

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5859952号
(P5859952)

(45) 発行日 平成28年2月16日 (2016. 2. 16)

(24) 登録日 平成27年12月25日 (2015. 12. 25)

(51) Int. Cl.

F I

C O 8 L 23/00 (2006. 01)
 C O 8 L 77/00 (2006. 01)
 C O 8 L 23/26 (2006. 01)
 C O 8 J 3/20 (2006. 01)

C O 8 L 23/00
 C O 8 L 77/00
 C O 8 L 23/26
 C O 8 J 3/20 C E S Z
 C O 8 J 3/20 C F G

請求項の数 5 (全 31 頁)

(21) 出願番号 特願2012-280271 (P2012-280271)
 (22) 出願日 平成24年12月21日 (2012. 12. 21)
 (65) 公開番号 特開2013-147647 (P2013-147647A)
 (43) 公開日 平成25年8月1日 (2013. 8. 1)
 審査請求日 平成27年5月26日 (2015. 5. 26)
 (31) 優先権主張番号 特願2011-282234 (P2011-282234)
 (32) 優先日 平成23年12月22日 (2011. 12. 22)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

早期審査対象出願

(73) 特許権者 000241500
 トヨタ紡織株式会社
 愛知県刈谷市豊田町 1 丁目 1 番地
 (73) 特許権者 000003609
 株式会社豊田中央研究所
 愛知県長久手市横道 4 1 番地の 1
 (74) 代理人 100094190
 弁理士 小島 清路
 (74) 代理人 100151644
 弁理士 平岩 康幸
 (72) 発明者 鬼頭 雅征
 愛知県刈谷市豊田町 1 丁目 1 番地 トヨタ
 紡織株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 熱可塑性樹脂組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

ポリオレフィン樹脂（但し、変性ポリプロピレンを除く）と、ポリアミド樹脂（但し、粘土鉱物変性ポリアミドを除く）と、相容化剤と、を配合してなる熱可塑性樹脂組成物であって、

前記相容化剤は、エラストマーに前記ポリアミド樹脂と反応し得る反応性基が付与された変性エラストマーであり、

前記エラストマーは、エチレン - 1 - ブテン共重合体（E B R）、エチレン - 1 - ペンテン共重合体、エチレン - 1 - オクテン共重合体（E O R）、プロピレン - 1 - ブテン共重合体（P B R）、プロピレン - 1 - ペンテン共重合体、及びプロピレン - 1 - オクテン共重合体（P O R）からなる群より選ばれるオレフィン系熱可塑性エラストマーであり、

前記ポリオレフィン樹脂、前記ポリアミド樹脂、及び前記相容化剤の合計を 1 0 0 質量 % とした場合に、

前記ポリオレフィン樹脂に由来する成分の含有量は、3 5 ~ 9 0 質量 % であり、

前記相容化剤に由来する成分の含有量は、1 ~ 5 0 質量 % であり、

前記熱可塑性樹脂組成物は、電子顕微鏡で観察される樹脂相分離構造を有しており、

前記樹脂相分離構造は、連続相と前記連続相内に分散された分散相とを有し、且つ前記分散相の中に更に微分散相を有しており、

前記微分散相の平均径は 5 ~ 1 2 0 0 n m であり、

前記連続相は、前記ポリオレフィン樹脂により形成されており、

10

20

前記分散相は、前記ポリアミド樹脂により形成されており、
前記微分散相は、前記相容化剤、及び、前記相容化剤と前記ポリアミド樹脂との反応物
のうちの少なくとも一種により形成されていることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物。

【請求項 2】

前記ポリオレフィン樹脂、前記ポリアミド樹脂、及び前記相容化剤の合計を 100 質量
%とした場合に、

前記ポリオレフィン樹脂に由来する成分の含有量は、35～90 質量%であり、
前記ポリアミド樹脂に由来する成分の含有量は、5～55 質量%であり、
前記相容化剤に由来する成分の含有量は、1～50 質量%である請求項 1 に記載の熱可
塑性樹脂組成物。

10

【請求項 3】

前記ポリオレフィン樹脂、前記ポリアミド樹脂、及び前記相容化剤の合計を 100 質量
%とした場合に、

前記ポリオレフィン樹脂に由来する成分の含有量は、35～80 質量%であり、
前記ポリアミド樹脂に由来する成分の含有量は、10～40 質量%であり、
前記相容化剤に由来する成分の含有量は、10～50 質量%である請求項 1 又は 2 に記
載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項 4】

前記エラストマーは、エチレン - 1 - ブテン共重合体 (EBR)、エチレン - 1 - ペン
テン共重合体、又は、エチレン - 1 - オクテン共重合体 (EOR) であり、

20

前記ポリアミド樹脂は、ポリアミド 11 (PA11) であり、
前記ポリオレフィン樹脂、前記ポリアミド樹脂及び前記相容化剤の合計を 100 質量%
とした場合に、前記 PA11 の含有割合は 5～55 質量%である請求項 1 に記載の熱可塑
性樹脂組成物。

【請求項 5】

前記ポリオレフィン樹脂、前記ポリアミド樹脂、及び前記相容化剤の合計を 100 質量
%とした場合に、

前記ポリオレフィン樹脂に由来する成分の含有量は、35～85 質量%であり、
前記相容化剤に由来する成分の含有量は、10～50 質量%である請求項 4 に記載の熱
可塑性樹脂組成物。

30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、熱可塑性樹脂組成物に関する。更に詳しくは、本発明は、剛性に優れるととも
に、耐衝撃特性にも優れる熱可塑性樹脂組成物に関する。

【背景技術】

【0002】

従来より、極性の異なる樹脂同士を混合して、樹脂の特性を改質するポリマーブレンド
(ポリマーアロイを含む) が盛んに検討されている (例えば、特許文献 1～4 参照)。

特に、自動車の内装部品や外装部品等の分野においては、高い機械的物性が求められて
おり、耐衝撃特性と剛性 (曲げ弾性率) の両立が必要不可欠となっている。

40

しかしながら、上述のポリマーブレンドにおいて、耐衝撃特性と剛性の各特性は互いに
トレードオフの関係にあり、特に耐衝撃特性を生かすことにより剛性が不足するという相
反する関係にあるため、耐衝撃特性及び剛性の両者の特性を十分に満足するものは、未だ
得られていないのが現状である。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0003】

【特許文献 1】特開 2010 - 195853 号公報

【特許文献 2】特開 2005 - 187809 号公報

50

【特許文献3】特開2003-292791号公報

【特許文献4】特開2003-49074号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

本発明は、上記実情に鑑みてなされたものであり、剛性に優れるとともに、耐衝撃特性にも優れる熱可塑性樹脂組成物を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0005】

上記問題を解決するために、請求項1に記載の発明は、ポリオレフィン樹脂（但し、変性ポリプロピレンを除く）と、ポリアミド樹脂（但し、粘土鉱物変性ポリアミドを除く）と、相容化剤と、を配合してなる熱可塑性樹脂組成物であって、

前記相容化剤は、エラストマーに前記ポリアミド樹脂と反応し得る反応性基が付与された変性エラストマーであり、

前記エラストマーは、エチレン-1-ブテン共重合体（EBR）、エチレン-1-ペンテン共重合体、エチレン-1-オクテン共重合体（EOR）、プロピレン-1-ブテン共重合体（PBR）、プロピレン-1-ペンテン共重合体、及びプロピレン-1-オクテン共重合体（POR）からなる群より選ばれるオレフィン系熱可塑性エラストマーであり、

前記ポリオレフィン樹脂、前記ポリアミド樹脂、及び前記相容化剤の合計を100質量%とした場合に、

前記ポリオレフィン樹脂に由来する成分の含有量は、35～90質量%であり、

前記相容化剤に由来する成分の含有量は、1～50質量%であり、

前記熱可塑性樹脂組成物は、電子顕微鏡で観察される樹脂相分離構造を有しており、

前記樹脂相分離構造は、連続相と前記連続相内に分散された分散相とを有し、且つ前記分散相の中に更に微分散相を有しており、

前記微分散相の平均径は5～1200nmであり、

前記連続相は、前記ポリオレフィン樹脂により形成されており、

前記分散相は、前記ポリアミド樹脂により形成されており、

前記微分散相は、前記相容化剤、及び、前記相容化剤と前記ポリアミド樹脂との反応物のうちの少なくとも一種により形成されていることを要旨とする。

【0006】

請求項2に記載の発明は、請求項1記載において、前記ポリオレフィン樹脂、前記ポリアミド樹脂、及び前記相容化剤の合計を100質量%とした場合に、

前記ポリオレフィン樹脂に由来する成分の含有量は、35～90質量%であり、

前記ポリアミド樹脂に由来する成分の含有量は、5～55質量%であり、

前記相容化剤に由来する成分の含有量は、1～50質量%であることを要旨とする。

【0007】

請求項3に記載の発明は、請求項1又は2記載において、前記ポリオレフィン樹脂、前記ポリアミド樹脂、及び前記相容化剤の合計を100質量%とした場合に、

前記ポリオレフィン樹脂に由来する成分の含有量は、35～80質量%であり、

前記ポリアミド樹脂に由来する成分の含有量は、10～40質量%であり、

前記相容化剤に由来する成分の含有量は、10～50質量%であることを要旨とする。

請求項4に記載の発明は、請求項1記載において、前記エラストマーは、エチレン-1-ブテン共重合体（EBR）、エチレン-1-ペンテン共重合体、又は、エチレン-1-オクテン共重合体（EOR）であり、

前記ポリアミド樹脂は、ポリアミド11（PA11）であり、

前記ポリオレフィン樹脂、前記ポリアミド樹脂及び前記相容化剤の合計を100質量%とした場合に、前記PA11の含有割合は5～55質量%であることを要旨とする。

請求項5に記載の発明は、請求項4記載において、前記ポリオレフィン樹脂、前記ポリアミド樹脂、及び前記相容化剤の合計を100質量%とした場合に、

前記ポリオレフィン樹脂に由来する成分の含有量は、35～85質量%であり、
前記相容化剤に由来する成分の含有量は、10～50質量%であることを要旨とする。

【発明の効果】

【0008】

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、ポリオレフィン樹脂とポリアミド樹脂と相容化剤とを配合してなり、電子顕微鏡で観察される特定の樹脂相分離構造を有するため、剛性に優れるとともに、耐衝撃特性にも優れている。

【図面の簡単な説明】

【0009】

【図1】本発明の熱可塑性樹脂組成物の樹脂相分離構造を説明する模式図である。

10

【図2】参考例1の100Wで1分間の酸素プラズマエッチング処理した後、オスミウムコート処理した試料のFE-SEM観察による樹脂の相分離構造を説明する説明図である。

【図3】実施例2の100Wで1分間の酸素プラズマエッチング処理した後、オスミウムコート処理した試料のFE-SEM観察による樹脂の相分離構造を説明する説明図である。

【図4】比較例1のFE-SEM観察による樹脂の相分離構造を説明する説明図である。

【図5】実施例12の100Wで1分間の酸素プラズマエッチング処理した後、オスミウムコート処理した試料のFE-SEM観察による樹脂の相分離構造を説明する説明図である。

20

【図6】実施例13の100Wで1分間の酸素プラズマエッチング処理した後、オスミウムコート処理した試料のFE-SEM観察による樹脂の相分離構造を説明する説明図である。

【図7】実施例14の100Wで1分間の酸素プラズマエッチング処理した後、オスミウムコート処理した試料のFE-SEM観察による樹脂の相分離構造を説明する説明図である。

【図8】実施例15の100Wで1分間の酸素プラズマエッチング処理した後、オスミウムコート処理した試料のFE-SEM観察（低倍率）による樹脂の相分離構造を説明する説明図である。

【図9】実施例15の100Wで1分間の酸素プラズマエッチング処理した後、オスミウムコート処理した試料のFE-SEM観察による樹脂の相分離構造を説明する説明図である。

