

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

**特表2005-536597****(P2005-536597A)**

(43) 公表日 平成17年12月2日(2005.12.2)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	F I	テーマコード (参考)
<b>C08L 81/06</b>	C08L 81/06	4J002
<b>C08K 7/14</b>	C08K 7/14	
<b>C08L 69/00</b>	C08L 69/00	
<b>C08L 71/00</b>	C08L 71/00	Z
<b>C08L 71/10</b>	C08L 71/10	
審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 25 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願2004-529934 (P2004-529934)	(71) 出願人	502030880
(86) (22) 出願日	平成15年8月26日 (2003.8.26)		ソルヴェイ アドバンスド ポリマーズ
(85) 翻訳文提出日	平成17年4月25日 (2005.4.25)		リミテッド ライアビリティ カンパニー
(86) 国際出願番号	PCT/US2003/026497		アメリカ合衆国 ジョージア州 3000
(87) 国際公開番号	W02004/018542		5, アルファレッタ マクギンスフェリー
(87) 国際公開日	平成16年3月4日 (2004.3.4)		ロード 4500
(31) 優先権主張番号	60/405,745	(74) 代理人	100082005
(32) 優先日	平成14年8月26日 (2002.8.26)		弁理士 熊倉 禎男
(33) 優先権主張国	米国 (US)	(74) 代理人	100084009
			弁理士 小川 信夫
		(74) 代理人	100084663
			弁理士 稲田 篤
		(74) 代理人	100093300
			弁理士 浅井 賢治
		最終頁に続く	

(54) 【発明の名称】 増強された強度特性を示す芳香族重縮合ポリマー組成物

## (57) 【要約】

ガラス補強芳香族重縮合ポリマー組成物の強度特性を少なくとも1種のフェノキシポリマーの添加によって増強する。引張および曲げ強度、伸び並びに衝撃の諸特性は、少なくとも1種のフェノキシポリマーの添加によって改良される。上記芳香族重縮合ポリマー類としては、ポリアリールエーテルスルホン類、ポリアリールエーテルケトン類、ポリカーボネート類、ポリエーテルイミド類、並びにこれらのコポリマーおよび混合物がある。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

a) 唯一のポリマー成分としての、i) スルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む少なくとも 1 種の芳香族重縮合ポリマーおよび ii) 少なくとも 1 種のフェノキシポリマー；および b) ガラスを含むポリマー組成物。

## 【請求項 2】

a) スルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む少なくとも 1 種の芳香族重縮合ポリマー；b) 少なくとも 1 種のフェノキシポリマー；および c) ガラスを含むポリマー組成物であって、ポリアミドを実質的に含まないことを特徴とするポリマー組成物。

10

## 【請求項 3】

前記芳香族重縮合ポリマーが、ポリアリールエーテルスルホン、ポリアリールエーテルケトン、ポリカーボネート、ポリエーテルイミド、並びにこれらのコポリマーおよび混合物からなる群から選ばれる、請求項 1 または 2 のいずれか 1 項記載のポリマー組成物。

## 【請求項 4】

前記ポリアリールエーテルスルホンが、ポリスルホン、ポリフェニルスルホン、ポリエーテルスルホンおよびポリエーテルエーテルスルホン、並びにこれらのコポリマーおよび混合物からなる群から選ばれる、請求項 3 記載のポリマー組成物。

## 【請求項 5】

前記ポリアリールエーテルスルホンがポリスルホンである、請求項 4 記載のポリマー組成物。

20

## 【請求項 6】

前記ポリアリールエーテルケトンがポリエーテルエーテルケトンである、請求項 3 記載のポリマー組成物。

## 【請求項 7】

前記少なくとも 1 種のフェノキシポリマーがビスフェノールフェノキシポリマーである、請求項 1 ～ 6 のいずれか 1 項記載のポリマー組成物。

## 【請求項 8】

前記ビスフェノールフェノキシポリマーが、4,4'-イソプロピリデンジフェノールフェノキシポリマー、4,4'-ジヒドロキシジフェニルエーテルフェノキシポリマー、4,4'-ジヒドロキシフェニルスルホンフェノキシポリマーおよび 4,4'-ジヒドロキシベンゾフェノンフェノキシポリマーからなる群から選ばれる、請求項 7 記載のポリマー組成物。

30

## 【請求項 9】

前記ビスフェノールフェノキシポリマーが 4,4'-イソプロピリデンジフェノールフェノキシポリマーである、請求項 8 記載のポリマー組成物。

## 【請求項 10】

前記少なくとも 1 種のフェノキシポリマーが、前記ポリマー組成物中に、前記ポリマー組成物の総質量基準で約 1 質量 % ～ 約 30 質量 % の濃度で存在する、請求項 1 ～ 9 のいずれか 1 項記載のポリマー組成物。

## 【請求項 11】

前記少なくとも 1 種のフェノキシポリマーが、前記ポリマー組成物中に、前記ポリマー組成物の総質量基準で約 2 質量 % ～ 約 15 質量 % の濃度で存在する、請求項 10 記載のポリマー組成物。

40

## 【請求項 12】

ガラスが、前記ポリマー組成物中に、前記ポリマー組成物の総質量基準で約 1 質量 % ～ 約 80 質量 % の濃度で存在する、請求項 1 ～ 11 のいずれか 1 項記載のポリマー組成物。

## 【請求項 13】

ガラスが、前記ポリマー組成物中に、前記ポリマー組成物の総質量基準で約 10 質量 % ～ 約 50 質量 % の濃度で存在する、請求項 12 記載のポリマー組成物。

## 【請求項 14】

50

ガラスがガラス繊維である、請求項 1 ~ 13 のいずれか 1 項記載のポリマー組成物。

【請求項 15】

請求項 1 ~ 14 のいずれか 1 項記載のポリマー組成物から製造した熔融加工物品。

【請求項 16】

請求項 1 ~ 14 のいずれか 1 項記載のポリマー組成物から製造した射出成型物品。

【請求項 17】

請求項 1 ~ 14 のいずれか 1 項記載のポリマー組成物から製造した押出加工物品。

【請求項 18】

請求項 1 ~ 14 のいずれか 1 項記載のポリマー組成物から製造した熱成形物品。

【請求項 19】

請求項 1 ~ 14 のいずれか 1 項記載のポリマー組成物から製造したブロー成型物品。

【請求項 20】

少なくとも 1 種のフェノキシポリマーを少なくとも 1 種のスルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む芳香族重縮合ポリマーおよびガラスとブレンドする工程を含む、ガラス補強ポリマー組成物の強度特性の増大方法において、

前記フェノキシポリマーと前記芳香族重縮合ポリマーとが前記組成物の唯一のポリマー成分であることを特徴とする前記方法。

【請求項 21】

少なくとも 1 種のフェノキシポリマーを少なくとも 1 種のスルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む芳香族重縮合ポリマーおよびガラスとブレンドする工程を含む、ガラス補強ポリマー組成物の強度特性の増大方法において、

前記ポリマー組成物がポリアミドを実質的に含まないことを特徴とする前記方法。

【請求項 22】

前記ブレンド工程が、前記少なくとも 1 種のフェノキシポリマー、少なくとも 1 種の芳香族重縮合ポリマーおよびガラスを押出機内で熔融配合させることを含む、請求項 20 または 21 のいずれか 1 項記載のガラス補強ポリマー組成物の強度特性の増大方法。

【請求項 23】

前記少なくとも 1 種の芳香族重縮合ポリマーが、ポリアリールエーテルスルホン、ポリアリールエーテルケトン、ポリカーボネート、ポリエーテルイミド、並びにこれらのコポリマーおよび混合物からなる群から選ばれる、請求項 20 ~ 22 のいずれか 1 項記載のガラス補強ポリマー組成物の強度特性の増大方法。

【請求項 24】

前記ポリアリールエーテルスルホンが、ポリスルホン、ポリフェニルスルホン、ポリエーテルスルホンおよびポリエーテルエーテルスルホン、並びにこれらのコポリマーおよび混合物からなる群から選ばれる、請求項 23 記載のガラス補強ポリマー組成物の強度特性の増大方法。

