(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
2018年9月7日(07.09.2018)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2018/159779 A1

(51) 国際特許分類:
C08L 69/00 (2006.01)　*C08K 3/34* (2006.01)
C08K 3/22 (2006.01)　*C08K 7/20* (2006.01)

(21) 国際出願番号：　PCT/JP2018/007885

(22) 国際出願日：　2018年3月1日(01.03.2018)

(25) 国際出願の言語：　日本語

(26) 国際公開の言語：　日本語

(30) 優先権データー：
特願 2017-038840　2017年3月1日(01.03.2017)　JP

(71) 出願人：出光興産株式会社(**IDEMITSU KOSAN CO.,LTD.**) [JP/JP]；〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目１番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者：石 川　康 弘 (**ISHIKAWA, Yasuhiro**)；〒2990193 千葉県市原市姉崎海岸１番地１ Chiba (JP). 阿部 智子(**ABE, Tomoko**)；〒2990193 千葉県市原市姉崎海岸１番地１ Chiba (JP).

(74) 代理人：平澤 賢一，外(**HIRASAWA, Kenichi** et al.)；〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目２５番２号 虎ノ門ＥＳビル７階 特許業務法人大谷特許事務所 Tokyo (JP).

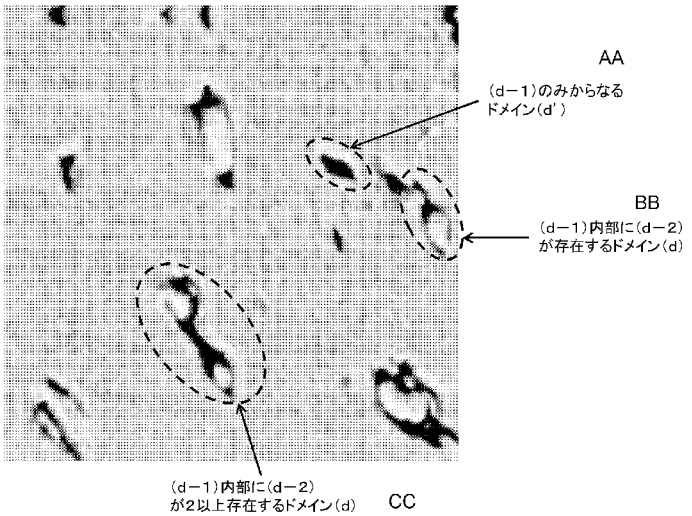
(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能)：AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH,

WO 2018/159779 A1

(54) **Title:** POLYCARBONATE RESIN COMPOSITION AND MOLDED PRODUCT THEREOF

(54) 発明の名称： ポリカーボネート系樹脂組成物及びその成形品

[図4]



AA　Domain (d') comprising only (d-1)
BB　Domain (d) having (d-2) present inside (d-1)
CC　Domain (d) having at least two (d-2) present inside (d-1)

(57) **Abstract:** A polycarbonate resin composition comprising an inorganic filler material (C) that is blended in a polycarbonate resin (S) fulfilling conditions (1) and (2). The polycarbonate resin composition is characterized by the ratio of filler material (C) relative to the total amount of 100% by mass of the polycarbonate resin (S) and the filler material (C) being 0.1% – 50% by mass. (1) Includes a polycarbonate – polyorganosiloxane copolymer (A) and an aromatic polycarbonate resin (B) other than the polycarbonate – polyorganosiloxane copolymer (A), said polycarbonate – polyorganosiloxane

［続葉有］

KN, KP, KR, KW, 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:

一　国際調査報告（条約第21条(3)）

copolymer (A) including a polycarbonate block (A – 1) comprising a specified repeating unit and a polyorganosiloxane block (A – 2) including a prescribed repeating unit. (2) Has a structure having therein: a domain (d – 1) including the polyorganosiloxane block (A–2), present in a matrix having the aromatic polycarbonate resin (B) as the main component thereof; and a domain (d – 2) including at least one selected from a block derived from the aromatic polycarbonate resin (B) and the polycarbonate block (A–1), present inside the domain (d–1).

(57) 要約：下記要件（１）及び（２）を満たすポリカーボネート系樹脂（Ｓ）に対して、無機充填材（Ｃ）を配合してなり、前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）及び前記充填材（Ｃ）の合計量１００質量％に占める前記充填材（Ｃ）の割合が０．１質量％以上５０質量％以下であることを特徴とする、ポリカーボネート系樹脂組成物：（１）特定の繰り返し単位からなるポリカーボネートブロック（Ａ－１）及び特定の繰り返し単位を含むポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）を含むポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）、並びに前記ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）以外の芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）を含む。（２）前記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）を主成分とするマトリックス中に、前記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）を含むドメイン（ｄ－１）が存在し、前記ドメイン（ｄ－１）の内部に、前記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）に由来するブロックおよび前記ポリカーボネートブロック（Ａ－１）から選ばれる少なくとも１つを含むドメイン（ｄ－２）が存在する構造を有する。

明　細　書

発明の名称 ： ポリカーボネート系樹脂組成物及びその成形品

技術分野

[0001] 本発明は、ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体を含むポリカーボネート系樹脂組成物及びその成形品に関する。

背景技術

[0002] ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（以下、「ＰＣ－ＰＯＳ共重合体」と略記することがある）は、その高い耐衝撃性、耐薬品性、及び難燃性等の優れた性質から注目されている。そのため、電気・電子機器分野、自動車分野等の様々な分野において幅広い利用が期待されている。特に、携帯電話、モバイルパソコン、デジタルカメラ、ビデオカメラ、電動工具などの筐体、及びその他の日用品への利用が広がっている。

通常、代表的なポリカーボネートとしては、原料の二価フェノールとして、２，２－ビス（４－ヒドロキシフェニル）プロパン〔通称：ビスフェノールＡ〕を用いたホモポリカーボネートが一般的に使用されている。このホモポリカーボネートの難燃性や耐衝撃性等の物性を改良するために、ポリオルガノシロキサンを共重合モノマーとして用いたポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体が知られている（特許文献１）。

ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体を含むポリカーボネート樹脂の耐衝撃性をさらに改善するために、例えば、特許文献２及び３に記載されるように長鎖長のポリオルガノシロキサンを用いる手法や、ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体中のポリオルガノシロキサン量を増やす手法を挙げることができる。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特許第２６６２３１０号公報

特許文献2：特開２０１１－２１１２７号公報

特許文献3：特開２０１２－２４６３９０号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 本発明は、従来のポリカーボネート系樹脂と比べて、より優れた耐衝撃性を有する、ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体を含み、かつ所望の性質に応じて各種無機充填材を含有するポリカーボネート系樹脂組成物を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0005] 本発明者等は、ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体を含み、かつ、特定のドメイン構造を有するポリカーボネート系樹脂組成物に対して各種無機添加材を添加することで、ポリオルガノシロキサンブロックの鎖長を伸ばす、あるいは含有量を増加させずとも、より優れた耐衝撃性を有し、かつ添加した各種無機添加材に応じた所望の性質を有するポリカーボネート系樹脂組成物が得られることを見出した。

すなわち、本発明は下記［１］～［２５］に関する。

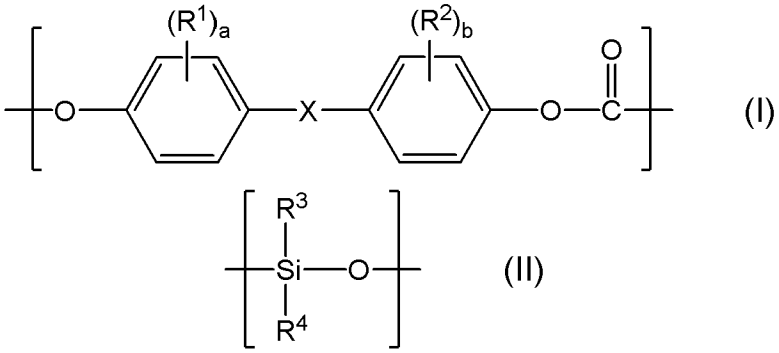
［１］下記要件（１）及び（２）を満たすポリカーボネート系樹脂（Ｓ）に対して、無機充填材（Ｃ）を配合してなり、前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）及び前記充填材（Ｃ）の合計量１００質量％に占める前記充填材（Ｃ）の割合が０．１質量％以上５０質量％以下であることを特徴とする、ポリカーボネート系樹脂組成物：

（１）下記一般式（Ｉ）で表される繰り返し単位からなるポリカーボネートブロック（Ａ－１）及び下記一般式（ＩＩ）で表される繰り返し単位を含むポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）を含むポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）、並びに前記ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）以外の芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）を含む。

（２）前記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）を主成分とするマトリックス中に、前記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）を含むドメイン（

ｄ－１）が存在し、前記ドメイン（ｄ－１）の内部に、前記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）に由来するブロックおよび前記ポリカーボネートブロック（Ａ－１）から選ばれる少なくとも１つを含むドメイン（ｄ－２）が存在する構造を有する。

[化1]



(I)

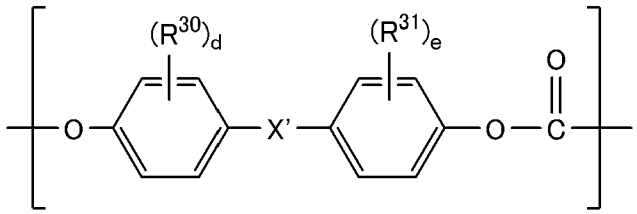
(II)

［式中、Ｒ[1]及びＲ[2]はそれぞれ独立に、ハロゲン原子、炭素数１～６のアルキル基又は炭素数１～６のアルコキシ基を示す。Ｘ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５～１５のシクロアルキレン基、炭素数５～１５のシクロアルキリデン基、フルオレンジイル基、炭素数７～１５のアリールアルキレン基、炭素数７～１５のアリールアルキリデン基、－Ｓ－、－ＳＯ－、－SO_2－、－Ｏ－又は－ＣＯ－を示す。Ｒ[3]及びＲ[4]はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基又は炭素数６～１２のアリール基を示す。ａ及びｂは、それぞれ独立に０～４の整数を示す。］

［２］前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）における前記ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）と、前記芳香族ポリカーボネート（Ｂ）との質量比率（Ａ）／（Ｂ）が、０．１／９９．９～９９．９／０．１である、上記［１］に記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［３］前記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）は、主鎖が下記一般式（ＩＩＩ）で表される繰り返し単位からなるポリカーボネートブロックを含む、上記［１］または［２］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[化2]



(III)

［式中、Ｒ^{30}及びＲ^{31}は、それぞれ独立に、ハロゲン原子、炭素数１～６のアルキル基又は炭素数１～６のアルコキシ基を示す。Ｘ’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５～１５のシクロアルキレン基、炭素数５～１５のシクロアルキリデン基、－Ｓ－、－ＳＯ－、－ＳＯ$_2$－、－Ｏ－又は－ＣＯ－を示す。ｄ及びｅは、それぞれ独立に０～４の整数を示す。］

［４］前記ドメイン（ｄ－１）が前記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）から主に形成されている、上記［１］～［３］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［５］前記ドメイン（ｄ－２）が前記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）に由来するブロックおよび前記ポリカーボネートブロック（Ａ－１）から選ばれる少なくとも１つから主に形成されている、上記［１］～［４］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［６］前記ドメイン（ｄ－１）内部に前記ドメイン（ｄ－２）が１つのみ存在する、上記［１］～［５］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［７］前記ドメイン（ｄ－１）内部に前記ドメイン（ｄ－２）が２以上存在する、上記［１］～［５］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［８］前記ドメイン（ｄ－１）内部に前記ドメイン（ｄ－２）が存在するドメイン（ｄ）と、前記ドメイン（ｄ－１）のみからなるドメイン（ｄ’）との合計数に占める前記ドメイン（ｄ）の数割合が２％以上１００％以下である、上記［１］～［７］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成

物。

［９］前記ドメイン（ｄ）および前記ドメイン（ｄ’）を合わせた、全ドメインの平均断面積が２００ｎｍ^{2}以上である、上記［８］に記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［１０］前記ドメイン（ｄ）および前記ドメイン（ｄ’）を合わせた、全ドメインの平均断面積が２０，０００ｎｍ^{2}以下である、上記［８］または［９］に記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［１１］前記ドメイン（ｄ）および前記ドメイン（ｄ’）を合わせた、全ドメインの隣接粒子間距離の平均が５００ｎｍ以下である、上記［８］～［１０］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［１２］前記ドメイン（ｄ）および前記ドメイン（ｄ’）を合わせた、全ドメインの隣接粒子間距離の平均が５０ｎｍ以上である、上記［８］～［１１］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［１３］前記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）の平均鎖長が３０以上５００以下である、上記［１］～［１２］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［１４］前記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）の平均鎖長が５５以上５００以下である、上記［１］～［１３］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［１５］前記ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）中の前記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）の含有率が１０質量％以上７０質量％以下である、上記［１］～［１４］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［１６］前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）中の前記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）の含有率が０．１質量％以上１０質量％以下である、上記［１］～［１５］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［１７］前記ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）

の粘度平均分子量（Ｍｖ）が９，０００以上５０，０００以下である、上記［１］～［１６］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［１８］前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）の粘度平均分子量（Ｍｖ）が９，０００以上５０，０００以下である、上記［１］～［１７］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［１９］前記無機充填材（Ｃ）が、酸化チタン、タルク及びガラスファイバーから選ばれる少なくとも１種である、上記［１］～［１８］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［２０］前記無機充填材（Ｃ）が酸化チタンであり、前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）１００質量部に対する酸化チタンの割合が０．５質量部以上５質量部以下である、上記［１］～［１９］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［２１］前記無機充填剤（Ｃ）がタルクであり、前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）及び前記タルクの合計量１００質量％に占めるタルクの割合が０．５質量％以上３０質量％以下ある、上記［１］～［２０］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［２２］前記無機充填剤（Ｃ）がガラスファイバーであり、前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）及び前記ガラスファイバーの合計量１００質量％に占めるガラスファイバーの割合が１質量％以上５０質量％以下である、上記［１］～［２０］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

［２３］上記［１］～［２２］のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物を成形してなる成形品。

［２４］電気及び電子機器用筐体である、上記［２３］に記載の成形品。

［２５］自動車及び建材の部品である、上記［２３］に記載の成形品。

発明の効果

[0006] 本発明によれば、より優れた耐衝撃性を有する、ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体及び無機充填剤を含有するポリカーボネート系樹脂組成物及びその成形品を得ることが出来る。

図面の簡単な説明

[0007] [図1]開口部を１つ有するドメインの、ドメインの長軸距離と、開口部の端部２点を接点として有するドメインの接線を引いた際の上記接点２点間の距離を示す図。

[図2]開口部を２つ有するドメインの、ドメインの長軸距離と、開口部の端部２点を接点として有するドメインの接線を引いた際の上記接点２点間の距離をそれぞれ示す図。

[図3]開口部を１つ有するドメインの、ドメインの長軸距離と、開口部の端部２点を接点として有するドメインの接線を引いた際の上記接点２点間の距離を示す走査型プローブ顕微鏡画像。

[図4]参考例１におけるＳＰＭによるドメイン構造の観察画像

発明を実施するための形態

[0008] 本発明者等は、鋭意検討の結果、ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体を含み、かつ、特定のドメイン構造を有するポリカーボネート系樹脂組成物に対して無機充填剤を添加することで、ポリオルガノシロキサンブロックの鎖長を伸ばす、あるいは含有量を増加させずとも、より優れた耐衝撃性を有し、かつ添加した各種無機添加材に応じた所望の性質を有するが得られることを見出した。以下、詳細に説明する。

本明細書において、「ＸＸ～ＹＹ」の記載は、「ＸＸ以上ＹＹ以下」を意味する。また、本明細書において、好ましいとされている規定は任意に採用することができ、好ましいもの同士の組み合わせはより好ましい。

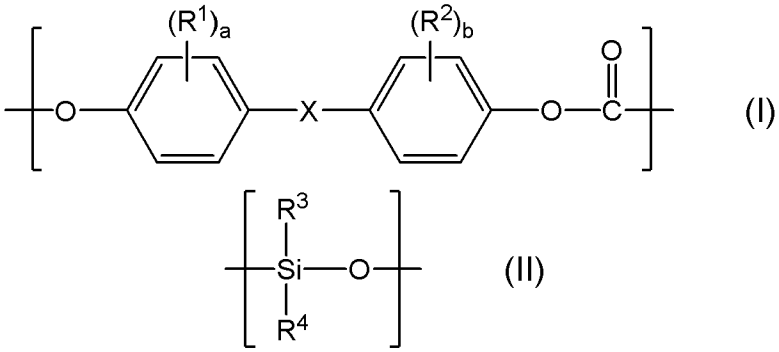
[0009] ＜ポリカーボネート系樹脂組成物＞

本発明の実施形態における難燃性ポリカーボネート樹脂組成物は、下記要件（１）及び（２）を満たすポリカーボネート系樹脂（Ｓ）及びに対して、無機充填材（Ｃ）を配合してなり、前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）及び前記充填材（Ｃ）の合計量１００質量％に占める前記充填材（Ｃ）の割合が０．１質量％以上５０質量％以下であることを特徴とする、ポリカーボネート系樹脂組成物：

