

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2017-197736  
(P2017-197736A)

(43) 公開日 平成29年11月2日(2017.11.2)

(51) Int.Cl.		F I	テーマコード (参考)	
<b>CO8L</b>	<b>67/02</b>	<b>(2006.01)</b>	CO8L 67/02	3J048
<b>CO8K</b>	<b>5/07</b>	<b>(2006.01)</b>	CO8K 5/07	4F071
<b>CO8K</b>	<b>7/00</b>	<b>(2006.01)</b>	CO8K 7/00	4J002
<b>CO8K</b>	<b>3/34</b>	<b>(2006.01)</b>	CO8K 3/34	
<b>CO8J</b>	<b>5/00</b>	<b>(2006.01)</b>	CO8J 5/00	CFD

審査請求 未請求 請求項の数 15 O L (全 26 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2017-86283 (P2017-86283)	(71) 出願人	000000918 花王株式会社 東京都中央区日本橋茅場町1丁目14番1 〇号
(22) 出願日	平成29年4月25日 (2017.4.25)	(74) 代理人	100095832 弁理士 細田 芳徳
(31) 優先権主張番号	特願2016-88166 (P2016-88166)	(72) 発明者	小田 義朗 和歌山市湊1334番地 花王株式会社研 究所内
(32) 優先日	平成28年4月26日 (2016.4.26)	(72) 発明者	長谷川 嘉則 和歌山市湊1334番地 花王株式会社研 究所内
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)	(72) 発明者	佐藤 奎都 和歌山市湊1334番地 花王株式会社研 究所内

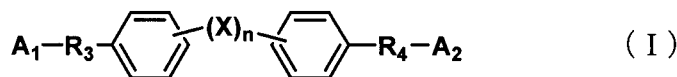
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 制振材料用のポリエステル樹脂組成物

(57) 【要約】

【課題】 高温での振動減衰特性及び耐熱性に優れる制振材料となり得る制振材料用のポリエステル樹脂組成物、及び該ポリエステル樹脂組成物を含む制振材料に関すること。

【解決手段】 ジカルボン酸成分とジオール成分とから構成される熱可塑性ポリエステル樹脂(A)、一般式(I)で表される可塑剤(B)、及び無機充填剤(C)を含有してなる制振材料用のポリエステル樹脂組成物。



(式中、A<sub>1</sub>及びA<sub>2</sub>は、それぞれ独立して、炭素数4以上18以下のアルキル基、炭素数7以上18以下のアラルキル基、又はそれらの(ポリ)オキシアルキレン付加物とのモノ又はジエーテルを示し、nは0又は1であり、Xは、-SO<sub>2</sub>-、-O-、-CR<sub>1</sub>R<sub>2</sub>-、-S-のいずれかを示し、ここでR<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は、それぞれ独立して、H又は炭素数4以下のアルキル基であり、R<sub>3</sub>及びR<sub>4</sub>は、それぞれ独立して、-O-、-CO-、-CH<sub>2</sub>-のいずれかを示し、但し、R<sub>3</sub>及びR<sub>4</sub>は同時に-O-である場合はない)

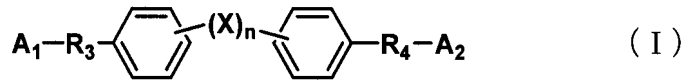
【選択図】 なし

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

ジカルボン酸成分とジオール成分とから構成される熱可塑性ポリエステル樹脂（A）、一般式（I）で表される可塑剤（B）、及び無機充填剤（C）を含有してなる制振材料用のポリエステル樹脂組成物。

## 【化 1】



10

（式中、 $A_1$  及び  $A_2$  は、それぞれ独立して、炭素数 4 以上 18 以下のアルキル基、炭素数 7 以上 18 以下のアラルキル基、又はそれらの（ポリ）オキシアルキレン付加物とのモノ又はジエーテルを示し、 $n$  は 0 又は 1 であり、 $X$  は、 $-SO_2-$ 、 $-O-$ 、 $-CR_1R_2-$ 、 $-S-$  のいずれかを示し、ここで  $R_1$  及び  $R_2$  は、それぞれ独立して、 $H$  又は炭素数 4 以下のアルキル基であり、 $R_3$  及び  $R_4$  は、それぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-CO-$ 、 $-CH_2-$  のいずれかを示し、但し、 $R_3$  及び  $R_4$  は同時に  $-O-$  である場合はない）

## 【請求項 2】

熱可塑性ポリエステル樹脂（A）におけるジカルボン酸成分が、脂肪族ジカルボン酸、脂環式ジカルボン酸、芳香族ジカルボン酸、及びフラン構造を有するジカルボン酸からなる群より選ばれる 1 種又は 2 種以上を含む請求項 1 記載のポリエステル樹脂組成物。

20

## 【請求項 3】

熱可塑性ポリエステル樹脂（A）におけるジオール成分が、脂肪族ジオール、脂環式ジオール、芳香族ジオール、及びフラン構造を有するジオールからなる群より選ばれる 1 種又は 2 種以上を含む請求項 1 又は 2 記載のポリエステル樹脂組成物。

## 【請求項 4】

一般式（I）におけるアルキル基が直鎖又は分岐鎖のアルキル基であって、該アルキル基の炭素数が 6 以上 15 以下である、請求項 1～3 のいずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

## 【請求項 5】

一般式（I）におけるアラルキル基の炭素数が 8 以上 15 以下である、請求項 1～4 のいずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

30

## 【請求項 6】

一般式（I）における（ポリ）オキシアルキレン付加物が、炭素数 2～10 のアルキレン基を有する（ポリ）オキシアルキレン付加物である、請求項 1～5 のいずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

## 【請求項 7】

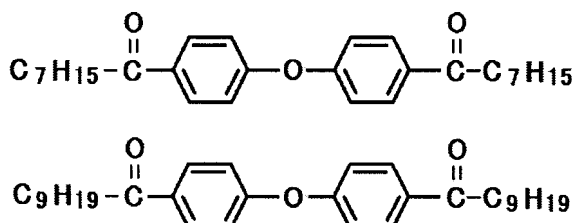
一般式（I）における  $X$  が、 $-SO_2-$  又は  $-O-$  である、請求項 1～6 のいずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

## 【請求項 8】

一般式（I）で表される可塑剤（B）が以下の化合物である、請求項 1～7 のいずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

40

## 【化 2】



## 【請求項 9】

50

ポリエステル樹脂組成物に含有される全ての可塑剤中、一般式（I）で表される可塑剤（B）の含有量が50質量%以上である、請求項1～8のいずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

【請求項10】

無機充填剤（C）が板状充填剤である請求項1～9いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

【請求項11】

無機充填剤（C）がマイカである請求項1～10いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

【請求項12】

無機充填剤（C）の含有量が、熱可塑性ポリエステル樹脂（A）100質量部に対して、10質量部以上80質量部以下である、請求項1～11のいずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

【請求項13】

成分（B）と無機充填剤（C）の質量比（成分（B）/無機充填剤（C））が、10/90～60/40である、請求項1～12のいずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

【請求項14】

請求項1～13いずれか記載のポリエステル樹脂組成物を含む制振材料。

【請求項15】

以下の工程を含む、部品又は筐体の製造方法。

工程（1）：熱可塑性ポリエステル樹脂（A）、一般式（I）で表される可塑剤（B）、及び無機充填剤（C）を含有するポリエステル樹脂組成物を溶融混練して、ポリエステル樹脂組成物の溶融混練物を調製する工程

工程（2）：工程（1）で得られたポリエステル樹脂組成物の溶融混練物を金型内に射出成形する工程

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、制振材料用のポリエステル樹脂組成物に関する。更に詳しくは、音響機器、電気製品、乗物、建築物、産業用機器等において制振材料として用いられるポリエステル樹脂組成物、及び該ポリエステル樹脂組成物を含む制振材料に関する。

【背景技術】

【0002】

近年、各種機器の振動対策が要求されるようになっており、特に、自動車、家電製品、精密機器などの分野において必要とされている。一般的に、制振性の高い材料としては、金属板とゴム、アスファルト等の振動吸収素材を貼り合わせた材料や、あるいは金属板で振動吸収素材を挟み込んだ制振鋼板のような複合型材料が挙げられる。これらの制振材料は高剛性の金属板で形を保持し、振動吸収素材で振動を吸収する。また金属のみでも、双晶や強磁性を利用して運動エネルギーを熱エネルギーに転化させ振動を吸収する合金型材料が挙げられる。ただし複合型材料は異なった素材を貼り合わせるために成形加工性に制限があり、かつ金属鋼板を用いているため、製品自体が重くなる問題があった。また合金型材料も金属のみを用いているため重く、さらに制振性能としては不十分であった。

【0003】

このような従来技術に対して、振動抑制機能を有し、他の一般的物性も兼ね備えた機能性樹脂組成物の開発が行なわれている。

【0004】

例えば、特許文献1には、結晶性熱可塑性ポリエステル樹脂を主体とし、これにポリエステルエラストマー及び熱可塑性ポリウレタンから選ばれる特定の重合体と更に特定の形状を有するガラス繊維とを配合することによって、振動減衰性に優れ、かつ韌性に優れた材料が得られることが開示されている。また、特許文献2には、低環境負荷のポリ乳酸樹

10

20

30

40

50

脂を用いた制振材料として、特定のメルトフローレートを有するポリ乳酸樹脂に対して、スチレン・イソブレンブロック共重合体を特定量含有させることで、得られる成形体が優れた制振性を有することが開示されている。

【0005】

一方で、ポリエステル樹脂の成形材料を得るために、成形性を向上する観点で樹脂組成物の開発が行われている。

【0006】

例えば、特許文献3では、結晶核剤と特定のエーテル化合物を組み合わせることでPETの結晶化速度を向上させ、80金型での射出成形品において高温雰囲気下で保持した際の熱収縮率を抑制している。特許文献4では、ポリエステル樹脂に対して、無機化合物、カルボキシル基の金属塩を有する有機化合物/高分子化合物から選ばれる少なくとも一種の結晶核剤と、特定のビスフェノール類のアルキレンオキシド付加重合物とを配合することで結晶化速度を向上させた成形材料を開示している。

10

【先行技術文献】

【特許文献】

【0007】

【特許文献1】特開平3-263457号公報

【特許文献2】国際公開2014/034636号公報

【特許文献3】特開昭58-93752号公報

【特許文献4】特開昭59-206458号公報

20

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

しかしながら、各種制振材料に代替し得る樹脂組成物として、従来のポリエステル樹脂組成物ではさらなる改良が必要である。即ち、振動の減衰を速くして制振性を向上するのみならず、振動の初期振幅も小さくすることが可能なポリエステル樹脂組成物の開発が望まれている。また、近年の電化製品の筐体などに用いる樹脂については、高温領域での制振性が更に求められている。

【0009】

本発明は、高温での振動減衰特性及び耐熱性に優れる制振材料となり得る制振材料用のポリエステル樹脂組成物、及び該ポリエステル樹脂組成物を含む制振材料に関する。

30

【課題を解決するための手段】

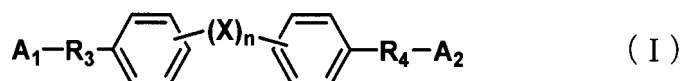
【0010】

本発明は、下記〔1〕～〔3〕に関する。

〔1〕 ジカルボン酸成分とジオール成分とから構成される熱可塑性ポリエステル樹脂(A)、一般式(I)で表される可塑剤(B)、及び無機充填剤(C)を含有してなる制振材料用のポリエステル樹脂組成物。

【0011】

【化1】



40

【0012】

(式中、 $A_1$ 及び $A_2$ は、それぞれ独立して、炭素数4以上18以下のアルキル基、炭素数7以上18以下のアラルキル基、又はそれらの(ポリ)オキシアルキレン付加物とのモノ又はジエーテルを示し、 $n$ は0又は1であり、 $X$ は、 $-SO_2-$ 、 $-O-$ 、 $-CR_1R_2-$ 、 $-S-$ のいずれかを示し、ここで $R_1$ 及び $R_2$ は、それぞれ独立して、 $H$ 又は炭素数4以下のアルキル基であり、 $R_3$ 及び $R_4$ は、それぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-CO-$ 、 $-CH_2-$ のいずれかを示し、但し、 $R_3$ 及び $R_4$ は同時に $-O-$ である場合はない)

