

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2015 年 12 月 30 日(30.12.2015)



(10) 国際公開番号

WO 2015/199062 A1

- (51) 国際特許分類:
C08L 77/06 (2006.01) G02B 1/04 (2006.01)
C08K 3/00 (2006.01) G02B 5/08 (2006.01)
C08L 67/02 (2006.01) H01L 33/60 (2010.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2015/067996
- (22) 国際出願日: 2015 年 6 月 23 日(23.06.2015)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2014-130406 2014 年 6 月 25 日(25.06.2014) JP
- (71) 出願人: ユニチカ株式会社(UNITIKA LTD.) [JP/JP];
〒6600824 兵庫県尼崎市東本町 1 丁目 5 0 番地
Hyogo (JP).
- (72) 発明者: 梶島 洋平(KABASHIMA Yohei). 上川
泰生(KAMIKAWA Hiroo). 三井 淳一(MII Junichi).
甘利 太陽(AMARI Taiyo).
- (74) 代理人: 特許業務法人森本国際特許事務所(MOR-
IMOTO INT'L PATENT OFFICE); 〒5500005 大阪
府大阪市西区西本町 1 丁目 4 番 1 号オリックス
本町ビル 4 階 Osaka (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保
護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA,
BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN,
CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES,
FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN,
IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR,
LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX,
MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH,
PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK,
SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保
護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW,
MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユー
ラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨー
ロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE,
ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC,
MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR),
OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM,
ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: RESIN COMPOSITION AND MOLDED ARTICLE THEREOF

(54) 発明の名称: 樹脂組成物およびその成形体

(57) Abstract: A resin composition including a polyamide (A), polyester (B), and white pigment (C) wherein the resin composition is characterized in that (A) has a melting point of 280°C or higher, (B) is polycyclohexylenedimethylene terephthalate, the mass ratio (A/B) is 5/95-95/5, and the content of (C) is 10-150 parts by mass per 100 total parts by mass of (A) and (B).

(57) 要約: ポリアミド (A)、ポリエステル (B) および白色顔料 (C) を含有する樹脂組成物であって、(A) は、融点が 280°C 以上であり、(B) が、ポリシクロヘキシレンジメチレンテレフタレートであり、質量比 (A/B) が 5/95~95/5 であり、(C) の含有量が、(A) と (B) の合計 100 質量部に対して、10~150 質量部であることを特徴とする樹脂組成物。



WO 2015/199062 A1

明 細 書

発明の名称：樹脂組成物およびその成形体

技術分野

[0001] 本発明は、耐熱性と反射率に優れ、ＬＥＤ反射板に好適な樹脂組成物に関するものである。

背景技術

[0002] 発光ダイオード（ＬＥＤ）は、新しい光源として、低消費電力、長寿命の観点から、照明や表示素子として需要が急速に拡大しており、大型化、ハイパワー化が進んでいる。ＬＥＤにおいて、ハウジングを兼ねる反射板は、光を効率的に利用するための重要な構成部品である。反射板に用いる樹脂材料は、優れた反射率に加えて、電子基板への実装時に一般的なりフロー半田工程への耐熱性（耐リフロー性）が求められている。

[0003] そのような樹脂材料として、酸化チタンや炭酸カルシウムを含有させた半芳香族ポリアミド樹脂組成物が知られている。例えば、特許文献１には、ポリノナメチレンテレフタルアミド（ＰＡ９Ｔ）と酸化チタンを含有する樹脂組成物が開示され、特許文献２には、ポリヘキサメチレンテレフタルアミド（ＰＡ６Ｔ）系やポリデカメチレンテレフタルアミド（ＰＡ１０Ｔ）系の共重合樹脂と、酸化チタン、炭酸カルシウムおよびガラス繊維を含有する樹脂組成物が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献１：特開２００４－７５９９４号公報

特許文献２：特開２０１１－２４１３９８号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] しかしながら、特許文献１、２の半芳香族ポリアミド樹脂組成物から得られる反射板は、長時間熱に晒された場合、反射率が低下し、反射率を維持す

ることが困難であった。

[0006] 本発明は、上記課題を解決するものであって、耐リフロー性を有するとともに、長時間熱に晒されても、反射率の低下が抑制された反射板を構成することができる樹脂組成物を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明者らは、前記課題を解決するため鋭意研究を重ねた結果、特定の融点を有するポリアミドと特定の構造を有するポリエステルを含有する樹脂組成物が、上記目的が達成されることを見出し、本発明に到達した。すなわち、本発明の要旨は下記の通りである。

[0008] (1) ポリアミド(A)、ポリエステル(B)および白色顔料(C)を含有する樹脂組成物であって、

ポリアミド(A)は、融点が280℃以上であり、

ポリエステル(B)が、ポリシクロヘキシレンジメチレンテレフタレートであり、

ポリアミド(A)とポリエステル(B)との質量比(A/B)が、5/95～95/5であり、

白色顔料(C)の含有量が、ポリアミド(A)とポリエステル(B)の合計100質量部に対して、10～150質量部であることを特徴とする樹脂組成物。

(2) さらに、強化材(D)を含有し、その含有量が、ポリアミド(A)とポリエステル(B)の合計100質量部に対して、10～80質量部であることを特徴とする(1)記載の樹脂組成物。

(3) さらに、酸化防止剤(E)を含有し、その含有量が、ポリアミド(A)とポリエステル(B)の合計100質量部に対して、0.05～2.5質量部であることを特徴とする(1)または(2)記載の樹脂組成物。

(4) さらに、光安定剤(F)を含有し、その含有量が、ポリアミド(A)とポリエステル(B)の合計100質量部に対して、0.1～3質量部であることを特徴とする(1)～(3)のいずれかに記載の樹脂組成物。

(5) 酸化防止剤 (E) が、リン系酸化防止剤、ヒンダードフェノール系酸化防止剤および硫黄系酸化防止剤からなる群より選ばれる 1 種以上であることを特徴とする (3) 記載の樹脂組成物。

(6) ポリアミド (A) が、芳香族ジカルボン酸成分と脂肪族ジアミン成分とモノカルボン酸成分を含有する半芳香族ポリアミドであることを特徴とする (1) ~ (5) のいずれかに記載の樹脂組成物。

(7) 脂肪族ジアミン成分が、1, 10-デカンジアミンを含有することを特徴とする (6) 記載の樹脂組成物。

(8) 白色顔料 (C) が、酸化チタン、硫酸バリウムおよび炭酸カルシウムからなる群より選ばれる 1 種以上であることを特徴とする (1) ~ (7) のいずれかに記載の樹脂組成物。

(9) 上記 (1) ~ (8) のいずれかに記載の樹脂組成物を成形してなる反射板。

(10) 上記 (9) 記載の反射板を備える LED パッケージ。

(11) 上記 (10) 記載の LED パッケージを備える照明装置。

発明の効果

[0009] 本発明によれば、耐リフロー性を有し、長時間の加熱環境下においても反射率の低下が抑制された反射板を構成する樹脂組成物を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]本発明の樹脂組成物を反射板に用いた表面実装型 LED パッケージの断面を示す模式断面図である。

発明を実施するための形態

[0011] 本発明の樹脂組成物は、ポリアミド (A)、ポリエステル (B) および白色顔料 (C) を含有する。

[0012] 本発明の樹脂組成物を構成するポリアミド (A) は、融点が 280℃ 以上であることが必要である。その構成は、特に限定されず、例えば、半芳香族ポリアミドやそれらの混合体、共重合体、および半芳香族ポリアミドと脂肪

族ポリアミドとの共重合体などが挙げられる。半芳香族ポリアミドとしては、例えば、芳香族ジカルボン酸成分と脂肪族ジアミン成分を含有するポリアミドが挙げられる。

[0013] 半芳香族ポリアミドを構成する芳香族ジカルボン酸成分としては、例えば、テレフタル酸、イソフタル酸、フタル酸、ナフタレンジカルボン酸が挙げられ、中でも、成形流動性と機械的物性のバランスがよいポリアミドが得られることから、テレフタル酸が好ましい。

