



PCT

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

<p>(51) 国際特許分類7 C08L 69/00, C08K 7/00, C08J 5/00</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO00/39217</p> <p>(43) 国際公開日 2000年7月6日(06.07.00)</p>									
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP99/07027</p> <p>(22) 国際出願日 1999年12月15日(15.12.99)</p> <p>(30) 優先権データ</p> <table border="0"> <tr> <td>特願平10/368391</td> <td>1998年12月25日(25.12.98)</td> <td>JP</td> </tr> <tr> <td>特願平10/368392</td> <td>1998年12月25日(25.12.98)</td> <td>JP</td> </tr> <tr> <td>特願平11/231118</td> <td>1999年8月18日(18.08.99)</td> <td>JP</td> </tr> </table> <p>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 出光石油化学株式会社 (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD.)[JP/JP] 〒108-0014 東京都港区芝五丁目6番1号 Tokyo, (JP)</p> <p>(72) 発明者; および</p> <p>(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 野寺明夫(NODERA, Akio)[JP/JP] 北山雅博(KITAYAMA, Masahiro)[JP/JP] 〒299-0107 千葉県市原市姉崎海岸1番地1 Chiba, (JP)</p> <p>(74) 代理人 弁理士 東平正道(TOHEI, Masamichi) 〒299-0107 千葉県市原市姉崎海岸24番地4 出光興産株式会社内 Chiba, (JP)</p>		特願平10/368391	1998年12月25日(25.12.98)	JP	特願平10/368392	1998年12月25日(25.12.98)	JP	特願平11/231118	1999年8月18日(18.08.99)	JP	<p>(81) 指定国 US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書</p>
特願平10/368391	1998年12月25日(25.12.98)	JP									
特願平10/368392	1998年12月25日(25.12.98)	JP									
特願平11/231118	1999年8月18日(18.08.99)	JP									
<p>(54)Title: FRAME-RETARDANT POLYCARBONATE RESIN COMPOSITION AND FORMED ARTICLE</p> <p>(54)発明の名称 難燃性ポリカーボネート樹脂組成物および成形品</p> <p>(57) Abstract</p> <p>A flame-retardant polycarbonate resin composition containing no halogen compounds which comprises, relative to 100 parts by weight of a resin comprising (A) 60 to 99 wt % of a polycarbonate resin and (B) 1 to 40 wt % of a styrenic resin, 0.1 to 10 parts by weight of (C) a silicone compound containing a functional group and 0.02 to 5 wt % of (D) a fluoroolefin resin; and a formed article using the composition. The flame-retardant resin composition is characterized as containing no halogenated flame retardants, and can be used for producing a formed article having satisfactory impact resistance and excellent thermal stability while maintaining excellent flame retardancy.</p>											

(57)要約

ポリカーボネート樹脂のノンハロゲン化合物による難燃化において、優れた難燃性を維持しながら、耐衝撃性を満足し、熱安定性に優れた成型品を成形可能なポリカーボネート樹脂組成物及びこの組成物を用いた成型品を提供する。

(A) ポリカーボネート樹脂60～99重量%と(B) スチレン系樹脂40～I重量%からなる樹脂100重量部に対して、(C) 官能基含有シリコン化合物0.1～10重量部および(D) フルオロオレフィン樹脂0.02～5重量部を含有する難燃性ポリカーボネート樹脂組成物である。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AG	アンティグア・バーブーダ	DZ	アルジェリア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AL	アルバニア	EE	エストニア	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AU	オーストラリア	FR	フランス	LS	レソト	SK	スロヴァキア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BE	ベルギー	GE	グルジア	MA	モロッコ	TD	チャード
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MC	モナコ	TG	トーゴ
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BJ	ベナン	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BR	ブラジル	GR	ギリシャ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア 共和国	TR	トルコ
BY	ベラルーシ	GW	ギニア・ビサウ	ML	マリ	TT	トリニダード・トバゴ
CA	カナダ	HR	クロアチア	MN	モンゴル	TZ	タンザニア
CF	中央アフリカ	HU	ハンガリー	MR	モーリタニア	UA	ウクライナ
CG	コンゴ	ID	インドネシア	MX	メキシコ	UG	ウガンダ
CH	スイス	IE	アイルランド	MW	マラウイ	US	米国
CI	コートジボワール	IL	イスラエル	MY	マレーシア	UZ	ウズベキスタン
CM	カメルーン	IN	インド	MZ	モザンビーク	VN	ベトナム
CN	中国	IS	アイスランド	NE	ニジェール	YU	ユーゴスラヴィア
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NL	オランダ	ZA	南アフリカ共和国
CU	キューバ	JP	日本	NO	ノルウェー	ZW	ジンバブエ
CY	キプロス	KE	ケニア	NZ	ニュージーランド		
CZ	チェッコ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KR	韓国	RO	ルーマニア		

明 細 書

難燃性ポリカーボネート樹脂組成物および成形品

技術分野

本発明は難燃性ポリカーボネート樹脂組成物に関する。詳しくは、ハロゲンを含まず、少量の添加剤の含有によってすぐれた難燃性を示すとともに、耐衝撃性及び熱安定性にすぐれた難燃性ポリカーボネート樹脂組成物および成形品に関するものである。

背景技術

ポリカーボネート樹脂は、すぐれた耐衝撃特性、耐熱性、電気的特性などにより、OA（オフィスオートメーション）機器、情報・通信機器、家庭電化機器などの電気・電子機器、自動車分野、建築分野など様々な分野において幅広く利用されている。ポリカーボネート樹脂は、一般的に自己消火性樹脂ではあるが、OA機器、情報・通信機器、家庭電化機器などの電気・電子機器分野を中心として、高度の難燃性を要求される分野があり、各種難燃剤の添加により、その改善が図られている。

ポリカーボネート樹脂の難燃性を向上する方法として、ハロゲン化ビスフェノールA、ハロゲン化ポリカーボネートオリゴマーなどのハロゲン系難燃剤が難燃剤効率の点から酸化アンチモンなどの難燃助剤とともに用いられてきた。しかし、近時安全性、廃棄・焼却時の環境への影響の観点から、ハロゲンを含まない難燃剤による難燃化方法が市場より求められている。ノンハロゲン系難燃剤として、有機リン系難燃剤、特に有機リン酸エステル化合物を配合したポリカーボネート

樹脂組成物は優れた難燃性を示すとともに、可塑剤としての作用もあり、多くの方法が提案されている。

ポリカーボネート樹脂をリン酸エステル化合物で難燃化するためには、リン酸エステル化合物を比較的多量に配合する必要がある。また、ポリカーボネート樹脂は成形温度が高く、熔融粘度も高いために、成形品の薄肉化、大型化に対応するために、ますます成形温度が高くなる傾向にある。このため、リン酸エステル化合物は一般的に難燃性の改良には寄与するものの、成形加工時の金型腐食、ガスの発生など、成形環境や成形品外観上必ずしも十分でない場合がある。また、成形品が加熱下に置かれたり、高温高湿度下に置かれた場合の、衝撃強度の低下、変色の発生などの問題点が指摘されている。さらに、近時、省資源化の観点よりリサイクル適性が求められているが、熱安定性が不十分であることから、その達成が困難であるなどの問題点を残している。

これに対して、ポリカーボネート樹脂にシリコン化合物を配合することによって、燃焼時に有害なガスを発生することなく難燃性を付与する技術も知られている。たとえば、(1)特開平10-139964号公報には特定の構造や特定分子量を有するシリコン樹脂からなる難燃剤が開示されている。

また、(2)特開昭51-45160号公報、特開平1-318069号公報、特開平6-306265号公報、特開平8-12868号公報、特開平8-295796号公報、特公平3-48947号公報などにおいてもシリコン類を用いる難燃性ポリカーボネート樹脂が開示されている。前者の(1)記載のものでは、難燃性のレベルはある程度すぐれたものであるが耐衝撃性が十分でない場合がある。後者の(2)記載のものは、シリコン類は難燃剤としての単独使用で

はなく、耐ドロッピング性の改良を目的としての、例示化合物としての使用であつたり、他の成分として、リン酸エステル化合物、第2族金属塩などの難燃剤を必須とするものである点において、前者とは異なるものである。(2)記載のものにおいても、難燃剤含有による成形性、物性の低下という別の問題点がある。

さらに、ポリカーボネート樹脂として、ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体含有樹脂を用い、フィブリル形成能を有するポリテトラフルオロエチレンを配合した難燃性ポリカーボネート樹脂組成物も知られている(特開平8-81620号公報)。この組成物はポリオルガノシロキサンの含有率が少量である特定範囲においてすぐれた難燃性を示す、すぐれた組成物である。しかしながら、ポリカーボネート樹脂の特徴である耐衝撃性の低下や成形性が不十分である場合があり、よりすぐれた組成物が求められている。

本発明は、上記現状の下、ポリカーボネート樹脂のノンハロゲン化合物による難燃化において、優れた難燃性を維持しながら、耐衝撃性や熱安定性にすぐれた成形品を製造可能なポリカーボネート樹脂組成物およびこの組成物を用いた成形品の提供を目的とする。

本発明の第1の態様においては、上記した本発明の目的に加え、成形性、耐熱性、耐湿熱性を満足し、リサイクル性にすぐれた成形品を製造可能なポリカーボネート樹脂組成物およびこの組成物を用いた成形品の提供を目的とする。

