(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
2020年2月13日(13.02.2020)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2020/032210 A1

(51) 国際特許分類:
C08L 101/00 (2006.01) *C08L 23/00* (2006.01)
C08K 3/32 (2006.01) *C09K 21/10* (2006.01)
C08K 5/13 (2006.01) *C09K 21/12* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2019/031493

(22) 国際出願日： 2019年8月8日(08.08.2019)

(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 2018-152059 2018年8月10日(10.08.2018) JP

(71) 出願人: 株式会社ＡＤＥＫＡ (**ADEKA CORPORATION**) [JP/JP]; 〒1168554 東京都荒川区東尾久七丁目２番３５号 Tokyo (JP).

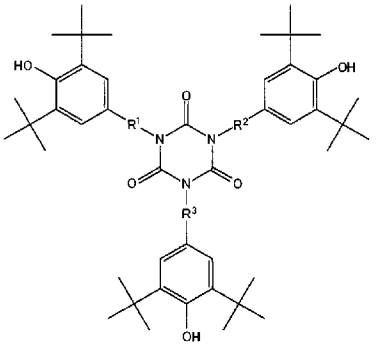
(72) 発明者: 丹治 直子(**TANJI Naoko**); 〒1168554 東京都荒川区東尾久七丁目２番３５号 株式会社ＡＤＥＫＡ内 Tokyo (JP). 米澤 豊(**YONEZAWA Yutaka**); 〒1168554 東京都荒川区東尾久七丁目２番３５号 株式会社ＡＤＥＫＡ内 Tokyo (JP). 櫻井 久史(**SAKURAI Hisashi**); 〒1168554 東京都荒川区東尾久七丁目２番３５号 株式会社ＡＤＥＫＡ内 Tokyo (JP). 三觜 彩香 (**MITSUHASHI Ayaka**); 〒1168554 東京都荒川区東尾久七丁目２番３５号 株式会社ＡＤＥＫＡ内 Tokyo (JP). 桑原 麻理沙(**KUWABARA Marisa**); 〒1168554 東京都荒川区東尾久七丁目２番３５号 株式会社ＡＤＥＫＡ内 Tokyo (JP). 阪野 圭亮(**BANNO Keisuke**); 〒1168554 東京都荒川区東尾久七丁目２番３５号 株式会社ＡＤＥＫＡ内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 本多 一郎(**HONDA Ichiro**); 〒1050001 東京都港区虎ノ門一丁目１４番１号 郵政福祉琴平ビル６階 本多国際特許事務所 Tokyo (JP).

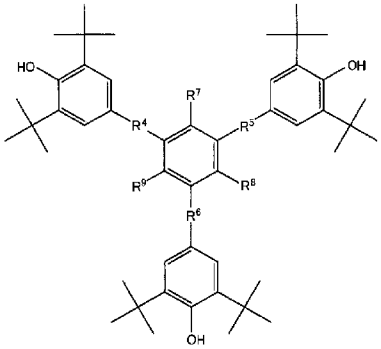
(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH,

(54) Title: ADDITIVE COMPOSITION, FLAME-RETARDANT SYNTHETIC RESIN COMPOSITION CONTAINING SAME, AND MOLDED ARTICLE THEREOF

(54) 発明の名称： 添加剤組成物、これを含有する難燃性合成樹脂組成物、およびその成形体



(1)



(2)

(57) Abstract: Provided are an additive composition capable of imparting exceptional heat resistance and flame retardancy to a synthetic resin, a flame-retardant synthetic resin composition containing the additive composition, and a molded article thereof. An additive composition containing one or more ammonium polyphosphates as component (A) and at least one or more selected from the group consisting of compounds represented by general formula (1) and compounds represented by general formula (2) as component (B), wherein: in general formula (1), R^1, R^2, and R^3 each independently represent a C1-3 divalent hydrocarbon group; and in general formula (2), R^4, R^5, and R^6 each independently represent a C1-3 divalent hydrocarbon group, and R^7, R^8, and R^9 each independently represent a hydrogen atom or a C1-4 monovalent hydrocarbon group.

WO 2020/032210 A1

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)）

(57) 要約：優れた耐熱性および難燃性を合成樹脂に付与することができる添加剤組成物、これを含有する難燃性合成樹脂組成物、およびその成形体を提供する。（Ａ）成分としてポリリン酸アンモニウムの１種以上と、（Ｂ）成分として下記一般式（１）で表される化合物および下記一般式（２）、で表される化合物からなる群より選ばれる少なくとも１種以上と、を含有する添加剤組成物であって、一般式（１）において、R^1、R^2およびR^3は、それぞれ独立して炭素原子数１～３の２価の炭化水素基を表し、一般式（２）において、R^4、R^5およびR^6は、それぞれ独立して炭素原子数１～３の２価の炭化水素基を表し、R^7、R^8およびR^9は、それぞれ独立して水素原子または炭素原子数１～４の１価の炭化水素基を表す。

明　細　書

発明の名称 ：

添加剤組成物、これを含有する難燃性合成樹脂組成物、およびその成形体

技術分野

[0001]　本発明は、添加剤組成物、これを含有する難燃性合成樹脂組成物（以下、単に「合成樹脂組成物」とも称す）、およびその成形体に関し、詳しくは、優れた耐熱性および難燃性を合成樹脂に付与することができる添加剤組成物、これを含有する難燃性合成樹脂組成物、およびその成形体に関する。

背景技術

[0002]　合成樹脂は、成形加工性、耐熱性および力学的特性等に優れている上、低比重、軽重量であるという利点があり、フィルム、シートおよび構造部品等の各種成形体に幅広く利用されている。また、合成樹脂を他のポリマーとブレンドし、耐衝撃性や弾性等の新たな物性を付与する試みが数多く行われている。

[0003]　しかしながら、ポリオレフィン系樹脂をはじめとした高い可燃性を持つ合成樹脂が幅広い分野で多く使用されているため、それら樹脂に難燃性を付与するために難燃剤の配合が必要不可欠となっている。このような難燃剤として、例えば、特許文献１および２では、ポリリン酸アンモニウムと窒素含有化合物を主成分とし、燃焼時に表面膨張層（ｌｎｔｕｍｅｓｃｅｎｔ）を形成することで分解生成物の拡散や伝熱を抑制し、難燃性を発揮させるイントメッセント系難燃剤が提案されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開平１１－２３６４７２号公報

特許文献2：特開２００５－２７５７４号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

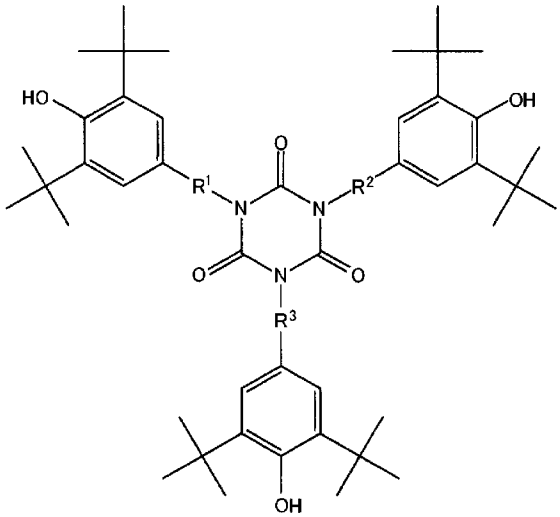
[0005] 今日、特に、家電や自動車のバッテリー周り等をはじめとした、高耐熱性および高難燃性が要求される用途においては、特に高いパフォーマンスが求められている。ここで、合成樹脂の、耐熱性および難燃性を両立するためには、イントメッセント系難燃剤と酸化防止剤を併用する必要がある。しかしながら、併用する酸化防止剤の種類によっては耐熱性能が不足したり、多量の添加が必要になったりする場合があり、従来よりも耐熱性および難燃性に優れた添加剤組成物が求められているのが現状である。

[0006] そこで、本発明の目的は、優れた耐熱性および難燃性を合成樹脂に付与することができる添加剤組成物、これを含有する難燃性合成樹脂組成物、およ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

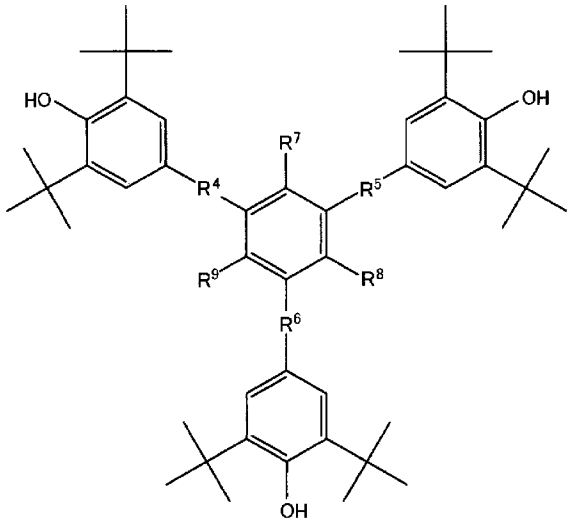
[0007] 本発明者等は、上記課題を解決するために鋭意検討を重ねた結果、ポリリン酸アンモニウム塩と特定の構造を有する化合物とを用いることで、上記課題を解消することができることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0008] すなわち、本発明の添加剤組成物は、（A）成分としてポリリン酸アンモニウムの１種以上と、（B）成分として下記一般式（１）、



（1）

で表される化合物および下記一般式（２）、



（2）

で表される化合物からなる群より選ばれる少なくとも１種以上と、を含有することを特徴とするものである。

[0009] ここで、一般式（１）において、R^1、R^2およびR^3は、それぞれ独立して炭素原子数１～３の２価の炭化水素基を表し、一般式（２）において、R^4、R^5およびR^6は、それぞれ独立して炭素原子数１～３の２価の炭化水素基を表し、R^7、R^8およびR^9は、それぞれ独立して水素原子または炭素原子数１～４の１価の炭化水素基を表す。

[0010] 本発明の添加剤組成物においては、さらに（Ｃ）成分として、一般式（１）で表される化合物以外の含窒素有機化合物の１種以上を含有することが好ましく、（Ｃ）成分の含窒素有機化合物は、トリアジン誘導体の少なくとも１種以上であることが好ましい。

[0011] 本発明の難燃性合成樹脂組成物は、合成樹脂に対し、本発明の添加剤組成物が配合されてなることを特徴とするものである。

[0012] 本発明の難燃性合成樹脂組成物においては、前記合成樹脂は、ポリオレフィン系樹脂であることが好ましい。

[0013] 本発明の成形体は、本発明の難燃性合成樹脂組成物から得られることを特徴とするものである。

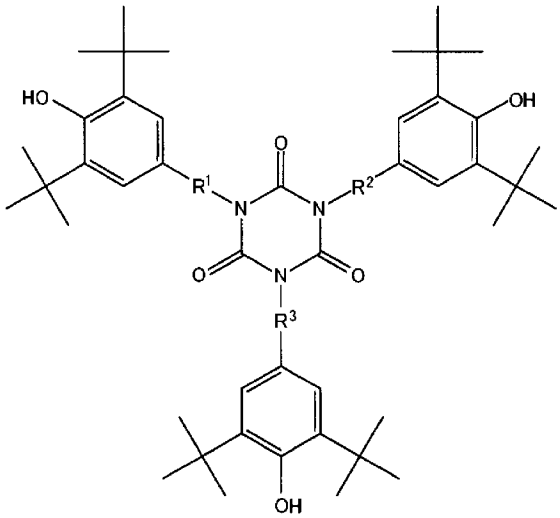
発明の効果

[0014] 本発明によれば、優れた耐熱性および難燃性を合成樹脂に付与することが

できる添加剤組成物、これを含有する難燃性合成樹脂組成物、およびその成形体を提供することができる。

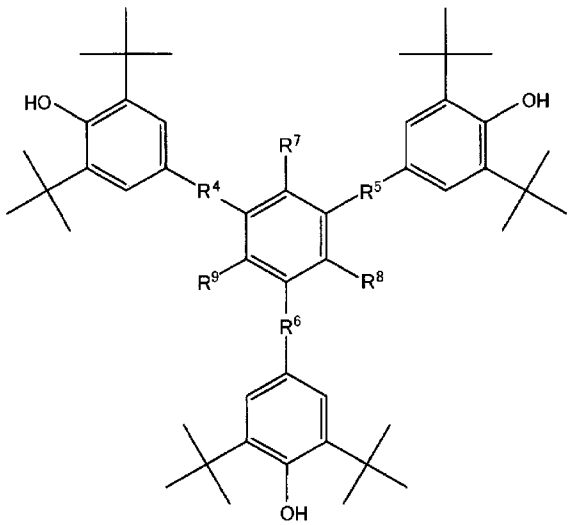
発明を実施するための形態

[0015] まず、本発明の添加剤組成物について説明する。本発明の添加剤組成物は、（A）成分としてポリリン酸アンモニウムの１種以上と、（B）成分として下記一般式（１）、



（1）

で表される化合物および下記一般式（２）、



（2）

で表される化合物からなる群より選ばれる少なくとも１種以上と、を含有する。

[0016] まず、（A）成分について説明する。

本発明の添加剤組成物に係る（Ａ）成分は、ポリリン酸アンモニウムの１種以上である。このポリリン酸アンモニウムは、合成樹脂に難燃性を付与する成分として機能する。

[0017] 本発明に係る（Ａ）成分は、ポリリン酸アンモニウムの１種以上である。本発明の添加剤組成物において、ポリリン酸アンモニウムには、オルトリン酸アンモニウム、ピロリン酸アンモニウム、メタリン酸アンモニウム、ポリリン酸アンモニウム、いずれもポリリン酸アンモニウムに含まれる。（Ａ）成分は１種でも、２種以上の混合物でもよい。ポリリン酸アンモニウムのポリリン酸の縮合度は、３～１０００が挙げられる。また、ポリリン酸アンモニウムは、正塩でもよく、酸性塩でもよく、塩基性塩でもよい。

[0018] ポリリン酸アンモニウムは、例えば次の方法によって容易に得ることができる。リン含有化合物、例えばリン酸、ポリリン酸、リン酸尿素、リン酸メラミン、リン酸１アンモニウム、リン酸２アンモニウムもしくはリン酸３アンモニウムと縮合剤、例えば尿素や五酸化リンとアンモニア化剤、例えばアンモニアガス、炭酸アンモニウム、重炭酸アンモニウムもしくはビウレット等を原料として、１７０～３５０℃の温度で十分な時間反応させることによって得ることができる。