【請求項 25】

前記ポリアリールエーテルスルホンがポリスルホンである、請求項 24 記載のガラス補強ポリマー組成物の強度特性の増大方法。

【請求項 26】

前記ポリアリールエーテルケトンがポリエーテルエーテルケトンである、請求項 23 記載のガラス補強ポリマー組成物の強度の増大方法。

【請求項 27】

前記少なくとも 1 種のフェノキシポリマーがビスフェノールフェノキシポリマーである、請求項 20 ~ 26 のいずれか 1 項記載のガラス補強ポリマー組成物の強度特性の増大方法。

【請求項 28】

前記ビスフェノールフェノキシポリマーが、4,4'-イソプロピリデンジフェノールフェノキシポリマー、4,4'-ジヒドロキシジフェニルエーテルフェノキシポリマー、4,4'-ジヒドロキシフェニルスルホンフェノキシポリマーおよび 4,4'-ジヒドロキシベンゾフェノン

10

20

30

40

50

フェノキシポリマーからなる群から選ばれる、請求項 27 記載のガラス補強ポリマー組成物の強度特性の増大方法。

【請求項 29】

前記ビスフェノールフェノキシポリマーが 4,4'-イソプロピリデンジフェノールフェノキシポリマーである、請求項 28 記載のガラス補強ポリマー組成物の強度特性の増大方法。

【請求項 30】

前記少なくとも 1 種のフェノキシポリマーを、前記ポリマー組成物中に、前記ポリマー組成物の総質量基準で約 1 質量 % ~ 約 30 質量 % の濃度でブレンドする、請求項 20 ~ 29 のいずれか 1 項記載のガラス補強ポリマー組成物の強度特性の増大方法。

10

【請求項 31】

前記少なくとも 1 種のフェノキシポリマーを、前記ポリマー組成物中に、前記ポリマー組成物の総質量基準で約 2 質量 % ~ 約 15 質量 % の濃度でブレンドする、請求項 30 記載のガラス補強ポリマー組成物の強度特性の増大方法。

【請求項 32】

ガラスがガラス繊維である、請求項 20 ~ 31 のいずれか 1 項記載のガラス補強ポリマー組成物の強度特性の増大方法。

【請求項 33】

少なくとも 1 種のスルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む芳香族重縮合ポリマー、少なくとも 1 種のフェノキシポリマーおよびガラスを含むポリマー組成物の使用を含む成型物品の成形方法において、

20

前記少なくとも 1 種の芳香族重縮合ポリマーと前記少なくとも 1 種のフェノキシポリマーとが前記組成物の唯一のポリマー成分であることを特徴とする前記成形方法。

【請求項 34】

少なくとも 1 種のスルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む芳香族重縮合ポリマー、少なくとも 1 種のフェノキシポリマーおよびガラスを含むポリマー組成物の使用を含む成型物品の成形方法において、

前記ポリマー組成物がポリアミドを実質的に含まないことを特徴とする前記成形方法。

【発明の詳細な説明】

【発明の詳細な説明】

30

【0001】

(仮出願との相互参照)

本出願は、2002年8月26日に提出された米国仮特許出願第60/405,745号からの優先権を主張し、該仮出願の内容全体を参考として本明細書に引用する。

【0002】

(技術分野)

本発明は、改良された引張および曲げ強度並びに伸びおよび衝撃特性のような増強された強度特性を示すガラス補強芳香族重縮合ポリマー組成物に関する。

(背景技術)

多くの用途において、昇温に耐え得且つ良好な強度、耐熱性および多くの化学環境に対する許容性を有するポリマー類が求められている。より厳しい使用を満たす一般的な方法の1つは、ガラス繊維のようなガラス補強材のポリマー組成物への添加によっている。しかしながら、これらの補強組成物の引張強度は、ガラス繊維表面とポリマー樹脂マトリックス間で良好な接着性の欠如を被ることが長い間認められている。この良好な樹脂マトリックス/ガラス繊維接着性の欠如は、補強配合物の強度、伸びおよび耐衝撃特性を、これらの特性がより適切な樹脂/ガラス接着条件下にあり得るであろうよりも低いものにして

40

【0003】

多くの芳香族重縮合ポリマー類は、高温稼働性、高強度および耐薬品性を提供する。芳香族重縮合ポリマーは、2つの異なる化合物(これら化合物の少なくとも1つが少なくと

50

も 1 個の芳香族基を含む)の縮合反応によって形成され、交互の化学基連鎖を形成するポリマーである。

スルホンポリマーは、昇温に対する長時間の暴露に耐え得る非晶質芳香族重縮合ポリマーであり、良好な強度、耐熱性および多くの化学環境に対する許容性のような魅力的な多くの特性を有している。スルホンポリマーは、特徴的なジアリールスルホン結合を含有する高性能熱可塑性エンジニアリング樹脂である。スルホンポリマーは、その高い機械的強度、耐熱性および耐酸化性、加水分解および多くの酸、塩基、溶媒類に対する耐性について知られている。商業的に重要なスルホンポリマー類としては、ポリスルホン(PSU)、ポリフェニルスルホン(PPSU)およびポリエーテルスルホン(PES)のようなポリアリールエーテルスルホン類がある。

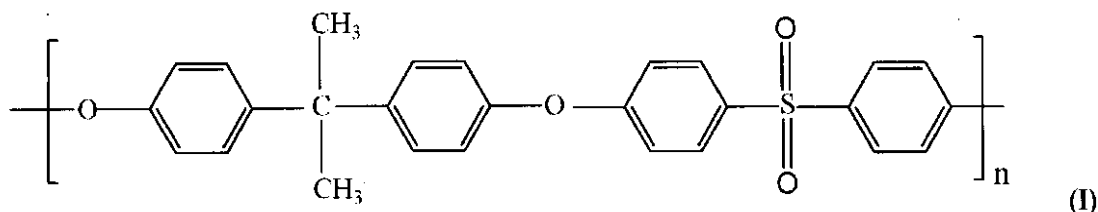
10

【 0 0 0 4 】

ポリスルホンは、周知の高温非晶質エンジニアリング熱可塑性樹脂である。ポリスルホンは、約 185 の高ガラス転移温度、約 - 100 ~ 150 の温度範囲に亘っての高い強度、剛性および強靱性を示す。完全に非晶質であるので、該ポリマーは、透明性も示し、多くの最終用途においてその有用性を付加している。ポリスルホンは、Union Carbide Corporation社により1965年に市場導入された。ポリスルホンは、下記の化学構造を有する：

【 0 0 0 5 】

【 化 1 】



20

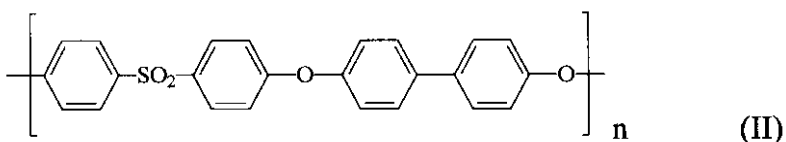
ポリスルホンは、Solvay Advanced Polymers, LLC社からUDELR<sup>®</sup>ポリスルホンとして商業的に入手可能である。PSUは、おそらく、ポリアリールエーテル類として知られている広範囲の芳香族主鎖ポリマー群の最も商業的に重要な 1 員である。これらのポリマーは、種々の方法によって製造し得る。例えば、米国特許第4,108,837号および第4,175,175号は、ポリアリールエーテル類、とりわけポリアリールエーテルスルホン類の製造を記載しており、これらの米国特許は、その全体を参考として本明細書に引用する。

30

もう 1 つの汎用性のポリアリールエーテルスルホンは、ポリフェニルスルホン(PPSU)である。PPSUは、Solvay Advanced Polymers, LLC社からRADELR<sup>®</sup> Rの商品名で商業的に入手可能である。このポリマーは、下記の式に相応し、約 220 のTgを有する：

【 0 0 0 6 】

【 化 2 】

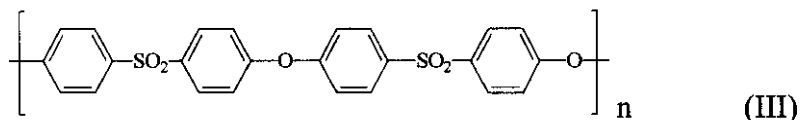


40

ポリエーテルスルホン(PES)は、幾つかの供給元から、例えば、Solvay Advanced Polymers, LLC社からRADELR<sup>®</sup> Aとして、BASF社からULTRASON<sup>®</sup> Eとして、さらにSumitomo Chemical社からSUMIKAEXCEL<sup>®</sup>として商業的に入手可能であるもう 1 つのポリアリールエーテルスルホンである。ポリエーテルスルホンは、下記の式を有し、約 220 のTgを有する：