本発明の第2の態様においては、上記した本発明の目的に加え、耐熱性を満足し、リサイクル性にすぐれた成形品を製造可能なポリカーボネート樹脂組成物及びこの組成物を用いた成形品の提供を目的とする。

本発明の第3の態様においては、上記した本発明の目的に加え、成

形性、剛性を満足し、熱安定性に優れた成形品を成形可能な、リン化合物難燃剤を含有しないポリカーボネート樹脂組成物およびこの組成物を用いた成形品の提供を目的とするものである。

発明の開示

本発明の目的及び本発明の第1の態様における目的を達成するため、本発明者らは、難燃性ポリカーボネート樹脂のシリコーン化合物による難燃化において、耐衝撃性、耐熱性、成形性などの改良について鋭意検討した。その結果、スチレン系樹脂を含有させると共に、特定のシリコーン化合物と特定のフッ素系樹脂を選択使用することにより、すぐれた難燃性を有し、耐衝撃性、耐熱性、耐湿熱性などにすぐれ、さらにはリサイクルによる再溶融成形においても物性低下、着色の少ない成形品が得られることを見だし、本発明を完成した。

また、本発明の目的及び本発明の第2の態様における目的を達成するため、本発明者らは、難燃性ポリカーボネート樹脂のシリコーン化合物による難燃化において、耐衝撃性、耐熱性などの改良について鋭意検討した。その結果、シリコーン化合物を難燃剤として含有するポリカーボネート樹脂組成物において、特定のシリコーン化合物と特定のゴム状弾性体を選択使用することにより、すぐれた難燃性を有し、耐衝撃性、耐熱性にすぐれ、さらにはリサイクルによる再溶融成形においても物性低下、着色の少ない成形品が得られることを見だし、本発明を完成した。

更に、本発明の目的及び本発明の第3の態様における目的を達成するため、本発明者らは、難燃性ポリカーボネート樹脂のシリコーン化合物による難燃化において、耐衝撃性、熱安定性、成形性などの改良について鋭意検討した。その結果、スチレン系樹脂を含有させると共

に、特定のフッ素系樹脂、無機充填剤を使用し、更にポリカーボネートポリオルガノシロキサン共重合体及び／又は特定のシリコーン化合物を選択使用することにより、上記の目的を効果的に達成しうることを見出し本発明を完成させるに至った。

すなわち、本発明の第1の態様は、

(1) (A) ポリカーボネート樹脂60～99重量%と(B) スチレン系樹脂40～1重量%からなる樹脂100重量部に対して、(C) 官能基含有シリコーン化合物0.1～10重量部および(D) フルオロオレフィン樹脂0.02～5重量部を含有する難燃性ポリカーボネート樹脂組成物、

(2) (A) ポリカーボネート樹脂が、少なくともポリカーボネートポリオルガノシロキサン共重合体を含み、該ポリカーボネート樹脂中のポリオルガノシロキサン含有量が0.1～10重量%である上記(1)記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物、

(3) 上記(1)または(2)記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物において、(A)成分が70～95重量%であり、(B)成分がゴム変性スチレン系樹脂30～5重量%である難燃性ポリカーボネート樹脂組成物、

(4) 上記(1)～(3)のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物からなる成形品、および

(5) 上記(1)～(3)のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂からなる電気・電子機器のハウジングまたは部品である射出成形品を提供するものである。

また、本発明の第2の態様は、

(6) (A) ポリカーボネート樹脂100重量部に対して、(C) 官能基含有シリコーン化合物0.1～10重量部および(E) コア／

シエルトタイプグラフトゴム状弾性体 0.2 ~ 10 重量部を含有する難燃性ポリカーボネート樹脂組成物、

(7) (A) ポリカーボネート樹脂が、少なくともポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体を含み、該ポリカーボネート樹脂中のポリオルガノシロキサン含有量が 0.1 ~ 10 重量%である上記(6)記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物、

(8) 上記(6)または(7)記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物において更に、(D) フルオロオレフィン樹脂を、0.02 ~ 5 重量部含有する難燃性ポリカーボネート樹脂組成物、

(9) 上記(6) ~ (8) のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物からなる成形品、および

(10) 上記(6) ~ (8) のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂からなる電気・電子機器のハウジングまたは部品である射出成形品を提供するものである。

更に、本発明の第3の態様は、

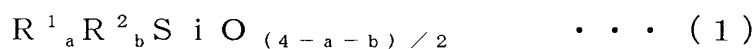
(11) (A) ポリカーボネート樹脂 1 ~ 99 重量%及び(B) スチレン系樹脂 1 ~ 99 重量%からなる樹脂 100 重量部に対して、(D) フルオロオレフィン樹脂 0.01 ~ 5 重量部、(F) 無機充填剤 1 ~ 100 重量部、及び(G) ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体 1 ~ 500 重量部及び/又は(C) 官能基含有シリコン化合物 0.1 ~ 10 重量部を含有する難燃性ポリカーボネート樹脂組成物、

(12) (C) 及び/又は(G) 成分由来のポリオルガノシロキサン含有量が、難燃性ポリカーボネート組成物の 0.3 ~ 10 重量%である上記(11)記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物、

(13) (F) 成分の無機充填剤が、平均粒径 0.2 ~ 20 μm の

タルクである上記（１１）又は（１２）に記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物、

（１４）（Ｃ）成分の官能基含有シリコン化合物が、下記一般式（１）



（式中、 R^1 は官能基、 R^2 は炭素数１～１２の炭化水素基、 a 及び b は、 $0 < a \leq 3$ 、 $0 \leq b < 3$ 、 $0 < a + b \leq 3$ の関係を満たす数を示す。）

で表される基本構造を有するオルガノポリシロキサンである上記（１１）～（１３）のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物、

（１５）（Ｃ）成分の官能基含有シリコン化合物において、官能基がアルコキシ基、ビニル基、水素基、及びエポキシ基から選ばれる基である上記（１１）～（１４）のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物、

（１６）（Ｃ）成分の官能基含有シリコン化合物において、官能基がメトキシ基又はビニル基である上記（１１）～（１５）のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物、

（１７）（Ｄ）成分のフルオロオレフィン樹脂が、フィブリル形成能を有する平均分子量５００，０００以上のポリテトラフルオロエチレンである上記（１１）～（１６）のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物、

（１８）（Ａ）成分のポリカーボネート樹脂の粘度平均分子量が、１５，０００～２０，０００である上記（１１）～（１７）のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物、

（１９）上記（１１）～（１８）のいずれかに記載の難燃性ポリカ

ーボネート樹脂組成物からなる成形品、および

(20) 上記(11)～(18)のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂からなる電気・電子機器のハウジングまたは部品である射出成形品を提供するものである。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明を詳細に説明する。

(A) ポリカーボネート樹脂

本発明の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物を構成する(A)成分であるポリカーボネート樹脂(PC)としては、特に制限はなく種々のものが挙げられる。通常、2価フェノールとカーボネート前駆体との反応により製造される芳香族ポリカーボネートを用いることができる。すなわち、2価フェノールとカーボネート前駆体とを溶液法あるいは熔融法、すなわち、2価フェノールとホスゲンの反応、2価フェノールとジフェニルカーボネートなどとのエステル交換法により反応させて製造されたものを使用することができる。

2価フェノールとしては、様々なものが挙げられるが、特に2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン〔ビスフェノールA〕、ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシ-3, 5-ジメチルフェニル)プロパン、4, 4'-ジヒドロキシジフェニル、ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロアルカン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)オキシド、ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルフィド、ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホキシド、ビス(4-ヒドロキシフェニル)エーテル、ビス(4-ヒドロキシフェニル)ケトンなどが挙げられる。

特に好ましい2価フェノールとしては、ビス(ヒドロキシフェニル)アルカン系、特にビスフェノールAを主原料としたものである。また、カーボネート前駆体としては、カルボニルハライド、カルボニルエステル、またはハロホルメートなどであり、具体的にはホスゲン、2価フェノールのジハロホルメート、ジフェニルカーボネート、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネートなどである。この他、2価フェノールとしては、ヒドロキノン、レゾルシン、カテコール等が挙げられる。これらの2価フェノールは、それぞれ単独で用いてもよいし、2種以上を混合して用いてもよい。

なお、ポリカーボネート樹脂は、分岐構造を有していてもよく、分岐剤としては、1, 1, 1-トリス(4-ヒドロキシフェニル)エタン、 α , α' , α'' -トリス(4-ヒドロキシフェニル)-1, 3, 5-トリイソプロピルベンゼン、フロログリシン、トリメリット酸、イサチンビス(o-クレゾール)などがある。また、分子量の調節のためには、フェノール、p-t-ブチルフェノール、p-t-オクチルフェノール、p-クミルフェノールなどが用いられる。

また、本発明に用いるポリカーボネート樹脂としては、テレフタル酸などの2官能性カルボン酸、またはそのエステル形成誘導体などのエステル前駆体の存在下でポリカーボネートの重合を行うことによって得られるポリエステル-ポリカーボネート樹脂などの共重合体あるいは、種々のポリカーボネート樹脂の混合物を用いることもできる。

本発明の第1の態様及び第2の態様においては、ポリカーボネート樹脂共重合体として、特にポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体(以下PC-PDMS共重合体と略記することがある。)を例示できる。本発明の第3の態様においては、ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体は後記(G)成分に分類される。