30

【図10】実施例16の100Wで1分間の酸素プラズマエッチング処理した後、オスミウムコート処理した試料のFE-SEM観察による樹脂の相分離構造を説明する説明図である。

【図11】実施例17の100Wで1分間の酸素プラズマエッチング処理した後、オスミウムコート処理した試料のFE-SEM観察による樹脂の相分離構造を説明する説明図である。

【図12】実施例18の100Wで1分間の酸素プラズマエッチング処理した後、オスミウムコート処理した試料のFE-SEM観察（低倍率）による樹脂の相分離構造を説明する説明図である。

40

【図13】実施例18の100Wで1分間の酸素プラズマエッチング処理した後、オスミウムコート処理した試料のFE-SEM観察による樹脂の相分離構造を説明する説明図である。

【図14】実施例19の100Wで1分間の酸素プラズマエッチング処理した後、オスミウムコート処理した試料のFE-SEM観察による樹脂の相分離構造を説明する説明図である。

【図15】実施例20の100Wで1分間の酸素プラズマエッチング処理した後、オスミウムコート処理した試料のFE-SEM観察による樹脂の相分離構造を説明する説明図である。

50

【図16】実施例21の100Wで1分間の酸素プラズマエッチング処理した後、オスミウムコート処理した試料のFE-SEM観察（低倍率）による樹脂の相分離構造を説明する説明図である。

【図17】実施例21の100Wで1分間の酸素プラズマエッチング処理した後、オスミウムコート処理した試料のFE-SEM観察による樹脂の相分離構造を説明する説明図である。

【発明を実施するための形態】

【0010】

ここで示される事項は例示的なもの及び本発明の実施形態を例示的に説明するためのものであり、本発明の原理と概念的な特徴とを最も有効に且つ難なく理解できる説明であると思われるものを提供する目的で述べたものである。この点で、本発明の根本的な理解のために必要である程度以上に本発明の構造的な詳細を示すことを意図してはならず、図面と合わせた説明によって本発明の幾つかの形態が実際にどのように具現化されるかを当業者に明らかにするものである。

【0011】

〔1〕熱可塑性樹脂組成物

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、ポリオレフィン樹脂と、ポリアミド樹脂と、相容化剤と、を配合してなる熱可塑性樹脂組成物である。

【0012】

（1-1）各成分について

上記「ポリオレフィン樹脂」は特に限定されるものではなく、種々のポリオレフィンを用いることができる。例えば、エチレン単独重合体、プロピレン単独重合体、エチレン-プロピレン共重合体、エチレン- -オレフィン共重合体、及びプロピレン- -オレフィン共重合体等が挙げられる。

また、上記 -オレフィンとは、通常、炭素数3～20の不飽和炭化水素化合物であり、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、3-メチル-1-ブテン、4-メチル-1-ペンテン等が挙げられる。

これらのポリオレフィン樹脂は1種単独で用いてもよいし、2種以上を組み合わせ用いてもよい。即ち、ポリオレフィン樹脂は上記重合体の混合物であってもよい。

【0013】

ポリオレフィン樹脂のゲルパーミエーションクロマトグラフィ（GPC）による重量平均分子量（ポリスチレン換算）は、特に限定されないが、10,000～500,000であることが好ましく、より好ましくは100,000～450,000、更に好ましくは200,000～400,000である。

【0014】

尚、このポリオレフィン樹脂は、ポリアミド樹脂に対して親和性を有さないポリオレフィンであり、且つ、ポリアミド樹脂に対して反応し得る反応性基も有さないポリオレフィンである点において、後述する相容化剤に包含される相容化剤としてのポリオレフィン系成分と異なっている。

【0015】

上記「ポリアミド樹脂」は、アミド結合（-NH-CO-）を介して複数の単量体が重合されてなる鎖状骨格を有する重合体である。

【0016】

ポリアミド樹脂を構成する単量体としては、アミノカプロン酸、アミノウンデカン酸、アミノドデカン酸、パラアミノメチル安息香酸等のアミノ酸、 -カプロラクタム、ウンデカンラクタム、 -ラウリルラクタム等のラクタム等が挙げられる。これらの単量体は1種単独で用いてもよいし、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

【0017】

更に、ポリアミド樹脂は、ジアミンとジカルボン酸との共重合により得ることもできる。この場合、単量体としてのジアミンとしては、エチレンジアミン、1,3-ジアミノブ

10

20

30

40

50

ロパン、1, 4 - ジアミノブタン、1, 6 - ジアミノヘキサン、1, 7 - ジアミノヘプタン、1, 8 - ジアミノオクタン、1, 9 - ジアミノノナン、1, 10 - ジアミノデカン、1, 11 - ジアミノウンデカン、1, 12 - ジアミノドデカン、1, 13 - ジアミノトリデカン、1, 14 - ジアミノテトラデカン、1, 15 - ジアミノペンタデカン、1, 16 - ジアミノヘキサデカン、1, 17 - ジアミノヘプタデカン、1, 18 - ジアミノオクタデカン、1, 19 - ジアミノノナデカン、1, 20 - ジアミノエイコサン、2 - メチル - 1, 5 - ジアミノペンタン、2 - メチル - 1, 8 - ジアミノオクタン等の脂肪族ジアミン、シクロヘキサンジアミン、ビス - (4 - アミノシクロヘキシル) メタン等の脂環式ジアミン、キシリレンジアミン (p - フェニレンジアミン及び m - フェニレンジアミン等) 等の芳香族ジアミン等が挙げられる。これらの単量体は1種単独で用いてもよいし、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

10

【0018】

更に、単量体としてのジカルボン酸としては、シュウ酸、マロン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ウンデカン二酸、ドデカン二酸、ブラシリン酸、テトラデカン二酸、ペンタデカン二酸、オクタデカン二酸のような脂肪族ジカルボン酸、シクロヘキサンジカルボン酸のような脂環式ジカルボン酸、フタル酸、テレフタル酸、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸のような芳香族ジカルボン酸等が挙げられる。これらの単量体は1種単独で用いてもよいし、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

【0019】

20

本発明においては、上記ポリアミド樹脂は、炭素原子数が11であるアミド結合含有単位を主鎖に含むポリアミド樹脂であることが好ましい。即ち、炭素原子数が11である単量体に由来する構成単位を含むポリアミド樹脂であることが好ましく、特に11 - アミノウンデカン酸又はウンデカンラクタムを単量体として用いた重合体 (以下、この重合体を「PA11 (ポリアミド11) 系樹脂」ともいう) であることが好ましい。とりわけ11 - アミノウンデカン酸は、ヒマシ油から得られる単量体であるため、環境保護の観点 (特にカーボンニュートラルの観点) から望ましい。

これらの炭素原子数が11である単量体に由来する構成単位は、PA11系樹脂内において全構成単位のうちの50%以上であることが好ましい。即ち、炭素原子数が11未満である単量体に由来する構成単位、及び/又は、炭素原子数が12以上である単量体に由来する構成単位、をPA11系樹脂内において全構成単位のうちの50%未満含むことができる。更に、このPA11系樹脂は、その全構成単位が、炭素原子数11である単量体に由来する構成単位であってもよい。即ち、ポリアミド樹脂は、ポリアミド11 (PA11) であってもよい。

30

【0020】

また、本発明において、上記PA11系樹脂以外の好ましいポリアミドとしては、例えば、例えば、ポリアミド6、ポリアミド66、ポリアミド610、ポリアミド612、ポリアミド614、ポリアミド12、ポリアミド6T、ポリアミド6I、ポリアミド9T、ポリアミドM5T、ポリアミド1010、ポリアミド1012、ポリアミド10T、ポリアミドMXD6、ポリアミド6T/66、ポリアミド6T/6I、ポリアミド6T/6I/66、ポリアミド6T/2M-5T、ポリアミド9T/2M-8T等が挙げられる。

40

尚、これらのポリアミドは、1種単独で用いてもよいし、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

【0021】

また、PA11系樹脂と、他のポリアミドとを併用する際には、ポリアミド樹脂全体を100質量%とした場合に、他のポリアミドの含有割合を40質量%未満とすることができる。

尚、ポリアミド樹脂は、主鎖を構成する炭素原子のうちの半数以上 (50%以上) の炭素原子が鎖状骨格を構成することが好ましい。即ち、ポリアミド樹脂は、芳香族骨格を含んでもよいが、芳香族骨格を構成する炭素原子は、主鎖を構成する炭素原子のうちの半数

50

未満（５０％未満）であることが好ましい。

【００２２】

ポリアミド樹脂のＧＰＣによる重量平均分子量（ポリスチレン換算）は、特に限定されないが、５，０００～１００，０００であることが好ましく、より好ましくは７，５００～５０，０００、更に好ましくは１０，０００～５０，０００である。

【００２３】

上記「相容化剤」は、エラストマーに、ポリアミド樹脂と反応し得る反応性基が付与された変性エラストマーである。

上記エラストマーとしては、オレフィン系熱可塑性エラストマーが用いられる。

【００２４】

上記オレフィン系熱可塑性エラストマーとしては、エチレン-１-ブテン共重合体（ＥＢＲ）、エチレン-１-ペンテン共重合体、エチレン-１-オクテン共重合体（ＥＯＲ）、プロピレン-１-ブテン共重合体（ＰＢＲ）、プロピレン-１-ペンテン共重合体、及びプロピレン-１-オクテン共重合体（ＰＯＲ）からなる群より選ばれるものが用いられる。これらのなかでも、ＥＢＲ、ＥＰＲが好ましい。

【００２７】

また、上記ポリアミド樹脂と反応し得る反応性基としては、酸無水物基（-ＣＯ-Ｏ-ＯＣ-）、カルボキシル基（-ＣＯＯＨ）、エポキシ基[-Ｃ_２Ｏ（２つの炭素原子と１つの酸素原子とからなる三員環構造）]、オキサゾリン基（-Ｃ_３Ｈ_４ＮＯ）及びイソシアネート基（-ＮＣＯ）等が挙げられる。尚、これらの反応性基をエラストマーに付与する方法は特に限定されず、公知の方法を用いることができる。

【００２８】

上述の反応性基のなかでも、特に酸無水物基が好ましい。この酸無水物基を導入するための単量体としては、例えば、無水マレイン酸、無水フタル酸、無水イタコン酸、無水コハク酸、無水グルタル酸、無水アジピン酸、無水シトラコン酸、テトラヒドロ無水フタル酸、ブテニル無水コハク酸等の酸無水物が挙げられる。これらのなかでも、無水マレイン酸、無水フタル酸、無水イタコン酸が好ましく、無水マレイン酸が特に好ましい。

尚、これらの単量体は、１種単独で用いてもよいし、２種以上を組み合わせ用いてもよい。

【００２９】

また、相容化剤として、酸無水物基等の酸基が導入された変性エラストマーを用いる場合、酸基の量は特に限定されない。

【００３０】

ここで、本発明の相容化剤として用いられる具体的な変性エラストマーとしては、例えば、無水マレイン酸変性ＥＢＲ等の無水マレイン酸変性オレフィン系熱可塑性エラストマー等が挙げられる。これらのなかでも、無水マレイン酸変性ＥＢＲが好ましい。

尚、本発明における相容化剤は、１種単独で用いてもよいし、２種以上を組み合わせ用いてもよい。

【００３１】

相容化剤のＧＰＣによる重量平均分子量（ポリスチレン換算）は、特に限定されないが、１０，０００～５００，０００であることが好ましく、より好ましくは２０，０００～５００，０００、更に好ましくは３０，０００～３００，０００である。

【００３２】

（１-２）熱可塑性樹脂組成物について

本発明における熱可塑性樹脂組成物は、電子顕微鏡で観察される樹脂相分離構造を有するものである。

この樹脂相分離構造は、連続相（１）と、連続相内に分散された分散相（２）と、を有し、且つ、分散相（２）の中に更に微分散相（３）を有するものである（図１参照）。

尚、この樹脂相分離構造における連続相内には、内部に微分散相（３）を有していない分散相が分散していてもよい。

10

20

30

40

50

【 0 0 3 3 】

本発明においては、連続相が実質的にポリオレフィン樹脂により形成されており、分散相が実質的にポリアミド樹脂により形成された形態である。

尚、分散相の中に存在する微分散相の構成は不明であるが、実質的には、相容化剤、及び、相容化剤と樹脂成分との反応物のうちの少なくとも一種により形成されていると推測される。

