

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4766172号  
(P4766172)

(45) 発行日 平成23年9月7日(2011.9.7)

(24) 登録日 平成23年6月24日(2011.6.24)

(51) Int.Cl.		F I
<b>C O 8 L 69/00</b>	<b>(2006.01)</b>	C O 8 L 69/00
<b>C O 8 K 5/42</b>	<b>(2006.01)</b>	C O 8 K 5/42
<b>C O 8 L 83/16</b>	<b>(2006.01)</b>	C O 8 L 83/16

請求項の数 10 (全 57 頁)

(21) 出願番号 特願2010-2165 (P2010-2165)  
 (22) 出願日 平成22年1月7日(2010.1.7)  
 (65) 公開番号 特開2010-270295 (P2010-270295A)  
 (43) 公開日 平成22年12月2日(2010.12.2)  
 審査請求日 平成23年3月3日(2011.3.3)  
 (31) 優先権主張番号 特願2009-102104 (P2009-102104)  
 (32) 優先日 平成21年4月20日(2009.4.20)  
 (33) 優先権主張国 日本国(JP)

早期審査対象出願

(73) 特許権者 594137579  
 三菱エンジニアリングプラスチックス株式  
 会社  
 東京都港区東新橋一丁目9番2号  
 (74) 代理人 100086911  
 弁理士 重野 剛  
 (72) 発明者 門田 敏樹  
 神奈川県平塚市東八幡五丁目6番2号 三  
 菱エンジニアリングプラスチックス株式会  
 社内

審査官 芦原 ゆりか

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ポリカーボネート樹脂組成物及びその成形体

(57) 【特許請求の範囲】

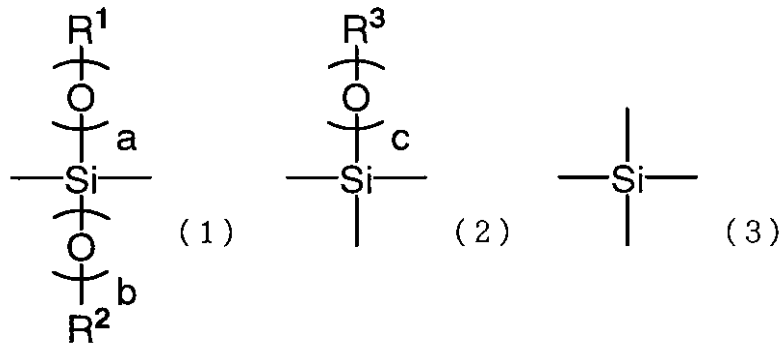
【請求項1】

ポリカーボネート樹脂100質量部と、  
 金属塩化合物0.001～1質量部と、

ポリカルボシラン化合物0.005～5質量部とを配合してなるポリカーボネート樹脂  
 組成物であって、前記ポリカルボシラン化合物が、下記式(1)～(3)で表される構造  
 単位のうちの少なくとも1種の構造単位と炭化水素残基とからなる主鎖構造を有するポリ  
 カーボネート樹脂組成物であって、

前記金属塩化合物が、有機スルホン酸のアルカリ金属塩であり、該有機スルホン酸のアル  
 カリ金属塩が、含フッ素脂肪族スルホン酸のアルカリ金属塩、及び芳香族スルホン酸の  
 アルカリ金属塩から選ばれる少なくとも1種であることを特徴とすることを特徴とするポリ  
 カーボネート樹脂組成物。

## 【化 1】



10

(式(1)～(3)中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ は、それぞれ独立に、一価炭化水素基、水素原子、又はシリル基を表し、 $a$ 、 $b$ 、 $c$ は、それぞれ独立に、0又は1を表す。主鎖構造に含まれる複数の $R^1$ 、 $R^2$ 及び $R^3$ は、それぞれ同一であっても異なるものであってもよい。)

## 【請求項 2】

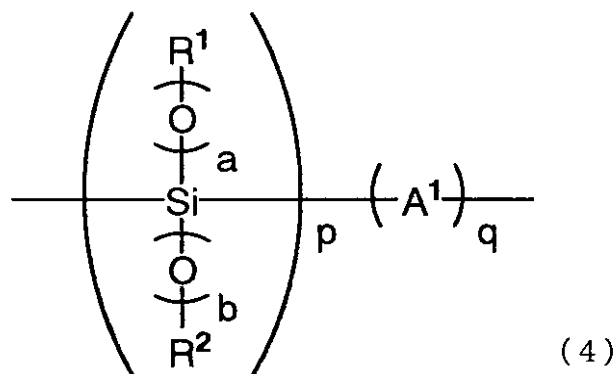
前記炭化水素残基が、二価炭化水素基であることを特徴とする請求項1に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

## 【請求項 3】

前記ポリカルボシラン化合物が、下記式(4)で表される繰り返し単位を有する、数平均分子量100～20000のポリカルボシラン化合物であることを特徴とする請求項2に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

20

## 【化 2】



30

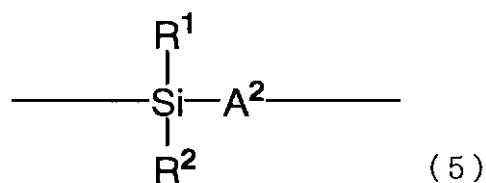
(式(4)中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $a$ 、 $b$ は前記式(1)におけると同義であり、 $A^1$ は、炭素数1～12の二価炭化水素基を表し、 $p$ 、 $q$ は、それぞれ独立に、1～8の整数を表す。 $R^1$ 、 $R^2$ 及び $A^1$ は、それぞれ全ての繰り返し単位において同一であっても異なってもよい。)

## 【請求項 4】

前記ポリカルボシラン化合物が、下記式(5)で表される繰り返し単位を有する、数平均分子量100～20000のポリカルボシラン化合物であることを特徴とする請求項3に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

40

## 【化 3】



(式(5)中、 $R^1$ 、 $R^2$ は前記式(4)におけると同義であり、 $A^2$ は炭素数1～12

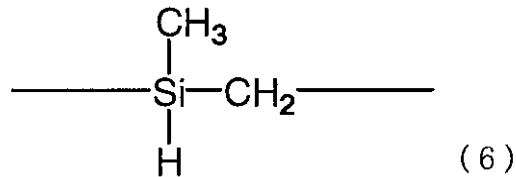
50

のアルキレン基を表す。R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>及びA<sup>2</sup>は、それぞれ全ての繰返し単位において同一であっても異なってもよい。）

【請求項 5】

前記ポリカルボシラン化合物が、下記式(6)で表される繰返し単位を有する、数平均分子量100～20000のポリカルボシラン化合物であることを特徴とする請求項4に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【化 4】



10

【請求項 6】

前記含フッ素脂肪族スルホン酸のアルカリ金属塩が、パーフルオロアルカンスルホン酸のアルカリ金属塩であることを特徴とする請求項1乃至5の何れか1項に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【請求項 7】

前記芳香族スルホン酸のアルカリ金属塩が、パラトルエンスルホン酸のアルカリ金属塩であることを特徴とする請求項6に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

20

【請求項 8】

ポリカーボネート樹脂が、構造粘性指数Nが、1.2以上のポリカーボネート樹脂を20質量%以上含むことを特徴とする請求項1乃至7の何れか1項に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【請求項 9】

構造粘性指数Nが1.2以上のポリカーボネート樹脂が、芳香族ジヒドロキシ化合物と炭酸ジエステルとの熔融エステル交換反応により製造されたポリカーボネート樹脂であることを特徴とする請求項8に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【請求項 10】

請求項1乃至9の何れか1項に記載のポリカーボネート樹脂組成物を成形してなることを特徴とするポリカーボネート樹脂成形体。

30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、ポリカーボネート樹脂組成物及びその成形体に関するものである。詳しくは、難燃性、耐衝撃性、耐熱性に優れ、かつアウトガス、金型汚染性が極めて少なく、さらには透明性にも優れるポリカーボネート樹脂組成物と、このポリカーボネート樹脂組成物を成形してなるポリカーボネート樹脂成形体に関するものである。

【背景技術】

【0002】

ポリカーボネート樹脂は、耐熱性、機械的物性、光学特性、電気的特性に優れた樹脂であり、例えば自動車材料、電気電子機器材料、住宅材料、その他の工業分野における部品製造用材料等に幅広く利用されている。特に、難燃性が付与されたポリカーボネート樹脂組成物は、コンピューター、ノートブック型パソコン、携帯電話、プリンター、複写機等のOA・情報機器等の部材や、シート、フィルム部材として好適に使用されている。

40

【0003】

ポリカーボネート樹脂に難燃性を付与する手段としては、従来、ハロゲン系難燃剤やリン系難燃剤をポリカーボネート樹脂に配合する方法が採用されてきた。しかしながら、塩素や臭素を含有するハロゲン系難燃剤を配合したポリカーボネート樹脂組成物は、熱安定性の低下や色相の悪化を招いたり、成形加工時における成形機のスクリュウや成形金型の

50

腐食を招いたりすることがあった。また、リン系難燃剤を配合したポリカーボネート樹脂組成物は、ポリカーボネート樹脂の特徴である高い透明性を阻害したり、耐衝撃性や耐熱性の低下を招いたりするため、その用途が制限されることがあった。加えて、これらのハロゲン系難燃剤及びリン系難燃剤は、製品の廃棄、回収時に環境汚染を惹起する可能性があるため、近年ではこれらの難燃剤を使用することなくポリカーボネート樹脂に難燃性を付与することが強く望まれている。

【 0 0 0 4 】

かかる状況下、近年、有機アルカリ金属塩化合物及び有機アルカリ土類金属塩化合物に代表される金属塩化合物が有用な難燃剤として数多く検討されている（例えば、特許文献 1 ～ 4 参照）。このような金属塩化合物を難燃剤として用いると、ポリカーボネート樹脂が本来有する耐衝撃性等の機械的物性、耐熱性、光学特性、電気的特性などの性質を損なわずにある程度の難燃性を付与することができる。

10

【 0 0 0 5 】

しかしながら、上述の金属塩化合物をポリカーボネート樹脂に配合する手法で得られる難燃性のレベルは決して満足のいくものではなかった。これは、金属塩化合物をポリカーボネート樹脂に配合して得られる難燃効果が、触媒的作用によることに起因していると考えられる。このため、より高い難燃性を得ることを目的に、金属塩化合物の配合量を多くしても、難燃性は向上しないばかりか、かえって悪化する傾向にあり、さらには耐衝撃性等の機械物性、透明性等の光学物性、あるいは耐熱性、湿熱安定性などの諸物性を著しく低下させてしまう課題があった。

20

【 0 0 0 6 】

一方、オルガノシロキサン（シリコーン）化合物をポリカーボネート樹脂に配合することによって難燃性を向上させる試みもなされている（例えば、特許文献 5 参照）。

なかでも、主鎖に分岐構造を持ち、さらに芳香族基を含有するオルガノシロキサン化合物を配合する手法が盛んに検討されている（例えば、特許文献 6 ～ 8 参照）。

また、有機スルホン酸金属塩と上述の主鎖に分岐構造を持ち、さらに芳香族基を含有するオルガノシロキサン化合物を同時に配合する手法も提案されている（例えば、特許文献 9 ～ 10 参照）。

【 0 0 0 7 】

しかしながら、上述の特許文献 5 ～ 8 のオルガノシロキサン化合物のみを配合する手法では、実際には難燃性を向上させる効果は極めて小さく、実用レベルの難燃性を得ることができるものではなかった。

30

また、オルガノシロキサン化合物はポリカーボネート樹脂に対する相溶性、分散性が悪いいため、耐衝撃性等の機械物性や熱物性の低下を招き、しかも、少量添加しただけでも、ポリカーボネート樹脂の持つ良好な透明性を著しく低下させてしまうという致命的な欠点を有していた。さらには、樹脂組成物の混練・成形時にガスが多量に発生する；金型汚染を引き起こし易い；樹脂成形体の外観が悪い；表面がべたつく；等の様々な問題点も有していた。

【 0 0 0 8 】

特許文献 9 ～ 10 で提案されているような有機スルホン酸金属塩とオルガノシロキサン化合物を同時に配合する手法では、オルガノシロキサン化合物の配合量を比較的減らし、難燃性を向上させることができるため、ガスの発生や金型汚染、樹脂成形体の外観不良やべたつきをある程度抑制することができるが、上述のような機械物性や熱物性、特に透明性の低下を防ぐことはできなかった。

40

【 0 0 0 9 】

透明性を改善する手法としては、ポリカーボネート樹脂との相溶性を上げるために、特定の官能基を含有するオルガノシロキサン化合物を用いる手法（例えば、特許文献 11 ～ 13 参照）、フェニル基を含有し、重合度の低いオルガノシロキサン化合物を用いる手法（例えば、特許文献 14 参照）、オルガノシロキサン化合物低分子量体を用いる手法（例えば、特許文献 15 ～ 16 参照）が提案されている。

50

## 【 0 0 1 0 】

また、主鎖にケイ素 - ケイ素結合のみからなる繰り返し単位を有するポリシラン化合物を難燃剤として用いる手法も提案されている（例えば、特許文献 17 参照）。

## 【 先行技術文献 】

## 【 特許文献 】

## 【 0 0 1 1 】

【 特許文献 1 】 特公昭 4 7 - 4 0 4 4 5 号公報

【 特許文献 2 】 特公昭 5 4 - 3 2 4 5 6 号公報

【 特許文献 3 】 特開 2 0 0 0 - 1 6 9 6 9 6 号公報

【 特許文献 4 】 特開 2 0 0 1 - 1 8 1 4 9 3 号公報

10

【 特許文献 5 】 特公昭 6 2 - 6 0 4 2 1 号公報

【 特許文献 6 】 特許第 3 2 4 0 9 7 2 号公報

【 特許文献 7 】 特許第 3 7 1 6 7 5 4 号公報

【 特許文献 8 】 特許第 3 8 3 5 4 9 7 号公報

【 特許文献 9 】 特開平 1 1 - 2 1 7 4 9 4 号公報

【 特許文献 1 0 】 特開平 1 1 - 2 6 3 9 0 3 号公報

【 特許文献 1 1 】 特表 2 0 0 4 - 5 2 4 4 2 3 号公報

【 特許文献 1 2 】 特許第 3 1 6 3 5 9 6 号公報

【 特許文献 1 3 】 特許第 2 7 1 9 4 8 6 号公報

【 特許文献 1 4 】 特許 2 7 4 6 5 1 9 号公報

20

【 特許文献 1 5 】 特許第 3 5 0 3 0 9 5 号公報

【 特許文献 1 6 】 特表 2 0 0 3 - 5 3 1 9 4 0 号公報

【 特許文献 1 7 】 特開 2 0 0 3 - 2 7 7 7 5 6 号公報

## 【 発明の概要 】

## 【 発明が解決しようとする課題 】

## 【 0 0 1 2 】

しかしながら、上述の特許文献 11 ~ 16 の手法は、比較的良好な透明性が得られるものの、未だポリカーボネート樹脂に対するオルガノシロキサン化合物の分散性が不十分であり、安定した難燃性が得られにくく、また分散性を上げるために重合度の低い、あるいは低分子量体のオルガノシロキサン化合物を用いているために少量添加しただけでも樹脂組成物の混練・成形時に多量にガスが発生し、また金型を汚染しやすいという欠点があった。また、安定した難燃性を得るべく、オルガノシロキサン化合物の配合量を多くすると、さらにガスの発生や金型汚染の問題が顕著になるため、実用に耐えうるものではなかった。

30

さらに、成形体の表面に付着、あるいは成形体からブリードアウトする上述のようなオルガノシロキサン化合物は、一部電気電子用途に用いる場合には、接点不良等の電氣的トラブルの原因となる可能性があるため、その使用が避けられている。

## 【 0 0 1 3 】

このように、オルガノシロキサン化合物を配合して、ポリカーボネート樹脂の機械物性、熱物性、透明性を損なうことなく、ポリカーボネート樹脂に難燃性を付与し、さらにはアウトガスの発生や金型汚染が抑制することは極めて困難であった。

40

## 【 0 0 1 4 】

特許文献 17 ではオルガノシロキサン化合物とは異なるケイ素化合物であるポリシラン化合物を配合した樹脂組成物が提案されているが、このものもやはり、ポリカーボネート樹脂への相溶性、分散性が悪く、耐衝撃性等の機械物性の低下や透明性の低下を抑制することはできなかった。

## 【 0 0 1 5 】

このようなことから、従来において、難燃性、成形加工性、機械物性、耐熱性及び透明性が同時に優れるポリカーボネート樹脂組成物は、未だ得られていなかった。

## 【 0 0 1 6 】

50

本発明は上述の課題に鑑みて創案されたもので、難燃性、耐衝撃性等の機械物性に優れ、かつアウトガス、金型汚染性が極めて少なく、さらには透明性にも優れるポリカーボネート樹脂組成物、及びそれを成形してなるポリカーボネート樹脂成形体を提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0017】

本発明者は上記課題を解決するために、ポリカーボネート樹脂に配合するケイ素化合物の分子構造、特に主鎖の構造に注目し、鋭意検討した。

その結果、ポリカーボネート樹脂に金属塩化合物と所定の構造を有する有機ケイ素化合物を所定量配合することにより、耐衝撃性及び耐熱性のいずれも損なうことなく、難燃性が著しく向上し、かつアウトガス、金型汚染性が極めて少なく、さらには透明性にも優れたものとなることを見出し、本発明を完成させた。

【0018】

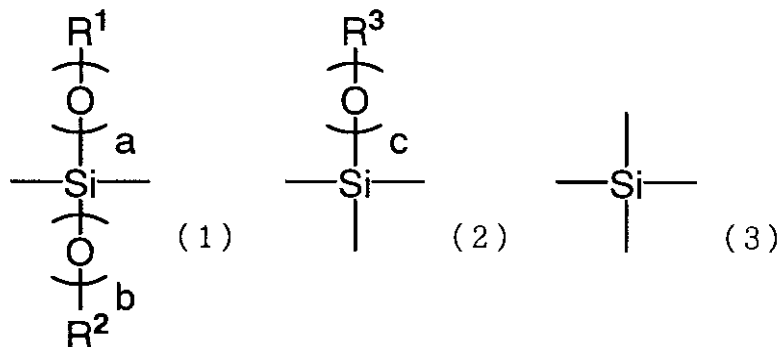
即ち、本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、ポリカーボネート樹脂100質量部と、金属塩化合物0.001～1質量部と、ポリカルボシラン化合物0.005～5質量部とを配合してなるポリカーボネート樹脂組成物であって、前記ポリカルボシラン化合物が、下記式(1)～(3)で表される構造単位のうちの少なくとも1種の構造単位と炭化水素残基とからなる主鎖構造を有するポリカーボネート樹脂組成物であって、前記金属塩化合物が、有機スルホン酸のアルカリ金属塩であり、該有機スルホン酸のアルカリ金属塩が、含フッ素脂肪族スルホン酸のアルカリ金属塩、及び芳香族スルホン酸のアルカリ金属塩から選ばれる少なくとも1種であることを特徴とする(請求項1)。

【0019】

本発明において、ポリカルボシラン化合物が、下記式(1)～(3)で表される構造単位のうちの少なくとも1種の構造単位と炭化水素残基とからなる主鎖構造を有するものであり、該炭化水素残基は、二価炭化水素基であることが好ましい(請求項2)。

【0020】

【化1】



【0021】

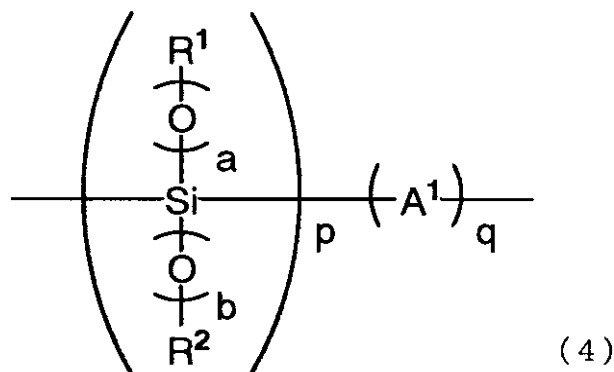
(式(1)～(3)中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ は、それぞれ独立に、一価炭化水素基、水素原子、又はシリル基を表し、 $a$ 、 $b$ 、 $c$ は、それぞれ独立に、0又は1を表す。主鎖構造中に含まれる複数の $R^1$ 、 $R^2$ 及び $R^3$ は、それぞれ同一であっても異なるものであってもよい。)

【0022】

より具体的には、本発明で用いるポリカルボシラン化合物は、下記式(4)、特に下記式(5)、とりわけ下記式(6)で表される繰り返し単位を有する、数平均分子量100～20000のポリカルボシラン化合物であることが好ましい(請求項3～5)。

【0023】

【化2】



10

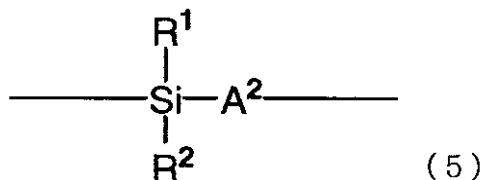
【0024】

(式(4)中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $a$ 、 $b$ 、は前記式(1)におけると同義であり、 $A^1$ は、炭素数1～12の二価炭化水素基を表し、 $p$ 、 $q$ は、それぞれ独立に、1～8の整数を表す。 $R^1$ 、 $R^2$ 及び $A^1$ は、それぞれ全ての繰り返し単位において同一であっても異なってもよい。)

【0025】

【化3】

20



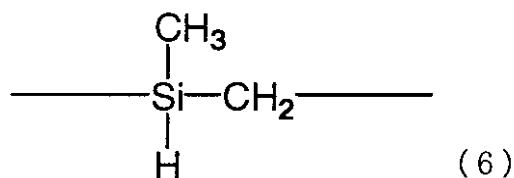
【0026】

(式(5)中、 $R^1$ 、 $R^2$ は前記式(4)におけると同義であり、 $A^2$ は炭素数1～12のアルキレン基を表す。 $R^1$ 、 $R^2$ 及び $A^2$ は、それぞれ全ての繰り返し単位において同一であっても異なってもよい。)

30

【0027】

【化4】



【0028】

また、含フッ素脂肪族スルホン酸のアルカリ金属塩は、パーフルオロアルカンスルホン酸のアルカリ金属塩であることがさらに好ましく(請求項6)、芳香族スルホン酸のアルカリ金属塩は、パラトルエンスルホン酸のアルカリ金属塩であることがさらに好ましい(請求項7)。

40

【0029】

また、ポリカーボネート樹脂は、構造粘性指数 $N$ が1.2以上のポリカーボネート樹脂を20質量%以上含むことも好ましく(請求項8)、この構造粘性指数 $N$ が1.2以上のポリカーボネート樹脂は、熔融エステル交換法によって製造されたポリカーボネート樹脂であることも好ましい(請求項9)。

