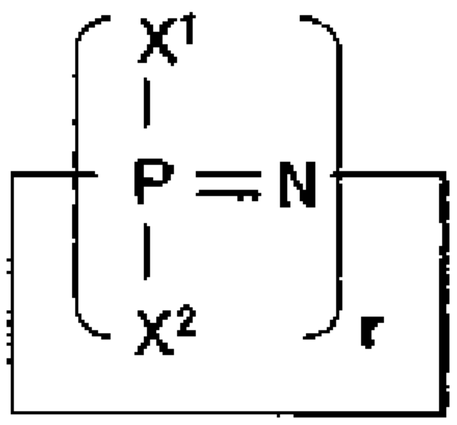
[0096] 尚、かかる一価フェノールはハロゲン原子で置換されてもよく、該一価フェノールから誘導される基を有するホスフェート化合物の具体例としては、トリス（２，４，６－トリブロモフェニル）ホスフェートおよびトリス（２，４－ジブロモフェニル）ホスフェート、トリス（４－ブロモフェニル）ホスフェートなどが例示される。

[0097] 一方、ハロゲン原子で置換されていないホスフェート化合物の具体例としては、トリフェニルホスフェートおよびトリ（２，６－キシリル）ホスフェートなどのモノホスフェート化合物、並びにレゾルシノールビスジ（２，６－キシリル）ホスフェート）を主体とするホスフェートオリゴマー、４，４－ジヒドロキシジフェニルビス（ジフェニルホスフェート）を主体とするホスフェートオリゴマー、およびビスフェノールＡビス（ジフェニルホスフェート）を主体とするリン酸エステルオリゴマーが好適である（ここで主体とするとは、重合度の異なる他の成分を少量含んでよいことを示し、より好適には前記式（４）におけるｍ＝１の成分が８０重量％以上、より好ましくは８５重量％以上、更に好ましくは９０重量％以上含有されることを示す。）。

[0098] ホスファゼン化合物は、従来難燃剤として公知の各種ホスファゼン化合物が使用できるが、下記一般式（５）、（６）で表されるホスファゼン化合物が好ましい。

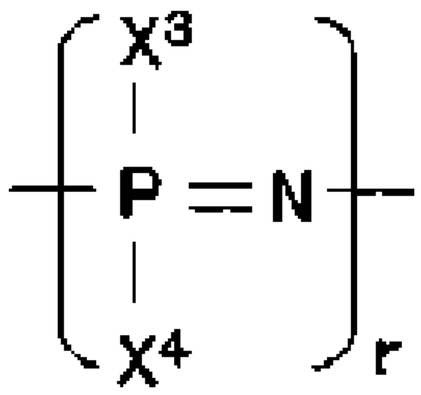
[0099]

[化11]



・・・(5)

[0100] [化12]



・・・(6)

（式中、X^1、X^2、X^3、X^4は、水素、水酸基、アミノ基、またはハロゲン原子を含まない有機基を表す。また、ｒは３～１０の整数を表す。）

[0101] 上記式（５）、（６）中、X^1、X^2、X^3、X^4で表されるハロゲン原子を含まない有機基としては、例えば、アルコキシ基、フェニル基、アミノ基、アリル基などが挙げられる。中でも上記式（５）で表される環状ホスファゼン化合物が好ましく、更に、上記式（５）中のX^1、X^2がフェノキシ基である環状フェノキシホスファゼンが特に好ましい。

[0102] 有機リン系難燃剤の含有量はＡ成分１００重量部に対して、１～５０重量部であることが好ましく、より好ましくは２～３０重量部であり、５～２０重量部がさらに好ましい。有機リン系難燃剤の配合量が１重量部未満であると難燃化の効果が得がたく、５０重量部を超えると混練押出時にストランド切れやサージングなどが起こり生産性が低下するという問題が生ずる場合がある。

[0103] （ｉｉｉ）シリコーン系難燃剤

シリコーン系難燃剤として使用されるシリコーン化合物は、燃焼時の化学反応によって難燃性を向上させるものである。該化合物としては従来芳香族ポリカーボート樹脂の難燃剤として提案された各種の化合物を使用すること

ができる。シリコーン化合物はその燃焼時にそれ自体が結合してまたは樹脂に由来する成分と結合してストラクチャーを形成することにより、または該ストラクチャー形成時の還元反応により、特にポリカーボネート樹脂を用いた場合に高い難燃効果を付与するものと考えられている。

[0104] したがってかかる反応における活性の高い基を含んでいることが好ましく、より具体的にはアルコキシ基およびハイドロジェン（即ちＳｉ－Ｈ基）から選択された少なくとも１種の基を所定量含んでいることが好ましい。かかる基（アルコキシ基、Ｓｉ－Ｈ基）の含有割合としては、０．１～１．２ｍｏｌ／１００ｇの範囲が好ましく、０．１２～１ｍｏｌ／１００ｇの範囲がより好ましく、０．１５～０．６ｍｏｌ／１００ｇの範囲が更に好ましい。かかる割合はアルカリ分解法より、シリコーン化合物の単位重量当たりに発生した水素またはアルコールの量を測定することにより求められる。尚、アルコキシ基は炭素数１～４のアルコキシ基が好ましく、特にメトキシ基が好適である。