PC-PDMS共重合体は、ポリカーボネート部とポリオルガノシロキサン部からなるものであり、たとえば、ポリカーボネートオリゴマーとポリオルガノシロキサン部を構成する末端に反応性基を有するポリオルガノシロキサン（ポリジメチルシロキサン、ポリジエチルシロキサン、ポリメチルフェニルシロキサンなど）とを、塩化メチレンなどの溶媒に溶解させ、ビスフェノールAの水酸化ナトリウム水溶液を加え、トリエチルアミンなどの触媒を用い、界面重縮合反応することにより製造することができる。PC-PDMS共重合体を配合することにより、難燃性を向上を図ることができる。

(A)成分のPC-PDMS共重合体の場合、ポリカーボネート部の重合度は、3～100、ポリジメチルシロキサン部の重合度は2～500程度のものが好ましく用いられる。また、PC-PDMS共重合体中のポリジメチルシロキサンの含有量としては、通常0.5～30重量%、好ましくは1～20重量%の範囲である。

本発明の第1の態様あるいは第2の態様で用いられるポリカーボネート樹脂、PC-PDMS共重合体などの粘度平均分子量は通常10,000～100,000、好ましくは11,000～30,000、特に好ましくは12,000～30,000である。一方、本発明の第3の態様で用いられる(A)成分のポリカーボネート樹脂の粘度平均分子量は通常10,000～50,000、好ましくは13,000～35,000、特に好ましくは15,000～20,000である。ここで、これらの粘度平均分子量(M_v)は、ウベローデ型粘度計を用いて、20℃における塩化メチレン溶液の粘度を測定し、これより極限粘度[η]を求め、次式にて算出するものである。

$$[\eta] = 1.23 \times 10^{-5} M_v^{0.83}$$

本発明の第1及び第2の態様における(A)成分のポリカーボネート樹脂の説明は、上記のとおりであるが、本発明の第3の態様においては、上記の記載の内から、PC-PDMS共重合体に関する記載が除かれる。即ち、本発明の第3の態様における(A)成分には、PC-PDMS共重合体は包含されない。本発明の第3の態様においては、PC-PDMS共重合体は後記(G)成分として定義される。

本発明の第1及び第2の態様のポリカーボネート樹脂として、ポリカーボネート樹脂とPC-PDMS共重合体との混合樹脂を用いる場合には、PC-PDMS共重合体の含有量は1～99重量%であることが好ましく、更に好ましくは5～50重量%である。該混合樹脂中のポリジメチルシロキサンの含有量は0.1～10重量%であることが好ましく、更に好ましくは0.3～5重量%である。

(B) スチレン系樹脂

本発明の第1及び第3の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物において、スチレン系樹脂は必須の成分である。

スチレン系樹脂としては、スチレン、 α -メチルスチレンなどのモノビニル系芳香族単量体20～100重量%、アクリロニトリル、メタクリロニトリルなどのシアン化ビニル系単量体0～60重量%、およびこれらと共重合可能なマレイミド、アクリル酸メチル、メタクリル酸メチルなどの他のビニル系単量体0～50重量%からなる単量体または単量体混合物を重合して得られる重合体を挙げることができる。これらの重合体としては、ポリスチレン(GPPS)、アクリロニトリル-スチレン共重合体(AS樹脂)などが例示される。

(B)成分のスチレン系樹脂としてはゴム変性スチレン系樹脂が好ましく利用できる。このゴム変性スチレン系樹脂としては、好ましく

は、少なくともスチレン系単量体がゴムにグラフト重合した耐衝撃性スチレン系樹脂が挙げられる。ゴム変性スチレン系樹脂としては、ポリブタジエンなどのゴムにスチレンが重合した耐衝撃性ポリスチレン（HIPS）、ポリブタジエンにアクリロニトリルとスチレンとが重合したABS樹脂、ポリブタジエンにメタクリル酸メチルとスチレンが重合したMBS樹脂などが例示される。ゴム変性スチレン系樹脂は、二種以上を併用することができるとともに、前記のゴム未変性であるスチレン系樹脂との混合物としても使用できる。

ゴム変性スチレン系樹脂中のゴムの含有量は、例えば2～50重量%、好ましくは、5～30重量%、特に5～15重量%である。ゴムの割合が2重量%未満であると、耐衝撃性が不十分となる場合があり、50重量%を超えると熱安定性が低下したり、熔融流動性の低下、ゲルの発生、着色などの問題が生じる場合がある。上記ゴムの具体例としては、ポリブタジエン、アクリレートおよび/またはメタクリレートを含むゴム質重合体、スチレン・ブタジエン・スチレンゴム（SBS）、スチレン・ブタジエンゴム（SBR）、ブタジエン・アクリルゴム、イソプレン・ゴム、イソプレン・スチレンゴム、イソプレン・アクリルゴム、エチレン・プロピレンゴム等が挙げられる。このうち、特に好ましいものはポリブタジエンである。ここで用いるポリブタジエンは、低シスポリブタジエン（例えば1,2-ビニル結合を1～30モル%、1,4-シス結合を30～42モル%含有するもの）、高シスポリブタジエン（例えば1,2-ビニル結合を20モル%以下、1,4-シス結合を78モル%以上含有するもの）のいずれを用いてもよく、また、これらの混合物であってもよい。

本発明の第1の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物は、ポリカーボネート樹脂にスチレン系樹脂を配合することにより、樹脂組成

物の熔融流動性を向上を図るものである。ここで、両樹脂の配合比は、(A) ポリカーボネート樹脂 60～99 重量%、好ましくは 70～95 重量%、(B) スチレン系樹脂が 40～1 重量%、好ましくは 30～5 重量%である。(A) 成分のポリカーボネート樹脂が 60 重量%未満では、耐熱性、強度が十分でなく、(B) 成分のスチレン系樹脂が 1 重量%未満では成形性の改良効果が不十分である。なお、この場合の(B) スチレン系樹脂としては、前記したゴム変性スチレン系樹脂が好ましく用いられる。これらの配合比は、ポリカーボネート樹脂の分子量、スチレン系樹脂の種類、分子量、メルトインデックス、ゴムの含有量や成形品の用途、大きさ、厚みなどを考慮して適宜決定される。

本発明の第 3 の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物も、ポリカーボネート樹脂にスチレン系樹脂を配合することにより、樹脂組成物の熔融流動性向上を図るものである。ここで、両樹脂の配合比は、(A) ポリカーボネート樹脂 1～99 重量%、好ましくは 50～90 重量%、(B) スチレン系樹脂が 1～99 重量%、好ましくは 10～50 重量%である。

(C) 官能基含有シリコーン化合物

本発明における、(C) 成分としての、官能基含有シリコーン化合物は、官能基を有するポリオルガノシロキサン又はオルガノシロキサンであり、その骨格として、式 $R^1_a R^2_b Si O_{(4-a-b)/2}$ [R^1 は官能基含有基、 R^2 は炭素数 1～12 の炭化水素基、 $0 < a \leq 3$ 、 $0 \leq b < 3$ 、 $0 < a + b \leq 3$] で表される基本構造を有する重合体、共重合体、あるいは単量体である。

官能基としては、アルコキシ基、アリーロキシ基、ポリオキシアルキレン基、水素基、水酸基、カルボキシル基、シラノール基、アミ

ノ基、メルカプト基、エポキシ基、ビニル基などを挙げることができる。これらの中でも、アルコキシ基、アリーロキシ、エポキシ基、ビニル基が好ましく、メトキシ基、ビニル基が特に好ましい。

これら官能基としては、複数の官能基を有するシリコーン化合物、異なる官能基を有するシリコーン化合物を併用することもできる。この官能基を有するシリコーン化合物は、その官能基含有基 (R^1) / 炭化水素基 (R^2) が、通常、0.1~3、好ましくは0.3~2程度のものである。

これら官能基含有シリコーン化合物は液状物、パウダーなどであるが、熔融混練において分散性の良好なものが好ましい。たとえば、室温での粘度が、本発明の第1及び第2の態様においては1,000~500,000 c s t 程度の液状のものを、本発明の第3の態様においては10~500,000 c s t 程度の液状のものを例示できる。本発明のポリカーボネート樹脂組成物にあつては、(C)成分のシリコーン化合物が液状であっても、組成物に均一に分散するとともに、成形時あるいは成形品の表面にブリードすることが少ないという特徴がある。

この官能基含有シリコーン化合物は、本発明の第1の態様においては、(A)ポリカーボネート樹脂と(B)スチレン系樹脂からなる樹脂100重量部に対して、0.1~10重量部、好ましくは0.2~5重量部含有することができる。また、本発明の第2の態様においては、(A)ポリカーボネート樹脂100重量部に対して、0.1~10重量部、好ましくは0.2~5重量部含有することができる。なお、この官能基含有シリコーン化合物の含有量は、ポリカーボネート樹脂として、PC-PDMS共重合体を用いた場合には、組成物全体におけるシリコーンの含有量も考慮して、適宜決定することができる。P

C-PDMS共重合体含有ポリカーボネート樹脂を用いる場合には、官能基含有シリコン化合物の含有量を少なくすることができ、また、組成物全体中のシリコン含有量が低下しても難燃性のレベルを高く維持できるという効果がある。

本発明の第3の態様における(C)成分の官能基含有シリコン化合物の含有量は、(A)及び(B)成分からなる樹脂100重量部に対して、0.1~10重量部、好ましくは0.2~5重量部である。その量が少なすぎると、難燃性の向上効果がでない場合があり、多すぎると、量に見合った効果がでない場合がある。