【0030】

本発明のポリカーボネート樹脂成形体は、このような本発明のポリカーボネート樹脂組

50

成物を成形してなることを特徴とする（請求項 10）。

【発明の効果】

【0031】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、難燃性向上に有効な金属塩化合物を含むと共に、この金属塩化合物と共にポリカルボシラン化合物を含むことにより、耐衝撃性等の機械物性や透明性、その他の物性を損なうことなく、また、アウトガスや金型汚染性の問題を引き起こすこともなく、難燃性をより一層向上させることができる。

即ち、ポリカルボシラン化合物は、従来、金属塩化合物と共に併用されてきたオルガノシロキサン（シリコーン）化合物やポリシラン化合物とは異なり、ポリカーボネート樹脂に比較的多量含有させた場合であっても、耐衝撃性、耐熱性及び透明性を損なうことなく、さらにはアウトガスや金型汚染も少ないため、金属塩化合物と共にポリカルボシラン化合物を併用することにより、難燃性、耐衝撃性に優れ、かつアウトガス、金型汚染性が極めて少なく、さらには透明性にも優れるポリカーボネート樹脂組成物を提供することができる。

10

【0032】

本発明のポリカーボネート樹脂成形体は、難燃性、耐衝撃性等の機械物性、耐熱性に優れると共に透明性も良好であり、また、アウトガスや金型汚染性の問題もなく、高い生産性にて歩留りよく製造することができ、自動車材料、電気電子機器材料、住宅材料、その他の工業分野における部品製造用材料等として、特に、コンピューター、ノートブック型パソコン、携帯電話、プリンター、複写機等のOA・情報機器等の部材や、シート、フィルム部材として工業的に極めて有用である。

20

【発明を実施するための形態】

【0033】

以下、本発明について実施形態及び例示物等を示して詳細に説明するが、本発明は以下に示す実施形態及び例示物等に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲において任意に変更して実施することができる。

【0034】

[1. 概要]

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、少なくとも、ポリカーボネート樹脂と、金属塩化合物と、ポリカルボシラン化合物とを配合してなる。また、本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、必要に応じて、その他の成分を含有していてもよい。

30

【0035】

ここで、ポリカルボシラン化合物とは、主鎖にケイ素 - 炭素結合（Si - C 結合）を有する繰り返し単位を2以上有するものであり、本発明で用いるポリカルボシラン化合物は、このように主鎖にSi - C 結合を有することにより、ポリカーボネート樹脂に対する分散性、相溶性に優れ、オルガノシロキサン（シリコーン）化合物やポリシラン化合物を用いた従来のポリカーボネート樹脂組成物の透明性や耐衝撃性、耐熱性の低下やアウトガスや金型汚染等の問題を改善することができる。

【0036】

[2. ポリカーボネート樹脂]

本発明のポリカーボネート樹脂組成物に用いるポリカーボネート樹脂の種類に制限は無い。また、ポリカーボネート樹脂は、1種類を用いてもよく、2種類以上を任意の組み合わせ及び任意の比率で併用してもよい。

40

なかでも、ポリカーボネート樹脂は、構造粘性指数Nが所定範囲にあるポリカーボネート樹脂を所定の割合で含むものを用いることが好ましい。

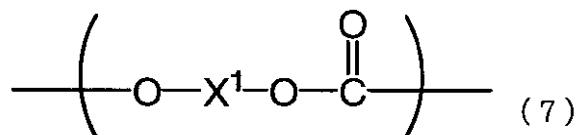
【0037】

本発明におけるポリカーボネート樹脂は、下記式（7）で表される、炭酸結合を有する基本構造の重合体である。

【0038】



## 【化 5】



## 【0039】

式(7)中、 $X^1$ は一般的には炭化水素基であるが、種々の特性付与のためヘテロ原子、ヘテロ結合の導入された $X^1$ を用いてもよい。

10

## 【0040】

また、ポリカーボネート樹脂は、炭酸結合に直接結合する炭素がそれぞれ芳香族炭素である芳香族ポリカーボネート樹脂、及び脂肪族炭素である脂肪族ポリカーボネート樹脂に分類できるが、いずれを用いることもできる。なかでも、耐熱性、機械的物性、電気的特性等の観点から、芳香族ポリカーボネート樹脂が好ましい。

## 【0041】

ポリカーボネート樹脂の具体的な種類に制限は無いが、例えば、ジヒドロキシ化合物とカーボネート前駆体とを反応させてなるポリカーボネート重合体が挙げられる。この際、ジヒドロキシ化合物及びカーボネート前駆体に加えて、ポリヒドロキシ化合物等を反応させるようにしてもよい。また、二酸化炭素をカーボネート前駆体として、環状エーテルと反応させる方法を用いてもよい。ここで、ポリカーボネート重合体は、直鎖状でもよく、分岐鎖状でもよい。さらに、ポリカーボネート重合体は1種の繰り返し単位からなる単独重合体であってもよく、2種以上の繰り返し単位を有する共重合体であってもよい。共重合体の場合、ランダム共重合体、ブロック共重合体等、種々の共重合形態を選択することができる。なお、通常、このようなポリカーボネート重合体は、熱可塑性の樹脂となる。

20

## 【0042】

## 〔2-1.ジヒドロキシ化合物〕

ポリカーボネート樹脂の原料となるジヒドロキシ化合物のうち、芳香族ポリカーボネート樹脂の原料となる芳香族ジヒドロキシ化合物の例を挙げると、次のようなものが挙げられる。

30

## 【0043】

- 1, 2 - ジヒドロキシベンゼン、
- 1, 3 - ジヒドロキシベンゼン (即ち、レゾルシノール)、
- 1, 4 - ジヒドロキシベンゼン、

等のジヒドロキシベンゼン類；

## 【0044】

- 2, 5 - ジヒドロキシビフェニル、
- 2, 2' - ジヒドロキシビフェニル、
- 4, 4' - ジヒドロキシビフェニル、

等のジヒドロキシビフェニル類；

40

## 【0045】

- 2, 2' - ジヒドロキシ - 1, 1' - ビナフチル、
- 1, 2 - ジヒドロキシナフタレン、
- 1, 3 - ジヒドロキシナフタレン、
- 2, 3 - ジヒドロキシナフタレン、
- 1, 6 - ジヒドロキシナフタレン、
- 2, 6 - ジヒドロキシナフタレン、
- 1, 7 - ジヒドロキシナフタレン、
- 2, 7 - ジヒドロキシナフタレン、

等のジヒドロキシナフタレン類；

50

## 【 0 0 4 6 】

- 2, 2' - ジヒドロキシジフェニルエーテル、
- 3, 3' - ジヒドロキシジフェニルエーテル、
- 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 - 3, 3' - ジメチルジフェニルエーテル、
- 1, 4 - ビス ( 3 - ヒドロキシフェノキシ ) ベンゼン、
- 1, 3 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェノキシ ) ベンゼン、

等のジヒドロキシジアリールエーテル類；

## 【 0 0 4 7 】

- 2, 2 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) プロパン ( 即ち、ビスフェノール A )、10
- 1, 1 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) プロパン、
- 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 - メトキシ - 4 - ヒドロキシフェニル ) プロパン、
- 2 - ( 4 - ヒドロキシフェニル ) - 2 - ( 3 - メトキシ - 4 - ヒドロキシフェニル ) プロパン、
- 1, 1 - ビス ( 3 - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル ) プロパン、
- 2, 2 - ビス ( 4 - ヒドロキシ - 3, 5 - ジメチルフェニル ) プロパン、
- 2, 2 - ビス ( 3 - シクロヘキシル - 4 - ヒドロキシフェニル ) プロパン、
- 2 - ( 4 - ヒドロキシフェニル ) - 2 - ( 3 - シクロヘキシル - 4 - ヒドロキシフェニル ) プロパン、20
- , ' - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) - 1, 4 - ジイソプロピルベンゼン、
- 1, 3 - ビス [ 2 - ( 4 - ヒドロキシフェニル ) - 2 - プロピル ] ベンゼン、
- ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) メタン、
- ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) シクロヘキシルメタン、
- ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) フェニルメタン、
- ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) ( 4 - プロペニルフェニル ) メタン、
- ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) ジフェニルメタン、
- ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) ナフチルメタン、
- 1, 1 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) エタン、
- 1, 2 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) エタン、30
- 1, 1 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) - 1 - フェニルエタン、
- 1, 1 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) - 1 - ナフチルエタン、
- 1, 1 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) ブタン、
- 2, 2 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) ブタン、
- 2, 2 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) ペンタン、
- 1, 1 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) ヘキサン、
- 2, 2 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) ヘキサン、
- 1, 1 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) オクタン、
- 2, 2 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) オクタン、
- 1 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) ヘキサン、40
- 2 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) ヘキサン、
- 4, 4 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) ヘプタン、
- 2, 2 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) ノナン、
- 1, 10 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) デカン、
- 1, 1 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) ドデカン、

等のビス ( ヒドロキシアリール ) アルカン類；

## 【 0 0 4 8 】

- 1, 1 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) シクロペンタン、
- 1, 1 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) シクロヘキサン、
- 1, 4 - ビス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) シクロヘキサン、50

1, 1 - ビス (4 - ヒドロキシフェニル) - 3, 3 - ジメチルシクロヘキサン、  
 1, 1 - ビス (4 - ヒドロキシフェニル) - 3, 4 - ジメチルシクロヘキサン、  
 1, 1 - ビス (4 - ヒドロキシフェニル) - 3, 5 - ジメチルシクロヘキサン、  
 1, 1 - ビス (4 - ヒドロキシフェニル) - 3, 3, 5 - トリメチルシクロヘキサン、  
 1, 1 - ビス (4 - ヒドロキシ - 3, 5 - ジメチルフェニル) - 3, 3, 5 - トリメチルシクロヘキサン、  
 1, 1 - ビス (4 - ヒドロキシフェニル) - 3 - プロピル - 5 - メチルシクロヘキサン

、  
 1, 1 - ビス (4 - ヒドロキシフェニル) - 3 - tert - ブチル - シクロヘキサン、  
 1, 1 - ビス (4 - ヒドロキシフェニル) - 4 - tert - ブチル - シクロヘキサン、  
 1, 1 - ビス (4 - ヒドロキシフェニル) - 3 - フェニルシクロヘキサン、  
 1, 1 - ビス (4 - ヒドロキシフェニル) - 4 - フェニルシクロヘキサン、

10

等のビス (ヒドロキシアリール) シクロアルカン類；

【0049】

9, 9 - ビス (4 - ヒドロキシフェニル) フルオレン、  
 9, 9 - ビス (4 - ヒドロキシ - 3 - メチルフェニル) フルオレン、

等のカルド構造含有ビスフェノール類；

【0050】

4, 4' - ジヒドロキシジフェニルスルフィド、  
 4, 4' - ジヒドロキシ - 3, 3' - ジメチルジフェニルスルフィド、

20

等のジヒドロキシジアリールスルフィド類；

【0051】

4, 4' - ジヒドロキシジフェニルスルホキシド、  
 4, 4' - ジヒドロキシ - 3, 3' - ジメチルジフェニルスルホキシド、

等のジヒドロキシジアリールスルホキシド類；

【0052】

4, 4' - ジヒドロキシジフェニルスルホン、  
 4, 4' - ジヒドロキシ - 3, 3' - ジメチルジフェニルスルホン、

等のジヒドロキシジアリールスルホン類；

【0053】

30

これらの中でもビス (ヒドロキシアリール) アルカン類が好ましく、中でもビス (4 - ヒドロキシフェニル) アルカン類が好ましく、特に耐衝撃性、耐熱性の点から 2, 2 - ビス (4 - ヒドロキシフェニル) プロパン (即ち、ビスフェノール A) が好ましい。

【0054】

なお、芳香族ジヒドロキシ化合物は、1 種を用いてもよく、2 種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

【0055】

また、脂肪族ポリカーボネート樹脂の原料となる脂肪族ジヒドロキシ化合物の例を挙げると、次のようなものが挙げられる。

【0056】

40

エタン - 1, 2 - ジオール、  
 プロパン - 1, 2 - ジオール、  
 プロパン - 1, 3 - ジオール、  
 2, 2 - ジメチルプロパン - 1, 3 - ジオール、  
 2 - メチル - 2 - プロピルプロパン - 1, 3 - ジオール、  
 ブタン - 1, 4 - ジオール、  
 ペンタン - 1, 5 - ジオール、  
 ヘキサン - 1, 6 - ジオール、  
 デカン - 1, 10 - ジオール、

等のアルカンジオール類；

50

## 【 0 0 5 7 】

シクロペンタン - 1 , 2 - ジオール、  
 シクロヘキサン - 1 , 2 - ジオール、  
 シクロヘキサン - 1 , 4 - ジオール、  
 1 , 4 - シクロヘキサンジメタノール、  
 4 - ( 2 - ヒドロキシエチル ) シクロヘキサノール、  
 2 , 2 , 4 , 4 - テトラメチル - シクロブタン - 1 , 3 - ジオール、

等のシクロアルカンジオール類；

## 【 0 0 5 8 】

2 , 2' - オキシジエタノール ( 即ち、エチレングリコール )、  
 ジエチレングリコール、  
 トリエチレングリコール、  
 プロピレングリコール、  
 スピログリコール、

等のグリコール類；

## 【 0 0 5 9 】

1 , 2 - ベンゼンジメタノール、  
 1 , 3 - ベンゼンジメタノール、  
 1 , 4 - ベンゼンジメタノール、  
 1 , 4 - ベンゼンジエタノール、  
 1 , 3 - ビス ( 2 - ヒドロキシエトキシ ) ベンゼン、  
 1 , 4 - ビス ( 2 - ヒドロキシエトキシ ) ベンゼン、  
 2 , 3 - ビス ( ヒドロキシメチル ) ナフタレン、  
 1 , 6 - ビス ( ヒドロキシエトキシ ) ナフタレン、  
 4 , 4' - ビフェニルジメタノール、  
 4 , 4' - ビフェニルジエタノール、  
 1 , 4 - ビス ( 2 - ヒドロキシエトキシ ) ビフェニル、  
 ビスフェノール A ビス ( 2 - ヒドロキシエチル ) エーテル、  
 ビスフェノール S ビス ( 2 - ヒドロキシエチル ) エーテル、

等のアラルキルジオール類；

## 【 0 0 6 0 】

1 , 2 - エポキシエタン ( 即ち、エチレンオキシド )、  
 1 , 2 - エポキシプロパン ( 即ち、プロピレンオキシド )、  
 1 , 2 - エポキシシクロペンタン、  
 1 , 2 - エポキシシクロヘキサン、  
 1 , 4 - エポキシシクロヘキサン、  
 1 - メチル - 1 , 2 - エポキシシクロヘキサン、  
 2 , 3 - エポキシノルボルナン、  
 1 , 3 - エポキシプロパン、

等の環状エーテル類；

## 【 0 0 6 1 】

なお、脂肪族ジヒドロキシ化合物は、1 種を用いてもよく、2 種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

## 【 0 0 6 2 】

[ 2 - 2 . カーボネート前駆体 ]

ポリカーボネート樹脂の原料となるモノマーのうち、カーボネート前駆体の例を挙げると、カルボニルハライド、カーボネートエステル等が使用される。

なお、カーボネート前駆体は、1 種を用いてもよく、2 種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

## 【 0 0 6 3 】

10

20

30

40

50

カルボニルハライドとしては、具体的には例えば、ホスゲン；ジヒドロキシ化合物のビスクロロホルレート体、ジヒドロキシ化合物のモノクロロホルレート体等のハロホルレート等が挙げられる。

【 0 0 6 4 】

カーボネートエステルとしては、具体的には例えば、ジフェニルカーボネート、ジトリルカーボネート等のジアリールカーボネート類；ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート等のジアルキルカーボネート類；ジヒドロキシ化合物のビスカーボネート体、ジヒドロキシ化合物のモノカーボネート体、環状カーボネート等のジヒドロキシ化合物のカーボネート体等が挙げられる。

【 0 0 6 5 】

[ 2 - 3 . ポリカーボネート樹脂の製造方法 ]

ポリカーボネート樹脂の製造方法は、特に限定されるものではなく、任意の方法を採用することができる。その例を挙げると、界面重合法、熔融エステル交換法、ピリジン法、環状カーボネート化合物の開環重合法、プレポリマーの固相エステル交換法などを挙げる  
ことができる。以下、これらの方法のうち特に好適なものについて具体的に説明する。

【 0 0 6 6 】

< 界面重合法 >

まず、ポリカーボネート樹脂を界面重合法で製造する場合について説明する。界面重合法では、反応に不活性な有機溶媒及びアルカリ水溶液の存在下で、通常 pH を 9 以上に保ち、ジヒドロキシ化合物とカーボネート前駆体（好ましくは、ホスゲン）とを反応させた後、重合触媒の存在下で界面重合を行うことによってポリカーボネート樹脂を得る。なお、反応系には、必要に応じて分子量調整剤（末端停止剤）を存在させてもよく、ジヒドロキシ化合物の酸化防止のために酸化防止剤を存在させてもよい。

【 0 0 6 7 】

用いるジヒドロキシ化合物及びカーボネート前駆体は、前述の通りである。なお、カーボネート前駆体の中でもホスゲンを用いることが好ましく、ホスゲンを用いた場合の方法は特にホスゲン法と呼ばれる。

【 0 0 6 8 】

反応に不活性な有機溶媒としては、例えば、ジクロロメタン、1, 2 - ジクロロエタン、クロロホルム、モノクロロベンゼン、ジクロロベンゼン等の塩素化炭化水素等；ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；などが挙げられる。なお、有機溶媒は、1 種を用いてもよく、2 種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

【 0 0 6 9 】

アルカリ水溶液に含有されるアルカリ化合物としては、例えば、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化リチウム、炭酸水素ナトリウム等のアルカリ金属化合物やアルカリ土類金属化合物が挙げられるが、中でも水酸化ナトリウム及び水酸化カリウムが好ましい。なお、アルカリ化合物は、1 種を用いてもよく、2 種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

【 0 0 7 0 】

アルカリ水溶液中のアルカリ化合物の濃度に制限は無いが、通常、反応系の pH を 10 ~ 12 にコントロールするために、5 ~ 10 質量% で使用される。また、例えばホスゲンを吹き込む際には、水相の pH が 10 ~ 12、好ましくは 10 ~ 11 になる様にコントロールするために、ジヒドロキシ化合物とアルカリ化合物とのモル比を、通常 1 : 1.9 以上、中でも 1 : 2.0 以上、また、通常 1 : 3.2 以下、中でも 1 : 2.5 以下とすることが好ましい。

【 0 0 7 1 】

重合触媒としては、例えば、トリメチルアミン、トリエチルアミン、トリブチルアミン、トリプロピルアミン、トリヘキシルアミン等の脂肪族三級アミン；N, N' - ジメチルシクロヘキシルアミン、N, N' - ジエチルシクロヘキシルアミン等の脂環式三級アミン；N, N' - ジメチルアニリン、N, N' - ジエチルアニリン等の芳香族三級アミン；ト

10

20

30

40

50

リメチルベンジルアンモニウムクロライド、テトラメチルアンモニウムクロライド、トリエチルベンジルアンモニウムクロライド等の第四級アンモニウム塩；ピリジン；グアニン；グアニジンの塩；等が挙げられる。なお、重合触媒は、1種を用いてもよく、2種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

【0072】

分子量調整剤としては、例えば、一価のフェノール性水酸基を有する芳香族フェノール；メタノール、ブタノールなどの脂肪族アルコール；メルカプタン；フタル酸イミド等が挙げられるが、中でも芳香族フェノールが好ましい。このような芳香族フェノールとしては、具体的に、m-メチルフェノール、p-メチルフェノール、m-プロピルフェノール、p-プロピルフェノール、p-tert-ブチルフェノール、p-長鎖アルキル置換フェノール等のアルキル基置換フェノール；イソプロパニルフェノール等のビニル基含有フェノール；エポキシ基含有フェノール；o-オキシ安息香酸、2-メチル-6-ヒドロキシフェニル酢酸等のカルボキシル基含有フェノール；等が挙げられる。なお、分子量調整剤は、1種を用いてもよく、2種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

【0073】

分子量調整剤の使用量は、ジヒドロキシ化合物100モルに対して、通常0.5モル以上、好ましくは1モル以上であり、また、通常50モル以下、好ましくは30モル以下である。分子量調整剤の使用量をこの範囲とすることで、得られるポリカーボネート樹脂組成物の熱安定性及び耐加水分解性を向上させることができる。

【0074】

反応の際に、反応基質、反応媒、触媒、添加剤等を混合する順番は、所望のポリカーボネート樹脂が得られる限り任意であり、適切な順番を任意に設定すればよい。例えば、カーボネート前駆体としてホスゲンを用いた場合には、分子量調整剤はジヒドロキシ化合物とホスゲンとの反応（ホスゲン化）の時から重合反応開始時までの間であれば任意の時期に混合できる。

【0075】

なお、反応温度は通常0～40℃であり、反応時間は通常は数分（例えば、10分）～数時間（例えば、6時間）である。

【0076】

< 溶融エステル交換法 >

次に、ポリカーボネート樹脂を溶融エステル交換法で製造する場合について説明する。溶融エステル交換法では、例えば、炭酸ジエステルとジヒドロキシ化合物とのエステル交換反応を行う。

【0077】

用いるジヒドロキシ化合物は、前述の通りである。

【0078】

一方、炭酸ジエステルとしては、例えば、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、ジ-tert-ブチルカーボネート等の炭酸ジアルキル化合物；ジフェニルカーボネート；ジトリルカーボネート等の置換ジフェニルカーボネートなどが挙げられる。中でも、ジフェニルカーボネート及び置換ジフェニルカーボネートが好ましく、特にジフェニルカーボネートがより好ましい。なお、炭酸ジエステルは1種を用いてもよく、2種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

【0079】

ジヒドロキシ化合物と炭酸ジエステルとの比率は所望のポリカーボネート樹脂が得られる限り任意であるが、ジヒドロキシ化合物1モルに対して、炭酸ジエステルを等モル量以上用いることが好ましく、中でも1.01モル以上用いることがより好ましい。なお、上限は通常1.30モル以下である。このような範囲にすることで、末端水酸基量を好適な範囲に調整できる。

【0080】

ポリカーボネート樹脂では、その末端水酸基量が熱安定性、加水分解安定性、色調等に

10

20

30

40

50

大きな影響を及ぼす傾向がある。このため、公知の任意の方法によって末端水酸基量を必要に応じて調整してもよい。エステル交換反応においては、通常、炭酸ジエステルとジヒドロキシ化合物との混合比率；エステル交換反応時の減圧度などを調整することにより、末端水酸基量を調整したポリカーボネート樹脂を得ることができる。なお、この操作により、通常は得られるポリカーボネート樹脂の分子量を調整することもできる。