[0105] 一般的にシリコーン化合物の構造は、以下に示す４種類のシロキサン単位を任意に組み合わせることによって構成される。すなわち、M単位：$(CH_3)_3SiO_{1/2}$、$H(CH_3)_2SiO_{1/2}$、$H_2(CH_3)SiO_{1/2}$、$(CH_3)_2(CH_2=CH)SiO_{1/2}$、$(CH_3)_2(C_6H_5)SiO_{1/2}$、$(CH_3)(C_6H_5)(CH_2=CH)SiO_{1/2}$等の１官能性シロキサン単位、Ｄ単位：$(CH_3)_2SiO$、$H(CH_3)SiO$、$H_2SiO$、$H(C_6H_5)SiO$、$(CH_3)(CH_2=CH)SiO$、$(C_6H_5)_2SiO$等の２官能性シロキサン単位、Ｔ単位：$(CH_3)SiO_{3/2}$、$(C_3H_7)SiO_{3/2}$、$HSiO_{3/2}$、$(CH_2=CH)SiO_{3/2}$、$(C_6H_5)SiO_{3/2}$等の３官能性シロキサン単位、Ｑ単位：$SiO_2$で示される４官能性シロキサン単位である。

[0106] シリコーン系難燃剤に使用されるシリコーン化合物の構造は、具体的には、示性式としてＤｎ、Ｔｐ、ＭｍＤｎ、ＭｍＴｐ、ＭｍＱｑ、ＭｍＤｎＴｐ、ＭｍＤｎＱｑ、ＭｍＴｐＱｑ、ＭｍＤｎＴｐＱｑ、ＤｎＴｐ、ＤｎＱｑ、ＤｎＴｐＱｑが挙げられる。この中で好ましいシリコーン化合物の構造は、

ＭｍＤｎ、ＭｍＴｐ、ＭｍＤｎＴｐ、ＭｍＤｎＱｑであり、さらに好ましい構造は、ＭｍＤｎまたはＭｍＤｎＴｐである。

[0107] ここで、前記示性式中の係数ｍ、ｎ、ｐ、ｑは各シロキサン単位の重合度を表す１以上の整数であり、各示性式における係数の合計がシリコーン化合物の平均重合度となる。この平均重合度は好ましくは３～１５０の範囲、より好ましくは３～８０の範囲、更に好ましくは３～６０の範囲、特に好ましくは４～４０の範囲である。かかる好適な範囲であるほど難燃性において優れるようになる。更に後述するように芳香族基を所定量含むシリコーン化合物においては透明性や色相にも優れる。その結果良好な反射光が得られる。またｍ、ｎ、ｐ、ｑのいずれかが２以上の数値である場合、その係数の付いたシロキサン単位は、結合する水素原子や有機残基が異なる２種以上のシロキサン単位とすることができる。

[0108] シリコーン化合物は、直鎖状であっても分岐構造を持つものであってもよい。またシリコン原子に結合する有機残基は炭素数１～３０、より好ましくは１～２０の有機残基であることが好ましい。かかる有機残基としては、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、およびデシル基などのアルキル基、シクロヘキシル基の如きシクロアルキル基、フェニル基の如きアリール基、並びにトリル基の如きアラルキル基を挙げることがでる。さらに好ましくは炭素数１～８のアルキル基、アルケニル基またはアリール基である。アルキル基としては、特にはメチル基、エチル基、およびプロピル基等の炭素数１～４のアルキル基が好ましい。さらにシリコーン系難燃剤として使用されるシリコーン化合物はアリール基を含有することが好ましい。一方、二酸化チタン顔料の有機表面処理剤としてのシラン化合物およびシロキサン化合物は、アリール基を含有しない方が好ましい効果が得られる点で、シリコーン系難燃剤とはその好適な態様において明確に区別される。シリコーン系難燃剤として使用されるシリコーン化合物は、前記Ｓｉ－Ｈ基およびアルコキシ基以外にも反応基を含有していてもよく、かかる反応基としては例えば、アミノ基、カルボキシル基、エポキシ基、ビニル

基、メルカプト基、およびメタクリロキシ基などが例示される。

[0109] シリコーン系難燃剤の含有量は、Ａ成分１００重量部に対して、好ましくは０．０１～２０重量部、より好ましくは０．５～１０重量部、さらに好ましくは１～５重量部である。

[0110] （ｉｖ）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（フィブリル化ＰＴＦＥ）

フィブリル化ＰＴＦＥは、フィブリル化ＰＴＦＥ単独であっても、混合形態のフィブリル化ＰＴＦＥすなわちフィブリル化ＰＴＦＥ粒子と有機系重合体からなるポリテトラフルオロエチレン系混合体であってもよい。フィブリル化ＰＴＦＥは極めて高い分子量を有し、せん断力などの外的作用によりＰＴＦＥ同士を結合して繊維状になる傾向を示すものである。その数平均分子量は、１５０万～数千万の範囲である。かかる下限はより好ましくは３００万である。かかる数平均分子量は、例えば特開平６－１４５５２０号公報に開示されているとおり、３８０℃でのポリテトラフルオロエチレンの溶融粘度に基づき算出される。即ち、フィブリル化ＰＴＦＥは、かかる公報に記載された方法で測定される３８０℃における溶融粘度が10^{7}～10^{13}ｐｏｉｓｅの範囲であり、好ましくは10^{8}～10^{12}ｐｏｉｓｅの範囲である。かかるＰＴＦＥ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。またかかるフィブリル化ＰＴＦＥは樹脂中での分散性を向上させ、さらに良好な難燃性および機械的特性を得るために他の樹脂との混合形態のＰＴＦＥ混合物を使用することも可能である。

[0111] また、特開平６－１４５５２０号公報に開示されているとおり、かかるフィブリル化ＰＴＦＥを芯とし、低分子量のポリテトラフルオロエチレンを殻とした構造を有するものも好ましく利用される。