【 0 0 3 4 】

また、本発明における熱可塑性樹脂組成物において、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤に由来する各成分の含有割合は以下の通りである。

ポリオレフィン樹脂に由来する成分の含有割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を 100 質量%とした場合に、35 ~ 90 質量%であり、より好ましくは 35 ~ 85 質量%、更に好ましくは 35 ~ 80 質量%である。

相容化剤に由来する成分の含有割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を 100 質量%とした場合に、1 ~ 50 質量%であり、より好ましくは 3 ~ 40 質量%、更に好ましくは 5 ~ 30 質量%である。

【 0 0 3 5 】

この際、ポリアミド樹脂として、P A 1 1、P A 1 2、P A 6、P A 6 1 0、P A 1 0 1 0、P A M X D 6、P A 1 0 T が用いられている場合には、その含有割合は、以下であることが好ましい。

ポリアミド樹脂として P A 1 1 が用いられている場合、その含有割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を 100 質量%とした場合に、1 ~ 55 質量%であることが好ましく、より好ましくは 10 ~ 55 質量%、更に好ましくは 15 ~ 55 質量%である。

ポリアミド樹脂として P A 1 2 が用いられている場合、その含有割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を 100 質量%とした場合に、1 ~ 25 質量%であることが好ましく、より好ましくは 5 ~ 25 質量%、更に好ましくは 10 ~ 25 質量%である。

ポリアミド樹脂として P A 6 が用いられている場合、その含有割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を 100 質量%とした場合に、1 ~ 25 質量%であることが好ましく、より好ましくは 5 ~ 25 質量%、更に好ましくは 10 ~ 25 質量%である。

ポリアミド樹脂として P A 6 1 0 が用いられている場合、その含有割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を 100 質量%とした場合に、1 ~ 40 質量%であることが好ましく、より好ましくは 5 ~ 40 質量%、更に好ましくは 10 ~ 40 質量%である。

ポリアミド樹脂として P A 1 0 1 0 が用いられている場合、その含有割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を 100 質量%とした場合に、1 ~ 55 質量%であることが好ましく、より好ましくは 5 ~ 55 質量%、更に好ましくは 10 ~ 55 質量%である。

ポリアミド樹脂として P A M X D 6 が用いられている場合、その含有割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を 100 質量%とした場合に、1 ~ 40 質量%であることが好ましく、より好ましくは 5 ~ 40 質量%、更に好ましくは 10 ~ 40 質量%である。

ポリアミド樹脂として P A 1 0 T が用いられている場合、その含有割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を 100 質量%とした場合に、1 ~ 45 質量%であることが好ましく、より好ましくは 5 ~ 45 質量%、更に好ましくは 10 ~ 45 質量%である。

【 0 0 3 6 】

上記に示したポリアミド樹脂以外のポリアミド樹脂が用いられている場合には、その含有割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を 100 質量%とし

10

20

30

40

50

た場合に、1～55質量%であることが好ましく、より好ましくは1～40質量%、更に好ましくは1～25質量%である。

【0038】

上記分散相の平均径（平均粒子径）は、10000nm以下であることが好ましく、より好ましくは50～8000nm、更に好ましくは100～4000nmである。

尚、分散相の平均径等は、電子顕微鏡を用いて得られる画像等を基に測定することができる。

【0039】

上記微分散相の平均径（平均粒子径）は、5～1200nmであり、好ましくは5～1000nm、より好ましくは5～600nm、更に好ましくは10～400nm、特に好ましくは15～350nmである。

尚、微分散相の平均径は、電子顕微鏡を用いて得られる画像等を基に測定することができる。

【0040】

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂、及び相容化剤が熔融混練されることにより得られるものである。尚、「熔融混練」については、後述の熱可塑性樹脂組成物の製造方法にて、その詳細を説明する。

【0041】

〔2〕熱可塑性樹脂組成物の製造方法

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、ポリアミド樹脂及び相容化剤が熔融混練された混合樹脂と、ポリオレフィン樹脂と、を熔融混練する混合工程を備える製造方法によって製造することができる。

【0042】

（2-1）各成分について

上記「ポリオレフィン樹脂」、「ポリアミド樹脂」及び「相容化剤」については、それぞれ、前述の説明をそのまま適用することができる。

【0043】

（2-2）混合工程について

上記「混合工程」は、ポリアミド樹脂及び相容化剤が熔融混練された混合樹脂と、ポリオレフィン樹脂とを熔融混練する工程である。

このように、予めポリアミド樹脂及び相容化剤が熔融混練された混合樹脂を用いることにより、相容化剤をより効果的に機能させることができる。即ち、分散相又は連続相となるポリアミド樹脂に対して、相容化剤を予め混合することにより、ポリオレフィン樹脂に対して機能することなく相容化剤が単独で分散されてしまうことを抑制できるものと考えられる。

【0044】

上記「混合樹脂」は、ペレット化等により固形化された形態であってもよいし、溶融物であってもよい。

この混合樹脂は、例えば、ポリアミド樹脂及び相容化剤を、押出機（一軸スクリュウ押出機及び二軸混練押出機等）、ニーダ及びミキサ（高速流動式ミキサ、パドルミキサ、リボンミキサ等）等の混練装置を用いて熔融混練することにより得ることができる。これらの装置は1種のみを用いてもよく2種以上を併用してもよい。また、2種以上を用いる場合には連続的に運転してもよく、回分的に（バッチ式で）運転してもよい。更に、ポリアミド樹脂と相容化剤とは一括して混合してもよいし、いずれか一方を複数回に分けて添加投入（多段配合）して混合してもよい。

また、ポリアミド樹脂及び相容化剤を熔融混練する際の混合温度は特に限定されず、各成分の種類により適宜調整することができる。特に、各化合物が溶融された状態で混合されることが好ましい。具体的には、この混合温度は、190～350 とすることができ、好ましくは200～330、更に好ましくは205～310 である。

【0045】

上記混合工程において、上記混合樹脂と、ポリオレフィン樹脂との熔融混練は、例えば、押出機（一軸スクリュウ押出機及び二軸混練押出機等）、ニーダ及びミキサ（高速流動式ミキサ、バドルミキサ、リボンミキサ等）等の混練装置を用いて行うことができる。これらの装置は1種のみを用いてもよく2種以上を併用してもよい。また、2種以上を用いる場合には連続的に運転してもよく、回分的に（バッチ式で）運転してもよい。更に、第1混合樹脂とポリオレフィン樹脂とは一括して混合してもよく、いずれか一方を複数回に分けて添加投入（多段配合）して混合してもよい。

【0046】

この混合工程における混合温度は特に限定されず、熔融混練を行うことができる温度であればよく、各成分の種類により適宜調整することができる。特に、いずれもの熱可塑性樹脂も熔融された状態で混合されることが好ましい。具体的には、この混合温度は、190～350 とすることができ、好ましくは200～300、更に好ましくは205～260 である。

【0047】

尚、この混合工程においては、（1）ペレット化等により固形化された混合樹脂と、ポリオレフィン樹脂とを熔融混練してもよいし、（2）多段配合式の混練装置等を用いて、上流側でポリアミド樹脂と相容化剤とを熔融混練した後に、同じ装置内の下流側でポリオレフィン樹脂を添加して、ポリアミド樹脂及び相容化剤の熔融混練物（混合樹脂）とポリオレフィン樹脂との混合を行ってもよい。

【0048】

本発明の熱可塑性樹脂組成物の製造方法において、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の配合割合は以下の通りである。

ポリオレフィン樹脂の配合割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を100質量%とした場合に、35～90質量%であり、より好ましくは35～85質量%、更に好ましくは35～80質量%である。

相容化剤の配合割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を100質量%とした場合に、1～50質量%であり、より好ましくは3～40質量%、更に好ましくは5～30質量%である。

【0049】

この際、ポリアミド樹脂として、PA11、PA12、PA6、PA610、PA1010、PAMXD6、PA10Tを用いる場合には、その配合割合は、以下であることが好ましい。

ポリアミド樹脂としてPA11を用いる場合、その配合割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を100質量%とした場合に、1～55質量%であることが好ましく、より好ましくは10～55質量%、更に好ましくは15～55質量%である。

ポリアミド樹脂としてPA12を用いる場合、その配合割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を100質量%とした場合に、1～25質量%であることが好ましく、より好ましくは5～25質量%、更に好ましくは10～25質量%である。

ポリアミド樹脂としてPA6を用いる場合、その配合割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を100質量%とした場合に、1～25質量%であることが好ましく、より好ましくは5～25質量%、更に好ましくは10～25質量%である。

ポリアミド樹脂としてPA610を用いる場合、その配合割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を100質量%とした場合に、1～40質量%であることが好ましく、より好ましくは5～40質量%、更に好ましくは10～40質量%である。

ポリアミド樹脂としてPA1010を用いる場合、その配合割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を100質量%とした場合に、1～55質量%で

10

20

30

40

50

あることが好ましく、より好ましくは5～55質量%、更に好ましくは10～55質量%である。

ポリアミド樹脂としてPAMXD6を用いる場合、その配合割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を100質量%とした場合に、1～40質量%であることが好ましく、より好ましくは5～40質量%、更に好ましくは10～40質量%である。

ポリアミド樹脂としてPA10Tを用いる場合、その配合割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を100質量%とした場合に、1～45質量%であることが好ましく、より好ましくは5～45質量%、更に好ましくは10～45質量%である。

10

【0050】

上記に示したポリアミド樹脂以外のポリアミド樹脂を用いる場合には、その配合割合は、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤の合計を100質量%とした場合に、1～55質量%であることが好ましく、より好ましくは1～40質量%、更に好ましくは1～25質量%である。

【0052】

また、本発明においては、本発明の目的を阻害しない範囲で、ポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂及び相容化剤以外の他の成分を含有させてもよい。他の成分としては、上記以外の他の熱可塑性樹脂、難燃剤、難燃助剤、充填剤、着色剤、抗菌剤、帯電防止剤等が挙げられる。これらは1種単独で用いてもよいし、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

20

【0053】

上記他の熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリエステル系樹脂（ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンテレフタレート、ポリカーボネート、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）等が挙げられる。

上記難燃剤としては、例えば、ハロゲン系難燃剤（ハロゲン化芳香族化合物）、リン系難燃剤（窒素含有リン酸塩化合物、リン酸エステル等）、窒素系難燃剤（グアニジン、トリアジン、メラミン、及びこれらの誘導体等）、無機系難燃剤（金属水酸化物等）、ホウ素系難燃剤、シリコン系難燃剤、硫黄系難燃剤、赤リン系難燃剤等が挙げられる。

上記難燃助剤としては、例えば、各種アンチモン化合物、亜鉛を含む金属化合物、ビスマスを含む金属化合物、水酸化マグネシウム、粘土質珪酸塩等が挙げられる。

30

上記充填剤としては、例えば、ガラス成分（ガラス繊維、ガラスビーズ、ガラスフレーク等）、シリカ、無機繊維（ガラス繊維、アルミナ繊維、カーボン繊維）、黒鉛、珪酸化合物（珪酸カルシウム、珪酸アルミニウム、カオリン、タルク、クレー等）、金属酸化物（酸化鉄、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化アンチモン、アルミナ等）、カルシウム、マグネシウム、亜鉛等の金属の炭酸塩及び硫酸塩、有機繊維（芳香族ポリエステル繊維、芳香族ポリアミド繊維、フッ素樹脂繊維、ポリイミド繊維、植物性繊維等）

