

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第3709342号
(P3709342)

(45) 発行日 平成17年10月26日(2005.10.26)

(24) 登録日 平成17年8月12日(2005.8.12)

(51) Int. Cl.⁷

C08L 101/00

C08K 3/34

F I

C08L 101/00

C08K 3/34

請求項の数 3 (全 7 頁)

(21) 出願番号	特願2000-581084 (P2000-581084)	(73) 特許権者	591203299 エルケム エイエスエイ
(86) (22) 出願日	平成11年11月8日 (1999.11.8)		ノルウェー国 0377 オスロ、ホフス
(65) 公表番号	特表2002-529560 (P2002-529560A)		ヴェイエン 65 ビイ
(43) 公表日	平成14年9月10日 (2002.9.10)	(73) 特許権者	501155869
(86) 国際出願番号	PCT/N01999/000336		モンド ミネラルス オサケュスティオ
(87) 国際公開番号	W02000/027911		フィンランド国 フィン-00440 ヘルシンキ、ローリンメンクヤ 3ビー
(87) 国際公開日	平成12年5月18日 (2000.5.18)	(74) 代理人	100064388
審査請求日	平成13年6月1日 (2001.6.1)		弁理士 浜野 孝雄
(31) 優先権主張番号	19985211	(74) 代理人	100067965
(32) 優先日	平成10年11月9日 (1998.11.9)		弁理士 森田 哲二
(33) 優先権主張国	ノルウェー (NO)	(72) 発明者	ダニエルセン、トレ
			ノルウェー国 エヌ-4621 クリスチヤンサン、オスヴェイエン 20
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 樹脂組成物、樹脂組成物の製造方法及び樹脂組成物中で使用するための充填剤混合物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

熱可塑性樹脂が、樹脂の重量に基づいて3～400重量%の充填剤を含有していること、上記充填剤はタルクとマイクロシリカとからなりそしてタルクとマイクロシリカとの重量比が15：1～1：15であることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物。

【請求項 2】

熱可塑性樹脂に、タルクとマイクロシリカとを、熱可塑性樹脂の重量に基づいて合計で3～400重量%の量で添加すること、その際、タルクとマイクロシリカの重量比を15：1～1：15に保持すること、ついで、得られた混合物を成形して熱可塑性樹脂製品又はコンパウンドとすることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物の製造方法。

【請求項 3】

充填剤混合物が、タルクとマイクロシリカを15：1～1：15の重量比で含有していることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

技術分野

本発明は、新規なかつ改善された樹脂組成物、特に、ポリオレフィン、ポリ塩化ビニル及びポリアミドを含有する熱可塑性樹脂組成物及び樹脂組成物の製造方法に関する。本発明は、更に、樹脂組成物の製造に使用するための充填剤混合物に関する。

【0002】

背景の技術

最終ポリプロピレン製品の剛性を増大させるために、微粒タルクのごとき機能性充填剤を含有するポリプロピレンのごときポリオレフィンコンパウンドを製造することは周知である。

【0003】

タルクは、理論式 $3\text{MgO} \cdot 4\text{SiO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ を有する水和珪酸マグネシウムであり、2枚のシリカシートにサンドイッチされた水酸化マグネシウムからなる。

【0004】

しかしながら、例えば、衝撃強さのごとき他の性質を改善するためにタルクの他に他の充填剤を添加した場合、充填剤としてタルクだけを使用した場合に得られる剛性は、衝撃強さを増大させるために第2の充填剤を添加した場合、実質的に減少することが認められている。従って、高い剛性と高い衝撃強さの両方を有するポリプロピレン製品を製造することは不可能であった。高い剛性と高い衝撃強さは、例えば自動車のバンパーのごときある種のポリプロピレン製品においては特に重要である。他の熱可塑性樹脂製品についても同様である。