50

〔 2 〕 前記〔 1 〕記載のポリエステル樹脂組成物を含む制振材料。

〔 3 〕 以下の工程を含む、部品又は筐体の製造方法。

工程（ 1 ）：熱可塑性ポリエステル樹脂（ A ）、一般式（ I ）で表される可塑剤（ B ）、及び無機充填剤（ C ）を含有するポリエステル樹脂組成物を熔融混練して、ポリエステル樹脂組成物の熔融混練物を調製する工程

工程（ 2 ）：工程（ 1 ）で得られたポリエステル樹脂組成物の熔融混練物を金型内に射出成形する工程

【発明の効果】

【 0 0 1 3 】

本発明のポリエステル樹脂組成物は、構造部材として振動時間が短く、また、耐熱性に優れるため、振動や音を発生する製品機器や装置、構造物において、振動や音の発生源周辺の筐体や部品、振動や音が直接または間接的に伝わる成形体などへの使用、あるいは発生源との間に該材料を配置することで、高温下でも、発生した振動を抑制し、その結果として製品・装置性能に関係する余計な振動、あるいは不快な振動や振動音、騒音・ノイズを低減する優れた効果を奏するものである。

【発明を実施するための形態】

【 0 0 1 4 】

本発明の制振材料用のポリエステル樹脂組成物は、ジカルボン酸成分とジオール成分とから構成される熱可塑性ポリエステル樹脂（ A ）に対して、一般式（ I ）で表される可塑剤（ B ）と無機充填剤（ C ）を組み合わせることに特徴を有する。

【 0 0 1 5 】

一般的に樹脂に無機充填剤を添加すると、樹脂組成物全体の弾性率が向上する一方で、損失係数が低下する。この損失係数の低下は、充填剤の添加により、樹脂組成物中の樹脂の割合が減少するため、樹脂部分でのエネルギー損失量が減少することによるものである。そこで、本発明では、かかる系に、無機充填剤の添加に加え、特定の構造式で表されるジフェニル化合物を添加することで、ガラス転移点の低下を抑制しつつ、結晶化を進行させることが可能となることから、高温領域でも樹脂組成物の弾性率を維持しながら、損失係数の低下を抑制することが出来ることを見出した。その詳細なメカニズムは不明なるも、樹脂と特定の化合物とがその構造に基づく良好な親和性により相互作用することで、高分子鎖間の相互作用が緩和されて、分子鎖同士の間隔が広がって分子の運動性が向上するためであると考えられる。また、前記ジフェニル化合物は高温での耐熱性に優れることから、樹脂組成物が高温下に曝されても前記化合物の効果が十分に奏されるものとなる。ただし、これらの推測は、本発明を限定するものではない。なお、本明細書において、高温領域とは 35 ~ 80 程度の温度雰囲気下のことであり、低温領域とは - 20 ~ 10 程度の温度雰囲気下のことである。

【 0 0 1 6 】

〔ポリエステル樹脂組成物〕

〔熱可塑性ポリエステル樹脂（ A ）〕

本発明における熱可塑性ポリエステル樹脂（ A ）は、ジカルボン酸成分とジオール成分とから構成され、ジカルボン酸成分とジオール成分の重縮合の組み合わせにより得ることができる。なお、本明細書において、ジカルボン酸成分とは、ジカルボン酸及びその低級エステル誘導体を含み、これらを総称してジカルボン酸成分とする。

【 0 0 1 7 】

熱可塑性ポリエステル樹脂（ A ）を構成するジカルボン酸成分としては、脂肪族ジカルボン酸、脂環式ジカルボン酸、芳香族ジカルボン酸、フラン環を有するジカルボン酸を用いることができる。具体的には、脂肪族ジカルボン酸としては、総炭素数が 2 ~ 26 の脂肪族ジカルボン酸が好ましく、例えば、マロン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、スベリン酸、セバシン酸、ドデカンジオン酸、ダイマー酸、エイコサンジオン酸、ピメリン酸、アゼライン酸、メチルマロン酸、エチルマロン酸が挙げられる。脂環式ジカルボン酸としては、総炭素数が 5 ~ 26 の脂環式ジカルボン酸が好ましく、例えば、アダマンタ

ンジカルボン酸、ノルボルネンジカルボン酸、シクロヘキサンジカルボン酸、デカリンジカルボン酸が挙げられる。芳香族ジカルボン酸としては、総炭素数が8～26の芳香族ジカルボン酸が好ましく、例えば、テレフタル酸、イソフタル酸、フタル酸、1,4-ナフタレンジカルボン酸、1,5-ナフタレンジカルボン酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、1,8-ナフタレンジカルボン酸、4,4'-ジフェニルジカルボン酸、4,4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸、5-ナトリウムスルホイソフタル酸、フェニルエンダンジカルボン酸、アントラセンジカルボン酸、フェナントレンジカルボン酸、9,9'-ビス(4-カルボキシフェニル)フルオレン酸が挙げられる。フラン環を有するジカルボン酸としては、総炭素数が6～26のフラン環を有するジカルボン酸が好ましく、例えば、2,5-フランジカルボン酸が挙げられる。これらは、単独で又は2種以上組み合わせて用いることができる。なかでも、熱可塑性ポリエステル樹脂(A)のTgを向上し、剛性を向上させる観点から、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、シクロヘキサンジカルボン酸、テレフタル酸、イソフタル酸、フタル酸、1,4-ナフタレンジカルボン酸、1,5-ナフタレンジカルボン酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、1,8-ナフタレンジカルボン酸、及び2,5-フランジカルボン酸からなる群より選ばれる1種又は2種以上が好ましく、コハク酸、シクロヘキサンジカルボン酸、テレフタル酸、イソフタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、及び2,5-フランジカルボン酸からなる群より選ばれる1種又は2種以上がより好ましく、テレフタル酸及び2,5-フランジカルボン酸からなる群より選ばれる1種又は2種が更に好ましい。

10

20

30

40

50

#### 【0018】

熱可塑性ポリエステル樹脂(A)を構成するジオール成分としては、脂肪族ジオール、脂環式ジオール、芳香族ジオール、フラン環を有するジオールを用いることができる。具体的には、脂肪族ジオールとしては、総炭素数が2～26の脂肪族ジオール及びポリアルキレングリコールが好ましく、例えば、エチレングリコール、1,2-プロパンジオール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、1,2-ブタンジオール、1,3-ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコールが挙げられる。脂環式ジオールとしては、総炭素数が3～26の脂環式ジオールが好ましく、例えば、シクロヘキサンジメタノール、水添ビスフェノールA、スピログリコール、イソソルバイドが挙げられる。芳香族ジオールとしては、総炭素数が6～26の芳香族ジオールが好ましく、例えば、ビスフェノールA、ビスフェノールAアルキレンオキシド付加物、1,3-ベンゼンジメタノール、1,4-ベンゼンジメタノール、9,9'-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレン、2,2'-ビス(4'-ヒドロキシエトキシフェニル)プロパンが挙げられる。フラン環を有するジオールとしては、総炭素数が4～26のフラン環を有するジオールが好ましく、例えば、2,5-ジヒドロキシフランが挙げられる。これらは、単独で又は2種以上組み合わせて用いることができる。なかでも、制振性向上の観点から、エチレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、シクロヘキサンジメタノール、水添ビスフェノールA、イソソルバイド、ビスフェノールA、ビスフェノールAアルキレンオキシド付加物、1,3-ベンゼンジメタノール、1,4-ベンゼンジメタノール、及び2,5-ジヒドロキシフランからなる群より選ばれる1種又は2種以上が好ましく、エチレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、シクロヘキサンジメタノール、水添ビスフェノールA、及び2,5-ジヒドロキシフランからなる群より選ばれる1種又は2種以上がより好ましい。

#### 【0019】

また、ジカルボン酸成分とジオール成分の組み合わせとしては、熱可塑性ポリエステル樹脂(A)のTgを向上し、剛性を向上させる観点から、芳香族環、脂環、フラン環をジカルボン酸又はジオールのどちらか一方に又は両方に含むことが好ましい。具体的には、ジカルボン酸成分が芳香族ジカルボン酸、脂環式ジカルボン酸、及びフラン環を有するジカルボン酸からなる群より選ばれる1種又は2種以上である場合には、好ましくは脂肪族

ジオール、芳香族ジオール、脂環式ジオール、及びフラン環を有するジオールからなる群より選ばれる1種又は2種以上との組み合わせであり、より好ましくは脂肪族ジオール及び芳香族ジオールからなる群より選ばれる1種又は2種以上との組み合わせである。ジカルボン酸成分が脂肪族ジカルボン酸である場合には、好ましくは芳香族ジオール、脂環式ジオール、及びフラン環を有するジオールからなる群より選ばれる1種又は2種以上との組み合わせであり、より好ましくは芳香族ジオールの1種又は2種以上との組み合わせである。

#### 【0020】

前記ジカルボン酸成分と前記ジオール成分との重縮合は、特に限定はなく、公知の方法に従って行うことができる。

10

#### 【0021】

得られる熱可塑性ポリエステル樹脂(A)は、射出成形体、フィルム、シート等の押出成形体あるいは熱成形体として加工した場合に、自ら形状支持を可能とする剛性を付与し、成形加工性を向上する観点、及び耐熱性を向上する観点から、ガラス転移温度(Tg)が好ましくは20以上、より好ましくは25以上、更に好ましくは30以上、より更に好ましくは35以上である。また、制振性を向上させる観点から、好ましくは160以下、より好ましくは150以下、更に好ましくは140以下、より更に好ましくは130以下である。ガラス転移温度が前記温度となるようにするには、ポリエステル樹脂の骨格構造をコントロールすることが有効である。例えば、芳香族ジカルボン酸成分や脂環式ジオール成分などの剛直な成分を原料として用いて熱可塑性ポリエステル樹脂を調製すると、ガラス転移温度を高くすることが可能である。なお、本明細書において、樹脂及びエラストマーのガラス転移温度は、後述の実施例に記載の方法に従って測定することができる。

20

#### 【0022】

また、本発明における熱可塑性ポリエステル樹脂(A)は、結晶性を有することが好ましい。一般に樹脂の結晶部と非晶部には弾性率に差があることから、非晶部あるいは結晶部のみで構成される樹脂マトリックスは、均一構造のために、振動に対して大きなひずみが生じることなくエネルギー損失が小さいものである。一方、結晶部と非晶部が混在する樹脂マトリックスは、弾性率が異なる不均一な連続モルフォロジーが形成されることになり、振動が与えられた際には弾性率の低い非晶部において局所的に大きなひずみが生じ、その結果、ひずみに基づくせん断摩擦が発生してエネルギー損失が向上することになる。よって、熱可塑性ポリエステル樹脂は一般に非晶部の割合が多いものであるが、本発明では結晶性を持たせることで、樹脂マトリックスのエネルギー損失をより向上させることが可能になると考えられる。また、本発明では、特定の構造式で表されるジフェニル化合物(B)が分散されているので、非晶部が柔軟化又は前記成分(B)により柔軟性が付与され、より弾性率が低下して前記効果が増大することから損失係数が更に大きくなると推測され、より制振性に優れたポリエステル樹脂組成物を得ることができる。結晶性を有する熱可塑性ポリエステル樹脂を調製する方法としては、ジカルボン酸成分とジオール成分を純度の高いものを用いる方法、側鎖の少ないジカルボン酸成分及びジオール成分を用いる方法が挙げられる。なお、本明細書において、結晶性を有するとは、JIS K 7122 (1999)に準じて、昇温速度20/minで樹脂を25から300まで加熱し、その状態で5分間保持後、次いで25以下となるよう-20/minで冷却したとき、結晶化に伴う発熱ピークが観察される樹脂のことである。より詳しくは、発熱ピークの面積から求められる結晶化エンタルピーHmcが1J/g以上となる樹脂のことをいう。本発明を構成する熱可塑性ポリエステル樹脂(A)は、結晶化エンタルピーHmcが好ましくは5J/g以上、より好ましくは10J/g以上、更に好ましくは15J/g以上、更に好ましくは30J/g以上の樹脂を用いるのがよい。