上記着色剤としては、例えば、顔料及び染料等が挙げられる。

【0054】

[3] 成形体について

40

本発明における熱可塑性樹脂組成物はどのように成形してもよく、その方法は特に限定されない。また、得られる成形体の形状、大きさ及び厚さ等も特に限定されず、その用途も特に限定されない。上記成形体は、例えば、自動車、鉄道車両、船舶及び飛行機等の外装材、内装材及び構造材等として用いられる。このうち自動車用品としては、自動車用外装材、自動車用内装材、自動車用構造材、エンジンルーム内部品等が挙げられる。具体的には、バンパー、スポイラー、カウリング、フロントグリル、ガーニッシュ、ボンネット、トランクリッド、フェンダーパネル、ドアパネル、ルーフパネル、インストルメントパネル、ドアトリム、クォータートリム、ルーフライニング、ピラーガーニッシュ、デッキトリム、トノボード、パッケージトレイ、ダッシュボード、コンソールボックス、キッキングプレート、スイッチベース、シートバックボード、シートフレーム、アームレスト、

50

サンバイザ、インタークマニホールド、エンジンヘッドカバー、エンジンアンダーカバー、オイルフィルターハウジング、車載用電子部品（ＥＣＵ、ＴＶモニター等）のハウジング、エアフィルターボックス等が挙げられる。更に、例えば、建築物及び家具等の内装材、外装材及び構造材が挙げられる。即ち、ドア表装材、ドア構造材、各種家具（机、椅子、棚、筆筒等）の表装材、構造材等が挙げられる。その他、包装体、収容体（トレイ等）、保護用部材及びパーティション部材等が挙げられる。また、家電製品（薄型ＴＶ、冷蔵庫、洗濯機、掃除機、携帯電話、携帯ゲーム機、ノート型パソコン等）の筐体及び構造体としても適用できる。

【実施例】

【００５５】

以下、実施例により本発明を具体的に説明する。

[１] ポリアミド樹脂としてＰＡ１１を使用した熱可塑性樹脂組成物の製造及び試験片の作製

< 参考例１ >

（１）混合樹脂の調製

（Ａ）ポリアミド樹脂としてＰＡ１１（ナイロン１１樹脂、アルケマ株式会社製、品名「Rilsan BMN O」、重量平均分子量１８，０００、融点１９０）を用い、（Ｃ）相容化剤として、無水マレイン酸変性ＥＰＲ（三井化学株式会社製、品名「タフマー MP0620」、MFR（２３０）＝０．３ｇ／１０分）を用い、これらのペレットを表１に示す配合となるようにドライブレンドした後、二軸溶融混練押出機（株式会社テクノベル製、スクリュー径１５ｍｍ、Ｌ／Ｄ＝５９）に投入し、混練温度２１０、押出速度２．０ｋｇ／時間、スクリュー回転数２００回転／分の条件で混合を行い、更に、ペレタイザーを用いて押し出された混合樹脂を裁断して混合樹脂ペレットを作製した。

【００５６】

（２）混合工程

次いで、（Ｂ）ポリオレフィン樹脂として、ポリプロピレン樹脂（ホモポリマー、日本ポリプロ株式会社製、品名「ノバテック MA1B」、重量平均分子量３１２，０００、融点１６５）を用い、先に得られた混合樹脂ペレットと、表１に示す配合となるようにドライブレンドした後、二軸溶融混練押出機（株式会社テクノベル製、スクリュー径１５ｍｍ、Ｌ／Ｄ＝５９）に投入し、混練温度２１０、押出速度２．０ｋｇ／時間、スクリュー回転数２００回転／分の条件で混合を行い、更に、ペレタイザーを用いて押し出された熱可塑性樹脂組成物を裁断して参考例１の熱可塑性樹脂組成物のペレットを作製した。

その後、得られた参考例１の熱可塑性樹脂組成物のペレットを、射出成形機（日精樹脂工業株式会社製、４０トン射出成形機）のホッパーに投入し、設定温度２１０、金型温度６０の射出条件で評価用試験片を射出成形した。

【００５７】

< 実施例２～１１ >

（Ｃ）相容化剤として、無水マレイン酸変性ＥＢＲ（三井化学株式会社製、品名「タフマー MH7020」、MFR（２３０）＝１．５ｇ／１０分）を用い、表１に示す配合となるように各ペレットをドライブレンドしたこと以外は、参考例１と同様にして実施例２～１１の熱可塑性樹脂組成物のペレットを作製した。次いで、参考例１と同様に射出成形を行い、実施例２～１１の評価用試験片を得た。

【００５８】

< 比較例１ >

（Ｃ）相容化剤として、無水マレイン酸変性ＰＰ（三洋化成工業株式会社製、品名「ユーメックス １００１、重量平均分子量４０，０００、酸価２６」、MFR（２３０）＝０．７ｇ／１０分）を用い、表１に示す配合となるように各ペレットをドライブレンドしたこと以外は、参考例１と同様にして比較例１の熱可塑性樹脂組成物のペレットを作製した。次いで、参考例１と同様に射出成形を行い、比較例１の評価用試験片を得た。

【００５９】

10

20

30

40

50

< 比較例 2 >

(C) 相容化剤として、未変性の EPR (三井化学株式会社製、品名「タフマー P - 0680」、MFR (230) = 0.7 g / 10 分) を用い、表 1 に示す配合となるように各ペレットをドライブレンドしたこと以外は、参考例 1 と同様にして比較例 2 の熱可塑性樹脂組成物のペレットを作製した。次いで、参考例 1 と同様に射出成形を行い、比較例 2 の評価用試験片を得た。

【0060】

< 比較例 3 >

(C) 相容化剤として、未変性の EBR (三井化学株式会社製、品名「タフマー A - 1070S」、MFR (230) = 2.2 g / 10 分) を用い、表 1 に示す配合となるように各ペレットをドライブレンドしたこと以外は、参考例 1 と同様にして比較例 3 の熱可塑性樹脂組成物のペレットを作製した。次いで、参考例 1 と同様に射出成形を行い、比較例 3 の評価用試験片を得た。

【0061】

【表 1】

表 1

	参考例	実施例										比較例		
		2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	1	2	3
配合割合 (質量%)	A	20	5	10	25	30	40	25	25	25	25	20	20	20
	B	70	85	80	65	60	50	70	60	55	45	70	70	70
	C	10	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		-	10	10	10	10	10	5	15	20	30	-	-	-
		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	10	-	-
	未変性EPR	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	10	-
	未変性EBR	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	10

【0062】

[2] 熱可塑性樹脂組成物の評価(参考例1、実施例2～11)

(1) シャルピー衝撃強度の測定

上記[1]で得られた参考例1、実施例2～11の各評価用試験片を用いて、JIS
K 7111-1に準拠してシャルピー衝撃強度の測定を行った。その結果を表2及び表3

10

20

30

40

50

に示す。尚、このシャルピー衝撃強度の測定では、ノッチ（タイプ A）を有する試験片を用い、温度 23 において、エッジワイズ試験法による衝撃の測定を行った。

【 0 0 6 3 】

（ 2 ）モルフォロジー観察

上記（ 1 ）のシャルピー衝撃強度測定に供した参考例 1、実施例 2 ～ 11 及び比較例 1 ～ 3 の各試験片の破断面を 100 W で 1 分間の酸素プラズマエッチング処理した後にオスミウムコート処理し、電界放出形走査型電子顕微鏡（日本電子株式会社製）により観察することにより、樹脂相分離構造を確認した。その結果を表 2 及び表 3 に示す。

尚、参考例 1、実施例 2 及び比較例 1 については、それぞれ、得られた画像を図 2、図 3 及び図 4 に示した。

【 0 0 6 4 】

（ 3 ）曲げ弾性率の測定

上記〔 1 〕で得られた参考例 1、実施例 2 ～ 11 及び比較例 1 ～ 3 の各評価用試験片を用いて、JIS K 7171 に準拠して曲げ弾性率の測定を行った。その結果を表 2 及び表 3 に示す。尚、この曲げ弾性率は、各試験片を支点間距離（L）64 mm とした 2 つの支点（曲率半径 5 mm）で支持しつつ、支点間中心に配置した作用点（曲率半径 5 mm）から速度 2 mm / 分にて荷重の負荷を行い測定した。

【 0 0 6 5 】

【表 2】

表 2

	参考例	実施例	比較例		
	1	2	1	2	3
相分離構造	連続相:PP 分散相:PA		連続相:PP 分散相:PA		
分散相内における 微分散相の有無	有り	有り	無し	無し	無し
微分散相の平均径 (nm)	50～600	20～200	－	－	－
シャルピー衝撃強度 (kJ/m ²)	6.5	10.1	1.4	2.7	4.2
曲げ弾性率 (MPa)	1238	1241	1386	1251	1352

【 0 0 6 6 】

【表 3】

表 3

	実 施 例									
	3	4	5	6	7	8	9	10	11	
相分離構造	連続相:PP 分散相:PA									
分散相内における 微分散相の有無	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	
シャルピー衝撃強度 (kJ／m ²)	6.6	8.0	8.8	9.5	10.3	3.8	17.9	72.9	69.4	
曲げ弾性率 (MPa)	1078	1046	1184	1182	1148	1275	952	775	453	

【 0 0 6 7 】

[3] 評価結果 (参考例 1、実施例 2 ~ 11 の効果)

表 2、表 3 及び図 2 ~ 図 4 によれば、参考例 1、実施例 2 ~ 11 の試験片における樹脂相分離構造は、連続相と分散相とを有しており、且つ分散相内に更に平均径 5 ~ 1200 nm (具体的には、20 ~ 600 nm) の微分散相を有していること (即ち、サラミ構造であること) が確認できた。一方、比較例 1 ~ 3 の試験片における樹脂相分離構造は、連続相と分散相とを有しており、分散相内には微分散相を有していないことが確認できた。

【 0 0 6 8 】

表 2 によれば、ポリアミド樹脂及びポリオレフィン樹脂の配合組成が同一である参考例 1、実施例 2 及び比較例 1 ~ 3 を比較すると、分散相内に微分散相を有する参考例 1、実施例 2 では、曲げ弾性率が 1238 ~ 1241 MPa であり、シャルピー衝撃強度が 6.5 ~ 10.1 kJ/m^2 であり、剛性に優れるとともに耐衝撃特性にも優れることが分かった。

これに対して、分散相内に微分散相を有していない比較例 1 ~ 3 では、曲げ弾性率がシャルピー衝撃強度の一方が劣っていた。

また、表 3 によれば、実施例 3 ~ 11 では、曲げ弾性率が 453 ~ 1184 MPa であり、シャルピー衝撃強度が 3.8 ~ 72.9 kJ/m^2 であり、ポリアミド樹脂、ポリオレフィン樹脂及び相容化剤の配合組成を変化させることにより、各特性を調整できること

10

20

30

40

50

が確認できた。

【 0 0 6 9 】

[4] ポリアミド樹脂として P A 1 1 以外の樹脂を使用した熱可塑性樹脂組成物の製造及び試験片の作製

< 実施例 1 2 >

(1) 混合樹脂の調製

(A) ポリアミド樹脂として P A 1 2 (ナイロン 1 2 樹脂、アルケマ株式会社製、品名「 R i l s a n A E C N O T L 」、融点 1 7 4 ~ 1 7 8) を用い、相容化剤 (C) として、無水マレイン酸変性 E B R (三井化学株式会社製、品名「 タフマー M H 7 0 2 0 」、M F R (2 3 0) = 1 . 5 g / 1 0 分) を用い、これらのペレットを表 4 に示す配合となるようにドライブレンドした後、二軸熔融混練押出機 (株式会社テクノベル製、スクリュー径 1 5 m m 、 L / D = 5 9) に投入し、混練温度 2 1 0 、押出速度 2 . 0 k g / 時間、スクリュー回転数 2 0 0 回転 / 分の条件で混合を行い、更に、ペレタイザーを用いて押し出された混合樹脂を裁断して混合樹脂ペレットを作製した。