【 0 0 0 7 】

## 【化 3】



PPSUおよびPESの製造方法は、カナダ特許第847,963号に記載されており、該カナダ特許は、その全体を参考として本明細書に引用する。

上記ポリマー類のポリマー鎖当りの平均繰返し単位数nは、構造部品として製造したときに上記ポリマー類の堅固な物理的および機械的一体性のための十分な高分子量を確保するためには、一般に30よりも大、より典型的には約40よりも大である。

Lausberg等の米国特許第4,798,855号は、ポリアリールエーテルスルホン、ポリアミド、ヒドロキシル基を有するポリマー、ゴム衝撃改良剤および補強用充填剤を含む熱可塑性成形材料を開示している。米国特許第4,798,855号の芳香族重縮合ポリマー組成物は、少なくとも2質量%のポリアミドを必要としている。

Kawabata等の米国特許第4,960,841号は、ポリフェニレンスルフィドとポリフェニレンスルフィドスルホンからなるブロックコポリマー、補強用充填剤、および任意構成成分としての更なるポリマーを開示している。米国特許第4,960,841号の組成物は、ポリフェニレンスルフィド/ポリフェニレンスルフィドスルホンブロックコポリマーを必要とする。

## 【0008】

## (発明の概要)

増強された引張および曲げ強度並びに伸びおよび衝撃特性のような増強された強度特性を有するポリマー組成物のためのガラス補強ポリマー組成物技術が求められている。改良されたポリマーマトリックス/ガラス繊維接着のためのガラス補強ポリマー技術が求められている。高温に対する長期暴露に耐え得、改良された強度特性を有するガラス補強ポリマーが求められている。さらに、ガラス補強ポリマー組成物の強度を改良する方法のためのガラス補強ポリマー組成物技術が求められている。さらに、増大した強度特性を有するガラス補強ポリマー類から形成された物品が求められている。

上記および他の要求は、唯一のポリマー成分としての少なくとも1種のスルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む芳香族重縮合ポリマー、少なくとも1種のフェノキシポリマー、およびガラスを含むポリマー組成物を提供する本発明の或る実施態様によって満たされる。

## 【0009】

また、上記早期に提示された要求は、少なくとも1種のスルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む芳香族重縮合ポリマー、少なくとも1種のフェノキシポリマーおよびガラスを含むポリマー組成物によって満たされる。該ポリマー組成物は、ポリアミドを実質的に含まない。

さらに、上記早期に提示された要求は、唯一のポリマー成分としての少なくとも1種のスルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む芳香族重縮合ポリマーおよび少なくとも1種のフェノキシポリマー、およびガラスを含むポリマー組成物から形成された溶融加工、射出成型、ブロー成型、熱成形および押出加工物品によって満たされる。

さらに、上記早期に提示された要求は、少なくとも1種のスルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む芳香族重縮合ポリマー、少なくとも1種のフェノキシポリマー、およびガラスを含むポリマー組成物から形成された溶融加工、射出成型、ブロー成型、熱成形および押出加工物品によって満たされる。該ポリマー組成物は、ポリアミドを実質的に含まない。

## 【0010】

さらに、上記早期に提示された要求は、少なくとも1種のフェノキシポリマーを少なくとも1種のスルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む芳香族重縮合ポリマーおよびガラスとブレンドする工程を含むガラス補強ポリマー組成物の強度特性の増大方法

を提供する本発明の或る実施態様によって満たされる。上記フェノキシポリマーと芳香族重縮合ポリマーは、上記組成物中の唯一のポリマー成分である。

また、上記早期に提示された要求は、少なくとも1種のフェノキシポリマーを少なくとも1種のスルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む芳香族重縮合ポリマーおよびガラスとブレンドする工程を含むポリマー組成物の強度特性の増大方法を提供する本発明の或る実施態様によって満たされる。該ポリマー組成物は、ポリアミドを実質的に含まない。

さらにまた、上記早期に提示された要求は、少なくとも1種のスルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む芳香族重縮合ポリマーおよび少なくとも1種のフェノキシポリマーおよびガラスを含むポリマー組成物を使用することを含む成型物品の成型方法を

10

#### 【0011】

さらに、上記早期に提示された要求は、少なくとも1種のスルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む芳香族重縮合ポリマーおよび少なくとも1種のフェノキシポリマーおよびガラスを含むポリマー組成物を使用することを含む成型物品の成形方法を

提供する本発明の或る実施態様によって満たされる。該ポリマー組成物は、ポリアミドを実質的に含まない。

20

本発明は、ガラス補強非晶質ポリマー組成物中のポリマーマトリックスとガラス繊維間の不十分な接着性という長年の制約に対処する。

本発明の更なる利点および局面は、本発明の各実施態様を本発明の実施に当たっての最良の形態の例示によって提示し説明する以下の詳細な説明から当業者にとって容易に明らかとなろう。説明するように、本発明は他の異なる実施態様を含み得、その幾つかの詳細は、全て本発明の精神を逸脱することなく、種々の自明な点において修正可能である。従って、以下の説明は、本質的に例示としてであり、限定としてではない。

#### 【0012】

(発明の詳細な説明)

本発明は、ガラス補強ポリマー組成物の上記強度不足に対処する。このことは、少なくとも1種のフェノキシポリマーを少量成分としてガラス補強ポリマー組成物中に混入することによって達成される。上記ポリマー組成物中の上記少なくとも1種のフェノキシポリマーの濃度は、総組成物質量の約1質量%～約30質量%である。本発明の或る実施態様においては、引張および曲げ強度においてさらに伸びおよび衝撃特性において劇的な増強が得られる上記ポリマー組成物中の上記少なくとも1種のフェノキシ樹脂の濃度は、約2質量%～約15質量%である。

30

本発明の或る実施態様においては、未変性配合物に対比して引張および曲げ強度の予想外に大きな増大が得られた。例えば、約25%および約35%の増大が、引張強度および曲げ強度のそれぞれにおいて観察された。また、耐衝撃特性の改良も全く実質的であり、殆どの場合において、フェノキシ変性組成物は、未変性同類物に対比して2倍以上の耐衝撃性値を示していた。更なる利点としては、フェノキシポリマー含有組成物の流動特性も、その未変性相応物よりも優れている。

40

本発明の或る実施態様は、当該技術の現状において可能であるよりも高い引張および曲げ強度特性を示すガラス繊維補強ポリアリールエーテルスルホン組成物に関する。諸機械的特性は、約1質量%～約30質量%のフェノキシポリマーをガラス繊維補強ポリアリールエーテルスルホン配合物中に混入することによって増強される。本発明の或る実施態様においては、約2質量%～約15質量%のフェノキシポリマーをポリマー組成物中に混入する。

#### 【0013】

本発明の組成物は、押出機、好ましくはツインスクリュウ押出機を使用する通常の補強ポリマー組成物溶融配合法によって製造する。上記フェノキシポリマー変性ガラス補強配

50

合物は、本発明に従って変性していない配合物と比較して、高い引張強度および伸び、破壊に対する高い曲げ強度および曲げ歪み、並びに高い衝撃特性を示す。また、本発明からの配合物の溶融粘度も未変性材料の溶融粘度よりも低く、それによって、より大きな加工容易性並びに加工および部材デザインにおけるより広範な許容範囲を提供する。

本発明の或る実施態様においては、使用するフェノキシポリマーは、ビスフェノールAのようなビスフェノール、またはヒドロキノンおよびエピクロロヒドリンのような他の芳香族ジヒドロキシ化合物から製造する高分子量熱可塑性ポリマーである。フェノキシポリマー類の基本的化学構造は、エポキシポリマー類の化学構造と同様である。しかしながら、フェノキシポリマー類は、幾つかの重要な特性においてエポキシ類と異なる別個の特異的なポリマー群である：