10

【0005】

本明細書中で使用される熱可塑性樹脂という用語は、熱可塑性樹脂それ自体ばかりでなしに、その混合物、並びに、熱可塑性樹脂と、エラストマー、例えばニトリルゴムのほか他の材料との混合物も包含する。いわゆる熱可塑性ゴム、即ち、熱可塑性エラストマーも熱可塑性樹脂の定義中に包含される。熱可塑性樹脂それ自体には、ポリオレフィン、ポリ

20

【0006】

エステル、ポリスチレン、ABS共重合体、ポリ塩化ビニル(PVC)、非可塑化ポリ塩化ビニル(UPVC)、ポリアミド、アクリル重合体、ポリカーボネート重合体、ポリスルホン重合体等が包含される。

【0007】

ポリ塩化ビニルにマイクロシリカを添加することにより電線管の製造に使用されるポリ塩化ビニルの衝撃強さが改善されることは米国特許第4,722,952号明細書から知られている。かかる製品については、剛性は重要でない。反対に、高い剛性は電線管については望ましいものではない。

【0007】

本明細書中で使用されるマイクロシリカ(microsilica)という用語は、シリカを還元し、還元生成物を気相中で酸化して非晶質シリカを形成させるプロセスから得られる微細な非晶質 SiO_2 を意味する。マイクロシリカは少なくとも70重量%のシリカ(SiO_2)を含有し、 $2.1 - 2.3\text{g/cm}^3$ の密度(specific density)と $15 - 30\text{m}^2/\text{g}$ の表面積を有し得る。一次粒子は実質的に球形である。一次粒子は約 $0.15\mu\text{m}$ の平均粒度を有する。マイクロシリカは電気還元炉内でケイ素又はケイ素合金を製造する際の同時生産物として得られることが好ましい。これらのプロセスにおいては、多量のシリカが SiO_2 として形成される。この SiO_2 をフィルター又は他の捕集装置を使用して慣用の方法で回収する。本発明の目的については、マイクロシリカという用語は、フライ・アッシュ、特に、10ミクロン以下の粒度を有する、実質的に球形のフライ・アッシュ粒子を包含することを理解すべきである。

30

【0008】

発明の開示

本発明の目的は、高い剛性と高い衝撃強さの両方を有する熱可塑性樹脂を提供することにある。

40

【0009】

第1の要旨によれば、本発明は熱可塑性樹脂、特に、ポリオレフィン、ポリ塩化ビニル及びポリアミドが、該樹脂の重量に基づいて3~400重量%の充填剤を含有していること、上記充填剤はタルクとマイクロシリカとからなりそしてタルクとマイクロシリカとの重量比が15:1~1:15であることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物に関する。

【0010】

好ましい態様によれば、タルクとマイクロシリカとの重量比は6:1~1:5である。

50

【0011】

第2の要旨によれば、本発明は、熱可塑性樹脂、特に、ポリオレフィン、ポリ塩化ビニル及びポリアミドに、タルクとマイクロシリカとを、熱可塑性樹脂の重量に基づいて合計で3～400重量%の量で添加すること、その際、タルクとマイクロシリカの重量比を15：1～1：15に保持すること、ついで、得られた混合物を成形して熱可塑性樹脂製品又はコンパウンドとすることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物の製造方法に関する。

【0012】

本発明の方法の好ましい態様によれば、タルクとマイクロシリカは、タルクとマイクロシリカの混合物として熱可塑性樹脂に添加される。

【0013】

熱可塑性樹脂のコンパウンド化(compounding)は押出、カレンダーリング、射出成形等のごとき慣用の方法を使用して行い得る。

【0014】

第3の要旨によれば、本発明は、充填剤混合物がタルクとマイクロシリカを15：1～1：15、特に、6：1～1：5の重量比で含有していることを特徴とする熱可塑性樹脂、特にポリオレフィン、ポリ塩化ビニル及びポリアミド中で使用するための充填剤混合物に関する。

【0015】

驚くべきことに、タルクとマイクロシリカを熱可塑性樹脂、特に、ポリオレフィン、ポリ塩化ビニル及びポリアミド中で組み合わせて使用することにより、高い剛性と高い衝撃強さを有する最終製品が得られることが認められた。