[0019] また、ポリリン酸アンモニウムは市販品を使用することもでき、市販品としては、エキソリット（Ｅｘｏｌｉｔ）－４２２（商品名、ヘキスト社製）、エキソリット（Ｅｘｏｌｉｔ）－７００（商品名、ヘキスト社製）、フォスチェク（Ｐｈｏｓ－ｃｈｅｋ）－Ｐ／３０（商品名、モンサント社製）、フォスチェク（Ｐｈｏｓ－ｃｈｅｋ）－Ｐ／４０（商品名、モンサント社製）、スミセーフ－Ｐ（商品名、住友化学株式会社製）、テラージュ（ＴＥＲＲＡＪＵ）（登録商標、チッソ株式会社製）－Ｓ１０、テラージュ（ＴＥＲＲＡＪＵ）（登録商標、チッソ株式会社製）－Ｓ２０を挙げることができる。

[0020] また、ポリリン酸アンモニウム単体は加水分解を受けやすいため、ポリリン酸アンモニウムを熱硬化性樹脂で被覆もしくはマイクロカプセル化したも

のや、メラミンモノマーや他の含窒素有機化合物等でポリリン酸アンモニウム粒子を被覆したものも好適に使用できるほか、界面活性剤や、シランカップリング剤やシリコーンオイル等のシリコン化合物で処理を行ったもの、ポリリン酸アンモニウムを製造する過程でメラミン等を添加して難溶化したもの等も使用することができる。

[0021] 例えば、熱硬化性樹脂でマイクロカプセル化したポリリン酸アンモニウムを得る方法としては、被覆する樹脂にエポキシ樹脂、ウレタン樹脂、アクリル樹脂、フェノール樹脂、アルキッド樹脂、尿素樹脂、メラミン樹脂、シリコーン樹脂等の樹脂を単独でまたは併用して、界面重合法、ｉｎ－ｓｉｔｕ重合法、液中硬化法、相分離法、液中乾燥法、融解分散冷却法、スプレードライング法、粉床法等の公知の方法によりカプセル化することにより得ることができる。

[0022] メラミンモノマーで被覆したポリリン酸アンモニウムを得る方法としては、例えば、加熱撹拌可能な装置の中で予め２５０℃～３００℃に加熱したポリリン酸アンモニウムにメラミンモノマーの所定量を添加し、更に同温度で加熱を続けることによって昇華したメラミンをポリリン酸アンモニウムに付加および／または付着させる昇華被覆法や、ポリリン酸アンモニウムとメラミンモノマーとの混合物を、強力な撹拌機中で成膜化する、いわゆるハイブリダイゼーション法を挙げることができる。また、シリコーン樹脂で被覆したポリリン酸アンモニウムを得る方法としては、例えば、特開平３－１３１５０８号公報に開示されているように、有機溶媒中にポリリン酸アンモニウムを懸濁させ、硬化性シリコーン樹脂、硬化促進剤および水を撹拌下に、シリコーン樹脂を硬化させて被覆する方法を挙げることができる。

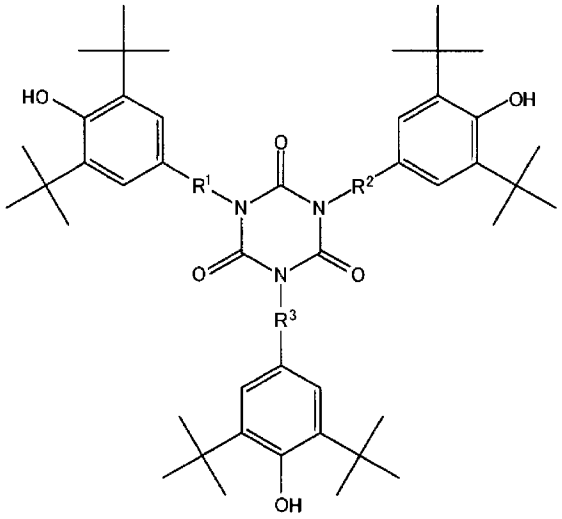
[0023] このようにポリリン酸アンモニウムの加水分解性を低減したポリリン酸アンモニウム化合物の市販品としては、エキソリット（Ｅｘｏｌｉｔ）－４６２（商品名、ヘキスト社製）、スミセーフ－ＰＭ（商品名、住友化学株式会社製）、テラージュ（ＴＥＲＲＡＪＵ）（登録商標、チッソ株式会社製）－Ｃ６０、テラージュ（ＴＥＲＲＡＪＵ）（登録商標、チッソ株式会社製）－

Ｃ７０、テラージュ（ＴＥＲＲＡＪＵ）（登録商標、チッソ株式会社製）－Ｃ８０、テラージュ（ＴＥＲＲＡＪＵ）（登録商標、チッソ株式会社製）－Ｍ３０、テラージュ（ＴＥＲＲＡＪＵ）（登録商標、チッソ株式会社製）－Ｍ４０等を挙げることができ、これらの市販品も好適に使用できる。

[0024] 次に、（Ｂ）成分について説明する。

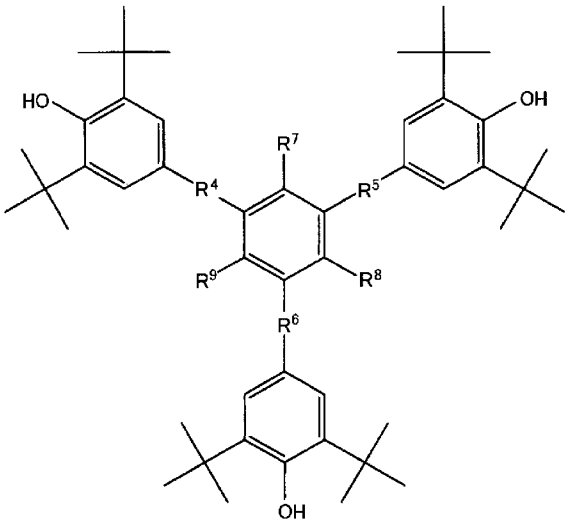
本発明の添加剤組成物に係る（Ｂ）成分は、下記一般式（１）で表される化合物および下記一般式（２）で表される化合物からなる群より選ばれる少なくとも１種以上である。下記一般式（１）、下記一般式（２）で表される化合物は合成樹脂に耐熱性を付与する成分として機能する。

[0025]



（１）

[0026]



（２）

[0027] ここで、一般式（１）において、R^1、R^2、R^3はそれぞれ独立して炭素原子数１～３の２価の炭化水素基を表す。また、一般式（２）において、R^4、

R^5およびR^6はそれぞれ独立して炭素原子数１～３の２価の炭化水素基を表し、R^7、R^8およびR^9はそれぞれ独立して水素原子または炭素原子数１～４の１価の炭化水素基を表す。

[0028] 一般式（１）において、R^1、R^2およびR^3で表される２価の炭素原子数１～３の炭化水素基としては、直鎖または分岐のアルキレン基、直鎖または分岐のアルケニレン基、アルキニレン基が挙げられる。

[0029] 直鎖のアルキレン基としては、$-(CH_2)_n-$（ｎは１～３の整数）が挙げられ、分岐のアルキレン基としては、$-CH(CH_3)-$、$-CH_2(CH_2CH_3)-$、$-CH(CH_3)CH_2-$、$-CH_2CH(CH_3)-$が挙げられ、直鎖のアルケニレン基としては、$-CH=CH-$、$-CH=CH-CH_2-$、$-CH_2-CH=CH-$が挙げられ、分岐のアルケニレン基としては、$-C(CH_3)=CH-$、$-CH=C(CH_3)-$が挙げられ、アルキニレン基としては、$-C\equiv C-$、$-CH_2-C\equiv C-$、$-C\equiv C-CH_2-$が挙げられる。

[0030] 一般式（１）で表される化合物としては、１，３，５－トリス（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドルキシベンジル）イソシアヌレート、１，３，５－トリス（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドルキシフェニルエチル）イソシアヌレート、１，３，５－トリス（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドルキシフェニルプロピル）イソシアヌレート等が挙げられ、これらは単独で用いても２種以上の混合で用いてもよい。これらの中でも、１，３，５－トリス（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドルキシベンジル）イソシアヌレートが好ましい。

[0031] 一般式（２）において、R^4、R^5およびR^6で表される２価の炭素原子数１～３の炭化水素基としては、R^1、R^2およびR^3で表される２価の炭素原子数１～３の炭化水素基と同様の基が挙げられる。

[0032] R^7、R^8およびR^9で表される１価の炭素原子数１～４の炭化水素基としては、直鎖または分岐のアルキル基、直鎖または分岐のアルケニル基、直鎖または分岐のアルキニル基が挙げられる。直鎖のアルキル基としては、CH_3-、CH_3CH_2-、$CH_3CH_2CH_2-$、$CH_3CH_2CH_2CH_2-$が挙げられ

、分岐のアルキル基としては、$CH_3(CH_3)CH-$、$CH_3(CH_3)CH_2CH_2-$、$CH_3CH_2(CH_3)CH-$、$(CH_3)_3C-$が挙げられ、直鎖のアルケニル基としては、$CH_2=CH-$、$CH_2=CHCH_2-$、$CH_3CH=CH-$、$CH_2=CHCH_2CH_2-$、$CH_3CH=CHCH_2-$、$CH_3CH_2CH=CH-$、分岐のアルケニル基としては、$CH(CH_3)=CH-$、$CH_2=C(CH_3)-$、$CH_2=C(CH_3)CH_2-$、$CH_3C(CH_3)=CH_2-$が挙げられ、アルキニル基としては、$CH\equiv C-$、$CH\equiv CCH_2-$、$CH_3C\equiv C-$、$CH\equiv CCH_2CH_2-$、$CH_2C\equiv CCH_2-$、$CH_2CH_2C\equiv CH_2-$が挙げられる。これらの中でも、炭素原子数１～４の炭化水素基としては、直鎖または分岐のアルキル基が好ましい。

[0033] 一般式（２）で表される化合物の例としては、１，３，５－トリス（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシベンジル）－２，４，６－トリメチルベンゼン、１，３，５－トリス（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシフェニルエチル）－２，４，６－トリメチルベンゼン、１，３，５－トリス（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシフェニルプロピル）－２，４，６－トリメチルベンゼン、１，３，５－トリス（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシベンジル）－２，４，６－トリエチルベンゼン、１，３，５－トリス（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシベンジル）－２，４，６－トリプロピルベンゼン、１，３，５－トリス（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシベンジル）－２，４，６－トリブチルベンゼン、１，３，５－トリス（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシベンジル）ベンゼン等が挙げられ、これらは単独で用いても２種以上の混合で用いても良い。それらの中でも１，３，５－トリス（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシベンジル）－２，４，６－トリメチルベンゼンが好ましい。

[0034] 一般式（１）で表される化合物と、一般式（２）で表される化合物と、は単独で用いても２種以上を併用してもよく、混合する場合の比率はいずれの値でもよい。

[0035] 本発明の添加剤組成物中、（Ａ）成分と（Ｂ）成分の含有比率（Ａ）／（

Ｂ）は、耐熱性と難燃性の点から、質量比で、（Ａ）／（Ｂ）＝９９．９５／０．０５～７５／２５が好ましく、（Ａ）／（Ｂ）＝９９．８／０．２～８５／１５がより好ましく、（Ａ）／（Ｂ）＝９９．７／０．３～９２／８がさらにより好ましい。

[0036] 本発明の添加剤組成物は、（Ａ）成分と（Ｂ）成分とを混合することで得られるが、合成樹脂に配合するときには、あらかじめ混合をしておいて、配合してもよいし、合成樹脂に配合するときに、それぞれの成分を合成樹脂に配合してもよい。また、マスターバッチとしてから配合してもよい。

[0037] （Ａ）成分と（Ｂ）成分とを混合する場合、あるいは後述する（Ｃ）成分や他の任意成分と混合する場合には、各種混合機を用いることができる。使用できる混合機の例を挙げると、タンブラーミキサー、ヘンシェルミキサー、リボンブレンダー、Ｖ型混合機、W型混合機、スーパーミキサー、ナウターミキサー等が挙げられる。

[0038] 本発明の添加剤組成物は、さらに（Ｃ）成分として、一般式（１）で表される化合物以外の含窒素有機化合物の１種以上を含有することが、耐熱性と難燃性の点から好ましい。

[0039] 以下に、（Ｃ）成分について説明する。

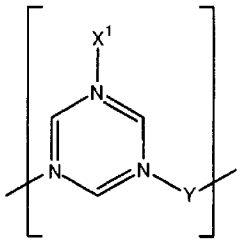
本発明の添加剤組成物に係る（Ｃ）成分は、一般式（１）で表される化合物以外の含窒素有機化合物の１種以上である。（Ｃ）成分の含窒素有機化合物は、（Ａ）成分のポリリン酸アンモニウムとともに、合成樹脂に難燃性を付与する成分として機能する。（Ｃ）成分の含窒素有機化合物は、発火もしくは着火または炎の接触等による熱によって非引火性のガスを発生すると共に、炭素質残渣を生成もしくは生成の促進をする化合物のことであり、具体的には下記（１）～（４）で例示される。

[0040] （１）トリアジン誘導体；メラミン、メラミンシアヌレート、アンメリン、フタロジグアナミン、ブチレンジグアナミン、ノルボルネンジグアナミン、メチレンジグアナミン、エチレンジメラミン、トリメチレンジメラミン、テトラメチレンジメラミン、ヘキサメチレンジメラミン、１，３－ヘキシレ

