

(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  
2019年3月14日(14.03.2019)



(10) 国際公開番号  
**WO 2019/049793 A1**

(51) 国際特許分類:

*B32B 27/36* (2006.01)    *C08K 7/00* (2006.01)  
*B32B 27/00* (2006.01)    *C08L 53/00* (2006.01)  
*C08J 5/18* (2006.01)    *C08L 67/03* (2006.01)  
*C08K 5/11* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2018/032430

(22) 国際出願日: 2018年8月31日(31.08.2018)

(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:  
特願 2017-171453 2017年9月6日(06.09.2017) JP

(71) 出願人: 花王株式会社 (**KAO CORPORATION**)  
[JP/JP]; 〒1038210 東京都中央区日本橋茅場町一丁目14番10号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 小田 義朗 (**ODA, Yoshiro**). 菱田 智之 (**HISHIDA, Tomoyuki**); 〒5306125 大阪府大阪市北区中之島三丁目3番23号 積水成型工業株式会社内 Osaka (JP). 田所 淳人

(**TADOKORO, Atsuhito**); 〒5306125 大阪府大阪市北区中之島三丁目3番23号 積水成型工業株式会社内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 細田 芳徳 (**HOSODA, Yoshinori**); 〒5406591 大阪府大阪市中央区大手前一丁目7番31号 OMMビル5階 私書箱26号 細田国際特許事務所内 Osaka (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, 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, KE, KG, KH, 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.

(54) Title: LAMINATED SHEET

(54) 発明の名称: 積層シート

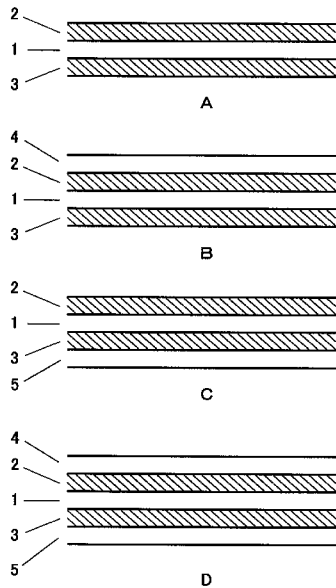


図1

(57) **Abstract:** The present invention pertains to a laminated sheet comprising a laminated structure in which a first damping layer (2) is laminated on the upper surface of a polycarbonate layer (1), whereas a second damping layer (3) is laminated on the undersurface of said polycarbonate layer, wherein the first and second damping layers are each composed of a sheet-like formed body of a polyester resin composition that comprises: a thermoplastic polyester resin (A) comprising a component that includes a dicarboxylic acid component and a diol component; a component (B) that is a plasticizer and/or an elastomer; and an inorganic filler (C). The laminated sheet according to the present invention has sufficient stiffness and impact strength because of having the polycarbonate layer therein, and furthermore exhibits an excellent damping effect because of having a high loss coefficient, and therefore, this laminated sheet can be suitably used as a material for audio equipment such as speakers, televisions, radio-cassette recorders, headphones, audio components, and microphones, or as a damping material for products such as appliances, vehicles, architectural structures, and industrial machines, or components thereof, or casings thereof.



WO 2019/049793 A1

(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))

---

(57) 要約 : 本発明は、ポリカーボネート層 (1) の上面に第一の制振層 (2) が、及び該ポリカーボネート層の下面に第二の制振層 (3) が積層された積層構造からなる積層シートであって、第一の制振層及び第二の制振層が、ジカルボン酸成分とジオール成分とを含む成分から構成される熱可塑性ポリエステル樹脂 (A)、可塑剤及び/又はエラストマーである成分 (B)、並びに無機充填剤 (C) を含有してなるポリエステル樹脂組成物のシート状成形体である、積層シートに関する。本発明の積層シートはポリカーボネート層を有するために十分な剛性と衝撃強度を有し、それだけでなく損失係数が高いため制振効果に優れているので、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、筐体用の制振材料として好適に使用することができる。

## 明 細 書

**発明の名称**：積層シート

### 技術分野

[0001] 本発明は、制振材料用の積層シートに関する。

### 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。制振性の高い材料の一つとしてとしては、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（特許文献1）や、制振性を付与した樹脂シートが挙げられる。しかしながら、金属板を用いた材料は製品自体が重くなる問題があった。さらに、制振性を付与した樹脂シートの単体は剛性が低く、自立性がないものが多いという問題があった。

### 先行技術文献

#### 特許文献

[0003] 特許文献1：特開2016-186207号公報

### 発明の概要

[0004] 本発明は、下記〔1〕に関する。

〔1〕 ポリカーボネート層の上面に第一の制振層が、及び該ポリカーボネート層の下面に第二の制振層が積層された積層構造からなる積層シートであって、

第一の制振層及び第二の制振層が、ジカルボン酸成分とジオール成分とを含む成分から構成される熱可塑性ポリエステル樹脂（A）、可塑剤及び／又はエラストマーである成分（B）、並びに無機充填剤（C）を含有してなるポリエステル樹脂組成物のシート状成形体である、積層シート。

### 図面の簡単な説明

[0005] [図1]図1は、本発明の積層シートの種々の態様の断面構造を示す模式図である。

[図2]図2は、比較対象としての積層シートの種々の態様の断面構造を示す模式図である。

[図3]図3は、本発明の積層シートの一態様の断面構造を示す模式図である。

### 発明の詳細な説明

[0006] 本発明は、金属材料が不要な程度に十分な剛性と衝撃強度を有し、かつ優れた制振性を有する積層シートに関する。

[0007] 本発明の積層シートは、金属材料が不要な程度に十分な剛性と衝撃強度を有し、かつ優れた制振性を発揮することができる。

[0008] 以下、本発明の積層シートについて詳細に説明する。

#### [0009] 1. 積層シート

本発明の積層シートは、ポリカーボネート層の上面に第一の制振層が、及び該ポリカーボネート層の下面に第二の制振層が積層された積層構造からなる積層シートであって、

第一の制振層及び第二の制振層が、ジカルボン酸成分とジオール成分とを含む成分から構成される熱可塑性ポリエステル樹脂(A)、可塑剤及び／又はエラストマーである成分(B)、並びに無機充填剤(C)を含有してなるポリエステル樹脂組成物のシート状成形体であることを特徴の一つとする。

[0010] かかる積層構造を基本骨格として有する本発明の積層シートの一態様の断面構造を模式的に図1Aとして示す。図1Aに示される積層シートは、ポリカーボネート層1の上面に第一の制振層2が積層され、ポリカーボネート層1の下面に第二の制振層3が積層されている。本明細書において、図1Aに示される積層シートのポリカーボネート層1から見て第一の制振層2が積層される方向を「上」又は「上面」と称し、第二の制振層3が積層される方向を「下」又は「下面」と称する。

[0011] 本発明においては、制振層の存在する位置に特徴を有する。積層シートに剛性や自立性を付与する観点から、単に、自立性を有する(ポリカーボネート製等の)基材となるシートに制振材を張り付ける2層構造や、基材となるシートで制振材を挟む3層構造としたものが考えられる。しかしながら、基

材となるシートに単に制振材を張り付けた2層構造のシートでは、高い制振性は得られるものの、強度や耐熱性の点で十分ではない。一方で、基材となるシートで制振材を挟んだ3層構造のシートでは強度を保てるものの、制振性があまり向上しない。そこで本発明者らは、積層シート中の制振材（制振層）の位置について検討を進め、本発明を完成させた。

[0012] 前記制振層の存在する位置にこのような特徴を有することにより、積層シートの自立性を確保しつつ積層シートの十分な剛性と衝撃強度と制振性を向上させることができる。かかる本発明の積層シートが優れた制振効果を発揮するメカニズムは、以下のように推定される。即ち、積層シートの表面（即ち、上面及び下面の両面）に制振層を配置することで、曲げなどの歪みがシートに加わった時、その歪みエネルギーが表面側の制振層に偏ることとなり、その結果、エネルギー損失が起こり、制振性を発現すると考えられる。さらに表面側の制振層の厚みを大きくすることによって、表面側の制振層の歪みエネルギーがさらに増大すると予想され、それによりさらに制振性が向上することが考えられる。しかも、意外にもかかる効果は、かかる積層シートの表面にさらにポリカーボネート層が積層された構造のものであっても発現することが分かった。さらには、優れた制振効果以外にも、基材となるシートの耐薬品性の向上、ブリードおよびアウトガスの抑制といった効果も期待できる。

[0013] 本発明の積層シートは剛性と衝撃強度及び優れた制振性を有するので、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システム等の冷却ファン付電気製品、洗濯機、衣類乾燥機、エアコン室内機、ミシン、食器洗浄機、ファンヒーター、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、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、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；産業用輸送部材として、灯油缶、ドラム缶、複合容器、タンクローリー、輸送用ケース等に使用できる。

[0014] <層構成>

本発明の積層シートの層構成について説明する。

本発明の積層シート全体の厚み（即ち、総厚み）としては、使用用途で要求される強度および剛性の観点から、好ましくは0.3mm以上、より好ましくは1.0mm以上、更に好ましくは1.5mm以上、更に好ましくは2.0mm以上、更に好ましくは2.5mm以上であり、使用用途で要求される質量、強度および剛性の観点から、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5.0mm以下である。

[0015] [ポリカーボネート層]

ポリカーボネート層は、後述のポリカーボネート樹脂組成物から成形されるシート状成形体である。

[0016] 本明細書において、ポリカーボネート層は、単一層だけでなく、複数の層から構成される層（例えば、複数のポリカーボネート層を熱圧着プレスして形成される層）であっても、一層のポリカーボネート層として扱う。第一の

制振層及び第二の制振層についても同様である。

[0017] ポリカーボネート層の厚みとしては、使用する薄物シートを製造する成形方法の特性の観点から、好ましくは0.05mm以上、より好ましくは0.10mm以上、更に好ましくは0.15mm以上であり、使用する厚物プレートを製造する成形方法の特性の観点から、好ましくは10mm以下、より好ましくは5.0mm以下、更に好ましくは1.0mm以下である。ポリカーボネート層が複数ある場合、それらの厚みは同一でも異なってもよい。例えば、図1Dに示されるポリカーボネート層1、ポリカーボネート層4及びポリカーボネート層5の厚みはそれぞれ同一であってもよく、異なってもよい。

[0018] [第一の制振層]

第一の制振層は、後述の成分(A)、成分(B)及び成分(C)を含有してなるポリエステル樹脂組成物のシート状成形体である。

[0019] 第一の制振層の厚みとしては、使用する薄物シートを製造する成形方法の特性の観点から、好ましくは0.05mm以上、より好ましくは0.2mm以上、更に好ましくは0.4mm以上であり、使用する厚物プレートを製造する成形方法の特性の観点から、好ましくは10mm以下、より好ましくは5.0mm以下、更に好ましくは1.0mm以下である。