#### 【0081】

炭酸ジエステルとジヒドロキシ化合物との混合比率を調整して末端水酸基量を調整する場合、その混合比率は前記の通りである。

#### 【0082】

また、より積極的な調整方法としては、反応時に別途、末端停止剤を混合する方法が挙げられる。この際の末端停止剤としては、例えば、一価フェノール類、一価カルボン酸類、炭酸ジエステル類などが挙げられる。なお、末端停止剤は、1種を用いてもよく、2種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

10

#### 【0083】

溶融エステル交換法によりポリカーボネート樹脂を製造する際には、通常、エステル交換触媒が使用される。エステル交換触媒は任意のものを使用できる。なかでも、例えばアルカリ金属化合物及び／又はアルカリ土類金属化合物を用いることが好ましい。また補助的に、例えば塩基性ホウ素化合物、塩基性リン化合物、塩基性アンモニウム化合物、アミン系化合物などの塩基性化合物を併用してもよい。なお、エステル交換触媒は、1種を用いてもよく、2種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

20

#### 【0084】

溶融エステル交換法において、反応温度は通常100～320である。また、反応時の圧力は通常2mmHg以下の減圧条件である。具体的操作としては、前記の条件で、芳香族ヒドロキシ化合物等の副生成物を除去しながら、溶融重縮合反応を行えばよい。

#### 【0085】

溶融重縮合反応は、バッチ式、連続式の何れの方法でも行うことができる。バッチ式で行う場合、反応基質、反応媒、触媒、添加剤等を混合する順番は、所望の芳香族ポリカーボネート樹脂が得られる限り任意であり、適切な順番を任意に設定すればよい。ただし、中でも、得られるポリカーボネート樹脂及びポリカーボネート樹脂組成物の安定性等を考慮すると、溶融重縮合反応は連続式で行うことが好ましい。

30

#### 【0086】

溶融エステル交換法においては、必要に応じて、触媒失活剤を用いてもよい。触媒失活剤としてはエステル交換触媒を中和する化合物を任意に用いることができる。その例を挙げると、イオウ含有酸性化合物及びその誘導体などが挙げられる。なお、触媒失活剤は、1種を用いてもよく、2種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

#### 【0087】

触媒失活剤の使用量は、前記のエステル交換触媒が含有するアルカリ金属又はアルカリ土類金属に対して、通常0.5当量以上、好ましくは1当量以上であり、また、通常10当量以下、好ましくは5当量以下である。更には、ポリカーボネート樹脂に対して、通常1ppm以上であり、また、通常100ppm以下、好ましくは20ppm以下である。

40

#### 【0088】

本発明で用いるポリカーボネート樹脂は、比較的安価で、工業的に入手しやすい原料を用いて製造することができることにより、上述のような溶融エステル交換法により製造されたものであることが好ましい。

#### 【0089】

#### [2-4. ポリカーボネート樹脂の構造粘性指数]

本発明におけるポリカーボネート樹脂は、構造粘性指数Nが所定範囲にあるポリカーボネート樹脂を一定割合以上含有することが好ましい。

構造粘性指数Nとは、溶融体の流動特性を評価する指標である。通常、ポリカーボネート樹脂の溶融特性は、数式： $\eta = a \cdot N$ により表示することができる。なお、前記式中

50

、 $\dot{\gamma}$  : 剪断速度、 $a$  : 定数、 $\sigma$  : 応力、 $N$  : 構造粘性指数、を表す。

#### 【0090】

上述の数式において、 $N = 1$  のときはニュートン流動性を示し、 $N$  の値が大きくなるほど非ニュートン流動性が大きくなる。つまり、構造粘性指数  $N$  の大小により溶融体の流動特性が評価される。一般に、構造粘性指数  $N$  が大きいポリカーボネート樹脂は、低剪断領域における溶融粘度が高くなる傾向がある。このため、構造粘性指数  $N$  が大きいポリカーボネート樹脂を別のポリカーボネート樹脂と混合した場合、得られるポリカーボネート樹脂組成物の燃焼時の滴下を抑制し、難燃性を向上させることができる。ただし、得られるポリカーボネート樹脂組成物の成形性を良好な範囲に維持するためには、このポリカーボネート樹脂の構造粘性指数  $N$  は過度に大きくないことが好ましい。

10

#### 【0091】

従って、本発明のポリカーボネート樹脂組成物におけるポリカーボネート樹脂は、構造粘性指数  $N$  が、通常  $1.2$  以上、好ましくは  $1.25$  以上、より好ましくは  $1.28$  以上であり、また、通常  $1.8$  以下、好ましくは  $1.7$  以下のポリカーボネート樹脂、好ましくは芳香族ポリカーボネート樹脂を一定割合以上含有することが好ましい。このように構造粘性指数  $N$  が高いポリカーボネート樹脂、特に芳香族ポリカーボネート樹脂を含有することにより、本発明のポリカーボネート樹脂組成物の燃焼時の滴下を抑制し、難燃性を向上させることができる。

#### 【0092】

なお、「構造粘性指数  $N$ 」は、例えば特開 2005 - 232442 号公報に記載されているように、上述の式を誘導した、 $\log \eta_a = \{ (1 - N) / N \} \times \log \eta_0 + C$  によって表示することも可能である。なお、前記式中、 $N$  : 構造粘性指数、 $\dot{\gamma}$  : 剪断速度、 $C$  : 定数、 $\eta_a$  : 見かけの粘度、を表す。この式から分かるように、粘度挙動が大きく異なる低剪断領域における  $\eta_0$  と  $\eta_a$  から  $N$  値を評価することもできる。例えば、 $\eta_0 = 12.16 \text{ sec}^{-1}$  及び  $\eta_a = 24.32 \text{ sec}^{-1}$  での  $\eta_a$  から  $N$  値を決定することができる。

20

#### 【0093】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物において、ポリカーボネート樹脂は、上述した構造粘性指数  $N$  が所定範囲にあるポリカーボネート樹脂（以下、このポリカーボネート樹脂を「所定  $N$  ポリカーボネート樹脂」と称す場合がある。）、好ましくは芳香族ポリカーボネート樹脂（以下、「所定  $N$  芳香族ポリカーボネート樹脂」と称す場合がある。）を、ポリカーボネート樹脂中、通常  $20$  質量%以上、好ましくは  $50$  質量%以上、より好ましくは  $60$  質量%以上含むことが望ましい。これは、所定  $N$  ポリカーボネート樹脂と組み合わせることにより、本発明に係る金属塩化合物及びポリカルボシラン化合物の特有の相乗効果を顕著に発揮することができるからである。なお、ポリカーボネート樹脂中の、所定  $N$  ポリカーボネート樹脂、好ましくは所定  $N$  芳香族ポリカーボネート樹脂の含有量の上限に制限は無く、通常  $100$  質量%以下であるが、好ましくは  $90$  質量%以下であり、より好ましくは  $85$  質量%以下である。

30

#### 【0094】

なお、所定  $N$  ポリカーボネート樹脂は、 $1$  種を用いてもよく、 $2$  種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

40

#### 【0095】

また、ポリカーボネート樹脂は、上述した所定  $N$  ポリカーボネート樹脂以外に、構造粘性指数  $N$  が上記の所定範囲外であるポリカーボネート樹脂を含んでいてもよい。その種類に制限は無いが、なかでも直鎖状ポリカーボネート樹脂が好ましい。所定  $N$  ポリカーボネート樹脂と直鎖状ポリカーボネート樹脂とを組み合わせることにより、得られるポリカーボネート樹脂組成物の難燃性（滴下防止性）と成形性（流動性）のバランスをとりやすいという利点が得られる。この観点から、ポリカーボネート樹脂は、所定  $N$  ポリカーボネート樹脂と、直鎖状ポリカーボネート樹脂とから構成されるものを用いることが特に好ましい。

なお、この直鎖状ポリカーボネート樹脂の構造粘性指数  $N$  は通常  $1 \sim 1.15$  程度であ

50



る。

【 0 0 9 6 】

ポリカーボネート樹脂が直鎖状ポリカーボネート樹脂を含む場合、ポリカーボネート樹脂に占める直鎖状ポリカーボネート樹脂の割合は、通常 8 0 質量 % 以下、好ましくは 5 0 質量 % 以下、より好ましくは 4 0 質量 % 以下であり、また、通常 0 質量 % より多く、好ましくは 1 0 質量 % 以上、より好ましくは 1 5 質量 % 以上である。ポリカーボネート樹脂中の直鎖状ポリカーボネート樹脂の含有量を上記範囲とすることにより、難燃剤としての金属塩化合物及びポリカルボシラン化合物やその他の添加剤の良好な分散性が得られやすく、難燃性、成形性に優れるポリカーボネート樹脂が得られやすいという利点を得られる。

【 0 0 9 7 】

なお、ポリカーボネート樹脂は、構造粘性指数 N が上記の所定範囲からはずれるポリカーボネート樹脂を、1 種だけ含んでいてもよく、2 種以上を任意の組み合わせ及び比率で含んでいてもよい。即ち、本発明に係るポリカーボネート樹脂は、直鎖状ポリカーボネート樹脂を、1 種だけ含んでいてもよく、2 種以上を任意の組み合わせ及び比率で含んでいてもよい。

【 0 0 9 8 】

[ 2 - 5 . 所定 N ポリカーボネート樹脂の製造方法 ]

所定 N ポリカーボネート樹脂は、前述のポリカーボネート樹脂の製造法に従って製造すればよい。この際、分岐構造を有するポリカーボネート樹脂（以下、適宜「分岐ポリカーボネート樹脂」という。）を製造するようにすると、所定 N ポリカーボネート樹脂が得られやすく、好ましい。分岐ポリカーボネート樹脂は構造粘性指数 N が高くなる傾向があるためである。

【 0 0 9 9 】

分岐ポリカーボネート樹脂の製造方法の例を挙げると、特開平 8 - 2 5 9 6 8 7 号公報、特開平 8 - 2 4 5 7 8 2 号公報等に記載の方法が挙げられる。これらの文献に記載の方法では、溶融エステル交換法により芳香族ジヒドロキシ化合物と炭酸ジエステルとを反応させる際、触媒の条件又は製造条件を選択することにより、分岐剤を使用することなく、構造粘性指数 N が高く、加水分解安定性に優れたポリカーボネート樹脂を得ることができる。

【 0 1 0 0 】

また、分岐ポリカーボネート樹脂を製造する他の方法として、前述のポリカーボネート樹脂の原料である、ジヒドロキシ化合物とカーボネート前駆体の他に、三官能以上の多官能性化合物（分岐剤）を用い、界面重合法又は溶融エステル交換法にて、これらを共重合する方法が挙げられる。

【 0 1 0 1 】

この場合に用いられる三官能以上の多官能性化合物としては、例えば、次のようなものが挙げられる。

【 0 1 0 2 】

1, 3, 5 - トリヒドロキシベンゼン（フロログルシン）、  
 4, 6 - ジメチル - 2, 4, 6 - トリ（4 - ヒドロキシフェニル）ヘプテン - 2、  
 4, 6 - ジメチル - 2, 4, 6 - トリ（4 - ヒドロキシフェニル）ヘプタン、  
 2, 6 - ジメチル - 2, 4, 6 - トリ（4 - ヒドロキシフェニル）ヘプテン - 3、  
 1, 3, 5 - トリ（4 - ヒドロキシフェニル）ベンゼン、  
 3, 3 - ビス（4 - ヒドロキシアリール）オキシインド - ル（即ち、イサチンビスフェノール）、  
 5 - クロロイサチン、  
 5, 7 - ジクロロイサチン、  
 5 - ブロムイサチン等；

【 0 1 0 3 】

$C_6H_5 - Si - (O - SiMe_2 - C_3H_6 - C_6H_4 - OH)_3、$

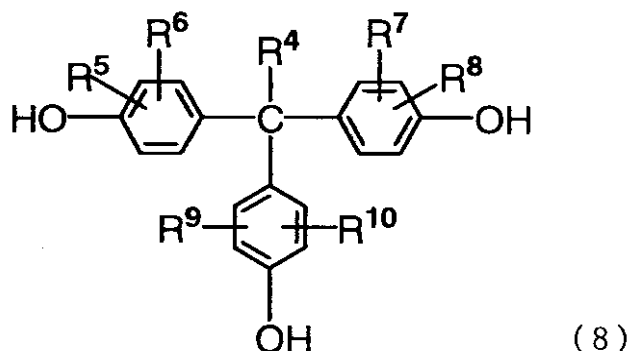
$C_6H_5 - Si - (O - SiPh_2 - C_3H_6 - C_6H_4 - OH)_3$ 、  
 $C_6H_5 - Si - (O - SiMe_2 - C_2H_4 - C_6H_4 - OH)_3$ 、  
 $C_6H_5 - Si - (O - SiPh_2 - C_2H_4 - C_6H_4 - OH)_3$ 、  
 $C_6H_5 - Si - ([O - SiMe_2]_5 - C_3H_6 - C_6H_4 - OH)_3$ 、  
 $C_6H_5 - Si - ([O - SiMe_2]_{10} - C_3H_6 - C_6H_4 - OH)_3$ 、  
 $C_6H_5 - Si - ([O - SiMe_2]_{50} - C_3H_6 - C_6H_4 - OH)_3$ 、  
 $C_6H_5 - Si - ([O - SiPh_2]_{50} - C_3H_6 - C_6H_4 - OH)_3$ 、  
 $C_6H_5 - Si - ([O - SiMe_2]_8 - [O - SiPh_2]_2 - C_3H_6 - C_6H_4 - OH)_3$ 、  
 $C_6H_5 - Si - ([O - SiMe_2]_{16} - [O - SiPh_2]_4 - C_3H_6 - C_6H_4 - OH)_3$ 、  
 等のケイ素原子含有トリスフェノール化合物（ここで、Me はメチル基、Ph はフェニル基を表す。）；

【0104】

下記式（8）～（9）で表されるトリスフェノール化合物等のポリヒドロキシ化合物類；

【0105】

【化6】

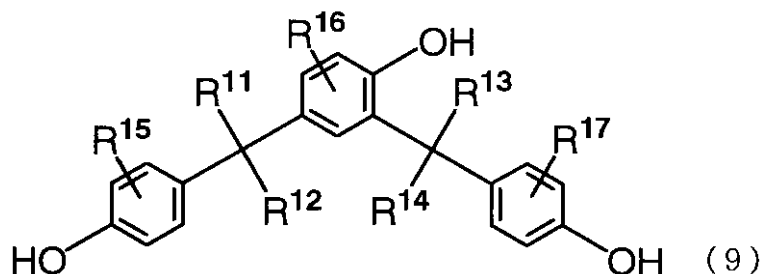


【0106】

（式（8）中、 $R^4$  は、炭素数 1 ～ 5 のアルキル基を表し、 $R^5$ 、 $R^6$ 、 $R^7$ 、 $R^8$ 、 $R^9$  及び  $R^{10}$  は、それぞれ独立に、水素原子又は炭素数 1 ～ 10 のアルキル基を表す。）

【0107】

【化7】



【0108】

式（9）中、 $R^{11}$ 、 $R^{12}$ 、 $R^{13}$  及び  $R^{14}$  は、それぞれ独立に、炭素数 1 ～ 10 のアルキル基、炭素数 5 ～ 10 のシクロアルキル基、又は炭素数 5 ～ 10 のシクロアリアル基を表し、 $R^{15}$ 、 $R^{16}$  及び  $R^{17}$  は、それぞれ独立に、水素原子又は炭素数 1 ～ 10 のアルキル基を表す。）

【0109】

式（8）で表される化合物の具体例としては、次のようなものが挙げられる。

1, 1, 1 - トリス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) - メタン、  
 1, 1, 1 - トリス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) - エタン、  
 1, 1, 1 - トリス ( 4 - ヒドロキシフェニル ) - プロパン、  
 1, 1, 1 - トリス ( 2 - メチル - 4 - ヒドロキシフェニル ) - メタン、  
 1, 1, 1 - トリス ( 2 - メチル - 4 - ヒドロキシフェニル ) - エタン、  
 1, 1, 1 - トリス ( 3 - メチル - 4 - ヒドロキシフェニル ) - メタン、  
 1, 1, 1 - トリス ( 3 - メチル - 4 - ヒドロキシフェニル ) - エタン、  
 1, 1, 1 - トリス ( 3, 5 - ジメチル - 4 - ヒドロキシフェニル ) - メタン、  
 1, 1, 1 - トリス ( 3, 5 - ジメチル - 4 - ヒドロキシフェニル ) - エタン等

## 【 0 1 1 0 】

10

式 ( 9 ) において  $R^{11}$ 、 $R^{12}$ 、 $R^{13}$  及び  $R^{14}$  としては、なかでもメチル基が好ましい。 $R^{11}$ 、 $R^{12}$ 、 $R^{13}$  及び  $R^{14}$  のシクロアルキル基のシクロアルキル環は、炭素 1 ~ 4 のアルキル基、好ましくはメチル基で置換されていてもよい。また、 $R^{15}$ 、 $R^{16}$  及び  $R^{17}$  は、なかでも水素原子が好ましい。

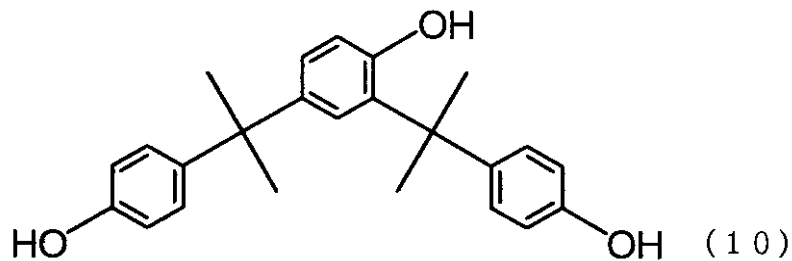
## 【 0 1 1 1 】

式 ( 9 ) で表される化合物としては、なかでも特に好ましい化合物として、下記式 ( 1 0 ) で表される化合物が挙げられる。

## 【 0 1 1 2 】

## 【 化 8 】

20



## 【 0 1 1 3 】

多官能性化合物は、前記原料ジヒドロキシ化合物の一部を置換して使用することができる。多官能性化合物の使用量は、ジヒドロキシ化合物に対して、通常 0 . 0 1 モル % 以上、好ましくは 0 . 1 モル % 以上であり、また、通常 1 0 モル % 以下、好ましくは 3 モル % 以下である。

30

## 【 0 1 1 4 】

なお、多官能性化合物は、1 種を用いてもよく、2 種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

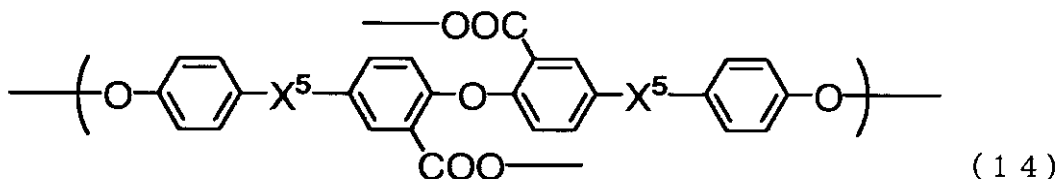
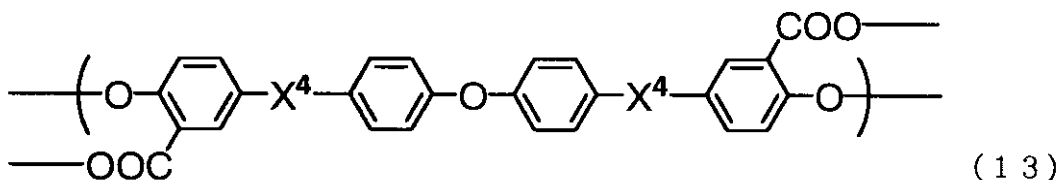
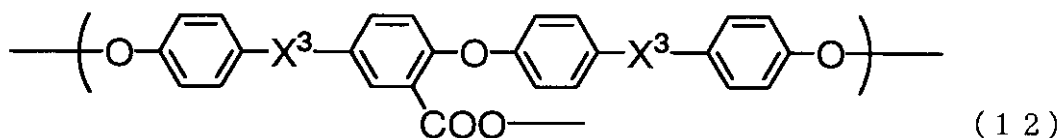
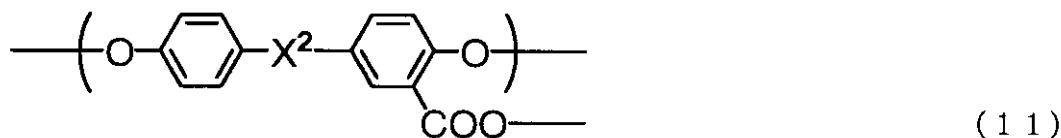
## 【 0 1 1 5 】

熔融エステル交換法によって得られた分岐ポリカーボネート樹脂に含まれる分岐構造は、例えば、下記式 ( 1 1 ) ~ ( 1 4 ) で表される構造が挙げられる。なお、下記式 ( 1 1 ) ~ ( 1 4 ) において、 $X^2$ 、 $X^3$ 、 $X^4$  及び  $X^5$  は、単結合、炭素数 1 ~ 8 のアルキレン基、炭素数 2 ~ 8 のアルキリデン基、炭素数 5 ~ 1 5 のシクロアルキレン基、炭素数 5 ~ 1 5 のシクロアルキリデン基、又は、- O -、- S -、- C O -、- S O -、- S O<sub>2</sub> - で示される二価の基からなる群より選ばれるものを示す。

40

## 【 0 1 1 6 】

## 【化 9】



## 【 0 1 1 7 】

分岐ポリカーボネート樹脂の製造方法としては、前述した方法の中でも、熔融エステル交換法による方法が特に好ましい。これは、前述のポリカーボネート樹脂の製造方法において記載したように、比較的安価で、工業的入手のしやすい原料により製造できるためである。

## 【 0 1 1 8 】

## [ 2 - 6 . ポリカーボネート樹脂に関するその他の事項 ]

本発明で用いるポリカーボネート樹脂の分子量は任意であり、適宜選択して決定すればよいが、溶液粘度から換算した粘度平均分子量  $[M_v]$  は、通常 10000 以上、好ましくは 16000 以上、より好ましくは 18000 以上であり、また、通常 40000 以下、好ましくは 30000 以下である。粘度平均分子量を上記範囲の下限値以上とすることにより、本発明のポリカーボネート樹脂組成物の機械的強度をより向上させることができ、機械的強度の要求の高い用途に用いる場合により好ましいものとなる。一方、粘度平均分子量を上記範囲の上限値以下とすることにより、本発明のポリカーボネート樹脂組成物の流動性低下を抑制して改善でき、成形加工性を高めて成形加工を容易に行えるようになる。なお、粘度平均分子量の異なる 2 種類以上のポリカーボネート樹脂を混合して用いてもよく、この場合には、粘度平均分子量が上記の好適な範囲外であるポリカーボネート樹脂を混合してもよい。