ンジメラミン、メチロールメラミン、メラミンとホルムアルデヒドとをモル比（前者：後者）＝１：１～１：６で反応させて得られるメチロール基を１～６個含むメチロールメラミン、このメチロールメラミンを酸性溶液中、加熱硬化して得られるメラミン樹脂、このメチロールメラミンを樹脂化する際に尿素、フェノールやアルコールを同時に添加して加熱硬化させた変性メラミン樹脂、リン酸メラミン、オルトリン酸メラミン、ピロリン酸メラミン、ポリリン酸メラミン、メタリン酸メラミン、硫酸メラミン、シアヌル酸ハライドと炭素原子数２～６の直鎖もしくは分枝のアルキレンジアミンとの反応生成物、特にシアヌル酸クロライドと炭素原子数２～６の直鎖もしくは分枝のアルキレンジアミン、例えばエチレンジアミン、プロピレンジアミン、１，４－テトラメチレンジアミン、１，５－ペンタメチレンジアミン、１，６－ヘキサメチレンジアミンとのモル比（前者：後者）＝１：１～１：３の反応生成物、ベンゾグアナミン、このベンゾグアナミンとホルムアルデヒドとをモル比（前者：後者）＝１：１～１：４で反応させて得られるメチロール化ベンゾグアナミンおよびこのメチロール化ベンゾグアナミンを酸性溶液中、加熱硬化して得られる樹脂状物、アセトグアナミン、このアセトグアナミンとホルムアルデヒドとをモル比（前者：後者）＝１：１～１：４で反応させて得られるメチロール化アセトグアナミンおよびこのメチロール化アセトグアナミンを酸性溶液中、加熱硬化して得られる樹脂状物、３，９－ビス［２－（３，５－ジアミノ－２，４，６－トリアザフェニル）エチル］－２，４，８，１０－テトラオキサスピロ［５．５］ウンデカンおよびこのスピロ化合物とホルムアルデヒドとをモル比（前者：後者）＝１：１～１：１０で反応させて得られるメチロール化されたスピロ化合物、およびこのメチロール化されたスピロ化合物を酸性溶液中、加熱硬化して得られる樹脂状物、および下記一般式（３）で表されるトリアジン誘導体を繰り返し単位とする単独重合体および／または共重合体であり、一般式（３）中のX^1の基の例としては、モノメチルアミノ基、ジメチルアミノ基、メチルエチルアミノ基、メチルエチルアミノ基、モノエチルアミノ基、ジエチルアミノ基、モノプロピ

ルアミノ基、ジプロピルアミノ基、メチルプロピルアミノ基、エチルプロピルアミノ基、ジイソプロピルアミノ基、モノ－ｎ－ブチルアミノ基、ジ－ｎ－プロピルアミノ基、メチル－ｎ－ブチルアミノ基、エチル－ｎ－ブチルアミノ基、プロピル－ｎ－ブチルアミノ基、イソプロピル－ｎ－ブチルアミノ基、モノイソブチルアミノ基、ジイソブチルアミノ基、メチルイソブチルアミノ基、エチルイソブチルアミノ基、プロピルイソブチルアミノ基、イソプロピルイソブチルアミノ基、モノペンチルアミノ基、ジペンチルアミノ基、メチルペンチルアミノ基、エチルペンチルアミノ基、プロピルペンチルアミノ基、イソプロピルペンチルアミノ基、ｎ－ブチルペンチルアミノ基、イソブチルペンチルアミノ基、モノヘキシルアミノ基、ジヘキシルアミノ基、メチルヘキシルアミノ基、エチルヘキシルアミノ基、プロピルヘキシルアミノ基、イソプロピルヘキシルアミノ基、ｎ－ブチルヘキシルアミノ基、イソブチルヘキシルアミノ基、ペンチルヘキシルアミノ基、モノヒドロキシエチルアミノ基、ジヒドロキシエチルアミノ基、モノヒドロキシプロピルアミノ基、ジヒドロキシプロピルアミノ基、モノヒドロキシイソプロピルアミノ基、ジヒドロキシプロピルアミノ基、モノヒドロキシ－ｎ－ブチルアミノ基、ジヒドロキシ－ｎ－ブチルアミノ基、モノヒドロキシイソブチルアミノ基、ジヒドロキシイソブチルアミノ基、モノヒドロキシペンチルアミノ基、ジヒドロキシペンチルアミノ基、モノヒドロキシヘキシルアミノ基、ジヒドロキシヘキシルアミノ基、Ｎ－メチルヒドロキシエチルアミノ基、モルホリノ基、ピペリジノ基等が挙げられる。また、一般式（３）中のＹの基の例としては、エチレンジアミン残基、Ｎ，Ｎ’－ジメチルエチレンジアミン残基、Ｎ－Ｎ’－ジエチルエチレンジアミン残基、１，３－ジアミノプロパン残基、テトラメチレンジアミン残基、ペンタメチレンジアミン残基、ヘキサメチレンジアミン残基、ピペラジン残基、トランス－２，５－ジメチルピペラジン残基等が挙げられる。

[0041]



（3）

[0042]　ここで、一般式（３）中、X^1およびＹは、いずれも窒素原子を介してトリアジン環に結合している基であり、X^1が－ＮＨR^{10}または－Ｎ$R^{11}R^{12}$で表されるアルキルアミノ基、モルホリノ基もしくはピペリジノ基であり、R^{10}、R^{11}およびR^{12}はいずれも水素原子または炭素原子１～６個を含有する直鎖もしくは分枝のアルキル基である（R^{11}およびR^{12}は同一の基であっても、互いに異なる基であってもよい）か、もしくはX^1が－ＮＨR^{13}または－Ｎ$R^{14}R^{15}$で表されるヒドロキシアルキルアミノ基であり、R^{13}、R^{14}およびR^{15}はいずれも炭素原子２～６個を含有する直鎖もしくは分枝のヒドロキシアルキル基である（R^{14}およびR^{15}は同一の基であっても、互いに異なる基であってもよい）。Ｙはピペラジンの２価の基、式－ＨＮ（CH_2）$_m$ＮＨ－で表される２価の基（ここで、ｍは２～６の数である）または、－ＮR^{16}（CH_2）$_p$$R^{17}$Ｎ－で表される基であり、$R^{16}$および$R^{17}$は、炭素原子１～６個を含有する直鎖もしくは分岐のアルキル基もしくはヒドロキシアルキル基である）。

[0043]　さらにトリアジン誘導体の具体例として、ポリ－［２，４－（ピペラジン－１，４－イル）－６－（モルホリノ－４－イル）－１，３，５－トリアジン］（ＣＡＳ番号９３０５８－６７－４、ＣＡＳ番号１０７８１４２－０２－５）が挙げられる。

[0044]　（２）（イソ）シアヌル酸誘導体；シアヌル酸とメラミンの中和反応によって得られるシアヌル酸メラミン、トリアリルシアヌレート、トリアリルイソシアヌレート、トリメタアリルイソシアヌレート等に例示される不飽和二重結合を持つ誘導体、およびこれら不飽和二重結合を持つ誘導体を架橋させて得られる樹脂状物、トリスエポキシプロピルイソシアヌレート、トリス－（２－ヒドロキシエチル）イソシアヌレートが挙げられる。

[0045] （３）イミダゾリジノン誘導体；エチレン尿素またはエチレンチオ尿素とホルムアルデヒドとをモル比（前者：後者）＝１：１～１：２で反応させて得られるメチロール化物を酸性溶液中、加熱縮合させて得られる樹脂状物が挙げられる。

[0046] （４）ピペラジン誘導体；ピペラジン、リン酸ピペラジン、オルトリン酸ピペラジン、ピロリン酸ピペラジン、ポリリン酸ピペラジン、メタリン酸ピペラジンが挙げられる。

[0047] 本発明の添加剤組成物においては、（Ｃ）成分の含窒素有機化合物は市販品を使用してもよい。

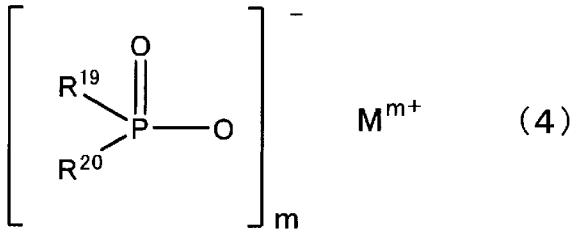
[0048] （Ｃ）成分の含窒素有機化合物のなかでも、耐熱性と難燃性の点から、トリアジン誘導体が好ましく、メラミンシアヌレート、ポリ－［２，４－（ピペラジン－１，４－イル）－６－（モルホリノ－４－イル）－１，３，５－トリアジン］（ＣＡＳ番号９３０５８－６７－４、ＣＡＳ番号１０７８１４２－０２－５）がより好ましく、ポリ－［２，４－（ピペラジン－１，４－イル）－６－（モルホリノ－４－イル）－１，３，５－トリアジン］（ＣＡＳ番号９３０５８－６７－４、ＣＡＳ番号１０７８１４２－０２－５）がさらにより好ましい。

[0049] 本発明の添加剤組成物中の（Ａ）成分と（Ｃ）成分の含有比率、（Ａ）／（Ｃ）は、質量比で、（Ａ）／（Ｃ）＝３０／７０～９５／５が好ましく、（Ａ）／（Ｃ）＝４０／６０～８５／１５がより好ましく、（Ａ）／（Ｃ）＝５０／５０～８０／２０がさらにより好ましい。

[0050] なお、（Ｃ）成分は、本発明の添加剤組成物にあらかじめ配合してもよいし、合成樹脂に配合するときに合成樹脂に配合してもよい。

[0051] 本発明の添加剤組成物は、さらに、ジアルキルホスフィン酸またはその塩の１種以上を含有することが、耐熱性と難燃性の点から好ましい。ジアルキルホスフィン酸またはその塩は、耐熱性と難燃性の点から、下記一般式（４）で表されるジアルキルホスフィン酸またはその塩が好ましい。

[0052]



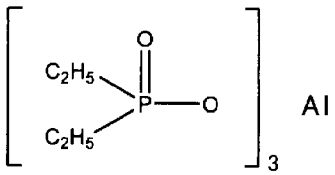
（4）

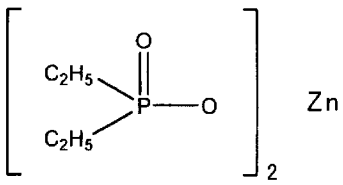
[0053] ここで、一般式（４）中、R^{19}、R^{20}は同一または異なり、直鎖状または分岐状の炭素原子数１～６のアルキル基であって、Ｍは、Ｍｇ、Ｃａ、Ａｌ、Ｓｂ、Ｓｎ、Ｇｅ、Ｔｉ、Ｆｅ、Ｚｒ、Ｚｎ、Ｃｅ、Ｂｉ、Ｓｒ、Ｍｎ、Ｌｉ、Ｎａ、Ｋ、Ｈ、および／またはプロトン化窒素塩基であって、ｍは１～４を意味する。

[0054] R^{19}、R^{20}の炭素原子数１～６のアルキル基の例としては、メチル、エチル、ｎ－プロピル、イソプロピル、ｎ－ブチル、イソブチル、ｓｅｃ－ブチル、ｔｅｒｔ－ブチル、ｎ－ペンチル、イソペンチル、ネオペンチル、ｔｅｒｔ－アミル、１，２－ジメチルプロピル、ｎ－ヘキシル、１，３－ジメチルブチル、１－イソプロピルプロピル、１，２－ジメチルブチル、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロプロピルが挙げられる。

[0055] R^{19}、R^{20}は、耐熱性と難燃性の点から、炭素原子数１～４のアルキル基が好ましく、エチル基が最も好ましい。Ｍは、耐熱性と難燃性の点から、亜鉛またはアルミニウムが好ましく、アルミニウムがより好ましい。ジアルキルホスフィン酸またはその塩は、耐熱性と難燃性の点から、下記、構造式の化合物（４－１）、または化合物（４－２）が好ましく、化合物（４－１）がより好ましい。

[0056] **化合物（４－１）** **化合物（４－２）**





[0057] ジアルキルホスフィン酸またはその塩は、本発明の添加剤組成物にあらかじめ配合してもよいし、合成樹脂に配合するときに合成樹脂に配合してもよ

い。

[0058] ジアルキルホスフィン酸またはその塩の配合量は、合成樹脂に配合した場合に、合成樹脂１００質量部に対して、１～１００質量部が好ましく、５～６０質量部が好ましく、１０～４０質量部がより好ましい。

[0059] 本発明の添加剤組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、必要に応じて、難燃助剤である金属酸化物を配合してもよい。金属酸化物の例としては酸化亜鉛、酸化チタン、酸化マグネシウムおよび酸化ケイ素等が挙げられ、その中でも、酸化亜鉛が好ましい。金属酸化物は表面処理されていてもよい。酸化亜鉛は市販品を使用することができ、例えば、酸化亜鉛１種（三井金属鉱業（株）製）、部分被膜型酸化亜鉛（三井金属鉱業（株）製）、ナノファイン５０（平均粒径０．０２μｍの超微粒子酸化亜鉛：堺化学工業（株）製）、ナノファインＫ（平均粒径０．０２μｍの珪酸亜鉛被膜した超微粒子酸化亜鉛：堺化学工業（株）製）等があげられる。

[0060] 金属酸化物を含有させる場合、その含有量は、添加剤組成物中に含まれる（Ａ）成分と（Ｃ）成分の合計量、１００質量部に対して、難燃性の点から、０．０１～１０質量部が好ましく、０．５～１０質量部がより好ましく、１．０～７．５質量部がさらにより好ましい。０．０１質量部未満であると難燃助剤効果が十分ではなく、１０質量部を超えると、樹脂の特性を低下させる場合がある。金属酸化物は、本発明の添加剤組成物にあらかじめ配合してもよいし、合成樹脂に配合するときに合成樹脂に配合してもよい。

[0061] また、本発明の添加剤組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、必要に応じて、ドリップ防止剤を配合してもよい。ドリップ防止剤としては、フッ素系ドリップ防止剤やシリコンゴム類、層状ケイ酸塩等が挙げられる。

[0062] 層状ケイ酸塩としては、モンモリロナイト、サポナイト、ヘクトライト、バイデライト、スティブンサイト、ノントロナイト等のスメクタイト系粘土鉱物、バーミキュライト、ハロイサイト、膨潤性マイカ、タルク等が挙げられ、その層間に、有機カチオン、第４級アンモニウムカチオン、ホスホニウムカチオンがインターカレートされているものでもよい。

[0063] ドリップ防止剤は特にフッ素系のドリップ防止剤が好ましく、フッ素系のドリップ防止剤の具体例としては、例えば、ポリテトラフルオロエチレン、ポリフッ化ビニリデン、ポリヘキサフルオロプロピレン等のフッ素系樹脂やパーフルオロメタンスルホン酸ナトリウム塩、パーフルオロ－ｎ－ブタンスルホン酸カリウム塩、パーフルオロ－ｔ－ブタンスルホン酸カリウム塩、パーフルオロオクタンスルホン酸ナトリウム塩、パーフルオロ－２－エチルヘキサンスルホン酸カルシウム塩等のパーフルオロアルカンスルホン酸アルカリ金属塩化合物またはパーフルオロアルカンスルホン酸アルカリ土類金属塩等が挙げられる。ドリップ防止剤の中でも、ドリップ防止性の点から、ポリテトラフルオロエチレンが最も好ましい。