半芳香族ポリアミドには、上記芳香族ジカルボン酸成分以外に、シュウ酸、マロン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ウンデカン二酸、ドデカン二酸等の脂肪族ジカルボン酸成分や、シクロヘキサンジカルボン酸等の脂環式ジカルボン酸成分等のジカルボン酸成分が共重合してもよい。これらテレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸や脂肪族ジカルボン酸や脂環式ジカルボン酸の含有量は、原料モノマーの総モル数に対し、5モル%以下であることが好ましく、実質的に含まないことがより好ましい。

[0014] 半芳香族ポリアミドを構成する脂肪族ジアミン成分としては、例えば、1, 2-エタンジアミン、1, 3-プロパンジアミン、1, 4-ブタンジアミン、1, 5-ペンタンジアミン、1, 6-ヘキサンジアミン、1, 7-ヘプタンジアミン、1, 8-オクタンジアミン、1, 9-ノナンジアミン、1, 10-デカンジアミン、1, 11-ウンデカンジアミン、1, 12-ドデカンジアミン、2-メチル-1, 5-ペンタンジアミン、2-メチル-1, 8-オクタンジアミンが挙げられる。中でも、結晶性が高くなり、反射率が向上したポリアミドが得られることから、1, 8-オクタンジアミン、1, 10-デカンジアミン、1, 12-ドデカンジアミンが好ましく、成形流動性と機械的物性のバランスがよいポリアミドが得られることから、1, 10-デカンジアミンがより好ましい。前記した脂肪族ジアミン成分は複数種を併用してもよい。

半芳香族ポリアミドには、上記脂肪族ジアミン成分以外に、シクロヘキサ

ンジアミン等の脂環式ジアミン成分や、キシリレンジアミン、ベンゼンジアミン等の芳香族ジアミン成分等のジアミン成分が共重合してもよい。これら脂環式ジアミンや芳香族ジアミンの含有量は、原料モノマーの総モル数に対し、5モル%以下とすることが好ましく、実質的に含まないことがより好ましい。

[0015] 本発明に用いるポリアミド(A)の具体例としては、例えば、ポリアミド10T(デカンジアミンとテレフタル酸との重合体)、ポリアミド10I(デカンジアミンとイソフタル酸との重合体)、ポリアミド9T(ノナンジアミンとテレフタル酸との重合体)、ポリアミド6T(ヘキサンジアミンとテレフタル酸との重合体)、ポリアミドM-5T(メチルペンタンジアミンとテレフタル酸との重合体)、ポリアミド10T/10I(ポリアミド10Tとポリアミド10Iとの共重合体)、ポリアミド10T/9T(ポリアミド10Tとポリアミド9Tとの共重合体)、ポリアミド10T/6T(ポリアミド10Tとポリアミド6Tとの共重合体)、ポリアミド10T/66(ポリアミド10Tとポリアミド66の共重合体)、ポリアミド10T/6(ポリアミド10Tとポリアミド6との共重合体)、ポリアミド6T/6I(ポリアミド6Tとポリアミド6Iとの共重合体)、ポリアミド6T/M-5T(ポリアミド6TとポリアミドM-5Tとの共重合体)、ポリアミド6T/66(ポリアミド6Tとポリアミド66との共重合体)、ポリアミド6T/6I/66(ポリアミド6Tとポリアミド6Iとポリアミド66との共重合体)、ポリアミド6T/6(ポリアミド6Tとポリアミド6との共重合体)等が挙げられる。

[0016] 半芳香族ポリアミドは、モノカルボン酸成分を含有することが好ましい。モノカルボン酸成分の含有量は、半芳香族ポリアミドを構成する全モノマー成分に対して4.0モル%以下であることが好ましく、ポリアミドの成形流動性が向上できることから、0.3~4.0モル%であることがより好ましく、0.3~3.0モル%であることがさらに好ましく、0.8~2.5モル%であることが特に好ましい。モノカルボン酸の含有量が4.0モル%を

超えると、ポリアミドは機械的特性が低くなる場合がある。

モノカルボン酸成分の分子量は、140以上であることが好ましく、170以上であることがより好ましい。モノカルボン酸の分子量が140以上であると、ポリアミドは成形流動性が向上する。さらに、得られる樹脂組成物は、溶融加工時の流動性が向上することにより、加工温度を下げることや、せん断発熱を小さくすることが可能となり、熱処理後の反射率の低下が抑えられた反射板を成形することができる。また半芳香族ポリアミドとポリシクロヘキシレンジメチレンテレフタレートの溶融混練時の相溶性が向上し、得られる成形体は強度も向上する。

モノカルボン酸としては、脂肪族モノカルボン酸、脂環式モノカルボン酸、芳香族モノカルボン酸が挙げられ、中でも、流動性の向上効果が高いことから、脂肪族モノカルボン酸が好ましい。分子量が140以上の脂肪族モノカルボン酸としては、カプリル酸、ノナン酸、デカン酸、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、ベヘン酸が挙げられる。中でも、汎用性が高いことから、ステアリン酸が好ましい。分子量が140以上の脂環式モノカルボン酸としては、4-エチルシクロヘキサンカルボン酸、4-ヘキシルシクロヘキサンカルボン酸、4-ラウリルシクロヘキサンカルボン酸が挙げられる。芳香族モノカルボン酸としては、4-エチル安息香酸、4-ヘキシル安息香酸、4-ラウリル安息香酸、アルキル安息香酸類、1-ナフトエ酸、2-ナフトエ酸およびそれらの誘導体が挙げられる。モノカルボン酸成分は複数種を併用してもよく、例えば、分子量が140以上のモノカルボン酸と分子量が140未満のモノカルボン酸とを併用してもよい。なお、本発明において、モノカルボン酸の分子量は、原料のモノカルボン酸の分子量を指す。

[0017] 半芳香族ポリアミドには、必要に応じて、カプロラクタムやラウロラクタム等のラクタム類、 α , ω -アミノカプロン酸、 α , ω -アミノノナン酸、 α , ω -アミノウンデカン酸等の α , ω -アミノカルボン酸が共重合してもよい。

- [0018] 半芳香族ポリアミドは、従来から知られている加熱重合法や溶液重合法の方法を用いて製造することができる。中でも、工業的に有利である点から、加熱重合法が好ましく用いられる。加熱重合法としては、芳香族ジカルボン酸成分と、脂肪族ジアミン成分とから反応物を得る工程 (i) と、得られた反応物を重合する工程 (ii) とからなる方法が挙げられる。
- [0019] 工程 (i) としては、例えば、芳香族ジカルボン酸粉末を、予め脂肪族ジアミンの融点以上、かつ芳香族ジカルボン酸の融点以下の温度に加熱し、この温度の芳香族ジカルボン酸粉末に、芳香族ジカルボン酸の粉末の状態を保つように、実質的に水を含有させずに、脂肪族ジアミンを添加する方法が挙げられる。あるいは、別の方法としては、溶融状態の脂肪族ジアミンと固体の芳香族ジカルボン酸とからなる懸濁液を攪拌混合し、混合液を得た後、最終的に生成する半芳香族ポリアミドの融点未満の温度で、芳香族ジカルボン酸と脂肪族ジアミンの反応による塩の生成反応と、生成した塩の重合による低重合物の生成反応とをおこない、塩および低重合物の混合物を得る方法が挙げられる。この場合、反応をさせながら破碎をおこなってもよいし、反応後に一旦取り出してから破碎をおこなってもよい。工程 (i) は、反応物の形状の制御が容易な前者の方が好ましい。
- [0020] 工程 (ii) としては、例えば、工程 (i) で得られた反応物を、最終的に生成する半芳香族ポリアミドの融点未満の温度で固相重合し、所定の分子量まで高分子量化させ、半芳香族ポリアミドを得る方法が挙げられる。固相重合は、重合温度 180～270℃、反応時間 0.5～10 時間で、窒素等の不活性ガス気流中でおこなうことが好ましい。
- [0021] 半芳香族ポリアミドの製造において、重合の効率を高めるため重合触媒を用いてもよい。重合触媒としては、例えば、リン酸、亜リン酸、次亜リン酸またはそれらの塩が挙げられる。重合触媒の添加量は、通常、芳香族ジカルボン酸と脂肪族ジアミンの総モルに対して、2 モル%以下で用いることが好ましい。
- [0022] 本発明において、ポリアミド (A) の融点は、280℃以上であることが