[0020] 第一の制振層の上面に、さらにポリカーボネート層が積層されていてもよい。かかる構造を有する本発明の積層シートの一態様の断面構造を模式的に図1Bとして示す。図1Bに示される積層シートは、ポリカーボネート層1の上面に第一の制振層2が積層され、さらに第一の制振層2の上面にポリカーボネート層4が積層され、ポリカーボネート層1の下面に第二の制振層3が積層されている。これにより、さらなる剛性と衝撃強度の向上と耐薬品性の向上、ブリードおよびアウトガスの抑制といった効果も期待できる。

[0021] 第一の制振層の上面に積層されるポリカーボネート層の厚みとしては、使用する薄物シートを製造する成形方法の特性の観点から、好ましくは0.05mm以上、より好ましくは0.10mm以上、更に好ましくは0.15mm

m以上であり、使用する厚物プレートを製造する成形方法の特性の観点から、好ましくは10mm以下、より好ましくは5.0mm以下、更に好ましくは1.0mm以下である。

[0022] さらに、第一の制振層の上面に積層されるポリカーボネート層の厚みは、第一の制振層の厚みを100%とした場合、制振効果の観点から、好ましくは200%以下、より好ましくは100%以下であり、更に好ましくは第一の制振層の厚みよりも薄いこと、具体的には70%以下であり、剛性と衝撃強度向上の観点から、好ましくは10%以上、より好ましくは20%以上である。

[0023] [第二の制振層]

第二の制振層は、後述の成分(A)、成分(B)及び成分(C)を含有してなるポリエステル樹脂組成物のシート状成形体である。

[0024] 第二の制振層の厚みとしては、使用する薄物シートを製造する成形方法の特性の観点から、好ましくは0.05mm以上、より好ましくは0.1mm以上、更に好ましくは0.2mm以上であり、使用する厚物プレートを製造する成形方法の特性の観点から、好ましくは10mm以下、より好ましくは5.0mm以下、更に好ましくは1.0mm以下である。第二の制振層の厚みは第一の制振層の厚みと同一であってもよく、異なってもよい。

[0025] 第二の制振層の下面に、さらにポリカーボネート層が積層されていてもよい。かかる構造を有する本発明の積層シートの一態様の断面構造を模式的に図1Cとして示す。図1Cに示される積層シートは、ポリカーボネート層1の上面に第一の制振層2が積層され、ポリカーボネート層1の下面に第二の制振層3が積層され、さらに第二の制振層3の下面にポリカーボネート層5が積層されている。これにより、さらなる剛性と衝撃強度の向上と耐薬品性の向上、ブリードおよびアウトガスの抑制といった効果も期待できる。

[0026] 第二の制振層の下面に積層されるポリカーボネート層の厚みとしては、使用する薄物シートを製造する成形方法の特性の観点から、好ましくは0.05mm以上、より好ましくは0.15mm以上、更に好ましくは0.20m

m以上であり、使用する厚物プレートを製造する成形方法の特性の観点から、好ましくは10mm以下、より好ましくは5.0mm以下、更に好ましくは1.0mm以下である。

[0027] さらに、第二の制振層の下面に積層されるポリカーボネート層の厚みは、第二の制振層の厚みを100%とした場合、制振効果の観点から、好ましくは200%以下、より好ましくは100%以下であり、更に好ましくは第二の制振層の厚みよりも薄いこと、具体的には70%以下であり、剛性と衝撃強度向上の観点から、好ましくは10%以上、より好ましくは20%以上である。

[0028] 本発明の積層シートのさらなる一態様として、その断面構造が模式的に図1Dとして示される態様が挙げられる。図1Dに示される積層シートは、第一の制振層2の上面と第二の制振層3の下面に、それぞれさらにポリカーボネート層4又はポリカーボネート層5が積層されている。このような態様の場合、ポリカーボネート層5の厚みはポリカーボネート層4の厚みと同一であってもよく、異なってもよい。

[0029] 本発明の積層シートのさらなる一態様として、その断面構造が模式的に図3Aとして示される態様が挙げられる。図3Aに示される積層シートは、図1Bに示される積層シートのポリカーボネート層4の上面に更に制振層6が積層された構造を有する。このような態様の場合、制振層6の厚みはポリカーボネート層4の厚みと同一であってもよく、異なってもよい。

[0030] 本発明の積層シートは、積層シートの剛性や衝撃強度と制振性とを両立できるものである。積層シートをどのような場面に適用するか、即ち、剛性や衝撃強度を重視する場面か、あるいは積層シートの制振性を重視する場面かによって、ポリカーボネート層の総厚みと制振層の総厚みとの好ましい関係は変化し得る。ここで、ポリカーボネート層の総厚みとは、第一及び第二の制振層に挟まれるポリカーボネート層の厚みと、（それが存在する場合は）第一の制振層の上面及び／又は第二の制振層の下面に積層されているポリカーボネート層の厚みの合計であり、制振層の総厚みとは、第一の制振層及び

第二の制振層の厚み（と、それが存在する場合は更なる制振層の厚みと）の合計である。積層シートの剛性や衝撃強度を重視する態様では、ポリカーボネート層の総厚みは制振層の総厚みと同じかそれよりも厚い方が好ましく、具体的には、制振層の総厚みを100%とした場合、ポリカーボネート層の総厚みは、好ましくは100%以上、より好ましくは200%以上であり、さらにより好ましくは300%以上であり、上限値としては好ましくは2000%以下であり、より好ましくは1000%以下である。一方、積層シートの制振性能を重視する態様では、ポリカーボネート層の総厚みは制振層の総厚みと同じかそれよりも薄い方が好ましく、具体的には、制振層の総厚みを100%とした場合、ポリカーボネート層の総厚みは、好ましくは100%以下、より好ましくは67%以下であり、下限値としては好ましくは33%以上である。

[0031] 本発明の積層シートを構成する制振層、即ちポリエステル樹脂組成物のシート状成形体におけるエラストマーの表面存在量は、PCシートとの接着性の観点から、好ましくは0.5%以上、より好ましくは1%以上、更に好ましくは5%以上であり、一方、弾性率を維持する観点から、好ましくは50%以下、より好ましくは40%以下、更に好ましくは30%以下である。エラストマーの表面存在量は、ポリエステル樹脂組成物のシート状成形体を溶剤に浸漬してエラストマーを除去し、処理後の成形体をSEMで観察することで求める。具体的には、処理後の成形体の空穴部分をエラストマーが存在していた領域として、一定面積あたりの空穴部分の面積%でエラストマーの表面存在量を示す。

[0032] 本発明の積層シートを構成する制振層におけるエラストマーの粒径は、PCシートとの接着性の観点から、好ましくは0.01 $\mu\text{m}$ 以上、より好ましくは0.05 $\mu\text{m}$ 以上、更に好ましくは0.1 $\mu\text{m}$ 以上であり、一方、弾性率を維持する観点で、好ましくは100 $\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは70 $\mu\text{m}$ 以下、さらに好ましくは50 $\mu\text{m}$ 以下である。エラストマーの粒径は、前記の「エラストマーの表面存在量」の求め方と同じ方法で得られる、エラスト

マーの除去処理後の成形体をSEMで観察することで求める。具体的には、成形体の空穴部分をエラストマーが存在していた領域として、個々の空穴の直径を測定する。合計100個の空穴の直径を測定し、その平均値をエラストマーの粒径とする。

[0033] 本発明の積層シートを構成する制振層は、ポリカーボネートとの接着性の観点から、表面積が大きい方が好ましい。ここで表面積が大きいとは、「表面積／任意に指定した領域の面積」が大きいことを言う。ポリカーボネートとの接着性の観点から、「表面積／任意に指定した領域の面積」は好ましくは1以上、より好ましくは2以上、更に好ましくは5以上、更に好ましくは8以上であり、一方、シート形状の安定性の観点から、好ましくは100以下、より好ましくは50以下である。「表面積／任意に指定した領域の面積」は、共焦点レーザー顕微鏡で得られた三次元画像を利用して測定することができる。

[0034] <樹脂成分>

次に、各層を構成する樹脂成分について具体的に説明する。

[0035] [ポリカーボネート]

本発明において、ポリカーボネート層に使用されるポリカーボネートは、分子の主鎖中に炭酸エステル結合を含む構造、即ち、 $-(O-R-O-CO)-$ （ここで、Rは脂肪族基、芳香族基又は脂肪族基と芳香族基の両者を含むもの、さらに直鎖構造又は分岐構造を持つもの）を単位構造として有するものであれば特に限定されない。このようなポリカーボネートを含有するポリカーボネート樹脂組成物のシート状成形物を使用することで、形状を保持するための金属板が不要な自立性を有する積層シートを得ることができる。

[0036] 制振層との接着性の観点から、特定のモノマーと共重合したポリカーボネートがより好ましい。

[0037] ポリカーボネート層に使用されるポリカーボネートのメルトフローレート(MFR)としては、押出成形および押出機の特性の観点から、300℃、1.2kgfの条件で好ましくは0.1g/10分以上、より好ましくは0

、5 g / 10分以上、更に好ましくは1.0 g / 10分以上であり、熱プレス成形性の観点の観点から、好ましくは20 g / 10分以下、より好ましくは15 g / 10分以下、更に好ましくは8.0 g / 10分以下である。ポリカーボネートのMFRの値は、具体的には後述の実施例に記載の方法により測定される。

[0038] 本発明におけるポリカーボネート樹脂組成物には、一般的な、紫外線吸収剤、熱安定剤、着色剤、離型剤、滑剤、帯電防止剤等の各種添加剤が含まれていてもよい。

[0039] ポリカーボネート層が複数ある場合、それらを構成する樹脂組成物の組成は同一でも異なってもよい。例えば、図1Dに示されるポリカーボネート層1を構成する樹脂組成物の組成、ポリカーボネート層4を構成する樹脂組成物の組成及びポリカーボネート層5を構成する樹脂組成物の組成はそれぞれ同一であってもよく、異なってもよい。

[0040] [ポリエステル樹脂組成物]

本発明における第一の制振層及び第二の制振層に用いられる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)、可塑剤/又はエラストマーである成分(B)、並びに無機充填剤(C)を含有する。本発明において、第一の制振層を構成するポリエステル樹脂組成物の組成は、第二の制振層を構成するポリエステル樹脂組成物の組成と同一であってもよく、異なってもよい。

[0041] 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、可塑剤及び/又はエラストマーを添加することで、柔軟性を付与しエネルギー損失を起りやすくすることで、損失係数を向上させ、樹脂組成物の弾性率を高めながら、損失係数の低下を抑制した。さらに、本発明に用いられるポリエステル樹脂組成物においては、樹脂あるいは可塑剤及び/又はエラ