（１）下記一般式（Ｉ）で表される繰り返し単位からなるポリカーボネートブロック（Ａ－１）及び下記一般式（ＩＩ）で表される繰り返し単位を含むポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）を含むポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）、並びに前記ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）以外の芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）を含む。

（２）前記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）を主成分とするマトリックス中に、前記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）を含むドメイン（ｄ－１）が存在し、前記ドメイン（ｄ－１）の内部に、前記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）に由来するブロックおよび前記ポリカーボネートブロック（Ａ－１）から選ばれる少なくとも１つを含むドメイン（ｄ－２）が存在する構造を有する。

[化3]



［式中、Ｒ[1]及びＲ[2]はそれぞれ独立に、ハロゲン原子、炭素数１～６のアルキル基又は炭素数１～６のアルコキシ基を示す。Ｘ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５～１５のシクロアルキレン基、炭素数５～１５のシクロアルキリデン基、フルオレンジイル基、炭素数７～１５のアリールアルキレン基、炭素数７～１５のアリールアルキリデン基、－Ｓ－、－ＳＯ－、－SO_2－、－Ｏ－又は－ＣＯ－を示す。Ｒ[3]及びＲ[4]はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基又は炭素数６～１２のアリール基を示す。ａ及びｂは、それぞれ独立に０～４の整数を示す。］

式中の各R^1～R^4、Ｘ、ａ及びｂの具体例は後述する。

[0010] 前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）におけるポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）の含有量は、得られる樹脂組成物の耐衝撃性の観点から、通常０．１質量％以上、好ましくは１質量％以上、より好ましくは３質量％以上、さらに好ましくは５質量％以上、特に好ましくは１０質量％以上であり、通常９９．９質量％以下、好ましくは９９質量％以下、より好ましくは３０質量％以下、さらに好ましくは２０質量％以下、特に好ましくは１８質量％以下である。

[0011] より具体的には、後述する無機充填材（Ｃ）のうち、酸化チタンを用いる場合には、前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）におけるポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）の含有量は、好ましくは０．５質量％以上、より好ましくは６質量％以上、さらに好ましくは８質量％以上であり、好ましくは５０質量％以下、より好ましくは３０質量％以下、さらに好ましくは２５質量％以下、特に好ましくは２０質量％以下、最も好ましくは１５質量％以下である。

無機充填材（Ｃ）としてタルクまたはガラスファイバーを用いる場合には、前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）におけるポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）の含有量は、所望の性質から、好ましくは１質量％以上、より好ましくは３質量％以上、さらに好ましくは１０質量％以上であり、好ましくは５０質量％以下、より好ましくは２５質量％以下、さらに好ましくは２０質量％以下である。

[0012] 前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）における芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）の含有量は、得られる樹脂組成物の耐衝撃性の観点から、通常０．１質量％以上、好ましくは１質量％以上、より好ましくは５０質量％以上、さらに好ましくは８０質量％以上であり、通常９９．９質量％以下、好ましくは９９質量％以下、より好ましくは９８質量％以下、さらに好ましくは９５質量％以下、特に好ましくは９０質量％以下である。

なお、本実施形態の１つの側面においては、ポリカーボネート系樹脂（Ｓ

）を構成する上記ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）と上記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）の合計量は、１００質量％である。

本発明においては、得られる樹脂組成物の耐衝撃性の観点から、ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）と、芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）との質量比率（Ａ）／（Ｂ）が、通常０．１／９９．９～９９．９／０．１，好ましくは１／９９～９９／１，より好ましくは２／９８～５０／５０，さらに好ましくは５／９５～２０／８０である。

[0013] 前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）は、少なくとも上記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）成分を主成分とするマトリックス中に、上記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）を含むドメイン（ｄ－１）が存在し、該ドメイン（ｄ－１）の内部にはさらに上記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）に由来するブロック及び上記ポリカーボネートブロック（Ａ－１）から選ばれる少なくとも１つを含むドメイン（ｄ－２）が存在する。上記１つのドメイン（ｄ－１）内部にはドメイン（ｄ－２）が１つのみ存在していてもよく、あるいは上記１つのドメイン（ｄ－１）内部にドメイン（ｄ－２）が２以上存在していてもよい。このように、前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）は、ドメイン（ｄ－１）の内部に少なくとも１つのドメイン（ｄ－２）が存在するドメイン（ｄ）を必ず有する。

[0014] なお、前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）におけるマトリックスは、前記ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）と前記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）との合計に占める前記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）の割合が５０質量％を超えない限り、上記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）に由来するブロック及びポリカーボネートブロック（Ａ－１）から選ばれる少なくとも１つから主に形成されている。

上記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）を含むドメイン（ｄ－１）は、好ましくは上記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）から主に形成されている。

上記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）に由来するブロック及び上記ポリカーボネートブロック（Ａ－１）から選ばれる少なくとも１つを含むドメイン（ｄ－２）は、好ましくは上記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）に由来するブロック及びポリカーボネートブロック（Ａ－１）から選ばれる少なくとも１つから主に形成されていて、上記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）に由来するブロック又はポリカーボネートブロック（Ａ－１）のいずれかから主に形成されていてもよいし、上記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）に由来するブロック及びポリカーボネートブロック（Ａ－１）の両方から主に形成されていてもよい。

[0015] 検出したドメインが、どのブロックから主に形成されているかは、走査型プローブ顕微鏡（Ｓｃａｎｎｉｎｇ　Ｐｒｏｂｅ　Ｍｉｃｒｏｓｃｏｐｅ：ＳＰＭ）観察により取得した画像のコントラストから判断する。検出したドメインのうち、マトリックスと同等程度のコントラストを示すドメインは、上記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）に由来するブロック及び上記ポリカーボネートブロック（Ａ－１）から選ばれる少なくとも１つから主に形成されているものとする。同様に、検出したドメインのうち、マトリックスとは明確に区別される程度の暗いコントラストを示すドメインは、上記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）によって主に形成されているものとする。

[0016] 本実施形態において、上記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）を含むドメイン（ｄ－１）は、上記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）から実質的に形成されている。上記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）に由来するブロック及び上記ポリカーボネートブロック（Ａ－１）から選ばれる少なくとも１つを含むドメイン（ｄ－２）は、上記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）に由来するブロック及びポリカーボネートブロック（Ａ－１）から選ばれる少なくとも１つから実質的に形成されていて、上記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）に由来するブロック又はポリカーボネートブロック（Ａ－１）のいずれかから実質的に形成されていてもよいし、上記芳

香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）に由来するブロック及びポリカーボネートブロック（Ａ－１）の両方から実質的に形成されていてもよい。

[0017] より詳細に構造の一例を記載すると、本願発明のポリカーボネート系樹脂組成物に含まれるポリカーボネート樹脂（Ｓ）は、マトリックス中にシェルを構成する上記ドメイン（ｄ－１）と、コアを構成する１つの上記ドメイン（ｄ－２）とを有する、コアシェル構造を有する。また、１つの上記ドメイン（ｄ－１）内部に２つ以上の球状もしくはシリンダ状のドメイン（ｄ－２）を含有する構造、または、ジャイロイド構造、ラメラ構造もしくはサラミ構造などのミクロ相分離構造を有していてもよい。

[0018] 上記ドメイン（ｄ）とは別に、上記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）を含むドメイン（ｄ－１）のみからなる（すなわち、（ｄ－１）内部に（ｄ－２）を含まない）ドメインを（ｄ’）とした時、ドメイン（ｄ）と、ドメイン（ｄ’）との合計数に占める上記ドメイン（ｄ）の数割合が２％以上１００％以下であることが好ましい。ドメイン（ｄ）の数割合が上記範囲内であれば、より優れた耐衝撃性を得ることができる。上記ドメイン（ｄ）の数割合は、より好ましくは５％以上、さらに好ましくは１０％以上、よりさらに好ましくは１５％以上であり、よりさらに好ましくは３０％以上、特に好ましくは５０％以上であり、より好ましくは５０％以下、さらに好ましくは４５％以下、特に好ましくは３０％以下である。なお、各ドメイン（ｄ）及び（ｄ’）の数は、ＳＰＭにより目視で測定した。

[0019] 上記ドメイン（ｄ）および上記ドメイン（ｄ’）を合わせた、全ドメインの平均断面積は、２００ｎｍ^{2}以上であることが好ましい。上記全ドメインの平均断面積が２００ｎｍ^{2}以上であれば、より優れた耐衝撃性を得ることができる。また、上記ドメイン（ｄ）および上記ドメイン（ｄ’）を合わせた、全ドメインの平均断面積は２０，０００ｎｍ^{2}以下であることが好ましい。上記全ドメインの平均断面積が２０，０００ｎｍ^{2}以下であれば、より優れた耐衝撃性を得ることができる。上記ドメイン（ｄ）および上記ドメイン（ｄ’）を合わせた、全ドメインの平均断面積は、より好ましくは３００ｎｍ^{2}以上

、さらに好ましくは５００ｎｍ^{2}以上、特に好ましくは１０００ｎｍ^{2}以上であり、より好ましくは６０００ｎｍ^{2}以下、さらに好ましくは５，０００ｎｍ^{2}以下、よりさらに好ましくは４，０００ｎｍ^{2}以下である。

[0020] 上記各ドメイン（ｄ）及び（ｄ’）の平均断面積は、ＳＰＭにより観察し、得られた画像を画像解析ソフト（SPIP）で処理することにより算出した。ここで、ＳＰＭにより観察した際に上記ドメイン（ｄ）及び（ｄ’）が開口部を有する場合の平均断面積は以下のように計算した。図１に示すように、１つのドメインが１つの開口部を有する場合には、ドメインの長軸距離に対して、開口部の端部２点を接点として有するドメインの接線を引いた際の上記接点２点間の距離が１／２以下であるときは、開口部を有さないドメインの断面積とみなして、ドメイン（ｄ）および上記ドメイン（ｄ’）のそれぞれの平均断面積として算出した。また、図２に示すように、１つのドメインが２つ以上の開口部（図２では２つの開口部）を有する場合には、各開口部が、ドメインの長軸距離に対して開口部の端部２点を接点として有するドメインの接線を引いた際の接点２点間の距離がそれぞれ１／２以下であるときは、それぞれの開口部を有さないドメインの断面積とみなした。図３に開口部を１つ有する場合のドメインの走査型プローブ顕微鏡画像を示す。

[0021] 前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）に含まれる上記ドメイン（ｄ）および上記ドメイン（ｄ’）を合わせた、全ドメインの隣接粒子間距離の平均が５００ｎｍ以下であることが好ましい。全ドメインの隣接粒子間距離の平均が５００ｎｍ以下であれば、より優れた耐衝撃性を得ることができる。また、全ドメインの隣接粒子間距離の平均は５０ｎｍ以上であることが好ましい。全ドメインの隣接粒子間距離の平均が５０ｎｍ以上であれば、より優れた耐衝撃性を得ることができる。

上記全ドメインの隣接粒子間距離の平均は、より好ましくは７０ｎｍ以上、さらに好ましくは１１０ｎｍ以上、よりさらに好ましくは１３０ｎｍ以上、特に好ましくは１８０ｎｍ以上であり、より好ましくは３５０ｎｍ以下、さらに好ましくは３００ｎｍ以下、特に好ましくは２００ｎｍ以下である。

なお、この全ドメインの隣接粒子間距離の平均は、マトリックス中に含まれる全ドメインの存在頻度を示す。全ドメインの隣接粒子間距離の平均は、マトリックス中に含まれる全ドメインの存在頻度を示す。全ドメインの隣接粒子間距離の平均は、ＳＰＭにより観察し、画像解析ソフト（SPIP）で処理することにより算出した。

上記ドメイン（ｄ）およびドメイン（ｄ’）の総数に占める上記ドメイン（ｄ）の数割合、全ドメインの平均断面積及び全ドメインの隣接粒子間距離の平均測定に用いた走査型プローブ顕微鏡の詳細な観察条件は実施例に記載する。

[0022] ポリオルガノシロキサンブロックの鎖長を伸ばす、あるいは含有量を増加させることなく、上記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）を含む本発明の難燃性ポリカーボネート系樹脂組成物の耐衝撃性がより優れる結果となる原因は定かではないが、以下のことが推測される。

すなわち、本発明に係るポリカーボネート系樹脂組成物が有するドメイン（ｄ）は、前記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）を含むドメイン（ｄ－１）の内部に、前記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）に由来するブロックおよび前記ポリカーボネートブロック（Ａ－１）から選ばれる少なくとも１つを含むドメイン（ｄ－２）が存在している。

そうすると、ポリカーボネート系樹脂組成物中の前記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）の量が同じであれば、ドメイン（ｄ－１）のみからなるドメイン（ｄ’）と比較して、ドメイン（ｄ－２）を内包するドメイン（ｄ）のサイズは嵩増しされて、ドメイン（ｄ’）のサイズよりも大きくなる。マトリックス中に存在するドメイン（ｄ）のサイズが全体的に大きくなることにより、ポリカーボネート系樹脂組成物に衝撃荷重が加わった際に、応力波の伝播をさらに抑止していると考えられる。

[0023] 前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）中のポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）の含有率は、好ましくは０．１質量％以上、より好ましくは０．４質量％以上、さらに好ましくは０．８質量％以上、さらにより好ましくは

１質量％以上、特に好ましくは３質量％以上であり、好ましくは１０質量％以下、より好ましくは７．０質量％以下、さらに好ましくは６質量％以下、特に好ましくは５質量％以下、最も好ましくは４質量％以下である。ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）中のポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）の含有率が上記範囲にあれば、優れた耐衝撃特性を得ることができる。

[0024] 前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）の粘度平均分子量（Ｍｖ）は、使用される用途や製品により、目的の分子量となるように分子量調節剤（末端停止剤）等を用いることにより適宜調整ことができる。前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）の粘度平均分子量は、好ましくは９，０００以上、より好ましくは１２，０００以上、さらに好ましくは１４，０００以上、特に好ましくは１６，０００以上であり、好ましくは５０，０００以下、より好ましくは３０，０００以下、さらに好ましくは２３，０００以下、特に好ましくは２１，０００以下である。粘度平均分子量が９，０００以上であれば、十分な成形品の強度を得ることができる。５０，０００以下であれば、熱劣化を起こさない温度で射出成形や押出成形を行うことができる。

なお、粘度平均分子量（Ｍｖ）は、２０℃における塩化メチレン溶液の極限粘度〔η〕を測定し、下記Ｓｃｈｎｅｌｌの式から算出した値である。

[0025] [数1]

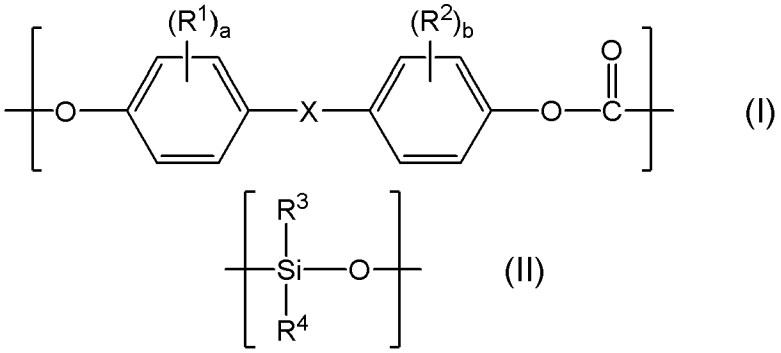
$$[\eta] = 1.23 \times 10^{-5} \times Mv^{0.83}$$

[0026] ＜ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）＞

以下、上記実施形態における各成分について、さらに詳述する。

上述した通り、上記ドメイン（ｄ－１）は、ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）の下記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）を含み、好ましくは該ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）から主に形成されている。ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）は、上述した通り、下記一般式（Ｉ）で表される繰り返し単位からなるポリカーボネートブロック（Ａ－１）及び下記一般式（ＩＩ）で表される繰り返し単位を含むポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）を含む：

[化4]