必要であり、300℃以上であることが好ましい。ポリアミド（A）の融点が280℃未満であると、得られる成形体は、耐リフロー性が劣ることがある。

[0023] 本発明において、ポリアミド（A）は、96%硫酸中、25℃、濃度1g／dLで測定した場合の相対粘度が、1.8以上であることが好ましく、1.8～2.6であることがより好ましく、1.9～2.4であることがさらに好ましい。相対粘度は、分子量の指標とすることができる。

[0024] 本発明の樹脂組成物を構成するポリエステル（B）は、ポリシクロヘキシレンジメチレンテレフタレートであることが必要である。ポリシクロヘキシレンジメチレンテレフタレートは、テレフタル酸を含有するジカルボン酸成分と、1,4-シクロヘキサンジメタノールを含有するグリコール成分との重縮合物である。ジカルボン酸成分中のテレフタル酸の含有量は80モル%以上であることが好ましく、グリコール成分中の1,4-シクロヘキサンジメタノールの含有量も80モル%以上であることが好ましい。ポリシクロヘキシレンジメチレンテレフタレートは、SKケミカル社、イーストマンケミカルから入手することができる。

[0025] 本発明において、ポリエステル（B）の重量平均分子量は、40,000～90,000であることが好ましく、55,000～85,000であることがより好ましい。ポリエステル（B）は、重量平均分子量が40,000未満であると、機械的特性が不良となる場合があり、重量平均分子量が90,000を超えると、熔融加工時の流動性が低下し、成形性が不良になる場合がある。なお、重量平均分子量は、溶媒としてクロロホルム／ヘキサフルオロイソプロパノール（体積比95／5）溶液を用いたゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）で測定したポリスチレン標準サンプルの換算値である。

[0026] 本発明において、ポリアミド（A）とポリエステル（B）との質量比（A／B）は、5／95～95／5であることが必要であり、20／80～80／20であることが好ましく、20／80～50／50であることがより好

ましい。ポリアミド（A）の含有量が5質量%未満であると、得られる反射板は、機械的特性が低いばかりか、加熱環境下で反射率が低下し、また耐リフロー性に劣るものとなる。また、ポリアミド（A）の含有量が95質量%を超えると、同様に、得られる反射板は、加熱環境下で反射率が低下するものとなる。

[0027] 本発明の樹脂組成物を構成する白色顔料（C）は、特に限定されないが、例えば、酸化チタン、硫酸バリウム、炭酸カルシウムが挙げられ、中でも、反射率が高い反射板が得られることから、酸化チタンが好ましい。

[0028] 酸化チタンは、ルチル型またはアナターゼ型の結晶構造を有するものが好ましく、屈折率が高く光安定性が良好なルチル型がより好ましい。酸化チタンの粒子径は、0.05～2.0 μm であることが好ましく、0.05～0.5 μm であることがより好ましい。なお、酸化チタンは、中性化のためや、ポリマーとの濡れ性改善のために、表面処理されていてもよい。表面処理剤としては、例えば、アルミナ、シリカ、酸化亜鉛、酸化ジルコニウム等の金属酸化物、ステアリン酸等の有機酸またはそれらの金属塩、ポリオール、シランカップリング剤、チタンカップリング剤が挙げられる。

[0029] 硫酸バリウムは、天然に産出するものでも合成品でもよく、前者としては、重晶石（バライト）、後者としては、沈降性硫酸バリウムが挙げられる。硫酸バリウムは、中性化のためや、ポリマーとの濡れ性改善のために、表面処理されていてもよい。硫酸バリウムの粒径は、0.005～10 μm であることが好ましく、0.01～1 μm であることがより好ましい。

[0030] 炭酸カルシウムとしては、例えば、方解石（カルサイト）、霏石（アラゴナイト）、天然炭酸カルシウム（重質炭酸カルシウム）、合成炭酸カルシウム（沈降炭酸カルシウム）が挙げられ、中でも、方解石、霏石が好ましい。炭酸カルシウムは、中性化のためや、ポリマーとの濡れ性改善のために、表面処理されていてもよい。炭酸カルシウムの粒子径は、0.05～10 μm であることが好ましく、0.1～5 μm であることがより好ましい。

[0031] 白色顔料（C）の含有量は、ポリアミド（A）とポリエステル（B）の合

計 100 質量部に対し、10～150 質量部であることが必要であり、20～130 質量部であることが好ましく、20～100 質量部であることがより好ましく、30～100 質量部であることがさらに好ましい。白色顔料（C）の含有量が 10 質量部未満であると、得られる反射板は、反射率が低いものとなる。一方、白色顔料（C）の含有量が 150 質量部を超えると、機械的特性の補強効率が低下するばかりでなく、溶融混練時の作業性が低下し、樹脂組成物のペレットを得ることが難しくなる。

[0032] 本発明の樹脂組成物は、強化材（D）を含有してもよい。強化材（D）としては、例えば、ガラス繊維、チタン酸カリウム繊維、アルミナ繊維、シリカ繊維、ジルコニア繊維、炭化ケイ素繊維、セラミックス繊維、ワラストナイト、セピオライト、アタパルジャイト、酸化亜鉛、硫化亜鉛、硫酸亜鉛、硫酸バリウム、炭酸カルシウム、酸化アルミニウムが挙げられる。中でも、樹脂組成物の溶融温度において溶融せず、反射率を保持または向上させる点では、酸化亜鉛、硫化亜鉛、硫酸亜鉛、硫酸バリウム、炭酸カルシウム、酸化アルミニウムが好ましい。また、機械的特性を向上させる点では、ガラス繊維、チタン酸カリウム繊維、ワラストナイトが好ましい。

[0033] 強化材（D）としてのガラス繊維は、シランカップリング剤で表面処理されていることが好ましく、ガラス繊維を束ねるための集束剤にシランカップリング剤を分散させて、表面処理されていてもよい。シランカップリング剤としては、例えば、ビニルシラン系、アクリルシラン系、エポキシシラン系、アミノシラン系のものが挙げられ、ポリアミド（A）とガラス繊維との密着効果を得やすいことから、アミノシラン系のものが好ましい。

ガラス繊維の繊維長は、0.01～7 mm であることが好ましく、0.02～5 mm であることがより好ましい。また、繊維径は、1～20 μm であることが好ましく、3～12 μm であることがより好ましい。ガラス繊維は、繊維長が 0.01～7 mm であり、繊維径が 1～20 μm であることで、成形性に悪影響を及ぼすことなく、効率よく補強することができる。

[0034] 樹脂組成物が強化材（D）を含有する場合、その含有量は、ポリアミド（

A) とポリエステル (B) の合計 100 質量部に対して、10～80 質量部であることが好ましく、15～60 質量部であることがより好ましく、20～40 質量部であることがさらに好ましい。強化材 (D) の含有量が 10 質量部未満であると、機械的特性の向上の効果が得られない場合があり、一方、強化材 (D) の含有量が 80 質量部を超えると、機械的特性の補強効率が低下したり、熔融混練時の作業性が低下し、樹脂組成物のペレットを得ることが難しくなったりする場合があります、また、強化材が成形表面に浮き出ることにより、得られる反射板は、反射率が低下する場合がある。