【0016】

実施例1

Borealis社から供給される非充填剤含有ポリプロピレン共重合体“BA 202E”にMondo Minerals OYから供給されるタルクと、Elkem ASAから供給されるマイクロシリカとからなる充填剤混合物を添加して配合用押出機から押出した。充填剤混合物中のタルクとマイクロシリカの重量比は2:1であり、ポリプロピレン共重合体の重量に基づいて5、10及び19重量%の充填剤混合物を添加して試験を行った。押出ポリプロピレンの剛性はISO 527に従って引張弾性率として測定し、押出ポリプロピレンの衝撃強さはISO 179/1Aに従ってノッチ付きシャルピー衝撃強さとして測定した。

【0017】

比較の目的で、ポリプロピレン共重合体に充填剤を添加しないもの、5、10及び18重量%のタルクを添加したもの及び5及び10重量%のマイクロシリカを添加したものを配合用押出機から押出した。これらの比較試験においても、剛性と衝撃強さを上記した方法で測定した。得られた剛性と衝撃強さは、それぞれ、図1及び図2に示されている。

【0018】

図1及び図2から判るごとく、タルクとマイクロシリカの両者を含有するポリプロピレンの衝撃強さは、タルクだけを含有するポリプロピレンよりも非常に高く、充填剤としてマイクロシリカだけを含有するポリプロピレンより極めて僅かに低い。タルクとマイクロシリカの両者を含有するポリプロピレンの剛性は、充填剤としてマイクロシリカだけを含有するポリプロピレンより非常に高く、充填剤としてタルクだけを含有するポリプロピレンより極めて僅かに低い。従って、驚くべきことに、タルクとマイクロシリカの混合物を使用することにより、高い剛性と高い衝撃強さの両者を有するポリプロピレンが得られる。

【0019】

実施例2

Borealis社から供給される非充填剤含有高密度ポリプロピレン(HDPE)共重合体“HDPE HE 2467-BL”に、Mondo Minerals OYから供給されるタルクと、Elkem ASAから供給されるマイクロシリカとからなる充填剤混合物を添加して配合用押出機から押出した。充填剤混合物中のタルクとマイクロシリカの重量比は2：1であり、HDPE共重合体の重量に基づいて、10重量%の充填剤混合物を添加して試験を行った。押出HDPEの剛性はISO 527に従って

引張弾性率として測定し、押出HDPEの衝撃強さはISO 179/1Aに従ってノッチ付きシャルピー衝撃強さとして測定した。

【 0 0 2 0 】

比較の目的で、HDPE共重合体に充填剤を添加しないもの、10重量%のタルクを添加したものと及び10重量%のマイクロシリカを添加したものを配合用押出機から押出した。これらの比較試験においても、剛性と衝撃強さを上記した方法で測定した。得られた剛性と衝撃強さは表 1 に示されている。

【 0 0 2 1 】

表 1

材料	引張弾性率 (MPa)	衝撃強さ (kJ/m ²)
HDPE 非充填剤含有	8 5 0	1 3 . 6
HDPE+10%タルク	1 1 6 0	1 8 . 0
HDPE+10%マイクロシリカ	8 8 0	2 7 . 6
HDPE+10%充填剤混合物	1 0 7 0	2 2 . 3

10

【 0 0 2 2 】

表 1 から判るごとく、タルクとマイクロシリカの両者を含有するHDPEの衝撃強さは、タルクだけを含有するHDPEよりが高いが、充填剤としてマイクロシリカだけを含有するHDPEより低い。タルクとマイクロシリカの両者を含有するHDPEの剛性は、充填剤としてマイクロシリカだけを含有するHDPEより非常に高く、充填剤としてタルクだけを含有するHDPEより極めて僅かに低い。従って、驚くべきことに、タルクとマイクロシリカの混合物を使用することにより、高い剛性と高い撃強さの両者を有するHDPEが得られる。