[0064] ドリップ防止剤を含有させる場合、ドリップ防止剤の含有量は、添加剤組成物中に含まれる（Ａ）成分と（Ｃ）成分の合計量、１００質量部に対して、０．００５～５質量部が好ましく、より好ましくは０．０１～５質量部、より好ましくは０．０５～３質量部、さらに好ましくは０．１～１質量部である。０．００５質量部未満だとドリップ防止効果が十分ではなく、５質量部を超えると樹脂の特性を低下させる場合がある。ドリップ防止剤は、本発明の添加剤組成物にあらかじめ配合してもよいし、合成樹脂に配合するときに合成樹脂に配合してもよい。

[0065] また、本発明の添加剤組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、必要に応じて、配合時における二次凝集の抑制や耐水性を改良するためにシリコーンオイルを配合してもよい。シリコーンオイルの例としては、ポリシロキサンの側鎖、末端が全てメチル基であるジメチルシリコーンオイル、ポリシロキサンの側鎖の一部がフェニル基であるメチルフェニルシリコーンオイル、ポリシロキサンの側鎖の一部が水素であるメチルハイドロジェンシリコーンオイル等や、これらのコポリマーが挙げられ、またこれらの側鎖および／または末端の一部に有機基を導入した、アミン変性、エポキシ変性、脂環式エポキシ変性、カルボキシル変性、カルビノール変性、メルカプト変性、ポリエーテル変性、長鎖アルキル変性、フロロアルキル変性、高級脂肪酸エ

ステル変性、高級脂肪酸アミド変性、シラノール変性、ジオール変性、フェノール変性および／またはアラルキル変性した変性シリコーンオイルを使用してもよい。

[0066] シリコーンオイルの具体例を挙げると、ジメチルシリコーンオイルとして、ＫＦ－９６（信越化学工業（株）製）、ＫＦ－９６５（信越化学工業（株）製）、ＫＦ－９６８（信越化学工業（株）製）等が挙げられ、メチルハイドロジェンシリコーンオイルまたはメチルハイドロジェンポリシロキサン構造を有するシリコーンオイルとして、ＫＦ－９９（信越化学工業（株）製）、ＫＦ－９９０１（信越化学工業（株）製）、ＨＭＳ－１５１（Ｇｅｌｅｓｔ社製）、ＨＭＳ－０７１（Ｇｅｌｅｓｔ社製）、ＨＭＳ－３０１（Ｇｅｌｅｓｔ社製）、ＤＭＳ－Ｈ２１（Ｇｅｌｅｓｔ社製）等が挙げられ、メチルフェニルシリコーンオイルの例としては、ＫＦ－５０（信越化学工業（株）製）、ＫＦ－５３（信越化学工業（株）製）、ＫＦ－５４（信越化学工業（株）製）、ＫＦ－５６（信越化学工業（株）製）等が挙げられ、エポキシ変性品としては、例えば、Ｘ－２２－３４３（信越化学工業（株）製）、Ｘ－２２－２０００（信越化学工業（株）製）、ＫＦ－１０１（信越化学工業（株）製）、ＫＦ－１０２（信越化学工業（株）製）、ＫＦ－１００１（信越化学工業（株）製）、カルボキシル変性品としては、例えば、Ｘ－２２－３７０１Ｅ（信越化学工業（株）製）、カルビノール変性品としては、例えば、Ｘ－２２－４０３９（信越化学工業（株）製）、Ｘ－２２－４０１５（信越化学工業（株）製）、アミン変性品としては、例えば、ＫＦ－３９３（信越化学工業（株）製）等が挙げられる。

[0067] シリコーンオイルを含有させる場合、シリコーンオイルの含有量は、添加剤組成物中に含まれる（Ａ）成分と（Ｃ）成分の合計量、１００質量部に対して０．０１～１０質量部であることが好ましく、０．１～５質量部がより好ましく、０．５～３質量部がさらにより好ましい。０．０１質量部未満であると二次凝集の抑制や耐水性が十分でない場合があり、１０質量部を超えると、樹脂の特性を低下させる場合がある。シリコーンオイルは、本発明の

添加剤組成物にあらかじめ配合してもよいし、合成樹脂に配合するときに合成樹脂に配合してもよい。

[0068] また、本発明の添加剤組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、必要に応じて、添加剤粉末の凝集を防止し、保存安定性の向上のためや、耐水性、耐熱性を付与するために、シランカップリング剤を配合してもよい。

[0069] シランカップリング剤としては、例えば、アルケニル基を有するシランカップリング剤として、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、ビニルトリス（２－メトキシエトキシ）シラン、ビニルメチルジメトキシシラン、オクテニルトリメトキシシラン、アリルトリメトキシシラン、ｐ－スチリルトリメトキシシラン等が挙げられ、アクリル基を有するシランカップリング剤として、３－アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、３－アクリロキシプロピルトリエトキシシラン等が挙げられ、メタクリル基を有するシランカップリング剤として、３－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、メタクリロキシオクチルトリメトキシシラン等が挙げられ、エポキシ基を有するシランカップリング剤として、２－（３，４－エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシラン、３－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、３－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、３－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、３－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、グリシドキシオクチルトリメトキシシラン等が挙げられ、アミノ基を有するシランカップリング剤として、Ｎ－２－（アミノエチル）－３－アミノプロピルメチルジメトキシシラン、Ｎ－２－（アミノエチル）－３－アミノプロピルトリメトキシシラン、３－アミノプロピルトリメトキシシラン、３－アミノプロピルトリエトキシシラン、３－トリエトキシシリル－Ｎ－（１，３－ジメチル－ブチリデン）プロピルアミン、Ｎ－フェニル－３－アミノプロピルトリメトキシシラン、Ｎ，Ｎ’－ビス［３－（トリメトキシシリル）プロピル］エチ

レンジアミン、Ｎ－（ビニルベンジル）－２－アミノエチル－３－アミノプロピルトリメトキシシランの塩酸塩等が挙げられ、イソシアヌレート基を有するシランカップリング剤として、トリス－（トリメトキシシリルプロピル）イソシアヌレートが挙げられ、メルカプト基を有するシランカップリング剤として、３－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、３－メルカプトプロピルトリメトキシシラン、３－メルカプトプロピルトリエトキシシラン等が挙げられ、ウレイド基を有するシランカップリング剤として、３－ウレイドプロピルトリメトキシシラン、３－ウレイドプロピルトリエトキシシラン等が挙げられ、スルフィド基を有するシランカップリング剤として、ビス（トリエトキシシリルプロピル）テトラスルフィドが挙げられ、チオエステル基を有するシランカップリング剤として、３－オクタノイルチオ－１－プロピルトリエトキシシランが挙げられ、イソシアネート基を有するシランカップリング剤として、３－イソシアネートプロピルトリエトキシシラン、３－イソシアネートプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。

[0070] これらシランカップリング剤の中でも、添加剤粉末の凝集を防止し、保存安定性の向上や、耐水性、耐熱性の点から、エポキシ基を有するシランカップリング剤が好ましい。

[0071] シランカップリング剤は、市販品が使用でき、その例を挙げると、ビニルトリメトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＭ－１００３、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＡ－１７１、東レ・ダウコーニング（株）製のＺ－６３００、旭化成ワッカーシリコーン（株）製のＧＥＮＩＯＳＩＬ　ＸＬ１０、日美商事株式会社製のサイラエースＳ２１０等が挙げられ、ビニルトリエトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＥ－１００３、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＡ－１５１、東レ・ダウコーニング（株）製のＺ－６５１９、旭化成ワッカーシリコーン（株）製のＧＥＮＩＯＳＩＬ　ＧＦ５６、日美商事株式会社製のサイラエースＳ２２０等が挙げられ、ビニルトリアセトキシシランとしては、旭化成ワッカーシリコーン（株）製の

ＧＥＮＩＯＳＩＬ　ＧＦ６２が挙げられ、ビニルトリス（２－メトキシエトキシ）シランとしては、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＡ－１７２が挙げられ、ビニルメチルジメトキシシランとしては、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＡ－２１７１、旭化成ワッカーシリコーン（株）製のＧＥＮＩＯＳＩＬ　ＸＬ１２等が挙げられ、オクテニルトリメトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＭ－１０８３が挙げられ、アリルトリメトキシシランとしては、東レ・ダウコーニング（株）製のＺ－６８２５が挙げられ、ｐ－スチリルトリメトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＭ－１４０３が挙げられ、３－アクリロキシプロピルトリメトキシシランとしては、ＫＢＭ－５１０３が挙げられ、３－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＭ－５０２、東レ・ダウコーニング（株）製のＺ－６０３３等が挙げられ、３－メタクリロキシプロピルトリメトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＭ－５０３、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＡ－１７４、東レ・ダウコーニング（株）製のＺ－６０３０、旭化成ワッカーシリコーン（株）製のＧＥＮＩＯＳＩＬ　ＧＦ３１、日美商事株式会社製のサイラエースＳ７１０等が挙げられ、３－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＥ－５０２が挙げられ、３－メタクリロキシプロピルトリエトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＥ－５０３、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＹ－９９３６が挙げられ、メタクリロキシオクチルトリメトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＭ－５８０３が挙げられ、２－（３，４－エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＭ－３０３、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＡ－１８６、東レ・ダウコーニング（株）製のＺ－６０４３、日美商事株式会社製のサイラエースＳ５３０等が挙げられ、３－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシランとして

は、信越化学工業（株）製のＫＢＭ－４０２、東レ・ダウコーニング（株）製のＺ－６０４４、日美商事株式会社製のサイラエースＳ５２０等が挙げられ、３－グリシドキシプロピルトリメトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＭ－４０３、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＡ－１８７、東レ・ダウコーニング（株）製のＺ－６０４０、旭化成ワッカーシリコーン（株）製のＧＥＮＩＯＳＩＬ　ＧＦ８０、日美商事株式会社製のサイラエースＳ５１０等が挙げられ、３－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＥ－４０２が挙げられ、３－グリシドキシプロピルトリエトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＥ－４０３、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＡ－１８７１、旭化成ワッカーシリコーン（株）製のＧＥＮＩＯＳＩＬ　ＧＦ８２等が挙げられ、グリシドキシオクチルトリメトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＭ－４８０３が挙げられ、Ｎ－２－（アミノエチル）－３－アミノプロピルメチルジメトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＭ－６０２、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＡ－２１２０、旭化成ワッカーシリコーン（株）製のＧＥＮＩＯＳＩＬ　ＧＦ－９５、日美商事株式会社製のサイラエースＳ３１０等が挙げられ、Ｎ－２－（アミノエチル）－３－アミノプロピルトリメトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＭ－６０３、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＡ－１１２０、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＡ－１１２２、東レ・ダウコーニング（株）製のＺ－６０２０、東レ・ダウコーニング（株）製のＺ－６０９４、旭化成ワッカーシリコーン（株）製のＧＥＮＩＯＳＩＬ　ＧＦ－９１、日美商事株式会社製のサイラエースＳ３２０等が挙げられ、３－アミノプロピルトリメトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＭ－９０３、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＡ－１１１０、東レ・ダウコーニング（株）製のＺ－６６１０、日美商事株式会社製

のサイラエースＳ３６０等が挙げられ、３－アミノプロピルトリエトキシシランとしては、ＫＢＥ－９０３、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＡ－１１００、東レ・ダウコーニング（株）製のＺ－６０１１、日美商事株式会社製のサイラエースＳ３３０等が挙げられ、３－トリエトキシシリル－Ｎ－（１，３－ジメチル－ブチリデン）プロピルアミンとしては、ＫＢＥ－９１０３、日美商事株式会社製のサイラエースＳ３４０等が挙げられ、Ｎ－フェニル－３－アミノプロピルトリメトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＭ－５７３、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＹ－９６６９、東レ・ダウコーニング（株）製のＺ－６８８３等が挙げられ、Ｎ，Ｎ’－ビス［３－（トリメトキシシリル）プロピル］エチレンジアミンとしては、日美商事株式会社製のサイラエースＸＳ１００３が挙げられ、Ｎ－（ビニルベンジル）－２－アミノエチル－３－アミノプロピルトリメトキシシランの塩酸塩としては、信越化学工業（株）製のＫＢＭ－５７５、東レ・ダウコーニング（株）製のＺ－６０３２、日美商事株式会社製のサイラエースＳ３５０等が挙げられ、トリス－（トリメトキシシリルプロピル）イソシアヌレートとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＭ－９６５９が挙げられ、３－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＭ－８０２、東レ・ダウコーニング（株）製のＺ－６８５２、３－メルカプトプロピルトリメトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＭ－８０３、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＡ－１８９、東レ・ダウコーニング（株）製のＺ－６０６２、日美商事株式会社製のサイラエースＳ８１０等が挙げられ、３－メルカプトプロピルトリエトキシシランとしては、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＡ－１８９１、東レ・ダウコーニング（株）製のＺ－６９１１が挙げられ、３－ウレイドプロピルトリエトキシシランとしては、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＡ－１１６０が挙げられ、３－ウレイドプロピルトリアルコキシシランとしては、信越化

学工業（株）製のＫＢＥ－５８５が挙げられ、ビス（トリエトキシシリルプロピル）テトラスルフィドとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＥ－８４６が挙げられ、３－オクタノイルチオ－１－プロピルトリエトキシシランとしては、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＡ－ＬＩＮＫ５９９が挙げられ、３－イソシアネートプロピルトリエトキシシランとしては、信越化学工業（株）製のＫＢＥ－９００７、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＡ－１３１０等が挙げられ、３－イソシアネートプロピルトリメトキシシランとしては、モンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製のＹ－５１８７、旭化成ワッカーシリコーン（株）製のＧＥＮＩＯＳＩＬ　ＧＦ４０等が挙げられる。

[0072] 本発明の添加剤組成物中にシランカップリング剤を配合する場合、その含有量は、添加剤組成物中に含まれる（Ａ）成分と（Ｃ）成分の合計量、１００質量部に対して、好ましくは０．０１～５．０質量部であり、より好ましくは０．０５～３．０質量部、さらにより好ましくは０．１～２．０質量部である。シランカップリング剤は、本発明の添加剤組成物にあらかじめ配合してもよいし、合成樹脂に配合するときに合成樹脂に配合してもよい。