(D) フルオロオレフィン樹脂

本発明の第1及び第3の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物は、燃焼時の熔融滴下防止を目的にさらに、(D)成分としてフルオロオレフィン樹脂を用いるものである。ここで(D)成分のフルオロオレフィン樹脂は、通常、フルオロエチレン構造を含む重合体又は共重合体であり、たとえば、ジフルオロエチレン重合体、テトラフルオロエチレン重合体、テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体、テトラフルオロエチレンとフッ素を含まないエチレン系モノマーとの共重合体を挙げることができる。好ましくは、ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)であり、その平均分子量は、500,000以上であることが好ましく、特に好ましくは500,000~10,000,000である。本発明で用いることができるポリテトラフルオロエチレンとしては、現在知られているすべての種類のものを用いることができる。

なお、ポリテトラフルオロエチレンのうち、フィブリル形成能を有するものを用いると、さらに高い熔融滴下防止性を付与することができる。フィブリル形成能を有するポリテトラフルオロエチレン(P T

F E) には特に制限はないが、例えば、A S T M規格において、タイプ 3 に分類されるものが挙げられる。その具体例としては、例えばテフロン 6-J (三井・デュポンフロロケミカル株式会社製)、ポリフロン D-1、ポリフロン F-103、ポリフロン F201 (ダイキン工業株式会社製)、C D 0 7 6 (旭アイシーアイフロロポリマーズ株式会社製) 等が挙げられる。

また、上記タイプ 3 に分類されるもの以外では、例えばアルゴフロン F 5 (モンテフルオス株式会社製)、ポリフロン M P A、ポリフロン F A-100 (ダイキン工業株式会社製) 等が挙げられる。これらのポリテトラフルオロエチレン (P T F E) は、単独で用いてもよいし、2 種以上を組み合わせてもよい。上記のようなフィブリル形成能を有するポリテトラフルオロエチレン (P T F E) は、例えばテトラフルオロエチレンを水性溶媒中で、ナトリウム、カリウム、アンモニウムパーオキシジスルフィドの存在下で、1 ~ 1 0 0 p s i の圧力下、温度 0 ~ 2 0 0 °C、好ましくは 2 0 ~ 1 0 0 °C で重合させることによって得られる。

ここで、本発明の第 1 の態様におけるフルオロオレフィン樹脂の含有量は、前記 (A) および (B) 成分からなる樹脂 1 0 0 重量部に対して、0.02 ~ 5 重量部、好ましくは、0.05 ~ 2 重量部である。ここで、0.02 重量部未満であると、目的とする難燃性における溶融滴下防止性が十分でない場合があり、5 重量部を越ても、これに見合った効果の向上はなく、耐衝撃性、成形品外観に悪影響を与える場合がある。したがって、それぞれの成形品に要求される難燃性の程度、たとえば、U L-94 の V-0、V-1、V-2 などにより他の含有成分の使用量などを考慮して適宜決定することができる。

本発明の第 3 の態様におけるフルオロオレフィン樹脂の含有量は、

前記 (A) および (B) 成分からなる樹脂 100 重量部に対して、0.01～5 重量部、好ましくは、0.05～3 重量部である。ここで、この量が少なすぎると、目的とする難燃性における溶融滴下防止性が十分でなく、多すぎると、これに見合った効果の向上はなく、耐衝撃性、成形品外観に悪影響を与える。したがって、それぞれの成形品に要求される難燃性の程度、たとえば、UL-94 の V-0、V-1、V-2 などにより他の含有成分の使用量などを考慮して適宜決定することができる。

なお、本発明の第 2 の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物においては、難燃性、耐衝撃性の観点からは、上記の (A)、(B) 成分及び下記の (E) 成分からなる 3 成分により、十分本発明の目的を達成することができる。しかしながら、燃焼時の溶融滴下防止を目的にさらに、公知の溶融滴下防止剤を含有することができる。溶融滴下防止剤としては、前記 (D) 成分のフルオロオレフィン樹脂を好適に用いることができる。

ここで、本発明の第 2 の態様におけるフルオロオレフィン樹脂の含有量は、前記 (A) 成分からなる樹脂 100 重量部に対して、0.02～5 重量部、好ましくは、0.05～2 重量部である。ここで、0.02 重量部未満であると、溶融滴下防止性が十分でない場合があり、5 重量部を越ても、これに見合った効果の向上はなく、耐衝撃性、成形品外観に悪影響を与える場合がある。したがって、それぞれの成形品に要求される難燃性の程度、たとえば、UL-94 の V-0、V-1、V-2 などにより他の含有成分の使用量などを考慮して適宜決定することができる。

(E) コア/シェルタイプグラフトゴム状弾性体

次に、本発明の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物における第 2 の

態様の必須成分である (E) コア/シェルタイプグラフトゴム状弾性体について説明する。(E) 成分としてのコア/シェルタイプグラフトゴム状弾性体は、コア(芯)とシェル(殻)から構成される2層構造を有しており、コア部分は軟質なゴム状態であって、その表面のシェル部分は硬質な樹脂状態であり、弾性体自体は粉末状(粒子状態)である。このコア/シェルタイプグラフトゴム状弾性体は、ポリカーボネート樹脂と熔融ブレンドした後も、その粒子状態は、大部分がもとの形態を保つ。配合されたグラフトゴム状弾性体の大部分がもとの形態を保っていることにより、樹脂組成物内に均一に分散し、表層剥離を起こさないという効果が得られる。

このコア/シェルタイプグラフトゴム状弾性体としては、種々なるものを挙げる事ができる。市販のものとしては、例えばハイブレン B 6 2 1 (日本ゼオン株式会社製)、KM-3 3 0 (ローム&ハース株式会社製)、メタブレン W 5 2 9、メタブレン S 2 0 0 1、メタブレン C 2 2 3、メタブレン B 6 2 1 (三菱レイヨン株式会社製)等が挙げられる。

これらの中で、例えば、アルキルアクリレートやアルキルメタクリレート、ジメチルシロキサンを主体とする単量体から得られるゴム状重合体の存在下に、ビニル系単量体の1種または2種以上を重合させて得られるものが挙げられる。ここで、アルキルアクリレートやアクリルメタクリレートとしては、炭素数2~10アルキル基を有するものが好適である。具体的には、例えばエチルアクリレート、ブチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート、n-オクチルメタクリレート等が挙げられる。これらのアルキルアクリレート類を主体とする単量体から得られるゴム状弾性体としては、アルキルアクリレート類70重量%以上と、これと共重合可能な他のビニル系単量体、例

例えばメチルメタクリレート、アクリロニトリル、酢酸ビニル、スチレン等30重量%以下とを反応させて得られる重合体が挙げられる。なお、この場合、ジビニルベンゼン、エチレンジメタクリレート、トリアリルシアヌレート、トリアリルイソシアヌレート等の多官能性単量体を架橋剤として適宜添加して反応させてもよい。

ゴム状重合体の存在下に反応させるビニル系単量体としては、例えば、スチレン、 α -メチルスチレン等の芳香族ビニル化合物、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル等のアクリル酸エステル、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル等のメタクリル酸エステル等が挙げられる。これらの単量体は、1種または2種以上を組み合わせ用いてもよいし、また、他のビニル系重合体、例えばアクリロニトリル、メタクリロニトリル等のシアン化ビニル化合物や、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル等のビニルエステル化合物等と共重合させてもよい。この重合反応は、例えば塊状重合、懸濁重合、乳化重合などの各種方法によって行うことができる。特に、乳化重合法が好適である。

このようにして得られるコア/シェルタイプグラフトゴム状弾性体は、前記ゴム状重合体を20重量%以上含有していることが好ましい。このようなコア/シェルタイプグラフトゴム状弾性体としては、具体的には60~80重量%のn-ブチルアクリレートと、スチレン、メタクリル酸メチルとのグラフト共重合体などのMAS樹脂弾性体が挙げられる。また、ポリシロキサンゴム成分が5~95重量%と、アクリルアクリレートゴム成分又はアクリルメタクリレートゴム成分95~5重量%とが、分離できないように相互に絡み合った構造を有する、平均粒子径が0.01~1 μ m程度の複合ゴムに少なくとも一種のビニル単量体がグラフト重合されてなる複合ゴム系グラフト共重合体が特に好ましい。この共重合体は、それぞれのゴム単独でのグラフト共

重合体よりも耐衝撃改良効果が高い。この複合ゴム系グラフト共重合体は、市販品としての、三菱レーヨン株式会社製メタブレンS-2001などとして、入手できる。

本発明の第2の態様においては、この(E)成分であるコア/シエルタイプグラフトゴム状弾性体の含有量は、(A)ポリカーボネート樹脂100重量部に対して、0.2~10重量部、好ましくは0.5~5重量部である。ここで、グラフトゴム状弾性体の含有量が0.2重量部未満であると、耐衝撃性の改良効果が低く、10重量%を越えると難燃性、耐熱性、剛性が低くなる場合があり、通常は10重量部までで十分である。本発明の第2の態様のポリカーボネート樹脂組成物は、(C)成分である官能基含有シリコン化合物と(E)成分であるコア/シエルタイプグラフトゴム状弾性体を比較的少量併用することによって、初めてすぐれた効果を発揮するものである。なお、ここでコア/シエルタイプグラフトゴム状弾性体に代えて、他のグラフト共重合体を用いた場合には、耐衝撃強度の改良は見られる場合もあるが、本発明の最終目的である難燃性のレベルを維持することが困難である。