20

【 0 0 2 3 】

実施例 3

非充填剤含有ポリ塩化ビニル重合体(PVC)重合体に、Mondo Minerals OYから供給されるタルクと、Elkem ASAから供給されるマイクロシリカとからなる充填剤混合物を添加して圧延した。充填剤混合物中のタルクとマイクロシリカとの重量比は、一つの操作では2 : 1とし、他方の操作では1 : 2とし、PVC重合体の重量に基づいて、5重量%の充填剤混合物を添加して試験を行った。圧延PVCの剛性はISO 527に従って引張弾性率として測定し、圧延PVCの衝撃強さはISO 179/1Aに従ってノッチ付きシャルピー衝撃強さとして測定した。

30

【 0 0 2 4 】

比較の目的で、PVC重合体に充填剤を添加しないもの、5重量%のタルクを添加したものと及び5重量%のマイクロシリカを添加したものを圧延した。これらの比較試験においても、剛性と衝撃強さを上記した方法で測定した。得られた剛性と衝撃強さは表 2 に示されている。

【 0 0 2 5 】

40

表 2

材料	引張弾性率 (MPa)	衝撃強さ (kJ/m ²)
PVC 非充填剤含有	2 9 1 6	6 . 5
PVC+5 %タルク	3 4 8 4	5 . 4
PVC+5 %マイクロシリカ	3 0 1 0	8 . 5
PVC+5 %充填剤混合物 タルク/マイクロシリカ 2 : 1	3 3 6 0	5 . 1
PVC+5 %充填剤混合物 タルク/マイクロシリカ 1 : 2	3 1 6 7	7 . 9

10

【 0 0 2 6 】

表 2 から判るごとく、タルクとマイクロシリカを 2 : 1 の比率で含有するPVCの衝撃強さは、タルクだけを含有するPVCとほぼ同一であるが、充填剤としてマイクロシリカだけを含有するPVCより低い。タルクとマイクロシリカを 1 : 2 の比率で含有するPVCについては、衝撃強さは、タルクとマイクロシリカを 2 : 1 の比率で含有するPVCより高く、マイクロシリカだけを含有するPVCと殆ど同じ高さであることが判る。タルクとマイクロシリカを 2 : 1 の比率で含有するPVCの剛性は、充填剤としてマイクロシリカだけを含有するPVCより非常に高く、充填剤としてタルクだけを含有するPVCより極めて僅かに低い。タルクとマイクロシリカを 1 : 2 の比率で含有するPVCについては、引張弾性率はマイクロシリカだけを含有するPVCより依然として高いことが認められるであろう。従って、驚くべきことに、タルクとマイクロシリカの混合物を使用することにより、高い剛性と高い衝撃強さの両者を有するPVCが得られる。

20

【 0 0 2 7 】

実施例 4

BASF社から供給される非充填剤含有ポリアミド(PA)重合体 “ PA6 Ultramid B35 ” に、Mondo Minerals OYから供給されるタルクと、Elkem ASAから供給されるマイクロシリカとからなる充填剤混合物を添加して配合用押出機から押出した。

30

【 0 0 2 8 】

充填剤混合物は重合体の10重量%の量で添加した。充填剤混合物中のタルクとマイクロシリカとの重量比は、第 1 の試験では 1 : 1 とし、第 2 の試験では 1 : 2 とした。押出PAの剛性はISO 527に従って引張弾性率として測定し、押出PAの衝撃強さはISO 179/1Aに従ってノッチ付きシャルピー衝撃強さとして測定した。

【 0 0 2 9 】

比較の目的で、PA重合体に充填剤を添加しないもの、10重量%のタルクを添加したもの及び10重量%のマイクロシリカを添加したものを配合用押出機から押出した。これらの比較試験においても剛性と衝撃強さを上記した方法で測定した。得られた剛性と衝撃強さは表 3 に示されている。