10

【 0 0 7 0 】

(2) 混合工程

次いで、(B) ポリオレフィン樹脂として、ポリプロピレン樹脂 (ホモポリマー、日本ポリプロ株式会社製、品名「 ノバテック M A 1 B 」、重量平均分子量 3 1 2 , 0 0 0 、融点 1 6 5) を用い、先に得られた混合樹脂ペレットと、表 4 に示す配合となるようにドライブレンドした後、二軸熔融混練押出機 (株式会社テクノベル製、スクリュー径 1 5 m m 、 L / D = 5 9) に投入し、混練温度 2 1 0 、押出速度 2 . 0 k g / 時間、スクリュー回転数 2 0 0 回転 / 分の条件で混合を行い、更にペレタイザーを用いて押し出された熱可塑性樹脂組成物を裁断して実施例 1 2 の熱可塑性樹脂組成物のペレットを作製した。

20

その後、得られた実施例 1 2 の熱可塑性樹脂組成物のペレットを、射出成形機 (日精樹脂工業株式会社製、4 0 トン射出成形機) のホッパーに投入し、設定温度 2 1 0 、金型温度 6 0 の射出条件で物性測定用試験片を射出成形した。

【 0 0 7 1 】

< 実施例 1 3 >

(1) 混合樹脂の調製

(A) ポリアミド樹脂として P A 6 (ナイロン 6 樹脂、宇部興産株式会社製、品名「 1 0 1 0 X 1 」、融点 2 2 5) を用い、相容化剤 (C) として、無水マレイン酸変性 E B R (三井化学株式会社製、品名「 タフマー M H 7 0 2 0 」、M F R (2 3 0) = 1 . 5 g / 1 0 分) を用い、これらのペレットを表 4 に示す配合となるようにドライブレンドした後、二軸熔融混練押出機 (株式会社テクノベル製、スクリュー径 1 5 m m 、 L / D = 5 9) に投入し、混練温度 2 6 0 、押出速度 2 . 0 k g / 時間、スクリュー回転数 2 0 0 回転 / 分の条件で混合を行い、更に、ペレタイザーを用いて押し出された混合樹脂を裁断して混合樹脂ペレットを作製した。

30

【 0 0 7 2 】

(2) 混合工程

次いで、(B) ポリオレフィン樹脂として、ポリプロピレン樹脂 (ホモポリマー、日本ポリプロ株式会社製、品名「 ノバテック M A 1 B 」、重量平均分子量 3 1 2 , 0 0 0 、融点 1 6 5) を用い、先に得られた混合樹脂ペレットと、表 4 に示す配合となるようにドライブレンドした後、二軸熔融混練押出機 (株式会社テクノベル製、スクリュー径 1 5 m m 、 L / D = 5 9) に投入し、混練温度 2 6 0 、押出速度 2 . 0 k g / 時間、スクリュー回転数 2 0 0 回転 / 分の条件で混合を行い、更にペレタイザーを用いて押し出された熱可塑性樹脂組成物を裁断して実施例 1 3 の熱可塑性樹脂組成物のペレットを作製した。

40

その後、得られた実施例 1 3 の熱可塑性樹脂組成物のペレットを、射出成形機 (日精樹脂工業株式会社製、4 0 トン射出成形機) のホッパーに投入し、設定温度 2 6 0 、金型温度 6 0 の射出条件で物性測定用試験片を射出成形した。

【 0 0 7 3 】

50

< 実施例 14 >

(1) 混合樹脂の調製

(A) ポリアミド樹脂として PA610 (ナイロン610樹脂、ダイセル・エポニックス会社製、品名「Vestamid Terra HS16」、融点222)を用い、相容化剤(C)として、無水マレイン酸変性EBR (三井化学株式会社製、品名「タフマー MH7020」、MFR(230) = 1.5 g/10分)を用い、これらのペレットを表4に示す配合となるようにドライブレンドした後、二軸溶融混練押出機(株式会社パーカーコーポレーション製、スクリュー径25mm、L/D = 41)に投入し、混練温度235、押出速度3.0kg/時間、スクリュー回転数200回転/分の条件で混合を行い、更に、ペレタイザーを用いて押し出された混合樹脂を裁断して混合樹脂ペレット

10

【0074】

(2) 混合工程

次いで、(B) ポリオレフィン樹脂として、ポリプロピレン樹脂(ホモポリマー、日本ポリプロ株式会社製、品名「ノバテック MA1B」、重量平均分子量312,000、融点165)を用い、先に得られた混合樹脂ペレットと、表4に示す配合となるようにドライブレンドした後、二軸溶融混練押出機(株式会社パーカーコーポレーション製、スクリュー径25mm、L/D = 41)に投入し、混練温度235、押出速度3.0kg/時間、スクリュー回転数200回転/分の条件で混合を行い、更にペレタイザーを用いて押し出された熱可塑性樹脂組成物を裁断して実施例14の熱可塑性樹脂組成物のペレット

20

その後、得られた実施例14の熱可塑性樹脂組成物のペレットを、射出成形機(日精樹脂工業株式会社製、40トン射出成形機)のホッパーに投入し、設定温度235、金型温度60の射出条件で物性測定用試験片を射出成形した。

【0075】

< 実施例 15 >

表4に示す配合となるように各ペレットをドライブレンドしたこと以外は、実施例14と同様にして実施例15の熱可塑性樹脂組成物のペレットを作製した。次いで、実施例14と同様に射出成形を行い、実施例15の物性測定用試験片を得た。

【0076】

30

< 実施例 16 >

(1) 混合樹脂の調製

(A) ポリアミド樹脂として PA1010 (ナイロン1010樹脂、ダイセル・エポニックス会社製、品名「Vestamid Terra DS16」、融点206)を用い、相容化剤(C)として、無水マレイン酸変性EBR (三井化学株式会社製、品名「タフマー MH7020」、MFR(230) = 1.5 g/10分)を用い、これらのペレットを表4に示す配合となるようにドライブレンドした後、二軸溶融混練押出機(株式会社パーカーコーポレーション製、スクリュー径25mm、L/D = 41)に投入し、混練温度250、押出速度3.0kg/時間、スクリュー回転数200回転/分の条件で混合を行い、更に、ペレタイザーを用いて押し出された混合樹脂を裁断して混合樹脂ペレット

40

【0077】

(2) 混合工程

次いで、(B) ポリオレフィン樹脂として、ポリプロピレン樹脂(ホモポリマー、日本ポリプロ株式会社製、品名「ノバテック MA1B」、重量平均分子量312,000、融点165)を用い、先に得られた混合樹脂ペレットと、表4に示す配合となるようにドライブレンドした後、二軸溶融混練押出機(株式会社パーカーコーポレーション製、スクリュー径25mm、L/D = 41)に投入し、混練温度250、押出速度3.0kg/時間、スクリュー回転数200回転/分の条件で混合を行い、更にペレタイザーを用いて押し出された熱可塑性樹脂組成物を裁断して実施例16の熱可塑性樹脂組成物のペレ

50

トを作製した。

その後、得られた実施例 16 の熱可塑性樹脂組成物のペレットを、射出成形機（日精樹脂工業株式会社製、40 トン射出成形機）のホッパーに投入し、設定温度 250 、金型温度 60 の射出条件で物性測定用試験片を射出成形した。

【0078】

< 実施例 17 ~ 18 >

表 4 に示す配合となるように各ペレットをドライブレンドしたこと以外は、実施例 16 と同様にして実施例 17 ~ 18 の熱可塑性樹脂組成物のペレットを作製した。次いで、実施例 16 と同様に射出成形を行い、実施例 17 ~ 18 の物性測定用試験片を得た。

【0079】

< 実施例 19 >

(1) 混合樹脂の調製

(A) ポリアミド樹脂として PAMXD6（ナイロン MXD6 樹脂、三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社製、品名「レニー 6002」、融点 243 ）を用い、相容化剤 (C) として、無水マレイン酸変性 EBR（三井化学株式会社製、品名「タフマー MH7020」、MFR (230) = 1.5 g / 10 分) を用い、これらのペレットを表 4 に示す配合となるようにドライブレンドした後、二軸溶融混練押出機（株式会社パーカーコーポレーション製、スクリュー径 25 mm、L / D = 41）に投入し、混練温度 265 、押出速度 3.0 kg / 時間、スクリュー回転数 200 回転 / 分の条件で混合を行い、更に、ペレタイザーを用いて押し出された混合樹脂を裁断して混合樹脂ペレットを作製した。

【0080】

(2) 混合工程

次いで、(B) ポリオレフィン樹脂として、ポリプロピレン樹脂（ホモポリマー、日本ポリプロ株式会社製、品名「ノバテック MA1B」、重量平均分子量 312,000、融点 165 ）を用い、先に得られた混合樹脂ペレットと、表 4 に示す配合となるようにドライブレンドした後、二軸溶融混練押出機（株式会社パーカーコーポレーション製、スクリュー径 25 mm、L / D = 41）に投入し、混練温度 265 、押出速度 3.0 kg / 時間、スクリュー回転数 200 回転 / 分の条件で混合を行い、更にペレタイザーを用いて押し出された熱可塑性樹脂組成物を裁断して実施例 19 の熱可塑性樹脂組成物のペレットを作製した。

その後、得られた実施例 19 の熱可塑性樹脂組成物のペレットを、射出成形機（日精樹脂工業株式会社製、40 トン射出成形機）のホッパーに投入し、設定温度 265 、金型温度 90 の射出条件で物性測定用試験片を射出成形した。

【0081】

< 実施例 20 >

表 4 に示す配合となるように各ペレットをドライブレンドしたこと以外は、実施例 19 と同様にして実施例 20 の熱可塑性樹脂組成物のペレットを作製した。次いで、実施例 19 と同様に射出成形を行い、実施例 20 の物性測定用試験片を得た。

【0082】

< 実施例 21 >

(1) 混合樹脂の調製

(A) ポリアミド樹脂として PA10T（ナイロン 10T 樹脂、ダイセル・エポニックス株式会社製、品名「Vestamid HT Plus M3000」、融点 285 ）を用い、相容化剤 (C) として、無水マレイン酸変性 EBR（三井化学株式会社製、品名「タフマー MH7020」、MFR (230) = 1.5 g / 10 分) を用い、これらのペレットを表 4 に示す配合となるようにドライブレンドした後、二軸溶融混練押出機（株式会社パーカーコーポレーション製、スクリュー径 25 mm、L / D = 41）に投入し、混練温度 310 、押出速度 3.0 kg / 時間、スクリュー回転数 200 回転 / 分の条件で混合を行い、更に、ペレタイザーを用いて押し出された混合樹脂を裁断して混合樹脂ペ

レットを作製した。

【 0 0 8 3 】

(2) 混合工程

次いで、(B) ポリオレフィン樹脂として、ポリプロピレン樹脂 (ホモポリマー、日本ポリプロ株式会社製、品名「ノバテック M A 1 B」、重量平均分子量 3 1 2 , 0 0 0、融点 1 6 5) を用い、先に得られた混合樹脂ペレットと、表 4 に示す配合となるようにドライブレンドした後、二軸熔融混練押出機 (株式会社パーカーコーポレーション製、スクリー径 2 5 m m、L / D = 4 1) に投入し、混練温度 3 1 0 、押出速度 3 . 0 k g / 時間、スクリー回転数 2 0 0 回転 / 分の条件で混合を行い、更にペレタイザーを用いて押し出された熱可塑性樹脂組成物を裁断して実施例 2 1 の熱可塑性樹脂組成物のペレットを作製した。

10

その後、得られた実施例 2 1 の熱可塑性樹脂組成物のペレットを、射出成形機 (日精樹脂工業株式会社製、4 0 トン射出成形機) のホッパーに投入し、設定温度 3 1 0 、金型温度 9 0 の射出条件で物性測定用試験片を射出成形した。