ストマーと無機充填剤の間の界面における摩擦が発生してエネルギー損失が起こり、よりいっそうの損失係数の低下が抑制されると推定される。

[0042] 本発明における熱可塑性ポリエステル樹脂（A）の質量平均分子量の上限は、好ましくは30万である。用いる熱可塑性ポリエステル樹脂（A）の種類によって上限値が変化することはないが、損失係数を向上させる観点から、下限値としては、例えば、熱可塑性ポリエステル樹脂（A）としてポリブチレンテレフタレート樹脂を用いる場合、7万以上が好ましく、8万以上がより好ましく、10万以上が更に好ましい。熱可塑性ポリエステル樹脂（A）としてポリトリメチレンテレフタレート樹脂を用いる場合、6万以上が好ましく、7万以上がより好ましい。熱可塑性ポリエステル樹脂（A）としてポリエチレンテレフタレート樹脂を用いる場合、3万以上が好ましく、4万以上がより好ましく、5万以上が更に好ましい。なお、本発明におけるポリエステル樹脂組成物は後述する絶対結晶化度を有することから、下限は絶対結晶化度（ $X_c$ ）の値によって異なり、絶対結晶化度が5%以上37%以下であれば、用いる熱可塑性ポリエステル樹脂（A）の質量平均分子量が5万未満でも性能を発現させることができ、例えば、2万以上が挙げられる。絶対結晶化度が37%を超える場合は、用いる熱可塑性ポリエステル樹脂（A）の質量平均分子量は5万以上であることが好ましい。熱可塑性ポリエステル樹脂（A）の質量平均分子量は、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。

[0043] 本発明におけるポリエステル樹脂組成物の絶対結晶化度（ $X_c$ ）の下限は、好ましくは5%であればよいが、損失係数を向上させる観点から用いる熱可塑性ポリエステル樹脂（A）の種類によって次のような範囲が示される。例えば、熱可塑性ポリエステル樹脂（A）としてポリブチレンテレフタレート樹脂を用いる場合、10%以上が好ましく、15%以上がより好ましく、20%以上が更に好ましく、25%以上が更に好ましく、35%以下が好ましく、30%以下がより好ましく、28%以下が更に好ましい。熱可塑性ポリエステル樹脂（A）としてポリトリメチレンテレフタレート樹脂を用いる

場合、10%以上が好ましく、15%以上がより好ましく、20%以上が更に好ましく、35%以下が好ましい。熱可塑性ポリエステル樹脂(A)としてポリエチレンテレフタレート樹脂を用いる場合、10%以上が好ましく、15%以上がより好ましく、20%以上が更に好ましく、25%以上が更に好ましく、35%以下が好ましい。なお、本発明における熱可塑性ポリエステル樹脂(A)は前述した質量平均分子量を有することから、絶対結晶化度の値は該樹脂(A)の質量平均分子量の値によって異なり、具体的には、該樹脂(A)の質量平均分子量が5万以上15万以下であれば、37%を超える場合でも性能を発現させることができ、例えば、上限としては好ましくは40%以下が挙げられる。質量平均分子量が5万未満の場合は好ましくは37%以下である。なお、本明細書において、ポリエステル樹脂組成物の絶対結晶化度とはマトリックス樹脂中の結晶部の割合を意味し、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。

[0044] また、本発明における熱可塑性ポリエステル樹脂(A)やポリエステル樹脂組成物は前記した範囲内の質量平均分子量や絶対結晶化度を有することが好ましいが、その組み合わせとしては、熱可塑性ポリエステル樹脂(A)がポリブチレンテレフタレート樹脂の場合、質量平均分子量が7万以上15万以下で絶対結晶化度が25%以上35%以下が好ましく、質量平均分子量が10万以上15万以下で絶対結晶化度が25%以上35%以下がより好ましい。熱可塑性ポリエステル樹脂(A)がポリエチレンテレフタレート樹脂の場合、質量平均分子量が3万以上15万以下で絶対結晶化度が10%以上35%以下が好ましく、質量平均分子量が4万以上15万以下で絶対結晶化度が20%以上35%以下がより好ましい。

[0045] [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。

- [0046] 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、例えば、テレフタル酸等、特開2016-89148号公報の段落0014に列挙されたものが挙げられる。ジカルボン酸成分は単独で又は2種以上組み合わせて用いることができる。
- [0047] 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、例えば、1,4-ブタンジオール等、特開2016-89148号公報の段落0015に列挙されたものが挙げられる。ジオール成分は、単独で又は2種以上組み合わせて用いることができる。
- [0048] 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T<sub>g</sub>を向上させ、制振性と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、例えば特開2016-89148号公報の段落0016に列挙されたものが挙げられる。
- [0049] 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。
- [0050] 得られる熱可塑性ポリエステル樹脂（A）は、成形加工性を向上させる観点から、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、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、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。

[0051] また、本発明における熱可塑性ポリエステル樹脂（A）は、制振性の観点から結晶性を有することが好ましい。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 $20^{\circ}\text{C}/\text{min}$ で樹脂を $25^{\circ}\text{C}$ から $300^{\circ}\text{C}$ まで加熱し、その状態で5分間保持後、次いで $25^{\circ}\text{C}$ 以下となるよう $-20^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 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 $\Delta H_{mc}$ が $1\text{ J}/\text{g}$ 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 $\Delta H_{mc}$ が好ましくは $5\text{ J}/\text{g}$ 以上、より好ましくは $10\text{ J}/\text{g}$ 以上、更に好ましくは $15\text{ J}/\text{g}$ 以上、更に好ましくは $30\text{ J}/\text{g}$ 以上の樹脂を用いるのがよい。なお、本明細書において、樹脂の結晶化エンタルピーは、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。

[0052] 熱可塑性ポリエステル樹脂（A）の具体例としては、例えば特開2016-89148号公報の段落0020に列挙されたものが挙げられ、制振性の観点から、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、 $T_g: 50^{\circ}\text{C}$ ）が好ましい。熱可塑性ポリエステル樹脂（A）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。

[0053] 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、剛性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。

[0054] 本発明において、熱可塑性ポリエステル樹脂(A)の質量平均分子量としては、制振性向上の観点から、好ましくは3万以上、より好ましくは5万以上、更に好ましくは7万以上であり、成形加工性向上の観点の観点から、好ましくは30万以下、より好ましくは20万以下、更に好ましくは15万以下である。熱可塑性ポリエステル樹脂(A)の質量平均分子量は、具体的には後述の実施例に記載の方法により測定される。

[0055] [可塑剤及び／又はエラストマーである成分(B)]

本発明における成分(B)としては、可塑剤及びエラストマーからなる群より選ばれる1種又は2種以上を用いる。なお、本明細書において、可塑剤及び／又はエラストマーを、まとめて成分(B)と記載することもある。

[0056] (可塑剤)

本発明における可塑剤としては、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、多価カルボン酸エステル系可塑剤、及びビスフェノール系可塑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。

[0057] 製造過程での積層シートのシート物性の変化を抑制する観点から、可塑剤としては低揮発性の可塑剤が好ましい。具体的には、5%質量減少温度が200℃以上の可塑剤が好ましく、220℃以上の可塑剤がより好ましく、240℃以上の可塑剤が更に好ましく、260℃以上の可塑剤が更に好ましい。ここで、可塑剤の5%質量減少温度の測定は、空気雰囲気下、10℃/minで昇温するという条件で実施する。さらに、260℃、空気雰囲気下、5分等温保持での可塑剤の重量保持率は、好ましくは80%以上、より好ましくは85%以上、更に好ましくは90%以上であり、一方、損失係数を向上させる観点から、好ましくは100%以下、より好ましくは98%以下である。

[0058] ポリエステル系可塑剤の具体例としては、例えば特開2016-89148号公報の段落0024に列挙されたものが挙げられる。好ましい例としては、例えば、アジピン酸と、ジエチレングリコールモノメチルエーテル／ベ

ンジアルアルコールとの混合ジエステルが挙げられる。

[0059] 多価アルコールエステル系可塑剤の具体例としては、例えば特開2016-89148号公報の段落0025に列挙されたものが挙げられる。

[0060] 多価カルボン酸エステル系可塑剤としては、例えば特開2016-89148号公報の段落0026に列挙されたものが挙げられる。

[0061] ビスフェノール系可塑剤としては、例えば特開2016-89148号公報の段落0027に列挙されたものが挙げられる。

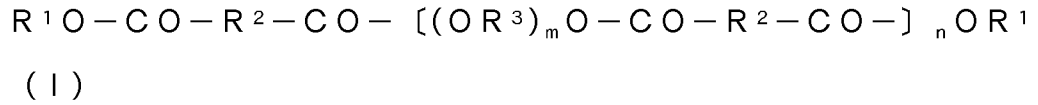
[0062] 可塑剤としては、損失係数を向上させる観点から、好ましくは（ポリ）オキシアリキレン基又は炭素数2～10のアリキレン基を有する、ポリエステル系可塑剤、多価アルコールエステル系可塑剤、多価カルボン酸エステル系可塑剤、及びビスフェノール系可塑剤からなる群より選ばれる1種又は2種以上を含み、より好ましくは、（ポリ）オキシアリキレン基を有する、ポリエステル系可塑剤、多価アルコールエステル系可塑剤、多価カルボン酸エステル系可塑剤、及びビスフェノール系可塑剤からなる群より選ばれる1種又は2種以上を含む。尚、（ポリ）オキシアリキレン基とは、オキシアリキレン基又はポリオキシアリキレン基を意味する。オキシアリキレン基としては、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のアリキレン基を有するもので、オキシエチレン基、オキシプロピレン基又はオキシブチレン基が更に好ましく、オキシエチレン基又はオキシプロピレン基がより更に好ましい。

[0063] 可塑剤としては、損失係数を向上させる観点から、以下の化合物群（A）～（C）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く、また以下の化合物群（A）及び（B）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より好ましい。2種以上を組み合わせる場合は、同じ化合物群同士でも異なる化合物群同士であってもよい。

化合物群（A） 分子中に2個以上のエステル基を有するエステル化合物であって、該エステル化合物を構成するアルコール成分の少なくとも1種が水酸基1個当たり炭素数2～3のアリキレンオキサイドを平均0.5～5モル

付加したアルコールであるエステル化合物

化合物群 (B) 式 (1) :



(式中、 $R^1$ は炭素数が1~4のアルキル基、 $R^2$ は炭素数が2~4のアルキレン基、 $R^3$ は炭素数が2~6のアルキレン基であり、 $m$ は1~6の数、 $n$ は1~12の数を示し、但し、全ての $R^2$ は同一でも異なってもよく、全ての $R^3$ は同一でも異なってもよい)

で表される化合物

化合物群 (C) 分子中に2個以上のエステル基を有するエステル化合物であって、該エステル化合物を構成するアルコール成分がモノアルコールであるエステル化合物

[0064] 化合物群 (A)

化合物群 (A) に含まれるエステル化合物としては、分子中に2個以上のエステル基を有する多価アルコールエステル又は多価カルボン酸エーテルエステルであって、該エステル化合物を構成するアルコール成分の少なくとも1種が水酸基1個当たり炭素数2~3のアルキレンオキサイドを平均0.5~5モル付加したアルコールであるエステル化合物が好ましい。