[0112] かかるフィブリル化ＰＴＦＥの市販品としては例えば三井・デュポンフロロケミカル（株）のテフロン（登録商標）６Ｊ、ダイキン化学工業（株）のポリフロンＭＰＡ　ＦＡ５００、Ｆ－２０１Ｌなどを挙げることができる。

[0113] 混合形態のフィブリル化ＰＴＦＥとしては、（１）フィブリル化ＰＴＦＥ

の水性分散液と有機重合体の水性分散液または溶液とを混合し共沈殿を行い共凝集混合物を得る方法（特開昭６０－２５８２６３号公報、特開昭６３－１５４７４４号公報などに記載された方法）、（２）フィブリル化ＰＴＦＥの水性分散液と乾燥した有機重合体粒子とを混合する方法（特開平４－２７２９５７号公報に記載された方法）、（３）フィブリル化ＰＴＦＥの水性分散液と有機重合体粒子溶液を均一に混合し、かかる混合物からそれぞれの媒体を同時に除去する方法（特開平０６－２２０２１０号公報、特開平０８－１８８６５３号公報などに記載された方法）、（４）フィブリル化ＰＴＦＥの水性分散液中で有機重合体を形成する単量体を重合する方法（特開平９－９５５８３号公報に記載された方法）、および（５）ＰＴＦＥの水性分散液と有機重合体分散液を均一に混合後、更に該混合分散液中でビニル系単量体を重合し、その後混合物を得る方法（特開平１１－２９６７９号公報などに記載された方法）により得られたものが使用できる。

[0114] これらの混合形態のフィブリル化ＰＴＦＥの市販品としては、三菱レイヨン（株）の「メタブレン　Ａ３０００」（商品名）「メタブレン　Ａ３７００」（商品名）、「メタブレン　Ａ３８００」（商品名）で代表されるメタブレンＡシリーズ、Ｓｈｉｎｅ　Ｐｏｌｙｍｅｒ社のＳＮ３３００Ｂ７（商品名）、およびＧＥスペシャリティーケミカルズ社製「ＢＬＥＮＤＥＸ　Ｂ４４９」（商品名）などが例示される。

[0115] 混合形態におけるフィブリル化ＰＴＦＥの割合としては、かかる混合物１００重量％中、フィブリル化ＰＴＦＥが１重量％～９５重量％であることが好ましく、１０重量％～９０重量％であるのがより好ましく、２０重量％～８０重量％が最も好ましい。

[0116] 混合形態におけるフィブリル化ＰＴＦＥの割合がかかる範囲にある場合は、フィブリル化ＰＴＦＥの良好な分散性を達成することができる。フィブリル化ＰＴＦＥの含有量は、Ａ成分１００重量部に対して、好ましくは０．００１～０．５重量部であり、０．０１～０．５重量部がより好ましく、０．１～０．５重量部がさらに好ましい。

[0117] （ＩＩＩ）染顔料

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は更に各種の染顔料を含有し多様な意匠性を発現する成形品を提供できる。本発明で使用する染顔料としては、ペリレン系染料、クマリン系染料、チオインジゴ系染料、アンスラキノン系染料、チオキサントン系染料、紺青等のフェロシアン化物、ペリノン系染料、キノリン系染料、キナクリドン系染料、ジオキサジン系染料、イソインドリノン系染料、およびフタロシアニン系染料などを挙げることができる。更に本発明のポリカーボネート樹脂組成物はメタリック顔料を配合してより良好なメタリック色彩を得ることもできる。メタリック顔料としては、アルミ粉が好適である。また、蛍光増白剤やそれ以外の発光をする蛍光染料を配合することにより、発光色を生かした更に良好な意匠効果を付与することができる。

[0118] （ＩＶ）蛍光増白剤

本発明のポリカーボネート樹脂組成物において蛍光増白剤は、樹脂等の色調を白色あるいは青白色に改善するために用いられるものであれば特に制限はなく、例えばスチルベン系、ベンズイミダゾール系、ベンズオキサゾール系、ナフタルイミド系、ローダミン系、クマリン系、オキサジン系化合物等が挙げられる。具体的には例えばＣＩ　Ｆｌｕｏｒｅｓｃｅｎｔ　Ｂｒｉｇｈｔｅｎｅｒ　２１９：１や、イーストマンケミカル社製ＥＡＳＴＯＢＲＩＴＥ　ＯＢ－１や昭和化学（株）製「ハッコールＰＳＲ」、などを挙げることができる。ここで蛍光増白剤は、光線の紫外部のエネルギーを吸収し、このエネルギーを可視部に放射する作用を有するものである。蛍光増白剤の含有量はＡ成分１００重量部に対して、０．００１～０．１重量部が好ましく、より好ましくは０．００１～０．０５重量部である。０．１重量部を超えても該組成物の色調の改良効果は小さい。

[0119] （Ｖ）熱線吸収能を有する化合物

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は熱線吸収能を有する化合物を含有することができる。かかる化合物としてはフタロシアニン系近赤外線吸収剤

、ＡＴＯ、ＩＴＯ、酸化イリジウムおよび酸化ルテニウム、酸化イモニウム、酸化チタンなどの金属酸化物系近赤外線吸収剤、ホウ化ランタン、ホウ化セリウムおよびホウ化タングステンなどの金属ホウ化物系や酸化タングステン系近赤外線吸収剤などの近赤外吸収能に優れた各種の金属化合物、ならびに炭素フィラーが好適に例示される。かかるフタロシアニン系近赤外線吸収剤としてはたとえば三井化学（株）製ＭＩＲ－３６２が市販され容易に入手可能である。炭素フィラーとしてはカーボンブラック、グラファイト（天然、および人工のいずれも含む）およびフラーレンなどが例示され、好ましくはカーボンブラックおよびグラファイトである。これらは単体または２種以上を併用して使用することができる。フタロシアニン系近赤外線吸収剤の含有量は、Ａ成分１００重量部に対して、０．０００５～０．２重量部が好ましく、０．０００８～０．１重量部がより好ましく、０．００１～０．０７重量部がさらに好ましい。金属酸化物系近赤外線吸収剤、金属ホウ化物系近赤外線吸収剤および炭素フィラーの含有量は、本発明のポリカーボネート樹脂組成物中、０．１～２００ｐｐｍ（重量割合）の範囲が好ましく、０．５～１００ｐｐｍの範囲がより好ましい。