【 0 0 8 4 】

【表 4】

表 4

		実 施 例										
		12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	
A	ポリアミド	PA12	25	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		PA6	-	25	-	-	-	-	-	-	-	-
		PA610	-	-	25	40	-	-	-	-	-	-
		PA1010	-	-	-	-	25	40	55	-	-	-
		PAMXD6	-	-	-	-	-	-	-	25	40	-
		PA10T	-	-	-	-	-	-	-	-	-	25
B	ポリオレフィン	65	65	65	50	65	50	35	65	50	65	
C	相容化剤 (無水マレイン酸 変性EBR)	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	
相分離構造		連続相:PP、分散相:PA										
特 性	微分散相の平均径 (nm)	70～600	70～1000	30～800	10～800	20～800	30～1200	50～600	30～500	10～700	20～700	
	分散相内における 微分散相の有無	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	有り	
	シャルピー衝撃強度 (kJ／m ²)	7.7	8.0	5.4	8.6	3.0	2.1	4.8	3.0	2.2	1.0	
	曲げ弾性率 (MPa)	1434	1364	1390	1370	1230	1350	1340	1650	1930	1440	
	SEM画像 (図番)	図5	図6	図7	図8,9	図10	図11	図12,13	図14	図15	図16,17	

【 0 0 8 5 】

【 5 】熱可塑性樹脂組成物の性能評価 (実施例 1 2 ~ 2 1)

上記【 4 】で得られた実施例 1 2 ~ 2 1 の各物性測定用試験片を用いて、上記【 2 】と同様の方法により、シャルピー衝撃強度の測定、モルフォロジー観察、及び曲げ弾性率の測定を行った。その結果を表 4、図 5 ~ 図 1 7 に示す。

【 0 0 8 6 】

10

20

30

40

50

〔 6 〕 評価結果

表 4 及び図 5 ～ 図 1 7 によれば、各種のポリアミド樹脂を用いた実施例 1 2 ～ 2 1 の試験片における樹脂相分離構造は、連続相と分散相とを有しており、且つ分散相内に更に平均径 1 0 ～ 1 2 0 0 n m の微分散相を有していること（即ち、サラミ構造であること）が確認できた。

また、実施例 1 2 ～ 2 1 の試験片では、曲げ弾性率が 1 2 3 0 ～ 1 9 3 0 M P a であり、シャルピー衝撃強度が 1 . 0 ～ 8 . 6 k J / m ² であり、剛性に優れるとともに耐衝撃特性にも優れることが分かった。

【 0 0 8 7 】

前述の例は単に説明を目的とするものでしかなく、本発明を限定するものと解釈されるものではない。本発明を典型的な実施形態の例を挙げて説明したが、本発明の記述及び図示において使用された文言は、限定的な文言ではなく説明的及び例示的なものであると理解される。ここで詳述したように、その形態において本発明の範囲又は精神から逸脱することなく、添付の特許請求の範囲内で変更が可能である。ここでは、本発明の詳述に特定の構造、材料及び実施例を参照したが、本発明をここに掲げる開示事項に限定することを意図するものではなく、むしろ、本発明は添付の特許請求の範囲内における、機能的に同等の構造、方法、使用の全てに及ぶものとする。