上記一般式（Ｉ）及び（ＩＩ）中のＲ[1]～Ｒ[4]，Ｘ，ａ及びｂは上述した通りである。

[0027] 上記一般式（Ｉ）中、Ｒ[1]及びＲ[2]がそれぞれ独立して示すハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、及びヨウ素原子が挙げられる。

Ｒ[1]及びＲ[2]がそれぞれ独立して示すアルキル基としては、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、各種ブチル基（「各種」とは、直鎖状及びあらゆる分岐鎖状のものを含むことを示し、以下、明細書中同様である。）、各種ペンチル基、及び各種ヘキシル基が挙げられる。Ｒ[1]及びＲ[2]がそれぞれ独立して示すアルコキシ基としては、アルキル基部位として前記アルキル基を有するものが挙げられる。

[0028] Ｘが表すアルキレン基としては、例えば、メチレン基、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ヘキサメチレン基等が挙げられ、炭素数１～５のアルキレン基が好ましい。Ｘが表すアルキリデン基としては、エチリデン基、イソプロピリデン基等が挙げられる。Ｘが表すシクロアルキレン基としては、シクロペンタンジイル基やシクロヘキサンジイル基、シクロオクタンジイル基等が挙げられ、炭素数５～１０のシクロアルキレン基が好ましい。Ｘが表すシクロアルキリデン基としては、例えば、シクロヘキシリデン基、３，５，５－トリメチルシクロヘキシリデン基、２－アダマンチリデン基等が挙げられ、炭素数５～１０のシクロアルキリデン基が好ましく、炭素数５～８のシクロアルキリデン基がより好ましい。Ｘが表すアリールアルキレン基のアリール部位としては、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、

アントリル基などの環形成炭素数６～１４のアリール基が挙げられ、アルキレン基としては上述したアルキレンが挙げられる。Ｘが表すアリールアルキリデン基のアリール部位としては、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントリル基などの環形成炭素数６～１４のアリール基が挙げられ、アルキリデン基としては上述したアルキリデン基を挙げることができる。

[0029] ａ及びｂは、それぞれ独立に０～４の整数を示し、好ましくは０～２、より好ましくは０又は１である。

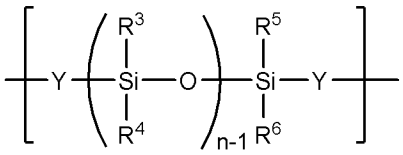
中でも、ａおよびｂが０であり、Ｘが単結合または炭素数１～８のアルキレン基であるもの、またはａおよびｂが０であり、Ｘが炭素数３のアルキレン基、特にイソプロピリデン基であるものが好適である。

[0030] 上記一般式（ＩＩ）中、R^3又はR^4で示されるハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、及びヨウ素原子が挙げられる。R^3又はR^4で示されるアルキル基としては、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、各種ブチル基、各種ペンチル基、及び各種ヘキシル基が挙げられる。R^3又はR^4で示されるアルコキシ基としては、アルキル基部位が前記アルキル基である場合が挙げられる。R^3又はR^4で示されるアリール基としては、フェニル基、ナフチル基等が挙げられる。

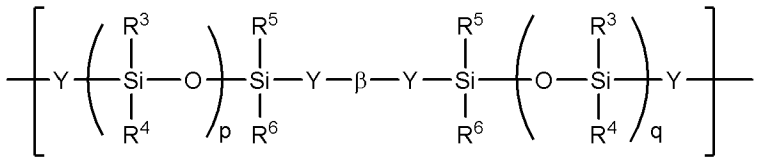
なお、R^3及びR^4としては、いずれも、好ましくは、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基又は炭素数６～１２のアリール基であり、いずれもメチル基であることがより好ましい。

[0031] 上記一般式（ＩＩ）で表される繰り返し単位を含むポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）は、より具体的には、下記一般式（ＩＩ－Ｉ）～（ＩＩ－ＩＩＩ）で表される単位を有することが好ましい。

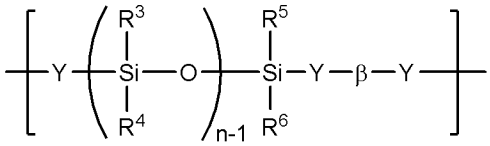
[化5]



(II-I)



(II-II)



(II-III)

[式中、R^3～R^6は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基又は炭素数６～１２のアリール基を示し、複数のR^3～R^6は、互いに同一であっても異なっていてもよい。Ｙは－R^7Ｏ－、－R^7ＣＯＯ－、－R^7ＮＨ－、－R^7ＮR^8－、－ＣＯＯ－、－Ｓ－、－R^7ＣＯＯ－R^9－Ｏ－、または－R^7Ｏ－R^{10}－Ｏ－を示し、複数のＹは、互いに同一であっても異なっていてもよい。前記R^7は、単結合、直鎖、分岐鎖若しくは環状アルキレン基、アリール置換アルキレン基、置換または無置換のアリーレン基、またはジアリーレン基を示す。R^8は、アルキル基、アルケニル基、アリール基、またはアラルキル基を示す。R^9は、ジアリーレン基を示す。R^{10}は、直鎖、分岐鎖もしくは環状アルキレン基、又はジアリーレン基を示す。βは、ジイソシアネート化合物由来の２価の基、又はジカルボン酸若しくはジカルボン酸のハロゲン化物由来の２価の基を示す。ｎはポリオルガノシロキサンの鎖長を示す。ｎ－１、及びｐとｑはそれぞれポリオルガノシロキサン単位の繰り返し数を示し、１以上の整数であり、ｐとｑの和はｎ－２である。]

[0032] R^3～R^6がそれぞれ独立して示すハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、及びヨウ素原子が挙げられる。R^3～R^6がそれぞれ独立して示すアルキル基としては、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、各種ブチル基、各種ペンチル基、及び各種ヘキシル基が挙げられる

。R^3～R^6がそれぞれ独立して示すアルコキシ基としては、アルキル基部位が前記アルキル基である場合が挙げられる。R^3～R^6がそれぞれ独立して示すアリール基としては、フェニル基、ナフチル基等が挙げられる。

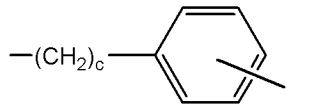
R^3～R^6としては、いずれも、好ましくは、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基又は炭素数６～１２のアリール基である。

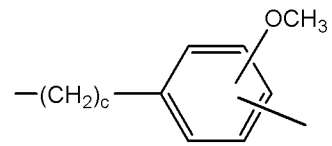
一般式（ＩＩ－Ｉ）、（ＩＩ－ＩＩ）及び／または（ＩＩ－ＩＩＩ）中のR^3～R^6がいずれもメチル基であることが好ましい。

[0033] Ｙが示す－R^7Ｏ－、－R^7ＣＯＯ－、－R^7ＮＨ－、－R^7ＮR^8－、－R^7ＣＯＯ－R^9－Ｏ－、または－R^7Ｏ－R^{10}－Ｏ－におけるR^7が表す直鎖又は分岐鎖アルキレン基としては、炭素数１～８、好ましくは炭素数１～５のアルキレン基が挙げられ、環状アルキレン基としては、炭素数５～１５、好ましくは炭素数５～１０のシクロアルキレン基が挙げられる。

[0034] R^7が表すアリール置換アルキレン基としては、芳香環にアルコキシ基、アルキル基のような置換基を有していてもよく、その具体的構造としては、例えば、下記の一般式（ｉ）または（ｉｉ）の構造を示すことができる。なお、アリール置換アルキレン基を有する場合、アルキレン基がＳｉに結合している。

[化6]


(i)


(ii)

（式中ｃは正の整数を示し、通常１～６の整数である）

[0035] R^7、R^9及びR^{10}が示すジアリーレン基とは、二つのアリーレン基が直接、又は二価の有機基を介して連結された基のことであり、具体的には－Ar^1－Ｗ－Ar^2－で表わされる構造を有する基である。ここで、Ar^1及びAr^2は、

アリーレン基を示し、Wは単結合、又は２価の有機基を示す。Wの示す２価の有機基は、例えばイソプロピリデン基、メチレン基、ジメチレン基、トリメチレン基である。

R^7、Ar^1及びAr^2が表すアリーレン基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントリレン基などの環形成炭素数６～１４のアリーレン基が挙げられる。これらアリーレン基は、アルコキシ基、アルキル基等の任意の置換基を有していてもよい。

R^8が示すアルキル基としては炭素数１～８、好ましくは１～５の直鎖または分岐鎖のものである。アルケニル基としては、炭素数２～８、好ましくは２～５の直鎖または分岐鎖のものが挙げられる。アリール基としてはフェニル基、ナフチル基等が挙げられる。アラルキル基としては、フェニルメチル基、フェニルエチル基等が挙げられる。

R^{10}が示す直鎖、分岐鎖もしくは環状アルキレン基は、R^7と同様である。

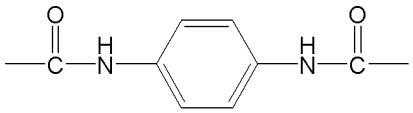
[0036] Ｙとしては、好ましくは－R^7Ｏ－であって、R^7が、アリール置換アルキレン基であって、特にアルキル基を有するフェノール系化合物の残基であり、アリルフェノール由来の有機残基やオイゲノール由来の有機残基がより好ましい。

なお、式（ＩＩ－ＩＩ）中のｐ及びｑについては、ｐ＝ｑであることが好ましい。

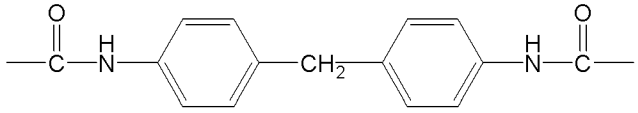
また、βは、ジイソシアネート化合物由来の２価の基又はジカルボン酸又はジカルボン酸のハロゲン化物由来の２価の基を示し、例えば、以下の一般式（ｉｉｉ）～（ｖｉｉ）で表される２価の基が挙げられる。

[0037]

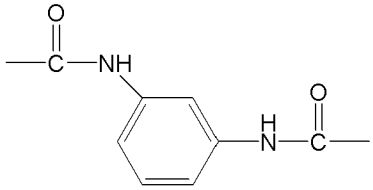
[化7]



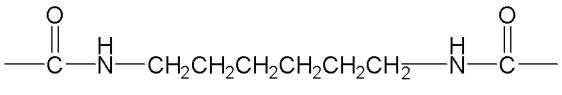
(iii)



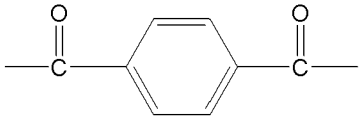
(iv)



(v)



(vi)



(vii)

[0038] ＰＣ－ＰＯＳ共重合体（Ａ）におけるポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）の平均鎖長ｎは、好ましくは３０以上、より好ましくは３５以上、さらに好ましくは４０以上、よりさらに好ましくは５０以上、特に好ましくは５５以上、最も好ましくは６０以上である。また、好ましくは５００以下、より好ましくは４００以下、さらに好ましくは３００以下、よりさらに好ましくは２００以下、特に好ましくは１２０以下、最も好ましくは８５以下である。平均鎖長ｎが３０以上５００以下の範囲であれば、より優れた耐衝撃性を得ることができる。また、ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）の平均鎖長ｎが５５以上５００以下の範囲にあることも、より優れた耐衝撃性を得る観点から好ましい。

[0039] ＰＣ－ＰＯＳ共重合体（Ａ）中のポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）の含有率は、好ましくは５質量％以上、より好ましくは６質量％以上、さらに好ましくは１０質量％以上、さらにより好ましくは１４質量％以上、さらにより好ましくは１８質量％以上、特に好ましくは２１質量％以上である。また、好ましくは７０質量％以下、より好ましくは５０質量％以下、さ

らに好ましくは４５質量％以下、特に好ましくは４０質量％以下である。ＰＣ－ＰＯＳ共重合体（Ａ）中のポリオルガノシロキサン量が上記範囲内であれば、より優れた耐衝撃性を得ることができる。

[0040] ＰＣ－ＰＯＳ共重合体（Ａ）の粘度平均分子量（Ｍｖ）は、使用される用途や製品により、目的の分子量となるように分子量調節剤（末端停止剤）等を用いることにより適宜調整することができるが、好ましくは９，０００以上、より好ましくは１２，０００以上、さらに好ましくは１４，０００以上、特に好ましくは１６，０００以上であり、好ましくは５０，０００以下、より好ましくは３０，０００以下、さらに好ましくは２３，０００以下、特に好ましくは２２，０００以下、最も好ましくは２０，０００以下である。粘度平均分子量が９，０００以上であれば、十分な成形品の強度を得ることができる。５０，０００以下であれば、熱劣化を起こさない温度で射出成形や押出成形を行うことができる。

粘度平均分子量（Ｍｖ）は、２０℃における塩化メチレン溶液の極限粘度〔η〕を測定し、下記Ｓｃｈｎｅｌｌの式から算出した値である。

[0041] [数2]

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

[0042] 上記ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）は、界面重合法（ホスゲン法）、ピリジン法、エステル交換法等の公知の製造方法により製造することができる。特に界面重合法の場合に、ＰＣ－ＰＯＳ共重合体（Ａ）を含む有機相と未反応物や触媒残渣等を含む水相との分離工程が容易となり、アルカリ洗浄、酸洗浄、純水洗浄による各洗浄工程におけるＰＣ－ＰＯＳ共重合体（Ａ）を含む有機相と水相との分離が容易となり、効率よくＰＣ－ＰＯＳ共重合体（Ａ）が得られる。ＰＣ－ＰＯＳ共重合体（Ａ）を製造する方法として、例えば、特開２０１０－２４１９４３号公報等に記載の方法を参照することができる。

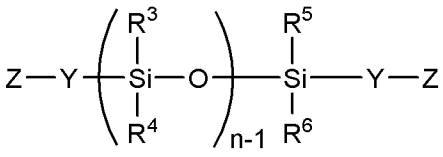
[0043] 具体的には、後述する予め製造されたポリカーボネートオリゴマーと、ポリオルガノシロキサンとを、非水溶性有機溶媒（塩化メチレン等）に溶解さ

せ、二価フェノール系化合物（ビスフェノールＡ等）のアルカリ性化合物水溶液（水酸化ナトリウム水溶液等）を加え、重合触媒として第三級アミン（トリエチルアミン等）や第四級アンモニウム塩（トリメチルベンジルアンモニウムクロライド等）を用い、末端停止剤（ｐ－ｔｅｒｔ－ブチルフェノール等の１価フェノール）の存在下、界面重縮合反応させることにより製造できる。また、ＰＣ－ＰＯＳ共重合体（Ａ）は、ポリオルガノシロキサンと、二価フェノールと、ホスゲン、炭酸エステル又はクロロホーメートとを共重合させることによっても製造できる。

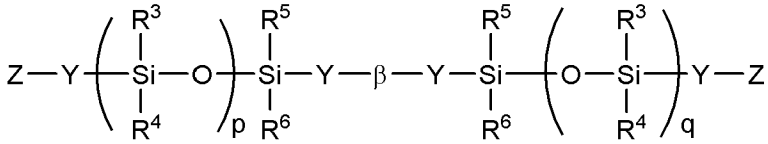
[0044] なお、本願のポリカーボネート系樹脂組成物に含まれるポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）を、例えばポリカーボネートオリゴマーとポリオルガノシロキサン原料とを有機溶媒中で反応させた後に二価フェノールと反応させる等して製造する場合には、上記有機溶媒とポリカーボネートオリゴマーとの混合溶液１Ｌ中におけるポリカーボネートオリゴマーの固形分重量（ｇ／Ｌ）が８０ｇ／Ｌ以上２００ｇ／Ｌ以下の範囲にあることが好ましい。より好ましくは９０ｇ／Ｌ以上、さらに好ましくは１００ｇ／Ｌ以上であり、より好ましくは１８０ｇ／Ｌ以下、さらに好ましくは１７０ｇ／Ｌ以下である。

[0045] 原料となるポリオルガノシロキサンとしては、以下の一般式（１）、（２）及び／または（３）に示すものを用いることができる。

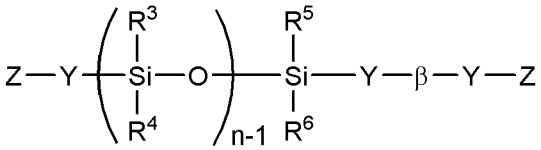
[化8]



(1)



(2)



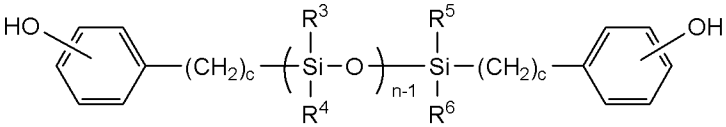
(3)