30

40

#### 【0023】

熱可塑性ポリエステル樹脂(A)の具体例としては、剛性、耐熱性、制振性の観点から、テレフタル酸とエチレングリコールから構成されるポリエチレンテレフタレート(PE

50

T樹脂、Tg：70）、テレフタル酸と1,3-プロパンジオールから構成されるポリトリメチレンテレフタレート（PTT樹脂、Tg：50）、テレフタル酸と1,4-ブタンジオールから構成されるポリブチレンテレフタレート（PBT樹脂、Tg：50）、テレフタル酸と1,4-シクロヘキサジメタノールから構成される1,4-シクロヘキサジメチレンテレフタレート（PCT樹脂、Tg：95）、2,6-ナフタレンジカルボン酸とエチレングリコールから構成されるポリエチレンナフタレート（PEN樹脂、Tg：121）、2,6-ナフタレンジカルボン酸と1,4-ブタンジオールから構成されるポリブチレンナフタレート（PBN樹脂、Tg：78）、2,5-フランジカルボン酸とエチレングリコールから構成されるポリエチレンフラノエート（PEF樹脂、Tg：87）、2,5-フランジカルボン酸と1,4-ブタンジオールから構成されるポリブチレンフラノエート（PBF樹脂、Tg：35）が好ましく、テレフタル酸とエチレングリコールから構成されるポリエチレンテレフタレート、テレフタル酸と1,3-プロパンジオールから構成されるポリトリメチレンテレフタレート、テレフタル酸と1,4-ブタンジオールから構成されるポリブチレンテレフタレート、2,6-ナフタレンジカルボン酸とエチレングリコールから構成されるポリエチレンナフタレート、2,5-フランジカルボン酸とエチレングリコールから構成されるポリエチレンフラノエートがより好ましい。これらは、単独で又は2種以上組み合わせて用いることができる。

10

## 【0024】

熱可塑性ポリエステル樹脂（A）の含有量は、損失係数を向上させる観点から、ポリエステル樹脂組成物中、50質量%以上が好ましく、55質量%以上がより好ましく、60質量%以上が更に好ましい。また、弾性率を向上させる観点から、90質量%以下が好ましく、80質量%以下がより好ましく、75質量%以下が更に好ましく、70質量%以下が更に好ましい。

20

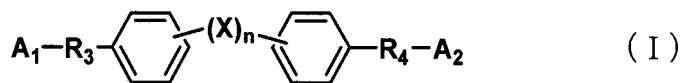
## 【0025】

[可塑剤（B）]

本発明においては、可塑剤（B）として、下記一般式（I）で表される化合物を用いることに大きな特徴を有する。

## 【0026】

【化2】



30

## 【0027】

（式中、 $A_1$ 及び $A_2$ は、それぞれ独立して、炭素数4以上18以下のアルキル基、炭素数7以上18以下のアラルキル基、又はそれらの（ポリ）オキシアルキレン付加物とのモノ又はジエーテルを示し、 $n$ は0又は1であり、 $X$ は、 $-SO_2-$ 、 $-O-$ 、 $-CR_1R_2-$ 、 $-S-$ のいずれかを示し、ここで $R_1$ 及び $R_2$ は、それぞれ独立して、 $H$ 又は炭素数4以下のアルキル基であり、 $R_3$ 及び $R_4$ は、それぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-CO-$ 、 $-CH_2-$ のいずれかを示し、但し、 $R_3$ 及び $R_4$ は同時に $-O-$ である場合はない）

40

## 【0028】

一般式（I）における $A_1$ 及び $A_2$ は、それぞれ独立して、炭素数4以上18以下のアルキル基、炭素数7以上18以下のアラルキル基、又はそれらの（ポリ）オキシアルキレン付加物とのモノ又はジエーテルを示す。

## 【0029】

炭素数4以上18以下のアルキル基は、直鎖であっても分岐鎖であってもよい。アルキル基の炭素数は、4以上18以下であるが、結晶化速度向上の観点から、好ましくは6以上であり、耐ブリード性の観点から、好ましくは15以下、より好ましくは12以下、更に好ましくは10以下である。具体的には、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ウンデシル基、ドデシル基、ヘキサデシル基、

50

オクタデシル基等が例示される。

【0030】

炭素数7以上18以下のアルキル基は、結晶化速度向上の観点から、炭素数が好ましくは8以上であり、また、耐ブリード性の観点から、好ましくは15以下、より好ましくは12以下、更に好ましくは10以下である。具体的には、ベンジル基、フェネチル基、フェニルプロピル基、フェニルペンチル基、フェニルヘキシル基、フェニルヘプチル基、フェニルオクチル基等が例示される。

【0031】

また、前記アルキル基又はアルキル基の(ポリ)オキシアルキレン付加物とのモノ又はジエーテルとは、好ましくは炭素数2~10、より好ましくは炭素数2~6、更に好ましくは2~4のアルキレン基を有する(ポリ)オキシアルキレン付加物とのモノ又はジエーテルが挙げられる。尚、(ポリ)オキシアルキレンとは、オキシアルキレン又はポリオキシアルキレンを意味する。

10

【0032】

一般式(I)におけるnは0又は1である。

【0033】

一般式(I)におけるXは、 $-SO_2-$ 、 $-O-$ 、 $-CR_1R_2-$ 、 $-S-$ のいずれかを示し、好ましくは、 $-SO_2-$ 又は $-O-$ である。ここで $R_1$ 及び $R_2$ は、それぞれ独立して、H又は炭素数4以下のアルキル基である。炭素数4以下のアルキル基としては、直鎖であっても分岐鎖であってもよく、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基が例示される。

20

【0034】

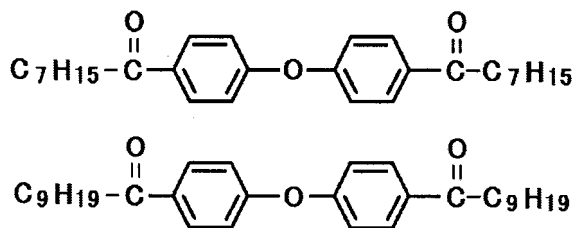
一般式(I)における $R_3$ 及び $R_4$ は、それぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-CO-$ 、 $-CH_2-$ のいずれかを示し、但し、 $R_3$ 及び $R_4$ は同時に $-O-$ である場合はない。

【0035】

一般式(I)で表される化合物の具体例としては、例えば、以下の化合物が挙げられる。

【0036】

【化3】



30

【0037】

前記化合物は、公知の方法に従って調製することができる。また、市販品を用いてもよい。

40

【0038】

本発明においては、本発明の効果を損なわない範囲内で、前記一般式(I)で表される化合物以外の他の可塑剤を用いることができる。本発明で用いられる可塑剤、即ち、本発明のポリエステル樹脂組成物に含有される全ての可塑剤のうち、前記一般式(I)で表される化合物の含有量は、好ましくは50質量%以上、より好ましくは80質量%以上、更に好ましくは90質量%以上、更に好ましくは95質量%以上、更に好ましくは実質的に100質量%であり、更に好ましくは100質量%である。ここで実質的に100質量%とは不可避免的に微量の不純物等を含んでいる状態を言う。

【0039】

他の可塑剤としては、ポリエステル系可塑剤、多価アルコールエステル系可塑剤、多価

50

カルボン酸エステル系可塑剤が挙げられる。

【0040】

ポリエステル系可塑剤の具体例としては、好ましくは炭素数2～12、より好ましくは炭素数2～6のジカルボン酸と、好ましくは炭素数2～12、より好ましくは炭素数2～6のジアルコール又はその(ポリ)オキシアルキレン付加物とによるポリエステルなどを挙げることができる。ジカルボン酸としては、コハク酸、アジピン酸、セバシン酸、フタル酸、テレフタル酸、イソフタル酸などが挙げられ、ジアルコールとしては、プロピレングリコール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、1,6-ヘキサジオール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコールなどを挙げることができる。また、ポリエステル末端の水酸基やカルボキシ基をモノカルボン酸やモノアルコールでエステル化して、封鎖していてもよい。

10

【0041】

多価アルコールエステル系可塑剤の具体例としては、多価アルコール又はその(ポリ)オキシアルキレン付加物と、好ましくは炭素数1～12、より好ましくは炭素数1～6、更に好ましくは炭素数1～4のモノカルボン酸とのモノ、ジ又はトリエステルなどを挙げることができる。多価アルコールとしては、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、グリセリン、上記ジアルコール等を挙げることができる。モノカルボン酸としては、酢酸、プロピオン酸などを挙げることができる。

【0042】

多価カルボン酸エステル系可塑剤としては、多価カルボン酸と、好ましくは炭素数1～12、より好ましくは炭素数1～6、更に好ましくは炭素数1～4のモノアルコール又はその(ポリ)オキシアルキレン付加物とのモノ、ジ又はトリエステルなどを挙げることができる。多価カルボン酸としては、トリメリット酸、上記ジカルボン酸等を挙げることができる。モノアルコールとしては、メタノール、エタノール、1-プロパノール、1-ブタノール、及び2-エチルヘキサノールなどを挙げることができる。

20

【0043】

可塑剤の含有量は、熱可塑性ポリエステル樹脂(A)100質量部に対して、高温領域における損失係数を向上させる観点から、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、更に好ましくは3質量部以上、更に好ましくは5質量部以上である。また、曲げ弾性率の低下を抑制する観点に加えて、本発明で用いる一般式(I)で表される化合物は耐熱性に優れることから、好ましくは50質量部以下、より好ましくは40質量部以下、更に好ましくは30質量部以下、更に好ましくは25質量部以下、更に好ましくは20質量部以下、更に好ましくは15質量部以下である。

30

【0044】

また、ポリエステル樹脂組成物中、可塑剤の含有量は、損失係数を向上させる観点から、好ましくは1質量%以上、より好ましくは3質量%以上、更に好ましくは5質量%以上であり、曲げ弾性率の低下を抑制する観点から、好ましくは25質量%以下、より好ましくは20質量%以下、更に好ましくは15質量%以下である。

【0045】

[無機充填剤(C)]

本発明のポリエステル樹脂組成物は、曲げ弾性率を向上させる観点から、無機充填剤(C)を含有する。本発明における無機充填剤(C)としては、公知の無機充填剤であれば特に限定されず、好ましくは熱可塑性樹脂の強化に用いられる無機充填剤で、具体的には、板状の充填剤、粒状の充填剤、針状の充填剤、及び繊維状の充填剤からなる群より選ばれる1種又は2種以上を用いることができる。

40

【0046】

板状の充填剤とは、アスペクト比(板状体の最大面における最長辺の長さ/該面の厚み)が20以上150以下のものである。板状充填剤の長さ(最大面における最長辺の長さ)は、ポリエステル樹脂組成物での良好な分散性を得る、曲げ弾性率を向上させる、及び/又は損失係数を向上させる観点から、好ましくは1.0 $\mu$ m以上、より好ましくは5 $\mu$