[0035] 本発明の樹脂組成物は、反射率の低下を抑制することを目的として、酸化防止剤 (E) を含有してもよい。

強化剤 (D) として繊維状強化材を含有する樹脂組成物は、射出成形において、成形サイクルが長いときや射出量が少ないときに、高温のシリンダー内に長時間滞留すると、繊維状強化材の表面処理剤が熱分解し、機械的特性の低下を引き起こす場合がある。しかし、酸化防止剤 (E) を含有することにより、樹脂組成物の機械的特性の低下を抑制することができる。酸化防止剤 (E) は、通常、樹脂組成物の分子量低下や色の退化を目的に含有させるものであるが、このように、樹脂組成物の滞留安定性を向上させることができる。

[0036] 樹脂組成物が酸化防止剤 (E) を含有する場合、その含有量は、ポリアミド (A) とポリエステル (B) の合計 100 質量部に対して、0.05～2.5 質量部であることが好ましく、0.5～2.5 質量部であることがより好ましい。酸化防止剤 (E) の含有量が 0.05 質量部未満であると、上記の効果が小さい場合があり、一方、2.5 質量部を超えると、分解物により成形時に金型が汚れやすく、成形不良が発生する場合がある。

[0037] 酸化防止剤 (E) としては、例えば、リン系酸化防止剤、ヒンダードフェノール系酸化防止剤、ヒンダードアミン系酸化防止剤、トリアジン系化合物、硫黄系化合物が挙げられ、中でも、特に、リン系酸化防止剤、ヒンダードフェノール系酸化防止剤、硫黄系化合物が好ましい。

[0038] リン系酸化防止剤は、無機化合物でも有機化合物でもよく、例えば、リン酸一ナトリウム、リン酸二ナトリウム、リン酸三ナトリウム、亜リン酸ナトリウム、亜リン酸カルシウム、亜リン酸マグネシウム、亜リン酸マンガン等の無機リン酸塩、トリフェニルホスファイト、トリオクタデシルホスファイト、トリデシルホスファイト、トリノニルフェニルホスファイト、ジフェニルイソデシルホスファイト、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、トリス（2，4-ジ-tert-ブチルフェニル）ホスファイト、ジステアシルペンタエリスリトールジホスファイト、ビス（ノニルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、テトラキス（2，4-ジ-tert-ブチルフェニル）-4，4-ビフェニレンジフォスファイトが挙げられる。これらは上記のうち1種を単独で用いてもよいし、複数種を併用してもよい。中でも、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、テトラキス（2，4-ジ-tert-ブチルフェニル）-4，4-ビフェニレンジフォスファイトが好ましい。市販のリン系酸化防止剤としては、例えば、アデカ社製“アデカスタブ”PEP-8、PEP-36、PEP-4C、クラリアント社製“ホスタノックス”PEPQが挙げられる。

[0039] ヒンダードフェノール系酸化防止剤としては、例えば、n-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、n-オクタデシル-3-（3'-メチル-5'-tert-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル）-プロピオネート、n-テトラデシル-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、1，6-ヘキサンジオール-ビス-〔3-（3，5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル）-プロピオネート〕、1，4-ブタンジオール-ビス-〔3-（3，5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル）-プロピオネート〕、2，2'-メチレンビス-（4-メチル-tert-ブチルフェノール）、トリエチレングリコール-ビス-〔3-（3-tert-ブチル-5-メチル-4-ヒドロキシフェニル）-プロピオネート〕、テトラキス〔メチレ

ン-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]メタン、3, 9-ビス[2-{3-(3-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)プロピオニルオキシ}-1, 1-ジメチルエチル]2, 4, 8, 10-テトラオキサスピロ(5, 5)ウンデカン、N, N'-ビス-3-(3', 5'-ジ-tert-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオニルヘキサメチレンジアミン、N, N'-テトラメチレン-ビス-3-(3'-メチル-5'-tert-ブチル-4'-ヒドロキシフェノール)プロピオニルジアミン、N, N'-ビス-[3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェノール)プロピオニル]ヒドラジン、N-サリチロイル-N'-サリチリデンヒドラジン、3-(N-サリチロイル)アミノ-1, 2, 4-トリアゾール、N, N'-ビス[2-{3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオニルオキシ}エチル]オキシアミド、ペンタエリスリチル-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]、N, N'-ヘキサメチレン-ビス-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-ヒドロシンナマイド)が挙げられる。これらは上記のうち1種を単独で用いてもよいし、複数種を併用してもよい。中でも、トリエチレングリコール-ビス-[3-(3-tert-ブチル-5-メチル-4-ヒドロキシフェニル)-プロピオネート]、テトラキス[メチレン-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]メタン、1, 6-ヘキサンジオール-ビス-[3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)-プロピオネート]、ペンタエリスリチル-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]、N, N'-ヘキサメチレン-ビス-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-ヒドロシンナマイド)が好ましい。市販のヒンダードフェノール系酸化防止剤としては、例えば、アデカ社製“アデカスタブ”AO-20、AO-30、AO-40、AO-50、AO-60、AO-70、AO-80、AO-330、チバスペシャルティケミカル社製“イルガノックス”245、259、565、1010、

1035、1076、1098、1222、1330、1425、1520、3114、5057、住友化学工業社製“スミライザー”BHT-R、MDP-S、BBM-S、WX-R、NW、BP-76、BP-101、GA-80、GM、GS、サイアナミド社製“サイアノックス”CY-1790が挙げられる。

[0040] 硫黄系酸化防止剤としては、例えば、ジステアリル3, 3'-チオジプロピオネート、ペンタエリスリチルテトラキス(3-ラウリルチオプロピオネート)、2-メルカプトベンズイミダゾール、ジドデシル3, 3'-チオジプロピオネート、ジオクタデシル3, 3'-チオジプロピオネート、ジトリデシル3, 4'-チオジプロピオネート、2, 2-ビス[[3-(ドデシルチオ)-1-オキソプロポキシ]メチル]-1, 3-プロパンジイルエステル挙げられる。これらは上記のうち1種を単独で用いてもよいし、複数種を併用してもよい。中でも、ジステアリル3, 3'-チオジプロピオネート、ペンタエリスリチルテトラキス(3-ラウリルチオプロピオネート)が好ましい。市販の硫黄系酸化防止剤としては、例えば、住友化学工業社製“スミライザー”TP-Dが挙げられる。

[0041] 本発明の樹脂組成物は、反射率の低下を抑制することを目的として、光安定剤(F)を含有してもよい。白色顔料(C)として酸化チタンを含有する樹脂組成物においては、酸化チタンが光分解を促進することがあるので、光安定剤(F)を含有することが好ましい。

光安定剤(F)を含有する場合、その含有量は、ポリアミド(A)とポリエステル(B)の合計100質量部に対して、0.1~3質量部であることが好ましく、0.2~2質量部であることがより好ましい。光安定剤(F)の含有量が0.1質量部未満であると、得られる反射板は、反射率の低下の抑制効果が小さい場合があり、3質量部を超えると、分解物により成形時に金型が汚れやすく、成形不良が発生する場合がある。

[0042] 光安定剤(F)としては、例えば、ベンゾフェノン系化合物、ベンゾトリアゾール系化合物、サリシレート系化合物、ヒンダードアミン系化合物(H

ALS)、ヒンダードフェノール系化合物が挙げられ、中でも、半芳香族ポリアミドとの親和性や耐リフロー性が高いことからヒンダードアミン系化合物が好ましい。市販の光安定剤としては、例えば、クラリアントジャパン社製“ナイロスタブ”SEEED、共同薬品社製“バイオソープ”04、チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社製“チヌビン”622、765、Cytec社製“サイアソープ”UV-3346、旭電化工業社製“アデカスタブ”LA-57、BASF社製“チマソープ”119、944が挙げられる。

[0043] 本発明においては、酸化防止剤(E)と光安定剤(F)を併用することが好ましい。酸化防止剤(E)と光安定剤(F)を併用することにより、成形時において、樹脂組成物の滞留安定性を向上させることができ、また得られる反射板は、高温下での熱劣化が効率的に防止され、反射率の低下を抑制することができる。

[0044] 本発明の樹脂組成物には、さらに、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、水酸化カルシウム等の金属水酸化物を含有することが好ましい。金属水酸化物を含有することにより、得られる反射板は、反射率の低下を効率的に抑制することができる。