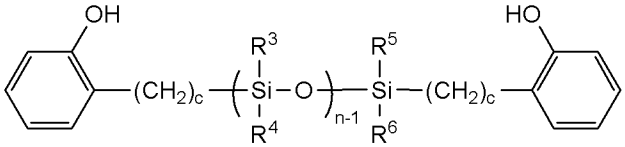
式中、R^3～R^6、Y、β、ｎ－１、ｐ及びｑは上記した通りであり、具体例及び好ましいものも同様である。

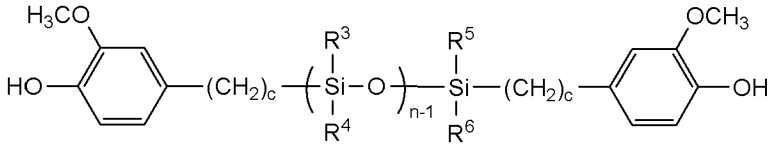
Ｚは、水素原子又はハロゲン原子を示し、複数のＺは、互いに同一であっても異なっていてもよい。

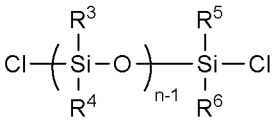
[0046] 例えば、一般式（１）で表されるポリオルガノシロキサンとしては、以下の一般式（１－１）～（１－１１）の化合物が挙げられる。

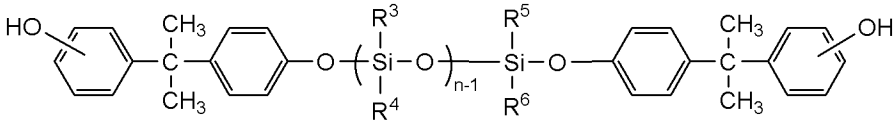
[化9]

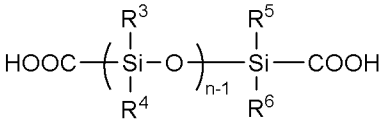

(1-1)

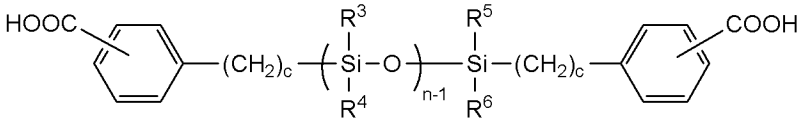

(1-2)

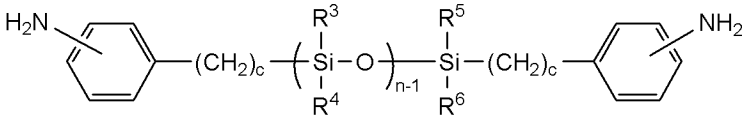

(1-3)

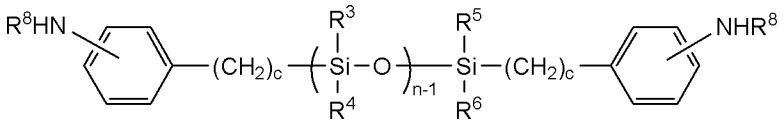

(1-4)

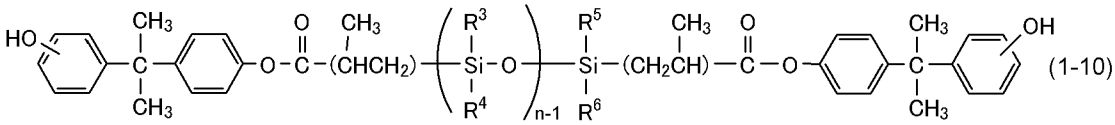

(1-5)

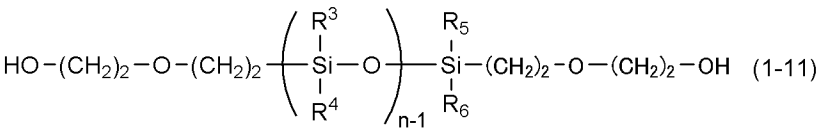

(1-6)


(1-7)


(1-8)


(1-9)


(1-10)

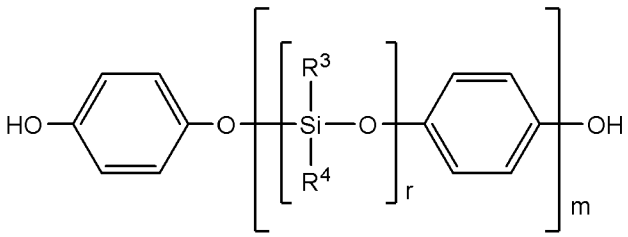

(1-11)

[0047] 上記一般式（１－１）～（１－１１）中、Ｒ[3]～Ｒ[6]、ｎ及びＲ[8]は上記の定義の通りであり、好ましいものも同じである。ｃは正の整数を示し、通常１～６の整数である。

これらの中でも、重合の容易さの観点においては、上記一般式（１－１）で表されるフェノール変性ポリオルガノシロキサンが好ましい。また、入手の容易さの観点においては、上記一般式（１－２）で表される化合物中の一種であるα，ω－ビス［３－（ｏ－ヒドロキシフェニル）プロピル］ポリジメチルシロキサン、上記一般式（１－３）で表される化合物中の一種であるα，ω－ビス［３－（４－ヒドロキシ－３－メトキシフェニル）プロピル］ポリジメチルシロキサンが好ましい。

その他、ポリオルガノシロキサン原料として以下の一般式（４）を有するものを用いてもよい。

[化10]

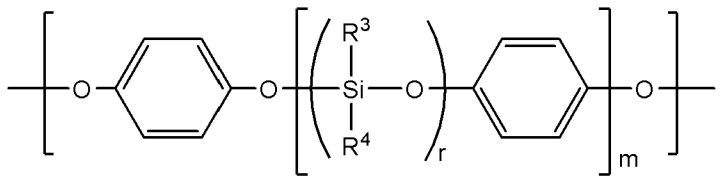


(4)

式中、R^3及びR^4は上述したものと同様である。一般式（４）で示されるポリオルガノシロキサンブロックの平均鎖長は（ｒ×ｍ）となり、（ｒ×ｍ）の範囲は上記ｎと同一である。

上記（４）をポリオルガノシロキサン原料として用いた場合には、ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）は下記一般式（ＩＩ－ＩＶ）で表わされる単位を有することが好ましい。

[化11]

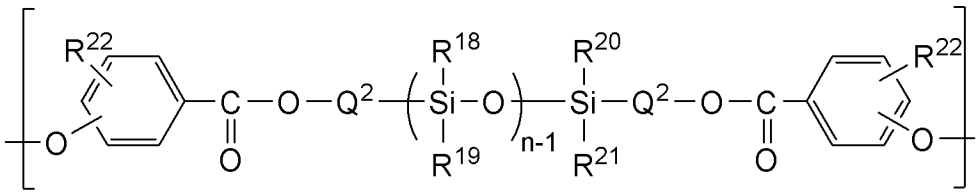


(II-IV)

［式中のR^3、R^4、ｒ及びｍは上述した通りである］

[0048] ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）として、下記一般式（ＩＩ－Ｖ）で表される構造を有していてもよい。

[化12]



(II-V)

［式中、R^{18}～R^{21}はそれぞれ独立に水素原子又は炭素数１～１３のアルキル基である。R^{22}は炭素数１～６のアルキル基、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシ基、炭素数１～６のアルコキシ基、又は炭素数６～１４のアリール基である。Q^2は炭素数１～１０の２価の脂肪族基である。ｎは平均鎖長を示し、３０～７０である。］

[0049] 一般式（ＩＩ－Ｖ）中、R^{18}～R^{21}がそれぞれ独立して示す炭素数１～１３のアルキル基としては、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、各種ブチル基、各種ペンチル基、各種ヘキシル基、各種ヘプチル基、各種オクチル基、２－エチルヘキシル基、各種ノニル基、各種デシル基、各種ウンデシル基、各種ドデシル基、各種トリデシル基が挙げられる。これらの中でも、R^{18}～R^{21}としては、好ましくは水素原子又は炭素数１～６のアルキル基であり、いずれもメチル基であることがより好ましい。

R^{22}が示す炭素数１～６のアルキル基としては、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、各種ブチル基、各種ペンチル基、各種ヘキシル基が挙げられる。R^{22}が示すハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が挙げられる。R^{22}が示す炭素数１～６のアルコキシ基としては、アルキル基部位が前記アルキル基である場合が挙げられる。また、R^{22}が示す炭素数６～１４のアリール基としては、フェニル基、トルイル基、ジメチルフェニル基、ナフチル基などが挙げられる。

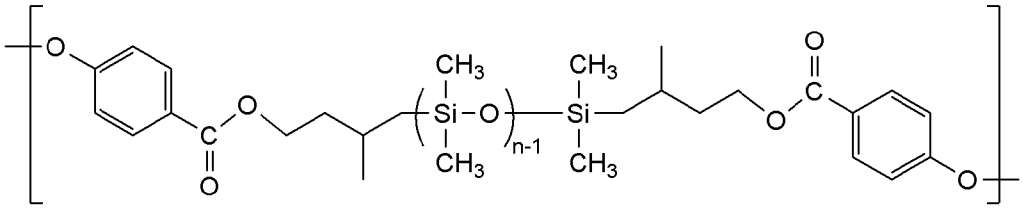
上記の中でも、R^{22}は水素原子、又は炭素数１～６のアルコキシ基が好ましく、水素原子又は炭素数１～３のアルコキシ基がより好ましく、水素原子がさらに好ましい。

Q^2が示す炭素数１～１０の２価の脂肪族基としては、炭素数１～１０の、直鎖又は分岐鎖の２価の飽和脂肪族基が好ましい。当該飽和脂肪族基の炭素

数は、好ましくは１～８、より好ましくは２～６、さらに好ましくは３～６、よりさらに好ましくは４～６である。また、平均鎖長ｎは上記の通りである。

[0050] 構成単位（ＩＩ－Ｖ）の好ましい態様としては、下記式（ＩＩ－ＶＩ）で表される構造を挙げることができる。

[化13]

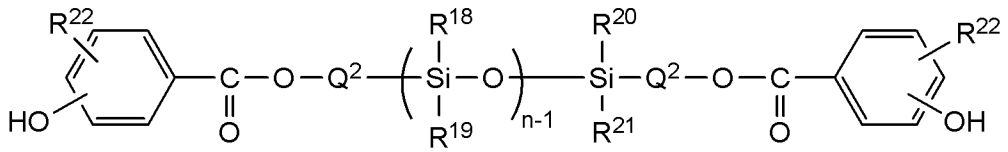


(II-VI)

［式中、ｎは前記と同じである。］

[0051] 上記一般式（ＩＩ－Ｖ）または（ＩＩ－ＶＩ）で表されるポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）は、下記一般式（５）または（６）で表されるポリオルガノシロキサン原料を用いることにより得ることができる。

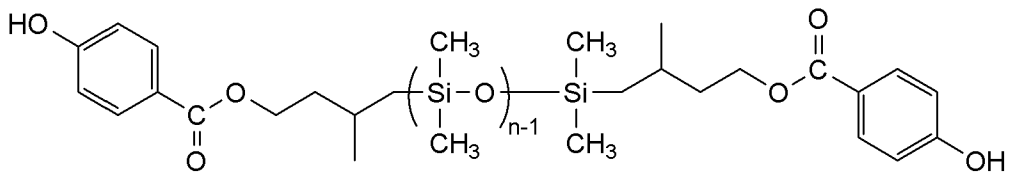
[化14]



(5)

［式中、R^{18}～R^{22}、Q^2、及びｎは上記した通りである。］

[化15]



(6)

［式中、ｎは上記した通りである。］

[0052] 前記ポリオルガノシロキサンの製造方法は特に限定されない。例えば、特開平１１－２１７３９０号公報に記載の方法によれば、シクロトリシロキサンとジシロキサンとを酸性触媒存在下で反応させて、α，ω－ジハイドロジェンオルガノペンタシロキサンを合成し、次いで、ヒドロシリル化反応用触

媒の存在下に、該α，ω－ジハイドロジェンオルガノペンタシロキサンにフェノール性化合物（例えば２－アリルフェノール、４－アリルフェノール、オイゲノール、２－プロペニルフェノール等）等を付加反応させることで、粗ポリオルガノシロキサンを得ることができる。また、特許第２６６２３１０号公報に記載の方法によれば、オクタメチルシクロテトラシロキサンとテトラメチルジシロキサンとを硫酸（酸性触媒）の存在下で反応させ、得られたα，ω－ジハイドロジェンオルガノポリシロキサンを上記と同様に、ヒドロシリル化反応用触媒の存在下でフェノール性化合物等を付加反応させることで、粗ポリオルガノシロキサンを得ることができる。なお、α，ω－ジハイドロジェンオルガノポリシロキサンは、その重合条件によりその鎖長ｎを適宜調整して用いることもできるし、市販のα，ω－ジハイドロジェンオルガノポリシロキサンを用いてもよい。

[0053] 上記ヒドロシリル化反応用触媒としては、遷移金属系触媒が挙げられるが、中でも反応速度及び選択性の点から白金系触媒が好ましく用いられる。白金系触媒の具体例としては、塩化白金酸，塩化白金酸のアルコール溶液，白金のオレフィン錯体，白金とビニル基含有シロキサンとの錯体，白金担持シリカ，白金担持活性炭等が挙げられる。

[0054] 粗ポリオルガノシロキサンを吸着剤と接触させることにより、粗ポリオルガノシロキサン中に含まれる、上記ヒドロシリル化反応用触媒として使用された遷移金属系触媒に由来する遷移金属を、吸着剤に吸着させて除去することが好ましい。

吸着剤としては、例えば、１０００Å以下の平均細孔直径を有するものを用いることができる。平均細孔直径が１０００Å以下であれば、粗ポリオルガノシロキサン中の遷移金属を効率的に除去することができる。このような観点から、吸着剤の平均細孔直径は、好ましくは５００Å以下、より好ましくは２００Å以下、更に好ましくは１５０Å以下、より更に好ましくは１００Å以下である。また同様の観点から、吸着剤は多孔性吸着剤であることが好ましい。

吸着剤としては、上記の平均細孔直径を有するものであれば特に限定されないが、例えば活性白土、酸性白土、活性炭、合成ゼオライト、天然ゼオライト、活性アルミナ、シリカ、シリカ－マグネシア系吸着剤、珪藻土、セルロース等を用いることができ、活性白土、酸性白土、活性炭、合成ゼオライト、天然ゼオライト、活性アルミナ、シリカ及びシリカ－マグネシア系吸着剤からなる群から選ばれる少なくとも１種であることが好ましい。

[0055] 粗ポリオルガノシロキサン中に含まれる遷移金属を吸着剤に吸着させた後、吸着剤を任意の分離手段によってポリオルガノシロキサンから分離することができる。ポリオルガノシロキサンから吸着剤を分離する手段としては、例えばフィルタや遠心分離等が挙げられる。フィルタを用いる場合は、メンブランフィルタ、焼結金属フィルタ、ガラス繊維フィルタ等のフィルタを用いることができるが、特にメンブランフィルタを用いることが好ましい。

遷移金属の吸着後に吸着剤をポリオルガノシロキサンから分離する観点から、吸着剤の平均粒子径は、通常１μｍ以上４ｍｍ以下、好ましくは１μｍ以上１００μｍ以下である。

前記吸着剤を使用する場合には、その使用量は特に限定されない。粗ポリオルガノシロキサン１００質量部に対して、好ましくは１質量部以上、より好ましくは２質量部以上であり、好ましくは３０質量部以下、より好ましくは２０質量部以下の範囲の量の多孔性吸着剤を使用することができる。

[0056] なお、処理する粗ポリオルガノシロキサンの分子量が高いために液体状態でない場合は、吸着剤による吸着及び吸着剤の分離を行う際に、ポリオルガノシロキサンが液体状態となるような温度に加熱してもよい。または、塩化メチレンやヘキサン等の溶剤に溶かして行ってもよい。

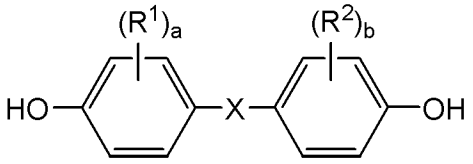
[0057] 所望の分子量分布のポリオルガノシロキサンは、例えば、複数のポリオルガノシロキサンを配合することにより分子量分布を調節して得られる。配合は、複数のα，ω－ジハイドロジェンオルガノポリシロキサンを配合したあと、ヒドロシリル化反応用触媒の存在下でフェノール性化合物等を付加反応させることで所望の分子量分布となる粗ポリオルガノシロキサンを得ること