50

m以上、更に好ましくは10 $\mu$ m以上、更に好ましくは20 $\mu$ m以上であり、好ましくは150 $\mu$ m以下、より好ましくは100 $\mu$ m以下、更に好ましくは50 $\mu$ m以下、更に好ましくは40 $\mu$ m以下、更に好ましくは30 $\mu$ m以下である。厚みは特に限定されないが、同様の観点から、好ましくは0.01 $\mu$ m以上、より好ましくは0.05 $\mu$ m以上、更に好ましくは0.1 $\mu$ m以上、更に好ましくは0.2 $\mu$ m以上であり、好ましくは5 $\mu$ m以下、より好ましくは3 $\mu$ m以下、更に好ましくは2 $\mu$ m以下、更に好ましくは1 $\mu$ m以下、更に好ましくは0.5 $\mu$ m以下である。また、板状充填剤のアスペクト比としては、同様の観点から、好ましくは30以上、より好ましくは40以上、更に好ましくは50以上であり、また、好ましくは120以下、より好ましくは100以下、更に好ましくは90以下、更に好ましくは80以下である。板状充填剤の具体例としては、例えば、ガラス  
10  
フレーク、非膨潤性雲母、膨潤性雲母、グラファイト、金属箔、タルク、クレー、マイカ、セリサイト、ゼオライト、ベントナイト、有機変性ベントナイト、モンモリロナイト、有機変性モンモリロナイト、ドロマイト、スメクタイト、ハイドロタルサイト、板状酸化鉄、板状炭酸カルシウム、板状水酸化マグネシウム、板状硫酸バリウムなどが挙げられる。これらの中では、曲げ弾性率を向上させ、損失係数の低下を抑制する観点から、タルク、マイカ、板状硫酸バリウムが好ましく、タルク、マイカがより好ましい。なお、板状充填剤の辺長及び厚みは、無作為に選んだ100本の充填剤を光学顕微鏡で観察してその数平均を算出することにより求めることができる。

#### 【0047】

粒状の充填剤とは、真球状の形態を呈するものだけでなく、ある程度断面楕円状や略長  
20  
円状のものも含み、アスペクト比（粒状体の最長の直径/粒状体の最短の直径）が1以上2未満のものであり、1に近いものが好適である。粒状充填剤の平均粒径は、ポリエステル樹脂組成物での良好な分散性を得る、曲げ弾性率を向上させる、及び/又は損失係数を向上させる観点から、好ましくは1.0 $\mu$ m以上、より好ましくは5 $\mu$ m以上、更に好ましくは10 $\mu$ m以上、更に好ましくは20 $\mu$ m以上であり、好ましくは50 $\mu$ m以下、より好ましくは40 $\mu$ m以下、更に好ましくは30 $\mu$ m以下である。具体的には、カオリン、  
30  
微粉ケイ酸、長石粉、粒状炭酸カルシウム、粒状水酸化マグネシウム、粒状硫酸バリウム、水酸化アルミニウム、炭酸マグネシウム、酸化カルシウム、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化チタン、ケイ酸アルミニウム、各種バルーン、各種ビーズ、酸化ケイ素、石膏、ノバキュライト、ドーソナイト、及び白土などが挙げられる。これらの中では、曲げ弾性率の向上、及び損失係数を向上させる観点から、粒状硫酸バリウム、水酸化アルミニウム、及び粒状炭酸カルシウムが好ましく、粒状炭酸カルシウム、粒状硫酸バリウムがより好ましい。なお、粒状充填剤の直径は、無作為に選んだ100本の充填剤を切断して、断面を光学顕微鏡で観察しその数平均を算出することにより求めることができる。

#### 【0048】

針状の充填剤とは、アスペクト比（粒子長さ/粒子径）が2以上20未満の範囲のものである。針状充填剤の長さ（粒子長さ）は、ポリエステル樹脂組成物での良好な分散性を得る、曲げ弾性率を向上させる、及び/又は損失係数を向上させる観点から、好ましくは1.0 $\mu$ m以上、より好ましくは5 $\mu$ m以上、更に好ましくは10 $\mu$ m以上、更に好ましくは20 $\mu$ m以上、更に好ましくは30 $\mu$ m以上であり、好ましくは150 $\mu$ m以下、  
40  
より好ましくは100 $\mu$ m以下、更に好ましくは80 $\mu$ m以下、更に好ましくは60 $\mu$ m以下である。粒子径は特に限定されないが、同様の観点から、好ましくは0.01 $\mu$ m以上、より好ましくは0.1 $\mu$ m以上、更に好ましくは0.5 $\mu$ m以上であり、好ましくは20 $\mu$ m以下、より好ましくは15 $\mu$ m以下、更に好ましくは10 $\mu$ m以下である。また、針状充填剤のアスペクト比としては、同様の観点から、好ましくは5以上であり、また、好ましくは10以下である。針状充填剤の具体例としては、例えば、チタン酸カリウムウイスキー、ホウ酸アルミニウムウイスキー、マグネシウム系ウイスキー、珪素系ウイスキー、ワラストナイト、セピオライト、アスベスト、ゾノライト、ホスフェートファイバー、エレスタダイト、スラグ繊維、石膏繊維、シリカ繊維、シリカ・アルミナ繊維、ジルコニア繊維、窒化硼素繊維、窒化硅素繊維、及び硼素繊維などが挙げられる。これらの中で  
50

は、チタン酸カリウムウイスキー、ワラステナイトが好ましい。なお、針状充填剤の粒子長さ及び粒子径は、無作為に選んだ100本の充填剤を光学顕微鏡で観察してその数平均を算出することにより求めることができる。粒子径に短径と長径がある場合は長径を用いて算出する。

#### 【0049】

繊維状の充填剤とは、アスペクト比（平均繊維長／平均繊維径）が150を超えるものである。繊維状充填剤の長さ（平均繊維長）としては、曲げ弾性率向上、損失係数向上の観点から、好ましくは0.15mm以上、より好ましくは0.2mm以上、更に好ましくは0.5mm以上、更に好ましくは1mm以上であり、好ましくは30mm以下、より好ましくは10mm以下、更に好ましくは5mm以下である。平均繊維径は特に限定されないが、同様の観点から、好ましくは1μm以上、より好ましくは3μm以上であり、好ましくは30μm以下、より好ましくは20μm以下、更に好ましくは10μm以下である。また、アスペクト比としては、同様の観点から、好ましくは200以上、より好ましくは250以上、更に好ましくは500以上であり、また、好ましくは10000以下、より好ましくは5000以下、更に好ましくは1000以下、更に好ましくは800以下である。繊維状充填剤の具体例としては、例えば、ガラス繊維、炭素繊維、グラファイト繊維、金属繊維、セルロース繊維などが挙げられる。これらの中では、同様の観点から、炭素繊維、ガラス繊維が好ましく、ガラス繊維がより好ましい。なお、繊維状充填剤の繊維長及び繊維径は、無作為に選んだ100本の充填剤を光学顕微鏡で観察してその数平均を算出することにより求めることができる。繊維径に短径と長径がある場合は長径を用いて算出する。また繊維径は長径と短径が等しい円形だけでなく、長径と短径が異なる長円形（例えば長径／短径＝4）や、まゆ型（例えば長径／短径＝2）を用いても良い。一方、2軸押出機等の混練機を使用して樹脂組成物を作成するために樹脂と繊維状充填剤を溶融混練する場合は、混練部での剪断力により繊維状充填剤が切断され平均繊維長は短くなるが、樹脂中における繊維状充填剤の平均繊維長は、曲げ弾性率の観点から100～800μmが好ましく、200～700μmがより好ましく、300～600μmが更に好ましい。

10

20

#### 【0050】

前記の粒状、板状、又は針状充填剤は、エチレン／酢酸ビニル共重合体などの熱可塑性樹脂や、エポキシ樹脂などの熱硬化性樹脂で被覆又は集束処理されていてもよく、アミノシランやエポキシシランなどのカップリング剤などで処理されていても良い。

30

#### 【0051】

これらの充填剤は、単独で又は2種以上組み合わせて用いることができ、形状の異なる充填剤を組み合わせてもよい。なかでも、曲げ弾性率を向上させ、損失係数の低下を抑制する観点から、好ましくは板状充填剤、針状充填剤、及び繊維状充填剤からなる群より選ばれる1種又は2種以上、より好ましくは板状充填剤及び針状充填剤からなる群より選ばれる1種又は2種以上、更に好ましくは板状充填剤の1種又は2種以上である。具体的には、マイカ、タルク、ガラス繊維を用いることが好ましく、マイカ、タルクを用いることがより好ましく、マイカを用いることが更に好ましい。板状充填剤は射出成形体等においては流動方向により配向するため、他の充填剤に比べて、配向方向での引張弾性率や配向方向に垂直な方向での曲げ弾性率が顕著に向上し、また、成形体が振動する際に発生する摩擦に影響する界面が多く存在するため、さらに損失係数の低下が抑制されることが推察される。無機充填剤中の板状充填剤の含有量は、損失係数低下を抑制する観点から、60質量%以上が好ましく、80質量%以上がより好ましく、90質量%以上が更に好ましい。

40

#### 【0052】

無機充填剤（C）の含有量は、熱可塑性ポリエステル樹脂（A）100質量部に対して、曲げ弾性率を向上する観点から、10質量部以上が好ましく、15質量部以上がより好ましく、20質量部以上が更に好ましく、30質量部以上が更に好ましく、35質量部以上が更に好ましい。また、損失係数の低下を抑制する観点から、80質量部以下が好まし

50

く、70質量部以下がより好ましく、60質量部以下が更に好ましく、50質量部以下が更に好ましく、45質量部以下が更に好ましい。なお、無機充填剤の含有量とは、用いられる無機充填剤の合計質量のことであり、複数の化合物が含有される場合には、総含有量のことを意味する。

【0053】

また、ポリエステル樹脂組成物中、無機充填剤の含有量は、曲げ弾性率を向上する観点から、好ましくは5質量%以上、より好ましくは10質量%以上、更に好ましくは15質量%以上、更に好ましくは20質量%以上、更に好ましくは23質量%以上であり、損失係数の低下を抑制する観点から、好ましくは40質量%以下、より好ましくは35質量%以下、更に好ましくは30質量%以下である。

10

【0054】

本発明において、可塑剤(B)と無機充填剤(C)の質量比(可塑剤(B)/無機充填剤(C))は、弾性率向上と損失係数向上の観点から、10/90~60/40が好ましく、15/85~45/55がより好ましい。

【0055】

[有機結晶核剤(D)]

また、本発明のポリエステル樹脂組成物は、熱可塑性ポリエステル樹脂の結晶化速度を向上させ、熱可塑性ポリエステル樹脂の結晶性を向上させ、曲げ弾性率を向上させる観点から、有機結晶核剤を含有することができる。

【0056】

有機結晶核剤としては、公知の有機系結晶核剤を用いることができ、有機カルボン酸金属塩、有機スルホン酸塩、カルボン酸アミド、リン化合物金属塩、ロジン類の金属塩、アルコキシ金属塩、及び有機含窒素化合物などを用いることができる。具体的には、例えば、有機カルボン酸金属塩としては、安息香酸ナトリウム、安息香酸カリウム、安息香酸リチウム、安息香酸カルシウム、安息香酸マグネシウム、安息香酸バリウム、テレフタル酸リチウム、テレフタル酸ナトリウム、テレフタル酸カリウム、シュウ酸カルシウム、ラウリン酸ナトリウム、ラウリン酸カリウム、ミリスチン酸ナトリウム、ミリスチン酸カリウム、ミリスチン酸カルシウム、オクタコサン酸ナトリウム、オクタコサン酸カルシウム、ステアリン酸ナトリウム、ステアリン酸カリウム、ステアリン酸リチウム、ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸マグネシウム、ステアリン酸バリウム、モンタン酸ナトリウム、モンタン酸カルシウム、トルイル酸ナトリウム、サリチル酸ナトリウム、サリチル酸カリウム、サリチル酸亜鉛、アルミニウムジベンゾエート、カリウムジベンゾエート、リチウムジベンゾエート、ナトリウム - ナフタレート、ナトリウムシクロヘキサカルボキシレートが挙げられる。有機スルホン酸塩としては、p-トルエンスルホン酸ナトリウム、スルホイソフタル酸ナトリウムが挙げられる。カルボン酸アミドとしては、ステアリン酸アミド、エチレンビスラウリン酸アミド、パルミチン酸アミド、ヒドロキシステアリン酸アミド、エルカ酸アミド、トリメチン酸トリス(t-ブチルアミド)が挙げられる。リン化合物金属塩としては、ナトリウム-2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-t-ブチルフェニル)フォスフェートが挙げられる。ロジン類の金属塩としては、デヒドロアビエチン酸ナトリウム、ジヒドロアビエチン酸ナトリウムが挙げられる。アルコキシ金属塩としては2,2-メチルビス(4,6-ジ-t-ブチルフェニル)ナトリウムが挙げられる。有機含窒素化合物としては、アデカ社製アデカスタブNA-05(商品名)が挙げられる。その他の有機結晶核剤としてはベンジリデンソルビトール及びその誘導体を挙げることができる。熱可塑性ポリエステル樹脂の結晶化速度を向上させ、曲げ弾性率を向上させる観点から、好ましくは有機カルボン酸金属塩、リン化合物金属塩、アルコキシ金属塩、有機含窒素化合物であり、より好ましくは安息香酸ナトリウム、アデカスタブNA-05(商品名)である。