1. フェノキシポリマーは、強靱で延性のある熱可塑性物である。フェノキシポリマーの平均分子量は、重合時に架橋する通常のエポキシ類よりも大きい。

2. フェノキシポリマーは、末端高反応性エポキシ基を有してなく、長期の貯蔵安定性を有する熱安定性物質である。

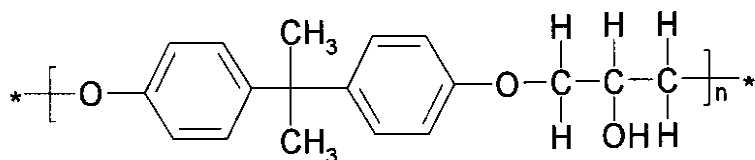
3. フェノキシポリマーは、更なる化学変換なしで使用し得る。フェノキシポリマーは、触媒、キュアリング剤または硬化剤を必要とせずにより有用な生成物であるが、エポキシポリマーは、有用であるためには触媒、キュアリング剤または硬化剤を必要とする。

#### 【0014】

本発明の或る実施態様において使用するフェノキシポリマーは、下記に例示する4,4'-イソプロピリデンジフェノール(ビスフェノールA)フェノキシ繰返し構造を含む：

#### 【0015】

#### 【化4】



(IV)

その末端構造は、水素原子または適切な末端封鎖基によって終端する。ビスフェノールAフェノキシポリマーは、InChem Corporation社からPHENOXY PKFE<sup>TM</sup>として商業的に入手可能である。

#### 【0016】

本発明は、例示した実施態様に限定されない。或る実施態様においては、ビスフェノールA以外のビスフェノール系フェノキシポリマーも使用し得る。例えば、本発明の範囲に属するフェノキシポリマーを調製するのに使用し得る他のビスフェノール化合物としては、ジヒドロキシジフェニル、ビス-(ヒドロキシフェニル)アルカン類、ビス-(ヒドロキシフェニル)シクロアルカン類、ビス-(ヒドロキシフェニル)スルフィド、ビス-(ヒドロキシフェニル)ケトン、ビス-(ヒドロキシフェニル)エーテル、ビス-(ヒドロキシフェニル)スルホキシド、ビス-(ヒドロキシフェニル)スルホンおよび、'-ビス-(ヒドロキシフェニル)ジイソプロピルベンゼン、並びに環上でのアルキルまたはハロゲン置換から得られるそれらの誘導体がある。適切なビスフェノール類の特定の例としては、4,4'-ジヒドロキシジフェニルエーテル、4,4'-ジヒドロキシフェニルスルホン、4,4'-ジヒドロキシベンゾフェノン、2,4-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-2-メチルブタン、1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-p-ジイソプロピルベンゼン、2,2-ビス-(3-メチル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2,2-ビス-(3-クロロ-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)メタン、2,2-ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)スルホン、2,4-ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)-2-メルカプタン、1,1-ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、'-ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)-p-ジイソプロピルベンゼン、2,2-ビス-(3,5-ジクロロ-

10

20

30

40

50



4-ヒドロキシフェニル)プロパンおよび2,2-ビス-(3,5-ジブromo-4-ヒドロキシフェニル)プロパンがある。

本発明の或る実施態様は、4,4'-イソプロピリデンジフェノールフェノキシポリマー、4,4'-ジヒドロキシジフェニルエーテルフェノキシポリマー、4,4'-ジヒドロキシフェニルスルホンフェノキシポリマーおよび4,4'-ジヒドロキシベンゾフェノンフェノキシポリマーを含む。

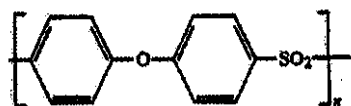
【0017】

上記芳香族重縮合ポリマーは、本発明の或る実施態様に従うスルホンポリマー、コポリマー、またはスルホンポリマーのブレンドであり得る。本発明の或る実施態様において使用するスルホンポリマーは、アリレン単位がエーテルおよびスルホン結合と一緒に不規則にまたは規則的に存在するポリアリレン化合物として定義されるポリアリールエーテルスルホンである。本発明の範囲内のポリアリールエーテルスルホンの例は、下記の構造式(1)～(16)を含み、nが少なくとも10の整数であるポリマーである：

10

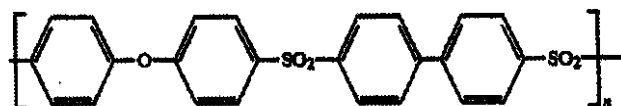
【0018】

【化5】



(1)

20

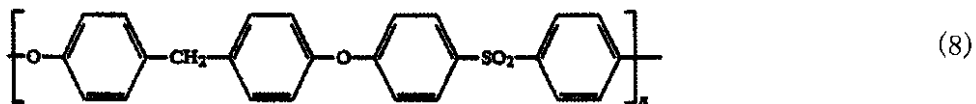
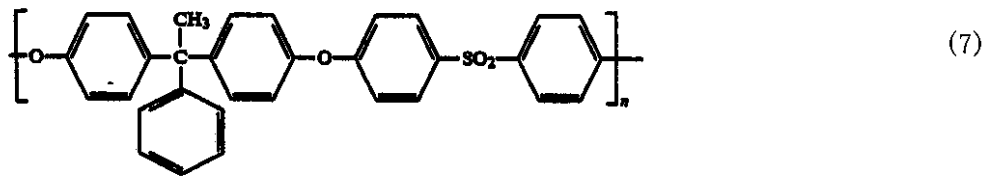
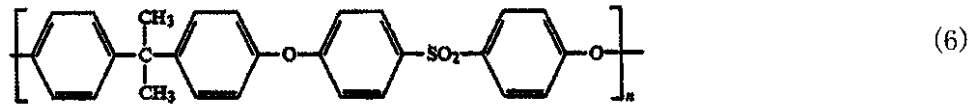
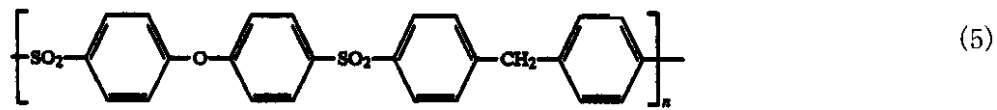
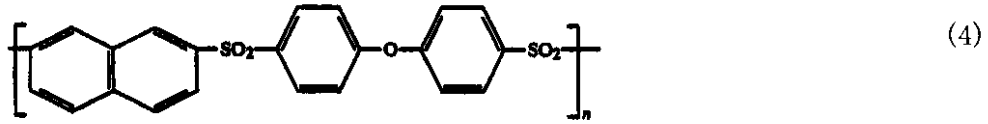
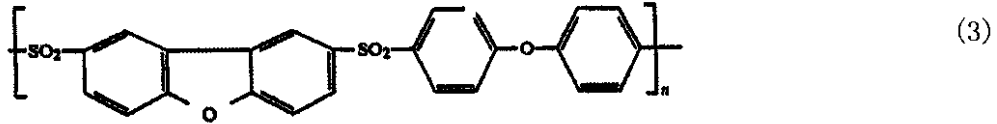


(2)

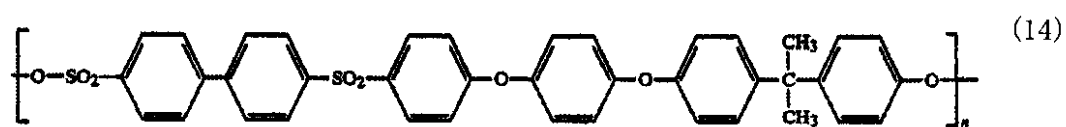
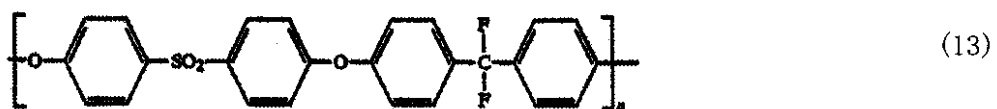
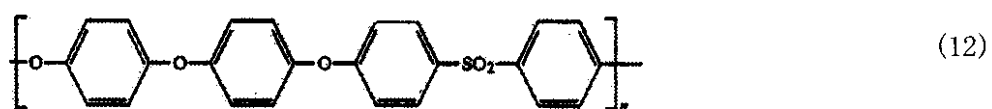
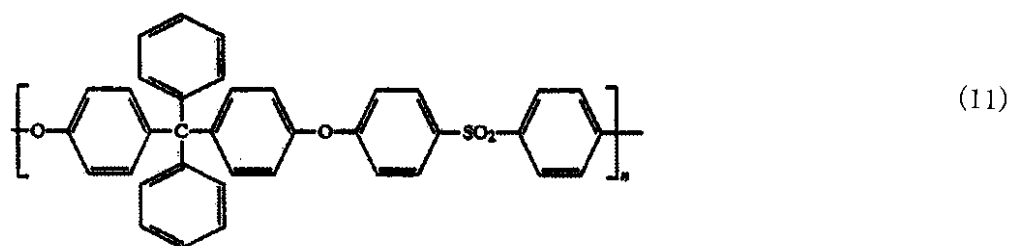
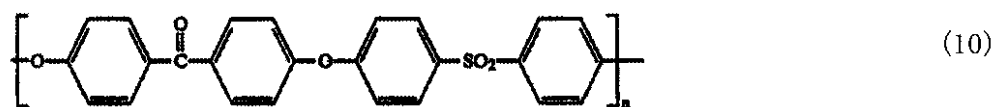
30