[0073] 本発明の添加剤組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、必要に応じて、耐熱性、加工機の腐食リスク低減、耐候性の点から、ハイドロタルサイト化合物を配合してもよい。本発明の添加剤組成物において、ハイドロタルサイト化合物とは、マグネシウムおよび／または亜鉛とアルミニウムとの炭酸複塩化合物をいう。ハイドロタルサイト系化合物は、天然物であってもよく、また合成品であってもよい。合成品の合成方法としては、特公昭４６－２２８０号公報、特公昭５０－３００３９号公報、特公昭５１－２９１２９号公報、特開昭６１－１７４２７０号公報等に記載の公知の方法を例示することができる。また、本発明の添加剤組成物においては、ハイドロタルサイト系化合物の結晶構造、結晶粒子系或いは結晶水の有無およびその量等に制限されることなく使用することができる。

[0074] また、ハイドロタルサイト化合物は、過塩素酸処理することもでき、その表面をステアリン酸のような高級脂肪酸、オレイン酸アルカリ金属塩のような高級脂肪酸金属塩、ドデシルベンゼンスルホン酸アルカリ金属塩のような有機スルホン酸金属塩、高級脂肪酸アミド、高級脂肪酸エステルまたはワックス等で被覆したものも使用できる。

[0075] ハイドロタルサイト化合物としては、下記一般式（５）で表される化合物が好ましい。

[0076] $Mg_{x1}Zn_{x2}Al_2(OH)_{2(X1+X2)+4}\cdot CO_3\cdot mH_2O$ （５）

[0077] 一般式（５）中、ｘ１およびｘ２は各々下記式で表される条件を満たす数を示し、ｍは実数を示す。０≦ｘ２／ｘ１＜１０、２≦ｘ１＋ｘ２＜２０

[0078] ハイドロタルサイト系化合物は市販品を使用することができ、例えば、ＤＨＴ－４（ハイドロタルサイト：協和化学工業（株）製）、ＤＨＴ－４Ａ（ハイドロタルサイト：協和化学工業（株）製）、マグセラ－１（ハイドロタルサイト：協和化学工業（株）製）、アルカマイザー１（ハイドロタルサイト：協和化学工業（株）製）、アルカマイザー２（ハイドロタルサイト：協和化学工業（株）製）、アルカマイザー４（アルカマイザーＰ－９３）（亜鉛変性ハイドロタルサイト：協和化学工業（株）製）、アルカマイザー７（亜鉛変性ハイドロタルサイト：協和化学工業（株）製）、アルカマイザー５（過塩素酸処理ハイドロタルサイト：協和化学工業（株）製）等が挙げられ、特にＤＨＴ－４Ａ（ハイドロタルサイト：協和化学工業（株）製）が好ましい。

[0079] ハイドロタルサイト系化合物を含有させる場合、その含有量は、添加剤組成物中に含まれる（Ａ）成分と（Ｃ）成分の合計量、１００質量部に対して、好ましくは０．０１～５質量部であり、耐熱性、加工機の腐食リスク低減、耐候性の点から、より好ましくは０．０５～４質量部であり、さらにより好ましくは０．１～２質量部である。ハイドロタルサイト化合物は、本発明の添加剤組成物にあらかじめ配合してもよいし、合成樹脂に配合するときに合成樹脂に配合してもよい。

[0080] また、本発明の添加剤組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、必要に応じて、上述の金属酸化物以外の難燃助剤を配合することもできる。難燃助剤としては例えば多価アルコール化合物が挙げられる。

[0081] 多価アルコール化合物とは、複数のヒドロキシル基が結合している化合物であり、上述の多価アルコール化合物と重複する場合があるが、難燃性を向上させる難燃助剤として添加する化合物である。難燃助剤の多価アルコール化合物としては、例えば、ペンタエリスリトール、ジペンタエリスリトール、トリペンタエリスリトール、ポリペンタエリスリトール、ネオペンチルグリコール、トリメチロールプロパン、ジトリメチロールプロパン、１，３，５－トリス（２－ヒドロキシエチル）イソシアヌレート、ポリエチレングリコール、グリセリン、ジグリセリン、マンニトール、マルチトール、ラクチトール、ソルビトール、エリスリトール、キシリトール、キシロース、スクロース（シュクロース）、トレハロース、イノシトール、フルクトース、マルトース、ラクトース等が挙げられる。これらのうち、ペンタエリスリトール、ジペンタエリスリトール、トリペンタエリスリトール、ポリペンタエリスリトール等の、ペンタエリスリトール、または、ペンタエリスリトールの縮合物が好ましく、ペンタエリスリトールの縮合物がより好ましく、ジペンタエリスリトールが特に好ましい。また、１，３，５－トリス（２－ヒドロキシエチル）イソシアヌレートおよびソルビトールも好適に使用することができる。

[0082] ペンタエリスリトールの縮合物は、ペンタエリスリトールとペンタエリスリトールの縮合物の混合物でもよい。多価アルコール化合物を含有させる場合の、その含有量は、添加剤組成物中に含まれる（Ａ）成分と（Ｃ）成分の合計量、１００質量部に対して、難燃性の点から、好ましくは０．５～１５質量部であり、より好ましくは２～１２質量部であり、さらに好ましくは５～１０質量部である。多価アルコール化合物は、本発明の添加剤組成物にあらかじめ配合してもよいし、合成樹脂に配合するときに合成樹脂に配合してもよい。

[0083] また、本発明の添加剤組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、必要に応じて、滑剤を配合してもよい。このような滑剤としては、流動パラフィン、天然パラフィン、マイクロワックス、合成パラフィン、低分子量ポリエチレン、ポリエチレンワックス等の純炭化水素系滑剤；ハロゲン化炭化水素系滑剤；高級脂肪酸、オキシ脂肪酸等の脂肪酸系滑剤；脂肪酸アミド、ビス脂肪酸アミド等の脂肪酸アミド系滑剤；脂肪酸の低級アルコールエステル、グリセリド等の脂肪酸の多価アルコールエステル、脂肪酸のポリグリコールエステル、脂肪酸の脂肪アルコールエステル（エステルワックス）等のエステル系滑剤；金属石鹸、脂肪アルコール、多価アルコール、ポリグリコール、ポリグリセロール、脂肪酸と多価アルコールの部分エステル、脂肪酸とポリグリコール、ポリグリセロールの部分エステル系の滑剤や、シリコーンオイル、鉱油等が挙げられる。滑剤は２種以上でもよい。

[0084] 滑剤を含有させる場合、その含有量は、添加剤組成物中に含まれる（Ａ）成分と（Ｃ）成分の合計量、１００質量部に対して、好ましくは０．０５～１０質量部であり、より好ましくは０．１～５質量である。滑剤は、本発明の添加剤組成物にあらかじめ配合してもよいし、合成樹脂に配合するときに合成樹脂に配合してもよい。

[0085] 本発明の添加剤組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、必要に応じて、更に、有機または無機系の難燃剤または難燃助剤の一種以上を使用することができる。それら難燃剤・難燃助剤としては、金属水酸化物、リン酸エステル系難燃剤、縮合リン酸エステル系難燃剤、無機リン系難燃剤、シリコーン系難燃剤、金属酸化物、ホウ酸化合物、膨張性黒鉛、その他の無機系難燃助剤、その他の有機系難燃剤等が挙げられる。これら難燃剤または難燃助剤は、本発明の添加剤組成物にあらかじめ配合してもよいし、合成樹脂に配合するときに合成樹脂に配合してもよい。

[0086] 金属水酸化物としては、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム、水酸化カルシウム、水酸化バリウム、水酸化亜鉛、キスマー５Ａ（協和化学工業（株）製水酸化マグネシウムの商標）等が挙げられる。

[0087] リン酸エステル系難燃剤としては、例えば、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、トリブトキシエチルホスフェート、トリスクロロエチルホスフェート、トリスジクロロプロピルホスフェート、トリフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェート、クレジルジフェニルホスフェート、トリキシレニルホスフェート、オクチ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、トリスイソプロピルフェニルホスフェート、２－エチルヘキシルジフェニルホスフェート、ｔ－ブチルフェニルジフェニルホスフェート、ビス－（ｔ－ブチルフェニル）フェニルホスフェート、トリス－（ｔ－ブチルフェニル）ホスフェート、イソプロピルフェニルジフェニルホスフェート、ビス－（イソプロピルフェニル）ジフェニルホスフェート、トリス－（イソプロピルフェニル）ホスフェート等が挙げられる。

[0088] 縮合リン酸エステル系難燃剤の例としては、１，３－フェニレンビス（ジフェニルホスフェート）、１，３－フェニレンビス（ジキシレニルホスフェート）、ビスフェノールＡビス（ジフェニルホスフェート）、ナフタレン－２，５－ジイル－テトラフェニル　ビス（ホスフェート）、［１，１’－ビフェニル］－４，４’－ジイル－テトラフェニル　ビス（ホスフェート）、［１，１’－ビフェニル］－４，４’－ジイル－テトラキス（２，６－ジメチルフェニル）ビス（ホスフェート）、テトラフェニル（チオビス（４，１－フェニレン））ビス（ホスフェート）、テトラフェニル（スルホニルビス（４，１－フェニレン））ビス（ホスフェート）等が挙げられる。

[0089] 無機リン系難燃剤としては、赤リンが挙げられる。

[0090] その他の無機系難燃助剤としては、例えば、酸化チタン、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、ハイドロタルサイト等の無機化合物、およびその表面処理品が挙げられる。その具体例としては、例えば、ＴＩＰＡＱＵＥ　Ｒ－６８０（石原産業（株）製酸化チタンの商標）、キョーワマグ１５０（協和化学工業（株）製酸化マグネシウムの商標）、ＤＨＴ－４Ａ（ハイドロタルサイト：協和化学工業（株）製）、アルカマイザー４（協和化学工業（株

）製亜鉛変性ハイドロタルサイトの商標）、等の種々の市販品を用いることができる。

[0091] 本発明の添加剤組成物には、必要に応じて、リン系酸化防止剤、チオエーテル系酸化防止剤、紫外線吸収剤、ヒンダードアミン系光安定剤、老化防止剤等を配合してもよい。これらの成分は本発明の添加剤組成物にあらかじめ配合してもよいし、合成樹脂に配合するときに合成樹脂に配合してもよい。これらを配合することにより合成樹脂を安定化することが好ましい。

[0092] リン系酸化防止剤としては、例えば、トリスノニルフェニルホスファイト、トリス〔２－第三ブチル－４－（３－第三ブチル－４－ヒドロキシ－５－メチルフェニルチオ）－５－メチルフェニル〕ホスファイト、トリデシルホスファイト、オクチルジフェニルホスファイト、ジ（デシル）モノフェニルホスファイト、ジ（トリデシル）ペンタエリスリトールジホスファイト、ジ（ノニルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス（２，４－ジ第三ブチルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス（２，６－ジ第三ブチル－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（２，４，６－トリ第三ブチルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス（２，４－ジクミルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、テトラ（トリデシル）イソプロピリデンジフェノールジホスファイト、テトラ（トリデシル）－４，４’－ｎ－ブチリデンビス（２－第三ブチル－５－メチルフェノール）ジホスファイト、ヘキサ（トリデシル）－１，１，３－トリス（２－メチル－４－ヒドロキシ－５－第三ブチルフェニル）ブタントリホスファイト、テトラキス（２，４－ジ第三ブチルフェニル）ビフェニレンジホスホナイト、９，１０－ジハイドロ－９－オキサ－１０－ホスファフェナンスレン－１０－オキサイド、２，２’－メチレンビス（４，６－第三ブチルフェニル）－２－エチルヘキシルホスファイト、２，２’－メチレンビス（４，６－第三ブチルフェニル）－オクタデシルホスファイト、２，２’－エチリデンビス（４，６－ジ第三ブチルフェニル）フルオロホスファイト、トリス（２－〔（２，４，８，１０－テトラキス第三

ブチルジベンゾ〔ｄ，ｆ〕〔１，３，２〕ジオキサホスフェピン－６－イル）オキシ〕エチル）アミン、２－エチル－２－ブチルプロピレングリコールと２，４，６－トリ第三ブチルフェノールのホスファイト等が挙げられる。これらのリン系酸化防止剤の配合量は、合成樹脂に配合したときに。合成樹脂１００質量部に対して、０．００１～１０質量部が好ましく、０．０５～５質量部がより好ましい。

[0093] チオエーテル系酸化防止剤としては、例えば、チオジプロピオン酸ジラウリル、チオジプロピオン酸ジミリスチル、チオジプロピオン酸ジステアリル等のジアルキルチオジプロピオネート類、および、ペンタエリスリトールテトラ（β－アルキルチオプロピオン酸）エステル類が挙げられる。これらのチオエーテル系酸化防止剤の配合量は、合成樹脂に配合したときに、合成樹脂１００質量部に対して、０．００１～１０質量部が好ましく、０．０５～５質量部がより好ましい。

[0094] 紫外線吸収剤としては、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、５，５’－メチレンビス（２－ヒドロキシ－４－メトキシベンゾフェノン）等の２－ヒドロキシベンゾフェノン類；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－３’，５’－ジ第三ブチルフェニル）－５－クロロベンゾトリアゾール、２－（２’－ヒドロキシ－３’－第三ブチル－５’－メチルフェニル）－５－クロロベンゾトリアゾール、２－（２’－ヒドロキシ－５’－第三オクチルフェニル）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）ベンゾトリアゾール、２，２’－メチレンビス（４－第三オクチル－６－（ベンゾトリアゾリル）フェノール）、２－（２’－ヒドロキシ－３’－第三ブチル－５’－カルボキシフェニル）ベンゾトリアゾール等の２－（２’－ヒドロキシフェニル）ベンゾトリアゾール類；フェニルサリシレート、レゾルシノールモノベンゾエート、２，４－ジ第三ブチルフェニル－３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシベンゾエート、

２，４－ジ第三アミルフェニル－３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシベンゾエート、ヘキサデシル－３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシベンゾエート等のベンゾエート類；２－エチル－２’－エトキシオキザニリド、２－エトキシ－４’－ドデシルオキザニリド等の置換オキザニリド類；エチル－α－シアノ－β、β－ジフェニルアクリレート、メチル－２－シアノ－３－メチル－３－（ｐ－メトキシフェニル）アクリレート等のシアノアクリレート類；２－（２－ヒドロキシ－４－オクトキシフェニル）－４，６－ビス（２，４－ジ第三ブチルフェニル）－ｓ－トリアジン、２－（２－ヒドロキシ－４－メトキシフェニル）－４，６－ジフェニル－ｓ－トリアジン、２－（２－ヒドロキシ－４－プロポキシ－５－メチルフェニル）－４，６－ビス（２，４－ジ第三ブチルフェニル）－ｓ－トリアジン等のトリアリールトリアジン類が挙げられる。これらの紫外線吸収剤の配合量は、合成樹脂に配合したときに、合成樹脂１００質量部に対して、０．００１～３０質量部が好ましく、０．０５～１０質量部がより好ましい。