## 【 0 1 1 9 】

なお、粘度平均分子量  $[M_v]$  とは、溶媒としてメチレンクロライドを使用し、ウベローデ粘度計を用いて温度 20 での極限粘度  $[\eta]$  (単位  $\text{dl/g}$ ) を求め、Schne 11 の粘度式、すなわち、 $[\eta] = 1.23 \times 10^{-4} M_v^{0.83}$ 、から算出される値を意味する。また極限粘度  $[\eta]$  とは、各溶液濃度  $[C]$  ( $\text{g/dl}$ ) での比粘度  $[\eta_{sp}]$  を測定し、下記式により算出した値である。

## 【 0 1 2 0 】

【数 1】

$$\eta = \lim_{c \rightarrow 0} \eta_{sp} / c$$

【0121】

ポリカーボネート樹脂の末端水酸基濃度は任意であり、適宜選択して決定すればよいが、通常1000ppm以下、好ましくは800ppm以下、より好ましくは600ppm以下である。末端水酸基濃度がこの上限値以下であることにより、本発明のポリカーボネート樹脂組成物の滞留熱安定性及び色調をより向上させることができる。また、その下限は、特に溶融エステル交換法で製造されたポリカーボネート樹脂では、通常10ppm以上、好ましくは30ppm以上、より好ましくは40ppm以上である。末端水酸基濃度がこの下限値以上であることにより、分子量の低下を抑制し、本発明のポリカーボネート樹脂組成物の機械的特性をより向上させることができる。

10

【0122】

なお、末端水酸基濃度の単位は、ポリカーボネート樹脂の重量に対する、末端水酸基の重量をppmで表示したものである。その測定方法は、四塩化チタン/酢酸法による比色定量法(Macromol. Chem. 88 215 (1965)に記載の方法)である。

20

【0123】

ポリカーボネート樹脂は、ポリカーボネート樹脂単独(ポリカーボネート樹脂単独とは、ポリカーボネート樹脂の1種のみを含む態様に限定されず、例えば、モノマー組成や分子量、物性等が互いに異なる複数種のポリカーボネート樹脂を含む態様を含む意味で用いる。)で用いてもよく、ポリカーボネート樹脂と他の熱可塑性樹脂とを組み合わせアロイ(混合物)として用いてもよい。さらに、例えば、難燃性や耐衝撃性をさらに高める目的で、ポリカーボネート樹脂を、シロキサン構造を有するオリゴマー又はポリマーとの共重合体；熱酸化安定性や難燃性をさらに向上させる目的でリン原子を有するモノマー、オリゴマー又はポリマーとの共重合体；熱酸化安定性を向上させる目的で、ジヒドロキシアントラキノン構造を有するモノマー、オリゴマー又はポリマーとの共重合体；光学的性質を改良するためにポリスチレン等のオレフィン系構造を有するオリゴマー又はポリマーとの共重合体；耐薬品性を向上させる目的でポリエステル樹脂オリゴマー又はポリマーとの共重合体；等の、ポリカーボネート樹脂を主体とする共重合体として構成してもよい。

30

【0124】

また、成形品の外観の向上や流動性の向上を図るため、ポリカーボネート樹脂は、ポリカーボネートオリゴマーを含有していてもよい。このポリカーボネートオリゴマーの粘度平均分子量[M<sub>v</sub>]は、通常1500以上、好ましくは2000以上であり、また、通常9500以下、好ましくは9000以下である。この場合、本発明のポリカーボネート樹脂組成物中に含有されるポリカーボネートオリゴマーは、ポリカーボネート樹脂(ポリカーボネートオリゴマーを含む)の30質量%以下とすることが好ましい。

40

【0125】

さらにポリカーボネート樹脂は、バージン原料だけでなく、使用済みの製品から再生されたポリカーボネート樹脂(いわゆるマテリアルリサイクルされたポリカーボネート樹脂)であってもよい。この使用済みの製品としては、例えば、光学ディスク等の光記録媒体；導光板；自動車窓ガラス、自動車ヘッドランプレンズ、風防等の車両透明部材；水ボトル等の容器；メガネレンズ；防音壁、ガラス窓、波板等の建築部材などが挙げられる。また、製品の不適合品、スプルー、ランナー等から得られた粉碎品又はそれらを溶融して得たペレット等も使用可能である。

【0126】

ただし、再生されたポリカーボネート樹脂は、本発明のポリカーボネート樹脂組成物に

50

含まれるポリカーボネート樹脂のうち、80質量%以下であることが好ましく、中でも50質量%以下であることがより好ましい。再生されたポリカーボネート樹脂は、熱劣化や経年劣化等の劣化を受けている可能性が高いため、このようなポリカーボネート樹脂を上記上限値よりも多く用いた場合、色相や機械的物性を低下させる可能性があるためである。

【0127】

[3. 金属塩化合物]

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は金属塩化合物を含有する。このように金属塩化合物を含有することで、本発明のポリカーボネート樹脂組成物の難燃性を向上させることができる。

10

【0128】

金属塩化合物が有する金属の種類としては、リチウム(Li)、ナトリウム(Na)、カリウム(K)、ルビジウム(Rb)、セシウム(Cs)等のアルカリ金属である。

これは、本発明のポリカーボネート樹脂組成物の燃焼時の炭化層形成を促進し、難燃性をより高めることができると共に、ポリカーボネート樹脂が有する耐衝撃性等の機械的物性、耐熱性、電気的特性などの性質を良好に維持できるからである。従って、金属塩化合物としては、少なくとも1種のアルカリ金属塩化合物であり、ナトリウム塩化合物、カリウム塩化合物、セシウム塩化合物が特に好ましい。

【0129】

また、金属塩化合物としては、例えば、有機金属塩化合物、無機金属塩化合物などが挙げられるが、ポリカーボネート樹脂への分散性がよいという点から有機金属塩化合物が好ましい。

20

【0130】

有機金属塩化合物としては、ポリカーボネート樹脂と混合した場合の熱安定性の点から、有機スルホン酸金属塩が特に好ましい。

【0131】

有機スルホン酸金属塩の例を挙げると、有機スルホン酸リチウム(Li)塩、有機スルホン酸ナトリウム(Na)塩、有機スルホン酸カリウム(K)塩、有機スルホン酸ルビジウム(Rb)塩、有機スルホン酸セシウム(Cs)塩等が挙げられる。この中でも特に、有機スルホン酸ナトリウム(Na)塩、有機スルホン酸カリウム(K)塩化合物、有機スルホン酸セシウム(Cs)塩化合物等の有機スルホン酸アルカリ金属塩が好ましい。

30

【0132】

金属塩化合物のうち、好ましいものの例としては、含フッ素脂肪族スルホン酸の金属塩、芳香族スルホン酸の金属塩が挙げられる。その中でも好ましいものの具体例を挙げると、次の通りである。

【0133】

<含フッ素脂肪族スルホン酸の金属塩>

パーフルオロブタンスルホン酸カリウム、パーフルオロブタンスルホン酸リチウム、パーフルオロブタンスルホン酸ナトリウム、パーフルオロブタンスルホン酸セシウム、トリフルオロメタンスルホン酸リチウム、トリフルオロメタンスルホン酸ナトリウム、トリフルオロメタンスルホン酸カリウム、パーフルオロエタンスルホン酸カリウム、パーフルオロプロパンスルホン酸カリウム等の、分子中に少なくとも1つのC-F結合を有する含フッ素脂肪族スルホン酸のアルカリ金属塩；

40

【0135】

パーフルオロメタンジスルホン酸ジナトリウム、パーフルオロメタンジスルホン酸ジカリウム、パーフルオロエタンジスルホン酸ナトリウム、パーフルオロエタンジスルホン酸ジカリウム、パーフルオロプロパンジスルホン酸ジカリウム、パーフルオロイソプロパンジスルホン酸ジカリウム、パーフルオロブタンジスルホン酸ジナトリウム、パーフルオロブタンジスルホン酸ジカリウム、パーフルオロオクタンジスルホン酸ジカリウム等の、分子中に少なくとも1つのC-F結合を有する含フッ素脂肪族ジスルホン酸のアルカリ金属

50

塩；等

【 0 1 3 8 】

< 芳香族スルホン酸の金属塩 >

ジフェニルスルホン - 3 , 3 ' - ジスルホン酸ジカリウム、ジフェニルスルホン - 3 - スルホン酸カリウム、ベンゼンスルホン酸ナトリウム、( ポリ ) スチレンスルホン酸ナトリウム、パラトルエンスルホン酸ナトリウム、( 分岐 ) ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム、トリクロロベンゼンスルホン酸ナトリウム、ベンゼンスルホン酸カリウム、スチレンスルホン酸カリウム、( ポリ ) スチレンスルホン酸カリウム、パラトルエンスルホン酸カリウム、( 分岐 ) ドデシルベンゼンスルホン酸カリウム、トリクロロベンゼンスルホン酸カリウム、ベンゼンスルホン酸セシウム、( ポリ ) スチレンスルホン酸セシウム、パラトルエンスルホン酸セシウム、( 分岐 ) ドデシルベンゼンスルホン酸セシウム、トリクロロベンゼンスルホン酸セシウム等の、分子中に少なくとも 1 種の芳香族基を有する芳香族スルホン酸のアルカリ金属塩等

10

【 0 1 4 1 】

上述した例示物の中でも、含フッ素脂肪族スルホン酸金属塩が、特に好ましい。

【 0 1 4 2 】

また、含フッ素脂肪族スルホン酸金属塩としては分子中に少なくとも 1 つの C - F 結合を有する含フッ素脂肪族スルホン酸のアルカリ金属塩がより好ましく、パーフルオロアルカンスルホン酸のアルカリ金属塩が特に好ましく、具体的にはパーフルオロブタンスルホン酸カリウム等が好ましい。

20

【 0 1 4 3 】

芳香族スルホン酸のアルカリ金属塩としては、ジフェニルスルホン - 3 , 3 ' - ジスルホン酸ジカリウム、ジフェニルスルホン - 3 - スルホン酸カリウム等のジフェニルスルホン - スルホン酸のアルカリ金属塩；パラトルエンスルホン酸ナトリウム、パラトルエンスルホン酸カリウム、パラトルエンスルホン酸セシウム等のパラトルエンスルホン酸のアルカリ金属塩；が特に好ましく、パラトルエンスルホン酸のアルカリ金属塩がさらに好ましい。

【 0 1 4 4 】

なお、金属塩化合物は 1 種を用いてもよく、2 種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

30

【 0 1 4 5 】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物における金属塩化合物の含有量は、ポリカーボネート樹脂 100 質量部に対して、0 . 01 質量部以上、好ましくは 0 . 02 質量部以上、より好ましくは 0 . 03 質量部以上、特に好ましくは 0 . 05 質量部以上であり、1 質量部以下、好ましくは 0 . 75 質量部以下、より好ましくは 0 . 5 質量部以下、特に好ましくは 0 . 3 質量部以下である。金属塩化合物の含有量が少なすぎると得られるポリカーボネート樹脂組成物の難燃性が不十分となる可能性があり、逆に多すぎてもポリカーボネート樹脂組成物の熱安定性の低下、並びに、成形体の外観不良及び機械的強度の低下が生ずる可能性がある。

【 0 1 4 6 】

40

[ 4 . ポリカルボシラン化合物 ]

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、ポリカルボシラン化合物、即ち、主鎖にケイ素 - 炭素結合を有するケイ素化合物を含有する。本発明では、このポリカルボシラン化合物を金属塩化合物と同時に含有することで、本発明のポリカーボネート樹脂組成物の難燃性を著しく向上させることができる。また、本発明に係るポリカルボシラン化合物を用いることで、従来用いられているオルガノシロキサン ( シリコーン ) 化合物やポリシラン化合物と比較して、透明性や耐衝撃性、耐熱性に優れ、かつアウトガスや金型汚染性が低いポリカーボネート樹脂組成物が得られる。これは、以下の理由による。

【 0 1 4 7 】

従来用いられているオルガノシロキサン ( シリコーン ) は、主鎖が、ケイ素 - 酸素結合

50

からなるケイ素化合物である。また、ポリシラン化合物は、主鎖が、ケイ素 - ケイ素結合からなるケイ素化合物である。このため、これらのケイ素化合物は、無機的性質が強いため、有機樹脂であるポリカーボネート樹脂への相溶性が悪く、分散性に劣ることから、耐衝撃性等の機械物性を阻害しやすく、また透明性も得られにくい。

特に、オルガノシロキサンは、通常融点が低いためポリカーボネート樹脂へ配合させた場合、樹脂組成物の耐熱性を低下させやすい傾向にあり、またアウトガスが多く、それに伴い金型汚染を引き起こしやすい。さらに、透明性を得ようと、比較的分子量の小さいものを選択すると、アウトガスや金型汚染はますます増加する。一方、ポリシラン化合物は、耐熱性の点ではオルガノシロキサン化合物と比較し、改善される傾向にあるものの、上記と同様の理由から、機械物性の低下が著しく、透明性が得られにくく、さらにアウトガスや金型汚染も多い。

10

#### 【 0 1 4 8 】

これに対し、主鎖にケイ素 - 炭素結合を有するポリカルボシラン化合物は、主鎖に有機成分（有機残基）を含有するため、有機的性質が強くなる。このため、オルガノシロキサンやポリシラン化合物と比較し、ポリカーボネート樹脂への分散性が著しく向上し、耐衝撃性等の機械物性の低下や、透明性を阻害することなく難燃性を向上させることができる。また、本発明に係るポリカルボシラン化合物は、耐熱性にも優れるため、ポリカーボネート樹脂組成物の耐熱性の低下が少なく、アウトガス、金型汚染等を著しく少なくすることができる。

#### 【 0 1 4 9 】

20

また、従来、オルガノシロキサン（シリコーン）化合物を用いて難燃性を向上させる手法においては、オルガノシロキサンが持つ、ケイ素 - 酸素結合が燃焼時に  $\text{SiO}_2$  成分となって難燃性を向上させるため重要であると考えられてきた。しかしながら、本発明者が検討したところ、オルガノシロキサンでは、ケイ素 - 酸素結合よりも、ケイ素原子と側鎖（例えば、メチル基、フェニル基）との結合、つまりケイ素 - 炭素結合が、難燃性に深く寄与することが明らかとなった。これは、燃焼時に、ケイ素 - 炭素結合が解裂し、有機成分がガス化することによって、発泡層を形成するためと推察される。

本発明に係るポリカルボシラン化合物は、側鎖の他に、主鎖にもケイ素 - 炭素結合を含有するため、オルガノシロキサンやポリシラン化合物と比較し、効率的に難燃性を高められるという利点も持つ。

30

#### 【 0 1 5 0 】

本発明における、ポリカルボシラン化合物は、本発明の目的を損なわない限り、主鎖に、ケイ素原子と炭素以外の原子との結合を含んでいてもよい。このような結合としては、例えば、ケイ素 - ケイ素（ $\text{Si} - \text{Si}$ ）結合、ケイ素 - 酸素（ $\text{Si} - \text{O}$ ）結合、ケイ素 - 窒素（ $\text{Si} - \text{N}$ ）結合、ケイ素 - ホウ素（ $\text{Si} - \text{B}$ ）結合、ケイ素 - リン（ $\text{Si} - \text{P}$ ）結合、ケイ素 - チタン（ $\text{Si} - \text{Ti}$ ）結合等が挙げられる。このような、結合は、実質的にケイ素 - 炭素結合のみからなるケイ素化合物を製造する場合に、原料、触媒等の成分より導入される他、非意図的に酸化作用等によって導入される可能性がある。

#### 【 0 1 5 1 】

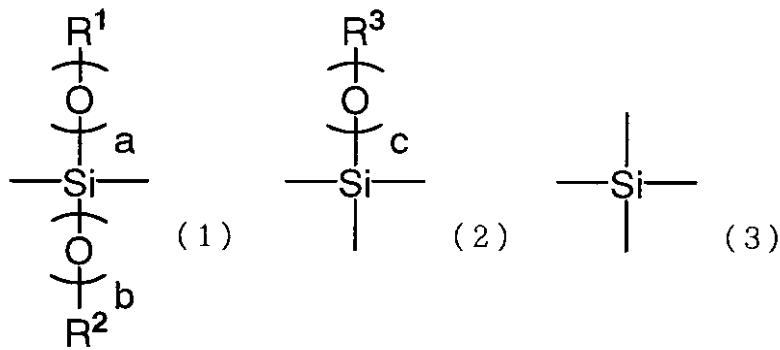
本発明に用いるポリカルボシラン化合物は、主鎖にケイ素 - 炭素結合（ $\text{Si} - \text{C}$  結合）を有する繰り返し単位を 2 以上有するものであれば、その化学構造、形態に特に制限はないが、ケイ素又はケイ素 - ケイ素結合単位と、炭化水素残基とが交互に連続してなる主鎖構造を有するケイ素化合物、なかでも、下記式（1）～（3）で表される構造単位のうちの少なくとも 1 種の構造単位と炭化水素残基とからなる主鎖構造を有するものである。

40

#### 【 0 1 5 2 】



## 【化 10】



10

## 【0153】

(式(1)～(3)中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ は、それぞれ独立に、一価炭化水素基、水素原子、又はシリル基を表し、 $a$ 、 $b$ 、 $c$ は、それぞれ独立に、0又は1を表す。主鎖構造に含まれる複数の $R^1$ 、 $R^2$ 及び $R^3$ は、それぞれ同一であっても異なるものであってもよい。)

## 【0154】

このようなポリカルボシラン化合物としては、例えば、上記式(1)で表される構造単位と炭化水素残基とからなる直鎖状、又は環状ポリカルボシラン化合物、上記式(2)又は(3)で表される構造単位と炭化水素残基とからなる分岐状、又は網目状ポリカルボシラン化合物、上記式(1)～(3)で表される構造単位の組合せ、例えば式(1)と式(2)、式(1)と式(3)、式(2)と式(3)、式(1)～(3)、と炭化水素残基とからなるポリカルボシラン化合物等が挙げられる。なかでも、上記式(1)で表される構造単位と二価炭化水素残基とからなる主鎖構造を有する直鎖状ポリカルボシラン化合物が、ポリカーボネート樹脂への分散性に優れる傾向にあるため好ましいが、該直鎖状ポリカルボシラン化合物が、分岐、網目状になっていてもよい。

20

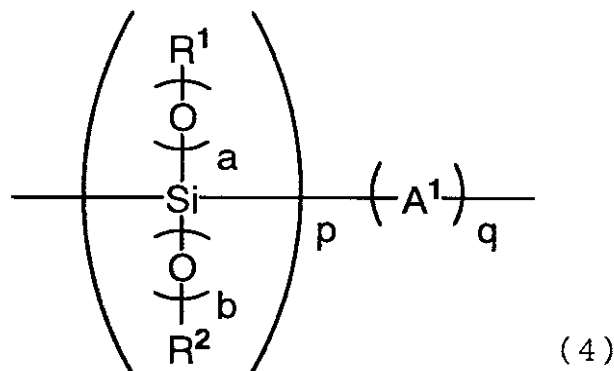
## 【0155】

上述のような式(1)で表される構造単位と二価炭化水素残基とからなる主鎖構造を有する直鎖状ポリカルボシラン化合物としては、なかでも、下記式(4)で表される繰り返し単位を有するものが好ましい。

30

## 【0156】

## 【化 11】



40

## 【0157】

(式(4)中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $a$ 、 $b$ 、は前記式(1)におけると同義であり、 $A^1$ は、炭素数1～12の二価炭化水素基を表し、 $p$ 、 $q$ は、それぞれ独立に、1～8の整数を表す。 $R^1$ 、 $R^2$ 及び $A^1$ は、それぞれ全ての繰り返し単位において同一であっても異なってもよい。)

## 【0158】

上記式(4)において、 $p$ 、 $q$ はそれぞれ1～8の整数を表すが、 $p$ 、 $q$ はそれぞれ、

50

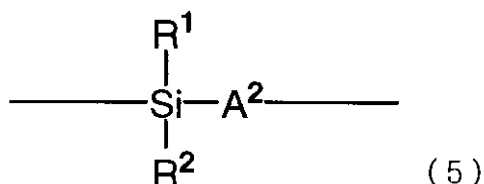
1 ~ 4であることがより好ましく、1又は2であることがより好ましく、1であることが好ましい。

【0159】

このような直鎖状ポリカルボシラン化合物としては、下記式(5)で表される繰り返し単位を有するものが好ましい。このような直鎖状構造を有することで、ポリカーボネート樹脂への分散性が向上し、本発明のポリカーボネート樹脂組成物の透明性や機械物性が向上する傾向にある。

【0160】

【化12】



10

【0161】

(式(5)中、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ は前記式(4)におけると同義であり、 $\text{A}^2$ は炭素数1~12のアルキレン基を表す。 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ 及び $\text{A}^2$ は、それぞれ全ての繰り返し単位において同一であっても異なってもよい。)

20

【0162】

前記式(1)~(5)において、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ 、及び $\text{R}^3$ で表される基は、一価炭化水素基、水素原子、及びシリル基から選ばれる少なくとも1種を表す。一価炭化水素基としては、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、アリール基、アラルキル基等が挙げられるが、なかでもアルキル基、アリール基が好ましく、アルキル基が特に好ましく、メチル基がさらに好ましい。なお、上記 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ 、及び $\text{R}^3$ で表される置換基は、それぞれ全ての繰り返し単位において同一であっても2以上が異なってもよい。

【0163】

上記アルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、*t*-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、デシル基、ドデシル基等が挙げられるが、通常炭素数1~12のアルキル基が好ましく、なかでもメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、*t*-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基等の炭素数1~6のアルキル基が好ましく、メチル基が特に好ましい。

30

【0164】

シクロアルキル基としては、例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等の炭素数5~14のシクロアルキル基が挙げられるが、なかでも炭素数5~8のシクロアルキル基が好ましい。

【0165】

アルケニル基としては、例えば、ビニル基、アリル基等の炭素数2~8のアルケニル基が挙げられ、シクロアルケニル基としては、例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等の炭素数5~12のシクロアルケニル基が挙げられる。

40

【0166】

アルキニル基としては、例えば、エチニル基、プロピニル基等の炭素数2~8のアルキニル基やエチニルベンゼン基等のアリールアルキニル等も挙げられる。

【0167】

アリール基としては、例えば、フェニル基、メチルフェニル(即ち、トリル)基、ジメチルフェニル(即ち、キシリル)基、ナフチル基等の炭素数6~20のアリール基が挙げられるが、なかでも炭素数6~10のアリール基が好ましく、フェニル基が特に好ましい。

50

また、アラルキル基としては、例えば、ベンジル基、フェネチル基、フェニルプロピル基等の炭素数 6 ~ 20 のアラルキル基が挙げられるが、なかでも炭素数 6 ~ 10 のアラルキル基が好ましく、ベンジル基が特に好ましい。