【0019】

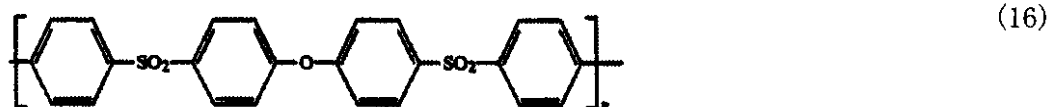
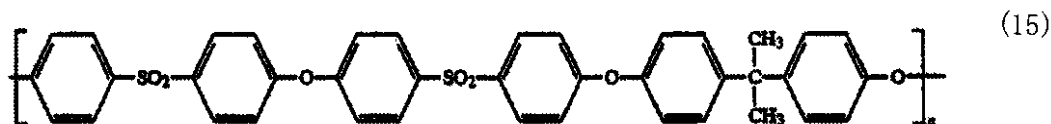
【化 6】



【化 7】



## 【化 8】



10

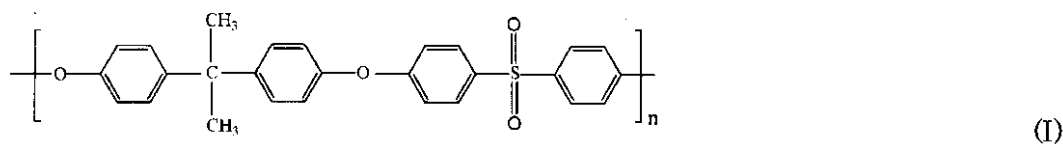
## 【 0 0 2 2 】

本発明の或る実施態様においては、上記ポリアリーテルエーテルスルホン、好ましくは、ポリスルホン、ポリフェニルスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルエーテルスルホンまたはこれらのコポリマーおよび混合物を含む。本発明の或る実施態様においては、上記ポリアリーテルエーテルスルホンは、ポリスルホンである。ポリスルホン、ポリフェニルスルホン、ポリエーテルスルホンおよびポリエーテルエーテルスルホンの構造的繰返し単位を以下に列挙する：

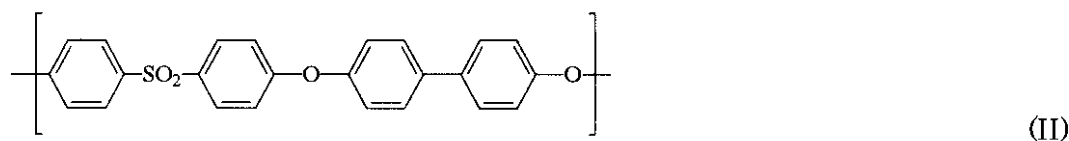
## 【 0 0 2 3 】

## 【化 9】

ポリスルホン(PSU)

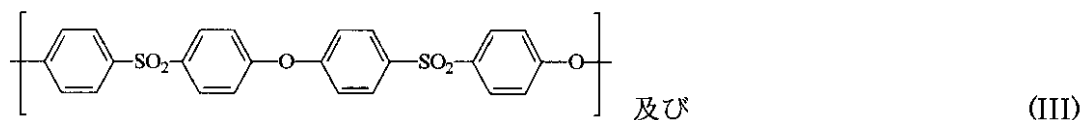


ポリフェニルスルホン(PPSU)

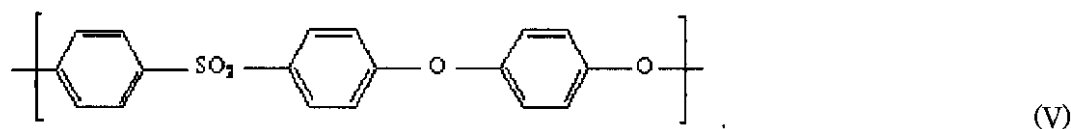


30

ポリエーテルスルホン(PES)



ポリエーテルエーテルスルホン(PEES)



40

本発明において使用するのに適するある種のコポリマーとしては、4,4'-ジハロジフェニルスルホン(典型的には、4,4'-ジクロロジフェニルスルホン)、4,4'-ジヒドロキシジフェニルスルホンおよびヒドロキノンの重縮合によって形成されたポリエーテルスルホン/ポリエーテルエーテルスルホンコポリマーがある。

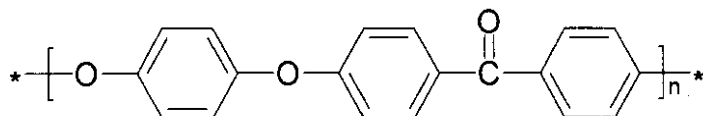
## 【 0 0 2 4 】

50

ポリアリールエーテルスルホンに加えて、ポリアリールエーテルケトン類、ポリカーボネート(PC)類およびポリエーテルイミド(PEI)類、並びにこれらのコポリマーおよび混合物のような高温に対する長期暴露に耐え得る他の芳香族重縮合ポリマー類も本発明の範囲に属する。本発明の範囲に属するポリアリールエーテルケトンの例は、ポリエーテルエーテルケトン(PEEK)である。PEEKは、下記の構造単位を形成するポリマーを含む：

【0025】

【化10】



10

(VI)

PEEKは、Victrex社からVICTREX<sup>®</sup>として商業的に入手可能である。

本発明の或る実施態様は、ポリエーテルイミドまたはポリカーボネートを含むポリマー組成物を含み得る。ポリエーテルイミドは、米国特許第4,960,841号、第4,017,511号、第3,887,588号および第3,833,544号に記載されているようにして、芳香族ビス(エーテル酸無水物)を有機ジアミンと反応させることによって得ることができ、これらの米国特許はその全体を参考として本明細書に引用する。ポリエーテルイミド類としては、4,4'-イソプロピリデンジフェノール二無水物とメタ-またはパラ-フェニレンジアミンとの重縮合により調製したポリマーがある。他のポリエーテルイミドとしては、4,4'-イソプロピリデンジフェノール二無水物とメタ-またはパラ-フェニレンジアミン以外の芳香族ジアミン類との重縮合生成物がある。ポリエーテルイミド類は、General Electric社からULTEM<sup>®</sup>として商業的に入手可能である。

20

【0026】

本発明の或る実施態様は、上述のビスフェノールをベースとするポリカーボネートを含む。本発明の或る実施態様においては、ポリカーボネートコポリマーは、4,4'-イソプロピリデンジフェノールと上述のもう1つのビスフェノール類とのコポリマーである。本発明或る実施態様においては、ポリカーボネートは、4,4'-イソプロピリデンジフェノールまたは2,2-ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)プロパンのみをベースとする。ポリカーボネート類は、General Electric社からLEXAN<sup>®</sup>として商業的に入手可能である。

30

本発明の或る実施態様に従うポリマー組成物は、ポリアミドを実質的に含まない。本発明の或る実施態様は、ポリアミドを含有しない。本発明の或る実施態様は、ポリフェニレンスルフィドを含むブロックコポリマーを実質的に含まない。本発明の或る実施態様は、ポリフェニレンスルフィドブロックを含むブロックコポリマーを含有しない。本発明の或る実施態様においては、スルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む芳香族重縮合ポリマーとフェノキシポリマーがポリマー組成物中の唯一のポリマー成分である。

本発明の或る実施態様におけるガラスの濃度は、ポリマー組成物の総質量基準で約1質量%～約80質量%の範囲である。本発明の或る実施態様においては、ポリマー組成物は、約10質量%～約50質量%のガラスを含む。