金属水酸化物は、中性化のためや、ポリマーとの濡れ性改善のために、表面処理されていてもよい。金属水酸化物を含有する場合、その含有量は、ポリアミド(A)とポリエステル(B)の合計100質量部に対して、0.1～30質量部であることが好ましく、1～20質量部であることがより好ましい。

[0045] 本発明の樹脂組成物には、必要に応じて他の添加剤を加えてもよい。他の添加剤としては、例えば、タルク、膨潤性粘土鉱物、シリカ、ガラスビーズ等の充填材、帯電防止剤、難燃剤、難燃助剤が挙げられる。

[0046] 本発明の樹脂組成物を製造する方法は、特に限定されず、例えば、ポリアミドの重合時に、ポリエステル(B)と白色顔料(C)を添加する方法や、ポリアミド(A)とポリエステル(B)と白色顔料(C)を溶融混練する方法が挙げられ、その際、必要に応じて、強化材(D)、酸化防止剤(E)、

光安定剤（F）、他の添加剤を添加してもよい。

[0047] 本発明の樹脂組成物を成形することによって、本発明の反射板などの成形体を製造することができる。成形方法としては、例えば、射出成形法、押出成形法、ブロー成形法が挙げられ、中でも、射出成形法が好ましい。

射出成形機としては、特に限定されないが、例えば、スクリーインライン式射出成形機、プランジャ式射出成形機が挙げられる。射出成形機のシリンダー内で加熱熔融された樹脂組成物は、ショットごとに計量され、金型内に熔融状態で射出され、所定の形状で冷却、固化された後、成形体として金型から取り出される。射出成形時の樹脂温度は、樹脂組成物の融点以上であることが好ましく、（融点＋100℃）未満であることがより好ましい。なお、樹脂組成物の加熱熔融時には、十分に乾燥された樹脂組成物を用いることが好ましい。樹脂組成物は、水分率が高いと、射出成形機のシリンダー内で発泡し、最適な成形体を得ることが困難となることがある。射出成形に用いる樹脂組成物の水分率は、0.3質量%未満が好ましく、0.1質量%未満がより好ましい。

[0048] 本発明の反射板は、耐リフロー性を有し、また、長時間の加熱環境下においても反射率の低下が抑制されているため、LEDパッケージの反射板として使用することができ、LEDパッケージは、LED照明装置に用いることができる。

また本発明の樹脂組成物を成形してなる成形体は、自動車部品、電気電子部品等の広範な用途にも使用することができる。自動車部品としては、例えば、ランプリフレクター、ランプハウジング、ランプエクステンション、ランプソケットの電装系部品が挙げられる。電気電子部品としては、例えば、コネクタ、スイッチ、センサー、コンデンサ、ジャック、リレー、コイルボビン、抵抗器、各種筐体が挙げられる。

実施例

[0049] 以下、本発明を実施例によって具体的に説明するが、本発明はこれらによって限定されるものではない。

[0050] 1. 測定方法

(1) ポリアミドの相対粘度

96質量%硫酸を溶媒とし、濃度1g/dL、25℃で測定した。

[0051] (2) ポリアミドの融点

パーキンエルマー社製示差走査型熱量計DSC-7を用い、昇温速度20℃/分で350℃まで昇温した後、350℃で5分間保持し、降温速度20℃/分で25℃まで降温し、さらに25℃で5分間保持後、再び昇温速度20℃/分で昇温測定した際の吸熱ピークのトップを融点とした。

[0052] (3) 引張強度

樹脂組成物を十分に乾燥した後、ファナック製射出成形機($\alpha-100iA$)を用いて、樹脂温度330℃、金型温度135℃、成形サイクル25秒の条件で、ISO準拠の試験片を作製した。得られた試験片について、ISO527に従って引張強度を測定した。

実用上、引張強度は35MPa以上が好ましい。

[0053] (4) 反射率、反射保持率

樹脂組成物を十分に乾燥した後、ニイガタマシンテクノ社製射出成形機(CND-15AII)を用いて、樹脂温度330℃、金型温度135℃、成形サイクル15秒の条件で、20mm×20mm×0.5mmの成形体を作製した。

得られた成形体を150℃で300時間、オーブンで加熱処理し、処理前後の成形体について、日本電色社製分光フォトメーターSE6000(光源:C-2)により、460nmの波長の反射率を測定した。

実用上、処理前の反射率は90%以上であることが好ましく、95%以上であることがより好ましい。

反射保持率は、以下の式を用いて求めた。

$$\text{反射保持率} = ([\text{処理後の反射率}] / [\text{処理前の反射率}]) \times 100$$

反射保持率は、90%以上であることが好ましく、95%以上であることがより好ましい。

[0054] (5) 耐リフロー性

金型内にセットされたリードフレームに、樹脂組成物を射出成形し、反射板を作製し、次いで、半導体発光素子としてInGa_N系青色からなる青色LED素子を、銀ペーストを用いて固定した。金線を取り付け、その後、透明封止樹脂を注入し、150℃、1時間加熱し、硬化させ、図1に示す表面実装型LEDパッケージを得た。図1において、1は反射板、2はリードフレーム、3は金線、4は透明封止樹脂、5は半導体発光素子を示す。

得られた表面実装型LEDパッケージ20個を、JEDEC（電子機器技術評議会）レベル3の吸湿処理（環境条件：温度60℃、湿度60%で50時間処理）をおこなった後、JEDEC J-STD-020Dに準じて、ピーク温度260℃10秒の温度条件におけるリフロー試験を2回繰り返した。リフロー試験後、LEDパッケージ内の反射板1と透明封止樹脂4を、実体顕微鏡を用いて観察し、以下の基準で評価した。

不良品：反射板1に変色、ひび割れ（クラック）があるか、反射板1と透明封止樹脂4の間の剥離がある。

良品：反射板1に変色、ひび割れ（クラック）がなく、反射板1と透明封止樹脂4の間の剥離もない。

リフロー試験後の不良品率（＝（不良品の数／試験に用いたパッケージ数）×100（％））を計算し、95％以上を「◎」、90％以上、95％未満を「○」、90％未満を「×」と評価した。

[0055] 2. 原材料

(1) ポリアミド (A)

・半芳香族ポリアミド (A-1)

芳香族ジカルボン酸成分として粉末状のテレフタル酸 (TPA) 4.70 kg と、モノカルボン酸成分としてステアリン酸 (STA) 0.32 kg と、重合触媒として次亜リン酸ナトリウム一水和物 9.3 g とを、リボンブレンダー式の反応装置に入れ、窒素密閉下、回転数 30 rpm で攪拌しながら 170℃ に加熱した。その後、温度を 170℃ に保ち、かつ回転数を 30 r

p mに保ったまま、液注装置を用いて、脂肪族ジアミン成分として100℃に加温した1, 10-デカンジアミン (DDA) 4.98 kgを、2.5時間かけて連続的（連続液注方式）に添加し反応物を得た。なお、原料モノマーのモル比は、TPA : DDA : STA = 48.5 : 49.6 : 1.9（原料モノマーの官能基の当量比率は、TPA : DDA : STA = 49.0 : 50.0 : 1.0）であった。

続いて、得られた反応物を、同じ反応装置で、窒素気流下、250℃、回転数30 rpmで8時間加熱して重合し、半芳香族ポリアミドの粉末を作製した。

その後、得られた半芳香族ポリアミドの粉末を、二軸混練機を用いてストランド状とし、ストランドを水槽に通して冷却固化し、それをペレタイザーでカッティングして半芳香族ポリアミド (A-1) ペレットを得た。

・半芳香族ポリアミド (A-2 ~ A-8)

表1に示す樹脂組成になるように各成分の種類や配合量を変更した以外は、半芳香族ポリアミド (A-1) と同様にして半芳香族ポリアミドペレット (A-2 ~ A-8) を得た。なお、使用したモノカルボン酸の分子量は、ステアリン酸 : 284、カプリル酸 : 144、安息香酸 : 122である。