【0168】

シリル基としては、例えば、シリル基、ジシラニル基、トリシラニル基等のケイ素数 1 ~ 10 のシリル基が挙げられるが、中でもケイ素数 1 ~ 6 のシリル基が好ましい。前記シリル基である場合は、その水素原子の少なくとも 1 つがアルキル基、アリール基、アルコキシ基等の官能基で置換されていてもよい。

【0169】

上記式 (1) ~ (5) における、 $R^1$ 、 $R^2$ 、及び  $R^3$  で表される置換基としては、それぞれ独立に、なかでも一価炭化水素基、又は水素原子であることがより好ましく、アルキル基、又は水素原子がさらに好ましく、メチル基、又は水素原子であることが特に好ましい。

10

【0170】

また、上記式 (1) ~ (4) における、a、b、及び c は、0 又は 1 を表す。a、b、及び c が、0 の場合、ポリカルボシラン化合物のケイ素原子が、置換基として、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、シクロアルケニル基、アルキニル基、アリール基、アラルキル基、又はシリル基を有するか、或いは無置換（水素原子を有する）であることを意味し、a、b、及び c が 1 の場合は、ポリカルボシラン化合物のケイ素原子が、置換基として、アルコキシ基、シクロアルキルオキシ基、アルケニルオキシ基、シクロアルケニルオキシ基、アルキニルオキシ基、アリールオキシ基、アラルキルオキシ基、又は水酸基を有することを意味する。ポリカルボシラン化合物の耐熱性の観点からは、a、b、及び c は、0 であることが好ましいが、樹脂との親和性を改善する為に意図的に、あるいは酸化作用等によって非意図的に、1 となってもよい。

20

【0171】

一方、前述の式 (1) ~ (3) で表される構造単位と結合してポリカルボシラン化合物の主鎖構造を構成する炭化水素残基としては、特に制限はなく、直鎖であっても分岐鎖、環式構造を有していてもよく、また飽和結合のみならず不飽和結合を含んでいてもよい。また、炭素原子、水素原子以外に、酸素原子、窒素原子、硫黄原子、リン原子、フッ素原子等のヘテロ原子を含んでいてもよい。なかでも二価 ~ 四価の炭化水素基が好ましく、二価炭化水素基が特に好ましい。

30

【0172】

前記式 (1) ~ (3) で表される構造単位に結合してポリカルボシラン化合物の主鎖構造を構成する二価炭化水素残基としては、具体的には次のような直鎖又は分岐状の二価炭化水素残基が挙げられる。

【0173】

メチレン基、エチレン基、トリメチレン基、プロピレン基、イソプロピリデン基、テトラメチレン基、イソブチレン基、tert-ブチレン基、イソブチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、オクタメチレン基等の炭素数 1 ~ 12 のアルキレン基；

【0174】

エチリデン基、プロピリデン基、ブチリデン基、sec-ブチリデン基、イソヘキシリデン基等の炭素数 2 ~ 12 のアルキリデン基；

40

【0175】

シクロペンチレン基、シクロヘキシレン基、メチルシクロヘキシレン基、トリメチルシクロヘキシレン基、シクロヘプチレン基、シクロオクチレン基、シクロノニレン基、シクロデシレン基等の炭素数 3 ~ 12 のシクロアルキレン基；

【0176】

ビニレン基、プロペニレン基、1-ブテニレン基、2-ブテニレン基、1,3-ブタジエニレン基、1-メチルプロペニレン基、1-メチル-2-プロペニレン基、1-ペンテニレン基、2-ペンテニレン基、1,3-ペンタジエニレン基、1,4-ペンタジエニレ

50

ン基、1 - メチルブテニレン基、1 - メチル - 1, 2 - ブタジエニレン基、1 - ヘキセニレン基、2 - ヘキセニレン基、3 - ヘキセニレン基、1 - メチルペンテニレン基、2 - メチル - 2 - ペンテニレン基、1, 1 - ジメチル - 2 - プロペニレン基、1 - エチル - 2 - プロペニレン基、1, 2 - ジメチルプロペニレン基、1 - メチル - 1 - ブテニレン基、1 - ヘブテニレン基、1 - メチルヘキセニレン基、2 - メチル - 2 - ヘキセニレン基、1, 2 - ジメチルペンテニレン基、1 - オクテニレン基、2 - オクテニレン基、3 - ノネニレン基、4 - デセニレン基等の炭素数 2 ~ 12 のアルケニレン基；

【0177】

ビニリデン基、プロピニリデン基、アリリデン基等の炭素数 2 ~ 12 のアルケニリデン基；

10

【0178】

1 - シクロプロペニレン基、2 - シクロペンテニレン基、2, 4 - シクロペンタジエニレン基、1 - シクロヘキセニレン基、2 - シクロヘキセニレン基、1 - シクロヘブテニレン基、2 - シクロノネニレン基、3 - シクロデセニレン基、2 - シクロドデセニレン基等の炭素数 3 ~ 12 のシクロアルケニレン基；

【0179】

エチニレン基、1, 3 - (1 - プロピニレン) 基、3, 3 - (1 - プロピニレン) 基、1, 4 - (1 - ブチニレン) 基、1, 5 - (1 - ペンチニレン) 基、1, 6 - (1 - ヘキシニレン) 基、1, 12 - (1 - ドデシニレン) 基等の炭素数 2 ~ 12 のアルキニレン基；

20

【0180】

o - フェニレン基、m - フェニレン基、p - フェニレン基、メチルフェニレン基、ジメチルフェニレン基、p - キシレン - , ' - ジイル基、ピフェニレン基、ナフチレン基等の炭素数 6 ~ 12 のアリーレン基；

【0181】

- CH<sub>2</sub> - C<sub>6</sub>H<sub>4</sub> - 、 - CH<sub>2</sub> - C<sub>6</sub>H<sub>4</sub> - CH<sub>2</sub> - 、 - CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub> - C<sub>6</sub>H<sub>4</sub> - 、 - CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub> - C<sub>6</sub>H<sub>4</sub> - CH<sub>2</sub> - 、 - CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub> - C<sub>6</sub>H<sub>4</sub> - 、 - CH(CH<sub>3</sub>)CH<sub>2</sub> - C<sub>6</sub>H<sub>4</sub> - 、 - CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub> - C<sub>6</sub>H<sub>4</sub> - 、 - CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH(CH<sub>3</sub>) - C<sub>6</sub>H<sub>4</sub> - 等の炭素数 6 ~ 12 のアラルキレン基；等

【0182】

また、前記式 (1) ~ (3) で表される構造単位と結合してポリカルボシラン化合物の主鎖構造を構成する三価炭化水素基としては、下記式 (15) ~ (16) で表されるものが挙げられる。

【0183】

【化13】



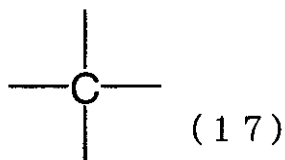
40

【0184】

また、前記式 (1) ~ (3) で表される構造単位と結合してポリカルボシラン化合物の主鎖構造を構成する四価炭化水素基としては、下記式 (17) で表されるものが挙げられる。

【0185】

## 【化 1 4】



## 【0 1 8 6】

炭化水素残基としては、前述の如く、二価炭化水素基であることが好ましく、なかでもアルキレン基、アルケニレン基、アルキニレン基、アリーレン基が好ましく、アルキレン基、アリーレン基が特に好ましく、アルキレン基が最も好ましい。また、アルキレン基としては、炭素数 1 ~ 8 のアルキレン基がより好ましく、炭素数 1 ~ 4 のアルキレン基が特に好ましく、メチレン基が最も好ましい。

10

## 【0 1 8 7】

なお、前記式 (4) における  $A^1$  は、炭素数 1 ~ 12 の直鎖又は分岐状の二価炭化水素基を表し、具体的には上述の二価炭化水素残基が挙げられる。また、前記式 (5) における  $A^2$  は、炭素数 1 ~ 12 のアルキレン基を表し、具体的には上述の炭素数 1 ~ 12 のアルキレン基が挙げられる。 $A^1$ 、 $A^2$  のアルキレン基としては、炭素数 1 ~ 8 のアルキレン基がより好ましく、炭素数 1 ~ 4 のアルキレン基が特に好ましく、メチレン基が最も好ましい。

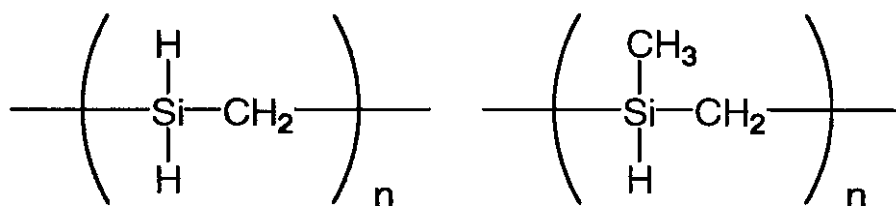
20

## 【0 1 8 8】

本発明で用いられるポリカルボシラン化合物の例を挙げると、以下に示す繰り返し単位を有するものが挙げられる。ただし、ポリカルボシラン化合物は以下の例示物に限定されるものではない。また、本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、ポリカルボシラン化合物を 1 種類だけ含有していてもよく、2 種類以上を任意の組み合わせ及び任意の比率で含んでいてもよい。

## 【0 1 8 9】

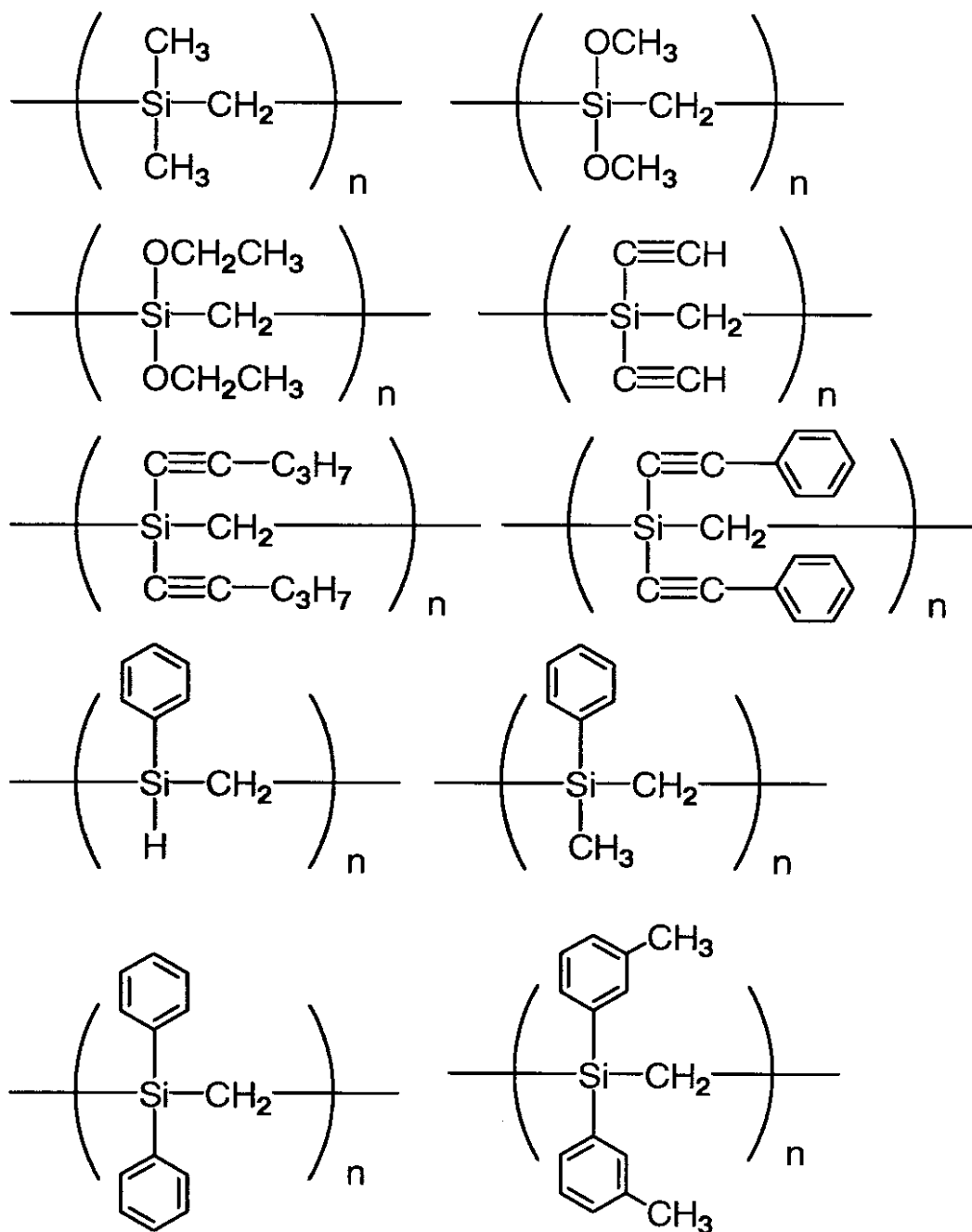
## 【化 1 5】



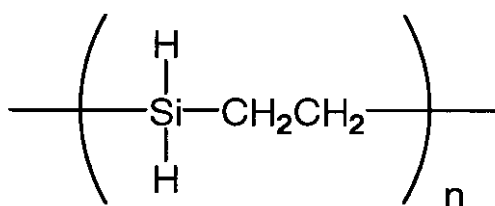
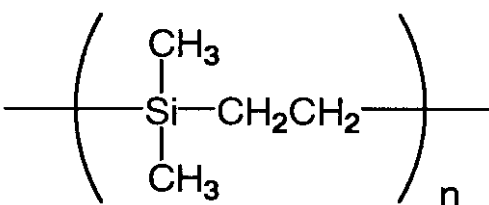
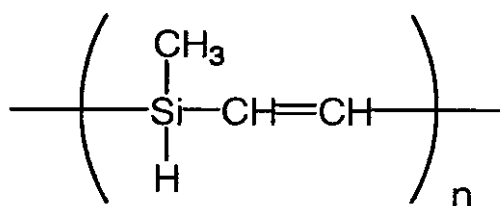
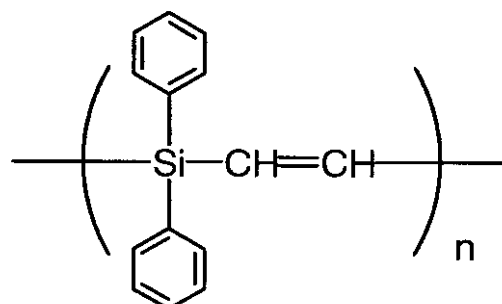
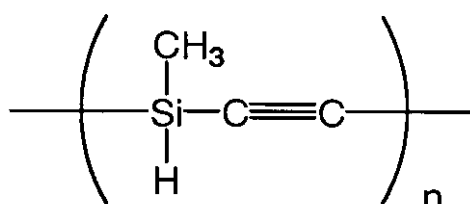
30

## 【0 1 9 0】

【化 1 6】

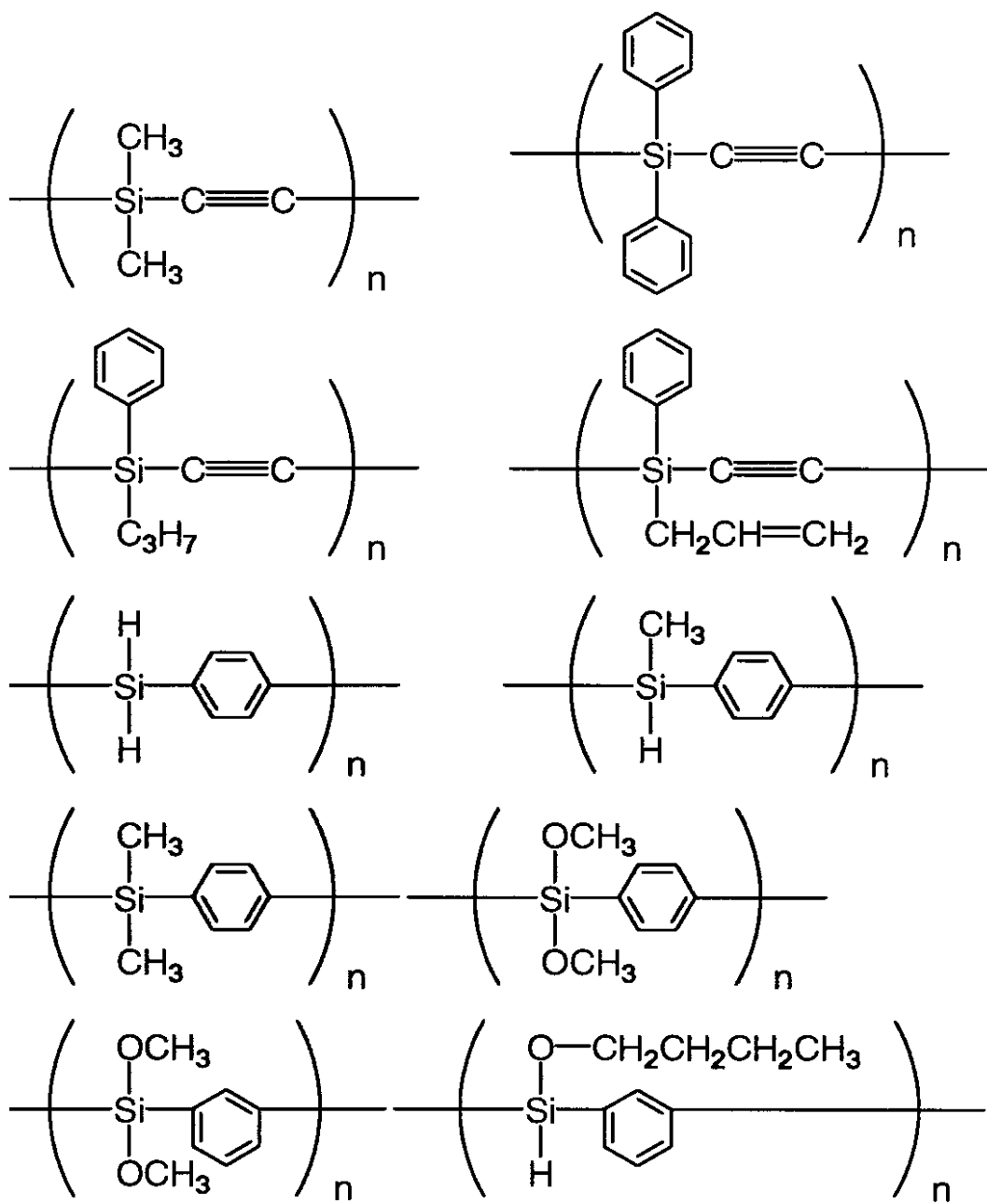


【 0 1 9 1 】

Cc1ccc(cc1)[Si](C)(C)CC2=CC=CC=C2
$$\left( \begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ | \\ \text{---Si---CH}_2\text{CH}_2\text{---} \\ | \\ \text{H} \end{array} \right)_n \quad \text{---} \quad \left( \begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ | \\ \text{---Si---CH}_2\text{CH}_2\text{---} \\ | \\ \text{CH}_3 \end{array} \right)_n$$

$$\left( \begin{array}{c} \text{H} \\ | \\ \text{---Si---CH=CH---} \\ | \\ \text{H} \end{array} \right)_n \quad \left( \begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ | \\ \text{---Si---CH=CH---} \\ | \\ \text{H} \end{array} \right)_n$$

$$\left( \begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ | \\ \text{---Si---CH=CH---} \\ | \\ \text{CH}_3 \end{array} \right)_n$$

$$\left( \begin{array}{c} \text{H} \\ | \\ \text{---Si---} \\ | \\ \text{H} \end{array} \text{C} \equiv \text{C} \right)_n$$


【 0 1 9 2 】

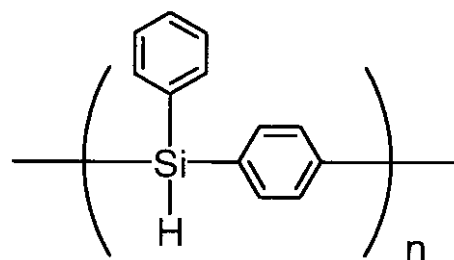
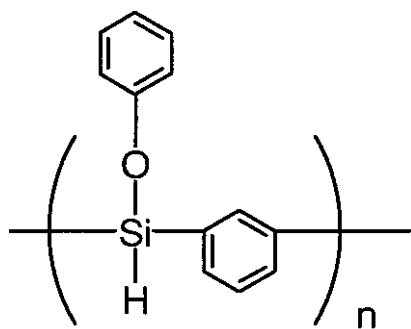
【化 1 8】



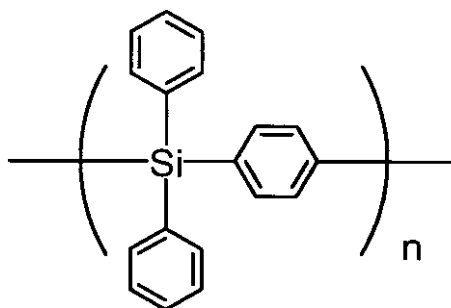
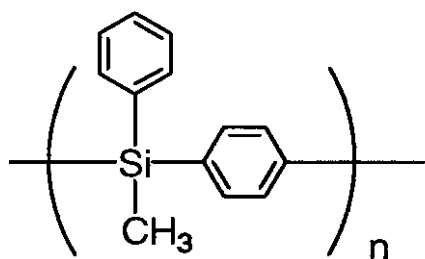
【 0 1 9 3】



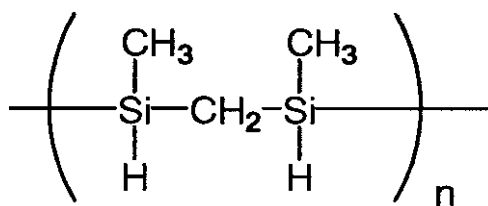
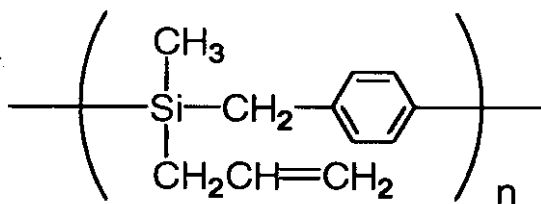
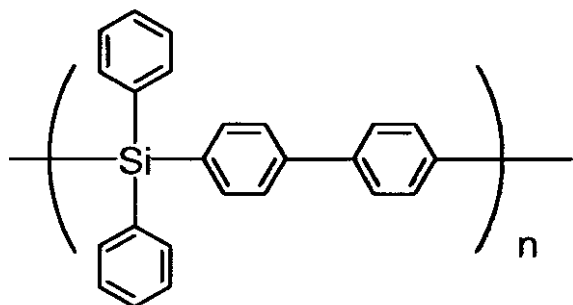
【化 1 9】