[0065] 具体的な化合物としては、酢酸とグリセリンのエチレンオキサイド平均3~6モル付加物(水酸基1個あたりエチレンオキサイドを1~2モル付加)とのエステル、酢酸とエチレンオキサイドの平均付加モル数が4~6のポリエチレングリコールとのエステル、コハク酸とエチレンオキサイドの平均付加モル数が2~3のポリエチレングリコールモノメチルエーテル(水酸基1個あたりエチレンオキサイドを2~3モル付加)とのエステル、アジピン酸とジエチレングリコールモノメチルエーテルとのエステル、テレフタル酸とエチレンオキサイドの平均付加モル数が2~3のポリエチレングリコールモノメチルエーテル(水酸基1個あたりエチレンオキサイドを2~3モル付加)とのエステル、1,3,6-ヘキサントリカルボン酸とジエチレングリコ

ールモノメチルエーテルとのエステルが好ましい。

[0066] 化合物群 (B)

式 (1) における  $R^1$  は、炭素数が 1~4 のアルキル基を示し、1 分子中に 2 個存在して、分子の両末端に存在する。 $R^1$  は炭素数が 1~4 であれば、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としては、耐着色性及び可塑化効果を発現させる観点から、1~4 が好ましく、1~2 がより好ましい。具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、*iso*-ブチル基が挙げられ、なかでも、損失係数を向上させる観点から、メチル基及びエチル基が好ましく、メチル基がより好ましい。

[0067] 式 (1) における  $R^2$  は、炭素数が 2~4 のアルキレン基を示し、直鎖のアルキレン基が好適例として挙げられる。具体的には、エチレン基、1, 3-プロピレン基、1, 4-ブチレン基が挙げられ、損失係数を向上させる観点から、エチレン基、1, 3-プロピレン基、1, 4-ブチレン基が好ましく、エチレン基がより好ましい。但し、全ての  $R^2$  は同一でも異なってもよい。

[0068] 式 (1) における  $R^3$  は、炭素数が 2~6 のアルキレン基を示し、 $OR^3$  はオキシアルキレン基として、繰り返し単位中に存在する。 $R^3$  は炭素数が 2~6 であれば、直鎖であっても分岐鎖であってもよい。アルキレン基の炭素数としては、損失係数を向上させる観点から、2~6 が好ましく、2~3 がより好ましい。具体的には、エチレン基、1, 2-プロピレン基、1, 3-プロピレン基、1, 2-ブチレン基、1, 3-ブチレン基、1, 4-ブチレン基、2-メチル-1, 3-プロピレン基、1, 2-ペンチレン基、1, 4-ペンチレン基、1, 5-ペンチレン基、2, 2-ジメチル-1, 3-プロピレン基、1, 2-ヘキシレン基、1, 5-ヘキシレン基、1, 6-ヘキシレン基、2, 5-ヘキシレン基、3-メチル-1, 5-ペンチレン基が挙げられ、なかでも、エチレン基、1, 2-プロピレン基、1, 3-プロピレン基が好ましい。但し、全ての  $R^3$  は同一でも異なってもよい。

- [0069]  $m$ はオキシアルキレン基の平均の繰り返し数を示し、耐熱性の観点から、1～6の数が好ましく、1～4の数がより好ましく、1～3の数が更に好ましい。
- [0070]  $n$ は繰り返し単位の平均の繰り返し数(平均重合度)を示し、1～12の数である。制振材料として、損失係数を向上させる観点から、1～12の数が好ましく、1～6の数がより好ましく、1～5の数が更に好ましい。平均重合度は、NMR等の分析によって求めてもよいが、特開2016-89148号公報の段落0100に記載の方法に従って算出することができる。
- [0071] 式(1)で表される化合物の具体例としては、 $R^1$ が全てメチル基、 $R^2$ がエチレン基又は1,4-ブチレン基、 $R^3$ がエチレン基又は1,3-プロピレン基であって、 $m$ が1～4の数、 $n$ が1～6の数である化合物が好ましく、 $R^1$ が全てメチル基、 $R^2$ がエチレン基又は1,4-ブチレン基、 $R^3$ がエチレン基又は1,3-プロピレン基であって、 $m$ が1～3の数、 $n$ が1～5の数である化合物がより好ましい。
- [0072] 式(1)で表される化合物は、前記構造を有するのであれば特に限定ないが、下記(1)～(3)の原料を反応させて得られるものが好ましい。尚、(1)と(2)とは、又は(2)と(3)とは、エステル化合物を形成していてもよい。(2)は、酸無水物や酸ハロゲン化物であってもよい。
- (1)炭素数が1～4のアルキル基を有する一価アルコール
  - (2)炭素数が2～4のアルキレン基を有するジカルボン酸
  - (3)炭素数が2～6のアルキレン基を有する二価アルコール
- [0073] (1)炭素数が1～4のアルキル基を有する一価アルコール
- 炭素数が1～4のアルキル基を有する一価アルコールとしては、前記 $R^1$ を含むアルコールであり、具体的には、メタノール、エタノール、1-プロパノール、2-プロパノール、1-ブタノール、2-ブタノール、2-メチル-1-プロパノール、tert-ブタノールが挙げられる。なかでも、損失係数を向上させる観点から、メタノール、エタノール、1-プロパノール、1-ブタノールが好ましく、メタノール、エタノールがより好ましく、メタ

ノールが更に好ましい。

[0074] (2) 炭素数が2～4のアルキレン基を有するジカルボン酸

炭素数が2～4のアルキレン基を有するジカルボン酸としては、前記R<sup>2</sup>を含むジカルボン酸であり、具体的には、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、及びそれらの誘導体、例えば、コハク酸無水物、グルタル酸無水物、コハク酸ジメチル、コハク酸ジブチル、グルタル酸ジメチル、アジピン酸ジメチル等が挙げられる。なかでも、損失係数を向上させる観点から、コハク酸、アジピン酸及びそれらの誘導体、例えば、コハク酸無水物、コハク酸ジメチル、コハク酸ジブチル、アジピン酸ジメチルが好ましく、コハク酸及びその誘導体、例えば、コハク酸無水物、コハク酸ジメチル、コハク酸ジブチルがより好ましい。

[0075] (3) 炭素数が2～6のアルキレン基を有する二価アルコール

炭素数が2～6のアルキレン基を有する二価アルコールとしては、前記R<sup>3</sup>を含む二価アルコールであり、具体的には、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、テトラ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、2-メチル-1, 3-プロパンジオール、2, 2-ジメチル-1, 3-プロパンジオール、1, 2-ブタンジオール、1, 3-ブタンジオール、1, 4-ブタンジオール、1, 2-ペンタンジオール、1, 4-ペンタンジオール、1, 5-ペンタンジオール、2, 5-ヘキサジオール、1, 6-ヘキサジオール、3-メチル-1, 5-ペンタンジオールが挙げられる。なかでも、損失係数を向上させる観点から、ジエチレングリコール、トリ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、テトラエチレングリコール、1, 4-ブタンジオールが好ましく、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、1, 2-プロパンジオール、1, 3-プロパンジオールがより好ましく、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、1, 3-プロパンジオールが更に好ましい。

[0076] よって、前記(1)～(3)としては、

(1) 一価アルコールがメタノール、エタノール、1-プロパノール、及び1-ブタノールからなる群より選ばれる1種又は2種以上であり、(2) ジカルボン酸がコハク酸、アジピン酸、グルタル酸、及びそれらの誘導体からなる群より選ばれる1種又は2種以上であり、(3) 二価アルコールがジエチレングリコール、トリ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、テトラエチレングリコール、及び1, 4-ブタンジオールからなる群より選ばれる1種又は2種以上であることが好ましく、

(1) 一価アルコールがメタノール及びエタノールからなる群より選ばれる1種又は2種以上であり、(2) ジカルボン酸がコハク酸、アジピン酸、及びそれらの誘導体からなる群より選ばれる1種又は2種以上であり、(3) 二価アルコールがジエチレングリコール、トリエチレングリコール、1, 2-プロパンジオール、及び1, 3-プロパンジオールからなる群より選ばれる1種又は2種以上であることがより好ましく、

(1) 一価アルコールがメタノールであり、(2) ジカルボン酸がコハク酸及びその誘導体からなる群より選ばれる1種又は2種以上であり、(3) 二価アルコールがジエチレングリコール、トリエチレングリコール、及び1, 3-プロパンジオールからなる群より選ばれる1種又は2種以上であることが更に好ましい。

[0077] 前記(1)～(3)を反応させて式(1)で表されるエステル化合物を得る方法としては、特に限定はないが、例えば、以下の態様1及び態様2の方法が挙げられる。

態様1：(2) ジカルボン酸と(1) 一価アルコールのエステル化反応を行ってジカルボン酸エステルを合成する工程と、得られたジカルボン酸エステルと(3) 二価アルコールをエステル化反応させる工程を含む方法

態様2：(1) 一価アルコール、(2) ジカルボン酸、及び(3) 二価アルコールを一括反応させる工程を含む方法

[0078] これらのなかでも、平均重合度を調整する観点から、態様1の方法が好ま

しい。なお、前記した各工程の反応は、公知の方法に従って行うことができる。

[0079] 式(1)で表される化合物は、酸価が、損失係数を向上させる観点から、好ましくは1.50mg KOH/g以下、より好ましくは1.00mg KOH/g以下であり、水酸基価が、損失係数を向上させる観点から、好ましくは10.0mg KOH/g以下、より好ましくは5.0mg KOH/g以下、更に好ましくは3.0mg KOH/g以下である。なお、本明細書において、可塑剤の酸価及び水酸基価は、特開2016-89148号公報の段落0099に記載の方法に従って測定することができる。

[0080] また、式(1)で表される化合物の数平均分子量は、損失係数を向上させる観点から、耐着色性の観点から、好ましくは300~1500、より好ましくは300~1000である。なお、本明細書において、可塑剤の数平均分子量は、特開2016-89148号公報の段落0100に記載の方法に従って算出することができる。

[0081] 式(1)で表される化合物のケン化価は、損失係数を向上させる観点から、500~800mg KOH/gが好ましく、550~750mg KOH/gがより好ましい。なお、本明細書において、可塑剤のケン化価は、特開2016-89148号公報の段落0099に記載の方法に従って測定することができる。

[0082] 式(1)で表される化合物は、損失係数を向上させる観点から、2個の分子末端に対するアルキルエステル化率(末端アルキルエステル化率)が、好ましくは95%以上、より好ましくは98%以上である。なお、本明細書において、可塑剤の末端アルキルエステル化率は、特開2016-89148号公報の段落0100に記載の方法に従って算出することができる。

[0083] 式(1)で表される化合物のエーテル基価は、振動時間を短縮する観点から、0~8mmol/gが好ましく、0~6mmol/gがより好ましい。なお、本明細書において、可塑剤のエーテル基価は、特開2016-89148号公報の段落0100に記載の方法に従って算出することができる。

## [0084] 化合物群 (C)

化合物群 (C) に含まれるエステル化合物としては、具体的には、アジピン酸と 2-エチルヘキサノールとのエステル (DOA)、フタル酸と 2-エチルヘキサノールとのエステル (DOP) が好ましい。