[0095] ヒンダードアミン系光安定剤としては、例えば、２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジルステアレート、１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジルステアレート、２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジルベンゾエート、ビス（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）セバケート、ビス（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジル）セバケート、ビス（１－オクトキシ－２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）セバケート、テトラキス（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）－１，２，３，４－ブタンテトラカルボキシレート、テトラキス（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジル）－１，２，３，４－ブタンテトラカルボキシレート、ビス（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）・ビス（トリデシル）－１，２，３，４－ブタンテトラカルボキシレート、ビス（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジル）・ビス（トリデシル）－１，２，３，４－ブタンテトラカルボキシレート、ビス（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジル）

－２－ブチル－２－（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシベンジル）マロネート、１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジルメタクリレート、ポリ〔｛６－（１，１，３，３－テトラメチルブチル）アミノ－１，３，５－トリアジン－２，４－ジイル｝｛（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）イミノ｝ヘキサメチレン｛（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）イミノ｝〕、１，２，３，４－ブタンカルボン酸／２，２－ビス（ヒドロキシメチル）－１，３－プロパンジオール／３－ヒドロキシ－２，２－ジメチルプロパナール／１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジニルエステル重縮合物、ビス（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジル）＝デカンジオアート／メチル＝１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジル＝セバカート混合物、２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジルメタクリレート、１－（２－ヒドロキシエチル）－２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジノール／コハク酸ジエチル重縮合物、１，６－ビス（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジルアミノ）ヘキサン／ジブロモエタン重縮合物、１，６－ビス（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジルアミノ）ヘキサン／２，４－ジクロロ－６－モルホリノ－ｓ－トリアジン重縮合物、１，６－ビス（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジルアミノ）ヘキサン／２，４－ジクロロ－６－第三オクチルアミノ－ｓ－トリアジン重縮合物、１，５，８，１２－テトラキス［２，４－ビス（Ｎ－ブチル－Ｎ－（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）アミノ）－ｓ－トリアジン－６－イル］－１，５，８，１２－テトラアザドデカン、１，５，８，１２－テトラキス［２，４－ビス（Ｎ－ブチル－Ｎ－（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジル）アミノ）－ｓ－トリアジン－６－イル］－１，５，８，１２－テトラアザドデカン、１，６，１１－トリス［２，４－ビス（Ｎ－ブチル－Ｎ－（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）アミノ）－ｓ－トリアジン－６－イルアミノ］ウンデカン、１，６，１１－トリス［２，４－ビス（Ｎ－ブチル－Ｎ－（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジル

）アミノ）－ｓ－トリアジン－６－イルアミノ］ウンデカン、３，９－ビス〔１，１－ジメチル－２－｛トリス（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジルオキシカルボニル）ブチルカルボニルオキシ｝エチル〕－２，４，８，１０－テトラオキサスピロ〔５．５〕ウンデカン、３，９－ビス〔１，１－ジメチル－２－｛トリス（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジルオキシカルボニル）ブチルカルボニルオキシ｝エチル〕－２，４，８，１０－テトラオキサスピロ〔５．５〕ウンデカン、ビス（１－ウンデシルオキシ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン－４－イル）カーボネート、２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジルヘキサデカノエート、２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジルオクタデカノエート等が挙げられる。これらのヒンダードアミン系光安定剤の配合量は、合成樹脂に配合したときに、合成樹脂１００質量部に対して、０．００１～３０質量部が好ましく、０．０５～１０質量部がより好ましい。

[0096] 老化防止剤としては、ナフチルアミン系、ジフェニルアミン系、ｐ－フェニルジアミン系、キノリン系、ヒドロキノン誘導体、モノフェノール系、チオビスフェノール系、ヒンダートフェノール系、亜リン酸エステル系等が挙げられる。これらの老化防止剤の配合量は、合成樹脂に配合したときに、合成樹脂１００質量部に対して、０．００１～１０質量部であることが好ましく、０．０５～５質量部がより好ましい。

[0097] 本発明の添加剤組成物には、（Ｂ）成分以外のフェノール系酸化防止剤を、配合することも可能だが、フェノール系酸化防止剤は（Ｂ）成分以外では、優れた耐熱性と難燃性を発揮することができない。もちろん（Ｂ）成分と併用することは差支えない。

[0098] （Ｂ）成分以外のフェノール系酸化防止剤としては、例えば、２，６－ジ第三ブチル－ｐ－クレゾール、２，６－ジフェニル－４－オクタデシロキシフェノール、ジステアリル（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシベンジル）ホスホネート、１，６－ヘキサメチレンビス〔（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオン酸アミド〕、４，４’－チオビス（

６－第三ブチル－ｍ－クレゾール）、２，２’－メチレンビス（４－メチル－６－第三ブチルフェノール）、２，２’－メチレンビス（４－エチル－６－第三ブチルフェノール）、４，４’－ブチリデンビス（６－第三ブチル－ｍ－クレゾール）、２，２’－エチリデンビス（４，６－ジ第三ブチルフェノール）、２，２’－エチリデンビス（４－第二ブチル－６－第三ブチルフェノール）、１，１，３－トリス（２－メチル－４－ヒドロキシ－５－第三ブチルフェニル）ブタン、２－第三ブチル－４－メチル－６－（２－アクリロイルオキシ－３－第三ブチル－５－メチルベンジル）フェノール、ステアリル（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート、テトラキス〔３－（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオン酸メチル〕メタン、チオジエチレングリコールビス〔（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート〕、１，６－ヘキサメチレンビス〔（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート〕、ビス〔３，３－ビス（４－ヒドロキシ－３－第三ブチルフェニル）ブチリックアシッド〕グリコールエステル、ビス〔２－第三ブチル－４－メチル－６－（２－ヒドロキシ－３－第三ブチル－５－メチルベンジル）フェニル〕テレフタレート、３，９－ビス〔１，１－ジメチル－２－｛（３－第三ブチル－４－ヒドロキシ－５－メチルフェニル）プロピオニルオキシ｝エチル〕－２，４，８，１０－テトラオキサスピロ〔５，５〕ウンデカン、トリエチレングリコールビス〔（３－第三ブチル－４－ヒドロキシ－５－メチルフェニル）プロピオネート〕等が挙げられる。

[0099] 本発明の添加剤組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、任意成分として強化材を配合してもよい。これらの成分は本発明の添加剤組成物を合成樹脂に配合するときに、合成樹脂に配合してもよい。この強化材としては、通常合成樹脂の強化に用いられる繊維状、板状、粒状、粉末状のものを用いることができる。具体的には、ガラス繊維、アスベスト繊維、炭素繊維、グラファイト繊維、金属繊維、チタン酸カリウムウイスカー、ホウ酸アルミニウムウイスカー、マグネシウム系ウイスカー、珪素系ウイスカー、ワラス

テナイト、セピオライト、アスベスト、スラグ繊維、ゾノライト、エレスタダイト、石膏繊維、シリカ繊維、シリカ・アルミナ繊維、ジルコニア繊維、窒化硼素繊維、窒化硅素繊維および硼素繊維等の無機繊維状強化材、ポリエステル繊維、ナイロン繊維、アクリル繊維、再生セルロース繊維、アセテート繊維、ケナフ、ラミー、木綿、ジュート、麻、サイザル、亜麻、リネン、絹、マニラ麻、さとうきび、木材パルプ、紙屑、古紙およびウール等の有機繊維状強化材、ガラスフレーク、非膨潤性雲母、グラファイト、金属箔、セラミックビーズ、クレー、マイカ、セリサイト、ゼオライト、ベントナイト、ドロマイト、カオリン、微粉ケイ酸、長石粉、チタン酸カリウム、シラスバルーン、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、硫酸バリウム、酸化カルシウム、酸化アルミニウム、酸化チタン、ケイ酸アルミニウム、酸化ケイ素、石膏、ノバキュライト、ドーソナイトおよび白土等の板状や粒状の強化材が挙げられる。これらの強化材は、エチレン／酢酸ビニル共重合体等の熱可塑性樹脂や、エポキシ樹脂等の熱硬化性樹脂で被覆または集束処理されていてもよく、アミノシランやエポキシシラン等のカップリング剤等で処理されていてもよい。

[0100] 本発明の添加剤組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、任意成分として、更に結晶核剤を配合してもよい。結晶核剤としては一般にポリマーの結晶核剤として用いられるものを適宜用いることができ、本発明においては無機系結晶核剤および有機系結晶核剤のいずれをも使用することができる。これらの成分は本発明の添加剤組成物を合成樹脂に配合するときに、合成樹脂に配合してもよい。

[0101] 無機系結晶核剤の具体例としては、カオリナイト、合成マイカ、クレー、ゼオライト、シリカ、グラファイト、カーボンブラック、酸化マグネシウム、酸化チタン、硫化カルシウム、窒化ホウ素、炭酸カルシウム、硫酸バリウム、酸化アルミニウム、酸化ネオジウムおよびフェニルホスホネート等の金属塩を挙げることができる。これらの無機系結晶核剤は、組成物中での分散性を高めるために、有機物で修飾されていてもよい。

[0102] 有機系結晶核剤の具体例としては、安息香酸ナトリウム、安息香酸カリウム、安息香酸リチウム、安息香酸カルシウム、安息香酸マグネシウム、安息香酸バリウム、テレフタル酸リチウム、テレフタル酸ナトリウム、テレフタル酸カリウム、シュウ酸カルシウム、ラウリン酸ナトリウム、ラウリン酸カリウム、ミリスチン酸ナトリウム、ミリスチン酸カリウム、ミリスチン酸カルシウム、オクタコサン酸ナトリウム、オクタコサン酸カルシウム、ステアリン酸ナトリウム、ステアリン酸カリウム、ステアリン酸リチウム、ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸マグネシウム、ステアリン酸バリウム、モンタン酸ナトリウム、モンタン酸カルシウム、トルイル酸ナトリウム、サリチル酸ナトリウム、サリチル酸カリウム、サリチル酸亜鉛、アルミニウムジベンゾエート、カリウムジベンゾエート、リチウムジベンゾエート、ナトリウムβ－ナフタレート、ナトリウムシクロヘキサンカルボキシレート等の有機カルボン酸金属塩、ｐ－トルエンスルホン酸ナトリウム、スルホイソフタル酸ナトリウム等の有機スルホン酸塩、ステアリン酸アミド、エチレンビスラウリン酸アミド、パルチミン酸アミド、ヒドロキシステアリン酸アミド、エルカ酸アミド、トリメシン酸トリス（ｔ－ブチルアミド）等のカルボン酸アミド、ベンジリデンソルビトールおよびその誘導体、ナトリウム－２，２’－メチレンビス（４，６－ジ－ｔ－ブチルフェニル）フォスフェート等のリン化合物金属塩、および２，２－メチルビス（４，６－ジ－ｔ－ブチルフェニル）ナトリウム等を挙げることができる。

[0103] また、本発明の添加剤組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、任意成分として、合成樹脂中の残渣触媒を中和するために、公知の中和剤を添加してもよい。中和剤としては、例えば、ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸リチウム、ステアリン酸ナトリウム等の脂肪酸金属塩、または、エチレンビス（ステアロアミド）、エチレンビス（１２－ヒドロキシステアロアミド）、ステアリン酸アミド等の脂肪酸アミド化合物が挙げられ、これら中和剤は混合して用いてもよい。

[0104] さらに、本発明の添加剤組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、

任意成分として、更にアクリル系加工助剤を配合してもよい。アクリル系加工助剤は、（メタ）アクリル酸エステルの１種を重合または２種以上を共重合させたものが使用できる。これらの成分は本発明の難燃剤組成物を合成樹脂に配合するときに、合成樹脂に配合してもよい。重合または共重合する（メタ）アクリル酸エステルの例としては、メチルアクリレート、メチルメタクリレート、エチルアクリレート、エチルメタクリレート、ｎ－プロピルアクリレート、イソプロピルアクリレート、ｎ－プロピルメタクリレート、イソプロピルメタクリレート、ｎ－ブチルアクリレート、イソブチルアクリレート、ｔ－ブチルメタクリレート、ｎ－ヘキシルアクリレート、ｎ－ヘキシルメタクリレート、２－エチルヘキシルアクリレート、２－エチルヘキシルメタクリレート、ドデシルメタクリレート、トリデシルメタクリレート等の（メタ）アクリル酸エステル等が挙げられる。また、これら以外にも、（メタ）アクリル酸、ヒドロキシ基を含有した（メタ）アクリル酸エステルも挙げられる。

[0105] 本発明の添加剤組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、任意成分として、可塑剤を配合してもよい。可塑剤としては、一般にポリマーの可塑剤として用いられるものを適宜用いることができ、例えばポリエステル系可塑剤、グリセリン系可塑剤、多価カルボン酸エステル系可塑剤、ポリアルキレングリコール系可塑剤、エーテルエステル系可塑剤およびエポキシ系可塑剤等を挙げることができる。これらの成分は、本発明の添加剤組成物を合成樹脂に配合するときに、合成樹脂に配合してもよい。

[0106] その他、本発明の添加剤組成物には、必要に応じて通常合成樹脂に使用される添加剤、例えば、架橋剤、帯電防止剤、金属石鹸、充点剤、防曇剤、プレートアウト防止剤、表面処理剤、蛍光剤、防黴剤、殺菌剤、発泡剤、金属不活性剤、離型剤、顔料、アクリル系加工助剤以外の加工助剤等を、本発明の効果を損なわない範囲で、配合することができる。これらの成分は本発明の添加剤組成物を合成樹脂に配合するときに、合成樹脂に配合してもよい。

[0107] 本発明の添加剤組成物の構成成分を混合する場合や、他の配合成分と混合

する場合は、混合には各種混合機を用いることができる。混合時には加熱してもよい。使用できる混合機の例を挙げると、タンブラーミキサー、ヘンシェルミキサー、リボンブレンダー、Ｖ型混合機、Ｗ型混合機、スーパーミキサー、ナウターミキサー等が挙げられる。

[0108] 本発明の添加剤組成物は、合成樹脂に優れた耐熱性と難燃性を付与することができるため、合成樹脂に配合し、優れた耐熱性を有する難燃性合成樹脂組成物として好ましく用いられる。本発明の難燃性合成樹脂組成物は、耐熱性と難燃性に優れる成形体が得られる。