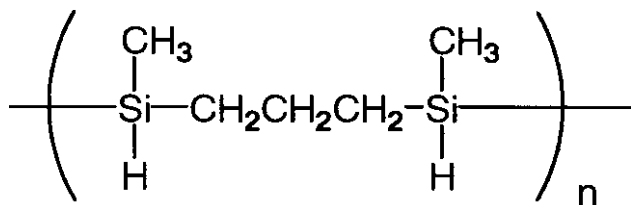
10



20



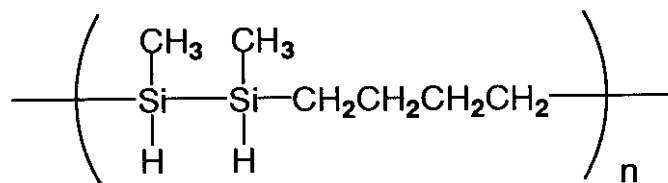
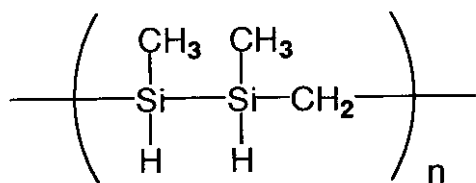
30



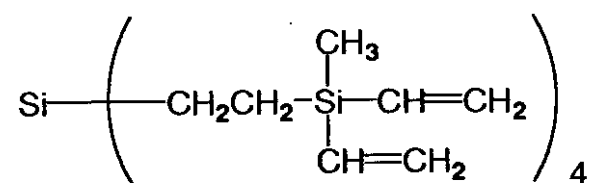
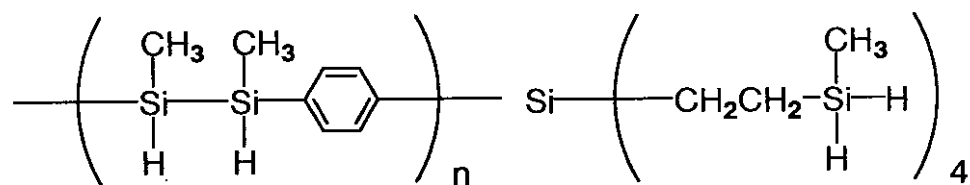
40

【 0 1 9 4 】

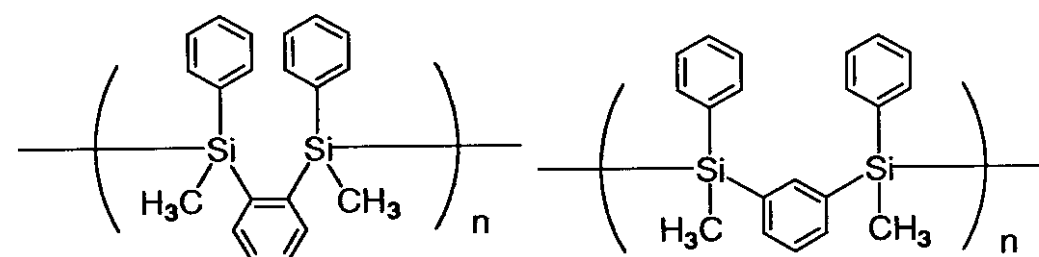
【化 20】



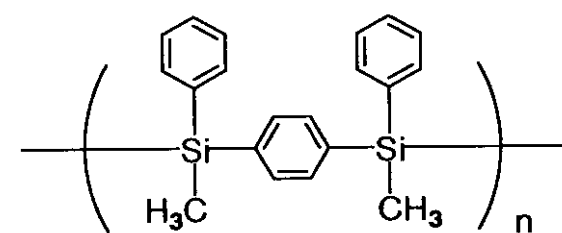
10



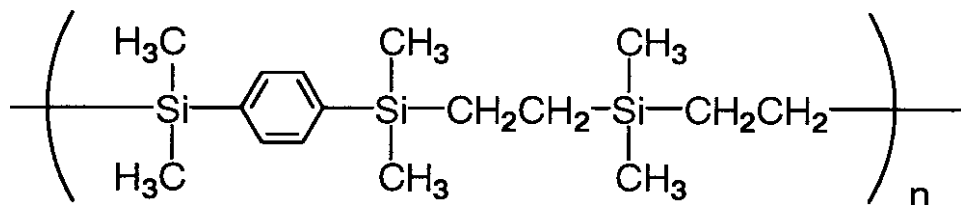
20



30

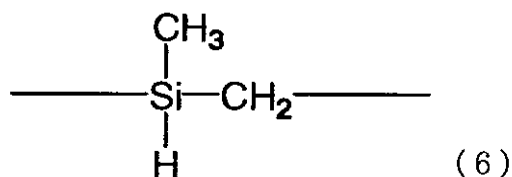


【0195】

$$\left( \begin{array}{c} \text{H}_3\text{C} \\ | \\ \text{---Si---} \\ | \\ \text{H}_3\text{C} \end{array} \text{---} \text{C}_6\text{H}_4 \text{---} \begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ | \\ \text{---Si---} \\ | \\ \text{CH}_3 \end{array} \text{---CH}_2\text{CH}_2 \right)_n$$

$$\left( \text{H}_3\text{C}-\text{Si}(\text{H}_3\text{C})_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{Si}(\text{CH}_3)_2-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{Si}(\text{CH}_3)(\text{C}_6\text{H}_5)-\text{CH}_2\text{CH}_2 \right)_n$$

なかでも、下記式(6)で表される繰り返し単位を有するポリカルボシラン化合物が特に好ましい。このようなポリカルボシラン化合物は、ポリジメチルシランの熱分解によって、容易に得られやすく、収率も高いため、工業的メリットが大きい。

【化 2 2】



なお、上記例示式において、 $n$ は、ポリカルボシラン化合物の重合度を表し、通常2以上、より好ましくは3以上、特に好ましくは5以上、さらに好ましくは10以上であり、また通常2000以下、より好ましくは500以下、特に好ましくは100以下、さらに好ましくは50以下である。 $n$ を上記範囲の下限値以上とすることで本発明のポリカーボネート樹脂組成物のアウトガスの発生や金型汚染を低減することができ、好ましいものとなる。一方、 $n$ を上記範囲の上限値以下とすることで、本発明のポリカーボネート樹脂に対する分散性が向上し、本発明のポリカーボネート樹脂組成物の機械物性も向上する傾向にある。

本発明に係るポリカルボシラン化合物の分子量は任意であり、適宜選択して決定すればよいが、数平均分子量  $[M_n]$  として、通常 100 以上、好ましくは 200 以上、より好ましくは 300 以上、特に好ましくは 500 以上であり、また通常 20000 以下、好ましくは 10000 以下、より好ましくは 5000 以下、特に好ましくは 3000 以下である。数平均分子量を上記範囲の下限値以上とすることで本発明のポリカーボネート樹脂組成物のアウトガスや金型汚染を低減することができ、好ましいものとなる。一方、数平均

50

分子量を上記範囲の上限値以下とすることで、本発明のポリカーボネート樹脂組成物の流動性低下を抑制して改善でき、成形加工性を高めて成形加工を容易に行えるようになるほか、機械物性も向上する傾向にある。なお、数平均分子量の異なる２種類以上のポリカルボシラン化合物を混合して用いてもよく、この場合には、数平均分子量が上記の好適な範囲外であるポリカルボシラン化合物を混合してもよい。

【０２００】

なお、ここで数平均分子量〔 $M_n$ 〕とは、溶媒としてテトラヒドロフランを使用し、温度４０℃の条件で、ゲル浸透クロマトグラフィー（GPC）（装置：Tosho 8020、カラム：Tosoh TSK gel Multipore Hx1-M）にて測定した値である。

10

【０２０１】

また、本発明に係るポリカルボシラン化合物の融点は任意であり、適宜選択して決定すればよいが、通常２０℃以上、好ましくは３０℃以上、より好ましくは４０℃以上、特に好ましくは６０℃以上であり、また通常５００℃以下、好ましくは３００℃以下、より好ましくは２８０℃以下、特に好ましくは２６０℃以下である。融点を上記範囲の下限値以上とすることで本発明のポリカーボネート樹脂組成物の金型汚染を低減することができ、好ましいものとなる。一方、融点を上記範囲の上限値以下とすることで、本発明のポリカーボネート樹脂に対する分散性が向上し、本発明のポリカーボネート樹脂組成物の機械物性も向上する傾向にある。なお、融点の異なる２種類以上のポリカルボシラン化合物を混合して用いてもよく、この場合には、融点が上記の好適な範囲外であるポリカルボシラン化合物を混合してもよい。

20

【０２０２】

本発明に係るポリカルボシラン化合物の製造方法は、任意であり、適宜選択して決定すればよいが、なかでも直接合成法、熱分解法等が挙げられる。

直接合成法としては、例えば、アルカリ金属等の触媒下、少なくとも１種のジハロゲンシラン及び少なくとも１種のジハロゲン炭化水素を共縮合する手法が挙げられる。このとき、反応は、一般に、溶媒を用いたアルカリ金属等の触媒の懸濁液中で行われる。該懸濁液に用いられる溶媒としては、例えば好ましくは炭化水素系溶媒が挙げられ、より好ましくはトルエン、キシレン、デカリン等が挙げられる。該触媒懸濁液中にその他の成分（ジハロゲンシラン、ジハロゲン炭化水素）を導入し、反応を行った後、それぞれ適当な方法によって反応混合物から目的物を得ることができる。ポリカルボシラン化合物が、例えば溶媒中で溶解性である場合は、他の不溶解成分は濾過によって分離されることがある。次に、溶媒中に残留するポリカルボシラン化合物は水を用いて洗浄されることによって浄化され、かつ溶媒を除去されることによって粉末に乾燥することができる。一方、合成されたポリカルボシラン化合物が溶媒中で不溶解性である場合には、ポリカルボシラン化合物は適当な溶媒によって抽出され、引続き水を用いた洗浄によって浄化され、かつ溶媒の除去によって粉末状に乾燥することができる。

30

【０２０３】

また、熱分解法としては、例えば、テトラメチルシラン等のアルキルシランやポリジメチルシラン（ポリメチルシリレン）等のポリシランを、高温で加熱することにより、熱分解転移反応によってポリカルボシラン化合物を得る手法が挙げられる。なお、この際の加熱温度は、一般に３５０～１０００℃であり、より好ましくは４００～８００℃である。また、反応は常圧下で行っても、高圧下で行ってもよいが、高圧化で行う方が、収率が向上する傾向にあるため好ましい。また、ポリボロジフェニルシロキサン等のホウ素化合物を触媒量添加することも好ましい。前記、ホウ素化合物の添加量は、前記アルキルシランやポリシラン１００質量部に対し、通常０．１質量部以上、好ましくは０．２質量部以上、より好ましくは０．５質量部以上であり、また通常５質量部以下、好ましくは３質量部以下、より好ましくは２質量部以下である。ホウ素化合物の含有量を上記範囲の下限値以上とすることで、本発明に係るポリカルボシラン化合物の収率が向上する傾向にあり、またホウ素化合物の含有量を上記範囲の上限値以下とすることで、本発明に係るポリカルボ

40

50

シラン化合物の酸素含有量を抑制し、耐熱性の低下やポリカーボネート樹脂への分散性の低下等を抑制できる。

【0204】

本発明に係るポリカルボシラン化合物の製造方法としては、なかでも上記ポリシラン化合物から熱分解法によって得る手法が品質やコストの点から好ましい。なお、製造方法の異なる2種類以上のポリカルボシラン化合物を混合して用いてもよく、この場合には、製造方法が上記の好適な範囲外であるポリカルボシラン化合物を混合してもよい。

【0205】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物におけるポリカルボシラン化合物の含有量は、ポリカーボネート樹脂100質量部に対して、0.005質量部以上、好ましくは0.01質量部以上、より好ましくは0.02質量部以上、特に好ましくは0.05質量部以上、最も好ましくは0.1質量部以上であり、5質量部以下、好ましくは3質量部以下、より好ましくは2質量部以下、特に好ましくは1質量部以下である。ポリカルボシラン化合物の含有量が少なすぎると得られるポリカーボネート樹脂組成物の難燃性が不十分となる可能性があり、逆に多すぎても効果が頭打ちになり経済的でないばかりでなく、ポリカーボネート樹脂組成物の機械的強度の低下が生ずる可能性がある。

なお、本発明に係るポリカルボシラン化合物は単独で又は2種以上組み合わせて使用することができる。

【0206】

[5. その他の成分]

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、所望の諸物性を著しく損なわない限り、必要に応じて、上述したもの以外にその他の成分を含有していてもよい。その他の成分の例を挙げると、ポリカーボネート樹脂以外の樹脂、各種樹脂添加剤などが挙げられる。なお、その他の成分は、1種が含有されていてもよく、2種以上が任意の組み合わせ及び比率で含有されていてもよい。

【0207】

<その他の樹脂>

本発明のポリカーボネート樹脂組成物中にポリカーボネート樹脂と共に併用配合し得るその他の樹脂としては、例えば、次のようなものが挙げられる。

【0208】

ポリエチレンテレフタレート樹脂(PET樹脂)、ポリトリメチレンテレフタレート(PTT樹脂)、ポリブチレンテレフタレート樹脂(PBT樹脂)、ポリ乳酸(PLA)、ポリブチレンサクシネート樹脂(PBS)、ポリカプロラクトン(PCL)等の熱可塑性ポリエステル樹脂；

ポリスチレン樹脂(PS樹脂)、高衝撃ポリスチレン樹脂(HIPS)、アクリロニトリル-スチレン共重合体(AS樹脂)、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体(ABS樹脂)、アクリロニトリル-スチレン-アクリルゴム共重合体(ASA樹脂)、アクリロニトリル-エチレンプロピレン系ゴム-スチレン共重合体(AES樹脂)等のスチレン系樹脂；

ポリエチレン樹脂(PE樹脂)、ポリプロピレン樹脂(PP樹脂)、環状シクロオレフィン樹脂(COP樹脂)、環状シクロオレフィン共重合体樹脂(COC樹脂)等のポリオレフィン樹脂；

【0209】

ポリアミド樹脂(PA樹脂)；ポリイミド樹脂(PI樹脂)；ポリエーテルイミド樹脂(PEI樹脂)；ポリウレタン樹脂(PU樹脂)；ポリフェニレンエーテル樹脂(PPE樹脂)；ポリフェニレンサルファイド樹脂(PPS樹脂)；ポリスルホン樹脂(PSU樹脂)；ポリメチルメタクリレート樹脂(PMMA樹脂)；等

【0210】

これらのその他の樹脂は、1種が含有されていてもよく、2種以上が任意の組み合わせ及び比率で含有されていてもよい。

10

20

30

40

50

## 【 0 2 1 1 】

## &lt; 樹脂添加剤 &gt;

樹脂添加剤としては、例えば、熱安定剤、酸化防止剤、離型剤、紫外線吸収剤、染顔料、難燃剤、滴下防止剤、光拡散剤、帯電防止剤、防曇剤、滑剤、アンチブロッキング剤、流動性改良剤、摺動性改質剤、可塑剤、分散剤、抗菌剤などが挙げられる。なお、樹脂添加剤は１種が含有されていてもよく、２種以上が任意の組み合わせ及び比率で含有されていてもよい。

## 【 0 2 1 2 】

以下、本発明のポリカーボネート樹脂組成物に好適な樹脂添加剤の例について具体的に説明する。

## 【 0 2 1 3 】

## ( 熱安定剤 )

熱安定剤としては、例えばリン系化合物が挙げられる。

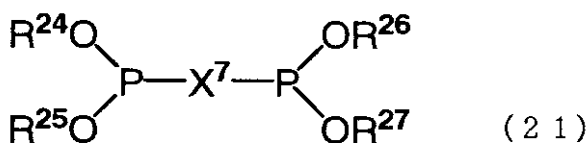
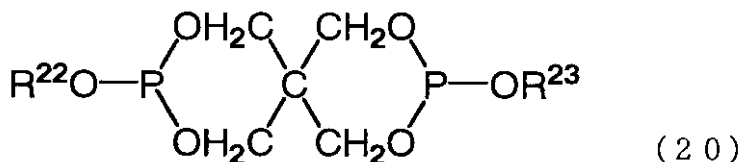
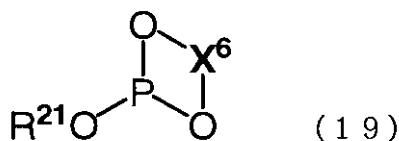
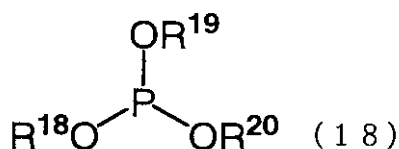
リン系化合物としては、公知の任意のものを使用できる。具体例を挙げると、リン酸、ホスホン酸、亜リン酸、ホスフィン酸、ポリリン酸などのリンのオキソ酸；酸性ピロリン酸ナトリウム、酸性ピロリン酸カリウム、酸性ピロリン酸カルシウムなどの酸性ピロリン酸金属塩；リン酸カリウム、リン酸ナトリウム、リン酸セシウム、リン酸亜鉛など周期表第１族又は第２Ｂ族金属のリン酸塩；有機ホスフェート化合物、有機ホスファイト化合物、有機ホスホナイト化合物などが挙げられる。

## 【 0 2 1 4 】

これらの中でも、下記式（１８）～（２０）で表される有機ホスファイト化合物、下記式（２１）で表される有機ホスホナイト化合物、下記式（２２）で表される有機ホスフェート化合物が好ましい。

## 【 0 2 1 5 】

## 【 化 2 3 】



## 【 0 2 1 6 】

上記式（１８）～（２２）において、 $\text{R}^{18}$ 、 $\text{R}^{19}$ 、 $\text{R}^{20}$ 、 $\text{R}^{21}$ 、 $\text{R}^{22}$ 、 $\text{R}^{23}$ 、 $\text{R}^{24}$ 、 $\text{R}^{25}$ 、 $\text{R}^{26}$ 、 $\text{R}^{27}$ 及び $\text{R}^{28}$ はアルキル基又はアリール基を表す。なかでも $\text{R}^{18}$ 、 $\text{R}^{19}$ 、 $\text{R}^{20}$ 、 $\text{R}^{21}$ 、 $\text{R}^{22}$ 、 $\text{R}^{23}$ 、 $\text{R}^{24}$ 、 $\text{R}^{25}$ 、 $\text{R}^{26}$ 、 $\text{R}^{27}$ 及び $\text{R}^{28}$ は、炭素数が通常１以上、好ましくは２以上であり、通常３０以下、好ま

10

20

30

40

50

しくは25以下のアルキル基、又は、炭素数が通常6以上であり、通常30以下のアリー  
ル基であることがより好ましい。さらに、 $R^{18}$ 、 $R^{19}$ 、 $R^{20}$ 、 $R^{22}$ 及び $R^{23}$ は  
アルキル基よりもアリール基が好ましく、 $R^{21}$ 、 $R^{24}$ 、 $R^{25}$ 、 $R^{26}$ 、 $R^{27}$ 及び  
 $R^{28}$ は、アリール基よりもアルキル基が好ましい。なお、 $R^{18}$ 、 $R^{19}$ 、 $R^{20}$ 、 $R^{21}$ 、 $R^{22}$ 、 $R^{23}$ 、 $R^{24}$ 、 $R^{25}$ 、 $R^{26}$ 、 $R^{27}$ 及び $R^{28}$ はそれぞれ同一であ  
っても異なっているもよい。

#### 【0217】

また、式(19)、(21)において、 $X^6$ 、 $X^7$ は、炭素数6～30のアリール残基  
を表し、式(22)において、dは、通常0以上、好ましくは1以上であり、また、通常  
2以下の整数を表す。

10

#### 【0218】

上記式(18)で表される有機ホスファイト化合物としては、トリフェニルホスファイト、トリス(モノフェニル)ホスファイト、トリス(モノフェニル/ジフェニル)ホスファイト、トリス(2,4-ジ-tert-ブチルフェニル)ホスファイト、モノオクチルジフェニルホスファイト、ジオクチルモノフェニルホスファイト、モノデシルジフェニルホスファイト、ジデシルモノフェニルホスファイト、トリデシルホスファイト、トリラウリルホスファイト、トリステアリルホスファイト等が挙げられる。このような、有機ホスファイト化合物としては、具体的には、例えば、アデカ社製「アデカスタブ1178」、「アデカスタブ2112」、城北化学工業社製「JP-351」、「JP-360」、「JP-3CP」、チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社製「イルガフォス168」等が挙げられる。

20

#### 【0219】

式(19)で表される有機ホスファイト化合物としては、2,2-メチレンビス(4,6-ジ-tert-ブチルフェニル)オクチルホスファイト等が挙げられる。このような、有機ホスファイト化合物としては、具体的には、例えば、アデカ社製「アデカスタブHP-10」等が挙げられる。

#### 【0220】

式(20)で表される有機ホスファイト化合物としては、ジステアリルペンタエリスリトールジホスファイト、ビス(2,4-ジ-tert-ブチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス(2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト等が挙げられる。このような、有機ホスファイト化合物としては、具体的には、例えば、アデカ社製「アデカスタブPEP-8」、「アデカスタブPEP-24G」、「アデカスタブPEP-36」、城北化学工業社製「JPP-2000」等が挙げられる。

30

#### 【0221】

式(21)で表される有機ホスホナイト化合物としては、テトラキス(2,4-ジ-tert-ブチルフェニル)-4,4'-ビフェニレン-ジ-ホスホナイト等が挙げられる。このような、有機ホスホナイト化合物としては、具体的には、例えば、Sandoz社製「サンドスタブP-E PQ」等が挙げられる。

40

#### 【0222】

式(22)で表される有機ホスフェート化合物としては、モノ-ステアリン酸ホスフェート、ジ-ステアリン酸ホスフェート、モノ-2-エチルヘキシル酸ホスフェート、ジ-2-エチルヘキシル酸ホスフェート、モノオレイル酸ホスフェート、ジ-オレイル酸ホスフェート等が挙げられる。このような、有機ホスフェート化合物としては、具体的には、例えば、アデカ社製「アデカスタブAX-71」、城北化学工業社製「JP-508」、「JP-518-O」等が挙げられる。

#### 【0223】

なお、熱安定剤は、1種が含有されていてもよく、2種以上が任意の組み合わせ及び比率で含有されていてもよい。

#### 【0224】

50

本発明のポリカーボネート樹脂組成物中の熱安定剤の含有量は、ポリカーボネート樹脂 100 質量部に対して、通常 0.001 質量部以上、好ましくは 0.01 質量部以上、より好ましくは 0.03 質量部以上であり、また、通常 1 質量部以下、好ましくは 0.7 質量部以下、より好ましくは 0.5 質量部以下である。熱安定剤の含有量が上記範囲の下限値以下の場合は、熱安定効果が不十分となる可能性があり、熱安定剤の含有量が上記範囲の上限値を超える場合は、効果が頭打ちとなり経済的でなくなる可能性がある。