[0085] 可塑剤中、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、多価カルボン酸エステル系可塑剤、及びビスフェノール系可塑剤からなる群より選ばれる 1 種又は 2 種以上の含有量、好ましくは (ポリ) オキシアルキレン基又は炭素数 2~10 のアルキレン基を有する、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、多価カルボン酸エステル系可塑剤、及びビスフェノール系可塑剤からなる群より選ばれる 1 種又は 2 種以上の含有量、より好ましくは (ポリ) オキシアルキレン基を有する、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、多価カルボン酸エステル系可塑剤、及びビスフェノール系可塑剤からなる群より選ばれる 1 種又は 2 種以上の含有量、ならびにかかる化合物群 (A) ~ (C) からなる群より選ばれる 1 種又は 2 種以上の化合物の含有量は、損失係数を向上させる観点から、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。なお、本明細書において、前記可塑剤の含有量とは、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。

[0086] 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、損失係数を向上させる観点から、好ましくは 1 質量部以上、より好ましくは 3 質量部以上、更に好ましくは 5 質量部以上、更に好ましくは 10 質量部以上であり、剛性低下抑制の観点から、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 質量部以下である。

[0087] 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、剛性低下抑制の観点から、好ましくは2.5質量%以下、より好ましくは2.0質量%以下、更に好ましくは1.5質量%以下である。

[0088] (エラストマー)

本発明においては、高温域及び低温域での制振性向上の観点から、1種又は2種以上のエラストマーが用いられる。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。

[0089] 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を向上する観点から、10質量部以上が好ましく、12質量部以上がより好ましく、15質量部以上が更に好ましい。また、剛性低下抑制の観点から、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。

[0090] ポリエステル樹脂組成物中の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8質量%以上、更に好ましくは9.5質量%以上であり、剛性低下抑制の観点から、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。

[0091] 本発明においては、成分(B)として、可塑剤及びエラストマーを併用してもよく、可塑剤を単独で又は2種以上とエラストマーを単独で又は2種以上とを組み合わせ用いることができる。可塑剤及びエラストマーを併用することで、室温領域の損失係数がさらに向上し、また低温領域や高温領域などの広い温度領域においても損失係数が向上するため、好ましい。

[0092] 併用時の可塑剤及びエラストマーの合計含有量は、熱可塑性ポリエステル樹脂(A)100質量部に対して、損失係数を向上させる観点から、15質量部以上が好ましく、20質量部以上がより好ましく、25質量部以上が更に好ましい。また、剛性低下抑制の観点から、60質量部以下が好ましく、50質量部以下がより好ましく、40質量部以下が更に好ましい。

[0093] また、併用時の可塑剤及びエラストマーの質量比（可塑剤／エラストマー）は、広い温度領域での損失係数向上の観点から、30／70～70／30が好ましく、40／60～60／40がより好ましい。

[0094] （熱可塑性エラストマー）

エラストマーとして熱可塑性エラストマーを用いることで、高温域及び低温域での制振性が向上する効果が奏されるため、好ましい。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。

[0095] 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 $-40^{\circ}\text{C}$ 以上であり、好ましくは $20^{\circ}\text{C}$ 以下である。熱可塑性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。

[0096] 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、ポリスチレンービニルーポリイソプレンー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）、デュポン製「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ー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、信越シリコーン製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。

[0097] （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、 $\alpha$ -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、ブチレン、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。

[0098] 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-イソプレンプロック共重合体(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プロック共重合体(SEPS)、ポリスチレン-ビニル-ポリイソプレンプロック共重合体(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プロック共重合体、ポリスチレン-水素添加ポリブタジエン-ポリイソプレンプ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-ポリイソプレンプ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。

[0099] 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、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。

[0100] スチレン系エラストマーとしては、スチレン・イソプ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が好ましい。

[0101] (スチレン・イソプレンブロック共重合体)

本発明におけるスチレン・イソプレン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ンブロック又はビニルポリイソプレン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、イソプレンブロックやブタジエン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。

[0102] このようなスチレン・イソプレンブロック共重合体の具体例を例示すると、ポリスチレンーイソプレンブロック共重合体 (S I S)、ポリスチレンー水素添加ポリイソプレンーポリスチレンブロック共重合体 (SEPS)、ポリスチレンービニルポリイソプレンーポリスチレンブロック共重合体 (SHIVS)、ポリスチレンー水素添加ポリブタジエンー水素添加ポリイソプレンーポリスチレンブロック共重合体、ポリスチレンー水素添加ポリブタジエンーポリイソプレンー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、ポリスチレンービニルポリイソプレンー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。

[0103] (スチレン・ブタジエンブロック共重合体)

本発明におけるスチレン・ブタジエン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ン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、イソプレンブロックやブタジエン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。

[0104] このようなスチレン・ブタジエンブロック共重合体の具体例を例示すると、ポリスチレンーポリブタジエン共重合体 (SEBS)、ポリスチレンー水素添加ポリブタジエン共重合体 (SEBS)、ポリスチレンーポリブタジエ

ン共重合体（SBS）、ポリスチレンー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、ポリスチレンー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。

[0105] ポリカーボネートとの接着性の観点から、不飽和結合の少ない、又は不飽和結合のないエラストマーが好ましい。かかる観点から好ましいエラストマーとしては、上記の各種エラストマーの中で、水素添加されたものが挙げられる。

さらに、ポリカーボネートとの接着性の観点から、酸化劣化のしにくい、又は酸化劣化が生じないエラストマーが好ましい。かかる観点から好ましいエラストマーとしては、上記の各種エラストマーの中で、水素添加されたものが挙げられる。

さらに、ポリカーボネートとの接着性の観点から、ポリスチレンー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い。

[0106] [無機充填剤（C）]

本発明におけるポリエステル樹脂組成物は、剛性向上の観点から、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、通常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。

[0107] 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  $\mu\text{m}$ 以上、より好ましくは5  $\mu\text{m}$ 以上、更に好ましく

は10 $\mu\text{m}$ 以上、更に好ましくは20 $\mu\text{m}$ 以上であり、好ましくは150 $\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは100 $\mu\text{m}$ 以下、更に好ましくは50 $\mu\text{m}$ 以下、更に好ましくは40 $\mu\text{m}$ 以下、更に好ましくは30 $\mu\text{m}$ 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 $\mu\text{m}$ 以上、より好ましくは0.05 $\mu\text{m}$ 以上、更に好ましくは0.1 $\mu\text{m}$ 以上、更に好ましくは0.2 $\mu\text{m}$ 以上であり、好ましくは5 $\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは3 $\mu\text{m}$ 以下、更に好ましくは2 $\mu\text{m}$ 以下、更に好ましくは1 $\mu\text{m}$ 以下、更に好ましくは0.5 $\mu\text{m}$ 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、マイカ等、特開2016-89148号公報の段落0064に列挙されたものが挙げられる。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。

[0108] 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 $\mu\text{m}$ 以上、より好ましくは5 $\mu\text{m}$ 以上、更に好ましくは10 $\mu\text{m}$ 以上、更に好ましくは20 $\mu\text{m}$ 以上であり、好ましくは50 $\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは40 $\mu\text{m}$ 以下、更に好ましくは30 $\mu\text{m}$ 以下である。粒状充填剤の具体例としては、例えば特開2016-89148号公報の段落0065に列挙されたものが挙げられる。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。

[0109] 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 $1.0\ \mu\text{m}$ 以上、より好ましくは $5\ \mu\text{m}$ 以上、更に好ましくは $10\ \mu\text{m}$ 以上、更に好ましくは $20\ \mu\text{m}$ 以上、更に好ましくは $30\ \mu\text{m}$ 以上であり、好ましくは $150\ \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $100\ \mu\text{m}$ 以下、更に好ましくは $80\ \mu\text{m}$ 以下、更に好ましくは $60\ \mu\text{m}$ 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 $0.01\ \mu\text{m}$ 以上、より好ましくは $0.1\ \mu\text{m}$ 以上、更に好ましくは $0.5\ \mu\text{m}$ 以上であり、好ましくは $20\ \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $15\ \mu\text{m}$ 以下、更に好ましくは $10\ \mu\text{m}$ 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、例えば特開2016-89148号公報の段落0066に列挙されたものが挙げられる。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。

[0110] 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 $0.15\ \text{mm}$ 以上、より好ましくは $0.2\ \text{mm}$ 以上、更に好ましくは $0.5\ \text{mm}$ 以上、更に好ましくは $1\ \text{mm}$ 以上であり、好ましくは $30\ \text{mm}$ 以下、より好ましくは $10\ \text{mm}$ 以下、更に好ましくは $5\ \text{mm}$ 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 $1\ \mu\text{m}$ 以上、より好ましくは $3\ \mu\text{m}$ 以上であり、好ましくは $30\ \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $20\ \mu\text{m}$ 以下、更に好ましくは $10\ \mu\text{m}$ 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、例えば特開2016-89148号公報の段落0067に列挙されたものが挙げられる。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熔融混練する場合は、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、損失係数向上と剛性向上の観点から100~800 $\mu\text{m}$ が好ましく、200~700 $\mu\text{m}$ がより好ましく、300~600 $\mu\text{m}$ が更に好ましい。

[0111] 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よい。

[0112] 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。

[0113] 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、剛性向上の観点から、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。

[0114] また、ポリエステル樹脂組成物中、無機充填剤の含有量は、剛性向上の観点から、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。

[0115] 本発明において、成分(B)と無機充填剤(C)の質量比(成分(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、25/75~50/50がより好ましく、40/60~47/53が更に好ましい。

[0116] [有機結晶核剤(D)]

また、本発明におけるポリエステル樹脂組成物は、ポリエステル樹脂の結晶化速度を向上させ、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。

[0117] 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、例えば特開2016-89148号公報の段落0074に列挙されたものが挙げられる。

[0118] 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、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。

[0119] 本発明におけるポリエステル樹脂組成物は、前記以外の他の成分として、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。

[0120] 本発明における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)、可塑剤及び/又はエラストマーである成分(B)、並びに無機充填剤(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、可塑剤及び/又はエラストマー、ならびに無機充填剤、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せてもよい。

[0121] 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、更に好ましくは260℃以下、更に好ましくは250℃以下、更に好ましくは240℃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。

## [0122] 2. 積層シートの製造方法

次に、本発明の積層シートの製造方法について説明する。

本発明の積層シートは、従来公知の方法により製造することができる。例えば、各層を予め別々に形成しておきラミネートする又は熱圧着プレスする方法、予め形成した層の上面又は下面にコーティングして他の層を形成させる方法、それぞれの樹脂層を共押し出し方により積層する方法等が挙げられる。以下、製造方法の一例として、各層を予め別々に形成しておき、各層を積み重ねた後に熱圧着プレスする方法をより具体的に述べる。

### [0123] <ポリカーボネート層の製造>

ポリカーボネート層として使用されるポリカーボネート樹脂組成物から成形されるシート状成形体は、公知の方法、例えばインフレーション成形、押出しシート成形、プレス成型、キャスト成形等の方法により、所望の厚みのものを得ることができる。