20

30

40

【0057】

有機結晶核剤(D)の含有量は、熱可塑性ポリエステル樹脂(A)100質量部に対して、曲げ弾性率、及び損失係数を向上させる観点から、好ましくは0.01質量部以上、

50

より好ましくは 0.1 質量部以上、更に好ましくは 0.2 質量部以上であり、曲げ弾性率、及び損失係数を向上させる観点から、好ましくは 20 質量部以下、より好ましくは 10 質量部以下、更に好ましくは 5 質量部以下、更に好ましくは 3 質量部以下、更に好ましくは 1 質量部以下である。なお、本明細書において、有機結晶核剤の含有量とは、ポリエステル樹脂組成物に含有される全ての有機結晶核剤の合計含有量を意味する。

【0058】

[エラストマー(E)]

また、本発明のポリエステル樹脂組成物は、熱可塑性ポリエステル樹脂の高温領域の損失係数だけでなく、低温領域など、その他の温度領域の損失係数も同時に向上させる観点から、本発明の効果を損なわない範囲でエラストマーを含有することができる。エラストマーは 1 種又は 2 種以上を用いることができる。本発明におけるエラストマーとしては、熱可塑性エラストマーが好ましい。

10

【0059】

(熱可塑性エラストマー)

本発明のポリエステル樹脂組成物が熱可塑性エラストマーを含有することで、熱可塑性エラストマーの樹脂部分でエネルギー損失を発現することとなって、さらにポリエステル樹脂組成物の制振性が向上する効果が奏される。さらに可塑剤と併用することにより、さらに高温域及び低温域での広い温度領域で制振性を向上させることができる。

【0060】

熱可塑性エラストマーは、高温域及び低温域での制振性向上の観点から、ガラス転移温度  $T_g$  が、好ましくは -40 以上であり、好ましくは 20 以下である。

20

【0061】

熱可塑性エラストマーの含有量は、熱可塑性ポリエステル樹脂(A) 100 質量部に対して、低温域での損失係数も向上する観点から、10 質量部以上が好ましく、15 質量部以上がより好ましく、18 質量部以上が更に好ましく、20 質量部以上が更に好ましく、25 質量部以上が更に好ましい。また、曲げ弾性率の低下を抑制する観点から、50 質量部以下が好ましく、40 質量部以下がより好ましく、35 質量部以下が更に好ましい。

【0062】

ポリエステル樹脂成形組成物中、熱可塑性エラストマーの含有量は、損失係数を向上させる観点から、好ましくは 5 質量%以上、より好ましくは 10 質量%以上、更に好ましくは 15 質量%以上であり、曲げ弾性率の低下を抑制する観点から、好ましくは 30 質量%以下、より好ましくは 25 質量%以下、更に好ましくは 20 質量%以下である。

30

【0063】

本発明における熱可塑性エラストマーとしては、スチレン系熱可塑性エラストマー、オレフィン系熱可塑性エラストマー、ポリエステル系熱可塑性エラストマー、ポリアミド系熱可塑性エラストマー、ウレタン系熱可塑性エラストマー、ニトリル系熱可塑性エラストマー、フッ素系熱可塑性エラストマー、ポリブタジエン系熱可塑性エラストマー及びシリコーン系熱可塑性エラストマーから選択される少なくとも 1 種が好ましく、スチレン系熱可塑性エラストマーとしては、ポリスチレン-ビニル-ポリイソブレン-ポリスチレンブロック共重合体やスチレンとブタジエンとのコポリマー及びその水素添加物が挙げられ、例えば、クラレプラスチック社製「ハイブラー」、旭化成株式会社製「タフテック」「S.O.E」(登録商標)、株式会社クラレ製「セプトン」(登録商標)、三菱化学株式会社製「ラバロン」(登録商標)等がある。オレフィン系熱可塑性エラストマーとしては、オレフィン系樹脂(ポリエチレン、ポリプロピレン等)のマトリックスにオレフィン系ゴム(EPR、EPDM)を微分散させたものが挙げられ、例えば、三菱化学株式会社製「サーモラン」(登録商標)、住友化学株式会社製「エスポレックス」(登録商標)等がある。ポリエステル系熱可塑性エラストマーとしては、ポリブチレンテレフタレートとポリエーテルとのコポリマー等が挙げられ、例えば、東レ・デュポン株式会社製「ハイトレル」(登録商標)等がある。ポリアミド系熱可塑性エラストマーとしては、ナイロンとポリエステル又はポリオールとのブロックコポリマーやラクタム、ジカルボン酸ポリエーテ

40

50

ルジオールを原料としてエステル交換及び縮重合反応させたものが挙げられる。ウレタン系熱可塑性エラストマーとしては、例えば、日本ポリウレタン工業株式会社製「TPU」がある。ニトリル系熱可塑性エラストマーとしては、アクリロニトリルとブタジエンとを乳化重合したものの等が挙げられる。フッ素系熱可塑性エラストマーとしては、ビニリデンフロライドとヘキサフルオロプロピレンとの共重合体、ビニリデンフロライドとヘキサフルオロプロピレンとテトラフルオロエチレンとの共重合体等が挙げられ、例えば、昭和高分子株式会社製「エラフトール」（登録商標）、デュボン製「バイトン」（登録商標）シリーズ等がある。ポリブタジエン系及びシリコン系熱可塑性エラストマーとしては、シロキサン結合を骨格として、そのケイ素原子に有機基などが直接結合した有機ケイ素高分子結合物等が挙げられ、例えば、信越シリコン製KBMシリーズ等がある。熱可塑性エラストマーとしては、高温域及び低温域での制振性向上の観点からスチレン系熱可塑性エラストマーが好ましい。

10

20

30

40

50

**【0064】**

（スチレン系熱可塑性エラストマー）

本発明におけるスチレン系熱可塑性エラストマー（以下、スチレン系エラストマーと称する場合がある。）は、ハードセグメントを構成するスチレン系化合物が重合してなるブロックA、及びソフトセグメントを構成する共役ジエンが重合してなるブロックBからなるものである。重合体ブロックAに用いるスチレン系化合物としては、例えば、スチレン、*o*-メチルスチレン、*o*-メチルスチレン、*m*-メチルスチレン、*p*-メチルスチレン、1,3-ジメチルスチレン等のスチレン化合物；ビニルナフタレン、ビニルアントラセン等のビニル基を有する多環芳香族化合物等が挙げられ、これらのうちスチレン化合物の重合体が好ましく、スチレンの重合体がより好ましい。重合体ブロックBに用いる共役ジエンとしては、例えばブタジエン、イソプレン、プチレン、エチレン、1,3-ペンタジエン、2,3-ジメチル-1,3-ブタジエン等が挙げられ、好ましくはポリイソプレン、ポリブタジエン、およびイソプレンとブタジエンの共重合体が挙げられ、これらの共役ジエン単量体から選ばれる1種又2種以上を重合したブロック共重合体である。またブロックBには前記重合体ブロックAに用いるスチレン系化合物が共重合されていても良い。各々の共重合体の場合には、その形態としてはランダム共重合体、ブロック共重合体、およびテーパー共重合体のいずれの形態も選択することができる。また、水素添加された構造でもよい。

**【0065】**

このようなスチレン系エラストマーの具体例を例示すると、ポリスチレン-イソプレンブロック共重合体（SIS）、ポリスチレン-ポリブタジエン共重合体（SEBS）、ポリスチレン-水素添加ポリブタジエン共重合体（SEBS）、ポリスチレン-水素添加ポリイソプレン-ポリスチレンブロック共重合体（SEPS）、ポリスチレン-ビニル-ポリイソプレン-ポリスチレンブロック共重合体（SHIVS）、ポリスチレン-水素添加ポリブタジエン-水素添加ポリイソプレン-ポリスチレンブロック共重合体、ポリスチレン-水素添加ポリブタジエン-ポリイソプレン-ポリスチレンブロック共重合体等が挙げられる。これらは一種類を単独で用いても、二種以上を併用してもよい。本発明においては中でも、ポリスチレン-ビニル-ポリイソプレン-ポリスチレンブロック共重合体を使用することが好ましく、このようなブロック共重合体の市販品としては、クラレプラスチック社製「ハイブラー」シリーズが挙げられる。

**【0066】**

スチレン系エラストマー中のスチレン含有量は、高温域及び低温域での制振性向上の観点から、好ましくは10質量%以上、より好ましくは15質量%以上であり、好ましくは30質量%以下、より好ましくは25質量%以下である。なお、本明細書において、高温域とは35～80のことを、低温域とは-20～10のことを意味し、スチレン系エラストマー中のスチレン含有量は、公知の方法に従って、例えば、NMRを用いて測定することができる。

**【0067】**

スチレン系エラストマーとしては、スチレン・イソプレブロック共重合体及び/又はスチレン・ブタジエブロック共重合体が好ましい。

【0068】

(スチレン・イソプレブロック共重合体)

本発明におけるスチレン・イソプレブロック共重合体は、両末端にポリスチレンブロックを有し、その間にポリイソプレブロック又はビニル・ポリイソプレブロックの少なくとも一方のブロックを有するブロック共重合体である。また、イソプレブロックやブタジエブロックが共重合されていてもよく、水素添加された構造でもよい。

【0069】

このようなスチレン・イソプレブロック共重合体の具体例を例示すると、ポリスチレン・イソプレブロック共重合体(SIS)、ポリスチレン・水素添加ポリイソプレ・ポリスチレンブロック共重合体(SEPS)、ポリスチレン・ビニル・ポリイソプレ・ポリスチレンブロック共重合体(SHIVS)、ポリスチレン・水素添加ポリブタジエン・水素添加ポリイソプレ・ポリスチレンブロック共重合体、ポリスチレン・水素添加ポリブタジエン・ポリイソプレ・ポリスチレンブロック共重合体等が挙げられる。これらは一種類を単独で用いても、二種以上を併用してもよい。本発明においては中でも、ポリスチレン・ビニル・ポリイソプレ・ポリスチレンブロック共重合体を使用することが好ましく、このようなブロック共重合体の市販品としては、クラレプラスチックス社製「ハイブラー」シリーズが挙げられる。

【0070】

(スチレン・ブタジエブロック共重合体)

本発明におけるスチレン・ブタジエブロック共重合体は、両末端にポリスチレンブロックを有し、その間にポリブタジエブロックまたはその水素添加物を有するブロック共重合体である。また、イソプレブロックやブタジエブロックが共重合されていてもよく、水素添加された構造でもよい。

【0071】

このようなスチレン・ブタジエブロック共重合体の具体例を例示すると、ポリスチレン・ポリブタジエン共重合体(SEBS)、ポリスチレン・水素添加ポリブタジエン共重合体(SEBS)、ポリスチレン・ポリブタジエン共重合体(SBS)、ポリスチレン・水素添加ポリブタジエン共重合体(SBS)等が挙げられる。これらは一種類を単独で用いても、二種以上を併用してもよい。本発明においては中でも、ポリスチレン・水素添加ポリブタジエン共重合体(SEBS)を使用することが好ましく、このようなブロック共重合体の市販品としては、旭化成株式会社製「S.O.E」が挙げられる。