【 符号の説明 】

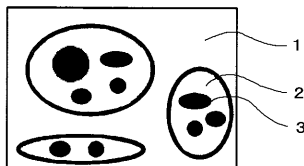
【 0 0 8 8 】

1 ; 連続相、 2 ; 分散相、 3 ; 微分散相。

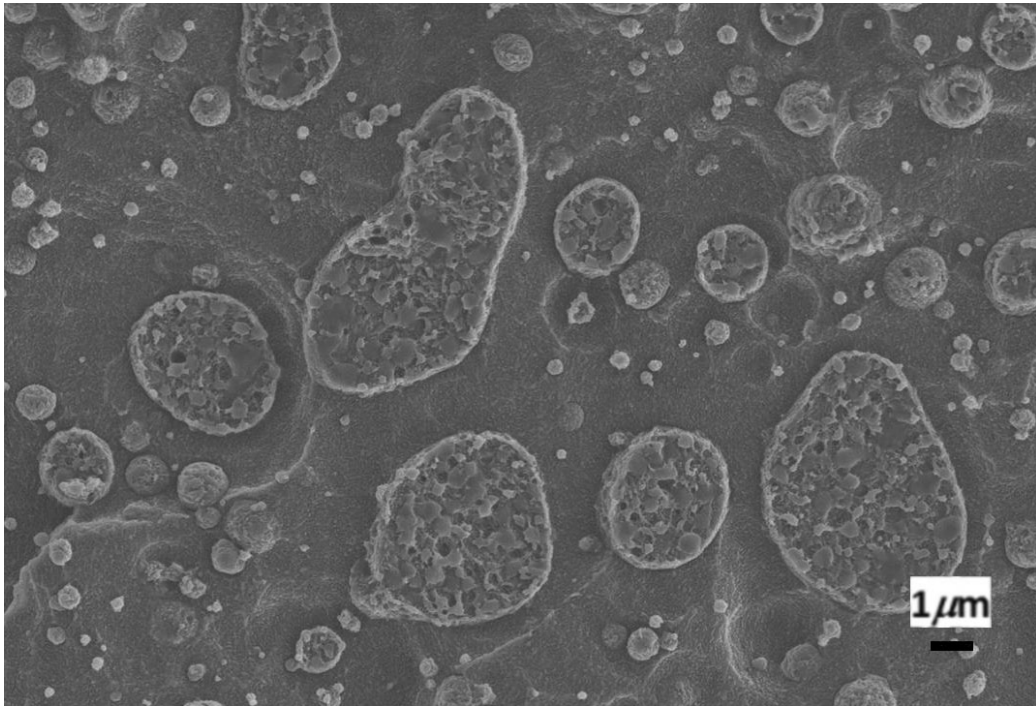
10

20

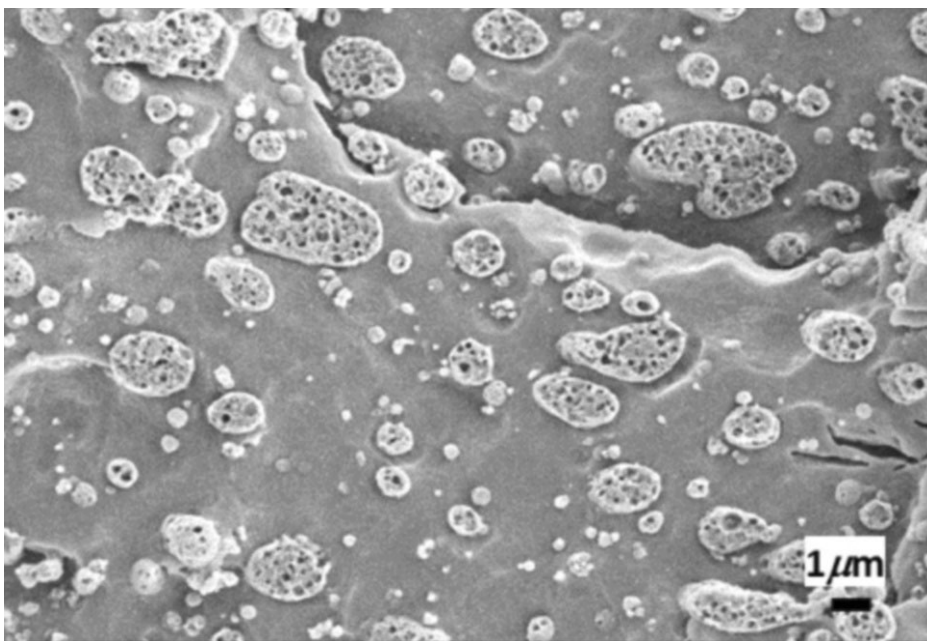
【 図 1 】



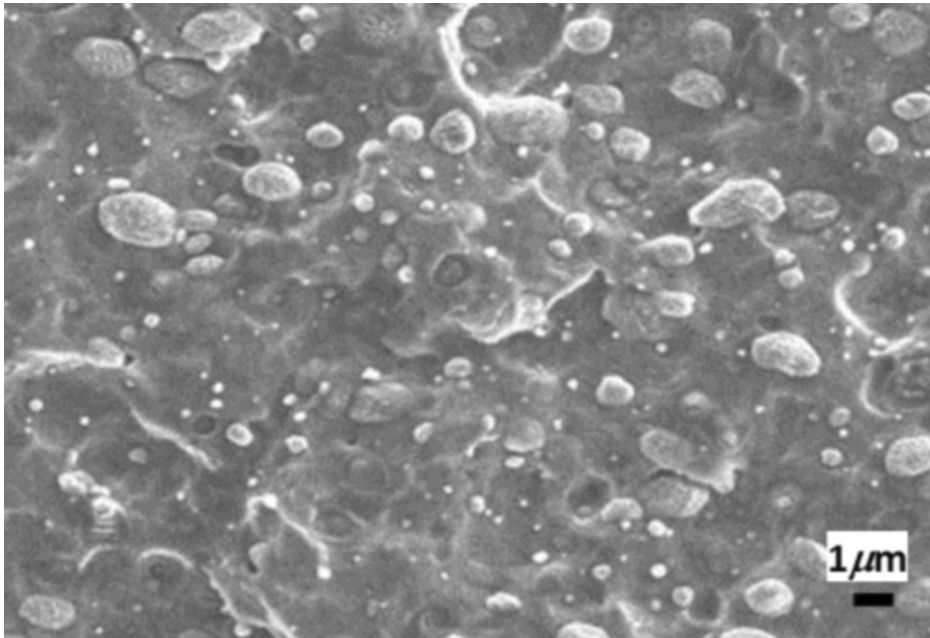
【図 2】



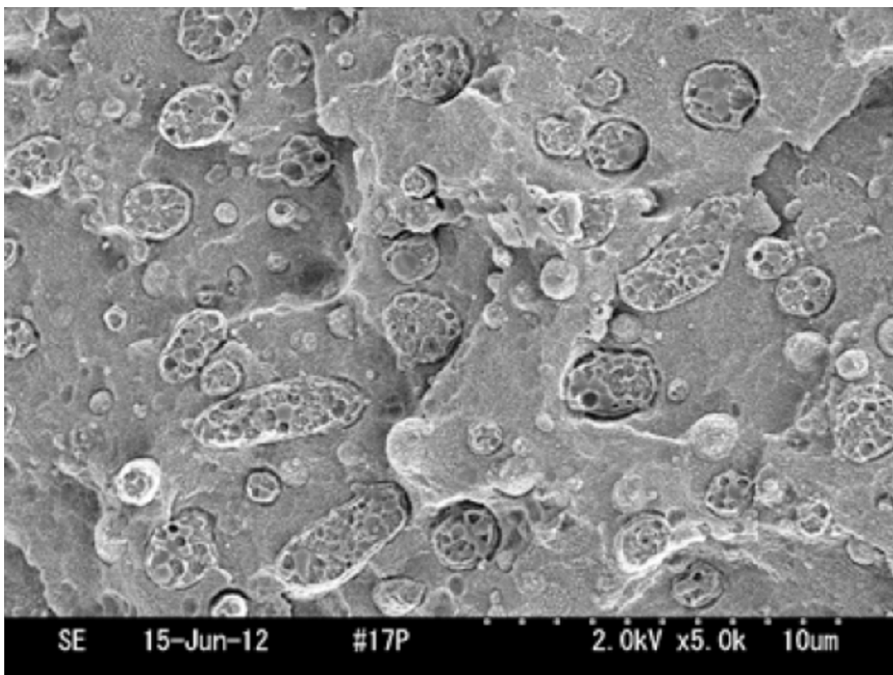
【図 3】



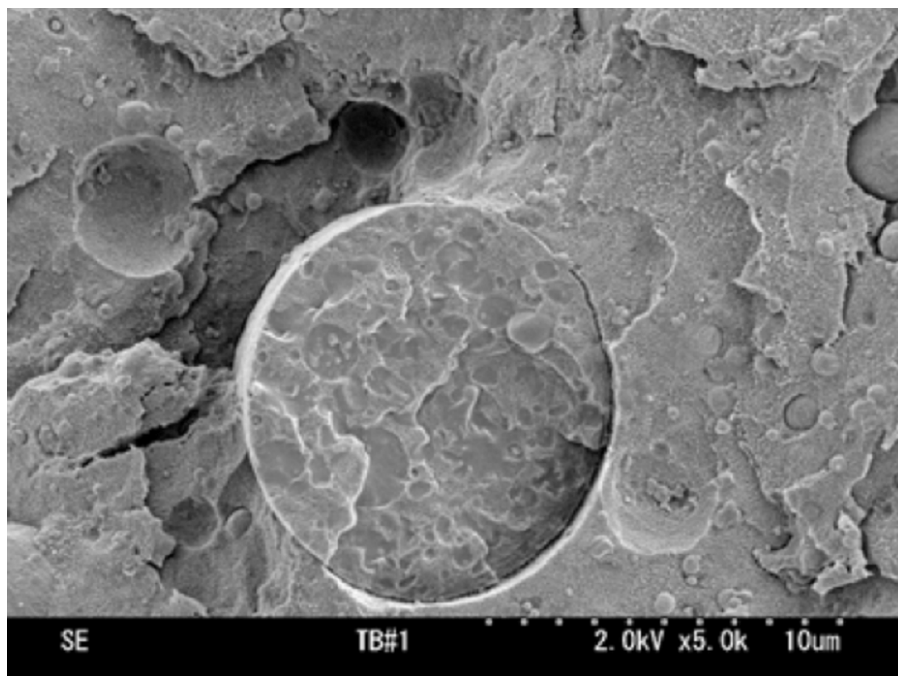
【図4】



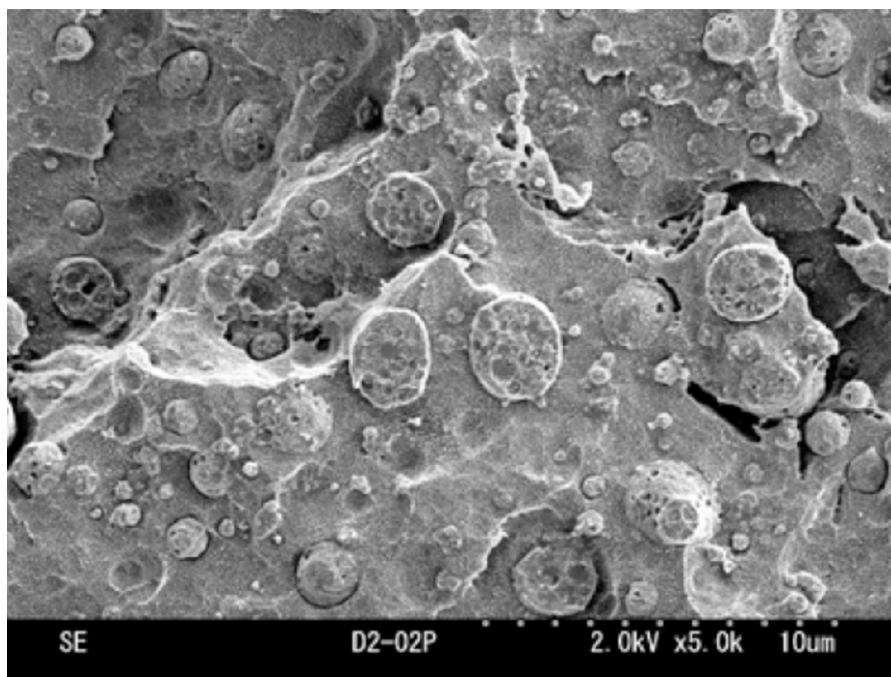
【図5】



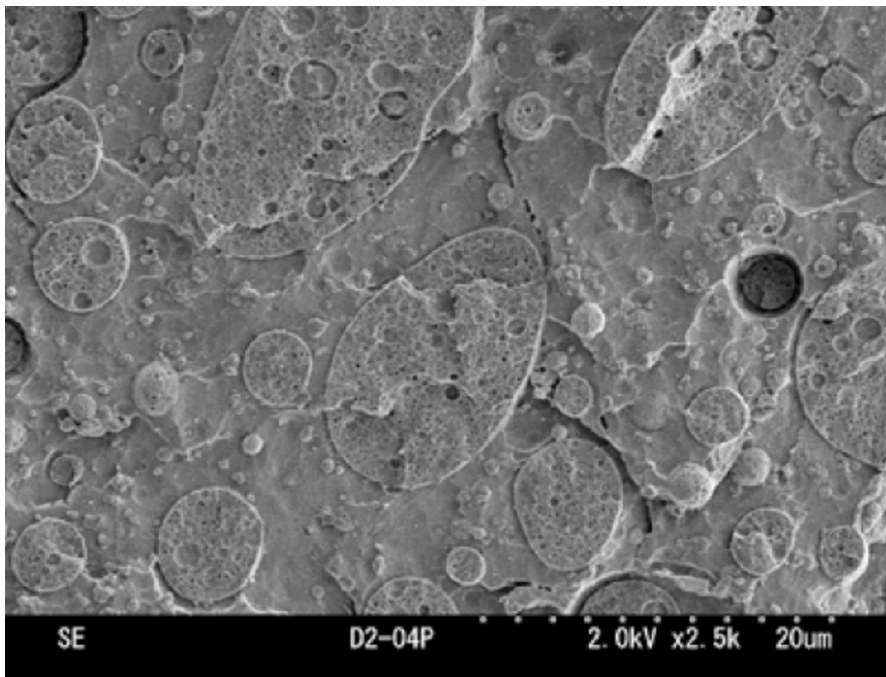
【図 6】



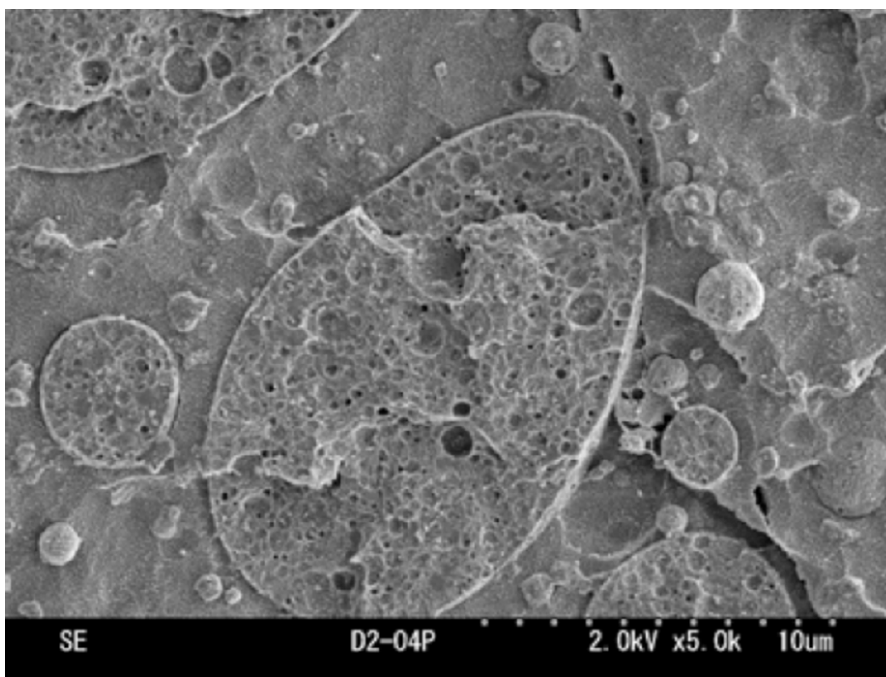
【図 7】



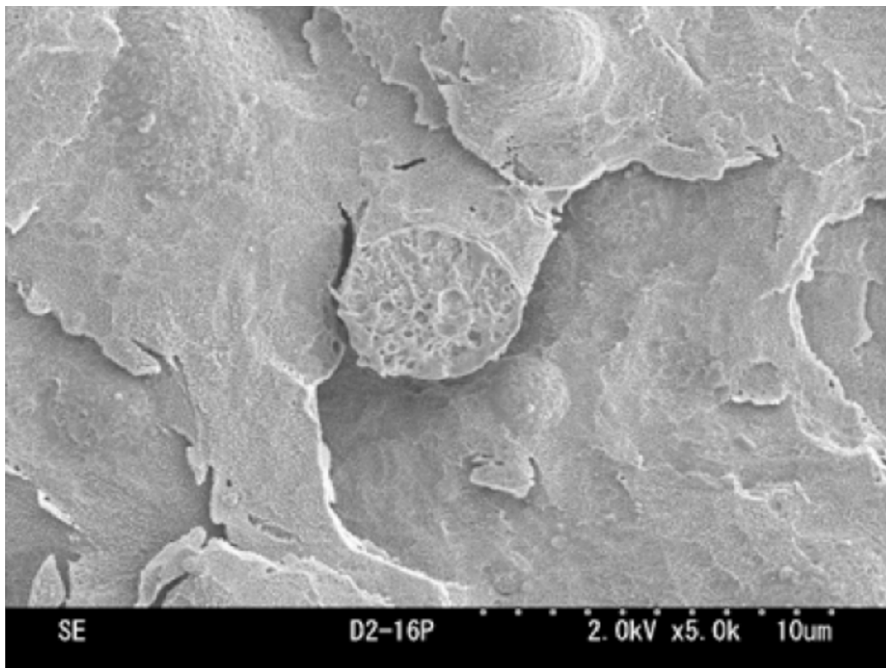
【 図 8 】



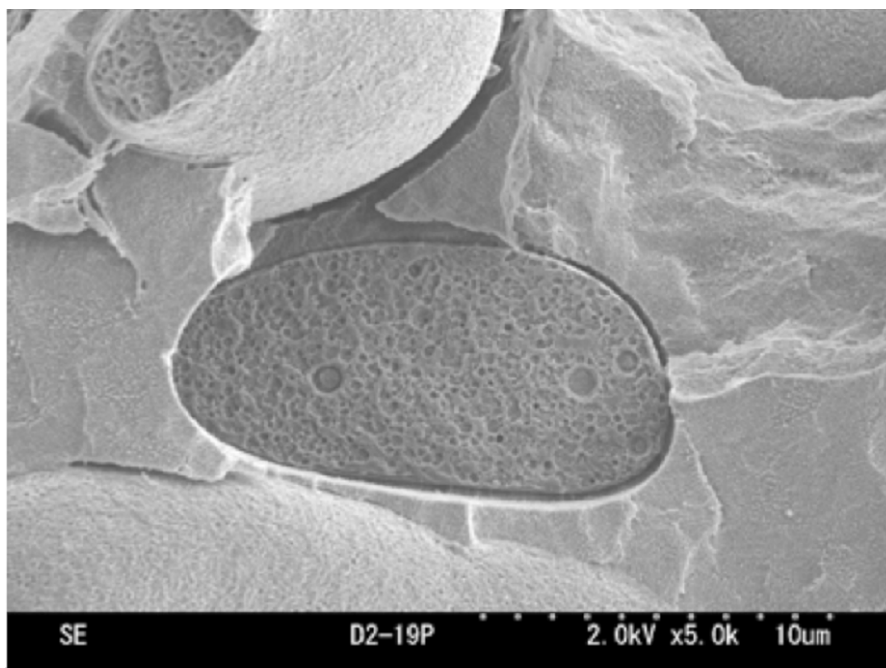
【 図 9 】



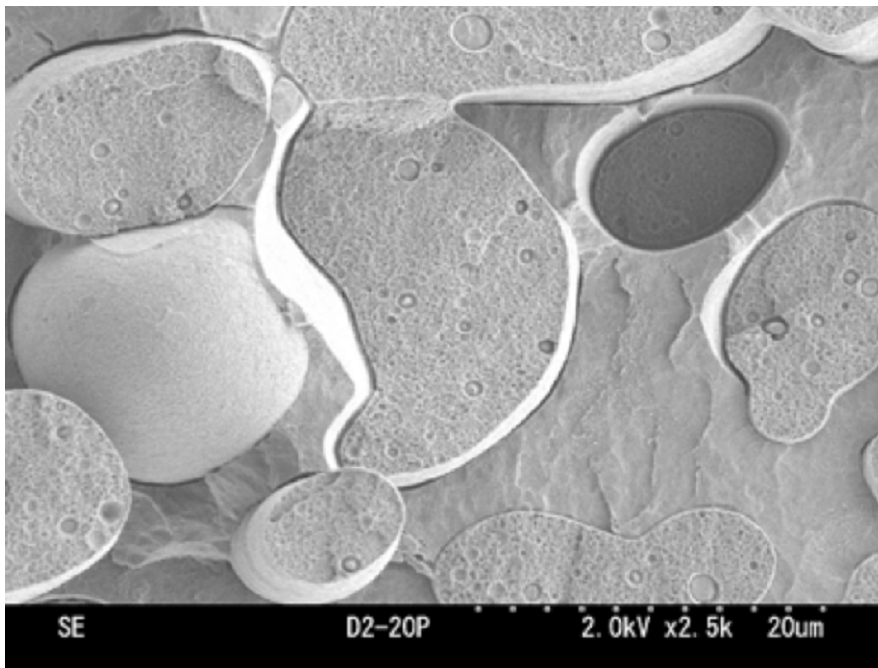
【図 10】



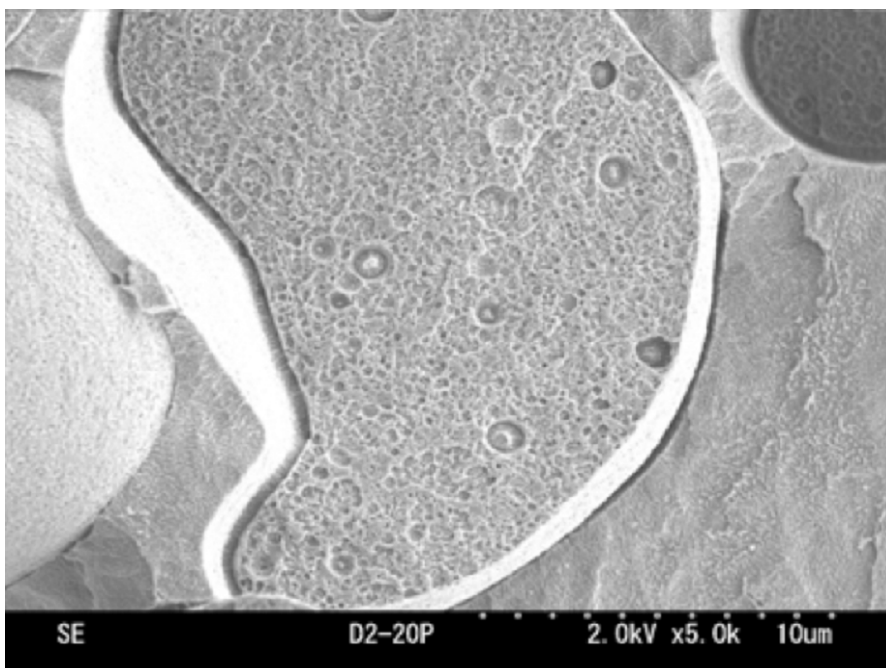