### [0124] <第一の制振層の製造>

前述のようにして調製されるポリエステル樹脂組成物の溶融混練物を、例えば、公知の押出機や延伸機に供給して延伸することによって、所望の厚みの第一の制振層を製造することができる。

### [0125] <第二の制振層の製造>

第二の制振層も、第一の制振層と同様の方法で製造することができる。

## [0126] &lt;熱圧着プレスの場合&gt;

前述のようにして製造した各層を所定の順序で重ね合わせる。プレス機にセットし、圧力1～7MPa、温度170～190℃、プレス時間0.5～2.0分間の条件で圧着して、その後、常温になるまで水冷し、所定の積層シートを得ることができる。熱圧着プレスで積層シートを製造する場合、プレス前後でポリカーボネート層や制振層の厚さの変化はほとんど無視できる程度である。

[0127] 上述した実施形態に関し、本発明はさらに以下の積層シートを開示する。

[0128] <1> ポリカーボネート層の上面に第一の制振層が、及び該ポリカーボネート層の下面に第二の制振層が積層された積層構造からなる積層シートであって、

第一の制振層及び第二の制振層が、ジカルボン酸成分とジオール成分とを含む成分から構成される熱可塑性ポリエステル樹脂(A)、可塑剤及び/又はエラストマーである成分(B)、並びに無機充填剤(C)を含有してなるポリエステル樹脂組成物のシート状成形体である、積層シート。

[0129] <2> 前記<1>記載の積層構造を含む積層シート。

<3> 制振層の総厚みを100%とした場合、ポリカーボネート層の総厚みが100%以上、好ましくは200%以上、より好ましくは300%以上であり、そして、2000%以下、好ましくは1000%以下である、前記<1>又は<2>に記載の積層シート。

<4> 第一の制振層の上面に、又は第二の制振層の下面に、さらにポリカーボネート層が積層されている、前記<1>～<3>のいずれか1項に記載の積層シート。

<5> 第一の制振層の上面と第二の制振層の下面に、それぞれさらにポリカーボネート層が積層されている、前記<1>～<4>のいずれか1項に記載の積層シート。

<6> 積層シートにおける各層の好ましい配置が、制振層(PBT)/ポリカーボネート層(PC)/PBT、PC/PBT/PC/PBT、PBT/PC/PBT/PC、PC/PBT/PC/PBT/PC、

及びPBT/PC/PBT/PC/PBTからなる群より選択される1種又は2種以上である、前記<1>~<5>のいずれか1項に記載の積層シート。

<7> 積層シート全体の厚みが、好ましくは0.3mm以上、より好ましくは1.0mm以上、更に好ましくは1.5mm以上、更に好ましくは2.0mm以上、更に好ましくは2.5mm以上であり、そして、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5.0mm以下である、前記<1>~<6>のいずれか1項に記載の積層シート。

<8> 熱可塑性ポリエステル樹脂(A)がポリブチレンテレフタレートである、前記<1>~<7>のいずれか1項に記載の積層シート。

<9> 無機充填剤(C)が板状充填剤である、前記<1>~<8>のいずれか1項に記載の積層シート。

<10> 成分(B)が、1種以上の可塑剤と1種以上のエラストマーを含む、前記<1>~<9>のいずれか1項に記載の積層シート。

[0130] <11> 可塑剤が、好ましくは、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、多価カルボン酸エステル系可塑剤、ビスフェノール系可塑剤からなる群より選ばれる1種以上であり；エラストマーが、好ましくは、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及びポリスチレン-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からなる群より選択される1種以上のスチレン系エラストマーであり；並びに無機充填剤(C)が好ましくは板状充填剤、より好ましくはマイカ及び/又はタルクである、前記<1>~<10>のいずれか1項に記載の積層シート。

<12> ポリエステル樹脂組成物中の熱可塑性ポリエステル樹脂(A)の

含有量が、好ましくは50質量%以上、より好ましくは55質量%以上、更に好ましくは60質量%以上であり、そして、好ましくは90質量%以下、より好ましくは80質量%以下、更に好ましくは75質量%以下、更に好ましくは70質量%以下であり；ポリエステル樹脂組成物中の可塑剤の含有量が、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、そして、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%以下であり；ポリエステル樹脂組成物中のエラストマーの含有量が、好ましくは5質量%以上、より好ましくは8質量%以上、更に好ましくは9.5質量%以上であり、そして、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%以下であり；ポリエステル樹脂組成物中の無機充填剤の含有量が、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、そして、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、前記<1>~<11>のいずれか1項に記載の積層シート。

<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、好ましくは10/90~60/40、より好ましくは25/75~50/50、更に好ましくは40/60~47/53である、前記<1>~<12>のいずれか1項に記載の積層シート。

<14> 損失係数が好ましくは0.063以上であり、そして好ましくは0.11以下である、前記<1>~<13>のいずれか1項に記載の積層シート。

<15> 曲げ弾性率が好ましくは2.4以上であり、そして好ましくは2.8以下である、前記<1>~<14>のいずれか1項に記載の積層シート。

## 実施例

[0131] 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、「常温」とは25℃を示す。

[0132] <熱可塑性ポリエステル樹脂(A)の質量平均分子量>

ペレットサンプル0.6mgをHFIP(1,1,1,3,3,3-Hexafluoro-2-propanol 和光純薬社製)2gに完全に溶解させ、ゲル浸透クロマトグラフィー(TOSOH社製:ECOSEC HLC-8320GPC)を用いて分子量測定を行う。測定条件については、溶離液はHFIP/0.5mM トリフルオロ酢酸Na、流量は0.2mL/min、測定温度は40℃で行う。検量線の作成のための標準ポリマーとしては、ポリスチレン(東ソー株式会社製)を使用する。なお、複数のピークや肩部が認められた時、単一のピークとしてポリエステル樹脂の分子量分布とする。

[0133] <ポリエステル樹脂組成物の絶対結晶化度(Xc)>

ポリエステル樹脂組成物をプレス成形して得られた平板試験片(127mm×12.7mm×1.6mm)について、XRD(Rigaku社製:MiniFlex II DESKTOP X-ray DIFFRACTOMETER)を用いて、X線入射角 $2\theta = 5^\circ \sim 40^\circ$ における回折光の計測を行い、ピークとハローの強度から、絶対結晶化度を算出する。

[0134] <熱可塑性ポリエステル樹脂及びエラストマーのガラス転移温度>

後述と同様にして調製したポリエステル樹脂組成物のシート状成形体又はエラストマーであるスチレン・イソプレンブロック共重合体の平板試験片(40mm×5mm×0.4mm)を作製する。次いで、DMA装置(SII社製、EXSTAR6000)を用い、測定周波数を1Hzとして、昇温速度2℃/分で-50℃から250℃まで昇温し、得られた損失弾性率のピーク温度をガラス転移点として求める。

[0135] <熱可塑性ポリエステル樹脂の結晶化エンタルピー>

熱可塑性ポリエステル樹脂試料約7mgを計量し、DSC装置(パーキン

エルマー社製、DSC8500)を用い、JIS K7122(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から結晶化エンタルピーを算出する。

[0136] <スチレン系エラストマーのスチレン含有量>

エラストマーを重水素化クロロホルムに溶解し、その試料溶液の<sup>1</sup>H-NMRスペクトルを観測幅15ppmで測定する。またあらかじめ、3種の濃度のポリスチレン/重水素化クロロホルム溶液の<sup>1</sup>H-NMRスペクトルのスチレンのピーク面積と濃度から検量線を求め、この検量線を用いて、試料溶液のスチレンのピーク面積からスチレンの含有量を算出する。

[0137] <ポリカーボネートのMFR>

ASTM D1238に準拠して、試験温度300℃、試験荷重1.2kgfの条件で求める。

[0138] 製造例1及び製造例3(ポリエステル樹脂組成物のシート状成形体の製造)

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240℃で熔融混練し、ストランドカットを行い、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。

[0139] 次いで、得られたペレットを50mm単軸押出機に供給し、240℃で熔融混練した後、熔融混練物をロール温度90℃に制御されたロールと水冷されたロールでシート状に成形した後、幅450mm、厚み0.5mmのシートを巻き取り、ポリエステル樹脂組成物のシート状成形体とした。

[0140]

[表1]

表1

		製造例1	製造例3
成分(A)	PBT	100	100
成分(B)	DAIFATTY-101	10	10
	スチレン・イソプレングラフト 共重合体	15	0
	ポリスチレン-水素添加 ポリブタジエン共重合体	0	15
成分(C)	マイカ	30	30
[成分(B)]/[成分(C)]	質量比	0.833	0.833

原料の使用量は質量部を示す。

[0141] なお、表1における原料の詳細は以下の通りである。

〔熱可塑性ポリエステル樹脂〕

PBT (700FP) : ポリブチレンテレフタレート樹脂、ジュラネックス700FP (ポリプラスチック社製、非強化、ガラス転移温度 : 50℃、結晶化エンタルピー $\Delta H_{mc}$  : 44 J/g)

〔可塑剤〕

DAIFATTY-101 : アジピン酸と、ジエチレングリコールモノメチルエーテル/ベンジルアルコール=1/1との混合ジエステル (大八化学工業社製) ; 5%質量減少温度 : 235℃

〔エラストマー〕

スチレン・イソプレングラフト共重合体 : ハイブラー5127 (クラレプラスチック社製、ガラス転移温度 : 8℃、スチレン含有量 : 20質量%)

ポリスチレン-水素添加ポリブタジエン共重合体 : S. O. E. S1605 (旭化成社製、ガラス転移温度 : 8℃、スチレン含有量 : 67質量%)

〔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 : 23 $\mu$ m、最大面の厚み : 0.33 $\mu$ m、アスペクト比 : 70)

[0142] 製造例 2 (ポリカーボネート樹脂組成物シートの製造)

ポリカーボネート樹脂 (サビック社製、商品名: LEXAN、MFR: 7 g/10分 (300°C、1.2 kgf)) のペレットを、先端に 500 mm 幅のダイとフィルム引き取り装置を取り付けた直径 50 mm の単軸押出機に供給しながら、バレル温度 260~300°C にて製膜し、厚み 0.5 mm のポリカーボネート樹脂組成物シートを得た。

[0143] 実施例 1 (積層シートの製造)

製造例 1 で製造されたシート状成形体を 2 枚、製造例 2 で製造されたシートを 1 枚用意した。1 枚のシート状成形体の上面に該シートを 1 枚積層し、該シートの上面にシート状成形体を 1 枚積層した。次いで、この 3 枚の積層物をプレス加熱温度が 180°C に設定されたプレス機を用いて、圧力 3~4 MPa の条件で 1 分間加熱圧縮して一体化させ、次いで冷却プレスにより常温まで冷却した。このようにして、厚み 1.5 mm の積層シートを製造した。

[0144] 製造された積層シートは、ポリカーボネート層 1 の上面に第一の制振層 2 が積層され、ポリカーボネート層 1 の下面に第二の制振層 3 が積層されている構造であり、その断面は図 1 A の断面図に該当するものであった。