(F) 無機充填剤

本発明の第3の態様においては、(F)成分の無機充填剤は、成形品の剛性と難燃性を向上させるために必要である。ここで、無機充填剤としては、タルク、マイカ、カオリン、珪藻土、炭酸カルシウム、硫酸カルシウム、硫酸バリウム、ガラス繊維、炭素繊維、チタン酸カリウム繊維などをあげることができる。なかでも、板状であるタルク、マイカなどや、繊維状の充填剤が好ましい。タルクとしては、マグネシウムの含水ケイ酸塩であり、一般に市販されているものを用いることができる。また、タルクなどの無機充填剤の平均粒径は好ましく

は0.1～50 μ mであり、特に好ましくは、0.2～20 μ mである。これら無機充填剤、特にタルクを含有させることにより、剛性向上効果に加えて、シリコン化合物の配合量を減少させることができる場合がある。

ここで、本発明の第3の態様における無機充填剤の含有量は、(A)及び(B)成分からなる樹脂100重量部に対して、1～100重量部、好ましくは、2～70重量部である。ここで、その量が少なすぎると、目的とする剛性、難燃性改良効果が十分でなく、多すぎると、耐衝撃性、熔融流動性が低下し、成形品の厚み、樹脂流動長など、成形品の要求性状と成形性を考慮して適宜決定することができる。

本発明の第3の態様においては、上記(A)、(B)、(D)、(F)成分に(C)及び/又は(G)成分を含有させる。

(G) ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体

本発明の第3の態様における(G)成分のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体(以下PC-ポリオルガノシロキサン共重合体と略記することがある。)は、ポリカーボネート部とポリオルガノシロキサン部からなるものであり、例えば、ポリカーボネートオリゴマーとポリオルガノシロキサン部を構成する末端に反応性基を有するポリオルガノシロキサン(ポリジメチルシロキサン、ポリジエチレンシロキサン、ポリメチルフェニルシロキサンなど)とを、塩化メチレンなどの溶媒に溶解させ、ビスフェノールAの水酸化ナトリウム水溶液を加え、トリエチルアミンなどの触媒を用い、界面重縮合反応することにより製造することができる。

このPC-ポリオルガノシロキサン共重合体のポリカーボネート部の重合度は、3～100、ポリジメチルシロキサン部の重合度は2～500程度のものが好ましく用いられる。また、PC-ポリオルガノ

シロキサン共重合体中のポリジメチルシロキサンの含有量としては、通常0.5～30重量%、好ましくは1～20重量%の範囲である。

(G)成分のPC-ポリオルガノシロキサン共重合体の粘度平均分子量は通常5,000～100,000、好ましくは10,000～30,000、特に好ましくは12,000～30,000である。ここで、これらの粘度平均分子量(M_v)は、前記のポリカーボネート樹脂と同様にして求めることができる。

本発明の第3の態様における(G)成分のPC-ポリオルガノシロキサン共重合体の含有量は、(A)及び(B)成分からなる樹脂100重量部に対して、1～500重量部、好ましくは5～450重量部である。その量が少なすぎると、難燃性の向上効果がでない場合があり、多すぎると、量に見合った効果がでない場合がある。

なお、本発明の第3の態様においては、(C)及び/又は(G)成分由来のポリオルガノシロキサン含有量が難燃性ポリカーボネート樹脂組成物中の0.3～10重量%になるように調整するのが好ましい。さらに、好ましくは0.5～5重量%である。0.3重量%未満であると、難燃性の向上効果が小さい場合があり、10重量%を超えると、耐衝撃性や耐熱性が低下してしまう場合がある。

次に、本発明の難燃性ポリカーボネート樹脂に配合できる任意成分について説明する。

本発明の第1の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物には、必要により、ポリエステル樹脂などの他の熱可塑性樹脂や成形品の剛性、さらには難燃性をさらに向上させるために無機充填剤を含有させることができる。ここで、無機充填剤としては、前記(D)成分として挙げたものを例示することができる。好適な充填剤、無機充填剤の平均

粒径、添加効果についても、前記（D）成分の項における説明と同様である。

本発明の第2の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物には、必要により、無機充填剤を、成形品の剛性、さらには難燃性をさらに向上させるために含有させることができる。ここで、無機充填剤としては、前記（D）成分として挙げたものを例示することができる。好適な充填剤、無機充填剤の平均粒径、添加効果についても、前記（D）成分の項における説明と同様である。

ここで、無機充填剤の含有量は、本発明の第1の態様においては（A）ポリカーボネート樹脂と（B）スチレン系樹脂からなる樹脂100重量部に対して、本発明の第2の態様においては（A）ポリカーボネート樹脂100重量部に対して、1～100重量部、好ましくは、2～50重量部である。ここで、1重量部未満であると、目的とする剛性、難燃性改良効果が十分でない場合があり、100重量部を越えると、耐衝撃性、熔融流動性が低下する場合があり、成形品の厚み、樹脂流動長など、成形品の要求性状と成形性を考慮して適宜決定することができる。

本発明の第3の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物には、成形性、耐衝撃性、外観改善、耐候性改善、剛性改善等の目的で、上記（A）～（D）、（F）及び（G）からなる成分に、その他の合成樹脂、エラストマーを含有させることができる。

本発明の第1の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物は、成形性、耐衝撃性、外観改善、耐候性改善、剛性改善等の目的で、上記（A）～（D）からなる必須成分に、熱可塑性樹脂に常用されている添加剤成分を必要により含有することができる。例えば、フェノール系、リン系、イオウ系酸化防止剤、帯電防止剤、ポリアミドポリエーテルブ

ロック共重合体（永久帯電防止性能付与）、ベンゾトリアゾール系やベンゾフェノン系の紫外線吸収剤、ヒンダードアミン系の光安定剤（耐候剤）、可塑剤、抗菌剤、相溶化剤、着色剤（染料、顔料）等が挙げられる。任意成分の配合量は、本発明の、難燃性ポリカーボネート樹脂組成物の特性が維持される範囲であれば特に制限はない。

本発明の第2の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物は、成形性、耐衝撃性、外観改善、耐候性改善、剛性改善等の目的で、上記（A）、（C）、（E）からなる必須成分に、（D）などの任意成分の一種以上とともに、ポリエステル樹脂などの熱可塑性樹脂や熱可塑性樹脂に常用されている添加剤成分を必要により含有することができる。この添加剤成分としては、本発明の第1の態様で記載したものを挙げる事ができる。また、上記した熱可塑性樹脂や添加剤成分の配合量に関する記載も本発明の第1の態様の場合と同様である。

本発明の第3の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物にも、熱可塑性樹脂に常用されている添加剤成分を必要により含有させることができる。この添加剤成分としては、本発明の第1の態様で記載したものを挙げる事ができる。ただし、リン系酸化防止剤等、リンを含む化合物の添加は、この態様の目的に合致せず好ましくない。また、上記した添加剤成分の配合量に関する記載も、本発明の第1の態様の場合と同様である。

次に、本発明の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物の製造方法について説明する。本発明の第1の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物は、前記の各成分（A）～（D）を前記割合で、さらに必要に応じて用いられる、各種任意成分を適当な割合で配合し、混練することにより得られる。本発明の第2の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂

組成物は、前記の各成分（A），（C），（E）を前記割合で、さらに必要に応じて用いられる、各種任意成分を適当な割合で配合し、混練することにより得られる。本発明の第3の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物は、前記の各成分（A），（B），（D），（F）及び（C）及び／又は（G）を前記割合で、さらに必要に応じて用いられる各種任意成分を適当な割合で配合し、混練することにより得られる。

このときの配合および混練は、通常用いられている機器、例えばリボンブレンダー、ドラムタンブラーなどで予備混合後、ヘンシェルミキサー、バンバリーミキサー、単軸スクリュウ押出機、二軸スクリュウ押出機、多軸スクリュウ押出機、コニーダ等を用いて混練する方法で行うことができる。混練の際の加熱温度は、通常240～300℃の範囲で適宜選択される。この熔融混練成形においては、押出成形機、特にベント式の押出成形機の使用が好ましい。なお、ポリカーボネート樹脂以外の含有成分は、あらかじめ、ポリカーボネート樹脂あるいは他の熱可塑性樹脂と熔融混練、すなわちマスターバッチとして添加することもできる。

本発明の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物は、上記の熔融混練成形機、あるいは、得られたペレットを原料として、射出成形法、射出圧縮成形法、押出成形法、ブロー成形法、プレス成形法、真空成形法、発泡成形法などにより各種成形品を製造することができる。しかし、上記熔融混練方法により、ペレット状の成形原料を製造し、ついで、このペレットを用いて、射出成形、射出圧縮成形により射出成形品を製造する方法を特に好適に用いることができる。なお、射出成形方法としては、外観のヒケ防止のため、あるいは軽量化のためのガス注入成形方法を採用することもできる。

本発明の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物から得られる成形品としては、複写機、ファックス、テレビ、ラジオ、テープレコーダー、ビデオデッキ、パソコン、プリンター、電話機、情報端末機、冷蔵庫、電子レンジなどの電気・電子機器のハウジングまたは部品を挙げることができる。さらに、本発明の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物は、自動車部品など他の分野にも用いることができる。