[0120] （ＶＩ）光拡散剤

本発明のポリカーボネート樹脂組成物には、光拡散剤を配合して光拡散効果を付与することができる。かかる光拡散剤としては高分子微粒子、炭酸カルシウムの如き低屈折率の無機微粒子、およびこれらの複合物等が例示される。かかる高分子微粒子は、既にポリカーボネート樹脂の光拡散剤として公知の微粒子である。より好適には粒径数μｍのアクリル架橋粒子およびポリオルガノシルセスキオキサンに代表されるシリコーン架橋粒子などが例示される。光拡散剤の形状は球形、円盤形、柱形、および不定形などが例示される。かかる球形は、完全球である必要はなく変形しているものを含み、かかる柱形は立方体を含む。好ましい光拡散剤は球形であり、その粒径は均一であるほど好ましい。光拡散剤の含有量は、Ａ成分１００重量部に対して、好ましくは０．００５～２０重量部、より好ましくは０．０１～１０重量部、

更に好ましくは０．０１～３重量部である。尚、光拡散剤は２種以上を併用することができる。

[0121] （ＶＩＩ）光高反射用白色顔料

本発明のポリカーボネート樹脂組成物には、光高反射用白色顔料を配合して光反射効果を付与することができる。かかる白色顔料としては二酸化チタン（特にシリコーンなど有機表面処理剤により処理された二酸化チタン）顔料が特に好ましい。かかる光高反射用白色顔料の含有量は、Ａ成分１００重量部に対して、３～３０重量部が好ましく、８～２５重量部がより好ましい。尚、光高反射用白色顔料は２種以上を併用することができる。

[0122] （ＶＩＩＩ）紫外線吸収剤

本発明のポリカーボネート樹脂組成物には紫外線吸収剤を配合して耐候性を付与することができる。かかる紫外線吸収剤としては、具体的にはベンゾフェノン系では、例えば、２，４－ジヒドロキシベンゾフェノン、２－ヒドロキシ－４－メトキシベンゾフェノン、２－ヒドロキシ－４－オクトキシベンゾフェノン、２－ヒドロキシ－４－ベンジロキシベンゾフェノン、２－ヒドロキシ－４－メトキシ－５－スルホキシベンゾフェノン、２，２’－ジヒドロキシ－４－メトキシベンゾフェノン、２，２’，４，４’－テトラヒドロキシベンゾフェノン、２，２’－ジヒドロキシ－４，４’－ジメトキシベンゾフェノン、２，２’－ジヒドロキシ－４，４’－ジメトキシ－５－ソジウムスルホキシベンゾフェノン、ビス（５－ベンゾイル－４－ヒドロキシ－２－メトキシフェニル）メタン、２－ヒドロキシ－４－ｎ－ドデシルオキシベンソフェノン、および２－ヒドロキシ－４－メトキシ－２’－カルボキシベンゾフェノンなどが例示される。

[0123] かかる紫外線吸収剤としては、具体的には、ベンゾトリアゾール系では、例えば、２－（２－ヒドロキシ－５－メチルフェニル）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－（２－ヒドロキシ－３，５－ジクミルフェニル）フェニルベンゾトリアゾール、２－（２－ヒドロキシ－３－ｔｅｒｔ－ブチル－５－メチ

ルフェニル）－５－クロロ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］、２－（２－ヒドロキシ－３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）ベンゾトリアゾール、２－（２－ヒドロキシ－３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－５－クロロベンゾトリアゾール、２－（２－ヒドロキシ－３，５－ジ－ｔｅｒｔ－アミルフェニル）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－（２－ヒドロキシ－５－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）ベンゾトリアゾール、２－（２－ヒドロキシ－４－オクトキシフェニル）ベンゾトリアゾール、２，２’－メチレンビス（４－クミル－６－ベンゾトリアゾールフェニル）、２，２’－ｐ－フェニレンビス（１，３－ベンゾオキサジン－４－オン）、および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、並びに２－（２’－ヒドロキシ－５－メタクリロキシエチルフェニル）－２Ｈ－ベンゾトリアゾールと該モノマーと共重合可能なビニル系モノマーとの共重合体や２－（２’－ヒドロキシ－５－アクリロキシエチルフェニル）－２Ｈ－ベンゾトリアゾールと該モノマーと共重合可能なビニル系モノマーとの共重合体などの２－ヒドロキシフェニル－２Ｈ－ベンゾトリアゾール骨格を有する重合体などが例示される。

[0124] かかる紫外線吸収剤は、具体的には、ヒドロキシフェニルトリアジン系では、例えば、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－ジフェニル－１，３，５－トリアジン－２－イル）－５－メチルオキシフェノール、２－（４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン－２－イル）－５－エチルオキシフェノール、２－（４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン－２－イル）－５－プロピルオキシフェノール、および２－（４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン－２－イル）－５－ブチルオキシフェノールなどが例示される。さらに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－ヘキシルオキシフェノールなど、上記例示化合物のフェニル基が２，４－ジメチルフェニル基となった化合物が例示される。