[0145] 実施例 2 (積層シートの製造)

製造例 1 で製造されたシート状成形体を 2 枚、製造例 2 で製造されたシートを 2 枚用意した。1 枚のシートの上面にシート状成形体を 1 枚積層し、該シート状成形体の上面にシートを 1 枚積層し、該シートの上面にシート状成形体を 1 枚積層した。次いで、この 4 枚の積層物を、製造例 1 と同じ条件で加熱圧縮して一体化させ、次いで冷却プレスにより常温まで冷却した。このようにして、厚み 2.0 mm の積層シートを製造した。

[0146] 製造された積層シートは、ポリカーボネート層 1 の上面に第一の制振層 2 が積層され、ポリカーボネート層 1 の下面に第二の制振層 3 が積層され、さらに第二の制振層 3 の下面にポリカーボネート層 5 が積層されている構造であり、その断面は図 1 C の断面図に該当するものであった。

## [0147] 比較例 1 (積層シートの製造)

製造例 2 で製造されたシートを 3 枚用意した。1 枚のシートの上面にシートを 2 枚積層した。次いで、この 3 枚の積層物を製造例 1 と同じ条件で加熱圧縮して一体化させ、次いで冷却プレスにより常温まで冷却した。このようにして、厚み 1.5 mm の積層シートを製造した。

[0148] 製造された積層シートは、3 層のポリカーボネート層が積層されて一体化されたポリカーボネート層 1 からなる構造であり、その断面は図 2 A の断面図に該当するものであった。

## [0149] 比較例 2 (積層シートの製造)

製造例 1 で製造されたシート状成形体を 1 枚、製造例 2 で製造されたシートを 2 枚用意した。1 枚のシートの上面にシート状成形体を 1 枚積層し、該シート状成形体の上面にシートを 1 枚積層した。次いで、この 3 枚の積層物を製造例 1 と同じ条件で加熱圧縮して一体化させ、次いで冷却プレスにより常温まで冷却した。このようにして、厚み 1.5 mm の積層シートを製造した。

[0150] 製造された積層シートは、制振層 6 の上面にポリカーボネート層 4 が積層され、制振層 6 の下面にポリカーボネート層 5 が積層されている構造であり、その断面は図 2 B の断面図に該当するものであった。

## [0151] 比較例 3 (積層シートの製造)

製造例 1 で製造されたシート状成形体を 3 枚用意した。1 枚のシート状成形体の上面に 1 シート状成形体を 2 枚積層した。次いで、この 3 枚の積層物を製造例 1 と同じ条件で加熱圧縮して一体化させ、次いで冷却プレスにより常温まで冷却した。このようにして、厚み 1.5 mm の積層シートを製造した。

[0152] 製造された積層シートは、3 層の制振層が積層されて一体化された制振層 6 からなる構造であり、その断面は図 2 C の断面図に該当するものであった。

## [0153] 比較例 4 (積層シートの製造)

製造例 1 で製造されたシート状成形体を 2 枚、製造例 2 で製造されたシートを 2 枚用意した。1 枚のシートの上面にシート状成形体を 1 枚積層し、該シート状成形体の上面にシート状成形体を 1 枚積層し、該シート状成形体の上面にシートを 1 枚積層した。次いで、この 4 枚の積層物を、製造例 1 と同じ条件で加熱圧縮して一体化させ、次いで冷却プレスにより常温まで冷却した。このようにして、厚み 2.0 mm の積層シートを製造した。

[0154] 製造された積層シートは、ポリカーボネート層 5 の上面に 2 枚分のシート状成形体が一体化した制振層 6 が積層され、制振層 6 の上面にポリカーボネート層 4 が積層されている構造であり、その断面は図 2 D の断面図に該当するものであった。

[0155] 実施例 3 (積層シートの製造)

製造例 1 で製造されたシート状成形体を 2 枚、製造例 2 で製造されたシートを 3 枚用意した。1 枚のシートの上面にシート状成形体を 1 枚積層し、該シート状成形体の上面にシートを 1 枚積層し、該シートの上面にシート状成形体を 1 枚積層し、さらに該シート状成形体の上面にシートを 1 枚積層した。次いで、この 5 枚の積層物を、製造例 1 と同じ条件で加熱圧縮して一体化させ、次いで冷却プレスにより常温まで冷却した。このようにして、厚み 2.5 mm の積層シートを製造した。

[0156] 製造された積層シートは、ポリカーボネート層 1 の上面に第一の制振層 2 が積層され、さらに第一の制振層 2 の上面にポリカーボネート層 4 が積層され、ポリカーボネート層 1 の下面に第二の制振層 3 が積層され、さらに第二の制振層 3 の下面にポリカーボネート層 5 が積層されている構造であり、その断面は図 1 D の断面図に該当するものであった。

[0157] 実施例 4 (積層シートの製造)

製造例 1 で製造されたシート状成形体を 3 枚、製造例 2 で製造されたシートを 2 枚用意した。1 枚のシート状成形体の上面にシートを 1 枚積層し、該シートの上面にシート状成形体を 1 枚積層し、該シート状成形体の上面にシートを 1 枚積層し、さらに該シートの上面にシート状成形体を 1 枚積層した

。次いで、この5枚の積層物を、製造例1と同じ条件で加熱圧縮して一体化させ、次いで冷却プレスにより常温まで冷却した。このようにして、厚み2.5 mmの積層シートを製造した。

[0158] 製造された積層シートは、ポリカーボネート層1の上面に第一の制振層2が積層され、該ポリカーボネート層1の下面に第二の制振層3が積層され、第一の制振層2の上面に追加のポリカーボネート層4が積層され、該追加のポリカーボネート層4の上面に更なる制振層6が積層されている構造であり、その断面は図3Aの断面図に該当するものであった。

[0159] 実施例5（積層シートの製造）

製造例2で製造されたシートを1枚、製造例3で製造されたシート状成形体を2枚用意した。1枚のシート状成形体の上面に該シートを1枚積層し、該シートの上面にシート状成形体を1枚積層した。次いで、この3枚の積層物をプレス加熱温度が180℃に設定されたプレス機を用いて、圧力3~4 MPaの条件で1分間加熱圧縮して一体化させ、次いで冷却プレスにより常温まで冷却した。このようにして、厚み1.5 mmの積層シートを製造した。

[0160] 製造された積層シートは、ポリカーボネート層1の上面に第一の制振層2が積層され、ポリカーボネート層1の下面に第二の制振層3が積層されている構造であり、その断面は図1Aの断面図に該当するものであった。

[0161] 得られた各積層シートの特性を、下記の試験例に従って評価した。結果を表2及び表3に示す。

[0162] 試験例1〔損失係数〕

各積層シートを127 mm×12.7 mm×厚み(1.5~2.0) mm (厚みは各実施例及び比較例で得られた積層シートの厚みによる)のサイズに裁断して、平板試験片とした。

平板試験片について、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 M S 1 8 1 4 3 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、23℃で測定した。積層シートの損失係数が高いほど、振動の減衰が速い、即ち積層シートの制振効果が高いと判断できる。

[0163] 試験例 2 [剛性]

各積層シートを 30mm×25mm×厚み（1.5～2.0）mm（厚みは各実施例及び比較例で得られた積層シートの厚みによる）のサイズに裁断して、平板試験片とした。平板試験片について、JIS K7171 に基づいて、テンシロン万能材料試験機（オリエンテック社製、RTC-1250A）を用いて、支点間距離を 24mm、試験速度を 1mm/min に設定して曲げ試験を行い、曲げ弾性率を求めた。曲げ弾性率が 2.0GPa 以上の場合に曲げ弾性率が高く、良好な剛性を有すると判断できる。

[0164] [表2]

表2

	比較例		実施例		比較例	
	1	2	1	2	3	4
対応する模式図	図2A	図2B	図1A	図1C	図2C	図2D
各層の配置	PC/PC/PC	PC/PBT/PC	PBT/PC/PBT	PBT/PC/PBT/PC	PBT/PBT/PBT	PC/PBT/PBT/PC
PC層の総厚み(%)	-	200	50	100	0	100
損失係数	<0.01	0.01	0.11	0.063	0.12	0.03
曲げ弾性率(GPa)	3.4	3.3	2.8	2.4	1.7	2.6

表中、ポリカーボネート層をPCと、制振層をPBTと表記している。

[0165]

[表3]

表3

	実施例		
	3	4	5
対応する模式図	図1D	図3A	図1A
各層の配置	PC/PBT/PC /PBT/PC	PBT/PC /PBT/PC/PB T	PBT/PC /PBT
PC層の総厚み(%)	150	66.7	50
損失係数	-	0.11	0.10
曲げ弾性率(GPa)	-	2.7	2.8

表中、ポリカーボネート層をPCと、制振層をPBTと表記している。

[0166] 本発明の積層シート（実施例のもの）は、損失係数が高く、かつ弾性率も高いものであり、自立性と制振効果の両方に優れていることが分かった。さらに、十分な剛性と衝撃強度が高いことが予想される。一方、ポリカーボネート層のみから形成される積層シート（比較例1）は、損失係数が低いため、制振効果に乏しいものであり、制振層のみから形成される積層シート（比較例3）は、弾性率が低いため、剛性が低いものであることが分かった。さらに、ポリカーボネート層と制振層とを組み合わせた積層シートであっても、本発明の積層構造を持たない場合、剛性と制振効果の両方を満足させることができないことが分かった（比較例2及び比較例4）。なお、実施例3の積層シートの評価結果の表への記載は省略した。

### 産業上の利用可能性

[0167] 本発明の積層シートはポリカーボネート層を有するために十分な剛性と衝撃強度を有し、それだけでなく損失係数が高いため制振効果に優れているので、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、筐体用の制振材料として好適に使用することができる。

## 符号の説明

- [0168] 1     ポリカーボネート層  
2     第一の制振層  
3     第二の制振層  
4     ポリカーボネート層  
5     ポリカーボネート層  
6     制振層

## 請求の範囲

- [請求項1]           ポリカーボネート層の上面に第一の制振層が、及び該ポリカーボネート層の下面に第二の制振層が積層された積層構造からなる積層シートであって、
- 第一の制振層及び第二の制振層が、ジカルボン酸成分とジオール成分とを含む成分から構成される熱可塑性ポリエステル樹脂（A）、可塑剤及び／又はエラストマーである成分（B）、並びに無機充填剤（C）を含有してなるポリエステル樹脂組成物のシート状成形体である、積層シート。
- [請求項2]           請求項1記載の積層構造を含む積層シート。
- [請求項3]           制振層の総厚みを100%とした場合、ポリカーボネート層の総厚みが100%以上2000%以下である、請求項2に記載の積層シート。
- [請求項4]           第一の制振層の上面に、又は第二の制振層の下面に、さらにポリカーボネート層が積層されている、請求項2又は3に記載の積層シート。
- [請求項5]           第一の制振層の上面と第二の制振層の下面に、それぞれさらにポリカーボネート層が積層されている、請求項2～4のいずれか1項に記載の積層シート。
- [請求項6]           熱可塑性ポリエステル樹脂（A）がポリブチレンテレフタレートである、請求項1～5のいずれか1項に記載の積層シート。
- [請求項7]           無機充填剤（C）が板状充填剤である、請求項1～6のいずれか1項に記載の積層シート。
- [請求項8]           成分（B）が、1種以上の可塑剤と1種以上のエラストマーとを含む、請求項1～7のいずれか1項に記載の積層シート。