以下、本発明について実施例および比較例を示してより具体的に説明するが、本発明はこれらに、何ら制限されるものではない。

[実施例 1～5 および比較例 1～5]

第 1 表及び第 2 表に示す割合で各成分を配合〔(A) と (B) 成分は重量%、他の成分は、(A) と (B) からなる樹脂 100 重量部に対する重量部で示す。〕し、ベント式二軸押出成形機（機種名：TEM 35、東芝機械株式会社製）に供給し、260℃で熔融混練し、ペレット化した。なお、すべての実施例および比較例において、酸化防止剤としてイルガノックス 1076（チバ・スペシャルティ・ケミカルズ株式会社製）0.2 重量部およびアデカスタブ C（旭電化工業株式会社製）0.1 重量部をそれぞれ配合した。得られたペレットを、120℃で 12 時間乾燥した後、成形温度 260℃、金型温度 80℃で射出成形して試験片を作製した。この試験片を用いて樹脂組成物の性能を各種試験によって評価し、その結果を第 1 表及び第 2 表に示した。

用いた各成分の性状および樹脂組成物の性能評価方法を次に示す。

[各成分の性状]

(A) ポリカーボネート樹脂

・PC-1：タフロン A1900（出光石油化学株式会社製）、ビス

フェノールAポリカーボネート樹脂、MI = 20 g / 10分 (300℃、1.2 kg 荷重)、粘度平均分子量：19,000

・PC-PDMS-1：ビスフェノールA-ポリジメチルシロキサン (PDMS) 共重合体、MI = 45 g / 10分 (300℃、1.2 kg 荷重)、PDMS鎖長 (n) = 30、PDMS含有量 = 4重量%、粘度平均分子量 = 20,000、〔特開平8-81620公報の製造例3-1 (A1) に記載の方法により製造された共重合体〕

(B) スチレン系樹脂

・HIPS (耐衝撃性ポリスチレン)：IDEMITSU PS IT44 (出光石油化学株式会社製)、ポリブタジエンにスチレンがグラフト重合したもの、ゴム含有量10重量%、MI = 8 g / 10分 (200℃、5 kg 荷重)

・ABS (アクリロニトリルブタジエンスチレン共重合体)：DP-611 (テクリポリマー株式会社製)、MI = 2 g / 10分

(C) 官能基含有及び不含有シリコン化合物

・シリコン-1：ビニル基メトキシ基含有メチルフェニルシリコン、KR219 (信越化学工業株式会社製)、粘度 = 1,800 c s t

・シリコン-2：メトキシ基含有ジメチルシリコン、KC-89 (信越化学工業株式会社製)、粘度 = 2,000 c s t

・シリコン-3：ジメチルシリコン、SH200 (東レダウコーニング株式会社製)、粘度 = 35,000 c s t

(D) フルオロオレフィン樹脂

・PTFE：CD076 (旭硝子株式会社製)

(H) 難燃剤

・TBAオリゴマー：テトラブロモビスフェノールAオリゴマー、FG7500 (帝人化成株式会社製)

・リン酸エステル化合物：レゾルシノールビス（ジフェニルホスフェート）、PFR（旭電化工業株式会社製）

[性能評価方法]

(1) 溶融流動性

MI（メルトインデックス）：JIS K7210に準拠、260℃、2.16kg荷重、単位：g/10分

(2) IZOD（アイゾット）衝撃強度

ASTM D256に準拠、23℃（肉厚1/8インチ）、単位：kJ/m²

(3) 熱歪み温度

JIS K7207（A法）に準拠、曲げ応力：18.5kg/cm²、単位：℃

(4) 難燃性

UL94燃焼試験に準拠（試験片厚み：2.5mm）

(5) リサイクル性

各組成物ペレットを用いて、成形温度280℃、金型温度80℃の条件で射出成形によりノートパソコンハウジング（A4タイプ）を成形した。この成形品を粉砕して、100%リサイクル原料として再度、前記の条件で試験片を成形した。この試験片を用いて以下の性能を評価。

1. IZOD衝撃強度：上記性能評価方法（2）による

2. 色調変化：JIS H7103（黄変度試験方法）に準拠して、色差計でリサイクル前後の試験片の色相（L, a, b）を測定し、色相変化を色差（ΔE）として算出した。

(6) 耐湿熱性

温度70℃、湿度90%の雰囲気中に300時間試験片を保持した。

1. 保持後の I Z O D 衝撃強度を測定（測定方法は前記に同じ）
2. 保持後の色調変化を測定（測定方法は前記に同じ）

第 1 表

		実施例1	比較例1	比較例2	実施例2	比較例3		
組	(A)	PC-1	90	90	90	80	80	
		PC-PDMS-1	—	—	—	—	—	
	(B)	HIPS	10	10	10	—	—	
		ABS	—	—	—	20	20	
	(C)	シリコン-1	4	—	—	4	—	
		シリコン-2	—	—	—	—	—	
		シリコン-3	—	—	4	—	—	
	(D)	PTFE	0.5	0.5	0.5	0.3	0.3	
	成	(H)	リン酸エステル	—	—	—	—	8
			TBAオリゴマー	—	—	—	—	—
		(A)樹脂中のシリコン*量	0	0	0	0	0	
		全シリコン*量(重量%)	4	0	4	4	0	
		シリコン*比=(A)/(C)	0	0	0	0		
評	(1)熔融流動性:MI	8	5	10	10	25		
	(2)IZOD衝撃強度	65	70	50	70	60		
	(3)熱歪み温度	120	122	118	120	95		
	(4)UL-94	V-0	V-2外	V-2外	V-1	V-1		
	(5)リサイクル性							
	1. IZOD衝撃強度	65	—	—	70	55		
	2. 色調変化	0.2	—	—	0.5	0.4		
	(6)耐湿熱性							
	1. IZOD衝撃強度	60	—	—	60	15		
	2. 色調変化	0.6	—	—	1.2	1.4		

*ポリオルガノシロキサン、**V-2外:V-0, V-1, V-2に該当しない。

第 2 表

			比較例4	実施例3	実施例4	実施例5	比較例5	
組	(A)	PC-1	80	65	35	30	10	
		PC-PDMS-1	—	25	50	50	80	
	(B)	HIPS	—	10	15	—	10	
		ABS	20	—	—	20	—	
	(C)	シリコン-1	—	2	—	2	—	
		シリコン-2	—	—	2	—	—	
		シリコン-3	—	—	—	—	—	
	(D)	PTFE	0.3	0.5	0.3	0.3	0.5	
	(H)	リン酸エステル	—	—	—	—	—	
		TBAオリゴマー	10	—	—	—	—	
	(A)樹脂中のシリコン*量			0	1	2	2	3.2
	全シリコン*量(重量%)			0	3	4	4	3.2
	シリコン*比=(A)/(C)			—	0.5	1	1	—
価	(1)溶融流動性:MI		15	6	14	12	5	
	(2)IZOD衝撃強度		65	75	55	75	75	
	(3)熱歪み温度		123	120	118	121	123	
	(4)UL-94		V-1	V-0	V-0	V-0	V-1	
	(5)リサイクル性							
	1. IZOD衝撃強度		40	70	50	75	70	
	2. 色調変化		3.2	0.3	0.4	0.6	0.3	
	(6)耐湿熱性							
	1. IZOD衝撃強度		50	65	45	65	60	
	2. 色調変化		1.9	0.6	1.2	0.9	0.5	

* ポリオルガノシロキサン

第 1 表及び第 2 表の結果から明らかなように、本発明の第 1 の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物からの成形品は、実施例 1 と比較例 1、2 から、本発明が難燃性と耐衝撃性を共に満足するものであることが明らかである。また、実施例 2 と比較例 3、4 から、リン酸エステル化合物やハロゲン系の難燃剤を用いた場合と同等以上の難燃性を示すとともに、すぐれた物性を維持していることが明らかである。さらに、耐湿熱性、リサイクル性もすぐれている。また、ポリカーボネート樹脂として、PC-PDMS 共重合体を用いる場合に組成物中のトータルシリコン量を少なくする効果がある。

[実施例 6～8 および比較例 6～12]

第 3 表、第 4 表に示す割合で各成分を配合〔(A) 成分は重量%、他の成分は、(A) 成分樹脂 100 重量部に対する重量部で示す。〕し、ベント式二軸押出成形機（機種名：TEM35、東芝機械株式会社製）に供給し、280℃で熔融混練し、ペレット化した。なお、すべての実施例および比較例において、酸化防止剤としてイルガノックス 1076（チバ・スペシャルティ・ケミカルズ株式会社製）0.2 重量部およびアデカスタブ C（旭電化工業株式会社製）0.1 重量部をそれぞれ配合した。得られたペレットを、120℃で 12 時間乾燥した後、成形温度 270℃、金型温度 80℃で射出成形して試験片を得た。得られた試験片を用いて性能を各種試験によって評価し、その結果を表 1 に示した。

なお、用いた各成分の性状および性能評価方法を次に示す。

[各成分の性状]