【0072】

本発明のポリエステル樹脂組成物は、前記以外の他の成分として、鎖延長剤、滑剤、無機結晶核剤、加水分解抑制剤、難燃剤、酸化防止剤、炭化水素系ワックス類やアニオン型界面活性剤である滑剤、紫外線吸収剤、帯電防止剤、防曇剤、光安定剤、顔料、防カビ剤、抗菌剤、発泡剤等を、本発明の効果を損なわない範囲で含有することができる。また同様に、本発明の効果を阻害しない範囲内で他の高分子材料や他の樹脂組成物を含有することも可能である。

【0073】

本発明のポリエステル樹脂組成物は、熱可塑性ポリエステル樹脂(A)、前述する一般式(I)で表される可塑剤(B)、無機充填剤(C)を含有するのであれば特に限定なく調製することができる。例えば、熱可塑性ポリエステル樹脂、一般式(I)で表される化合物、及び無機充填剤、更に必要により各種添加剤を含有する原料を、密閉式ニーダー、1軸もしくは2軸の押出機、オープンロール型混練機等の公知の混練機を用いて溶融混練して調製することができる。溶融混練後は、公知の方法に従って、溶融混練物を乾燥又は冷却させてもよい。また、原料は、予めヘンシェルミキサー、スーパーミキサー等を用いて均一に混合した後に、溶融混練に供することも可能である。なお、溶融混練する際に熱可塑性ポリエステル樹脂の可塑性を促進させるため、超臨界ガスを存在させて溶融混合さ

10

20

30

40

50

せてもよい。

【0074】

溶融混練温度は、用いる熱可塑性ポリエステル樹脂の種類によって一概には設定されないが、ポリエステル樹脂組成物の成形性及び劣化防止を向上する観点から、好ましくは220以上、より好ましくは225以上、更に好ましくは230以上、そして、好ましくは300以下、より好ましくは290以下、更に好ましくは280以下である。溶融混練時間は、溶融混練温度、混練機の種類によって一概には決定できないが、15～900秒間が好ましい。

【0075】

かくして得られた本発明のポリエステル樹脂組成物は、結晶飽和したポリエステル樹脂に対する相対結晶化度が、成形性の観点から、好ましくは80%以上、より好ましくは90%以上である。なお、本明細書において、相対結晶化度が80%以上であれば結晶性が高いことを意味する。

10

【0076】

本発明のポリエステル樹脂組成物は、耐熱性が高く、かつ、約80以下の金型温度でも優れた成形性を有することから、射出成形、押出成形、熱成形等の様々な成形加工方法を用いることにより、音響機器、電気製品、建築物、産業用機器等の製品又はそれらの部品あるいは筐体に用いる制振材料として好適に用いることができる。

【0077】

例えば、射出成形により本発明のポリエステル樹脂組成物を含有する部品又は筐体を製造する場合、前記ポリエステル樹脂組成物のペレットを射出成形機に充填して、金型内に注入して成形することにより得られる。

20

【0078】

射出成形としては、公知の射出成形機を用いることができる。例えば、シリンダーとその内部に挿通されたスクリーを主な構成要素として有するもの〔J75E-D、J110AD-180H（日本製鋼所社製）等〕が挙げられる。なお、前記ポリエステル樹脂組成物の原料をシリンダーに供給してそのまま溶融混練してもよいが、予め溶融混練したものを射出成形機に充填することが好ましい。

【0079】

シリンダーの設定温度は、得られる樹脂成形物の結晶性を制御する観点から、220以上が好ましく、230以上がより好ましい。また、290以下が好ましく、280以下がより好ましい。溶融混練機を使用する場合には、溶融混練する際の混練機のシリンダーの設定温度を意味する。なお、シリンダーはヒーターを具備しており、それにより温度調整が行なわれる。ヒーターの個数は機種によって異なり一概には決定されないが、前記設定温度に調整されるヒーターは、少なくとも、溶融混練物排出口側（ノズル先端側）に存在するものが好ましい。

30

【0080】

金型温度は用いる熱可塑性ポリエステル樹脂の種類によって一概には決定されないが、例えば、ポリエチレンテレフタレート樹脂の場合、本発明のポリエステル樹脂組成物の結晶化速度及び作業性向上の観点から、並びに本発明のポリエステル樹脂組成物の絶対結晶化度を制御する観点から、150以下が好ましく、140以下がより好ましく、130以下が更に好ましい。また下限は特に設定されないが、例えば、20以上が好ましい。金型内での保持時間は、金型の温度によって一概には決定できないが、成形体の生産性を向上させる観点から、5～100秒が好ましい。

40

【0081】

また、射出成形以外の成形方法を用いる場合も、公知の方法に従って成形すればよく、特に限定はない。成形温度も前記した温度範囲内に設定して行うことが好ましい。

【0082】

かくして得られた本発明のポリエステル樹脂組成物の成形体は、音響機器、電気製品、建築物、産業用機器等の製品又はそれらの部品あるいは筐体に用いる制振材料等に好適に

50

用いることができる。また、本発明のポリエステル樹脂組成物の成形体は単一材料でも曲げ弾性率が高いため、金属鋼板等の高剛性素材を用いることなく、単一素材で形状を十分に保持できる優れた制振性能を有し、かつ自動車や鉄道、航空機等の軽量化が求められる製品又はそれらの部品あるいは筐体にも好ましく使用することができる。よって、本発明はまた、本発明のポリエステル樹脂組成物を含む制振材料を提供する。

#### 【0083】

本発明のポリエステル樹脂組成物の制振材料への適用としては、以下のものが例示される。音響機器筐体用材料としてスピーカー、テレビ、ラジカセ、ヘッドフォン、オーディオコンポ、マイク、オーディオプレーヤー、コンパクトディスク、フロッピー（登録商標）、映像機器等に；さらには、電動モーター付電気製品の部品及び筐体用材料として電動ドリル、電動ドライバー等の電動工具類、コンピューター、プロジェクター、サーバー、POSシステム等の冷却機能付電気製品、洗濯機、衣類乾燥機、エアコン室内機、ミシン、食器洗浄機、複合機、プリンター、スキャナー、ハードディスクドライブ、ビデオカメラ、加湿器、空気清浄器、携帯電話、ドライヤー等に；加振源付電気製品の部品及び筐体用材料として電動歯ブラシ、電動シェイバー、マッサージ機等に；原動機付電気製品の部品及び筐体用材料として発電機、ガス発電機等に；コンプレッサー付電気製品の部品及び筐体用材料として冷蔵庫、自動販売機、エアコン室外機、除湿機、家庭用発電機に；自動車部品用材料としてダッシュボード、インストルメントパネル、フロア、ドア、ルーフ等の内装材用材料、オイルパン、フロントカバー、ロッカーカバー等のエンジン回り用材料、カーナビ、ドアトリム、ギアボックス、ダッシュサイレンサー、モジュールキャリア等に；道路用材料として、遮音板、道路照明機器、ETC設備部材等に；鉄道部品用材料として、床、壁、側板、天井、ドア、椅子、テーブル等の内装材料、モーター周りの筐体や部品、ギアケース、パンタグラフカバーや各種保護カバー等に；飛行機部品用材料として、床、壁、側板、天井、椅子、テーブル等の内装材料、エンジン周りの筐体や部品等に；船舶部品用材料としてエンジンルーム用の筐体や壁材、計測ルーム用の筐体や壁材に；建築用材料として壁、天井、床、間仕切りボード、防音壁、シャッター、カーテンレール、配管ダクト、階段、ドア、窓枠等に；産業用機器部品用材料として、シューター、エレベーター、巻き上げ機、エスカレーター、コンベアー、トラクター、ブルドーザー、草刈り機等に；医療用機器の部品及び筐体用材料として呼吸器関連機器、耳鼻咽喉器関連、歯科用機器、外科用機器等に使用できる。

#### 【0084】

音響機器、電気製品、乗物、建築物、産業用機器等の製品又はそれらの部品あるいは筐体への本発明のポリエステル樹脂組成物の適用は、当該部品、筐体、装置及び機器の製造方法、適用箇所及び所望の目的に応じて適宜設定することができ、当該技術分野の常法に従って用いることができる。

#### 【0085】

本発明はまた、本発明のポリエステル樹脂組成物を含有する部品又は筐体の製造方法を提供する。

#### 【0086】

製造方法としては、本発明のポリエステル樹脂組成物を射出成形する工程を含む方法であれば特に限定はなく、得られる成形品の種類に応じて、適宜、工程を追加することができる。

#### 【0087】

具体的には、以下の工程を含む態様が挙げられる。

工程（１）：熱可塑性ポリエステル樹脂（Ａ）、一般式（Ｉ）で表される可塑剤（Ｂ）、及び無機充填剤（Ｃ）を含有するポリエステル樹脂組成物を溶融混練して、ポリエステル樹脂組成物の溶融混練物を調製する工程

工程（２）：工程（１）で得られたポリエステル樹脂組成物の溶融混練物を金型内に射出成形する工程

#### 【0088】

工程(1)は、ポリエステル樹脂組成物の熔融混練物を調製する工程である。具体的には、熱可塑性ポリエステル樹脂(A)、一般式(I)で表される可塑剤(B)、及び無機充填剤(C)、必要により各種の添加剤を含有する原料を、好ましくは220以上、より好ましくは225以上、更に好ましくは230以上であり、好ましくは300以下、より好ましくは290以下、更に好ましくは280以下で熔融混練することにより調製することができる。

【0089】

工程(2)は、ポリエステル樹脂組成物の熔融混練物を射出成形する工程である。具体的には、工程(1)で得られた熔融混練物を、好ましくは220以上、より好ましくは230以上であり、好ましくは290以下、より好ましくは280以下に加熱したシリンダーを装備した射出成形機に充填し、好ましくは150以下、より好ましくは140以下、更に好ましくは130以下であり、好ましくは20以上、より好ましくは30以上、更に好ましくは40以上の金型内に射出して成形することができる。

10

【0090】

かくして得られた本発明の射出成形体は、制振材料を含有する部品又は筐体として好適に用いることができる。

【0091】

また、上述した実施形態に関し、本発明は、さらに、以下のポリエステル樹脂組成物、及びその使用を開示する。

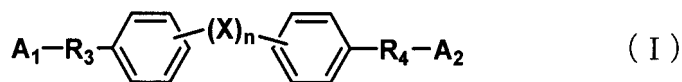
20

【0092】

<1> ジカルボン酸成分とジオール成分とから構成される熱可塑性ポリエステル樹脂(A)、一般式(I)で表される可塑剤(B)、ならびに無機充填剤(C)を含有する制振材料用のポリエステル樹脂組成物。

【0093】

【化4】



30

【0094】

(式中、 $A_1$ 及び $A_2$ は、それぞれ独立して、炭素数4以上18以下のアルキル基、炭素数7以上18以下のアラルキル基、又はそれらの(ポリ)オキシアルキレン付加物とのモノ又はジエテルを示し、 $n$ は0又は1であり、 $X$ は、 $-SO_2-$ 、 $-O-$ 、 $-CR_1R_2-$ 、 $-S-$ のいずれかを示し、ここで $R_1$ 及び $R_2$ は、それぞれ独立して、 $H$ 又は炭素数4以下のアルキル基であり、 $R_3$ 及び $R_4$ は、それぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-CO-$ 、 $-CH_2-$ のいずれかを示し、但し、 $R_3$ 及び $R_4$ は同時に $-O-$ である場合はない)

【0095】

<2> 熱可塑性ポリエステル樹脂(A)を構成するジカルボン酸成分が、脂肪族ジカルボン酸、脂環式ジカルボン酸、芳香族ジカルボン酸、及びフラン構造を有するジカルボン酸からなる群より選ばれる1種又は2種以上である、前記<1>記載のポリエステル樹脂組成物。