半芳香族ポリアミド (A-1 ~ A-8) の組成、融点、相対粘度を表1に示す。

[0056]

[表1]

半芳香族ポリアミドの樹脂組成										特性値	
芳香族ジカルボン酸成分			脂肪族ジアミン成分		モノカルボン酸成分				融点 ℃	相対 粘度	
種類	含有量		種類	含有量 モル%	種類	分子量	含有量 モル%				
	モル%										
A-1	TPA	48.5	DDA	49.6	STA	284	1.9	317	2.30		
A-2	TPA	49.3	DDA	50.4	STA	284	0.3	317	3.50		
A-3	TPA	47.0	DDA	49.4	STA	284	3.6	310	1.85		
A-4	TPA	48.5	DDA	49.6	BA	122	1.9	317	2.24		
A-5	TPA	48.5	NDA	49.6	STA	284	1.9	310	2.18		
A-6	TPA	48.5	DDA	49.6	CP	144	1.9	317	2.25		
A-7	TPA	48.5	DDA HDA	34.7 14.9	STA	284	1.9	295	2.16		
A-8	TPA IPA	38.3 10.2	DDA	49.6	STA	284	1.9	290	2.26		

TPA:テレフタル酸、IPA:イソフタル酸、DDA:1,10-デカンジアミン、NDA:1,9-ナフタレンジアミン、HDA:1,6-ヘキサレンジアミン
STA:スチレンジアミン、BA:安息香酸、CP:カプロン酸

[0057] ・ P A 6 T / 6 6 : 三井化学社製「アーレン C 3 0 0 0」、ナイロン 6 T と
 ナイロン 6 6 との共重合体、融点 3 1 0 °C

- ・ P A 6 6 : ユニチカ社製「A 1 2 5」、ナイロン 6 6、融点 2 6 5 °C
- ・ M X D 6 : 三菱エンジニアリングプラスティック社製「レニー 6 0 0 2」、メタキシレンジアミンとアジピン酸からなる半芳香族ポリアミド、融点 2 4 3 °C

[0058] (2) ポリエステル (B)

- ・ P C T : S K ケミカル社製、ポリシクロヘキシレンジメチレンテレフタレート、重量平均分子量 8 0, 0 0 0

(3) ポリブチレンテレフタレート

- ・ P B T : 三菱化学社製「ノバデュラン 5 0 1 0 R 5」

[0059] (4) 白色顔料 (C)

- ・ T I : 石原産業社製「タイペーク P C - 3」、酸化チタン、平均粒径 0. 2 1 μm
- ・ B S : 堺化学社製「バリファイン B F - 2 0」、硫酸バリウム、平均粒径 0. 0 3 μm
- ・ C C : 白石工業社製「B r i l l i a n t - 1 5 0 0」、炭酸カルシウム、平均粒径 0. 2 0 μm

[0060] (5) 強化材 (D)

- ・ G F : 日本電気硝子社製「E C S 0 3 T - 7 8 6 H」、ガラス繊維、平均繊維径 1 0. 5 μm 、平均繊維長 3 m m
- ・ W : N Y G L O S 社製「N Y G L O S 4 W」、ワラストナイト、平均繊維径 4 μm 、平均繊維長 3 2 μm

[0061] (6) 酸化防止剤 (E)

- ・ A O - 1 : アデカ社製「アデカスタブ P E P - 3 6」、ビス (2, 6 - ジーtert - ブチルー 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、リン系酸化防止剤
- ・ A O - 2 : アデカ社製「A O - 8 0」、3, 9 - ビス [2 - {3 - (3 - tert - ブチルー 4 - ヒドロキシー 5 - メチルフェニル) プロピオニルオキシ} - 1, 1 - ジメチルエチル] 2, 4, 8, 1 0 - テトラオキサスピロ (5,

5) ウンデカン、ヒンダードフェノール系酸化防止剤

・ A O - 3 : 住友化学工業社製「スミライザー T P - D」、ペンタエリスリチルテトラキス (3-ラウリルチオプロピオネート)、硫黄系酸化防止剤

[0062] (7) 光安定剤 (F)

・ L S : クラリアントジャパン社製「ナイロスタブ S - E E D」、2-エチル-2-エトキシーオキザルアニリド

[0063] 実施例 1

同方向二軸押出機 (東芝機械社製 T E M 2 6 S S、スクリー径 2 6 m m、L/D 4 9) の主供給口に、クボタ社製ロスインウェイト式連続定量供給装置 C E - W - 1 を用いて計量した半芳香族ポリアミド (A - 1) 9 5 質量部、P C T 5 質量部、T I 7 0 質量部を供給し、熔融混練をおこなった。熔融温度は 3 2 0 ~ 3 4 0 ° C、スクリー回転数は 2 5 0 r p m、吐出量は 3 5 k g / 時間であった。その後、ストランド状に引き取った後、水槽に通して冷却固化し、それをペレタイザーでカッティングして樹脂組成物を得た。

[0064] 実施例 2 ~ 3 0、比較例 1 ~ 7

表 2 および表 3 に示す種類と含有量になるように各成分を変更した以外は、実施例 1 と同様にして樹脂組成物を得た。なお、ガラス繊維やワラストナイトを配合する場合は、表 2 および表 3 に示す量をサイドフィーダーで押出機途中から供給し、その他は主供給口から供給した。また比較例 5 においては、ポリアミド (A) に代えてポリブチレンテレフタレート (P B T) を使用した。比較例 6 においては、ポリシクロヘキシレンジメチレンテレフタレートに代えてポリブチレンテレフタレート (P B T) を使用した。

[0065] 比較例 8

実施例 1 1 と同様の操作をおこなったが、白色顔料の含有量が高かったため、ストランドが切断し、樹脂組成物を得ることができなかった。

[0066] 実施例と比較例で得られた樹脂組成物の樹脂組成およびその特性値を表 2、3 に示す。

[0067]

[表2]

	樹脂組成物の組成(質量部)											特性値					
	ポリアミド (A)		ポリエステル (B)		白色顔料 (C)		強化材 (D)		酸化防止剤 (E)			光安定 剤(F)	引張 強度	反射率			耐リフ ロー 性
														処理前	処理後	保持率	
	種類		PCT	PBT	種類		GF	W	AO-1	AO-2	AO-3	LS	MPa	%	%	%	%
実施例	1	A-1	95	5	-	TI	70	-	-	-	-	-	68	95	86	91	◎
	2	A-1	75	25	-	TI	70	-	-	-	-	-	59	96	87	91	◎
	3	A-1	50	50	-	TI	70	-	-	-	-	-	48	97	89	92	◎
	4	A-1	25	75	-	TI	70	-	-	-	-	-	43	97	90	93	◎
	5	A-1	5	95	-	TI	70	-	-	-	-	-	38	94	86	91	◎
	6	A-1	25	75	-	TI	10	-	-	-	-	-	50	90	81	90	◎
	7	A-1	25	75	-	TI	15	-	-	-	-	-	49	90	82	91	◎
	8	A-1	25	75	-	TI	30	-	-	-	-	-	47	93	85	91	◎
	9	A-1	25	75	-	TI	100	-	-	-	-	-	42	97	92	95	◎
	10	A-1	25	75	-	TI	145	-	-	-	-	-	40	98	93	95	◎
	11	A-1	25	75	-	TI	150	-	-	-	-	-	39	98	94	96	◎
	12	A-1	25	75	-	TI	70	30	-	-	-	-	78	96	88	92	◎
	13	A-1	25	75	-	TI	70	80	-	-	-	-	112	95	88	93	◎
	14	A-1	25	75	-	TI	70	30	30	-	-	-	87	96	90	94	◎
	15	A-1	25	75	-	TI	70	-	50	-	-	-	61	97	90	93	◎
	16	A-1	25	75	-	TI	70	-	-	0.5	-	-	43	97	92	95	◎
	17	A-1	25	75	-	TI	70	-	-	-	1.0	-	43	97	92	95	◎
	18	A-1	25	75	-	TI	70	-	-	-	-	-	44	97	93	96	◎
	19	A-1	25	75	-	TI	70	-	-	-	1.0	1.0	42	97	93	96	◎