[0125] かかる紫外線吸収剤は、具体的には、環状イミノエステル系では、例えば２，２’－ｐ－フェニレンビス（３，１－ベンゾオキサジン－４－オン）、２，２’－ｍ－フェニレンビス（３，１－ベンゾオキサジン－４－オン）、および２，２’－ｐ，ｐ’－ジフェニレンビス（３，１－ベンゾオキサジン－４－オン）などが例示される。

[0126] かかる紫外線吸収剤としては、具体的には、シアノアクリレート系では、例えば１，３－ビス－［（２’－シアノ－３’，３’－ジフェニルアクリロイル）オキシ］－２，２－ビス［（２－シアノ－３，３－ジフェニルアクリロイル）オキシ］メチル）プロパン、および１，３－ビス－［（２－シアノ－３，３－ジフェニルアクリロイル）オキシ］ベンゼンなどが例示される。

[0127] さらに上記紫外線吸収剤は、ラジカル重合が可能な単量体化合物の構造をとることにより、かかる紫外線吸収性単量体および／または光安定性単量体と、アルキル（メタ）アクリレートなどの単量体とを共重合したポリマー型の紫外線吸収剤であってもよい。前記紫外線吸収性単量体としては、（メタ）アクリル酸エステルのエステル置換基中にベンゾトリアゾール骨格、ベンゾフェノン骨格、トリアジン骨格、環状イミノエステル骨格、およびシアノアクリレート骨格を含有する化合物が好適に例示される。

[0128] 前記紫外線吸収剤の中でも紫外線吸収能の点においては、ベンゾトリアゾール系およびヒドロキシフェニルトリアジン系が好ましく、耐熱性や色相の点では、環状イミノエステル系およびシアノアクリレート系が好ましい。具体的には例えばケミプロ化成（株）「ケミソーブ７９」、ＢＡＳＦジャパン（株）「チヌビン２３４」などが挙げられる。前記紫外線吸収剤は単独であるいは２種以上の混合物で用いてもよい。

[0129] 紫外線吸収剤の含有量は、Ａ成分１００重量部に対して、好ましくは０．０１～３重量部、より好ましくは０．０１～１重量部、さらに好ましくは０

．０５～１重量部、特に好ましくは０．０５～０．５重量部である。

[0130] （ＩＸ）充填材

本発明のポリカーボネート樹脂組成物には、繊維状充填剤以外の強化フィラーとして公知の各種充填材を配合することができる。かかる充填材としては、各種の板状充填材および粒状充填材が挙げられる。ここで、板状充填材はその形状が板状（表面に凹凸を有するものや、板が湾曲を有するものを含む）である充填材である。粒状充填材は、不定形状を含むこれら以外の形状の充填材である。

[0131] 板状充填材としては、ガラスフレーク、タルク、マイカ、カオリン、メタルフレーク、カーボンフレーク、およびグラファイト、並びにこれらの充填剤に対して例えば金属や金属酸化物などの異種材料を表面被覆した板状充填材などが好ましく例示される。その粒径は０．１～３００μｍの範囲が好ましい。かかる粒径は、１０μｍ程度までの領域は液相沈降法の１つであるＸ線透過法で測定された粒子径分布のメジアン径（Ｄ５０）による値をいい、１０～５０μｍの領域ではレーザー回折・散乱法で測定された粒子径分布のメジアン径（Ｄ５０）による値をいい、５０～３００μｍの領域では振動式篩分け法による値である。かかる粒径は樹脂組成物中での粒径である。板状充填材は、各種のシラン系、チタネート系、アルミネート系、およびジルコネート系などのカップリング剤で表面処理されてもよく、またオレフィン系樹脂、スチレン系樹脂、アクリル系樹脂、ポリエステル系樹脂、エポキシ系樹脂、およびウレタン系樹脂などの各種樹脂や高級脂肪酸エステルなどにより集束処理されるか、または圧縮処理された造粒物であってもよい。

[0132] （Ｘ）他の樹脂やエラストマー

本発明のポリカーボネート樹脂組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、樹脂成分の一部に代えて、他の樹脂やエラストマーを本発明の効果を発揮する範囲において、少割合使用することもできる。他の樹脂やエラストマーの配合量はＡ成分およびＢ成分からなる成分１００重量部に対して、好ましくは５０重量部以下、より好ましくは３０重量部以下である。かかる他

の樹脂としては、例えばポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート等のポリエステル樹脂、ポリアミド樹脂、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、シリコーン樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリフェニレンスルフィド樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリメタクリレート樹脂、フェノール樹脂、エポキシ樹脂等の樹脂が挙げられる。また、エラストマーとしては、例えばイソブチレン／イソプレンゴム、スチレン／ブタジエンゴム、エチレン／プロピレンゴム、アクリル系エラストマー、ポリエステル系エラストマー、ポリアミド系エラストマー、コアシェル型のエラストマーであるＭＢＳ（メタクリル酸メチル／スチレン／ブタジエン）ゴム、ＭＢ（メタクリル酸メチル／ブタジエン）ゴム、ＭＡＳ（メタクリル酸メチル／アクリロニトリル／スチレン）ゴム等が挙げられる。

[0133] （ＸＩ）その他の添加剤

本発明のポリカーボネート樹脂組成物には、その他の流動改質剤、抗菌剤、流動パラフィンの如き分散剤、光触媒系防汚剤およびフォトクロミック剤などを配合することができる。