[0109] 次に、本発明の難燃性合成樹脂組成物について説明する。

本発明の難燃性合成樹脂組成物は、合成樹脂に対し、本発明の添加剤組成物が配合されてなるものである。

[0110] 本発明の添加剤組成物により、難燃化される合成樹脂の具体例としては、ポリプロピレン、高密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、直鎖低密度ポリエチレン、架橋ポリエチレン、超高分子量ポリエチレン、ポリブテン－１、ポリ－３－メチルペンテン等のα－オレフィン重合体またはエチレン－酢酸ビニル共重合体、エチレン－エチルアクリレート共重合体、エチレン－プロピレン共重合体等のポリオレフィンおよびこれらの共重合体、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、塩素化ポリエチレン、塩素化ポリプロピレン、ポリフッ化ビニリデン、塩化ゴム、塩化ビニル－酢酸ビニル共重合体、塩化ビニル－エチレン共重合体、塩化ビニル－塩化ビニリデン共重合体、塩化ビニル－塩化ビニリデン－酢酸ビニル三元共重合体、塩化ビニル－アクリル酸エステル共重合体、塩化ビニル－マレイン酸エステル共重合体、塩化ビニル－シクロヘキシルマレイミド共重合体等の含ハロゲン樹脂；石油樹脂、クマロン樹脂、ポリスチレン、ポリ酢酸ビニル、アクリル樹脂、ポリメチルメタクリレート、ポリビニルアルコール、ポリビニルホルマール、ポリビニルブチラール；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、ポリシクロヘキサンジメチレンテレフタレート等のポリアルキレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリブチレンナフタレート等のポリアル

キレンナフタレート等の芳香族ポリエステルおよびポリテトラメチレンテレフタレート等の直鎖ポリエステル；ポリヒドロキシブチレート、ポリカプロラクトン、ポリブチレンサクシネート、ポリエチレンサクシネート、ポリ乳酸樹脂、ポリリンゴ酸、ポリグリコール酸、ポリジオキサン、ポリ（２－オキセタノン）等の分解性脂肪族ポリエステル；ポリフェニレンオキサイド、ポリカプロラクタムおよびポリヘキサメチレンアジパミド等のポリアミド、ポリカーボネート、分岐ポリカーボネート、ポリアセタール、ポリフェニレンサルファイド、ポリウレタン、繊維素系樹脂等の熱可塑性樹脂およびこれらのブレンド物あるいはフェノール樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、エポキシ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂等の熱硬化性樹脂、フッ素系樹脂、シリコーン樹脂、シリコーンゴムポリエーテルスルホン、ポリサルフォン、ポリフェニレンエーテル、ポリエーテルケトン、ポリエーテルエーテルケトン、液晶ポリマー等を挙げることができる。更に、イソプレンゴム、ブタジエンゴム、アクリロニトリル－ブタジエン共重合ゴム、スチレン－ブタジエン共重合ゴム、フッ素ゴム、シリコーンゴム等が挙げられる。

[0111] さらに難燃化させる合成樹脂の具体例を挙げると、オレフィン系熱可塑性エラストマー、スチレン系熱可塑性エラストマー、ポリエステル系熱可塑性エラストマー、ニトリル系熱可塑性エラストマー、ナイロン系熱可塑性エラストマー、塩化ビニル系熱可塑性エラストマー、ポリアミド系熱可塑性エラストマー、ポリウレタン系熱可塑性エラストマー等が挙げられる。これら合成樹脂は、１種でも２種以上を使用してもよい。また合成樹脂はアロイ化されていてもよい。

[0112] 本発明の合成樹脂組成物で使用する合成樹脂は、分子量、重合度、密度、軟化点、溶媒への不溶分の割合、立体規則性の程度、触媒残渣の有無、原料となるモノマーの種類や配合比率、重合触媒の種類（例えば、チーグラー触媒、メタロセン触媒等）等に関わらず、使用することができる。これら合成樹脂の中でも、優れた難燃性を付与できる点から、ポリオレフィン系樹脂が好ましい。

[0113] ポリオレフィン系樹脂の例を挙げると、例えば、ポリエチレン、低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、ポリプロピレン、ホモポリプロピレン、ランダムコポリマーポリプロピレン、ブロックコポリマーポリプロピレン、インパクトコポリマーポリプロピレン、ハイインパクトコポリマーポリプロピレン、アイソタクチックポリプロピレン、シンジオタクチックポリプロピレン、ヘミアイソタクチックポリプロピレン、無水マレイン酸変性ポリプロピレン、ポリブテン、シクロオレフィンポリマー、ステレオブロックポリプロピレン、ポリ－３－メチル－１－ブテン、ポリ－３－メチル－１－ペンテン、ポリ－４－メチル－１－ペンテン等のα－オレフィン重合体、エチレン／プロピレンブロックまたはランダム共重合体、エチレン－メチルメタクリレート共重合体、エチレン－酢酸ビニル共重合体等のα－オレフィン共重合体等が挙げられる。

[0114] 本発明の合成樹脂組成物は、添加剤組成物中に含まれる（Ａ）成分と（Ｃ）成分の合計量が、耐熱性と難燃性の点から、合成樹脂組成物中、１０質量％以上７０質量％未満であることが好ましく、１５質量％以上６０質量％未満であることがより好ましく、２０質量％以上５０質量％未満であることがさらにより好ましい。１０質量％未満だと十分な難燃性が発揮できない場合があり、７０質量％以上だと樹脂本来の物性を損なう場合がある。

[0115] 次に、本発明の成形体について説明する。

本発明の成形体は、本発明の難燃性合成樹脂組成物から得られるものである。本発明の合成樹脂組成物は成形することにより、耐熱性と難燃性に優れた成形品を得ることができる。成形方法は、特に限定されるものではなく、押し出し加工、カレンダー加工、射出成形、ロール、圧縮成形、ブロー成形等が挙げられ、樹脂板、シート、フィルム、異形品等の種々の形状の成形品が製造できる。

[0116] 本発明の合成樹脂組成物およびその成形体は、電気自動車、機械、電気・電子機器、ＯＡ機器等のハウジング（枠、筐体、カバー、外装）や部品、自動車内外装材等に使用できる。

[0117] 本発明の合成樹脂組成物およびその成形体は、電気・電子・通信、農林水産、鉱業、建設、食品、繊維、衣類、医療、石炭、石油、ゴム、皮革、自動車、精密機器、木材、建材、土木、家具、印刷、楽器等の幅広い産業分野に使用することができる。より具体的には、プリンター、パソコン、ワープロ、キーボード、ＰＤＡ（小型情報端末機）、電話機、複写機、ファクシミリ、ＥＣＲ（電子式金銭登録機）、電卓、電子手帳、カード、ホルダー、文具等の事務、ＯＡ機器、洗濯機、冷蔵庫、掃除機、電子レンジ、照明器具、ゲーム機、アイロン、コタツ等の家電機器、ＴＶ、ＶＴＲ、ビデオカメラ、ラジカセ、テープレコーダー、ミニディスク、ＣＤプレーヤー、スピーカー、液晶ディスプレー等のＡＶ機器、コネクター、リレー、コンデンサー、スイッチ、プリント基板、コイルボビン、半導体封止材料、ＬＥＤ封止材料、電線、ケーブル、トランス、偏向ヨーク、分電盤、時計等の電気・電子部品および通信機器、ＯＡ機器等のハウジング（枠、筐体、カバー、外装）や部品、自動車内外装材の用途に用いられる。

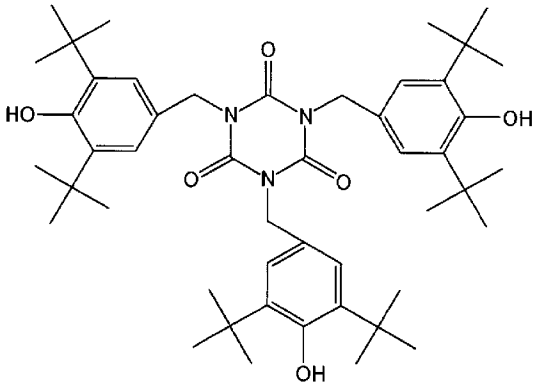
[0118] さらに、本発明の合成樹脂組成物およびその成形体は、座席（詰物、表地等）、ベルト、天井張り、コンパーチブルトップ、アームレスト、ドアトリム、リアパッケージトレイ、カーペット、マット、サンバイザー、ホイルカバー、マットレスカバー、エアバック、絶縁材、吊り手、吊り手帯、電線被覆材、電気絶縁材、塗料、コーティング材、上張り材、床材、隅壁、カーペット、壁紙、壁装材、外装材、内装材、屋根材、デッキ材、壁材、柱材、敷板、塀の材料、骨組および繰形、窓およびドア形材、こけら板、羽目、テラス、バルコニー、防音板、断熱板、窓材等の、自動車、ハイブリッドカー、電気自動車、車両、船舶、航空機、建物、住宅および建築用材料や、土木材料、衣料、カーテン、シーツ、合板、合繊板、絨毯、玄関マット、シート、バケツ、ホース、容器、眼鏡、鞄、ケース、ゴーグル、スキー板、ラケット、テント、楽器等の生活用品、スポーツ用品、等の各種用途に使用される。

実施例

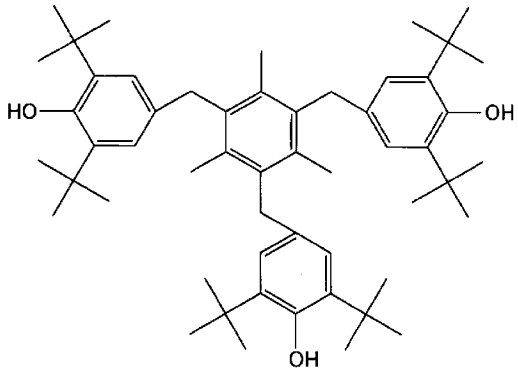
[0119] 〔添加剤組成物１～１２の調製〕

下記の表１、２の配合比（質量部）で、本発明の添加剤組成物－１～１２を製造した。（Ｂ）成分は下記化合物Ｂ－１および化合物Ｂ－２を使用した。

[0120] 化合物（Ｂ）－１



化合物（Ｂ）－２



[0121] 〔比較添加剤組成物１～１２の調製〕

下記の表３、４記載の配合比（質量部）で、比較添加剤組成物－１～１２を製造した。比較添加剤組成物１～１２では、（Ｂ）成分の替わりに、比較フェノール系酸化防止剤－１～３を使用した。

[0122] [表1]

		添加剤組成物-1	添加剤組成物-2	添加剤組成物-3	添加剤組成物-4	添加剤組成物-5	添加剤組成物-6
(A)成分	ﾎﾟﾘﾘﾝ酸ｱﾝﾓﾆｳﾑ*1	99.8	99.0	98.0	99.8	70.0	70.0
(B)成分	化合物B-1	0.2	1.0	2.0	－	0.3	1.4
	化合物B-2	－	－	－	0.2	－	－
(C)成分	窒素含有有機化合物-1*2	－	－	－	－	29.7	28.6
	窒素含有有機化合物-2*3	－	－	－	－	－	－
比較ﾌｪﾉｰﾙ系酸化防止剤-1*4		－	－	－	－	－	－
比較ﾌｪﾉｰﾙ系酸化防止剤-2*5		－	－	－	－	－	－
比較ﾌｪﾉｰﾙ系酸化防止剤-3*6		－	－	－	－	－	－

＊１：ポリリン酸アンモニウム（重合度１０００）

＊２：ポリ－［２，４－（ピペラジン－１，４－イル）－６－（モルホリノ－４－イル）－１，３，５－トリアジン］

＊３：メラミンシアヌレート

＊４：テトラキス［３－（３，５－ジ第三ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオン酸メチル］メタン

＊５：１，１，３－トリス（２－メチル－４－ヒドロキシ－５－第三ブチルフェニル）ブタン

＊６：３，９－ビス〔１，１－ジメチル－２－｛（３－第三ブチル－４－ヒドロキシ－５－メチルフェニル）プロピオニルオキシ｝エチル〕－２，４，８，１０－テトラオキサスピロ〔５，５〕ウンデカン

[0123] [表2]

		添加剤組成物-7	添加剤組成物-8	添加剤組成物-9	添加剤組成物-10	添加剤組成物-11	添加剤組成物-12
(A)成分	ﾎﾟﾘﾘﾝ酸ｱﾝﾓﾆｳﾑ*1	70.0	70.0	60.0	80.0	70.0	70.0
(B)成分	化合物B-1	2.8	－	0.3	0.3	0.3	－
	化合物B-2	－	0.3	－	－	－	0.3
(C)成分	窒素含有有機化合物-1*2	27.2	29.7	39.7	19.7	－	－
	窒素含有有機化合物-2*3	－	－	－	－	29.7	29.7
比較ﾌｪﾉｰﾙ系酸化防止剤-1*4		－	－	－	－	－	－
比較ﾌｪﾉｰﾙ系酸化防止剤-2*5		－	－	－	－	－	－
比較ﾌｪﾉｰﾙ系酸化防止剤-3*6		－	－	－	－	－	－

[0124]

[表3]

		比較添加剤組成物-1	比較添加剤組成物-2	比較添加剤組成物-3	比較添加剤組成物-4	比較添加剤組成物-5	比較添加剤組成物-6
(A)成分	ﾎﾟﾘﾘﾝ酸ｱﾝﾓﾆｳﾑ*1	100	99.8	99.0	98.0	99.8	99.8
(B)成分	化合物B-1	−	−	−	−	−	−
	化合物B-2	−	−	−	−	−	−
(C)成分	窒素含有有機化合物-1*2	−	−	−	−	−	−
	窒素含有有機化合物-2*3	−	−	−	−	−	−
比較ﾌｪﾉｰﾙ系酸化防止剤-1*4		−	0.2	1.0	2.0	−	−
比較ﾌｪﾉｰﾙ系酸化防止剤-2*5		−	−	−	−	0.2	−
比較ﾌｪﾉｰﾙ系酸化防止剤-3*6		−	−	−	−	−	0.2

[0125] [表4]