実施例

[表3]

樹脂組成物の組成(質量部)															特性値			
ポリアミド (A)		ポリエステル (B)		白色顔料 (C)		強化材 (D)		酸化防止剤 (E)			光安定 剤(F)	引張 強度	反射率		耐リフ ロー性			
種類		PCT	PBT	種類		GF	W	AO-1	AO-2	AO-3	LS	MPa	処理前	処理後		保持率		
実施例	20	A-1	25	75	-	TI	70	-	50	0.5	1.0	1.0	62	97	95	98	◎	
	21	A-2	25	75	-	TI	70	-	50	0.5	1.0	1.0	61	97	95	98	◎	
	22	A-3	25	75	-	TI	70	-	50	0.5	1.0	1.0	63	97	94	97	◎	
	23	A-4	25	75	-	TI	70	-	50	0.5	1.0	1.0	56	96	91	95	◎	
	24	A-5	25	75	-	TI	70	-	50	0.5	1.0	1.0	63	96	92	96	◎	
	25	A-6	25	75	-	TI	70	-	50	0.5	1.0	1.0	63	95	89	94	◎	
	26	A-7	25	75	-	TI	70	-	50	0.5	1.0	1.0	58	96	90	94	◎	
	27	A-8	25	75	-	TI	70	-	50	0.5	1.0	1.0	54	95	88	93	◎	
比較例	28	PA6T/66	25	75	-	TI	70	-	50	0.5	1.0	1.0	72	94	85	90	◎	
	29	A-1	25	75	-	BS	70	-	50	0.5	1.0	1.0	47	90	84	93	○	
	30	A-1	25	75	-	CC	70	-	50	0.5	1.0	1.0	48	90	83	92	○	
	1	A-1	100	-	-	TI	70	-	-	-	-	-	69	93	75	81	◎	
	2	-	-	100	-	TI	70	-	-	-	-	-	34	90	78	87	×	
	3	PA66	25	75	-	TI	70	-	-	-	-	-	65	88	62	70	×	
	4	MXD6	25	75	-	TI	70	-	-	-	-	-	63	89	64	72	×	
	5	PBT	80	20	-	TI	80	20	-	-	-	-	68	88	72	82	×	
6	A-1	25	-	75	TI	70	-	-	-	-	-	52	89	68	76	×		
7	A-1	25	75	-	TI	5	-	-	-	-	-	51	80	63	79	×		
8	A-1	25	75	-	TI	160	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	

[0069] 実施例1～30では、得られたLEDパッケージは、耐リフロー性を有し

、成形体は、反射率が高く、加熱環境下の反射率の保持率が高かった。

実施例 16～19 では、酸化防止剤を含有するため、酸化防止剤を含有しない実施例 4 と比べて、加熱環境下の反射率の保持率がやや高かった。実施例 20 では、白色顔料として酸化チタンを含有するため、その他の白色顔料を含有する実施例 29、30 と比べて、反射率がやや高かった。

[0070] 比較例 1 では、融点が高いポリアミドを含有するため、得られた LED パッケージは、耐リフロー性を有するものの、ポリシクロヘキシレンジメチレンテレフタレート含有しないため、成形体は、加熱環境下の反射率の保持率が低かった。

比較例 2 では、ポリアミドを含有しないため、比較例 3、4 では、ポリアミドの融点が低いため、比較例 5 では、ポリアミドに代えてポリブチレンテレフタレートを使用したため、比較例 6 では、ポリシクロヘキシレンジメチレンテレフタレートに代えてポリブチレンテレフタレートを使用したため、いずれも、得られた成形体は、加熱環境下の反射率の保持率が低く、また、LED パッケージは、耐リフロー性を有していなかった。

比較例 7 では、白色顔料の含有量が少なかったため、得られた成形体は、反射率が低く、また、図 1 に示される LED パッケージにおいて反射板 1 の変色が著しく、耐リフロー性を有していなかった。比較例 8 では、白色顔料の含有量が高かったため、ストランドが切断し、樹脂組成物が得られなかった。

符号の説明

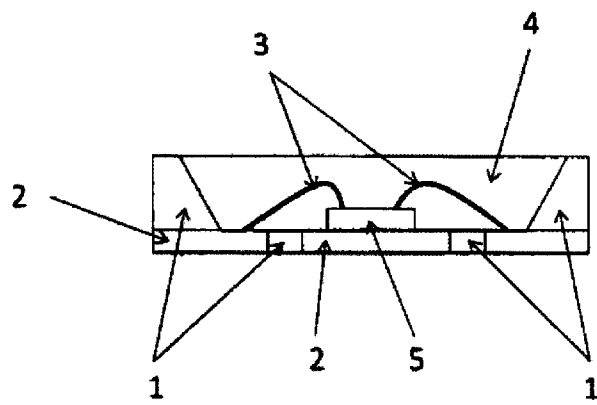
- [0071] 1 反射板
2 リードフレーム
3 金線
4 透明封止樹脂
5 半導体発光素子

請求の範囲

- [請求項1] ポリアミド（A）、ポリエステル（B）および白色顔料（C）を含有する樹脂組成物であって、
ポリアミド（A）は、融点が280℃以上であり、
ポリエステル（B）が、ポリシクロヘキシレンジメチレンテレフタレートであり、
ポリアミド（A）とポリエステル（B）との質量比（A／B）が、5／95～95／5であり、
白色顔料（C）の含有量が、ポリアミド（A）とポリエステル（B）の合計100質量部に対して、10～150質量部であることを特徴とする樹脂組成物。
- [請求項2] さらに、強化材（D）を含有し、その含有量が、ポリアミド（A）とポリエステル（B）の合計100質量部に対して、10～80質量部であることを特徴とする請求項1記載の樹脂組成物。
- [請求項3] さらに、酸化防止剤（E）を含有し、その含有量が、ポリアミド（A）とポリエステル（B）の合計100質量部に対して、0.05～2.5質量部であることを特徴とする請求項1または2記載の樹脂組成物。
- [請求項4] さらに、光安定剤（F）を含有し、その含有量が、ポリアミド（A）とポリエステル（B）の合計100質量部に対して、0.1～3質量部であることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の樹脂組成物。
- [請求項5] 酸化防止剤（E）が、リン系酸化防止剤、ヒンダードフェノール系酸化防止剤および硫黄系酸化防止剤からなる群より選ばれる1種以上であることを特徴とする請求項3記載の樹脂組成物。
- [請求項6] ポリアミド（A）が、芳香族ジカルボン酸成分と脂肪族ジアミン成分とモノカルボン酸成分を含有する半芳香族ポリアミドであることを特徴とする請求項1～5のいずれかに記載の樹脂組成物。

- [請求項7] 脂肪族ジアミン成分が、1, 10-デカンジアミンを含有することを特徴とする請求項6記載の樹脂組成物。
- [請求項8] 白色顔料（C）が、酸化チタン、硫酸バリウムおよび炭酸カルシウムからなる群より選ばれる1種以上であることを特徴とする請求項1～7のいずれかに記載の樹脂組成物。
- [請求項9] 請求項1～8のいずれかに記載の樹脂組成物を成形してなる反射板。
- [請求項10] 請求項9記載の反射板を備えるLEDパッケージ。
- [請求項11] 請求項10記載のLEDパッケージを備える照明装置。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/067996

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L77/06(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08L67/02(2006.01)i, G02B1/04(2006.01)i, G02B5/08(2006.01)i, H01L33/60(2010.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C08L77, C08K3, C08L67, G02B1/04, G02B5/08, H01L33/60