40

本発明の或る実施態様においては、ガラスは、ガラス繊維である。ガラス繊維は、連続フィラメント、切断または粉碎形で商業的に入手可能である。任意のこれら形状のガラス繊維を本発明の実施において使用し得る。本発明の各実施態様において適切なガラス繊維は、Vetrotex CertainTeed社から入手し得るCERTAINTEED<sup>®</sup> 910ファイバークラスである。

【0027】

本発明を幾つかの実施例によりさらに説明する。これらの実施例は、本発明の例示であり、特許請求する本発明の範囲を限定するものではない。

対照1および実施例1および2

フェノキシポリマー添加剤を含む2つのポリスルホン組成物(実施例1および2)とフェノキシポリマー添加剤を含まないポリスルホン組成物(対照1)の各組成を表1に示してい

50

る。UDELR<sup>®</sup>、即ち、本開示における各実施例、対照および比較例の組成物において使用するポリスルホンは、343 の温度で2.16kgの重りを使用してASTM法D1238により測定したとき、約30 dg/分の熔融流動性を有する。他の熔融流動値を有するポリスルホンも本発明の実施において等しく有効に使用し得る。ポリスルホンは、多くの供給元から、上述の方法および条件で測定したときに約2 dg/分～約40 dg/分の熔融流動範囲で商業的に入手可能である。

【0028】

【表1】

実施例1、2および対照1の組成物

成分	対照1	実施例1	実施例2
UDELR <sup>®</sup> ポリスルホン (質量%)	62.0	59.5	57.0
CERTAINTEED <sup>®</sup> 910切断ガラス繊維 (質量%)	34.9	34.9	34.9
KADOX <sup>®</sup> 911酸化亜鉛 (質量%)	0.9	0.9	0.9
POLYMIST <sup>®</sup> 5A PTFE粉末 (質量%)	2.0	2.0	2.0
RAVEN <sup>®</sup> 3500カーボンプラック (質量%)	0.2	0.2	0.2
PHENOXY PKFE <sup>™</sup> ビスフェノールAフェノキシポリマー (質量%)	0	2.5	5.0
合計	100.0	100.0	100.0

10

20

【0029】

表1の各組成物は、切断ガラス繊維を除く成分を乾燥混合し次いでこれらの成分をZSK-40 Werner-Pfleiderer 12本パレルツインスクリュウ配合用押出機のホッパーに重力により供給することによって調製した。ガラス繊維は、重力供給機を使用してパレル7において側面供給し、適切な速度で計量して34.9質量%の目標ガラス繊維負荷量を得た。配合は、330～345 のパレル温度条件、345 のダイ温度および300 RPMのスクリュウ速度を使用して実施した。各々の配合物は、102.1 kg/hr (225 lb/hr)の総処理量速度で調製した。押出機の真空換気をパレル6において行い、上昇配合温度で発生する水分および他の痕跡量揮発物を除去した。押出機に各々の孔が直径で3 mmである4孔ダイをはめ込み、形成させた熔融ストランドを水浴中で冷却し、次いで、ペレタイザー内で切断して良品質のペレットを得た。その後、対照および実施例1、2の各々からの各ペレットを約150 で操作する乾燥送風炉内で1夜乾燥させた。その後、各配合物の乾燥樹脂ペレットを、125トンBattenfeld射出成型装置を使用し、約360 の熔融物温度および約125 のモールド温度を使用して射出成型して3.175 mm (0.125インチ)厚のASTM試験部片を作成した。ASTM試験部片は、タイプ1引張棒、曲げ/アイゾッド/HDT棒、および10.16 cm×10.16 cm (4インチ×4インチ)プラークも含んでいた。本発明の各種ポリマー組成物全ての物理的および機械的特性を明らかにするのに使用した試験方法を表2に示す。

30

40

【0030】

50

【表 2】

機械特性評価において使用した試験方法

特性	単位	方法
引張強度	kPa (psi)	D638
引張弾性率	MPa (Ksi)	D638
引張伸び	%	D638
曲げ弾性率	MPa (Ksi)	D790
破壊時曲げ強度	kPa (psi)	D790
破壊時曲げ歪み(伸び)	%	D790
アイゾッド、ノッチ付き	Nm/cm (ft-lb/in)	D256
アイゾッド、ノッチなし	Nm/cm (ft-lb/in)	D256
Dynatup計測衝撃 (最高荷重)	kg (lb)	D3763
Dynatup計測衝撃 (総エネルギー)	Nm (ft-lb)	D3763
加熱たわみ温度(HDT) [1,820.2 kPa (264 psi)]	°C	D648

10

## 【0031】

これらの配合物における機械特性試験からの結果を表3に示す。とりわけ興味あるのは、各種材料の引張および曲げ強度値、伸び、および衝撃特性であった。

## 【0032】

20

【表 3】

対照1と比較した実施例1および2の機械特性

	対照 1	実施例 1	実施例 3
配合物中で使用したフェノキシポリマーの質量%	0	2.5	5.0
特性			
引張強度 [kPa (psi)]	108,937 (15,800)	126,174 (18,300)	133,069 (19,300)
引張弾性率 [MPa (Ksi)]	10,135 (1,470)	10,549 (1,530)	10,480 (1,520)
破壊時引張伸び (%)	1.5	1.8	1.9
曲げ強度 [kPa (psi)]	142,032 (20,600)	179,953 (26,100)	192,364 (27,900)
曲げ弾性率 [MPa (Ksi)]	9,515 (1,380)	9,515 (1,380)	9,997 (1,450)
破壊時曲げ歪み (%)	1.7	2.1	2.2
Dynatup計測衝撃 (最高荷重) [kg (lb)]	50.8 (112)	105.2 (232)	111.1 (245)
Dynatup計測衝撃 (総エネルギー) [Nm (ft-lb)]	2.03 (1.5)	5.56 (4.1)	6.10 (4.5)
ノッチ付きアイゾッド [Nm/cm (ft-lb/in)]	0.59 (1.1)	0.91 (1.7)	0.91 (1.7)
ノッチなしアイゾッド [Nm/cm (ft-lb/in)]	2.08 (3.9)	6.19 (11.6)	5.76 (10.8)
加熱たわみ温度 (°C)	182	177	168

30

40

## 【0033】

表3の機械特性試験結果から理解し得るように、対照と比較したときの本発明に従って製造した各配合物においては、引張および曲げ特性並びに衝撃特性において実質的に改良

50

されている。引張強度における約22%と曲げ強度における35%の増大が、5%ビスフェノールAフェノキシポリマーのガラス充填ポリスルホン組成物への混入によって観察されている。また、伸びの増大は、強度の増大も伴い、ポリマー組成物の延性および強靱性の増大を反映している。驚くべきことに、有意の改良は、実施例2のデータが例証しているように、2.5質量%ほどの低いフェノキシ添加レベルにおいても見られる。衝撃特性の改良はまして劇的であり、実施例1および2の衝撃特性は、使用した各種耐衝撃性測度法において、対照1の衝撃特性の2~3倍である。さらにまた、顕著な耐衝撃性の改良は、驚くべきことに、実施例1によって示されているように僅か2.5質量%のフェノキシポリマー添加剤によっても実現している。剛性の尺度である材料の弾性率はフェノキシポリマーの添加によって影響を受けていないが、加熱たわみ温度は、ビスフェノールAフェノキシポリマーの約100 の相対的に低いガラス転移温度故に、僅かに低下している。

10

#### 【0034】

##### 実施例3および比較例1

ガラス補強ポリスルホン組成物へのビスフェノールAフェノキシポリマーの添加を、表4に示すように、ポリフェニレンオキサイド(PP0)の添加と対比する。各々が10質量%のPHENOXY PKFE<sup>TM</sup> (実施例3)または10質量%のNORYL<sup>R</sup> PX-1390 (比較例1)のいずれかを含有する2つの同様な組成物を調製した。NORYL<sup>R</sup> PX-1390は、主要量のPP0を含むPP0/ポリスチレンブレンドであり、General Electric社から商業的に入手可能である。これら2つの配合物を、25 mm Berstorffツインスクリュウ押出機を使用して配合した。2つの配合物の組成は表4に示しており、また、詳細な配合条件は表5に示している。配合後、2つの組成物を、対照1および実施例1、2において使用した手順と同様な手順に従い、成型し試験した。これら2つの配合物における機械特性試験データは、表6に示している。