#### 【0225】

(酸化防止剤)

酸化防止剤としては、例えばヒンダードフェノール系酸化防止剤が挙げられる。その具体例としては、ペンタエリスリトールテトラキス[3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、オクタデシル-3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、チオジエチレンビス[3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、N,N'-ヘキサン-1,6-ジイルビス[3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオナミド]、2,4-ジメチル-6-(1-メチルペンタデシル)フェノール、ジエチル[[3,5-ビス(1,1-ジメチルエチル)-4-ヒドロキシフェニル]メチル]ホスフォエート、3,3',3'',5,5',5''-ヘキサ-tert-ブチル-a,a',a''-(メシチレン-2,4,6-トリイル)トリ-p-クレゾール、4,6-ビス(オクチルチオメチル)-o-クレゾール、エチレンビス(オキシエチレン)ビス[3-(5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-m-トリル)プロピオネート]、ヘキサメチレンビス[3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、1,3,5-トリス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-1,3,5-トリアジン-2,4,6(1H,3H,5H)-トリオン、2,6-ジ-tert-ブチル-4-(4,6-ビス(オクチルチオ)-1,3,5-トリアジン-2-イルアミノ)フェノール等が挙げられる。

#### 【0226】

なかでも、ペンタエリスリトールテトラキス[3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、オクタデシル-3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネートが好ましい。このようなフェノール系酸化防止剤としては、具体的には、例えば、チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社製「イルガノックス1010」、「イルガノックス1076」、アデカ社製「アデカスタブAO-50」、「アデカスタブAO-60」等が挙げられる。

#### 【0227】

なお、酸化防止剤は、1種が含有されていてもよく、2種以上が任意の組み合わせ及び比率で含有されていてもよい。

#### 【0228】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物中の酸化防止剤の含有量は、ポリカーボネート樹脂 100 質量部に対して、通常 0.001 質量部以上、好ましくは 0.01 質量部以上であり、また、通常 1 質量部以下、好ましくは 0.5 質量部以下である。酸化防止剤の含有量が上記範囲の下限値以下の場合は、酸化防止剤としての効果が不十分となる可能性があり、酸化防止剤の含有量が上記範囲の上限値を超える場合は、効果が頭打ちとなり経済的でなくなる可能性がある。

#### 【0229】

(離型剤)

離型剤としては、例えば、脂肪族カルボン酸、脂肪族カルボン酸とアルコールとのエステル、数平均分子量 200 ~ 15000 の脂肪族炭化水素化合物、ポリシロキサン系シリコンオイルなどが挙げられる。

#### 【0230】

脂肪族カルボン酸としては、例えば、飽和又は不飽和の脂肪族一価、二価又は三価カルボン酸を挙げることができる。ここで脂肪族カルボン酸とは、脂環式のカルボン酸も包含



する。これらの中で好ましい脂肪族カルボン酸は炭素数 6 ~ 36 の一価又は二価カルボン酸であり、炭素数 6 ~ 36 の脂肪族飽和一価カルボン酸がさらに好ましい。かかる脂肪族カルボン酸の具体例としては、パルミチン酸、ステアリン酸、カプロン酸、カプリン酸、ラウリン酸、アラキン酸、ベヘン酸、リグノセリン酸、セロチン酸、メリシン酸、テトラリアコンタン酸、モンタン酸、アジピン酸、アゼライン酸などが挙げられる。

【0231】

脂肪族カルボン酸とアルコールとのエステルにおける脂肪族カルボン酸としては、例えば、前記脂肪族カルボン酸と同じものが使用できる。一方、アルコールとしては、例えば、飽和又は不飽和の一価又は多価アルコールが挙げられる。これらのアルコールは、フッ素原子、アリアル基などの置換基を有していてもよい。これらの中では、炭素数 30 以下の一価又は多価の飽和アルコールが好ましく、炭素数 30 以下の脂肪族飽和一価アルコール又は脂肪族飽和多価アルコールがさらに好ましい。なお、ここで脂肪族とは、脂環式化合物も含有する。

10

【0232】

かかるアルコールの具体例としては、オクタノール、デカノール、ドデカノール、ステアリルアルコール、ベヘニルアルコール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、グリセリン、ペンタエリスリトール、2,2-ジヒドロキシベルフルオロプロパノール、ネオペンチレングリコール、ジトリメチロールプロパン、ジペンタエリスリトール等が挙げられる。

【0233】

なお、上記のエステルは、不純物として脂肪族カルボン酸及び/又はアルコールを含有していてもよい。また、上記のエステルは、純物質であってもよいが、複数の化合物の混合物であってもよい。さらに、結合して一つのエステルを構成する脂肪族カルボン酸及びアルコールは、それぞれ、1種を用いてもよく、2種以上を任意の組み合わせ及び比率で併用してもよい。

20

【0234】

なお、脂肪族カルボン酸とアルコールとのエステルには、脂肪族カルボン酸の有するカルボキシル基のすべてがエステル化されたフルエステルと、その一部がエステル化された部分エステルとがあるが、本発明で用いる脂肪族カルボン酸とアルコールとのエステルは、フルエステルであっても、部分エステルであってもよい。

30

【0235】

脂肪族カルボン酸とアルコールとのエステルの具体例としては、蜜ロウ（ミリシルパルミテートを主成分とする混合物）、ステアリン酸ステアリル、ベヘン酸ベヘニル、ベヘン酸ステアリル、グリセリンモノパルミテート、グリセリンモノステアレート、グリセリンジステアレート、グリセリントリスステアレート、ペンタエリスリトールモノパルミテート、ペンタエリスリトールモノステアレート、ペンタエリスリトールジステアレート、ペンタエリスリトールトリステアレート、ペンタエリスリトールテトラステアレート等が挙げられる。

【0236】

数平均分子量 200 ~ 15000 の脂肪族炭化水素としては、例えば、流動パラフィン、パラフィンワックス、マイクロワックス、ポリエチレンワックス、フィッシャートロブシュワックス、炭素数 3 ~ 12 の  $\alpha$ -オレフィンオリゴマー等が挙げられる。なお、ここで脂肪族炭化水素としては、脂環式炭化水素も含まれる。また、これらの炭化水素は部分酸化されていてもよい。

40

【0237】

これらの中では、パラフィンワックス、ポリエチレンワックス又はポリエチレンワックスの部分酸化物が好ましく、パラフィンワックス、ポリエチレンワックスがさらに好ましい。

また、前記の脂肪族炭化水素の数平均分子量は、好ましくは 5000 以下である。

なお、脂肪族炭化水素は単一物質であってもよいが、構成成分や分子量が様々なものの

50

混合物であっても、主成分が上記の範囲内であれば使用できる。

#### 【0238】

ポリシロキサン系シリコンオイルとしては、例えば、ジメチルシリコンオイル、メチルフェニルシリコンオイル、ジフェニルシリコンオイル、フッ素化アルキルシリコン等が挙げられる。

#### 【0239】

なお、上述した離型剤は、1種が含有されていてもよく、2種以上が任意の組み合わせ及び比率で含有されていてもよい。

#### 【0240】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物中の離型剤の含有量は、ポリカーボネート樹脂 100 質量部に対して、通常 0.001 質量部以上、好ましくは 0.01 質量部以上であり、また、通常 2 質量部以下、好ましくは 1 質量部以下である。離型剤の含有量が上記範囲の下限値以下の場合は、離型性の効果が十分でない場合があり、離型剤の含有量が上記範囲の上限値を超える場合は、耐加水分解性の低下、射出成形時の金型汚染などが生じる可能性がある。

#### 【0241】

(紫外線吸収剤)

紫外線吸収剤としては、例えば、酸化セリウム、酸化亜鉛などの無機紫外線吸収剤；ベンゾトリアゾール化合物、ベンゾフェノン化合物、サリシレート化合物、シアノアクリレート化合物、トリアジン化合物、オギザニリド化合物、マロン酸エステル化合物、ヒンダードアミン化合物などの有機紫外線吸収剤などが挙げられる。これらの中では有機紫外線吸収剤が好ましく、ベンゾトリアゾール化合物がより好ましい。有機紫外線吸収剤を選択することで、本発明のポリカーボネート樹脂組成物の透明性や機械物性が良好なものになる。

#### 【0242】

ベンゾトリアゾール化合物の具体例としては、例えば、2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-[2'-ヒドロキシ-3', 5'-ビス( , -ジメチルベンジル)フェニル]-ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-tert-ブチル-フェニル)-ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3'-tert-ブチル-5'-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-tert-ブチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-tert-アミル)-ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-5'-tert-オクチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2, 2'-メチレンビス[4-(1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル)-6-(2N-ベンゾトリアゾール-2-イル)フェノール]等が挙げられ、なかでも2-(2'-ヒドロキシ-5'-tert-オクチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2, 2'-メチレンビス[4-(1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル)-6-(2N-ベンゾトリアゾール-2-イル)フェノール]が好ましく、特に2-(2'-ヒドロキシ-5'-tert-オクチルフェニル)ベンゾトリアゾールが好ましい。

#### 【0243】

このようなベンゾトリアゾール化合物の市販品としては、例えば、シプロ化成社製「シーソープ701」、「シーソープ705」、「シーソープ703」、「シーソープ702」、「シーソープ704」、「シーソープ709」、共同薬品社製「バイオソープ520」、「バイオソープ582」、「バイオソープ580」、「バイオソープ583」、ケミプロ化成社製「ケミソープ71」、「ケミソープ72」、サイテックインダストリーズ社製「サイアソープUV5411」、アデカ社製「LA-32」、「LA-38」、「LA-36」、「LA-34」、「LA-31」、チバ・スペシャリティケミカルズ社製「チヌピンP」、「チヌピン234」、「チヌピン326」、「チヌピン327」、「チヌピン328」等が挙げられる。

#### 【0244】

ベンゾフェノン化合物の具体例としては、例えば、2,4-ジヒドロキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン-5-スルホン酸、2-ヒドロキシ-4-n-オクトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-n-ドデシロキシベンゾフェノン、ビス(5-ベンゾイル-4-ヒドロキシ-2-メトキシフェニル)メタン、2,2'-ジヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、2,2'-ジヒドロキシ-4,4'-ジメトキシベンゾフェノン等が挙げられる。

【0245】

このようなベンゾフェノン化合物の市販品としては、例えば、シプロ化成社製「シーソープ100」、「シーソープ101」、「シーソープ101S」、「シーソープ102」、「シーソープ103」、共同薬品社製「バイオソープ100」、「バイオソープ110」、「バイオソープ130」、ケミプロ化成社製「ケミソープ10」、「ケミソープ11」、「ケミソープ11S」、「ケミソープ12」、「ケミソープ13」、「ケミソープ111」、BASF社製「ユビヌル400」、BASF社製「ユビヌルM-40」、BASF社製「ユビヌルMS-40」、サイテックインダストリーズ社製「サイアソープUV9」、「サイアソープUV284」、「サイアソープUV531」、「サイアソープUV24」、アデカ社製「アデカスタブ1413」、「アデカスタブLA-51」等が挙げられる。

10

【0246】

サリシレート化合物の具体例としては、例えば、フェニルサリシレート、4-tert-ブチルフェニルサリシレート等が挙げられ、このようなサリシレート化合物の市販品としては、例えば、シプロ化成社製「シーソープ201」、「シーソープ202」、ケミプロ化成社製「ケミソープ21」、「ケミソープ22」等が挙げられる。

20

【0247】

シアノアクリレート化合物の具体例としては、例えば、エチル-2-シアノ-3,3-ジフェニルアクリレート、2-エチルヘキシル-2-シアノ-3,3-ジフェニルアクリレート等が挙げられ、このようなシアノアクリレート化合物の市販品としては、例えば、シプロ化成社製「シーソープ501」、共同薬品社製「バイオソープ910」、第一化成社製「ユビソレーター300」、BASF社製「ユビヌルN-35」、「ユビヌルN-539」等が挙げられる。

【0248】

オギザニリド化合物の具体例としては、例えば、2-エトキシ-2'-エチルオキザリニックアシッドビスアリニド等が挙げられ、このようなオキザリニド化合物の市販品としては、例えば、クラリアント社製「サンデュボアV S U」等が挙げられる。

30

【0249】

マロン酸エステル化合物としては、2-(アルキリデン)マロン酸エステル類が好ましく、2-(1-アリールアルキリデン)マロン酸エステル類がより好ましい。このようなマロン酸エステル化合物の市販品としては、例えば、クラリアントジャパン社製「PR-25」、チバ・スペシャリティケミカルズ社製「B-CAP」等が挙げられる。

【0250】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物中の紫外線吸収剤の含有量は、ポリカーボネート樹脂100質量部に対して、通常0.01質量部以上、好ましくは0.1質量部以上であり、また、通常3質量部以下、好ましくは1質量部以下である。紫外線吸収剤の含有量が上記範囲の下限値以下の場合は、耐候性の改良効果が不十分となる可能性があり、紫外線吸収剤の含有量が上記範囲の上限値を超える場合は、モールドデボジット等が生じ、金型汚染を引き起こす可能性がある。なお、紫外線吸収剤は、1種が含有されていてもよく、2種以上が任意の組み合わせ及び比率で含有されていてもよい。

40

【0251】

(染料)

染料としては、例えば、無機顔料、有機顔料、有機染料などが挙げられる。

【0252】

50

無機顔料としては、例えば、カーボンブラック；カドミウムレッド、カドミウムイエロー等の硫化物系顔料；群青などの珪酸塩系顔料；酸化チタン、亜鉛華、弁柄、酸化クロム、鉄黒、チタンイエロー、亜鉛 - 鉄系ブラウン、チタンコバルト系グリーン、コバルトグリーン、コバルトブルー、銅 - クロム系ブラック、銅 - 鉄系ブラック等の酸化物系顔料；黄鉛、モリブデートオレンジ等のクロム酸系顔料；紺青などのフェロシアン系顔料などが挙げられる。

#### 【0253】

有機顔料及び有機染料としては、例えば、銅フタロシアニンブルー、銅フタロシアニングリーン等のフタロシアニン系染顔料；ニッケルアゾイエロー等のアゾ系染顔料；チオインジゴ系、ペリノン系、ペリレン系、キノリン系、キナクリドン系、ジオキサジン系、イソインドリノン系、キノフタロン系などの縮合多環染顔料；アンスラキノン系、複素環系、メチル系の染顔料などが挙げられる。

10

#### 【0254】

これらの中では、熱安定性の点から、酸化チタン、カーボンブラック、シアニン系、キノリン系、アンスラキノン系、フタロシアニン系化合物などが好ましい。

#### 【0255】

なお、染顔料は、1種が含有されていてもよく、2種以上が任意の組み合わせ及び比率で含有されていてもよい。また、染顔料は、押出時のハンドリング性改良、樹脂組成物中への分散性改良の目的のために、ポリスチレン系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、アクリル系樹脂とマスターバッチ化されたものも用いてもよい。

20

#### 【0256】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物中の染顔料の含有量は、ポリカーボネート樹脂100質量部に対して、通常5質量部以下、好ましくは3質量部以下、より好ましくは2質量部以下である。染顔料の含有量が多すぎると耐衝撃性が十分でなくなる可能性がある。

#### 【0257】

(滴下防止剤)

滴下防止剤としては、例えば、フルオロポリマーが挙げられ、なかでもフルオロオレフィン樹脂が好ましい。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あるいは共重合体であり、具体例としては、ジフルオロエチレン樹脂、テトラフルオロエチレン樹脂、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樹脂等が挙げられるが、なかでもテトラフルオロエチレン樹脂が好ましい。

30

フルオロポリマーとしては、特に、フィブリル形成能を有するものが好ましく、具体的には、フィブリル形成能を有するフルオロオレフィン樹脂が挙げられる。このように、フィブリル形成能を有することで、燃焼時の滴下防止性が著しく向上する傾向にある。

#### 【0258】

フィブリル形成能を有するフルオロオレフィン樹脂の市販品としては、例えば、三井・デュポンフロケミカル社製「テフロン(登録商標)6J」、ダイキン化学工業社製「ポリフロン(登録商標)F201L」、「ポリフロン(登録商標)F103」などが挙げられる。さらに、フルオロオレフィン樹脂の水性分散液の市販品として、例えば、三井デュポンフロケミカル社製「テフロン(登録商標)30J」、「テフロン(登録商標)31-JR」ダイキン化学工業社製「フルオン(登録商標)D-1」等が挙げられる。

40

#### 【0259】

滴下防止剤としては、さらに、有機重合体被覆フルオロオレフィン樹脂も好適に使用することができる。有機重合体被覆フルオロオレフィン樹脂を用いることで、分散性が向上し、成形体の表面外観が向上し、表面異物を抑制できる傾向にある。有機重合体被覆フルオロオレフィン樹脂は、公知の種々の方法により製造でき、例えば、(1)ポリフルオロエチレン粒子水性分散液と有機系重合体粒子水性分散液とを混合して、凝固又はスプレードライにより粉体化して製造する方法、(2)ポリフルオロエチレン粒子水性分散液存在下で、有機系重合体を構成する単量体を重合した後、凝固又はスプレードライにより粉体化して製造する方法、(3)ポリフルオロエチレン粒子水性分散液と有機系重合体粒子水

50

性分散液とを混合した分散液中で、エチレン性不飽和結合を有する単量体を乳化重合した後、凝固又はスプレードライにより粉体化して製造する方法、等が挙げられる。

【 0 2 6 0 】

フルオロオレフィン樹脂を被覆する有機系重合体としては、特に制限されるものではなく、このような有機系重合体を生成するための単量体の具体例としては、次のようなものが挙げられる。

【 0 2 6 1 】

スチレン、*m*-メチルスチレン、*p*-メチルスチレン、*o*-メチルスチレン、*tert*-ブチルスチレン、*o*-エチルスチレン、*p*-クロロスチレン、*o*-クロロスチレン、2,4-ジクロロスチレン、*p*-メトキシスチレン、*o*-メトキシスチレン、2,4-ジメチルスチレン等の芳香族ビニル系単量体；

10

アクリル酸メチル、メタクリル酸メチル、アクリル酸エチル、メタクリル酸エチル、アクリル酸ブチル、メタクリル酸ブチル、アクリル酸-2-エチルヘキシル、メタクリル酸-2-エチルヘキシル、アクリル酸ドデシル、メタクリル酸ドデシル、アクリル酸トリデシル、メタクリル酸トリデシル、アクリル酸オクタデシル、メタクリル酸オクタデシル、アクリル酸シクロヘキシル、メタクリル酸シクロヘキシル等の(メタ)アクリル酸エステル系単量体；

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系単量体；

無水マレイン酸等の、不飽和カルボン酸；

N-フェニルマレイミド、N-メチルマレイミド、N-シクロヘキシルマレイミド等のマレイミド系単量体；

20

グリシジルメタクリレート等のグリシジル基含有単量体；

ビニルメチルエーテル、ビニルエチルエーテル等のビニルエーテル系単量体；

酢酸ビニル、酪酸ビニル等のカルボン酸ビニル系単量体；

エチレン、プロピレン、イソブチレン等のオレフィン系単量体；

ブタジエン、イソプレン、ジメチルブタジエン等のジエン系単量体等

【 0 2 6 2 】

なお、これらの単量体は、単独で、又は2種以上を混合して用いることができる。

【 0 2 6 3 】

なかでもフルオロオレフィン樹脂を被覆する有機系重合体を生成するための単量体としては、ポリカーボネート樹脂に配合する際の分散性の観点から、ポリカーボネート樹脂との親和性が高いものが好ましく、芳香族ビニル系単量体、(メタ)アクリル酸エステル系単量体、シアン化ビニル系単量体がより好ましい。

30

【 0 2 6 4 】

また、有機重合体被覆フルオロオレフィン樹脂中のフルオロオレフィン樹脂の含有比率は、通常30質量%以上、好ましくは35質量%以上、より好ましくは40質量%以上、特に好ましくは45質量%以上であり、通常95質量%以下、好ましくは90質量%以下、より好ましくは80質量%以下、特に好ましくは75質量%以下である。有機重合体被覆フルオロオレフィン樹脂中のフルオロオレフィン樹脂の含有比率を、上述の範囲とすることで、難燃性と成形体外観のバランスに優れる傾向にあるため好ましい。

40

【 0 2 6 5 】

このような有機重合体被覆フルオロオレフィン樹脂の市販品としては、具体的には、三菱レイヨン社製「メタブレン(登録商標)A-3800」、GEスペシャリティケミカル社製「ブレンデックス(登録商標)449」、PIC社製「Poly TS AD001」等が挙げられる。

【 0 2 6 6 】

なお、滴下防止剤は、1種が含有されていてもよく、2種以上が任意の組み合わせ及び比率で含有されていてもよい。

【 0 2 6 7 】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物中の滴下防止剤の含有量は、ポリカーボネート樹

50

脂 100 質量部に対して、通常 0.001 質量部以上、好ましくは 0.005 質量部以上、より好ましくは 0.01 質量部以上、特に好ましくは 0.02 質量部以上であり、また、通常 1 質量部以下、好ましくは 0.5 質量部以下、より好ましくは 0.3 質量部以下、特に好ましくは 0.1 質量部以下である。滴下防止剤の含有量が上記範囲の下限値以下の場合、滴下防止剤による難燃性の効果が不十分となる可能性があり、滴下防止剤の含有量が上記範囲の上限値を超える場合は、このポリカーボネート樹脂組成物を成形して得られる成形体の外観不良や機械的強度の低下が生じたり、透明性が著しく低下したりする可能性がある。

【0268】

(光拡散剤)

光拡散剤は、微粒子状の無機又は有機粒子であり、例えばガラス微粒子、ポリスチレン樹脂、(メタ)アクリル樹脂、シリコン樹脂等の有機微粒子が挙げられ、光拡散性や粒子の分散性の点で有機微粒子が好ましい。

【0269】

光拡散剤としての有機微粒子としては、ポリカーボネート樹脂の成形温度まで加熱してもポリカーボネート樹脂中に溶解しない、架橋した有機微粒子が好ましく、従って、架橋した(メタ)アクリル樹脂、架橋したシリコン樹脂などが好ましい。より具体的には、部分架橋したポリメタクリル酸メチルのポリマー微粒子、架橋シリコン樹脂粒子、シリコンゴムをシリコンレジンで被覆したシリコンゴムパウダー等が挙げられる。