(A) ポリカーボネート樹脂

・PC-2：タフロン A1700（出光石油化学株式会社製）、ビ

スフェノールAポリカーボネート樹脂、MI = 27 g / 10分 (300°C、1.2 Kg 荷重)、粘度平均分子量：17,000

・PC-PDMS-2：ビスフェノールA-ポリジメチルシロキサン (PDMS) 共重合体、MI = 45 g / 10分 (300°C、1.2 Kg 荷重)、PDMS鎖長 (n) = 30、PDMS含有量 = 4重量%、粘度平均分子量 = 15,000、〔特開平8-81620公報の製造例3-2 (A2) の記載により製造された共重合体〕

(C) 官能性基含有又は不含有シリコン化合物

- ・シリコン-1：前記化合物
- ・シリコン-2：前記化合物
- ・シリコン-3：前記化合物

(E) コアシェルタイプグラフトゴム状弾性体

・ゴム状弾性体-1：複合ゴム系グラフト共重合体、メタブレンS2001 (三菱レーヨン株式会社製)、ポリジメチルシロキサン含有量 = 50重量%以上

・ゴム状弾性体-2：MBS系グラフト共重合体、メタブレンC223 (三菱レーヨン株式会社製)、ポリブタジエン含有量 = 60重量%以上

・ゴム状弾性体-3：SBS系グラフト共重合体 (コアシェルタイプグラフトゴム状弾性体ではない。)、VECTOR8550-5 (Dexco Polymers 社製)

(D) フルオロオレフィン樹脂

- ・PTFE：CD076 (前記樹脂)

(H) ハロゲン系難燃剤

- ・TBAオリゴマー：前記難燃剤

[性能評価方法]

(1) 熔融流動性

MI (メルトインデックス) : J I S K 7 2 1 0 に準拠。3 0 0 °C、
1 . 2 k g 荷重、単位 : g / 1 0 分

(2) I Z O D (アイゾット衝撃強度) : 前記と同様の方法を採用

(3) 難燃性 : U L 9 4 燃焼試験に準拠 (試験片厚み : 1 . 5 m m)

(4) リサイクル性 : 前記と同様の方法を採用

第 3 表

		実施例6	比較例6	比較例7	実施例7	実施例8	
組成	(A)	PC-2	100	100	100	75	50
		PC-PDMS-2	0	0	0	25	50
	(C)	シリコン-1	3	-	3	1	-
		シリコン-2	-	-	-	-	0.5
		シリコン-3	-	-	-	-	-
	(E)	ゴム状弾性体-1	1	-	-	2	-
		ゴム状弾性体-2	-	-	-	-	1
		ゴム状弾性体-3	-	-	-	-	-
	(D)	PTFE	0.5	0.5	0.5	0.3	0.3
	(H)	TBAオリゴマー	-	-	-	-	-
		(A)樹脂中のシリコン*量	0	0	0	1	2
		全シリコン*量(重量%)	3	0	3	2	2.5
		シリコン*比=(A)/(C)	0	0	0	1	4
評価	(1)熔融流動性:MI	28	27	28	35	40	
	(2)IZOD衝撃強度	65	65	8	60	55	
	(3)UL-94	V-0	V-2外	V-0	V-0	V-0	
	(4)リサイクル性						
	1. IZOD衝撃強度	65	-	-	60	55	
	2. 色調変化	1.2	-	-	1.5	1.2	

*ポリオルガノシロキサン

** V-2外: V-0, V-1, V-2に該当しない。

第 4 表

			比較例8	比較例9	比較例10	比較例11	比較例12
組 成	(A)	PC	75	50	75	75	75
		PC-PDMS	25	50	25	25	25
	(C)	シリコン-1	—	—	—	—	—
		シリコン-2	—	—	—	—	—
		シリコン-3	—	—	—	1	—
	(E)	ゴム状弾性体-1	2	2	—	2	2
		ゴム状弾性体-2	—	—	—	—	—
		ゴム状弾性体-3	—	—	2	—	—
	(D)	PTFE	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
	(H)	TBAオリゴマー	—	—	—	—	5
	(A)樹脂中のシリコン*量		1	2	1	1	1
	全シリコン*量(重量%)		1	2	2	2	1
	シリコン*比=(A)/(C)		—	—	—	1	—
評 価	(1)熔融流動性:MI		33	43	32	37	32
	(2)IZOD衝撃強度		60	55	65	65	55
	(3)UL-94		V-2外	V-2外	V-2外	V-2外	V-0
	(4)リサイクル性						
	1. IZOD衝撃強度		—	—	55	60	45
	2. 色調変化		—	—	3.0	1.5	4.8

* ポリオルガノシロキサン

** V-2外: V-0, V-1, V-2に該当しない。

第3表の結果から明らかなように、本発明の第2の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物からの成形品は、実施例6と比較例6、7

から、本発明が難燃性と耐衝撃性を共に満足するものであることが明らかである。また、比較例10より本発明で用いるコア／シエルタイプグラフトゴム状弾性体以外のゴム状弾性体を用いたのでは、難燃性を維持することができない。さらに、比較例12のハロゲン系難燃剤添加の場合との比較において、同等以上の難燃性を有するとともに、リサイクル性が格段に向上していることが明らかである。また、ポリカーボネート樹脂として、PC-PDMS共重合体を用いる場合に組成物中のトータルシリコン量を少なくできる効果がある。

[実施例9～13および比較例13～16]

第5表、第6表に示す割合で各成分を配合〔(A)と(B)成分は重量%、他の成分は、(A)と(B)からなる樹脂100重量部に対する重量部で示す。〕し、ベント式二軸押出成形機(機種名:TEM35、東芝機械社製)に供給し、260℃で熔融混練し、ペレット化した。なお、すべての実施例および比較例において、酸化防止剤としてイルガノックス1076(チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社製)0.2重量部およびアデカスタブC(旭電化工業社製)0.1重量部をそれぞれ配合した。得られたペレットを、120℃で12時間乾燥した後、成形温度260℃、金型温度80℃で射出成形して試験片を作製した。得られた試験片を用いて樹脂組成物の性能を各種試験によって評価し、その結果を第5表、第6表に示した。

なお、用いた各成分の性状および性能評価方法を次に示す。

[各成分の性状]

(A) ポリカーボネート樹脂

・PC-1:前記の樹脂を使用

(B) スチレン系樹脂

- ・ H I P S : 前記の樹脂を使用
- ・ A B S : 前記の樹脂を使用
- (D) フルオロオレフィン樹脂
- ・ P T F E : C D 0 7 6 (前記の樹脂)
- (F) 無機充填剤
- ・ タルク : F F R (浅田製粉社製)、平均粒径 = 0.7 μ m
- ・ G F : 0 3 M A 4 1 9 (旭ファイバーグラス社製)、直径 = 13 μ m、長さ = 3 mm
- (G) P C - ポリオルガノシロキサン共重合体
- ・ P C - P D M S - 1 : ビスフェノール A - ポリジメチルシロキサン (P D M S) 共重合体、M I = 45 g / 10分 (300°C、1.2 kg 荷重)、P D M S 鎖長 (n) = 30、P D M S 含有量 = 4 重量%、粘度平均分子量 = 20,000、〔特開平 8 - 81620 公報の製造例 3 - 1 (A1) の記載により製造された共重合体〕 (前記の樹脂である。)

(C) 官能基含有又は不含有シリコン化合物

シリコン - 1 : 前記の化合物

シリコン - 2 : 前記の化合物

シリコン - 3 : 前記の化合物

[性能評価方法]

(1) 溶融流動性

M I (メルトインデックス) : J I S K 7 2 1 0 に準拠。260°C、2.16 kg 荷重、単位 : g / 10分

(2) I Z O D (アイゾット) 衝撃強度 : 前記の方法を採用。表中の単位も同様。

(3) 曲げ弾性率

A S T M D - 7 9 0 に準拠（試験条件等：23℃、4mm）、単位：M P a

（4）滞留熱安定性

射出成形機 I S - 4 5 P を使用し、成形温度を300℃に設定して、シリンダー内に20分間樹脂を滞留させた後、成形して厚さ3mm（80mm×40mm×3mm）の試験片を作製した。その作製した試験片の色調変化を測定した。J I S H 7 1 0 3（黄変度試験方法）に準拠して、色差計で20分間滞留させた樹脂の試験片と滞留させなかった試験片の色相（L，a，b）を測定し、色差（ ΔE ）として算出した。

（5）難燃性

U L 9 4 燃焼試験に準拠（試験片厚み：1.5mm，2.5mm）

第 5 表

		実施例9	比較例13	比較例14	比較例15	実施例10	
配	(A)	PC-1	90	90	90	90	87
	(B)	HIPS	10	10	10	10	13
ABS		—	—	—	—	—	
合	(D)	PTFE	0.5	0.5	0.5	0.3	0.7
	(F)	タルク	10	—	10	10	13
GF		—	—	—	—	—	
割	(G)	PC-PDMS-1	—	—	—	—	33
合	(C)	シリコン-1	4	4	—	—	3
		シリコン-2	—	—	—	—	—
		シリコン-3	—	—	—	4	—
全シリコン*量(重量%)		3.0	4.0	0	3.6	2.7	
評	(1)溶融流動性:MI		6	8	10	9	6
	(2)IZOD衝撃強度		40	65	20	25	50
	(3)曲げ弾性率		3400	2400	3500	3400	3400
	(4)滞留熱安定性		2	1	10	7	3
	(5)難燃性						
・1.5mm		V-0	V-2外	V-2外	V-2外	V-0	
・2.5mm		V-0,5VB	V-0	V-2外	V-2外	V-0,5VB	