もできる。また、複数の粗ポリオルガノシロキサンを配合したのち、ヒドロシリル化反応触媒を除去させるなどの精製を行ってもよい。精製後の複数のポリオルガノシロキサンを配合してもよい。また、ポリオルガノシロキサン製造時の重合条件により適宜調整することもできる。また、既存のポリオルガノシロキサンから各種分離等の手段によって一部のみを分取する事で得ることも出来る。

[0058] ポリカーボネートオリゴマーは、塩化メチレン、クロロベンゼン、クロロホルム等の有機溶剤中で、二価フェノールとホスゲンやトリホスゲンのようなカーボネート前駆体との反応によって製造することができる。なお、エステル交換法を用いてポリカーボネートオリゴマーを製造する際には、二価フェノールとジフェニルカーボネートのようなカーボネート前駆体との反応によって製造することもできる。

二価フェノールとしては、下記一般式（ｖｉｉｉ）で表される二価フェノールを用いることが好ましい。

[化16]



(viii)

式中、R^1、R^2、ａ、ｂ及びＸは上述した通りである。

[0059] 上記一般式（ｖｉｉｉ）で表される二価フェノールとしては、例えば、２，２－ビス（４－ヒドロキシフェニル）プロパン〔ビスフェノールＡ〕、ビス（４－ヒドロキシフェニル）メタン、１，１－ビス（４－ヒドロキシフェニル）エタン、２，２－ビス（４－ヒドロキシ－３，５－ジメチルフェニル）プロパン等のビス（ヒドロキシフェニル）アルカン系、４，４’－ジヒドロキシジフェニル、ビス（４－ヒドロキシフェニル）シクロアルカン、ビス（４－ヒドロキシフェニル）オキシド、ビス（４－ヒドロキシフェニル）スルフィド、ビス（４－ヒドロキシフェニル）スルホン、ビス（４－ヒドロキシフェニル）スルホキシド、ビス（４－ヒドロキシフェニル）ケトン等が挙

げられる。これらの二価フェノールは、１種を単独で使用してもよいし、２種以上を混合して用いてもよい。

これらの中でも、ビス（ヒドロキシフェニル）アルカン系二価フェノールが好ましく、ビスフェノールＡがより好ましい。二価フェノールとしてビスフェノールＡを用いた場合、上記一般式（ｉ）において、Ｘがイソプロピリデン基であり、且つａ＝ｂ＝０のＰＣ－ＰＯＳ共重合体となる。

[0060] ビスフェノールＡ以外の二価フェノールとしては、例えば、ビス（ヒドロキシアリール）アルカン類、ビス（ヒドロキシアリール）シクロアルカン類、ジヒドロキシアリールエーテル類、ジヒドロキシジアリールスルフィド類、ジヒドロキシジアリールスルホキシド類、ジヒドロキシジアリールスルホン類、ジヒドロキシジフェニル類、ジヒドロキシジアリールフルオレン類、ジヒドロキシジアリールアダマンタン類等が挙げられる。これらの二価フェノールは、１種を単独で使用してもよいし、２種以上を混合して用いてもよい。

[0061] ビス（ヒドロキシアリール）アルカン類としては、例えばビス（４－ヒドロキシフェニル）メタン、１，１－ビス（４－ヒドロキシフェニル）エタン、２，２－ビス（４－ヒドロキシフェニル）ブタン、２，２－ビス（４－ヒドロキシフェニル）オクタン、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）ジフェニルメタン、２，２－ビス（４－ヒドロキシ－３－メチルフェニル）プロパン、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－３－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）プロパン、２，２－ビス（４－ヒドロキシ－３－ブロモフェニル）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（４－ヒドロキシ－３－クロロフェニル）プロパン、２，２－ビス（４－ヒドロキシ－３，５－ジクロロフェニル）プロパン、２，２－ビス（４－ヒドロキシ－３，５－ジブロモフェニル）プロパン等が挙げられる。

[0062] ビス（ヒドロキシアリール）シクロアルカン類としては、例えば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、１，１－ビス（４－ヒドロキシフェニル）－３，５，５－トリメチルシクロヘキサン、２，２－ビス（４－ヒドロキシフェニル）ノルボルナン、１，１－ビス（４－ヒドロキシフェニル）シクロドデカン等が挙げられる。ジヒドロキシアリールエーテル類としては、例えば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’－ジメチルフェニルエーテル等が挙げられる。

[0063] ジヒドロキシジアリールスルフィド類としては、例えば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等が挙げられる。ジヒドロキシジアリールスルホキシド類としては、例えば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が挙げられる。ジヒドロキシジアリールスルホン類としては、例えば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が挙げられる。

[0064] ジヒドロキシジフェニル類としては、例えば４，４’－ジヒドロキシジフェニル等が挙げられる。ジヒドロキシジアリールフルオレン類としては、例えば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）フルオレン等が挙げられる。ジヒドロキシジアリールアダマンタン類としては、例えば１，３－ビス（４－ヒドロキシフェニル）アダマンタン、２，２－ビス（４－ヒドロキシフェニル）アダマンタン、１，３－ビス（４－ヒドロキシフェニル）－５，７－ジメチルアダマンタン等が挙げられる。

[0065] 上記以外の二価フェノールとしては、例えば４，４’－［１，３－フェニレンビス（１－メチルエチリデン）］ビスフェノール、１０，１０－ビス（４－ヒドロキシフェニル）－９－アントロン、１，５－ビス（４－ヒドロキシフェニルチオ）－２，３－ジオキサペンタン等が挙げられる。

[0066] 得られるＰＣ－ＰＯＳ共重合体の分子量を調整するために、末端停止剤（

分子量調節剤）を使用することができる。末端停止剤としては、例えば、フェノール、ｐ－クレゾール、ｐ－ｔｅｒｔ－ブチルフェノール、ｐ－ｔｅｒｔ－オクチルフェノール、ｐ－クミルフェノール、ｐ－ノニルフェノール、ｍ－ペンタデシルフェノール及びｐ－ｔｅｒｔ－アミルフェノール等の一価フェノールを挙げることができる。これら一価フェノールは、一種を単独で用いてもよいし、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

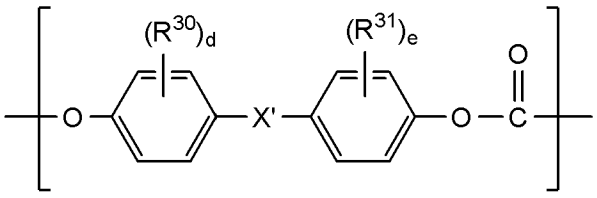
[0067] 上記界面重縮合反応後、適宜静置して水相と有機溶媒相とに分離し［分離工程］、有機溶媒相を洗浄（好ましくは塩基性水溶液、酸性水溶液、水の順に洗浄）し［洗浄工程］、得られた有機相を濃縮［濃縮工程］、及び乾燥する［乾燥工程］ことによって、ＰＣ－ＰＯＳ共重合体（Ａ）を得ることができる。

[0068] ＜（Ｂ）芳香族ポリカーボネート系樹脂＞

上記ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）以外の芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）は、前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）のマトリックス部分を構成し、ドメイン（ｄ－２）にも含まれ得る。

芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）は、主鎖が下記一般式（ＩＩＩ）で表される繰り返し単位を有する。上記ポリカーボネート系樹脂としては、特に制限はなく種々の公知のポリカーボネート系樹脂を使用できる。

[化17]



(III)

［式中、Ｒ^{30}及びＲ^{31}は、それぞれ独立に、ハロゲン原子、炭素数１～６のアルキル基又は炭素数１～６のアルコキシ基を示す。Ｘ’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５～１５のシクロアルキレン基、炭素数５～１５のシクロアルキリデン基、－Ｓ－、－ＳＯ－、－ＳＯ$_2$－、－Ｏ－又は－ＣＯ－を示す。ｄ及びｅは、それぞれ独立に０～４の整数を示す。］

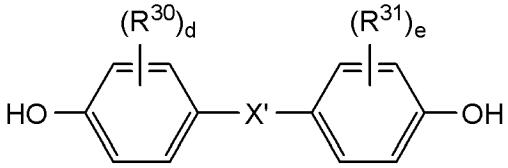
[0069] R^{30}及びR^{31}の具体例としては、前記R^{1}及びR^{2}と同じものが挙げられ、好ましいものも同じである。R^{30}及びR^{31}としては、より好ましくは、炭素数１～６のアルキル基又は炭素数１～６のアルコキシ基である。Ｘ’の具体例としては、前記Ｘと同じものが挙げられ、好ましいものも同じである。ｄ及びｅは、それぞれ独立に、好ましくは０～２、より好ましくは０又は１である。

[0070] 上記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）としては、具体的には、反応に不活性な有機溶媒、アルカリ水溶液の存在下、二価フェノール系化合物及びホスゲンと反応させた後、第三級アミンもしくは第四級アンモニウム塩等の重合触媒を添加して重合させる界面重合法や、二価フェノール系化合物をピリジン又はピリジンと不活性溶媒の混合溶液に溶解し、ホスゲンを導入し直接製造するピリジン法等従来のポリカーボネートの製造法により得られるものを使用できる。

上記の反応に際し、必要に応じて、分子量調節剤（末端停止剤）、分岐化剤等が使用される。

なお、上記二価フェノール系化合物としては、下記一般式（ＩＩＩ’）で表されるものが挙げられる。

[化18]



(III')

［式中、R^{30}、R^{31}、Ｘ’、ｄ及びｅは前記定義の通りであり、好ましいものも同じである。］

[0071] 該二価フェノール系化合物の具体例としては、ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）の製造方法で上述したものを挙げることができ、好ましいものも同じである。中でも、ビス（ヒドロキシフェニル）アルカン系二価フェノールが好ましく、ビスフェノールＡがより好ましい。

上記芳香族ポリカーボネート系樹脂は１種を単独で用いてもよいし、２種

以上を併用してもよい。なお、芳香族ポリカーボネート樹脂（Ｂ）は、ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）と異なり、式（ＩＩ）で表されるようなポリオルガノシロキサンブロックを有さない構造であってもよい。例えば、芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）はホモポリカーボネート樹脂であってもよい。

[0072] ＜無機充填材（Ｃ）＞

本発明の無機充填剤含有ポリカーボネート系樹脂組成物に用いられる無機充填剤（Ｃ）としては、様々なものを用いることができ、例えば、ガラス材（例えば、ガラスファイバー、ガラスビーズ、ガラスフレーク、ガラスパウダー等）、炭素繊維、アルミニウム繊維、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、ドロマイト、シリカ、珪藻土、アルミナ、酸化チタン、酸化鉄、酸化亜鉛、酸化マグネシウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、亜硫酸カルシウム、タルク、クレー、マイカ、アスベスト、珪酸カルシウム、モンモリロナイト、ベントナイト、カーボンブラック、グラファイト、鉄粉、鉛粉、アルミニウム粉、白色顔料等を用いることもできる。

[0073] 前記白色顔料としては、特に限定されるものではないが、酸化チタン、酸化亜鉛、及び硫化亜鉛から選ばれる少なくとも１種を用いることが好ましい。これらの白色顔料の中でも、酸化チタンを用いることが、色調をより白色とする観点から好ましい。

[0074] 具体的には、酸化チタンとしては、その表面がポリオールで被覆されているもが好ましくは用いられる。かかる被覆は、ポリカーボネート組成物中における酸化チタンの分散性を向上させ、かつポリカーボネートの分子量低下を防止することができる。

酸化チタンの有機化合物による表面処理として、ポリオールの他に有機珪素化合物、アルカノールアミン類、高級脂肪酸類等による表面被覆を挙げることができる。さらに、例えばポリオールで表面を被覆する前に、その酸化チタン表面をアルミニウム、珪素、マグネシウム、ジルコニアチタン、錫等の元素を含む少なくとも一種の元素の含水酸化物及び／又は酸化物が被覆し

てもよい。

[0075] 酸化チタンをポリオールで被覆する際に使用するポリオールとしては、トリメチロールプロパン、トリメチロールエタン、ジトリメチロールプロパン、トリメチロールプロパンエトキシレート、ペンタエリスリトール等が挙げられ、これらの中でもトリメチロールプロパンとトリメチロールエタンが好ましい。

ポリオールで表面を被覆する方法としては湿式法と乾式法が挙げられる。湿式法はポリオールと低沸点溶媒の混合液に酸化チタンを加え、攪拌後、低沸点溶媒を除去する方法で行う。乾式法はポリオールと酸化チタンをヘンシェルミキサー、タンブラー等の混合機中で混合するか、あるいはポリオールを溶媒に溶解させるか、あるいは分散させた混合溶液を酸化チタンに噴霧する方法で行う。このようなポリオールによる表面を被覆することにより、ポリカーボネート樹脂組成物の物性低下を抑制し、酸化チタンの樹脂組成物中での分散性を向上させ、シルバー等の成形不良を抑制することができる。

酸化チタンの製造方法は、塩素法、硫酸法のどちらで製造されたものも使用可能である。また、酸化チタンの結晶構造は、ルチル型、アナターゼ型のどちらでも使用可能であるが、ポリカーボネート樹脂組成物の熱安定性、耐光性等の観点からルチル型がより好ましい。

[0076] タルクとしては、熱可塑性樹脂の添加剤として市販されているものを任意に用いることができる。タルクは、マグネシウムの含水ケイ酸塩であり、主成分であるケイ酸と酸化マグネシウムの他に、微量の酸化アルミニウム、酸化カルシウム、酸化鉄を含むことがあり、本発明においてはこれらを含んでいても良い。また、平均粒径は好ましくは０．５μｍ以上、より好ましくは１μｍ以上であり、好ましくは５０μｍ以下、より好ましくは２０μｍ以下の範囲である。アスペクト比は通常２以上２０以下の範囲である。これらの平均粒子径、アスペクト比は成形時の流動性、成形品に要求される耐衝撃性、剛性などにより他の含有成分などを総合的に考慮して決定される。また、タルクとしては、脂肪酸などにより、表面処理されたものや、脂肪酸などの

存在下に粉砕されたタルクなども用いることができる。

[0077] 本実施形態におけるポリカーボネート系樹脂組成物において、無機充填材（Ｃ）としてガラスファイバーを配合した場合には、成形品に剛性を付与することができる。ガラスファイバーとしては、素材として含アルカリガラスや低アルカリガラス、無アルカリガラスを用いて製造したものが好ましく、その繊維の形態は、ロービング、ミルドファイバー、チョップドストランドなどいずれの形態であってもよい。また、ガラスファイバーの断面が、扁平状でも良い。ガラスファイバーの直径は、３μｍ以上３０μｍ以下であるものが好ましく、長さは１ｍｍ以上６ｍｍ以下であるものを用いるのが好ましい。ガラスファイバーの直径が３μｍ以上であると、ポリカーボネート系樹脂組成物の剛性をより高くすることができ、３０μｍ以下であると成形体の外観が良好となる。

[0078] ガラスファイバーの繊維長は、通常０．１ｍｍ以上８ｍｍ以下程度、好ましくは０．３ｍｍ以上６ｍｍ以下である。また、繊維径は、通常０．１μｍ以上３０μｍ以下程度、好ましくは０．５μｍ以上２５μｍ以下である。これらのガラスファイバーは一種を単独で用いてもよいし、二種以上を混合して用いてもよい。

樹脂との親和性を高めるために、アミノシラン系、エポキシシラン系、ビニルシラン系、メタクリルシラン系等のシラン系カップリング剤、クロム錯化合物あるいはホウ素化合物等で表面処理されたガラスファイバーを用いてもよく、さらに収束剤を用いて収束処理をしたものであってもよい。このようなガラスファイバーとしては、旭ファイバーグラス株式会社製のＭＡ－４０９Ｃ（平均繊維径１３μｍ）、ＴＡ－４０９Ｃ（平均繊維径２３μｍ）や、日本電気硝子株式会社製のＴ－５１１（平均繊維径１２～１４μｍ）等を好適に用いることができる。

[0079] 無機充填材（Ｃ）の配合量は、ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）及び前記無機充填材（Ｃ）の合計量１００質量％中、好ましくは０．１質量％以上、より好ましくは０．５質量％以上、さらに好ましくは１質量％以上であり、好

ましくは５０質量％以下、より好ましくは３０質量％以下、さらに好ましくは１０質量％以下である。上記範囲であれば、無機充填材による所望の性質をポリカーボネート系樹脂組成物に与えることができ、また問題なく成形をすることができる。