【0270】

光拡散剤の形状としては、光拡散効果の点から球状であるものが好ましい。

【0271】

微粒子状の光拡散剤の好ましい平均粒径は 0.1 ~ 50  $\mu\text{m}$  であり、より好ましくは 0.5 ~ 10  $\mu\text{m}$  であり、特に 1 ~ 5  $\mu\text{m}$  のものである。光拡散剤の平均粒径が小さ過ぎると、十分な光分散効果が得られず、大き過ぎると成形体表面に肌荒れを起こしたり、成形品の機械的強度が低下したりする。ここで、光拡散剤の平均粒径とは、コールターカウンター法にて測定した体積平均粒子径を採用する。コールカウンター法は、サンプル粒子を懸濁させた電解質を細孔(アパチャ-)に通過させ、そのときに粒子の体積に比例して発生する電圧パルスの変化を読み取って粒子径を定量するもので、また電圧パルス高を 1 個ずつ計測処理して、サンプル粒子の体積分布ヒストグラムを得ることができる。このよう

【0272】

なお、本発明においては、異なる材質或いは異なる平均粒径の光拡散剤を 2 種類以上混合して使用してもよい。

【0273】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物が光拡散剤を含む場合、光拡散剤の好ましい含有量は、ポリカーボネート樹脂 100 質量部に対して、通常 0.1 ~ 20 質量部であり、0.3 ~ 10 質量部がより好ましい。光拡散剤の含有量が少な過ぎると、光拡散性が不足し、光源が透けて見えやすく、眩しさ低減効果が不十分となり、光拡散剤の配合量が多すぎると必要な照明輝度が得られなくなる。

【0274】

[ 6. ポリカーボネート樹脂組成物の製造方法 ]

本発明のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法に制限はなく、公知のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法を広く採用できる。

具体例を挙げると、ポリカーボネート樹脂、金属塩化合物、及びポリカルボシラン化合物、並びに、必要に応じて配合されるその他の成分を、例えばタンブラーやヘンシェルミキサーなどの各種混合機を用い予め混合した後、バンバリーミキサー、ロール、ブラベンダー、単軸混練押出機、二軸混練押出機、ニーダーなどの混合機で熔融混練する方法が挙げられる。

## 【 0 2 7 5 】

また、例えば、各成分を予め混合せずに、又は、一部の成分のみを予め混合し、フィーダーを用いて押出機に供給して熔融混練して、本発明のポリカーボネート樹脂組成物を製造することもできる。

## 【 0 2 7 6 】

また、例えば、一部の成分を予め混合して押出機に供給して熔融混練することで得られる樹脂組成物をマスターバッチとし、このマスターバッチを再度残りの成分と混合し、熔融混練することによって本発明のポリカーボネート樹脂組成物を製造することもできる。

## 【 0 2 7 7 】

また、例えば、分散し難い成分を混合する際には、その分散し難い成分を予め水や有機溶剤等の溶媒に溶解又は分散させ、その溶液又は分散液と混練するようにすることで、分散性を高めることもできる。

## 【 0 2 7 8 】

## [ 7 . ポリカーボネート樹脂成形体 ]

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、通常、任意の形状に成形してポリカーボネート樹脂成形体として用いることができる。この成形体の形状、模様、色彩、寸法などに制限はなく、その成形体の用途に応じて任意に設定すればよい。

## 【 0 2 7 9 】

成形体の例を挙げると、電気電子機器、OA機器、情報端末機器、機械部品、家電製品、車輛部品、建築部材、各種容器、レジャー用品・雑貨類、照明機器等の部品が挙げられる。これらの中でも、特に電気電子機器、OA機器、情報端末機器、家電製品、照明機器等の部品へ用いて好適であり、電気電子機器の部品に用いて特に好適である。

## 【 0 2 8 0 】

前記の電気電子機器としては、例えば、パソコン、ゲーム機、テレビなどのディスプレイ装置、プリンター、コピー機、スキャナー、ファックス、電子手帳やPDA、電子式卓上計算機、電子辞書、カメラ、ビデオカメラ、携帯電話、電池パック、記録媒体のドライブや読み取り装置、マウス、テンキー、CDプレーヤー、MDプレーヤー、携帯ラジオ・オーディオプレーヤー等が挙げられる。

## 【 0 2 8 1 】

成形体の製造方法は、特に限定されず、ポリカーボネート樹脂組成物について一般に採用されている成形法を任意に採用できる。その例を挙げると、射出成形法、超高速射出成形法、射出圧縮成形法、二色成形法、ガスアシスト等の中空成形法、断熱金型を使用した成形法、急速加熱金型を使用した成形法、発泡成形（超臨界流体も含む）法、インサート成形法、IMC（インモールドコーティング成形）成形法、押出成形法、シート成形法、熱成形法、回転成形法、積層成形法、プレス成形法などが挙げられる。また、ホットランナー方式を使用した成形法を用いることも出来る。

## 【 0 2 8 2 】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物を成形してなる本発明のポリカーボネート樹脂成形体は、ポリカーボネート樹脂本来の優れた性質を損なうことなく、透明性、難燃性、機械物性、その他の諸特性に優れ、実用的な成形体として幅広い分野に用いることが可能である。

## 【 実施例 】

## 【 0 2 8 3 】

以下、実施例を示して本発明について更に具体的に説明する。ただし、本発明は以下の実施例に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲において任意に変更して実施できる。

## 【 0 2 8 4 】

## [ 実施例 1 ~ 1 1、比較例 1 ~ 1 1 ]

## &lt; 樹脂ペレットの製造 &gt;

後述する表 2 a , 2 b に記した各成分を、表 3 a ~ 3 d に記した割合（質量比）で配合

10

20

30

40

50

し、タンブラーにて20分混合した後、1ペントを備えた日本製鋼所社製（TEX30HSST）に供給し、スクリー回転数200rpm、吐出量15kg/時間、バレル温度290の条件で混練した。その後、ストランド状に押出された熔融樹脂を水槽にて急冷し、ペレタイザーを用いてペレット化してポリカーボネート樹脂組成物のペレットを得た。

#### 【0285】

##### <試験片の作製>

上述の製造方法で得られたペレットを120で5時間乾燥させた後、日本製鋼所製のJ50-E P型射出成形機を用いて、シリンダー温度260、金型温度80、成形サイクル30秒の条件で射出成形し、長さ125mm、幅13mmで、厚さ3.2mm（1

10

#### 【0286】

また、同様に上述の製造方法で得られたペレットを120で5時間乾燥させた後、名機製作所製のM150AII-SJ型射出成形機を用いて、シリンダー温度280、金型温度80、成形サイクル55秒の条件で射出成形し、ASTM試験片（3.2mm厚のノッチ付き試験片）、平板状試験片（90mm×50mm×3mm厚）を成形した。

#### 【0287】

##### <難燃性評価>

各ポリカーボネート樹脂組成物の難燃性の評価は、上述の方法で得られたUL試験用試験片を温度23、湿度50%の恒温槽の中で48時間調湿し、米国アンダーライターズ・ラボラトリーズ（UL）が定めているUL94試験（機器の部品用プラスチック材料の燃焼試験）に準拠して行なった。UL94Vとは、鉛直に保持した所定の大きさの試験片にバーナーの炎を10秒間接炎した後の残炎時間やドリップ性から難燃性を評価する方法であり、V-0、V-1及びV-2の難燃性を有するためには、以下の表1に示す基準を満たすことが必要となる。

20

#### 【0288】

##### 【表1】

表1	V-0	V-1	V-2
各試料の残炎時間	10秒以下	30秒以下	30秒以下
5試料の全残炎時間	50秒以下	250秒以下	250秒以下
ドリップによる綿着火	無し	無し	有り

30

#### 【0289】

ここで残炎時間とは、着火源を遠ざけた後の、試験片の有炎燃焼を続ける時間の長さである。また、ドリップによる綿着火とは、試験片の下端から約300mm下にある標識用の綿が、試験片からの滴下（ドリップ）物によって着火されるかどうかによって決定される。さらに、5試料のうち、1つでも上記基準を満たさないものがある場合、V-2を満足しないとしてNR（not rated）と評価した。

結果を表3a～3dに示す。

40

#### 【0290】

##### <耐衝撃性評価>

ASTM D256に準拠して、上記で作製したASTM試験片（3.2mm厚のノッチ付き試験片）を使用し、23においてIzod衝撃強度（単位：J/m）を測定した。

結果を表3a～3dに示す。なお、表3a～3d中、耐衝撃性は「Izod」と表記する。

#### 【0291】

##### <アウトガス性評価>

平板状試験片の作製において射出成形を行う際、射出成形機のノズル先端から発生する

50



ガスの様子を目視観察により判断し、ガスの発生がほとんど認められないものを「 」、著しいガスの発生が認められるものを「 x 」と評価した。

結果を表 3 a ~ 3 d に示す。なお、表 3 a ~ 3 d 中、アウトガス性は「低ガス性」と表記する。

#### 【 0 2 9 2 】

##### < 金型汚染性評価 >

住友重機械工業社製ミニマット M 8 / 7 A 成形機を用い、前述の製造方法で得られたペレットを雫型金型を用いて、成形温度 2 9 0 、金型温度 6 0 で 5 0 0 ショット連続成形し、終了後金型の付着物の有無を目視観察により判断し、以下の基準で評価した。

結果を表 3 a ~ 3 d に示す。

：金型の付着物がほとんど認められない。

：金型の付着物がわずかに認められる。

x：金型の付着物が非常に多い。

#### 【 0 2 9 3 】

##### < 透明度評価 >

J I S K - 7 1 0 5 に準じ、前述の平板状試験片（ 3 m m 厚）を試験片とし、日本電色工業（株）製の N D H - 2 0 0 0 型ヘイズメーターでヘイズ値（単位「 % 」）及び全光線透過率（単位「 % 」）を測定した。

ヘイズ（ H a z e ）は、樹脂の濁度の尺度として用いられる値であり、数値が小さい程、透明性が高いことを示し、好ましい。また、全光線透過率は、樹脂の光線透過度の尺度として用いられる値であり、数値が大きい程、好ましい。

結果を表 3 a ~ 3 d に示す。

なお、表 3 a ~ 3 d 中、ヘイズ値を「 3 m m H a z e 」、全光線透過率を、「 3 m m 透過率」と表記する。

#### 【 0 2 9 4 】

10

20

【表 2 a】

表 2 a	略号	サンプル
ポリカーボネート樹脂	(A 1)	界面重合法で製造されたビスフェノールAを出発原料とする芳香族ポリカーボネート樹脂 粘度平均分子量：21000、構造粘性指数：1.0
	(A 2)	界面重合法で製造されたビスフェノールAを出発原料とする芳香族ポリカーボネート樹脂 粘度平均分子量：17000、構造粘性指数：1.0
	(A 3)	溶融エステル交換法で製造されたビスフェノールAを出発原料とする芳香族ポリカーボネート樹脂 粘度平均分子量：27000、構造粘性指数：1.3
	(A 4)	界面重合法で製造されたビスフェノールAを出発原料とする芳香族ポリカーボネート樹脂 粘度平均分子量：26000、構造粘性指数：1.0
金属塩化合物	(B 1)	パーフルオロブタンスルホン酸カリウム ランクセス社製、商品名：「Bayowet C4」
	(B 2)	パラトルエンスルホン酸セシウム 竹本油脂社製、商品名「MEC-142」
ポリカルボシラン化合物	(C 1)	式(6)で表される構造を有するポリカルボシラン化合物 日本カーボン社製、商品名：「ニプシ Type-L」 数平均分子量：950、融点：66℃
	(C 2)	式(6)で表される構造を有するポリカルボシラン化合物 日本カーボン社製、商品名：「ニプシ Type-A」 数平均分子量：1500、融点：248℃
	(C 3)	式(6)で表される構造を有するポリカルボシラン化合物 日本カーボン社製、商品名：「ニプシ Type-S」 数平均分子量：1600、融点：234℃

10

20

30

【0295】

【表 2 b】

表 2 b	略号	サンプル
その他のケイ素化合物	(D 1)	オルガノシロキサン化合物 ポリメチルフェニルシロキサン 東レ・ダウコーニング社製、商品名：「PH1555」
	(D 2)	オルガノシロキサン化合物 ポリフェニルシロキサン（分岐構造含有） 小西化学工業社製、商品名：「SR-21」
	(D 3)	オルガノシロキサン化合物 フェニルトリメトキシシラン 東レ・ダウコーニング社製、 商品名：「AY43-040」
	(D 4)	オルガノシロキサン化合物 オクタフェニルテトラシクロシロキサン 信越化学工業社製
	(D 5)	ポリシラン化合物 ポリジメチルシラン 数平均分子量：2000
安定剤	(E 1)	熱安定剤 トリス（2，4-ジ-tert-ブチルフェニル） ホスファイト アデカ社製 商品名：「アデカスタブ2112」
	(E 2)	フェノール系酸化防止剤 ペンタエリスリトールテトラキス [3-（3，5-ジ-tert-ブチル-4- ヒドロキシフェニル）プロピオネート] チバ社製、商品名：「イルガノックス1010」
滴下防止剤	(F)	フルオロオレフィン樹脂の水性分散液（PTFE含量60重量%） 三井デュポンフロロケミカル社製 商品名：「31-JR」
光拡散剤	(G)	平均粒径2 $\mu\text{m}$ のポリメチルシルセスキオキサン粒子（球状） モメンティブパフォーマンスマテリアルズ社製 商品名：「トスパール120」
離型剤	(H 1)	ペンタエリスリトールテトラステアレート コクニスジャパン社製、商品名：「VPG861」
	(H 2)	ステアリン酸ステアリル 日油社製、商品名：「ユニスターM9676」

10

20

30

【0296】

【表 3 a】

	略号	単位	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7
樹脂組成	(A1)	質量部	99.72	99.395	99.645	99.395	99.645	99.395	99.87
	(B1)		0.1	0.075	0.075	0.075	0.075	0.075	
	(B2)								0.1
	(C1)		0.15	0.5					
	(C2)				0.25	0.5			
	(C3)						0.25	0.5	1
	(E1)		0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03
難燃性(3mm)			V－O	V－O	V－O	V－O	V－O	V－O	V－O
Izod		J／m	700	690	680	670	710	700	690
低ガス性			○	○	○	○	○	○	○
金型汚染性			◎	○	◎	◎	◎	◎	◎
3mmHaze		%	1.9	3.8	2.1	3	1.6	2	3.1
3mm透過率		%	89	87	90	90	90	90	90

10

20

【 0 2 9 7 】

【表 3 b】

	略号	単位	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5
樹脂組成	(A1)	質量部	99.97	99.895	98.47	98.97	99.894
	(B1)			0.075			0.075
	(C3)				0.5	1	0.001
	(E1)		0.03	0.03	0.03	0.03	0.03
難燃性(3mm)			V-2	V-2	V-2	V-2	V-2
Izod		J/m	760	710	690	690	690
低ガス性			○	○	○	○	○
金型汚染性			◎	○	◎	◎	◎
3mmHaze		%	1.1	1	1.8	3	1.1
3mm透過率		%	90	90	90	90	90

30

40

【 0 2 9 8 】

【表 3 c】

	略号	単位	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11
樹脂組成	(A2)	質量部	29.65	29.4	29.15	29.65
	(A3)		70	70	70	70
	(B1)		0.1	0.1	0.1	0.1
	(C2)		0.25	0.5	0.75	
	(C3)					0.25
難燃性(3mm)			V-0	V-0	V-0	V-0
Izod		J/m	660	580	680	660
低ガス性			○	○	○	○
金型汚染性			◎	◎	◎	◎
3mmHaze		%	4.3	6.3	7.1	3.2
3mm透過率		%	88	88	88	88

10

【 0 2 9 9 】

【表 3 d】

	略号	単位	比較例6	比較例7	比較例8	比較例9	比較例10	比較例11
樹脂組成	(A1)	質量部		19.37	28.9	18.87	18.87	
	(A2)		29.9					29.42
	(A3)		70	80	70	80	80	70
	(B1)		0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.08
	(D1)			0.5				
	(D2)				1			
	(D3)					1		
	(D4)						1	
	(D5)							0.5
	(E1)			0.03		0.03	0.03	
難燃性(3mm)			V-2	V-0	V-1	V-2	V-2	V-0
Izod		J/m	660	610	450	580	640	340
低ガス性			○	×	○	×	×	○
金型汚染性			◎	×	○	×	×	◎
3mmHaze		%	0.7	0.4	26	0.5	0.4	99
3mm透過率		%	88	88	86	88	88	44

20

30

40

【 0 3 0 0 】

以上の結果より、ポリカーボネート樹脂に金属塩化合物とポリカルボシラン化合物とを

50

配合してなる本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、難燃性、耐衝撃性、透明性に優れ、アウトガスや金型汚染性も改善されていることが分かる。

#### 【0301】

##### [実施例12、比較例12]

##### <樹脂ペレットの製造>

前述の表2a, 2bに記した各成分を、表4に記した割合(質量比)で配合し、タンブラーにて20分混合した後、1ペントを備えた日本製鋼所社製(TEX30HSST)に供給し、スクリー回転数200rpm、吐出量15kg/時間、バレル温度290の条件で混練した。その後、ストランド状に押出された熔融樹脂を水槽にて急冷し、ペレタイザーを用いてペレット化してポリカーボネート樹脂組成物のペレットを得た。

10

#### 【0302】

##### <流動性(Q値)評価>

上述の製造方法で得られたペレットを120で4時間以上乾燥した後、JIS K 7210 付属書Cに記載の方法にて高荷式フローテスターを用いて、280、荷重160kgfの条件下で組成物の単位時間あたりの流出量Q値(単位:  $\times 10^{-2} \text{ cm}^3 / \text{sec}$ )を測定し、流動性を評価した。なお、オリフィスは直径1mm×長さ10mmのものを使用した。Q値が高いほど、流動性に優れていることを示す。結果を表4に示す。

#### 【0303】

##### <試験片の作製>

上述の製造方法で得られたペレットを120で5時間乾燥させた後、日本製鋼所製のJ50-E P型射出成形機を用いて、シリンダー温度280、金型温度80、成形サイクル30秒の条件で射出成形し、長さ125mm、幅13mmで、厚さ1.2mm又は1.0mmのUL試験用試験片を成形した。

20

#### 【0304】

また、上述の製造方法で得られたペレットを120で5時間乾燥させた後、名機製作所製のM150AII-SJ型射出成形機を用いて、シリンダー温度280、金型温度80、成形サイクル55秒の条件で射出成形し、平板状試験片(90mm×50mm×1-2-3mmの3段厚み)を成形した。

また、同様に上述の製造方法で得られたペレットを120で5時間乾燥させた後、住友重機械工業社製のサイキャップM-2、型締め力75Tを用いて、シリンダー温度290、金型温度80、成形サイクル45秒の条件で射出成形し、ISO多目的試験片(4mm)とISO多目的試験片(3mm)を成形した。

30

#### 【0305】

##### <難燃性評価>

上述のUL試験用試験片を用い、実施例1におけると同様にUL試験を行い、同様に評価を行った。

結果を表4に示す。

#### 【0306】

##### <濁度評価>

JIS K-7136に準拠し、上述の平板状試験片(1-2-3mmの3段厚み)を試験片とし、厚み3mm部分を用いて、日本電色工業社製のNDH-2000型濁度計で測定した。濁度は、樹脂の白濁の尺度として用い、数値が小さい程、透明性が高いことを示す。結果を表4に示す。

40

#### 【0307】

##### <拡散率・分散度評価>

上述の平板状試験片(1-2-3mmの3段厚み)を試験片とし、MURAKAMI COLOR RESEARCH LABORATORY社製のGP-5 GONIOPHOTOMETERを用い、入射光: 0°、煽り角: 0°、受光範囲: 0°~90°、光束絞り: 2.0、受光絞り: 3.0の条件で、1mm厚み部分及び2mm厚み部分の輝度を測定し、下式により拡散率(%)を求めた。分散度は、受光角0°、即ち、光源から試験

50

片を透過した後に直進する光線における輝度値に対して、輝度値が50%になる受光角を指す。結果を表4に示す。

$$\text{拡散率}(\%) = 100 \times [(\text{受光角} 20^\circ \text{の輝度値} + \text{受光角} 70^\circ \text{の輝度値}) / \{2 \times (\text{受光角} 5^\circ \text{の輝度値})\}]$$

【0308】

<耐熱性評価>

ISO多目的試験片(4mm)を用い、ISO75-1及びISO75-2に準拠して荷重1.80MPaの条件で荷重たわみ温度を測定した。結果を表4に示す。なお、表中「DTUL」と表記する。

【0309】

10

<曲げ特性評価>

ISO多目的試験片(4mm)を用い、ISO178に準拠し、23の条件で曲げ応力及び曲げ弾性率を測定した。結果を表4に示す。

【0310】

<耐衝撃性評価>

ISO多目的試験片(3mm)を用い、ISO179に準拠し、23の条件で、ノッチ有りシャルピー耐衝撃強度(単位: kJ/m<sup>2</sup>)を測定した。結果を表4に示す。

【0311】

【表 4】

	略号	単位	実施例12	比較例12
樹脂組成	(A4)	質量部	17.98	18.98
	(A3)		80	80
	(B1)		0.09	0.09
	(F)		0.17	0.17
	(C2)		1	
	(G)		0.5	0.5
	(H1)		0.1	0.1
	(H2)		0.1	0.1
	(E1)		0.03	0.03
	(E2)		0.03	0.03
流動性 (Q値)		$\times 10^{-2} \text{cm}^3/\text{sec}$	8.4	4.5
難燃性	1.2mm厚み		V-0	V-0
	1.0mm厚み		V-2	V-1
濁度	Hz (1 mm)	%	99.0	99.1
	Hz (2 mm)	%	99.3	99.3
拡散率・分散度	拡散率 (1 mm)		45.5	45.6
	分散度 (1 mm)		34.8	34.7
	拡散率 (2 mm)		56.6	57.2
	分散度 (2 mm)		49.4	50.3
DTUL		°C	125	126
曲げ特性	弾性率(荷重)	MPa	2310	2380
	曲げ応力	MPa	97	99
耐衝撃性		$\text{kJ/m}^2$	60	65

10

20

30

## 【0312】

表4より、光拡散剤を配合することにより、良好な光拡散効果が得られることが分かる。

## 【産業上の利用可能性】

## 【0313】

本発明は産業上の幅広い分野に利用することが可能であり、例えば、電気電子機器やその部品、OA機器、情報端末機器、機械部品、家電製品、車輛部品、建築部材、各種容器、レジャー用品・雑貨類、照明機器などの分野に用いて好適である。

40



---

フロントページの続き

(56)参考文献 特開2004-351887(JP,A)  
特開2006-008810(JP,A)  
特開2002-138204(JP,A)  
特開2001-026704(JP,A)  
特開2005-232442(JP,A)  
特開2003-268247(JP,A)  
特開2003-277617(JP,A)  
特開2003-277756(JP,A)  
特開2005-232258(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C08L

C08K

C09K 21/00-14