【図 11】



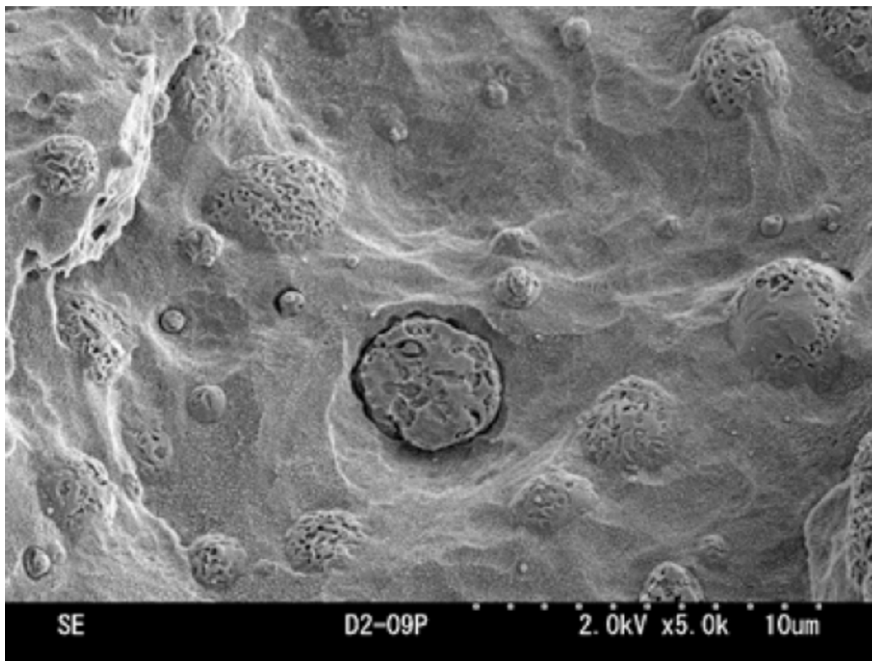
【図 12】



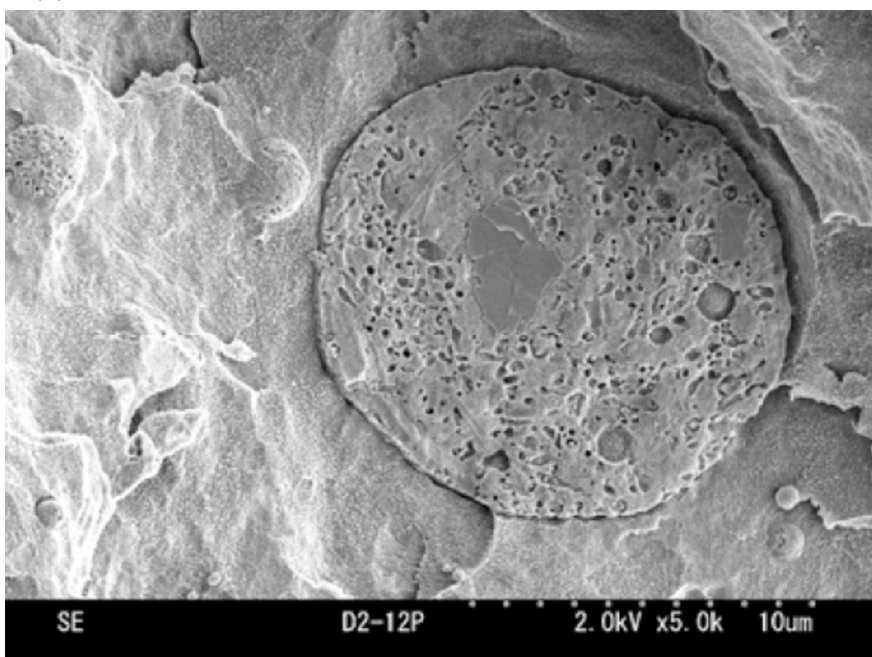
【図 13】



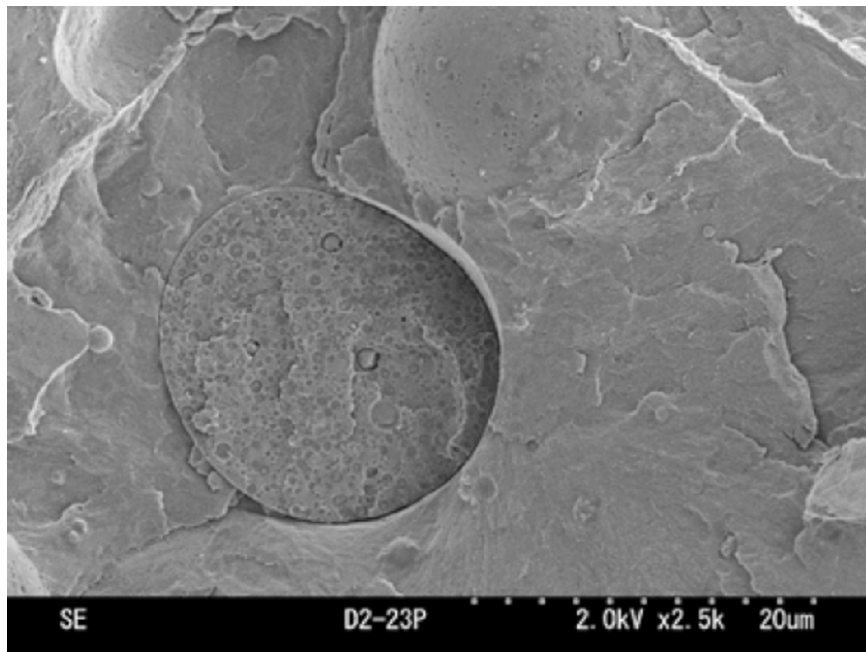
【図 14】



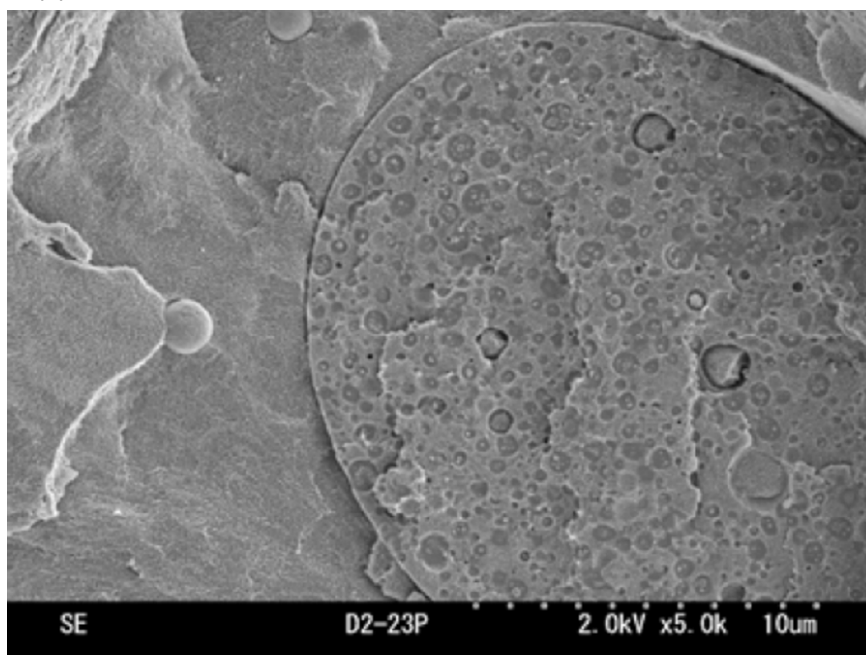
【図 15】



【図 16】



【図 17】



フロントページの続き

- (72)発明者 河田 順平
愛知県長久手市横道4 1 番地の1 株式会社豊田中央研究所内
- (72)発明者 毛利 誠
愛知県長久手市横道4 1 番地の1 株式会社豊田中央研究所内
- (72)発明者 渡辺 修
愛知県長久手市横道4 1 番地の1 株式会社豊田中央研究所内
- (72)発明者 加藤 誠
愛知県長久手市横道4 1 番地の1 株式会社豊田中央研究所内

審査官 安田 周史

- (56)参考文献 特開平04 - 202247 (JP, A)
特開平04 - 183733 (JP, A)
特開平04 - 096957 (JP, A)
特開昭63 - 089550 (JP, A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
- | | |
|--------|---------|
| C 08 L | 23 / 00 |
| C 08 L | 23 / 26 |
| C 08 L | 77 / 00 |