[0080] より具体的には、無機充填材（Ｃ）として酸化チタンを配合する場合の配合量は、ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）１００質量部に対して、好ましくは０．５質量部以上、より好ましくは１質量部以上、さらに好ましくは２質量部以上であり、好ましくは５質量部以下、より好ましくは４質量部以下である。酸化チタンの配合量が上記範囲にあれば、十分な白色度合を得ると共に、成形品の耐衝撃性も維持することができる。

[0081] 無機充填材（Ｃ）としてタルクを配合する場合の配合量は、ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）及び前記タルクの合計量１００質量％中、好ましくは０．５質量％以上、より好ましくは１質量％以上、さらに好ましくは２質量％以上であり、好ましくは３０質量％以下、より好ましくは２０質量％以下、さらに好ましくは１０質量％以下である。タルクの配合量が上記範囲にあれば、機械特性（剛性）及び寸法安定性等に優れる成形品を、耐衝撃性を落とすことなく得ることができる。

[0082] 無機充填材（Ｃ）としてガラスファイバーを配合する場合の配合量は、ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）及び前記ガラスファイバーの合計量１００質量％中、好ましくは１質量％以上、より好ましくは５質量％以上、さらに好ましくは１０質量％以上、特に好ましくは２０質量％以上であり、好ましくは５０質量％以下、より好ましくは４０質量％以下、さらに好ましくは３５質量％以下である。ガラスファイバーの配合量が上記範囲にあれば、剛性が向上すると共に、外観及び強度が良好な成形体を得ることができる。

[0083] ＜その他の成分＞

本実施形態のポリカーボネート系樹脂組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、その他の添加剤を含ませることができる。その他の添加剤としては、難燃剤や難燃助剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、離型剤、補強材、充

填剤、耐衝撃性改良用のエラストマー、染料、顔料、帯電防止剤、ポリカーボネート以外の他樹脂等を挙げることができる。

[0084] 本実施形態のポリカーボネート系樹脂組成物は、前記の各成分を上記割合で、更に必要に応じて用いられる各種任意成分を適当な割合で配合し、混練することにより得られる。

本発明の一態様において、成分（Ａ）、成分（Ｂ）及び成分（Ｃ）の合計含有量は、ポリカーボネート樹脂組成物の全量（１００質量％）基準で、好ましくは８０～１００質量％、より好ましくは９５～１００質量％である。

本発明の他の態様において、成分（Ａ）、成分（Ｂ）、成分（Ｃ）及びその他成分の合計含有量は、ポリカーボネート樹脂組成物の全量（１００質量％）基準で、好ましくは９０～１００質量％、より好ましくは９５～１００質量％である。

[0085] 配合及び混練は、通常用いられている機器、例えば、リボンブレンダー、ドラムタンブラーなどで予備混合して、ヘンシェルミキサー、バンバリーミキサー、単軸スクリュー押出機、二軸スクリュー押出機、多軸スクリュー押出機及びコニーダ等を用いる方法で行うことができる。混練の際の加熱温度は、通常、２４０℃以上３２０℃以下の範囲で適宜選択される。この溶融混練としては、押出機、特に、ベント式の押出機の使用が好ましい。

[0086] ［成形品］

上記の溶融混練した本実施形態のポリカーボネート系樹脂組成物、又は得られたペレットを原料として、射出成形法、射出圧縮成形法、押出成形法、ブロー成形法、プレス成形法、真空成形法及び発泡成形法等により各種成形体を製造することができる。特に、溶融混練により得られたペレットを用いて、射出成形及び射出圧縮成形による射出成形体の製造に好適に用いることができる。

本発明の難燃性ポリカーボネート系樹脂組成物からなる成型品は、例えば、テレビ、ラジオ、ビデオカメラ、ビデオテープレコーダ、オーディオプレーヤー、ＤＶＤプレーヤー、エアコンディショナ、携帯電話、ディスプレイ

、コンピュータ、レジスター、電卓、複写機、プリンター、ファクシミリ、通信基地局、バッテリー等の電気・電子機器用部品の筐体等、並びに自動車及び建材の部品として好適に用いることができる。

実施例

[0087] 次に、本発明を実施例によりさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの例により何ら限定されるものではない。なお、各例における特性値、評価結果は、以下の要領に従って求めた。

[0088] ＜ポリジメチルシロキサンの鎖長の定量方法＞

^{1}Ｈ－ＮＭＲ測定条件

ＮＭＲ装置：（株）ＪＥＯＬ　ＲＥＳＯＮＡＮＣＥ製　ＥＣＡ５００

プローブ：５０ＴＨ５ＡＴ／ＦＧ２

観測範囲：－５～１５ｐｐｍ

観測中心：５ｐｐｍ

パルス繰り返し時間：９秒

パルス幅：４５°

ＮＭＲ試料管：５φ

サンプル量：３０～４０ｍｇ

溶媒：重クロロホルム

測定温度：室温

積算回数：２５６回

アリルフェノール末端ポリジメチルシロキサンの場合

Ａ：δ－０．０２～０．５付近に観測されるジメチルシロキサン部のメチル基の積分値

Ｂ：δ２．５０～２．７５付近に観測されるアリルフェノールのメチレン基の積分値

ポリジメチルシロキサンの鎖長＝（Ａ／６）／（Ｂ／４）

オイゲノール末端ポリジメチルシロキサンの場合

Ａ：δ－０．０２～０．５付近に観測されるジメチルシロキサン部のメチ

ル基の積分値

Ｂ：δ２．４０～２．７０付近に観測されるオイゲノールのメチレン基の積分値

ポリジメチルシロキサンの鎖長＝（Ａ／６）／（Ｂ／４）

[0089] ＜ポリジメチルシロキサン含有率の定量方法＞

アリルフェノール末端ポリジメチルシロキサンを共重合したＰＴＢＰ末端ポリカーボネート中のポリジメチルシロキサン共重合量の定量方法

ＮＭＲ装置：（株）ＪＥＯＬ　ＲＥＳＯＮＡＮＣＥ製　ＥＣＡ－５００

プローブ：ＴＨ５　５φＮＭＲ試料管対応

観測範囲：－５～１５ｐｐｍ

観測中心：５ｐｐｍ

パルス繰り返し時間：９秒

パルス幅：４５°

積算回数：２５６回

ＮＭＲ試料管：５φ

サンプル量：３０～４０ｍｇ

溶媒：重クロロホルム

測定温度：室温

Ａ：δ１．５～１．９付近に観測されるＢＰＡ部のメチル基の積分値

Ｂ：δ－０．０２～０．３付近に観測されるジメチルシロキサン部のメチル基の積分値

Ｃ：δ１．２～１．４付近に観測されるｐ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル部のブチル基の積分値

ａ＝Ａ／６

ｂ＝Ｂ／６

ｃ＝Ｃ／９

Ｔ＝ａ＋ｂ＋ｃ

ｆ＝ａ／Ｔ×１００

ｇ＝ｂ／Ｔ×１００

ｈ＝ｃ／Ｔ×１００

ＴＷ＝ｆ×２５４＋ｇ×７４．１＋ｈ×１４９

ＰＤＭＳ（ｗｔ％）＝ｇ×７４．１／ＴＷ×１００

[0090] （２）粘度平均分子量

粘度平均分子量（Ｍｖ）は、ウベローデ型粘度計を用いて、２０℃における塩化メチレン溶液の粘度を測定し、これより極限粘度［η］を求め、次式（Ｓｃｈｎｅｌｌ式）にて算出した。

[0091] [数3]

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

[0092] また、前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）の粘度平均分子量（Ｍｖ）は前記ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）及び前記芳香族ポリカーボネート（Ｂ）の粘度平均分子量の相加平均の値から求めた。

[0093] ＜ＳＰＭによるドメイン構造の観察方法＞

ＳＰＭ装置：Nano-IM（PNI社製）

プローブ：PPP-NCHR（NANOSENSORS社製）

観察視野サイズ：１μｍ四方、２μｍ四方、５μｍ四方

観察部位：後述のＩｚｏｄ試験片（長さ６３．５ｍｍ，幅１２．７ｍｍ，厚さ３．２ｍｍ）のゲート反対側端部から約５ｍｍの断面中央部の機械方向（ＭＤ）と厚み方向（ＮＤ）で形成される面

前処理方法：後述のＩｚｏｄ試験片を切削し、得られた切削試料について面出し調整を行い、続いて凍結ミクロトーム）を使用した切削断面加工によって観察面を作製した。それぞれの手順についての詳細は以下の通りである。

[0094] ［１．Ｉｚｏｄ試験片の切削］

Ｉｚｏｄ試験片を図４に示す位置で切り出し、長さ７ｍｍ、幅５ｍｍ×厚み３．２ｍｍの試料片を得た。

［２．切り出し試料からの面出し調整］

上記１．で得られた試験片の観察面側を、トリム装置（「Ｌｅｉｃａ　ＥＭ　ＴＲＩＭ」［ライカマイクロシステムズ社製］）にて四角錐形状にトリミングした。

続いて、ミクロトーム（「ＵＬＴＲＡＣＵＴ　Ｓ」［ライカマイクロシステムズ社製］）を用い、常温にて約１５０μｍ四方の面が出るよう四角錐の頂点を切り落とした。

なお、ミクロトームに使用したガラスナイフの形状は、図６に示す通りである。材料として、「ガラスナイフ用ガラス棒（長さ４００ｍｍ，幅２５ｍｍ、厚さ６ｍｍ）」［ＮＩＳＳＨＩＮ　ＥＭ　Ｃｏ.，　Ｌｔｄ．ＴＯＫＹＯ］を用い、加工装置としてガラスナイフメーカー（「ＬｅｉｃａＥＭ　ＫＭＲ２」［ライカマイクロシステムズ社製］）を用いた。作製されたガラスナイフの破断面を顕微鏡で観察し、切削に用いる辺に欠けが視認されないものを用いた。

[0095] ［３．凍結ミクロトーム切削による観察面の作成］

上記２．で面出しした試料を、ガラスナイフと共に、凍結用のミクロトーム（「ＵＬＴＲＡＣＵＴＲ」［ライカマイクロシステムズ社製］）に設置された冷却ボックス内に設置し、液体窒素を用いてボックス内の雰囲気温度を－１２０℃で１時間冷却した。

続いて、当該試料を冷却ボックスから取り出すことなく、図５に示す通り、約２００μｍ～５００μｍ四方の面となるよう切り出し、観察面とした。

測定モード：位相差モード

評価対象のドメイン：観察視野内にドメインの全体が映っているものを評価対象のドメインとした。

ドメイン評価に用いる観察視野サイズ：１μｍ四方で観察した場合の評価対象のドメイン数が２１以上の場合は１μｍ四方を、６以上２０以下は２μｍ四方を、５以下は５μｍ四方をドメイン評価に用いる観察視野サイズとした。

観察するドメインの数：ドメイン（ｄ）の数割合、ドメインの平均断面積

およびドメインの平均隣接粒子間距離の算出に用いる評価対象のドメインの観察数は、７０以上とした。１観察視野当たりの評価対象のドメインが７０未満の場合は、その数が７０以上となるまで追加観察した。

画像解析ソフト：SPIP

[0096] ＜ＳＰＭによるドメイン（ｄ）のあり／なしの判定、（ｄ－１）内部の（ｄ－２）の数および全ドメインの合計数に占めるドメイン（ｄ）の数割合の算出方法＞

評価対象の全ドメイン数をSPIPで自動算出し、ドメイン（ｄ）は目視でカウントした。

＜ＳＰＭによるドメイン平均断面積の算出方法＞

それぞれのドメインに対し、SPIPで画像処理してドメイン断面積を自動算出し、その平均値を計算した。

＜ＳＰＭによる隣接粒子間距離の平均の算出方法＞

それぞれのドメインに対し、SPIPで隣接粒子間距離を自動算出し、その平均値を算出した。

[0097] ＜ポリカーボネートオリゴマーの製造＞

５．６質量％の水酸化ナトリウム水溶液に、ビスフェノールＡ（ＢＰＡ）（後から溶解する）に対して２０００ｐｐｍの亜二チオン酸ナトリウムを加えた。これにＢＰＡ濃度が１３．５質量％となるようにＢＰＡを溶解し、ＢＰＡの水酸化ナトリウム水溶液を調製した。このＢＰＡの水酸化ナトリウム水溶液を４０Ｌ／ｈｒ、塩化メチレンを１５Ｌ／ｈｒ、及びホスゲンを４．０ｋｇ／ｈｒの流量で内径６ｍｍ、管長３０ｍの管型反応器に連続的に通した。管型反応器はジャケット部分を有しており、ジャケットに冷却水を通して反応液の温度を４０℃以下に保った。管型反応器を出た反応液を、後退翼を備えた内容積４０Ｌのバッフル付き槽型反応器へ連続的に導入し、ここにさらにＢＰＡの水酸化ナトリウム水溶液を２．８Ｌ／ｈｒ、２５質量％の水酸化ナトリウム水溶液を０．０７Ｌ／ｈｒ、水を１７Ｌ／ｈｒ、１質量％のトリエチルアミン水溶液を０．６４Ｌ／ｈｒの流量で添加して反応を行なっ

た。槽型反応器から溢れ出る反応液を連続的に抜き出し、静置することで水相を分離除去し、塩化メチレン相を採取した。

このようにして得られたポリカーボネートオリゴマーは濃度３４１ｇ／Ｌ、クロロホーメート基濃度０．７１ｍｏｌ／Ｌであった。

[0098] 製造例１

＜ＰＣ－ＰＯＳ共重合体（Ａ－１ａ）＞

以下に記載する（ｉ）～（ｘｉｖ）の値は、表１に示すとおりである。

邪魔板、パドル型攪拌翼及び冷却用ジャケットを備えた５０Ｌ槽型反応器に上記の通り製造したポリカーボネートオリゴマー溶液（ＰＣＯ）（ｉ）Ｌ、塩化メチレン（ＭＣ）（ｉｉ）Ｌおよび、平均鎖長ｎ＝（ｉｉｉ）のアリルフェノール末端変性ポリジメチルシロキサン（ｉｖ）ｇを塩化メチレン（ＭＣ）（ｖ）Ｌに溶解したもの、ならびに、トリエチルアミン（ＴＥＡ）（ｖｉ）ｍＬを仕込み、攪拌下でここに６．４質量％の水酸化ナトリウム水溶液（ＮａＯＨａｑ）（ｖｉｉ）ｇを加え、２０分間ポリカーボネートオリゴマーとアリルフェノール末端変性ＰＤＭＳの反応を行った。

この重合液に、ｐ－ｔｅｒｔ－ブチルフェノール（ＰＴＢＰ）の塩化メチレン溶液（ＰＴＢＰ（ｖｉｉｉ）ｇを塩化メチレン（ＭＣ）（ｉｘ）Ｌに溶解したもの）、ＢＰＡの水酸化ナトリウム水溶液（ＮａＯＨ（ｘ）ｇと亜二チオン酸ナトリウム（$Na_2S_2O_4$）（ｘｉ）ｇとを水（ｘｉｉ）Ｌに溶解した水溶液にＢＰＡ（ｘｉｉｉ）ｇを溶解させたもの）を添加し４０分間重合反応を実施した。

希釈のため塩化メチレン（ＭＣ）（ｘｉｖ）Ｌを加え１０分間攪拌した後、ＰＣ－ＰＯＳを含む有機相と過剰のＢＰＡ及びＮａＯＨを含む水相に分離し、有機相を単離した。

こうして得られたＰＣ－ＰＯＳの塩化メチレン溶液を、その溶液に対して、１５容積％の０．０３ｍｏｌ／Ｌ　ＮａＯＨ水溶液、０．２ｍｏｌ／Ｌ塩酸で順次洗浄し、次いで洗浄後の水相中の電気伝導度が０．０１μＳ／ｍ以下になるまで純水で洗浄を繰り返した。

洗浄により得られたポリカーボネートの塩化メチレン溶液を濃縮・粉砕し、得られたフレークを減圧下１２０℃で乾燥し、ＰＣ－ＰＯＳ共重合体（Ａ１）～（Ａ１７）を得た。得られたフレークのＰＤＭＳ含有率、未反応ＰＤＭＳ量及び粘度平均分子量の測定を行った。

[0099] 製造例２

＜ＰＣ－ＰＯＳ共重合体（Ａ－１ｂ）＞

前記（ｉ）～（ｘｉｖ）の値を表１に記載の通りに変更した以外は、製造例１と同様の方法で製造と測定を行った。

[0100] [表1]