[0134] ＜樹脂組成物の製造について＞

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、単軸押出機、二軸押出機の如き押出機を用いて、溶融混練することによりペレット化することができる。かかるペレットを作製するにあたり、上記各種強化充填剤、添加剤を配合することもできる。本発明の強化ポリカーボネート樹脂組成物は、通常前記の如く製造されたペレットを射出成形して各種製品を製造することができる。更にペレットを経由することなく、押出機で溶融混練された樹脂を直接シート、フィルム、異型押出成形品、ダイレクトブロー成形品、および射出成形品にすることも可能である。かかる射出成形においては、通常の成形方法だけでなく、適宜目的に応じて、射出圧縮成形、射出プレス成形、ガスアシスト射出成形、発泡成形（超臨界流体の注入によるものを含む）、インサート成形、インモールドコーティング成形、断熱金型成形、急速加熱冷却金型成形、二色成形、サンドイッチ成形、および超高速射出成形などの射出成形法を

用いて成形品を得ることができる。これら各種成形法の利点は既に広く知られるところである。また成形はコールドランナー方式およびホットランナー方式のいずれも選択することができる。また本発明の樹脂組成物は、押出成形により各種異形押出成形品、シート、およびフィルムなどの形で利用することもできる。またシート、フィルムの成形にはインフレーション法や、カレンダー法、キャスティング法なども使用可能である。さらに特定の延伸操作をかけることにより熱収縮チューブとして成形することも可能である。また本発明の樹脂組成物を回転成形やブロー成形などにより成形品とすることも可能である。

[0135] ＜成形品の製造＞

本発明のポリカーボネート樹脂組成物からなる樹脂成形体は、通常かかるペレットを射出成形して成形品を得ることができる。かかる射出成形においては、通常のコールドランナー方式の成形法だけでなく、ランナーレスを可能とするホットランナーによって製造することも可能である。また射出成形においても、通常の成形方法だけでなくガスアシスト射出成形、射出圧縮成形、超高速射出成形、射出プレス成形、二色成形、サンドイッチ成形、インモールドコーティング成形、インサート成形、発泡成形（超臨界流体を利用するものを含む）、急速加熱冷却金型成形、断熱金型成形および金型内再溶融成形、並びにこれらの組合せからなる成形法等を使用することができる。

実施例

[0136] 以下に、本発明を実施例により具体的に説明するが、本発明はそれら実施例に制限されるものではない。尚、「部」は断りの無い限り、重量基準に基づく。

表２に示す成分、配合量に基づき、タンブラーを用いて各種配合成分を混合し二軸押出機（神戸製鋼製ＨＹＰＥＲ　ＫＴＸ３０ＸＨＴ）を用いて、シリンダー温度２８０℃にて溶融混練し、各種ペレットを得た。

[0137] なお、使用した成分は、それぞれ次のとおりである。

（Ａ成分）

Ａ－１：帝人（株）製パンライトＬ－１２２５ＷＸ（粘度平均分子量：１９７００）Ａ－２：帝人（株）製パンライトＬ－１２２５ＷＰ（粘度平均分子量：２２４００）（Ｂ成分）

Ｂ－１：トリヘキシル（テトラデシル）ホスホニウムビス（トリフルオロメチルスルホニル）イミド（関東化学（株）製）

Ｂ－２（比較）：メチルエチルビス（トリフルオロメチルスルホニル）イミド（三菱マテリアル（株）製Ｐ１２Ｎ１１１）

Ｂ－３（比較）：パーフルオロブタンスルホン酸カリウム（大日本インキ化学工業（株）メガファックＦ－１１４Ｐ）

Ｂ－４（比較）：ドデシルベンゼンスルホン酸テトラブチルホスホニウム塩（ＤＢＳ－Ｐ）（竹本油脂（株）製）

（Ｃ成分）

Ｃ－１：リン系熱安定剤（（株）ＡＤＥＫＡ製アデカスタブ２１１２）

（その他成分）

Ｄ：フェノール系熱安定剤（（株）ＡＤＥＫＡ製アデカスタブＡＯ－５０）

Ｅ：脂肪酸エステル系離型剤（理研ビタミン（株）製リケマールＳＬ９００）

Ｆ：界面活性剤型帯電防止剤（非イオン対）（理研ビタミン（株）製ポエムＤＬ－１００）

[0138] 得られたペレットは、１２０℃で５時間熱風循環式乾燥機にて乾燥した後、射出成形機（シリンダー温度３００℃、金型温度８０℃）を用いて、評価用の試験片を成形し、下記の評価を実施した。

[0139] ［樹脂組成物の評価］

１．帯電防止性（水拭き前）：表面抵抗率

９０ｍｍ×５０ｍｍ×２ｍｍの平板試験片を上記条件で射出成形にて作成し、以下の条件にて測定を行った。すなわち、平板試験片を２３℃、５０％相対湿度の条件で４８時間以上状態調整した後、抵抗率計（（株）三菱ケミカルアナリック製高抵抗抵抗率計ＭＣＰ－ＨＴ４５０）を使用し、測定電圧

１０００Ｖの条件で表面固有抵抗率を測定した。表面抵抗率が１×１０^{14}Ω／□未満を○、１×１０^{14}Ω／□以上を×とした。

[0140] ２．帯電防止性（水拭き後）：表面抵抗率

５００ｇの円柱状錘を、水で濡らせたキムタオル（日本製紙クレシア（株）製）で包んだ後、上記平板試験片の上に置き、１０回滑らせて表面を水拭きした。次に、水滴を拭取るために乾燥したキムワイプで表面を３回軽く拭いた。その後、１．と同じ手法で、表面抵抗率を評価した。１．で評価した初期の値と同じオーダーの表面抵抗率を示す場合を○とした。