40

<3> 熱可塑性ポリエステル樹脂(A)を構成するジオール成分が、脂肪族ジオール、脂環式ジオール、芳香族ジオール、及びフラン環を有するジオールからなる群より選ばれる1種又は2種以上である、前記<1>又は<2>記載のポリエステル樹脂組成物。

<4> 熱可塑性ポリエステル樹脂(A)を構成するジカルボン酸成分が、芳香族ジカルボン酸、脂環式ジカルボン酸、及びフランを有するジカルボン酸からなる群より選ばれる1種又は2種以上である場合には、好ましくは脂肪族ジオール、芳香族ジオール、脂環式ジオール、及びフラン環を有するジオールからなる群より選ばれる1種又は2種以上との組み合わせであり、より好ましくは脂肪族ジオール及び芳香族ジオールからなる群より選ばれる1種又は2種以上との組み合わせである、前記<1>~<3>いずれか記載のポリ

50

エステル樹脂組成物。

< 5 > 熱可塑性ポリエステル樹脂 (A) を構成するジカルボン酸成分が、脂肪族ジカルボン酸である場合には、好ましくは芳香族ジオール、脂環式ジオール、及びフラン環を有するジオールからなる群より選ばれる 1 種又は 2 種以上との組み合わせであり、より好ましくは芳香族ジオールの 1 種又は 2 種以上との組み合わせである、前記 < 1 > ~ < 3 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

< 6 > 熱可塑性ポリエステル樹脂 (A) を構成するジカルボン酸成分としては、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、シクロヘキサジカルボン酸、テレフタル酸、イソフタル酸、フタル酸、1, 4 - ナフタレンジカルボン酸、1, 5 - ナフタレンジカルボン酸、2, 6 - ナフタレンジカルボン酸、1, 8 - ナフタレンジカルボン酸、及び 2, 5 - フランジカルボン酸からなる群より選ばれる 1 種又は 2 種以上が好ましく、コハク酸、シクロヘキサジカルボン酸、テレフタル酸、イソフタル酸、2, 6 - ナフタレンジカルボン酸、及び 2, 5 - フランジカルボン酸からなる群より選ばれる 1 種又は 2 種以上がより好ましく、テレフタル酸及び 2, 5 - フランジカルボン酸からなる群より選ばれる 1 種又は 2 種が更に好ましい、前記 < 1 > ~ < 5 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

< 7 > 熱可塑性ポリエステル樹脂 (A) を構成するジオール成分としては、エチレングリコール、1, 3 - プロパンジオール、1, 4 - ブタンジオール、シクロヘキサジメタノール、水添ビスフェノール A、イソソルバイド、ビスフェノール A、ビスフェノール A アルキレンオキシド付加物、1, 3 - ベンゼンジメタノール、1, 4 - ベンゼンジメタノール、及び 2, 5 - ジヒドロキシフランからなる群より選ばれる 1 種又は 2 種以上が好ましく、エチレングリコール、1, 3 - プロパンジオール、1, 4 - ブタンジオール、シクロヘキサジメタノール、水添ビスフェノール A、及び 2, 5 - ジヒドロキシフランからなる群より選ばれる 1 種又は 2 種以上がより好ましい、前記 < 1 > ~ < 6 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

< 8 > 熱可塑性ポリエステル樹脂 (A) は、ガラス転移温度 (T<sub>g</sub>) が、好ましくは 20 以上、より好ましくは 25 以上、更に好ましくは 30 以上、より更に好ましくは 35 以上であり、好ましくは 160 以下、より好ましくは 150 以下、更に好ましくは 140 以下、より更に好ましくは 130 以下である、前記 < 1 > ~ < 7 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

< 9 > 熱可塑性ポリエステル樹脂 (A) は、昇温速度 20 / min で 25 から 300 まで加熱し、その状態で 5 分間保持後、次いで 25 以下となるよう - 20 / min で冷却したとき、結晶化に伴う発熱ピークの面積から求められる結晶化エンタルピー H<sub>m</sub>c が、好ましくは 5 J / g 以上、より好ましくは 10 J / g 以上、更に好ましくは 15 J / g 以上、更に好ましくは 30 J / g 以上である、前記 < 1 > ~ < 8 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

< 10 > 熱可塑性ポリエステル樹脂 (A) は、テレフタル酸とエチレングリコールから構成されるポリエチレンテレフタレート、テレフタル酸と 1, 3 - プロパンジオールから構成されるポリトリメチレンテレフタレート、テレフタル酸と 1, 4 - ブタンジオールから構成されるポリブチレンテレフタレート、テレフタル酸と 1, 4 - シクロヘキサジメタノールから構成される 1, 4 - シクロヘキサジメチレンテレフタレート、2, 6 - ナフタレンジカルボン酸とエチレングリコールから構成されるポリエチレンナフタレート、2, 6 - ナフタレンジカルボン酸と 1, 4 - ブタンジオールから構成されるポリブチレンナフタレート、2, 5 - フランジカルボン酸とエチレングリコールから構成されるポリエチレンフラノエート、2, 5 - フランジカルボン酸と 1, 4 - ブタンジオールから構成されるポリブチレンフラノエートが好ましく、テレフタル酸とエチレングリコールから構成されるポリエチレンテレフタレート、テレフタル酸と 1, 3 - プロパンジオールから構成されるポリトリメチレンテレフタレート、テレフタル酸と 1, 4 - ブタンジオールから構成されるポリブチレンテレフタレート、2, 6 - ナフタレンジカルボン酸とエチレングリコールから構成されるポリエチレンナフタレート、2, 5 - フランジカルボン酸とエチレングリコールから構成されるポリエチレンフラノエートがより好ましい、前記 < 1 > ~ <

10

20

30

40

50

9 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

< 1 1 > 熱可塑性ポリエステル樹脂 (A) の含有量は、ポリエステル樹脂組成物中、50 質量% 以上が好ましく、55 質量% 以上がより好ましく、60 質量% 以上が更に好ましく、また、90 質量% 以下が好ましく、80 質量% 以下がより好ましく、75 質量% 以下が更に好ましく、70 質量% 以下が更に好ましい、前記 < 1 > ~ < 1 0 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

< 1 2 > 一般式 (I) における炭素数 4 以上 18 以下のアルキル基は、直鎖であっても分岐鎖であってもよく、アルキル基の炭素数は、好ましくは 6 以上であり、好ましくは 15 以下、より好ましくは 12 以下、更に好ましくは 10 以下である、前記 < 1 > ~ < 1 1 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

10

< 1 3 > 一般式 (I) における炭素数 7 以上 18 以下のアラルキル基は、炭素数が好ましくは 8 以上であり、好ましくは 15 以下、より好ましくは 12 以下、更に好ましくは 10 以下である、前記 < 1 > ~ < 1 2 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

< 1 4 > アルキル基又はアラルキル基の (ポリ) オキシアルキレン付加物とのモノ又はジエーテルとは、好ましくは炭素数 2 ~ 10、より好ましくは炭素数 2 ~ 6、更に好ましくは 2 ~ 4 のアルキレン基を有する (ポリ) オキシアルキレン付加物とのモノ又はジエーテルが挙げられる、前記 < 1 > ~ < 1 3 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

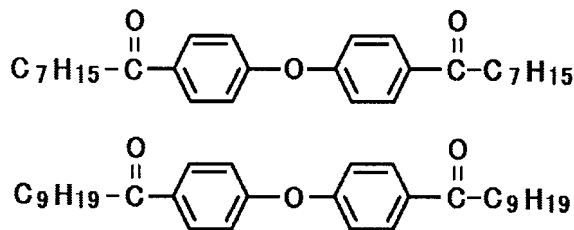
< 1 5 > 一般式 (I) における X は、好ましくは、 $-SO_2-$  又は  $-O-$  である、前記 < 1 > ~ < 1 4 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

< 1 6 > 一般式 (I) で表される可塑剤 (B) の具体例としては、以下の化合物が挙げられる、前記 < 1 > ~ < 1 5 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

20

【0096】

【化5】



30

【0097】

< 1 7 > ポリエステル樹脂組成物に含有される全ての可塑剤中、一般式 (I) で表される可塑剤 (B) の含有量は、好ましくは 50 質量% 以上、より好ましくは 80 質量% 以上、更に好ましくは 90 質量% 以上、更に好ましくは 95 質量% 以上、更に好ましくは実質的に 100 質量%、更に好ましくは 100 質量% である、前記 < 1 > ~ < 1 6 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

< 1 8 > 可塑剤の含有量は、熱可塑性ポリエステル樹脂 (A) 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、更に好ましくは 3 質量部以上、更に好ましくは 5 質量部以上であり、好ましくは 50 質量部以下、より好ましくは 40 質量部以下、更に好ましくは 30 質量部以下、更に好ましくは 25 質量部以下、更に好ましくは 20 質量部以下、更に好ましくは 15 質量部以下である、前記 < 1 > ~ < 1 7 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

40

< 1 9 > ポリエステル樹脂組成物中、可塑剤の含有量は、好ましくは 1 質量% 以上、より好ましくは 3 質量% 以上、更に好ましくは 5 質量% 以上であり、好ましくは 25 質量% 以下、より好ましくは 20 質量% 以下、更に好ましくは 15 質量% 以下である、前記 < 1 > ~ < 1 8 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

< 2 0 > 無機充填剤 (C) としては、板状の充填剤、粒状の充填剤、針状の充填剤、及び繊維状の充填剤からなる群より選ばれる 1 種又は 2 種以上を含むことが好ましい、前記 < 1 > ~ < 1 9 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

50

< 2 1 > 板状の充填剤としては、アスペクト比（板状体の最大面における最長辺の長さ / 該面の厚み）が 2 0 以上 1 5 0 以下のものであり、ガラスフレーク、非膨潤性雲母、膨潤性雲母、グラファイト、金属箔、タルク、クレー、マイカ、セリサイト、ゼオライト、ベントナイト、有機変性ベントナイト、モンモリロナイト、有機変性モンモリロナイト、ドロマイト、スメクタイト、ハイドロタルサイト、板状酸化鉄、板状炭酸カルシウム、板状水酸化マグネシウム、及び板状硫酸バリウムが好ましく、タルク、マイカ、板状硫酸バリウムがより好ましく、タルク、マイカが更に好ましい、前記 < 2 0 > 記載のポリエステル樹脂組成物。

< 2 2 > 粒状の充填剤としては、アスペクト比（粒状体の最長の直径 / 粒状体の最短の直径）が 1 以上 2 未満のものであり、1 に近いものが好ましく、カオリン、微粉ケイ酸、長石粉、粒状炭酸カルシウム、粒状水酸化マグネシウム、粒状硫酸バリウム、水酸化アルミニウム、炭酸マグネシウム、酸化カルシウム、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化チタン、ケイ酸アルミニウム、各種バルーン、各種ビーズ、酸化ケイ素、石膏、ノバキュライト、ドーソナイト、及び白土が好ましく、粒状硫酸バリウム、水酸化アルミニウム、及び粒状炭酸カルシウムがより好ましく、粒状炭酸カルシウム、粒状硫酸バリウムが更に好ましい、前記 < 2 0 > 記載のポリエステル樹脂組成物。

< 2 3 > 針状の充填剤としては、アスペクト比（粒子長さ / 粒子径）が 2 以上 2 0 未満の範囲のものであり、チタン酸カリウムウイスキー、ホウ酸アルミニウムウイスキー、マグネシウム系ウイスキー、珪素系ウイスキー、ワラストナイト、セピオライト、アスベスト、ゾノライト、ホスフェートファイバー、エस्ताダイト、スラグ繊維、石膏繊維、シリカ繊維、シリカ・アルミナ繊維、ジルコニア繊維、窒化硼素繊維、窒化硅素繊維、及び硼素繊維が好ましく、チタン酸カリウムウイスキー、ワラストナイトがより好ましい、前記 < 2 0 > 記載のポリエステル樹脂組成物。