		比較添加剤組成物-7	比較添加剤組成物-8	比較添加剤組成物-9	比較添加剤組成物-10	比較添加剤組成物-11	比較添加剤組成物-12
(A)成分	ﾎﾟﾘﾘﾝ酸ｱﾝﾓﾆｳﾑ*1	70.0	70.0	70.0	70.0	70.0	70.0
(B)成分	化合物B-1	−	−	−	−	−	−
	化合物B-2	−	−	−	−	−	−
(C)成分	窒素含有有機化合物-1*2	29.7	28.6	27.2	29.7	29.7	−
	窒素含有有機化合物-2*3	−	−	−	−	−	29.7
比較ﾌｪﾉｰﾙ系酸化防止剤-1*4		0.3	1.4	2.8	−	−	0.3
比較ﾌｪﾉｰﾙ系酸化防止剤-2*5		−	−	−	0.3	−	−
比較ﾌｪﾉｰﾙ系酸化防止剤-3*6		−	−	−	−	0.3	−

[0126] 〔実施例１～１４および比較例１～１４〕

ポリプロピレン（メルトフローレート＝１４ｇ／１０ｍｉｎ）の表５、６記載の配合量（質量部）に、ステアリン酸カルシウム（滑剤）０．１質量部、トリス（２，４－ジー第三ブチルフェニル）ホスファイト（リン系酸化防

止剤）０．１質量部、グリセリンモノステアレート（滑剤）０．３質量部を配合して得られたポリプロピレン樹脂組成物に対して、添加剤組成物－１～１２を表５、６記載の配合量（質量部）で添加して、実施例１～１４の合成樹脂組成物を得た。これを、２００～２２０℃で押し出してペレットを製造し、次いでこれを使用して２００～２２０℃で射出成形を行い、６０×３０×２ｍｍと１２７×１２．７×１．６ｍｍの２種類の試験片および引張強度測定用試験片を得た。これらの試験片を用いて下記各種試験を行った。結果を表５、６に併記する。

[0127] また、比較添加剤組成物－１～１２を表７、８記載の配合量（質量部）で添加して、比較例１～１４の合成樹脂組成物を得た。同様にして試験片を得て、下記各種試験を行った。結果を表７、８に併記する。

[0128] ＜難燃性ＵＬ－９４Ｖ試験方法＞

１２７×１２．７×１．６ｍｍの試験片を垂直に保ち、下端にバーナーの火を１０秒間接炎させた後、炎を取り除き、試験片に着火した火が消える時間を測定した。次に、火が消えると同時に２回目の接炎を１０秒間行ない、１回目と同様にして着火した火が消える時間を測定した。また、落下する火種により試験片の下の綿が着火するか否かについても同時に評価した。１回目と２回目の燃焼時間、綿着火の有無等からＵＬ－９４Ｖ規格にしたがって燃焼ランクをつけた。燃焼ランクはＶ－０が最高のものであり、Ｖ－１、Ｖ－２となるにしたがって難燃性は低下する。但し、Ｖ－０～Ｖ－２のランクの何れにも該当しないものはＮＲとする。本発明ではＶ－２以下のものは実使用に耐えられない。

[0129] ＜ひび割れ＞

６０×３０×２ｍｍの試験片を１５０℃のオーブンに入れ、２４時間毎に目視にてびび割れの有無を確認した。ひび割れが発生するまでの時間を計測した。ひび割れが発生するまでの時間が長いほど耐熱性が良好であり、ひび割れが発生するまでの時間が短いほど耐熱性が不良である。本発明においては８００時間未満のものは実使用に耐えられない。

[0130] <引張強度>

ＩＳＯ５２７に準拠して試験を行った。すなわち、引張強度用の試験片を１５０℃のオーブンに入れ、４８時間毎に引張強度を測定した。引張強度の値がオーブンに入れる前の初期値に対して、７０％以下の数値になるまでの時間を計測した。７０％以下の数値になるまでの時間が長いほど耐熱性が良好であり、７０％以下の数値になるまでの時間が短いほど耐熱性が不良である。

[0131] [表5]

	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
ﾎﾟﾘﾌﾟﾛﾋﾟﾚﾝ樹脂	50	50	50	50	65	70	60
添加剤組成物-1	50	–	–	–	–	–	–
添加剤組成物-2	–	50	–	–	–	–	–
添加剤組成物-3	–	–	50	–	–	–	–
添加剤組成物-4	–	–	–	50	–	–	–
添加剤組成物-5	–	–	–	–	35	30	40
添加剤組成物-6	–	–	–	–	–	–	–
添加剤組成物-7	–	–	–	–	–	–	–
添加剤組成物-8	–	–	–	–	–	–	–
添加剤組成物-9	–	–	–	–	–	–	–
添加剤組成物-10	–	–	–	–	–	–	–
添加剤組成物-11	–	–	–	–	–	–	–
添加剤組成物-12	–	–	–	–	–	–	–
難燃性試験(UL-94V)	V-2	V-2	V-2	V-2	V-0	V-0	V-0
ひび割れ(時間)	936	960	984	960	1128	1152	1104
引張強度(時間)	1440	1536	1584	1392	1728	1824	1680

[0132]

[表6]

	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	実施例13	実施例14
ﾎﾟﾘﾌﾟﾛﾋﾟﾚﾝ樹脂	65	65	65	65	65	65	65
添加剤組成物-1	–	–	–	–	–	–	–
添加剤組成物-2	–	–	–	–	–	–	–
添加剤組成物-3	–	–	–	–	–	–	–
添加剤組成物-4	–	–	–	–	–	–	–
添加剤組成物-5	–	–	–	–	–	–	–
添加剤組成物-6	35	–	–	–	–	–	–
添加剤組成物-7	–	35	–	–	–	–	–
添加剤組成物-8	–	–	35	–	–	–	–
添加剤組成物-9	–	–	–	35	–	–	–
添加剤組成物-10	–	–	–	–	35	–	–
添加剤組成物-11	–	–	–	–	–	35	–
添加剤組成物-12	–	–	–	–	–	–	35
難燃性試験(UL-94V)	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-2	V-2
ひび割れ(時間)	1152	1200	1104	1152	1104	1080	1080
引張強度(時間)	1824	1872	1680	1776	1680	1680	1632

[0133]

[表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	比較例7
ﾎﾟﾘﾌﾟﾛﾋﾟﾚﾝ樹脂	50	50	50	50	50	50	65
比較添加剤組成物-1	50	–	–	–	–	–	–
比較添加剤組成物-2	–	50	–	–	–	–	–
比較添加剤組成物-3	–	–	50	–	–	–	–
比較添加剤組成物-4	–	–	–	50	–	–	–
比較添加剤組成物-5	–	–	–	–	50	–	–
比較添加剤組成物-6	–	–	–	–	–	50	–
比較添加剤組成物-7	–	–	–	–	–	–	35
比較添加剤組成物-8	–	–	–	–	–	–	–
比較添加剤組成物-9	–	–	–	–	–	–	–
比較添加剤組成物-10	–	–	–	–	–	–	–
比較添加剤組成物-11	–	–	–	–	–	–	–
比較添加剤組成物-12	–	–	–	–	–	–	–
難燃性試験(UL-94V)	V-2	V-2	V-2	V-2	V-2	V-2	V-0
ひび割れ(時間)	100	312	336	360	264	288	360
引張強度(時間)	192	624	672	720	480	528	720

[0134]

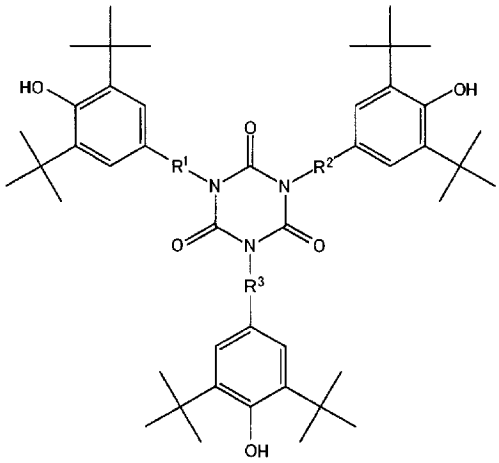
[表8]

	比較例8	比較例9	比較例10	比較例11	比較例12	比較例13	比較例14
ﾎﾟﾘﾌﾟﾛﾋﾟﾚﾝ樹脂	70	60	65	65	65	65	65
比較添加剤組成物-1	–	–	–	–	–	–	–
比較添加剤組成物-2	–	–	–	–	–	–	–
比較添加剤組成物-3	–	–	–	–	–	–	–
比較添加剤組成物-4	–	–	–	–	–	–	–
比較添加剤組成物-5	–	–	–	–	–	–	–
比較添加剤組成物-6	–	–	–	–	–	–	–
比較添加剤組成物-7	30	40	–	–	–	–	–
比較添加剤組成物-8	–	–	35	–	–	–	–
比較添加剤組成物-9	–	–	–	35	–	–	–
比較添加剤組成物-10	–	–	–	–	35	–	–
比較添加剤組成物-11	–	–	–	–	–	35	–
比較添加剤組成物-12	–	–	–	–	–	–	35
難燃性試験(UL-94V)	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-2
ひび割れ(時間)	384	336	384	432	288	312	336
引張強度(時間)	768	672	768	816	528	576	672

[0135] 表１～８の結果から、本発明によれば、優れた耐熱性と難燃性を合成樹脂に付与できる添加剤組成物が得られることは明らかである。また、表１～８の結果から、本発明によれば、耐熱性と難燃性に優れた難燃性合成樹脂組成物が得られることは明らかである。さらに、表１～８の結果から、本発明によれば、耐熱性と難燃性に優れた成形体を得られることは明らかである。

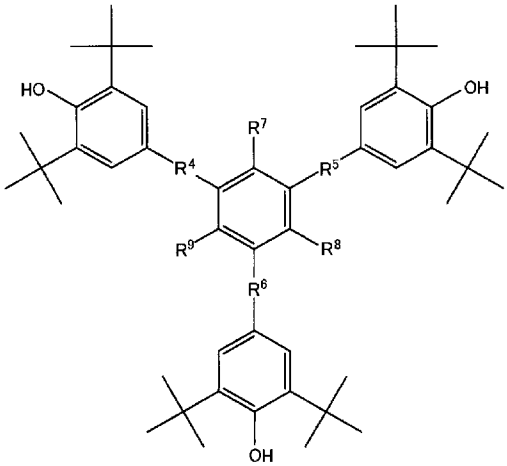
請求の範囲

[請求項1] （Ａ）成分としてポリリン酸アンモニウムの１種以上と、（Ｂ）成分として下記一般式（１）で表される化合物および下記一般式（２）で表される化合物からなる群より選ばれる少なくとも１種以上と、を含有することを特徴とする添加剤組成物。



（１）

一般式（１）において、R^1、R^2およびR^3は、それぞれ独立して炭素原子数１～３の２価の炭化水素基を表す。



（２）

一般式（２）において、R^4、R^5およびR^6は、それぞれ独立して炭素原子数１～３の２価の炭化水素基を表し、R^7、R^8およびR^9は、それぞれ独立して水素原子または炭素原子数１～４の１価の炭化水素基を表す。

[請求項2] さらに（Ｃ）成分として、一般式（１）で表される化合物以外の含

窒素有機化合物の１種以上を含有する請求項１記載の添加剤組成物。

[請求項3] （Ｃ）成分の含窒素有機化合物が、トリアジン誘導体の少なくとも１種以上である請求項２記載の添加剤組成物。

[請求項4] 合成樹脂に対し、請求項１～３のうちいずれか１項記載の添加剤組成物が配合されてなることを特徴とする難燃性合成樹脂組成物。

[請求項5] 前記合成樹脂が、ポリオレフィン系樹脂である請求項４記載の難燃性合成樹脂組成物。

[請求項6] 請求項４または５記載の難燃性合成樹脂組成物から得られることを特徴とする成形体。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2019/031493

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl. C08L101/00(2006.01)i, C08K3/32(2006.01)i, C08K5/13(2006.01)i, C08L23/00(2006.01)i, C09K21/10(2006.01)i, C09K21/12(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl. C08L101/00, C08K3/32, C08K5/13, C08L23/00, C09K21/10, C09K21/12

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	1971-2019
Registered utility model specifications of Japan	1996-2019
Published registered utility model applications of Japan	1994-2019

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	CN 103756136 A (ZHEJIANG FRET NEW MATERIAL CO., LTD.) 30 April 2014, claims, examples (Family: none)	1-6 2, 3
X Y	CN 101597395 A (ORIGIANL DOW ADVANCED COMPOUND) 09 December 2009, claims, examples (Family: none)	1-6 2, 3
X Y	CN 105542305 A (SHANGHAI JIEMIAN NEW TECH CO., LTD.) 04 May 2016, claims, examples (Family: none)	1, 4-6 2, 3

☒ 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
07 October 2019 (07.10.2019)	15 October 2019 (15.10.2019)
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

International application No.
PCT/JP2019/031493

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	CN 103173884 A (SHANGHAI GENIUS ADVANCED MAT) 26 June 2013, claims, examples (Family: none)	1, 4-6 2, 3
A	JP 2015-529263 A (E. I. DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY) 05 October 2015 & WO 2014/036870 A1 & EP 2892956 A1 & CN 103665776 A & KR 10-2015-0053907 A & CN 104769035 A	1-6

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１９／０３１４９３

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08L101/00(2006.01)i, C08K3/32(2006.01)i, C08K5/13(2006.01)i, C08L23/00(2006.01)i, C09K21/10(2006.01)i, C09K21/12(2006.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08L101/00, C08K3/32, C08K5/13, C08L23/00, C09K21/10, C09K21/12

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	１９７１－２０１９年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１９年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１９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
X Y	CN 103756136 A (ZHEJIANG PRET NEW MATERIAL CO LTD) 2014.04.30, 特許請求の範囲，実施例（ファミリーなし）	1-6 2,3
X Y	CN 101597395 A (ORIGIANL DOW ADVANCED COMPOUND) 2009.12.09, 特許請求の範囲，実施例（ファミリーなし）	1-6 2,3
X Y	CN 105542305 A (SHANGHAI JIEMIAN NEW TECH CO LTD) 2016.05.04, 特許請求の範囲，実施例（ファミリーなし）	1,4-6 2,3

☑　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	国際調査報告の発送日
０７．１０．２０１９	１５．１０．２０１９

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）　４Ｊ　４５１４
久保　道弘
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
X	CN 103173884 A (SHANGHAI GENIUS ADVANCED MAT) 2013.06.26,	1,4-6
Y	特許請求の範囲，実施例（ファミリーなし）	2,3
A	JP 2015-529263 A (イー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・アンド・カンパニー) 2015.10.05, & WO 2014/036870 A1 & EP 2892956 A1 & CN 103665776 A & KR 10-2015-0053907 A & CN 104769035 A	1-6