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
CAPLUS/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2012/169193 A1 (Mitsui Chemicals, Inc.), 13 December 2012 (13.12.2012), claims; paragraphs [0007], [0009], [0017], [0020] to [0026], [0034], [0035], [0036], [0051] to [0053], [0074]; examples & US 2014/0097737 A1 & KR 10-2014-0005361 A & TW 201302916 A	1-11
Y	JP 3-84060 A (Unitika Ltd.), 09 April 1991 (09.04.1991), claims; pages 1 to 2, upper right column; examples (Family: none)	1-11

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
10 August 2015 (10.08.15)

Date of mailing of the international search report
29 September 2015 (29.09.15)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/067996

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 53-31758 A (Emery Industries, Inc.), 25 March 1978 (25.03.1978), entire text & US 4066587 A & DE 2740115 A1 & FR 2363604 A1	1-11
Y	JP 2004-524422 A (General Electric Co.), 12 August 2004 (12.08.2004), claims; paragraph [0002] & US 2002/0173591 A1 & WO 2002/081564 A1 & EP 1414903 A1	1-11
P,X	WO 2014/193046 A1 (CHEIL INDUSTRIES INC.), 04 December 2014 (04.12.2014), entire text & KR 10-2014-0141227 A	1-11
P,X	JP 2015-74763 A (Panasonic Intellectual Property Management Co., Ltd.), 20 April 2015 (20.04.2015), claims (Family: none)	1-11
P,X	US 2014/0187662 A1 (CHEIL INDUSTRIES INC.), 03 July 2014 (03.07.2014), entire text & DE 102013226703 A1 & KR 10-2014-0087663 A & CN 103911000 A	1-11
E,X	WO 2015/091119 A1 (SOLVAY SPECIALTY POLYMWES USA), 25 June 2015 (25.06.2015), entire text (Family: none)	1-11
E,X	WO 2015/091478 A1 (SOLVAY SPECIALITY POLYMERS USA), 25 June 2015 (25.06.2015), entire text (Family: none)	1-11
A	WO 2003/046078 A1 (Toagosei Co., Ltd.), 05 June 2003 (05.06.2003), claims; examples & JP 3945481 B & EP 1454957 A1 & KR 10-2004-0066144 A & CN 1592767 A	1-11
A	JP 2009-513801 A (Eastman Chemical Co.), 02 April 2009 (02.04.2009), claims; paragraphs [0383], [0420] & WO 2007/053550 A1 & WO 2006/137954 A1 & WO 2007/001528 A1 & WO 2007/001529 A1 & WO 2007/001531 A1 & WO 2007/001533 A1 & WO 2007/001534 A1 & WO 2007/001547 A1	1-11

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/067996

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2013/030024 A1 (Rhodia Operations), 07 March 2013 (07.03.2013), claims; paragraph [0007]; examples & JP 2014-527110 A & US 2014/0378583 A1 & EP 2748259 A1 & CN 103764765 A & KR 10-2014-0069003 A	1-11
A	WO 2013/026778 A1 (SOLVAY SPECIALTY POLYMERS USA), 28 February 2013 (28.02.2013), entire text & EP 2592117 A1	1-11
A	JP 2012-136710 A (Ticona L.L.C.), 19 July 2012 (19.07.2012), claims & US 2007/0213458 A1 & US 2011/0310622 A1 & US 2013/0158184 A1 & WO 2007/033129 A2 & EP 2472603 A1	1-11
A	JP 2013-127067 A (Solvay Specialty Polymers USA, LLC), 27 June 2013 (27.06.2013), claims & EP 2634211 A1 & CN 103160079 A & KR 10-2013-0069487 A	1-11
A	JP 2014-510829 A (Ticona L.L.C.), 01 May 2014 (01.05.2014), claims & US 2014/0128504 A1 & WO 2012/141967 A1 & EP 2697298 A1 & CN 103562287 A & KR 10-2014-0027256 A	1-11

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C08L77/06(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08L67/02(2006.01)i, G02B1/04(2006.01)i, G02B5/08(2006.01)i, H01L33/60(2010.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C08L77, C08K3, C08L67, G02B1/04, G02B5/08, H01L33/60

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 5 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 5 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 5 年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

CAplus/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	WO 2012/169193 A1（三井化学株式会社）2012. 12. 13, 特許請求の範囲、 [0007][0009][0017][0020]-[0026][0034][0035][0036][0051]-[0053][0074]、実施例 & US 2014/0097737 A1 & KR 10-2014-0005361 A & TW 201302916 A	1 - 1 1
Y	JP 3-84060 A（ユニチカ株式会社）1991. 04. 09, 特許請求の範囲、 1 頁 - 2 頁右上欄、実施例（ファミリーなし）	1 - 1 1

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の 1 以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

1 0 . 0 8 . 2 0 1 5

国際調査報告の発送日

2 9 . 0 9 . 2 0 1 5

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官（権限のある職員）

渡辺 陽子

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 5 7

4 J

9 2 7 9

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 53-31758 A (エメリー・インダストリーズ・インコーポレーテツド) 1978. 03. 25, 全文 & US 4066587 A & DE 2740115 A1 & FR 2363604 A1	1 - 1 1
Y	JP 2004-524422 A (ゼレラル・エレクトリック・カンパニー) 2004. 08. 12, 特許請求の範囲、[0002] & US 2002/0173591 A1 & WO 2002/081564 A1 & EP 1414903 A1	1 - 1 1
P X	WO 2014/193046 A1 (CHEIL INDUSTRIES INC.) 2014. 12. 04, 全文 & KR 10-2014-0141227 A	1 - 1 1
P X	JP 2015-74763 A (パナソニック I P マネジメント株式会社) 2015. 04. 20, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1 - 1 1
P X	US 2014/0187662 A1 (CHEIL INDUSTRIES INC.) 2014. 07. 03, 全文 & DE 102013226703 A1 & KR 10-2014-0087663 A & CN 103911000 A	1 - 1 1
E X	WO 2015/091119 A1 (SOLVAY SPECIALTY POLYMERS USA) 2015. 06. 25, 全文 (ファミリーなし)	1 - 1 1
E X	WO 2015/091478 A1 (SOLVAY SPECIALITY POLYMERS USA) 2015. 06. 25, 全文 (ファミリーなし)	1 - 1 1
A	WO 2003/046078 A1 (東亜合成株式会社) 2003. 06. 05, 特許請求の範囲、実施例 & JP 3945481 B & EP 1454957 A1 & KR 10-2004-0066144 A & CN 1592767 A	1 - 1 1
A	JP 2009-513801 A (イーストマン ケミカル カンパニー) 2009. 04. 02, 特許請求の範囲、[0383][0420] & WO 2007/053550 A1 & WO 2006/137954 A1 & WO 2007/001528 A1 & WO 2007/001529 A1 & WO 2007/001531 A1 & WO 2007/001533 A1 & WO 2007/001534 A1 & WO 2007/001547 A1	1 - 1 1
A	WO 2013/030024 A1 (ローディア オペレーションズ) 2013. 03. 07, 特許請求の範囲、[0007]、実施例 & JP 2014-527110 A & US 2014/0378583 A1 & EP 2748259 A1 & CN 103764765 A & KR 10-2014-0069003 A	1 - 1 1
A	WO 2013/026778 A1 (SOLVAY SPECIALTY POLYMERS USA) 2013. 02. 28, 全文 & EP 2592117 A1	1 - 1 1

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2012-136710 A (ティコナ・エルエルシー) 2012.07.19, 特許請求の範囲 & US 2007/0213458 A1 & US 2011/0310622 A1 & US 2013/0158184 A1 & WO 2007/033129 A2 & EP 2472603 A1	1 - 1 1
A	JP 2013-127067 A (ソルベイ スペシャルティ ポリマーズ ユーエスエー, エルエルシー) 2013.06.27, 特許請求の範囲 & EP 2634211 A1 & CN 103160079 A & KR 10-2013-0069487 A	1 - 1 1
A	JP 2014-510829 A (ティコナ・エルエルシー) 2014.05.01, 特許請求の範囲 & US 2014/0128504 A1 & WO 2012/141967 A1 & EP 2697298 A1 & CN 103562287 A & KR 10-2014-0027256 A	1 - 1 1