40

【 0 0 3 0 】

表 3

材料	引張弾性率 (MPa)	衝撃強さ (kJ/m ²)
PA 非充填剤含有	7 0 0	破壊せず
PA+10%タルク	1 4 3 0	1 0 . 6
PA+10%マイクロシリカ	8 9 0	3 3 . 2
PA+10%充填剤混合物 タルク/マイクロシリカ 1 : 1	1 2 1 0	1 6 . 3
PA+10%充填剤混合物 タルク/マイクロシリカ 1 : 2	1 1 2 0	1 9 . 7

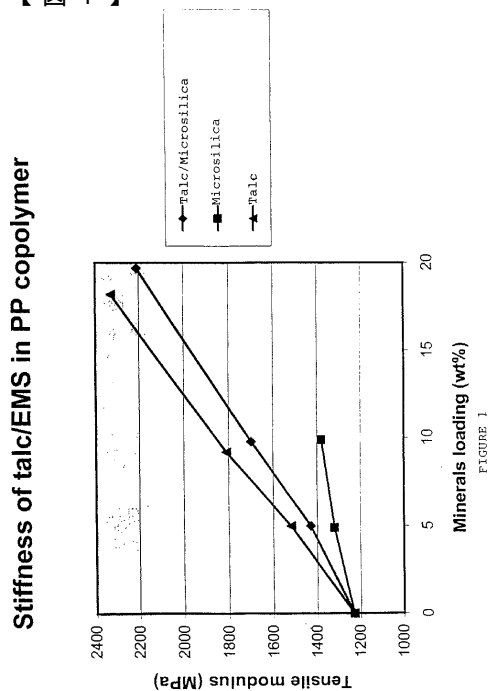
10

【 0 0 3 1 】

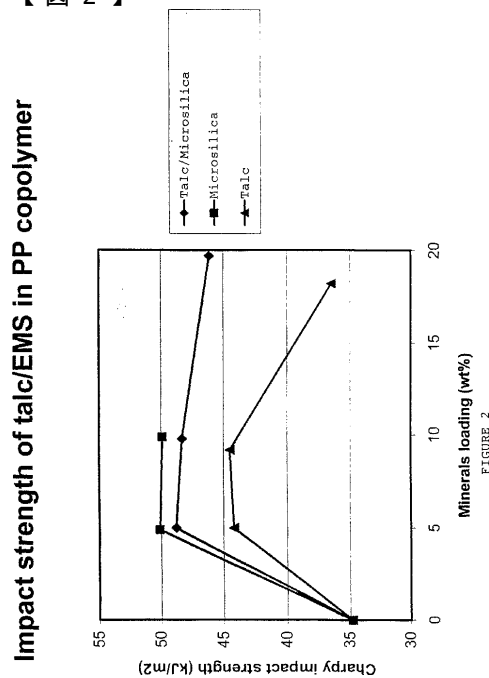
表 3 から判るごとく、タルクとマイクロシリカの両者を含有するPAの衝撃強さはタルクだけを含有するPAより非常に高いが、充填剤としてマイクロシリカだけを含有するPAより低い。衝撃強さは充填剤混合物中のマイクロシリカの量を増大させるにつれて増大することが認められる。タルクとマイクロシリカの両者を含有するPAの剛性はマイクロシリカだけを含有するPAより非常に高いが、充填剤混合物中のマイクロシリカの量を増大させた場合には、剛性は僅かに低下する。

20

【 図 1 】



【 図 2 】



フロントページの続き

- (72)発明者 リネボ, アンヌ, カスリン
ノルウエー国 エヌ - 1 3 7 0 アスカー, ネドレ フリデンダル 1 0 6
(72)発明者 サンデルン, ビヨルン
フィンランド国 フィン - 8 7 4 0 0 カヤーニ ケンポルク 3

審査官 内田 靖恵

- (56)参考文献 特開平04 - 055450 (JP, A)

- (58)調査した分野(Int.Cl.⁷, DB名)
C08L101/00-101/16
C08K 3/34