[0141] ３．熱安定性：粘度平均分子量

射出成形において、１０分間成形を中止した後に成形した成形品の粘度平均分子量（M_1）およびペレットの粘度平均分子量（M_0）を、明細書に記載した手法にて測定した。$M_0-M_1<2,000$を満たす場合を○、満たさない場合を×とした。

[0142] ［イオン対化合物の評価］

１．５％重量減少温度

ＴＧ－ＤＴＡ分析装置（Ｒｉｇａｋｕ製Ｔｈｅｒｍｏ　ｐｌｕｓ　ＥＶＯ２）を用い、空気雰囲気下、昇温速度２０℃／ｍｉｎの条件で測定した。

２．水滴の接触角

接触角測定装置（エルマ販売（株）製Ｇ－Ｉ－１０００）を用い、２３℃×５０％の条件で、ポリカーボネート樹脂（Ａ－１）の水滴の接触角（R_D）および該ポリカーボネート樹脂１００重量部に対し各イオン対化合物を２重量部含有する樹脂組成物の水滴の接触角（R_1）を、それらの樹脂を用いて上記条件で射出成形して得られた平板試験片の上に水滴を滴下することにより測定した。

[0143] 表１に、Ｂ－１～Ｂ－４の融点、５％重量減少温度および水滴の接触角を示す。なお、ポリカーボネート樹脂の水滴の接触角（R_D）は８８（°）である。

[0144]

[表1]

イオン対化合物	融点(℃)	5%重量減少温度(℃)	水滴の接触角(°)	
			R_1	R_D-20
B-1	<80	361	78	68
B-2	90	395	71	
B-3	254	450	86	
B-4	<80	311	58	

[0145] ［実施例１～７、比較例１～６］

表２に、評価結果を示す。実施例１～実施例７は、いずれも良好な結果を示した。比較例１は、Ｂ成分を含んでおらず、帯電防止性が発現しない。比較例２および比較例３は、融点が８０℃を超えるイオン対化合物（Ｂ－２、Ｂ－３）をそれぞれ含有しており、水拭き前の表面抵抗率が高く、帯電防止性が発現しない。比較例４は、５％重量減少温度が３５０℃未満であり、R_D－２０がR_1より大きいイオン対化合物（Ｂ－４）を含有しており、持続的帯電防止性に劣る。さらに、射出成形における滞留後の成形品の粘度平均分子量の低下が大きく、熱安定性に劣る。比較例５は、界面活性剤型の帯電防止剤（Ｆ）を含有しており、持続的帯電防止性および熱安定性に劣る。なお、比較例６はＢ成分の含有量が５重量部を超えるため、ペレットの粘度が低下する影響で計量不安定となり、評価に適する成形品が取得できなかった。

[0146]

[表2]

			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	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6
A成分		A-1	100	100	100	100		100	100	100	100	100			100
		A-2					100						100	100	
B成分		B-1	2	0.5	1	1	1	1	5						7
		B-2									2				
		B-3										2			
		B-4											2		
C成分		C-1	0.03	0.03	0.03		0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03
その他成分		D						0.05	0.05						0.05
		E	0.2	0.2	0.2		0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
		F												1	
帯電防止性	表面抵抗率（Ω/□）	水拭き前	$5.1x10^{11}$	$8.5x10^{13}$	$6.8x10^{12}$	$7.0x10^{12}$	$7.5x10^{12}$	$6.4x10^{12}$	$1.0x10^{11}$	$>1x10^{15}$	$>1x10^{15}$	$>1x10^{15}$	$9.1x10^{13}$	$4.2x10^{13}$	成形不良（計量不安定）
		水拭き後	$6.0x10^{11}$	$8.8x10^{13}$	$7.0x10^{12}$	$7.9x10^{12}$	$8.4x10^{12}$	$6.5x10^{12}$	$1.1x10^{11}$	-	-	-	$>1x10^{15}$	$>1x10^{15}$	
	評価	水拭き前	○	○	○	○	○	○	○	×	×	×	○	○	
		水拭き後	○	○	○	○	○	○	○	-	-	-	×	×	
熱安定性	粘度平均分子量（Mv）	ペレット（M_0）	19200	19400	19300	19200	22000	19400	18400	19500	19300	19400	20800	20700	
		成形品（滞留後）（M_1）	18400	19200	18800	18100	21600	18900	17000	19400	18900	18800	18500	18700	
		M_0-M_1	800	200	500	1100	400	500	1400	100	400	600	2300	2000	
	評価		○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	×	×	

請求の範囲

[請求項1] （Ａ）芳香族ポリカーボネート樹脂（Ａ成分）、及び

前記芳香族ポリカーボネート樹脂１００重量部に対し、（Ｂ）イオン対化合物（Ｂ成分）を０．３～５重量部含有する樹脂組成物であって、

前記イオン対化合物が、

融点が８０℃以下であり、

ＴＧ－ＴＤＡで測定される５％重量減少温度が３５０℃以上であり、かつ

下記式（１）

$R_1 > R_D - 20$ （１）

（式中、R_1は、イオン対化合物の含有量が２重量部である前記樹脂組成物の水滴の接触角（°）であり、R_Dは芳香族ポリカーボネート樹脂の水滴の接触角（°）である。）

を満足することを特徴とする樹脂組成物。

[請求項2] 下記式（２）を満足することを特徴とする請求項１記載の樹脂組成物。

$R_1 > R_D - 15$ （２）

（式中、R_1は、イオン対化合物の含有量が２重量部である前記樹脂組成物の水滴の接触角（°）であり、R_Dは芳香族ポリカーボネート樹脂の水滴の接触角（°）である。）