表1

	製造例1	製造例2
PC-POS (A)	A-1a	A-1b
(i) PCO (L)	11	11
(ii) MC (L)	24.5	24.5
(iii) PDMS鎖長(n)	61	88
(iv) PDMS仕込み量(g)	1800	1400
(v) MC (L)	2.0	2.0
(vi) TEA (mL)	6.2	6.2
(vii) NaOHaq (g)	1405	937
(viii) PTBP (g)	107.6	107.6
(ix) MC (L)	0.5	0.5
(x) NaOH (g)	412	412
(xi) $Na_2S_2O_4$ (g)	1.5	1.5
(xii) 水 (L)	6.0	6.0
(xiii) BPA (g)	766	766
(xiv) MC (L)	0	0
PDMS含有率(wt%)	30	25
未反応PDMS量 (ppm)	≦150	≦150
Mv	17700	17700

[0101] ＜ＰＣ－ＰＯＳ共重合体（Ａ－２）＞

ＰＣ－ＰＯＳ共重合体Ａ－２：「ＦＧ１７００」［ＰＣ－ＰＯＳ共重合体、ポリオルガノシロキサンブロック鎖長８８、ポリオルガノシロキサン含有量６質量％、粘度平均分子量Ｍｖ１７，７００］

＜芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）＞

芳香族ポリカーボネート系樹脂Ｂ－１：「ＦＮ２５００」［粘度平均分子量Ｍｖ２３，５００］

芳香族ポリカーボネート系樹脂Ｂ－２：「ＦＮ２２００」［粘度平均分子

量Ｍｖ２１，３００］

芳香族ポリカーボネート系樹脂Ｂ－３：「ＦＮ１９００」［粘度平均分子量Ｍｖ１９，３００］

芳香族ポリカーボネート系樹脂Ｂ－４：「ＦＮ１７００」［粘度平均分子量Ｍｖ１７，７００］

[0102] ＜無機充填剤（Ｃ）＞

酸化チタン：「ＣＲ６３」［シリカ・アルミナ１％及びジメチルシリコーン０．５％で表面処理した二酸化チタン，平均粒子径：０．２１μｍ，石原産業（株）製］］

タルク：「ＦＨ－１０５」［メディアン系（D_{50}）：５μｍ，富士タルク工業（株）製］

ガラス繊維「Ｔ－５１１」［平均繊維長２ｍｍ以上４ｍｍ、平均繊維径１２μｍ以上１４μｍ；アミノシラン及びウレタンによる表面処理品，日本電気硝子（株）製］

＜その他の成分＞

酸化防止剤：「ＩＲＧＡＦＯＳ１６８（商品名）」［トリス（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）ホスファイト、ＢＡＳＦジャパン株式会社製］

[0103] 参考例１～２、実施例１～１６、比較例１～８

製造例１及び２で得られたＰＣ－ＰＯＳ共重合体Ａ１およびＡ２、並びにその他の各成分を表２～４に示す配合割合で混合し、ベント式二軸押出機（東芝機械株式会社製、ＴＥＭ３５Ｂ）に供給し、スクリュー回転数１５０ｒｐｍ、吐出量２０ｋｇ／ｈｒ、樹脂温度２９５～３００℃にて溶融混練し、評価用ペレットサンプルを得た。なお、参考までに、ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）のＳＰＭによる代表画像を図４に示す。

[0104]

[表2]

表2

			参考例1	参考例2	実施例1	実施例2	比較例1	実施例3	実施例4	比較例2	実施例5	実施例6
A-1	A-1a(製造例1)	質量部	8		4			6			8	
	A-2b(製造例2)	質量部		9.6		4.8			7.2			24
A-2	FG1700	質量部					20			30		
B	B-1(FN2500)	質量部										
	B-2(FN2200)	質量部			20		20	20		20	20	
	B-3(FN1900)	質量部				45			45			46
	B-4(FN1700)	質量部	92	90.4	76	50.2	60	74	47.8	50	72	30
C	CR63 (TiO2)	質量部			2	2	2	2	2	2	2	2
	FH-105 (Talc)	質量部										
	T-511 (GF)	質量部										
その他	Irgafos 168	質量部	0.05	0.05	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
PC樹脂(S)中のポリオルガノシロキサンブロック含有量		質量%	2.4	2.4	1.2	1.2	1.2	1.8	1.8	1.8	2.4	6
ポリカーボネート系樹脂(S)の粘度平均分子量(Mv)		–	17700	17700	18400	18400	18400	18400	18400	18400	18400	18400
Q値		×0.01ml/sec	13	13	11	12	11	11	11	12	11	11
Izod衝撃強度(23℃)		kJ/m^2	73	74	73	75	78	73	76	79	72	70
Izod衝撃強度(0℃)		kJ/m^2	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
Izod衝撃強度(-10℃)		kJ/m^2	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
Izod衝撃強度(-20℃)		kJ/m^2	–	–	64	65	70	64	65	69	63	–
Izod衝撃強度(-30℃)		kJ/m^2	–	–	61	55	29	61	57	62	60	56
Izod衝撃強度(-40℃)		kJ/m^2	54	53	59	49	23	57	53	28	58	49
曲げ弾性率		MPa	–	–	2300	2200	2300	2200	2200	2200	2100	2000
荷重たわみ温度		℃	128	128	129	129	129	129	129	129	128	126
白色度指数(W)		–	–	–	69	70	69	69	69	69	69	70

[0105]

[表3]

表3

			実施例7	比較例3	実施例8	実施例9	比較例4	実施例10
A-1	A-1a(製造例1)	質量部	15.7		15.2			14.4
	A-2b(製造例2)	質量部				18.2		
A-2	FG1700	質量部		78.4			76	
B	B-1(FN2500)	質量部						
	B-2(FN2200)	質量部	19.6	19.6	19		19	18
	B-3(FN1900)	質量部				43		
	B-4(FN1700)	質量部	62.7		60.8	33.8		57.6
C	CR63 (TiO2)	質量部						
	FH-105 (Talc)	質量部	2	2	5	5	5	10
	T-511 (GF)	質量部						
その他	Irgafos 168	質量部	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
PC樹脂(S)中のポリオルガノシロキサンブロック含有量		質量%	4.8	4.8	4.8	4.8	4.8	4.8
ポリカーボネート系樹脂(S)の粘度平均分子量(Mv)		—	18400	18400	18400	18400	18400	18400
Q値		×0.01ml/sec	25	24	34	28	31	51
Izod衝撃強度(23℃)		kJ/m^2	33	15	11	11	9	6
Izod衝撃強度(0℃)		kJ/m^2	16	14	10	10	9	6
Izod衝撃強度(-10℃)		kJ/m^2	-	-	-	-	-	-
Izod衝撃強度(-20℃)		kJ/m^2	-	-	-	-	-	-
Izod衝撃強度(-30℃)		kJ/m^2	-	-	-	-	-	-
Izod衝撃強度(-40℃)		kJ/m^2	-	-	-	-	-	-
曲げ弾性率		MPa	2300	2300	2500		2500	2900
荷重たわみ温度		℃	122	122	122		122	123

[0106]

[表4]

表4

			実施例11	比較例5	実施例12	比較例6	実施例13	実施例14	比較例7	実施例15	実施例16	比較例8
A-1	A-1a(製造例1)	質量部	15.2		14.4		8			13		
	A-2b(製造例2)	質量部						9.6			15.4	
A-2	FG1700	質量部		76		72			40			64
B	B-1(FN2500)	質量部										
	B-2(FN2200)	質量部	19	19	18	18	16	16	16	16	16	16
	B-3(FN1900)	質量部										
	B-4(FN1700)	質量部	60.8		57.6		56	54.4	24	51	48.6	
C	CR63 (TiO2)	質量部										
	FH-105 (Talc)	質量部										
	T-511 (GF)	質量部	5	5	10	10	20	20	20	20	20	20
その他	Irgafos 168	質量部	0.095	0.095	0.09	0.09	0.08	0.08	0.08	0.08	0.08	0.08
PC樹脂(S)中のポリオルガノシロキサンブロック含有量		質量%	4.8	4.8	4.8	4.8	3	3	3	4.8	4.8	4.8
ポリカーボネート系樹脂(S)の粘度平均分子量(Mv)		—	18400	18400	18400	18400	18400	18400	18400	18400	18400	18400
Q値		×0.01ml/sec	8.6	8.4	7.3	7.4	5.9	6.0	6.2	6.5	7.0	6.1
Izod衝撃強度(23℃)		kJ/m^2	21	20	18	17	19	19	18	20	20	19
Izod衝撃強度(0℃)		kJ/m^2	19	18	17	16	18	18	17	19	19	18
Izod衝撃強度(−10℃)		kJ/m^2	17	16	15	14	17	17	16	18	18	17
Izod衝撃強度(−20℃)		kJ/m^2	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
Izod衝撃強度(−30℃)		kJ/m^2	–	–	–	–	16	16	15	17	17	16
Izod衝撃強度(−40℃)		kJ/m^2	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
曲げ弾性率		MPa	2700	2700	3400	3400	5500	5400	5600	5600	5400	5600
荷重たわみ温度		℃	137	137	141	141	145	145	145	145	145	144

[0107] [評価試験]

＜流動性評価＞（ＭＦＲ）

上記ペレットを用いて、ＪＩＳ Ｋ ７２１０－１：２０１４に準拠し、３００℃、１．２ｋｇの荷重下にて、直径２．０９５±０．００５ｍｍ、長さ

８．０００±０．０２５ｍｍのダイから流出する溶融樹脂量（ｇ／１０分）を測定した。

＜Ｑ値（流れ値）〔単位；１０$^{-2}$ｍＬ／秒〕＞

上記ペレットを用いて、ＪＩＳ Ｋ ７２１０－１：２０１４：付属書ＪＡに準拠し、高架式フローテスターを用いて、２８０℃、１６０ｋｇｆの圧力下にて、直径１．００ｍｍ、長さ１０．００ｍｍのノズルより流出する溶融樹脂量（ｍＬ／ｓｅｃ）を測定した。Ｑ値は単位時間当たりの流出量を表しており、数値が高いほど、流動性が良いことを示す。

＜耐衝撃性＞

上記得られたペレットを１２０℃で８時間乾燥させた後、射出成形機（日精樹脂工業株式会社製、ＮＥＸ１１０、スクリュー径３６ｍｍφ）を用いて、シリンダ温度２８０℃、金型温度８０℃にて、射出成形してＩＺＯＤ試験片（長さ６３．５ｍｍ、幅１２．７ｍｍ，厚さ３．２ｍｍ）を作成した。この試験片に後加工でノッチ（ｒ＝０．２５ｍｍ±０．０５ｍｍ）を付与した試験片を用いて、ＡＳＴＭ規格Ｄ－２５６に準拠して、－４０℃、－３０℃、－２０℃、－１０℃、０℃及び２３℃におけるノッチ付きアイゾット衝撃強度を測定した。

[0108] ＜曲げ弾性率（単位：ＭＰａ）＞

上記得られたペレットを１２０℃で８時間乾燥させた後、射出成形機（日精樹脂工業株式会社製、ＮＥＸ１１０、スクリュー径３６ｍｍφ）を用いて、シリンダ温度２８０℃、金型温度８０℃にて、射出成形して試験片（長さ１００ｍｍ、幅１０ｍｍ、厚み４ｍｍ）を得た。この試験片を用い、ＡＳＴＭ規格Ｄ－７９０に準拠して、支点間距離６０ｍｍ、支点先端Ｒ＝２ｍｍ、圧子先端Ｒ＝５ｍｍ、温度２３℃で測定した。

[0109] ＜荷重たわみ温度（単位；℃）＞

上記得られたペレットを１２０℃で８時間乾燥させた後、射出成形機（日精樹脂工業株式会社製、ＮＥＸ１１０、スクリュー径３６ｍｍφ）を用いて、シリンダ温度２８０℃、金型温度８０℃にて、射出成形して試験片（長さ

１２７ｍｍ、幅１２．７ｍｍ、厚み３．２ｍｍ）を得た。この試験片を用い、ＡＳＴＭ規格Ｄ－６４８に準拠して、昇温速度１２０℃／ｈ、支点間距離１００ｍｍ、１．８ＭＰａの荷重を掛けて、エッジワイズによる試験片のたわみが０．２６ｍｍに達した時の温度を記録した。

[0110] ＜白色度指数＞

乾燥した評価用ペレットサンプルを、射出成形機（株式会社ニイガタマシンテクノ製「ＭＤ５０ＸＢ」、スクリュー径３０ｍｍφ）を用いて射出成形し、全光線透過率及びＨａｚｅの測定を行うための試験片（３段プレート９０ｍｍ×５０ｍｍ、３ｍｍ厚部分４５ｍｍ×５０ｍｍ、２ｍｍ厚部分２２．５ｍｍ×５０ｍｍ、１ｍｍ厚部分２２．５ｍｍ×５０ｍｍ）を作製した。

作製した試験片の３ｍｍ厚部分を用いて、ＪＩＳ　Ｚ　８７１５－１９９９に準拠して、白色度指数を測定し、５枚のプレートの測定値の平均値を求めた。測定装置としては、分光光度計GretagMacbeth 社製 「Color-Eye 7000A」を用い、光学系はＤ／８°（拡散照明・８°方向受光）、Ｄ６５光源、１０度視野とした。

産業上の利用可能性

[0111] 本発明で得られるポリカーボネート系樹脂組成物は耐衝撃性に優れ、電気・電子機器用部品の筐体等、自動車及び建材の部品等として好適に用いることができる。

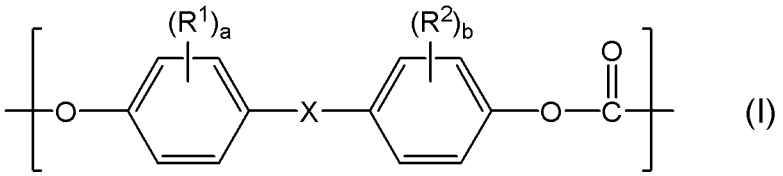
請求の範囲

[請求項1] 下記要件（１）及び（２）を満たすポリカーボネート系樹脂（Ｓ）に対して、無機充填材（Ｃ）を配合してなり、前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）及び前記充填材（Ｃ）の合計量１００質量％に占める前記充填材（Ｃ）の割合が０．１質量％以上５０質量％以下であることを特徴とする、ポリカーボネート系樹脂組成物：

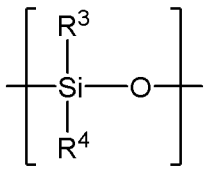
（１）下記一般式（Ｉ）で表される繰り返し単位からなるポリカーボネートブロック（Ａ－１）及び下記一般式（ＩＩ）で表される繰り返し単位を含むポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）を含むポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）、並びに前記ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）以外の芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）を含む。

（２）前記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）を主成分とするマトリックス中に、前記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）を含むドメイン（ｄ－１）が存在し、前記ドメイン（ｄ－１）の内部に、前記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）に由来するブロックおよび前記ポリカーボネートブロック（Ａ－１）から選ばれる少なくとも１つを含むドメイン（ｄ－２）が存在する構造を有する。

[化1]



(I)



(II)

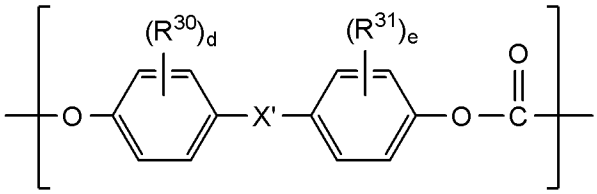
［式中、Ｒ[1]及びＲ[2]はそれぞれ独立に、ハロゲン原子、炭素数１～６のアルキル基又は炭素数１～６のアルコキシ基を示す。Ｘは、単結合、炭素数１～８のアルキレン基、炭素数２～８のアルキリデン基、炭

素数５～１５のシクロアルキレン基、炭素数５～１５のシクロアルキリデン基、フルオレンジイル基、炭素数７～１５のアリールアルキレン基、炭素数７～１５のアリールアルキリデン基、－Ｓ－、－ＳＯ－、－SO_2－、－Ｏ－又は－ＣＯ－を示す。R^3及びR^4はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基又は炭素数６～１２のアリール基を示す。ａ及びｂは、それぞれ独立に０～４の整数を示す。]

[請求項2] 前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）における前記ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）と、前記芳香族ポリカーボネート（Ｂ）との質量比率（Ａ）／（Ｂ）が、０．１／９９．９～９９．９／０．１である、請求項１に記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項3] 前記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）は、主鎖が下記一般式（ＩＩＩ）で表される繰り返し単位からなるポリカーボネートブロックを含む、請求項１または２に記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[化2]



(III)

[式中、R^{30}及びR^{31}は、それぞれ独立に、ハロゲン原子、炭素数１～６のアルキル基又は炭素数１～６のアルコキシ基を示す。Ｘ’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５～１５のシクロアルキレン基、炭素数５～１５のシクロアルキリデン基、－Ｓ－、－ＳＯ－、－SO_2－、－Ｏ－又は－ＣＯ－を示す。ｄ及びｅは、それぞれ独立に０～４の整数を示す。]