< 2 4 > 繊維状の充填剤としては、アスペクト比（平均繊維長 / 平均繊維径）が 1 5 0 を超えるものであり、ガラス繊維、炭素繊維、グラファイト繊維、金属繊維、セルロース繊維が好ましく、炭素繊維、ガラス繊維がより好ましく、ガラス繊維が更に好ましい、前記 < 2 0 > 記載のポリエステル樹脂組成物。

< 2 5 > 粒状、板状、又は針状充填剤は、エチレン / 酢酸ビニル共重合体などの熱可塑性樹脂や、エポキシ樹脂などの熱硬化性樹脂で被覆又は集束処理されていてもよく、アミノシランやエポキシシランなどのカップリング剤などで処理されていても良い、前記 < 2 0 > ~ < 2 3 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

< 2 6 > 無機充填剤（C）としては、好ましくは板状充填剤、針状充填剤、及び繊維状充填剤からなる群より選ばれる 1 種又は 2 種以上、より好ましくは板状充填剤及び針状充填剤からなる群より選ばれる 1 種又は 2 種以上、更に好ましくは板状充填剤の 1 種又は 2 種以上である、前記 < 1 > ~ < 2 5 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

< 2 7 > マイカ、タルク、ガラス繊維を用いることが好ましく、マイカ、タルクを用いることがより好ましく、マイカを用いることが更に好ましい、前記 < 1 > ~ < 2 6 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

< 2 8 > 無機充填剤（C）中の板状充填剤の含有量は、6 0 質量 % 以上が好ましく、8 0 質量 % 以上がより好ましく、9 0 質量 % 以上が更に好ましい、前記 < 2 0 > ~ < 2 7 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

< 2 9 > 無機充填剤（C）の含有量は、熱可塑性ポリエステル樹脂（A）1 0 0 質量部に対して、1 0 質量部以上が好ましく、1 5 質量部以上がより好ましく、2 0 質量部以上が更に好ましく、3 0 質量部以上が更に好ましく、3 5 質量部以上が更に好ましく、また、8 0 質量部以下が好ましく、7 0 質量部以下がより好ましく、6 0 質量部以下が更に好ましく、5 0 質量部以下が更に好ましく、4 5 質量部以下が更に好ましい、前記 < 1 > ~ < 2 8 > いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

< 3 0 > ポリエステル樹脂組成物中、無機充填剤の含有量は、好ましくは 5 質量 % 以上、より好ましくは 1 0 質量 % 以上、更に好ましくは 1 5 質量 % 以上、更に好ましくは 2 0 質量 % 以上、更に好ましくは 2 3 質量 % 以上であり、好ましくは 4 0 質量 % 以下、より好

10

20

30

40

50

ましくは35質量%以下、更に好ましくは30質量%以下である、前記<1>~<29>いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

<31> 成分(B)と無機充填剤(C)の質量比(成分(B)/無機充填剤(C))は、10/90~60/40が好ましく、15/85~45/55がより好ましい、前記<1>~<30>いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

<32> 更に、有機結晶核剤(D)を含有してなる、前記<1>~<31>いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

<33> 有機結晶核剤(D)の含有量は、熱可塑性ポリエステル樹脂(A)100質量部に対して、好ましくは0.01質量部以上、より好ましくは0.1質量部以上、更に好ましくは0.2質量部以上であり、好ましくは20質量部以下、より好ましくは10質量部以下、更に好ましくは5質量部以下、更に好ましくは3質量部以下、更に好ましくは1質量部以下である、前記<32>記載のポリエステル樹脂組成物。

<34> 熱可塑性ポリエステル樹脂(A)、一般式(I)で表される可塑剤(B)、無機充填剤(C)を含有する原料を溶融混練して調製する、前記<1>~<33>いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

<35> 溶融混練温度は、好ましくは220以上、より好ましくは225以上、更に好ましくは230以上であり、好ましくは300以下、より好ましくは290以下、更に好ましくは280以下である、前記<34>記載のポリエステル樹脂組成物。

<36> 更に、エラストマー、好ましくは熱可塑性エラストマー、より好ましくはスチレン系熱可塑性エラストマー、更に好ましくはスチレン・イソブレンブロック共重合体及び/又はスチレン・ブタジエンブロック共重合体を含有してなる、前記<1>~<35>いずれか記載のポリエステル樹脂組成物。

<37> エラストマー、好ましくは熱可塑性エラストマーの含有量は、熱可塑性ポリエステル樹脂(A)100質量部に対して、好ましくは10質量部以上、より好ましくは15質量部以上、更に好ましくは18質量部以上、更に好ましくは20質量部以上、更に好ましくは25質量部以上であり、好ましくは50質量部以下、より好ましくは40質量部以下、更に好ましくは35質量部以下である、前記<36>記載のポリエステル樹脂組成物。<38> 前記<1>~<37>いずれか記載のポリエステル樹脂組成物の制振材料としての使用。

<39> 前記<1>~<37>~<35>いずれか記載のポリエステル樹脂組成物を射出成形機に充填して、金型内に注入して成形することにより得られる、音響機器、電気製品、乗物、建築物、産業用機器等の製品又はそれらの部品あるいは筐体。

<40> 以下の工程を含む、部品又は筐体の製造方法。

工程(1):熱可塑性ポリエステル樹脂(A)、一般式(I)で表される可塑剤(B)、及び無機充填剤(C)を含有するポリエステル樹脂組成物を溶融混練して、ポリエステル樹脂組成物の溶融混練物を調製する工程

工程(2):工程(1)で得られたポリエステル樹脂組成物の溶融混練物を金型内に射出成形する工程

【実施例】

【0098】

以下、実施例を示して本発明を具体的に説明する。なお、この実施例は、単なる本発明の例示であり、何ら限定を意味するものではない。例中の部は、特記しない限り質量部である。なお、「常圧」とは101.3kPaを、「室温」とは25を示す。

【0099】

〔可塑剤の製造例1〕(化合物1)BKO-C9(4,4'-ジノニルケトンジフェニルエーテル化合物)

1L容の4ツ口フラスコ(温度計、滴下漏斗、窒素吹き込み管付き)にジフェニルエーテル(和光純薬工業社製)57.2g(0.34モル)、触媒として水酸化アルミニウム(無水)(和光純薬工業社製)112g(0.84モル)、ジクロロメタン超脱水(和光純薬工業社製)560mLを加え、常圧、窒素雰囲気下、0に冷却して15分撹拌した

10

20

30

40

50

。塩化デカノイル（和光純薬工業社製）141g（0.74モル）とジクロロメタン100mLの混合溶液を0で滴下し、20分攪拌後、室温に昇温して12時間攪拌した。反応終了後、混合物を0の2N塩酸1Lに注ぎ、ジクロロメタン1Lを加えて抽出した。有機相をまとめて、水と飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥し、乾燥剤を濾別して溶媒を減圧留去した。得られた粗生成物をクロロホルムに溶解させ、ヘキサンを加えて再沈殿を行い、白色結晶（化合物1）を得た。

【0100】

実施例1及び比較例1

表1に示すポリエステル樹脂組成物の原料を、同方向噛み合型二軸押出機（日本製鋼所社製TEX-28V）を用いて280で溶融混練し、ストランドカットを行い、ポリエステル樹脂組成物のペレットを得た。なお、得られたペレットは、110で3時間除湿乾燥し、水分量を500ppm以下とした。

10

【0101】

得られたペレットを、射出成形機（日本製鋼所社製J110AD-180H、シリンダー温度設定6箇所）を用いて射出成形した。シリンダー温度をノズル先端側から5ユニット目までを270、残りの1ユニットを230、ホッパー下を45に設定した。金型温度は80に設定し、平板試験片（127mm×12.7mm×1.6mm）を成形し、ポリエステル樹脂組成物の成形体を得た。

【0102】

なお、表1における原料は以下の通りである。

20

〔熱可塑性ポリエステル樹脂〕

PET：ポリエチレンテレフタレート樹脂、RT-553C（日本ユニペット社製、非強化、ガラス転移点：70、結晶化エンタルピーHmc：42J/g）

〔可塑剤〕

BKO-C9：可塑剤の製造例1で調製した化合物1、分子量479

〔無機充填剤〕

マイカ：A-21S（ヤマグチマイカ社製、最大面における最長辺の長さ：23μm、最大面の厚み：0.33μm、アスペクト比：70）

〔結晶核剤〕

安息香酸Na：安息香酸ナトリウム（和光純薬工業社製）

30

【0103】

得られた成形体の特性を、下記の試験例1～3の方法に従って評価した。結果を表1に示す。

【0104】

試験例1〔制振性〕

平板試験片（127mm×12.7mm×1.6mm）について、JIS K7391に基づいて、中央加振法により計測した周波数応答関数の2次共振のピークから、半値幅法により損失係数を算出した。発振器はType 3160、増幅器はType 2718、加振器はType 4810、加速度センサはType 8001で構成されるシステムを用い（いずれもB&K社製）、損失係数計測ソフトウェアMS18143を用いた。測定環境は恒温槽（エスペック社製、PU-3J）で制御し、70で測定した。損失係数が好ましくは0.05以上、より好ましくは0.06以上で損失係数が高く、振動の減衰が速いと判断することができ、その数値が高いほどその効果がより高いと判断できる。

40

【0105】

試験例2〔剛性〕

平板試験片（127mm×12.7mm×1.6mm）について、JIS K7391に基づいて、中央加振法により計測した周波数応答関数の2次周波数から、縦弾性係数を算出する方法により70での動的弾性率を算出した。測定装置については試験例1と同方法である。動的弾性率が3.5GPa以上の場合に良好な剛性を有すると判断すること

50

ができる。

【0106】

試験例3〔耐熱性〕

平板試験片(127mm×12.7mm×1.6mm)について、一端を治具で固定し、自由端長さを100mmとした。昇温速度10 /分で自重変形により自由端先端が20mm撓んだ(たわんだ)時の温度を自重変形温度として求めた。その数値が高いほど耐熱性に優れることを示す。

【0107】

【表1】

表1

		実施例	比較例
		1	1
樹脂	PET	100	100
可塑剤	BKO-C9	8	—
無機充填剤	マイカ	40	40
有機結晶核剤	安息香酸 Na	1	1
可塑剤と無機充填剤の質量比 〔可塑剤/無機充填剤〕		17/83	—
制振性(70°C)	損失係数中央加振法/2次共振	0.084	0.013
剛性(70°C)	動的弾性率(GPa)	4.9	5.0
耐熱性	自重変形温度(°C)	160	98

\* 原料の使用量は質量部を示す。

【0108】

結果、表1に示すように、特定構造の可塑剤を含有するポリエステル樹脂組成物は、高温領域で剛性に優れながらも制振性にも優れ、また、耐熱性も良好であることが分かる。

【産業上の利用可能性】

【0109】

本発明のポリエステル樹脂組成物は、例えばスピーカー、テレビ、ラジカセ、ヘッドフォン、オーディオコンポ又はマイク等の音響機器の材料や電気製品、乗物、建築物、産業用機器等の製品又はそれらの部品、筐体に制振材料として好適に使用することができる。

10

20

30

## フロントページの続き

(51)Int.Cl.	F I			テーマコード(参考)
<b>F 1 6 F 15/02 (2006.01)</b>	F 1 6 F	15/02		Q
<b>C 0 9 K 3/00 (2006.01)</b>	C 0 9 K	3/00		P

Fターム(参考) 3J048 AA04 AC05 AD05 BD04 CB21  
 4F071 AA44 AB26 AC07 AD05 AE04 AE17 AF14 AF45 AF51 BA01  
 BB05  
 4J002 AB01X CF03W CF04W CF05W DA027 DA067 DE077 DE097 DE117 DE137  
 DE147 DE187 DE237 DF017 DG047 DJ007 DJ017 DJ037 DJ047 DJ057  
 DK007 DL007 EA046 ED066 EE036 EE046 EV046 EV236 FA017 FA027  
 FA047 FA04X FA087 FA107 FB097 FB147 FB267 FD017 FD026 FD200  
 GB01 GL00 GN00 GQ00 GR00