* ポリオルガノシロキサン

** V-2外: V-0, V-1, V-2に該当しない。

第 6 表

		実施例11	実施例12	比較例16	実施例13	
配	(A)	PC-1	50	60	60	70
	(B)	HIPS	50	—	—	30
		ABS	—	40	40	—
	(D)	PTFE	2.5	0.6	0.6	0.6
合	(F)	タルク	50	—	—	60
		GF	—	40	—	—
割	(G)	PC-PDMS-1	400	100	100	100
合	(C)	シリコーン-1	—	4	4	—
		シリコーン-2	—	—	—	4
		シリコーン-3	—	—	—	—
	全シリコーン量*(重量%)		2.9	3.3	4.0	3.1
評 価	(1)溶融流動性:MI		4	11	12	10
	(2)IZOD衝撃強度		55	8	75	15
	(3)曲げ弾性率		3400	5200	2300	4600
	(4)滞留熱安定性		4	1	3	5
	(5)難燃性					
	・1.5mm		V-1	V-0	V-2外	V-0
	・2.5mm		V-0,5VB	V-0,5VB	V-0	V-0,5VB

* ポリオルガノシロキサン

** V-2外: V-0, V-1, V-2に該当しない。

第5表、第6表より下記のことわかる。

- ① (F)成分がない比較例13, 比較例16においては、剛性及び難燃性に劣る。

② (C) 成分と (G) 成分がない比較例14においては、耐衝撃性、熱安定性及び難燃性に劣る。

③ (C) 成分として一般のシリコン化合物を用いた比較例15においては、剛性、熱安定性及び難燃性に劣る。

産業上の利用可能性

本発明の第1の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物は、ノンハロゲンで、かつ少量の添加剤の含有で優れた難燃特性が得られ、結果として耐衝撃性、熱安定性にすぐれる。また、これらの特性により、耐湿熱性、リサイクル性にすぐれ、過酷な使用条件での使用、再生使用が可能となり、環境問題、省資源に貢献できるものである。したがって、OA機器、情報機器、家庭電化機器などの電気・電子機器、自動車部品などその応用分野の拡大が期待される。

本発明の第2の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物は、ノンハロゲンで、かつ少量の添加剤の含有ですぐれた難燃特性が得られ、結果として耐衝撃性、熱安定性にすぐれる。また、これらの特性により、リサイクル性にすぐれ、再生使用が可能となり、環境問題、省資源に貢献できるものである。したがって、OA機器、情報機器、家庭電化機器などの電気・電子機器、自動車部品などその応用分野の拡大が期待される。

本発明の第3の態様の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物は、ノンハロゲン・ノンリンで、かつ少量の添加剤の含有で優れた難燃特性が得られ、結果として成形性、耐衝撃性、熱安定性に優れる。したがって、OA機器、情報機器、家庭電化機器などの電気・電子機器、自動車部品などその応用分野の拡大が期待される。

請求の範囲

1. (A) ポリカーボネート樹脂 60～99重量%と (B) スチレン系樹脂 40～1重量%からなる樹脂 100重量部に対して、(C) 官能基含有シリコン化合物 0.1～10重量部および (D) フルオロオレフィン樹脂 0.02～5重量部を含有する難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。
2. (A) ポリカーボネート樹脂が、少なくともポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体を含み、該ポリカーボネート樹脂中のポリオルガノシロキサン含有量が 0.1～10重量%である請求の範囲第1項記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。
3. 請求の範囲第1項または第2項記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物において、(A) 成分が 70～95重量%であり、(B) 成分がゴム変性スチレン系樹脂 30～5重量%である難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。
4. 請求の範囲第1項～第3項のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物からなる成形品。
5. 請求の範囲第1項～第3項のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂からなる電気・電子機器のハウジングまたは部品である射出成形品。
6. (A) ポリカーボネート樹脂 100重量部に対して、(C) 官能基含有シリコン化合物 0.1～10重量部および (E) コア/シエルトタイプグラフトゴム状弾性体 0.2～10重量部を含有する難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。
7. (A) ポリカーボネート樹脂が、少なくともポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体を含み、該ポリカーボネート樹脂中

のポリオルガノシロキサン含有量が 0.1～10 重量%である請求の範囲第 6 項記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

8. 請求の範囲第 6 項または第 7 項記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物において更に、(D) フルオロオレフィン樹脂を、0.02～5 重量部含有する難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

9. 請求の範囲第 6 項～第 8 項のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物からなる成形品。

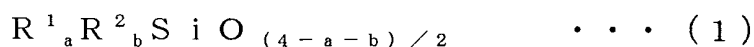
10. 請求の範囲第 6 項～第 8 項のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂からなる電気・電子機器のハウジングまたは部品である射出成形品。

11. (A) ポリカーボネート樹脂 1～99 重量%及び (B) スチレン系樹脂 1～99 重量%からなる樹脂 100 重量部に対して、(D) フルオロオレフィン樹脂 0.01～5 重量部、(F) 無機充填剤 1～100 重量部、及び (G) ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体 1～500 重量部及び/又は (C) 官能基含有シリコン化合物 0.1～10 重量部を含有する難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

12. (C) 及び/又は (G) 成分由来のシリコン含有量が、難燃性ポリカーボネート組成物の 0.3～10 重量%である請求の範囲第 11 項記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

13. (F) 成分の無機充填剤が、平均粒径 0.2～20 μm のタルクである請求の範囲第 11 項 1 又は第 12 項に記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

14. (C) 成分の官能基含有シリコン化合物が、下記一般式 (1)



(式中、R¹は官能基、R²は炭素数 1～12 の炭化水素基、a 及び

b は、 $0 < a \leq 3$ 、 $0 \leq b < 3$ 、 $0 < a + b \leq 3$ の関係を満たす数を示す。)

で表される基本構造を有するオルガノポリシロキサンである請求の範囲第 1 1 項～第 1 3 項のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

15. (C) 成分の官能基含有シリコン化合物において、官能基がアルコキシ基、ビニル基、水素基、及びエポキシ基から選ばれる基である請求の範囲第 1 1 項～第 1 4 項のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

16. (C) 成分の官能基含有シリコン化合物において、官能基がメトキシ基又はビニル基である請求の範囲第 1 1 項～第 1 5 項のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

17. (D) 成分のフルオロオレフィン樹脂が、フィブリル形成能を有する平均分子量 500,000 以上のポリテトラフルオロエチレンである請求の範囲第 1 1 項～第 1 6 項のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

18. (A) 成分のポリカーボネート樹脂の粘度平均分子量が、15,000～20,000 である請求の範囲第 1 1 項～第 1 7 項のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

19. 請求の範囲第 1 1 項～第 1 8 項のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物からなる成形品。

20. 請求の範囲第 1 1 項～第 1 8 項のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂からなる電気・電子機器のハウジングまたは部品である射出成形品。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/07027

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl. ⁷ C08L69/00 , C08K7/00, C08J5/00		
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. ⁷ C08L69/00 , C08K3/00-13/08, C08G64/00-C08G64/42		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) WPI/L		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP, 829521, A1 (NEC CORPORATION Tokyo), 18 March, 1998 (18.03.98),	1, 3-5, 11, 12, 14-20
Y	page 1, line 5; page 6, line 6; Claims & JP, 10-139964, A	2
X	JP, 8-165392, A (GE Plastics Japan Ltd.), 25 June, 1996 (25.06.96),	1, 3-6, 8-20
Y	Claims; Columns 19, 34, 43, 48, 52 (Family: none)	2, 7
Y	JP, 6-287430, A (Idemitsu Petrochem Co., Ltd.), 11 October, 1994 (11.10.94), Claims; column 14; implementation example 1; comparison example 1 (Family: none)	2, 7
A	JP, 10-7897, A (Mitsubishi Eng. Plast. K.K.), 13 January, 1998 (13.01.98), Column 23 (Family: none)	17
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> 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 document 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 07 April, 2000 (07.04.00)		Date of mailing of the international search report 18 April, 2000 (18.04.00)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP99/07027

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
Int. Cl⁷ C08L69/00, C08K7/00, C08J5/00

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. Cl⁷ C08L69/00, C08K3/00-13/08, C08G64/00-C08G64/42

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

国際調査で利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)
WPI/L

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 請求の範囲の番号
X Y	EP, 829521, A1 (NEC CORPORATION Tokyo) 18. 3月. 1998 (18. 03. 98), 第1頁5行目, 第6頁6行目, Claims & JP, 10-139964, A	1, 3-5, 11, 12, 14-20 2
X Y	JP, 8-165392, A (日本ジーイープラスチック株式会社) 25. 6月. 1996 (25. 06. 96), 特許請求の範囲, 第19欄, 第34欄, 第43欄, 第48欄, 第52欄 (ファミリーなし)	1, 3-6, 8-20 2, 7
Y	JP, 6-287430, A (出光石油化学株式会社) 11. 10月. 1994 (11. 10. 94), 特許請求の範囲, 第14欄,	2, 7

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	の日の後に公表された文献
「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	「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
「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	「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
「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)	「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
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日 07. 04. 00

国際調査報告の発送日 18.04.00

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)
油科 壮一
4J 2941
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 請求の範囲の番号
A	実施例 1, 比較例 1 (ファミリーなし) JP, 10-7897, A (三菱エンジニアリングプラスチック) 13. 1月. 1998 (13. 01. 98), 第23欄 (ファミリーなし)	17