20

#### 【0035】

##### 【表4】

実施例3と比較例1の組成

成分	実施例3	比較例1
UDEL <sup>R</sup> ポリスルホン (質量%)	59.75	59.75
CERTAINTEED <sup>R</sup> 910切断ガラス繊維 (質量%)	30.0	30.0
KADOX <sup>R</sup> 911酸化亜鉛 (質量%)	0.25	0.25
PHENOXY PKFE <sup>TM</sup> ビスフェノールAフェノキシポリマー (質量%)	10.0	---
NORYL <sup>R</sup> PX-1390ポリフェニレンオキサイド/ポリスチレン (質量%)	---	10.0
合計	100.0	100.0

30

40

50



## 【 0 0 3 6 】

## 【 表 5 】

実施例 3 と比較例 1 の配合条件

	実施例 3		比較例 3	
配合物中で使用したフェノキシポリマーの質量%	10.0		0	
	設定値	実際値	設定値	実際値
ゾーン 1 温度 (°C)	310	305	310	307
ゾーン 2 温度 (°C)	345	342	345	343
ゾーン 3 温度 (°C)	350	350	350	343
ゾーン 4 温度 (°C)	355	351	355	351
ゾーン 5 温度 (°C)	360	361	360	362
ゾーン 6 温度 (°C)	365	368	365	367
ゾーン 7 温度 (°C)	365	367	365	367
ダイ温度 (°C)	370	370	370	370
溶融物温度 (°C)	---	363	---	365
ダイ溶融物圧 [kPa (psi)]	---	2896 (420)	---	2275 (330)
スクリー速度 (RPM)	200	200	200	200
Amp 絞り	---	7	---	8
主供給 [kg/hr (lb/hr)]	7.94 (17.5)	7.94 (17.5)	9.53 (21.0)	9.53 (21.0)
ガラス繊維供給 [kg/hr (lb/hr)]	3.40 (7.5)	3.40 (7.5)	4.08 (9.0)	4.08 (9.0)
真空度 [Pa (in Hg)]	---	77,887 (23)	---	77,887 (23)

10

20

## 【 0 0 3 7 】

30

実施例 3 および比較例 1 の組成物における各機械特性を表 2 に概略した方法に従い試験した。2 つの組成物の結果を表 6 に要約し比較している。表 6 において理解し得るように、フェノキシポリマーを含む組成物は、より高い引張強度、引張伸び、曲げ強度。曲げ歪み、ノッチ付きアイゾッド衝撃およびノッチなしアイゾッド衝撃を有している。

40

50

## 【 0 0 3 8 】

## 【表 6】

実施例 3 と比較例 1 の組成物の機械特性

	実施例 3	比較例 1
配合物中で使用したフェノキシポリマーの質量 %	10.0	0
特性		
引張強度 [kPa (psi)]	139,964 (20,300)	109,627 (15,900)
引張弾性率 [MPa (Ksi)]	9,653 (1,400)	9,928 (1,440)
破壊時引張伸び (%)	2.2	1.7
曲げ強度 [kPa (psi)]	188,916 (27,400)	142,032 (20,600)
曲げ弾性率 [MPa (Ksi)]	8,756 (1,270)	9,101 (1,320)
破壊時曲げ歪み (%)	2.3	1.7
ノッチ付きアイゾッド [Nm/cm (ft-lb/in)]	0.85 (1.6)	0.43 (0.8)
ノッチなしアイゾッド [Nm/cm (ft-lb/in)]	6.51 (12.2)	2.78 (5.2)
加熱たわみ温度 (°C)	161	178

10

20

## 【 0 0 3 9 】

## 実施例 4 および比較例 2

実施例 3 の組成物と同様な組成物を本発明のもう 1 つの実施態様に従って調製した。この組成物は表 7 に示しており、これを実施例 1 および 2 の組成物を調製するのに使用した手順と同様な手順を使用して調製した。対照 2 は、Solvey Advanced Polymers 社から UDEL<sup>®</sup> GF-130 NT として商業的に入手可能な 30% ガラス補強 UDEL<sup>®</sup> ポリスルホン樹脂であり、

本発明組成物の従来技術を上回る性能改善のさらなる例証として、参照として本実施例に含ませている。実施例 4 の組成物の機械特性は、表 8 に示し、フェノキシポリマーを使用しないで調製した商業的に入手可能なガラス補強ポリスルホンの機械特性と対比させている。

30

## 【 0 0 4 0 】

## 【表 7】

実施例 4 の組成

成分	質量 %
UDEL <sup>®</sup> ポリスルホン	57.7
CERTAINTED <sup>®</sup> 910 切断ガラス繊維	29.1
KADOX <sup>®</sup> 911 酸化亜鉛	0.24
PHENOXY PKFE <sup>™</sup> ビスフェノール A フェノキシポリマー	10.0
カーボンブラック濃縮物*	2.96

40

\* カーボンブラック濃縮物は、13.7 質量 % の RAVEN<sup>®</sup> 3500 カーボンブラックを事前配合したポリスルホンである。

50

## 【 0 0 4 1 】

## 【表 8】

実施例 4 および対照 2 の組成物の機械特性

	実施例 4	対照 2
配合物中で使用したフェノキシポリマーの質量%	10.0	0
特性		
引張強度 [kPa (psi)]	141,343 (20,500)	112,385 (16,300)
引張弾性率 [MPa (Ksi)]	9,239 (1,340)	9,722 (1,410)
破壊時引張伸び (%)	2.6	1.7
曲げ強度 [kPa (psi)]	199,258 (28,900)	145,479 (21,100)
曲げ弾性率 [MPa (Ksi)]	8,618 (1,250)	8,618 (1,250)
破壊時曲げ歪み (%)	2.6	1.8
ノッチ付きアイゾッド [Nm/cm (ft-lb/in)]	0.96 (1.8)	0.48 (0.9)
ノッチなしアイゾッド [Nm/cm (ft-lb/in)]	7.21 (13.5)	3.74 (7)
加熱たわみ温度 (°C)	163	180

10

20

## 【 0 0 4 2 】

未変性30%ガラス繊維補強UDELR<sup>®</sup> GF-130 NTと実施例 3 間の各特性の比較は、フェノキシポリマーの添加により得られる引張強度、曲げ強度およびアイゾッド衝撃特性の劇的な改良を例証している。上述の実施例全てからの特性データ比較は、本発明に従って製造した組成物が当該技術の現状を上回る有意に改良された強度、伸びおよび耐衝撃性性能を再現的に且つ一貫して提供していることを明らかに例証している。

## 【 0 0 4 3 】

本発明の組成物は、必要に応じて、補強用充填剤、顔料、添加剤等を含み得る。補強用媒体として機能し得る代表的な繊維類としては、アスベスト、グラファイト質炭素繊維、非晶質炭素繊維、合成高分子繊維、アルミニウム繊維、ケイ酸アルミニウム繊維、アルミニウム繊維のような金属類の酸化物、チタン繊維、マグネシウム繊維、ウォラストナイト、ロックウール繊維、スチール繊維、タンゲステン繊維、炭化ケイ素繊維、アルミナ繊維、ホウ素繊維等がある。代表的な充填剤および他の材料としては、ガラス、ケイ酸カルシウム、シリカ、カオリンのようなクレー類、タルク、チョーク、マイカ、チタン酸カリウム、および他の無機充填剤；カーボンブラック、二酸化チタン、Zinc Corporation of America社からKADOX<sup>®</sup> 911として入手し得る酸化亜鉛、酸化鉄、カドミウムレッド、紺青のような顔料類；および、アルミナ三水和物、炭酸ナトリウムアルミニウム、バリウム・フェライトのような他の添加剤等がある。適切な高分子繊維としては、例えば、ポリ(ベンゾチアゾール)、ポリ(ベンズイミダゾール)、ポリアリーレート類、ポリ(ベンズオキサゾール)、ポリアリールエーテル類等のような高温エンジニアリングポリマー類から形成された繊維類があり、さらに、そのような繊維の2種以上を含む混合物もあり得る。本発明の組成物は、熱安定剤、紫外線安定剤、酸化安定剤、可塑剤、潤滑剤、およびポリテトラフルオロエチレン(PTFE)粉末のようなモールド剥離剤等のような当該技術において通常使用される更なる添加剤をさらに含み得る。適切なPTFE粉末は、Solvey Solaxis社から入手し得るPOLYMIST<sup>®</sup> 5Aである。適切なカーボンブラックは、Columbian Chemicals社から入手し得るRAVEN<sup>®</sup> 3500カーボンブラックである。他の商業的に入手可能なカーボンブラックとしては、Chevron Phillips Chemical社から入手し得るSHAWINIGAN BLACK<sup>®</sup>；並びに