[請求項3] 前記イオン対化合物が下記式（Ｉ）で表される化合物であることを特徴とする請求項１または２に記載の樹脂組成物。

[化1]

$$[(R_1)_3R_2P]^+ \cdot M^- \qquad (I)$$

（式中、R_1は炭素数６～１２のアルキル基を示し、R_2は炭素数１０～２０のアルキル基を示し、M^-は任意のアニオンを示す。）

[請求項4] M⁻が下記式（ＩＩ）であることを特徴とする請求項３に記載の樹脂組成物。

[化2]

$$(R_3SO_2)(R_4SO_2)N^- \quad (II)$$

（式中、R_3、R_4はそれぞれ炭素数１～４のパーフルオロアルキル基であり、R_3、R_4は同一であっても異なっていてもよい。）

[請求項5] R_1が炭素数６～８の直鎖アルキル基であり、R_2が炭素数１２～１６の直鎖アルキル基であり、R_3、R_4がそれぞれ炭素数１～４のパーフルオロアルキル基であることを特徴とする請求項３または４に記載の樹脂組成物。

[請求項6] R_1が炭素数６の直鎖アルキル基であり、R_2が炭素数１４の直鎖アルキル基であり、R_3、R_4がそれぞれトリフルオロメチル基であることを特徴とする請求項３または４に記載の樹脂組成物。

[請求項7] Ａ成分１００重量部に対し、（Ｃ）リン系熱安定剤（Ｃ成分）を０．００１～０．５重量部含有することを特徴とする請求項１～６のいずれかに記載の樹脂組成物。

[請求項8] 請求項１～７のいずれかに記載の樹脂組成物を成形してなる成形品。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2020/040122

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08K5/43(2006.01)i; C08K5/50(2006.01)i; C08K5/52(2006.01)i; C0869/00(2006.01)i
FI: C08L69/00; C08K5/50; C08K5/43; C08K5/52
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)
C08K5/43; C08K5/49-5/5399; C08L69/00

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	1971-2020
Registered utility model specifications of Japan	1996-2020
Published registered utility model applications of Japan	1994-2020

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.
X A	US 2009/0092915 A1 (XEROX CORPORATION) 09 April 2009 (2009-04-09) claims 1-6, paragraph [0057], examples I, III	1-6, 8 7
P, X	WO 2020/122055 A1 (MITSUBISHI GAS CHEMICAL CO., INC., MGC FILSHEET CO., LTD.) 18 June 2020 (2020-06-18) claims, paragraphs [0019], [0020], [0024]-[0030], [0034], [0043], examples 2-8	1-8
A	JP 2014-156536 A (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 28 August 2014 (2014-08-28)	1-8
A	WO 2004/056917 A1 (NIPPON CHEMICAL INDUSTRIAL CO., LTD., NAGASE & CO., LTD.) 08 July 2004 (2004-07-08)	1-8
A	US 2015/0299428 A1 (BAYER INTELLECTUAL PROPERTY GMBH) 22 October 2015 (2015-10-22)	1-8

☐ 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	Date of mailing of the international search report
22 December 2020 (22.12.2020)	28 December 2020 (28.12.2020)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2020/040122

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
US 2009/0092915 A1	09 Apr. 2009	(Family: none)	
WO 2020/122055 A1	18 Jun. 2020	(Family: none)	
JP 2014-156536 A	28 Aug. 2014	(Family: none)	
WO 2004/056917 A1	08 Jul. 2004	US 2006/0100326 A1 US 2009/0069472 A1 EP 1574548 A1 AU 2003292593 A KR 10-2005-0093788 A CN 1729242 A CN 101538376 A	
US 2015/0299428 A1	22 Oct. 2015	WO 2013/144102 A1 CN 104169351 A	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2020/040122

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08K 5/43(2006.01)i; C08K 5/50(2006.01)i; C08K 5/52(2006.01)i; C08L 69/00(2006.01)i
FI: C08L69/00; C08K5/50; C08K5/43; C08K5/52

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））

C08K5/43; C08K5/49-5/5399; C08L69/00

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	１９７１－２０２０年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２０年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２０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
X	US 2009/0092915 A1 (XEROX CORPORATION) 09.04.2009 (2009-04-09) 請求項1-6, [0057], EXAMPLE I, III	1-6,8
A		7
P, X	WO 2020/122055 A1 (三菱瓦斯化学株式会社, ＭＧＣフィルシート株式会社) 18.06.2020 (2020-06-18) 請求の範囲,[0019],[0020],[0024]-[0030],[0034],[0043], 実施例2-8	1-8
A	JP 2014-156536 A (出光興産株式会社) 28.08.2014 (2014-08-28)	1-8
A	WO 2004/056917 A1 (日本化学工業株式会社, 長瀬産業株式会社) 08.07.2004 (2004-07-08)	1-8
A	US 2015/0299428 A1 (BAYER INTELLECTUAL PROPERTY GMBH) 22.10.2015 (2015-10-22)	1-8

☐ 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抵触するものではなく、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	国際調査報告の発送日
22.12.2020	28.12.2020

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）
内田　靖恵 4J 9553
電話番号 03-3581-1101 内線 3457

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2020/040122

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
US 2009/0092915 A1	09.04.2009	（ファミリーなし）	
WO 2020/122055 A1	18.06.2020	（ファミリーなし）	
JP 2014-156536 A	28.08.2014	（ファミリーなし）	
WO 2004/056917 A1	08.07.2004	US 2006/0100326 A1	
		US 2009/0069472 A1	
		EP 1574548 A1	
		AU 2003292593 A	
		KR 10-2005-0093788 A	
		CN 1729242 A	
		CN 101538376 A	
US 2015/0299428 A1	22.10.2015	WO 2013/144102 A1	
		CN 104169351 A	