[請求項4] 前記ドメイン（ｄ－１）が前記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）から主に形成されている、請求項１～３のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項5] 前記ドメイン（ｄ－２）が前記芳香族ポリカーボネート系樹脂（Ｂ）に由来するブロックおよび前記ポリカーボネートブロック（Ａ－１）から選ばれる少なくとも１つから主に形成されている、請求項１～４のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項6] 前記ドメイン（ｄ－１）内部に前記ドメイン（ｄ－２）が１つのみ存在する、請求項１～５のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項7] 前記ドメイン（ｄ－１）内部に前記ドメイン（ｄ－２）が２以上存在する、請求項１～５のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項8] 前記ドメイン（ｄ－１）内部に前記ドメイン（ｄ－２）が存在するドメイン（ｄ）と、前記ドメイン（ｄ－１）のみからなるドメイン（ｄ’）との合計数に占める前記ドメイン（ｄ）の数割合が２％以上１００％以下である、請求項１～７のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項9] 前記ドメイン（ｄ）および前記ドメイン（ｄ’）を合わせた、全ドメインの平均断面積が２００ｎｍ^{2}以上である、請求項８に記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項10] 前記ドメイン（ｄ）および前記ドメイン（ｄ’）を合わせた、全ドメインの平均断面積が２０，０００ｎｍ^{2}以下である、請求項８または９に記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項11] 前記ドメイン（ｄ）および前記ドメイン（ｄ’）を合わせた、全ドメインの隣接粒子間距離の平均が５００ｎｍ以下である、請求項８～１０のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項12] 前記ドメイン（ｄ）および前記ドメイン（ｄ’）を合わせた、全ドメインの隣接粒子間距離の平均が５０ｎｍ以上である、請求項８～１１のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項13] 前記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）の平均鎖長が３０

以上５００以下である、請求項１～１２のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項14] 前記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）の平均鎖長が５５以上５００以下である、請求項１～１３のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項15] 前記ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）中の前記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）の含有率が１０質量％以上７０質量％以下である、請求項１～１４のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項16] 前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）中の前記ポリオルガノシロキサンブロック（Ａ－２）の含有率が０．１質量％以上１０質量％以下である、請求項１～１５のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項17] 前記ポリカーボネート－ポリオルガノシロキサン共重合体（Ａ）の粘度平均分子量（Ｍｖ）が９，０００以上５０，０００以下である、請求項１～１６のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項18] 前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）の粘度平均分子量（Ｍｖ）が９，０００以上５０，０００以下である、請求項１～１７のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項19] 前記無機充填材（Ｃ）が、酸化チタン、タルク及びガラスファイバーから選ばれる少なくとも１種である、請求項１～１８のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項20] 前記無機充填材（Ｃ）が酸化チタンであり、前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）１００質量部に対する酸化チタンの割合が０．５質量部以上５質量部以下である、請求項１～１９のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項21] 前記無機充填剤（Ｃ）がタルクであり、前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）及び前記タルクの合計量１００質量％に占めるタルクの割合

が０．５質量％以上３０質量％以下である、請求項１～２０のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

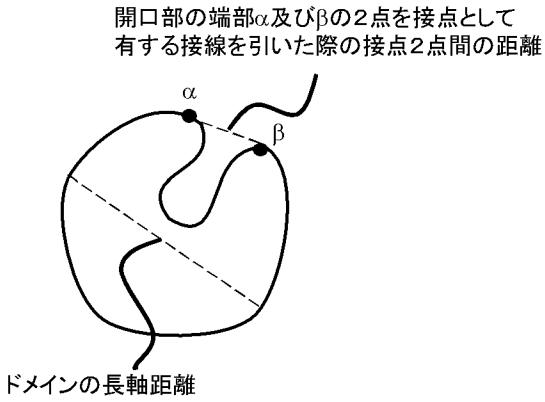
[請求項22] 前記無機充填剤（Ｃ）がガラスファイバーであり、前記ポリカーボネート系樹脂（Ｓ）及び前記ガラスファイバーの合計量１００質量％に占めるガラスファイバーの割合が１質量％以上５０質量％以下である、請求項１～２０のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[請求項23] 請求項１～２２のいずれかに記載のポリカーボネート系樹脂組成物を成形してなる成形品。

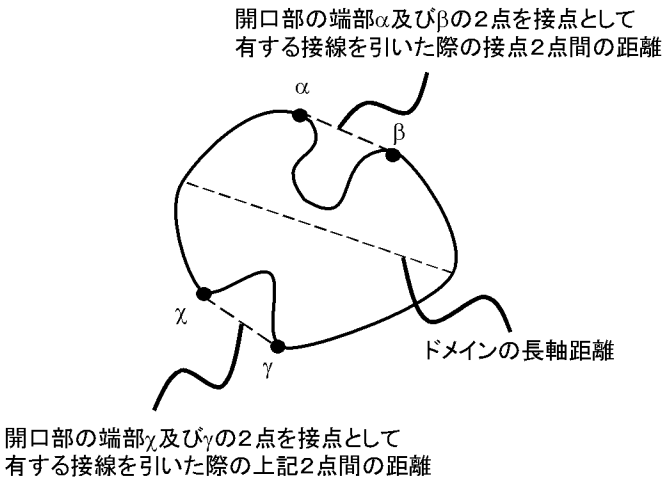
[請求項24] 電気及び電子機器用筐体である、請求項２３に記載の成形品。

[請求項25] 自動車及び建材の部品である、請求項２３に記載の成形品。

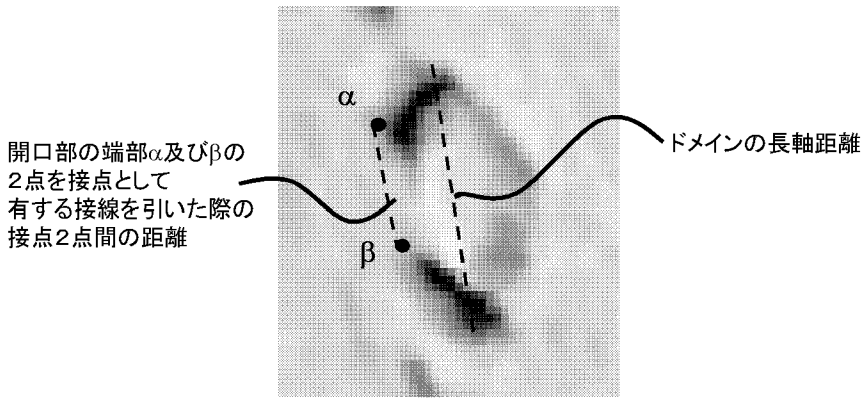
[図1]


開口部の端部α及びβの２点を接点として
有する接線を引いた際の接点２点間の距離
α
β
ドメインの長軸距離

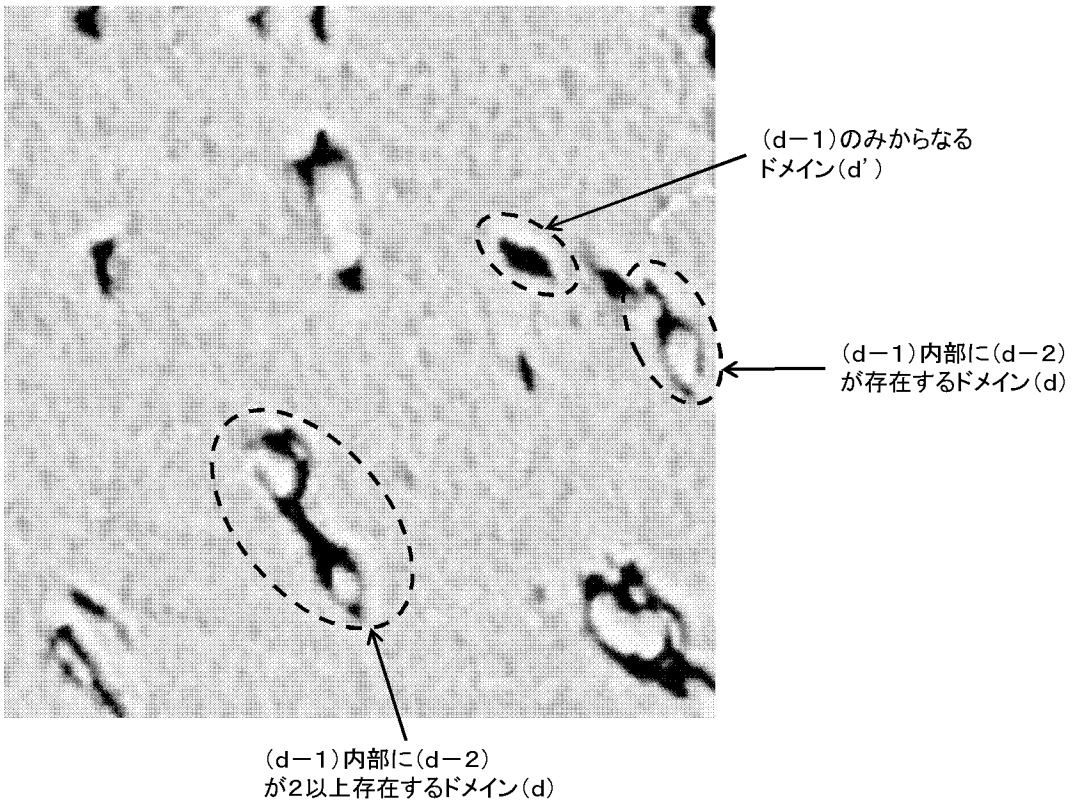
[図2]


開口部の端部α及びβの２点を接点として
有する接線を引いた際の接点２点間の距離
α
β
χ
γ
ドメインの長軸距離
開口部の端部χ及びγの２点を接点として
有する接線を引いた際の上記２点間の距離

[図3]


開口部の端部α及びβの
２点を接点として
有する接線を引いた際の
接点２点間の距離
α
β
ドメインの長軸距離

[図4]


（d－1）のみからなる
ドメイン（d’）
（d－1）内部に（d－2）
が存在するドメイン（d）
（d－1）内部に（d－2）
が2以上存在するドメイン（d）

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2018/007885

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl. C08L69/00(2006.01)i, C08K3/22(2006.01)i, C08K3/34(2006.01)i, C08K7/20(2006.01)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)
Int.Cl. C08L69/00, C08K3/22, C08K3/34, C08K7/20

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

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2018
Registered utility model specifications of Japan	1996-2018
Published registered utility model applications of Japan	1994-2018

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 7-216080 A (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD.) 15 August 1995, claims, paragraphs [0036], [0041], examples, paragraph [0061] (Family: none)	1-25 25
X Y	JP 2007-509208 A (GENERAL ELECTRIC CO.) 12 April 2007, claims, paragraphs [0009], [0017], [0023]-[0029], [0040], examples & US 2005/0085580 A1, claims, paragraphs [0021], [0029], [0035]-[0041], [0052], examples & EP 1675910 A1 & CN 1890320 A & TW 200526739 A	1-24 25

☒ 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	Date of mailing of the international search report
07 May 2018 (07.05.2018)	22 May 2018 (22.05.2018)

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2018/007885

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2009-526898 A (SABIC INNOVATIVE PLASTICS IP B.V.) 23 July 2009, claims, paragraphs [0011], [0084]-[0099], [0108], [0112], [0118], [0145], [0147], [0165]-[0167], examples & US 2007/0191518 A1, claims, paragraphs [0011], [0075]-[0080], [0085], [0089], [0102], [0122], [0123], [0125], [0141]-[0143], examples & EP 1984472 A1 & KR 10-2008-0093039 A & CN 101384684 A	1-25 25
X Y	JP 2013-501103 A (SABIC INNOVATIVE PLASTICS IP B.V.) 10 January 2013, claims, paragraphs [0033]-[0040], [0060], [0061], [0087], [0095], examples & US 2011/0028615 A1, paragraphs [0034]-[0041], [0061], [0062], [0088], [0096], examples & EP 2459647 A1 & CN 102471569 A & KR 10-2012-0089436 A	1-25 25
A	JP 8-176427 A (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD.) 09 July 1996, entire text (Family: none)	1-25
A	JP 2005-528509 A (GENERAL ELECTRIC CO.) 22 September 2005, entire text & US 2003/0227002 A1, entire text & EP 1516034 A1 & CN 1659254 A & TW 200401797 A	1-25
A	JP 2011-122048 A (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 23 June 2011, entire text & US 2012/0283393 A1, entire text & EP 2511321 A1 & CN 102652149 A & KR 10-2012-0098769 A & TW 201129606 A	1-25
A	WO 2011/155490 A1 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 15 December 2011, entire text & US 2013/0082222 A1, entire text & EP 2581413 A1 & CN 102933657 A & KR 10-2013-0111213 A & TW 201202340 A	1-25
A	JP 2012-246390 A (TEIJIN CHEMICALS LTD.) 13 December 2012, entire text, all drawings (Family: none)	1-25
A	WO 2017/26325 A1 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 16 February 2017, entire text & TW 201714926 A	1-25
P, A	WO 2017/34039 A1 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) 02 March 2017, entire text, all drawings & TW 201714956 A	1-25

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１８／００７８８５

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08L69/00(2006.01)i, C08K3/22(2006.01)i, C08K3/34(2006.01)i, C08K7/20(2006.01)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（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08L69/00, C08K3/22, C08K3/34, C08K7/20

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	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１８年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１８年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１８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）

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
X Y	JP 7-216080 A（出光石油化学株式会社）1995.08.15, 特許請求の範囲, ［００３６］, ［００４１］, 実施例, ［００６１］（ファミリーなし）	1-25 25
X Y	JP 2007-509208 A（ゼネラル・エレクトリック・カンパニイ）2007.04.12, 特許請求の範囲, ［０００９］, ［００１７］, ［００２３］～［００２９］, ［００４０］, 実施例 & US 2005/0085580 A1, 特許請求の範囲, [0021], [0029], [0035]-[0041], [0052], 実施例 & EP 1675910 A1 & CN 1890320 A & TW 200526739 A	1-24 25

☑　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	国際調査報告の発送日
０７．０５．２０１８	２２．０５．２０１８

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｊ　９１２１
藤井　勲
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４５７

Ｃ（続き）．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X Y	JP 2009-526898 A（サビック・イノベーティブ・プラスチックス・アイビー・ベスローテン・フェンノートシャップ）2009.07.23，特許請求の範囲，［００１１］，［００８４］～［００９９］，［０１０８］，［０１１２］，［０１１８］，［０１４５］，［０１４７］，［０１６５］～［０１６７］，実施例 & US 2007/0191518 A1，特許請求の範囲，[0011]，[0075]-[0080]，[0085]，[0089]，[0102]，[0122]，[0123]，[0125]，[0141]-[0143]，実施例 & EP 1984472 A1 & KR 10-2008-0093039 A & CN 101384684 A	1-25 25
X Y	JP 2013-501103 A（サビック・イノベーティブ・プラスチックス・アイビー・ベスローテン・フェンノートシャップ）2013.01.10，特許請求の範囲，［００３３］～［００４０］，［００６０］，［００６１］，［００８７］，［００９５］，実施例 & US 2011/0028615 A1，[0034]-[0041]，[0061]，[0062]，[0088]，[0096]，実施例 & EP 2459647 A1 & CN 102471569 A & KR 10-2012-0089436 A	1-25 25
A	JP 8-176427 A（出光石油化学株式会社）1996.07.09，全文（ファミリーなし）	1-25
A	JP 2005-528509 A（ゼネラル・エレクトリック・カンパニイ）2005.09.22，全文 & US 2003/0227002 A1，全文 & EP 1516034 A1 & CN 1659254 A & TW 200401797 A	1-25
A	JP 2011-122048 A（出光興産株式会社）2011.06.23，全文 & US 2012/0283393 A1，全文 & EP 2511321 A1 & CN 102652149 A & KR 10-2012-0098769 A & TW 201129606 A	1-25
A	WO 2011/155490 A1（出光興産株式会社）2011.12.15，全文 & US 2013/0082222 A1，全文 & EP 2581413 A1 & CN 102933657 A & KR 10-2013-0111213 A & TW 201202340 A	1-25
A	JP 2012-246390 A（帝人化成株式会社）2012.12.13，全文全図（ファミリーなし）	1-25
A	WO 2017/26325 A1（出光興産株式会社）2017.02.16，全文 & TW 201714926 A	1-25
Ｐ，Ａ	WO 2017/34039 A1（出光興産株式会社）2017.03.02，全文全図 & TW 201714956 A	1-25