[図1]

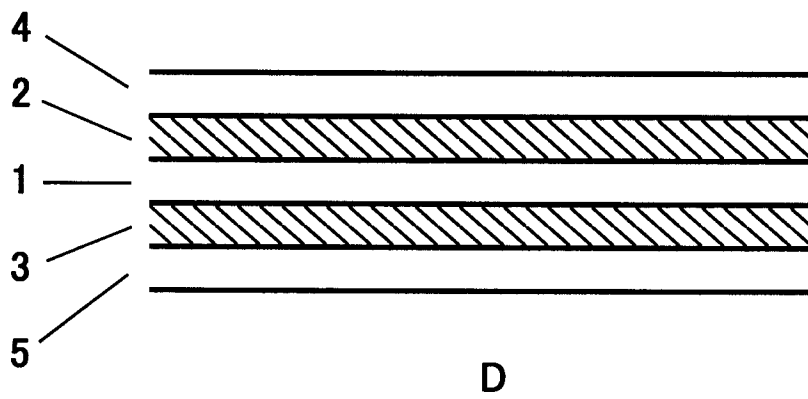
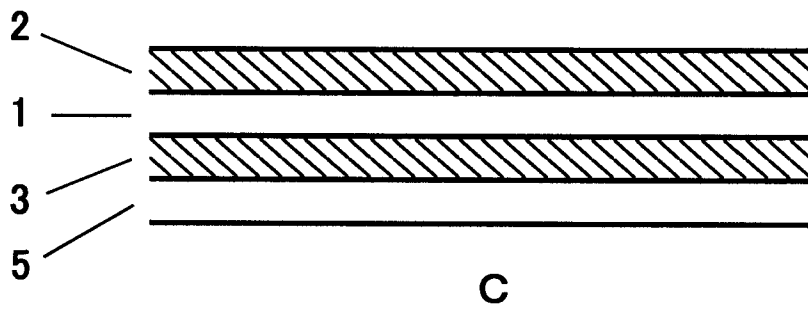
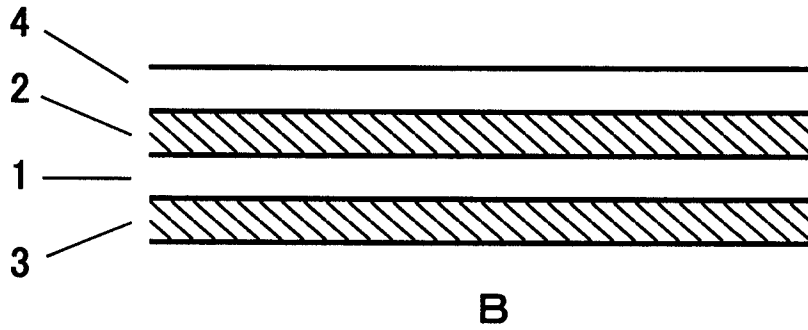
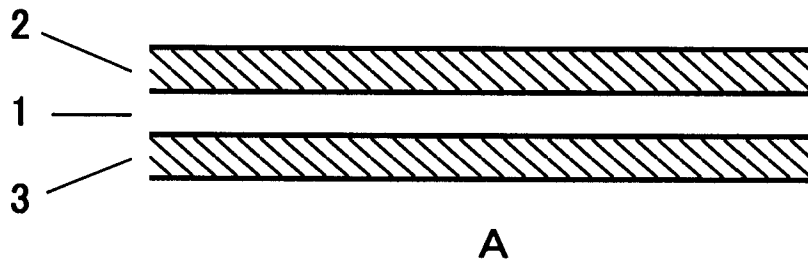
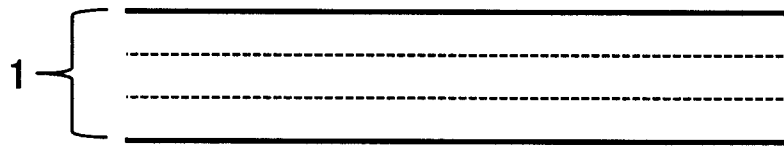
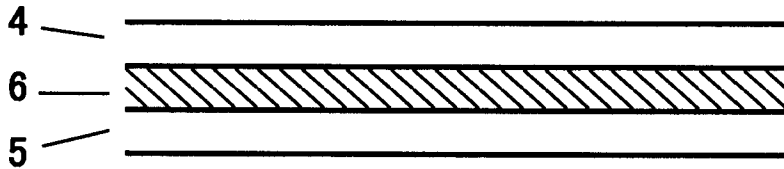


図1

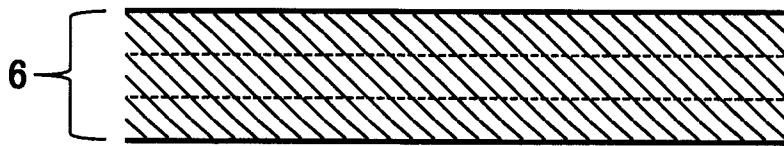
[図2]



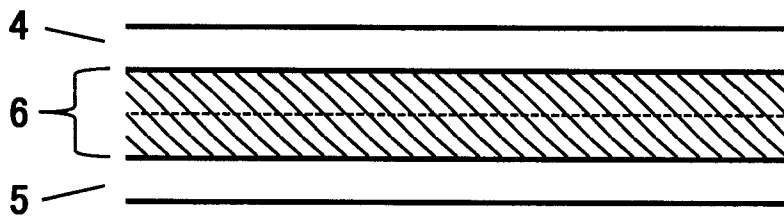
A



B



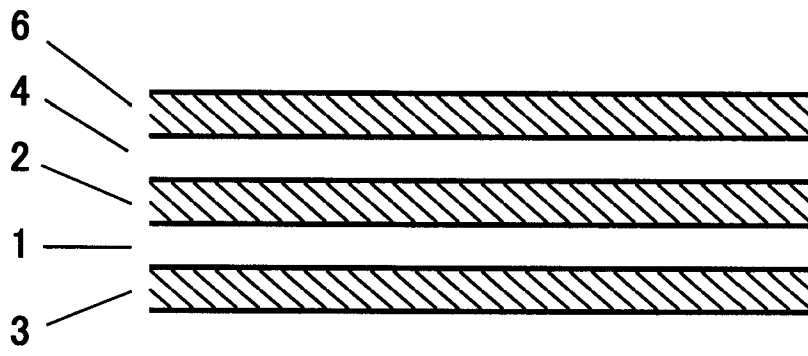
C



D

図2

[図3]



A

図3

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2018/032430

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
 Int.Cl. B32B27/36 (2006.01) i, B32B27/00 (2006.01) i, C08J5/18 (2006.01) i,  
 C08K5/11 (2006.01) i, C08K7/00 (2006.01) i, C08L53/00 (2006.01) i,  
 C08L67/03 (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. B32B27/36, B32B27/00, C08J5/18, C08K5/11, C08K7/00, C08L53/00,  
 C08L67/03

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.
Y A	JP 7-196992 A (NIPPON AUTOM KK) 01 August 1995, claims 1, 3, paragraphs [0007], [0023]-[0026], [0030]-[0033], [0075], fig. 3 & US 5712038 A1, claim 1, column 2, lines 9-15, column 4, line 64 to column 5, line 35, column 5, line 65 to column 6, line 36, column 12, lines 24-43 & EP 663542 A1 & DE 69420383 C & DE 69420383 T & AU 8173994 A & AU 689821 B	1-2, 6-8 3-5
Y A	JP 2016-89148 A (KAO CORP.) 23 May 2016, claims 1-4, 6-7, paragraphs [0006]-[0009], [0013]-[0072], examples & US 2017/0247527 A1, claims 1, 5-6, 11, paragraphs [0023]-[0025], [0031]-[0115], examples & WO 2016/067961 A1 & EP 3214147 A1 & CN 107075342 A	1-2, 6-8 3-5

Further documents are listed in the continuation of Box C.  See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search 30 October 2018 (30.10.2018)	Date of mailing of the international search report 13 November 2018 (13.11.2018)
-------------------------------------------------------------------------------------------	-------------------------------------------------------------------------------------

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

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））</p> <p>Int.Cl. B32B27/36(2006.01)i, B32B27/00(2006.01)i, C08J5/18(2006.01)i, C08K5/11(2006.01)i, C08K7/00(2006.01)i, C08L53/00(2006.01)i, C08L67/03(2006.01)i</p>											
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））</p> <p>Int.Cl. B32B27/36, B32B27/00, C08J5/18, C08K5/11, C08K7/00, C08L53/00, C08L67/03</p>											
<p>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</p> <table style="width:100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="width:30%;">日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2018年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2018年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2018年</td> </tr> </table>				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
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										
<p>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）</p>											
<p>C. 関連すると認められる文献</p>											
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号									
Y	JP 7-196992 A（株式会社日本オートメーション）1995.08.01, 請求項1, 3, 段落0007, 0023-0026, 0030-0033, 0075, 図3	1-2, 6-8									
A	& US 5712038 A1, 請求項1, 第2欄第9-15行, 第4欄第64行-第5欄第35行, 第5欄第65行-第6欄第36行, 第12欄第24-43行 & EP 663542 A1 & DE 69420383 C & DE 69420383 T & AU 8173994 A & AU 689821 B	3-5									
<p><input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p>											
<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>「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</p> <p>「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</p> <p>「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）</p> <p>「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</p>		<p>の日の後に公表された文献</p> <p>「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</p> <p>「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</p> <p>「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</p> <p>「&amp;」同一パテントファミリー文献</p>									
<p>国際調査を完了した日</p> <p style="text-align:center;">30.10.2018</p>		<p>国際調査報告の発送日</p> <p style="text-align:center;">13.11.2018</p>									
<p>国際調査機関の名称及びあて先</p> <p style="text-align:center;">日本国特許庁（ISA/J P） 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号</p>		<p>特許庁審査官（権限のある職員）</p> <p style="text-align:center;">春日 淳一</p>	<p>4 S</p>	<p>1 7 7 9</p>							
		<p>電話番号 03-3581-1101 内線 3474</p>									

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2016-89148 A (花王株式会社) 2016.05.23, 請求項1-4, 6-7, 段落0006-0009, 0013-00 72, 実施例	1-2, 6-8
A	& US 2017/0247527 A1 , 請求項1, 5-6, 11, 段落0023- 0025, 0031-0115, 実施例 & WO 2016/067961 A1 & EP 3214147 A1 & CN 107075342 A	3-5