30

40

50

いずれもCabot Corporation社から入手し得るBLACK PEARLS<sup>R</sup>、MONARCH<sup>R</sup>およびREGAL<sup>R</sup>のカーボンブラック類がある。そのような添加剤の量は、押出技術における通常の実施の範囲内とみなされる組成物の総質量基準でのそのような追加の添加剤の約50質量%まででもって、意図する特定の用途において決定する。

本発明の更なる実施態様としては、本明細書において説明した任意のポリマー組成物から製造した溶融加工、射出成型、押出加工、熱成形またはブロー成型物品がある。

【0044】

本開示において例示した各実施態様は、例示目的である。

これらの実施態様は、特許請求の範囲を限定するものと解釈すべきでない。当業者にとって明らかなように、本開示は、本明細書において詳細には例示していない多種多様な実施態様に及ぶものとする。

【手続補正書】

【提出日】平成17年5月17日(2005.5.17)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

a) 唯一のポリマー成分としての、i) スルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む少なくとも1種の芳香族重縮合ポリマーおよびii) 少なくとも1種のフェノキシポリマー；およびb) ガラスを含むポリマー組成物。

【請求項2】

a) スルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む少なくとも1種の芳香族重縮合ポリマー；b) 少なくとも1種のフェノキシポリマー；およびc) ガラスを含むポリマー組成物であって、ポリアミドを実質的に含まないことを特徴とするポリマー組成物。

【請求項3】

前記芳香族重縮合ポリマーが、ポリアリールエーテルスルホン、ポリアリールエーテルケトン、ポリカーボネート、ポリエーテルイミド、並びにこれらのコポリマーおよび混合物からなる群から選ばれる、請求項1または2のいずれか1項記載のポリマー組成物。

【請求項4】

前記ポリアリールエーテルスルホンが、ポリスルホン、ポリフェニルスルホン、ポリエーテルスルホンおよびポリエーテルエーテルスルホン、並びにこれらのコポリマーおよび混合物からなる群から選ばれる、請求項3記載のポリマー組成物。

【請求項5】

前記ポリアリールエーテルスルホンがポリスルホンである、請求項4記載のポリマー組成物。

【請求項6】

前記少なくとも1種のフェノキシポリマーがビスフェノールフェノキシポリマーである、請求項1～5のいずれか1項記載のポリマー組成物。

【請求項7】

前記ビスフェノールフェノキシポリマーが、4,4'-イソプロピリデンジフェノールフェノキシポリマーである、請求項6記載のポリマー組成物。

【請求項8】

前記少なくとも1種のフェノキシポリマーが、前記ポリマー組成物中に、前記ポリマー組成物の総質量基準で約2質量%～約15質量%の濃度で存在する、請求項1～7のいずれか1項記載のポリマー組成物。

【請求項9】

ガラスが、前記ポリマー組成物中に、前記ポリマー組成物の総質量基準で約10質量%～約50質量%の濃度で存在する、請求項1～8のいずれか1項記載のポリマー組成物。

【請求項10】

ガラスがガラス繊維である、請求項1～9のいずれか1項記載のポリマー組成物。

【請求項11】

射出成型物品、押出加工物品、熱成形物品及びブロー成型物品から選ばれる、請求項1～10のいずれか1項記載のポリマー組成物から製造した溶融加工物品。

【請求項12】

少なくとも1種のフェノキシポリマーを少なくとも1種のスルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む芳香族重縮合ポリマーおよびガラスとブレンドする工程を含む、ガラス補強ポリマー組成物の強度特性の増大方法において、

前記フェノキシポリマーと前記芳香族重縮合ポリマーとが前記組成物の唯一のポリマー成分であることを特徴とする前記方法。

【請求項13】

少なくとも1種のフェノキシポリマーを少なくとも1種のスルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む芳香族重縮合ポリマーおよびガラスとブレンドする工程を含む、ガラス補強ポリマー組成物の強度特性の増大方法において、

前記ポリマー組成物がポリアミドを実質的に含まないことを特徴とする前記方法。

【請求項14】

前記ブレンド工程が、前記少なくとも1種のフェノキシポリマー、少なくとも1種の芳香族重縮合ポリマーおよびガラスを押出機内で溶融配合させることを含む、請求項12または13に記載のガラス補強ポリマー組成物の強度特性の増大方法。

【請求項15】

前記少なくとも1種の芳香族重縮合ポリマーがポリスルホン、ポリフェニルスルホン、ポリエーテルスルホンおよびポリエーテルエーテルスルホン、並びにこれらのコポリマーおよび混合物からなる群から選ばれるポリアリーールエーテルスルホンである、請求項12～14のいずれか1項記載のガラス補強ポリマー組成物の強度特性の増大方法。

【請求項16】

少なくとも1種のスルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む芳香族重縮合ポリマー、少なくとも1種のフェノキシポリマーおよびガラスを含むポリマー組成物の使用を含む成型物品の成形方法において、

前記少なくとも1種の芳香族重縮合ポリマーと前記少なくとも1種のフェノキシポリマーとが前記組成物の唯一のポリマー成分であることを特徴とする前記成形方法。

【請求項17】

少なくとも1種のスルホン、ケトン、イミドまたはカーボネート基を含む芳香族重縮合ポリマー、少なくとも1種のフェノキシポリマーおよびガラスを含むポリマー組成物の使用を含む成型物品の成形方法において、

前記ポリマー組成物がポリアミドを実質的に含まないことを特徴とする前記成形方法。

## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

		Int Pub No PCT/JP 03/26497
<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> IPC 7 C08L81/06 C08K3/40 C08L69/00 C08L71/00		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 C08L C08K		
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 practical, search terms used) EPO-Internal, WPI Data, PAJ, CHEM ABS Data		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 4 798 855 A (LAUSBERG DIETRICH ET AL) 17 January 1989 (1989-01-17) cited in the application  column 8, line 3 - line 15 column 7, line 50 - line 58; examples 6-14; table 1 column 9, line 26 - line 56	1, 3-5, 7-20, 22-25, 27-33
X	US 5 344 868 A (ABRAMOWICZ MARK A ET AL) 6 September 1994 (1994-09-06)  claims 1-3, 7, 13; examples; tables --- --/--	1-3, 7-23, 27-34
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in 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 doubt 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 5 December 2003		Date of mailing of the international search report 22/12/2003
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5618 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer Lohner, P

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inter	plication No
PC	3/26497

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DATABASE WPI Section Ch, Week 199231 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class A28, AN 1992-256554 XP002264025 -& JP 04 175374 A (DAINIPPON INK & CHEM KK), 23 June 1992 (1992-06-23) abstract -----	1-34

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inte	application No
PCT/JP	JP3/26497

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 4798855	A	17-01-1989	DE 3617501 A1	26-11-1987
			DE 3772848 D1	17-10-1991
			EP 0247516 A1	02-12-1987
			JP 2582777 B2	19-02-1997
			JP 62280256 A	05-12-1987
US 5344868	A	06-09-1994	CA 2119091 A1	20-09-1994
			JP 6287399 A	11-10-1994
JP 4175374	A	23-06-1992	NONE	



## フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>7</sup> F I テーマコード(参考)  
C 0 8 L 79/08 C 0 8 L 79/08 B

(81)指定国 AP(GH,GM,KE,LS,MW,MZ,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM),EP(AT, BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HU,IE,IT,LU,MC,NL,PT,RO,SE,SI,SK,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA, GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ, EC,EE,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KP,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,MA,MD,MG,MK,MN,M W,MX,MZ,NO,NZ,OM,PH,PL,PT,RO,RU,SC,SD,SE,SG,SK,SL,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,YU,ZA,ZM,ZW

(74)代理人 100114007

弁理士 平山 孝二

(72)発明者 エル ヒブリ ジャマル エム

アメリカ合衆国 ジョージア州 3 0 3 2 8 アトランタ ロズウェル ロード 6 8 5 1 ナン  
パー エム - 1 8

Fターム(参考) 4J002 CG011 CH082 CH091 CM041 CN031 DL006 FA046 FD016