

(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2010-31065

(P2010-31065A)

(43) 公開日 平成22年2月12日(2010.2.12)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
C O 8 L 69/00 (2006.01)	C O 8 L 69/00	4 J 0 0 2
C O 8 K 3/34 (2006.01)	C O 8 K 3/34	

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 13 頁)

(21) 出願番号	特願2008-181262 (P2008-181262)	(71) 出願人	594137579
(22) 出願日	平成20年7月11日 (2008.7.11)		三菱エンジニアリングプラスチックス株式
(31) 優先権主張番号	特願2008-176332 (P2008-176332)		会社
(32) 優先日	平成20年7月4日 (2008.7.4)		東京都港区東新橋一丁目9番2号
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)	(72) 発明者	丸山 博義
			神奈川県平塚市東八幡5丁目6番2号 三
			菱エンジニアリングプラスチックス株式会
			社内
		Fターム (参考)	4J002 CG001 DJ006 DJ056 GT00

(54) 【発明の名称】 ポリカーボネート樹脂組成物

(57) 【要約】

【課題】

剛性、強度、寸法制度および熱安定性等の諸物性に優れ、且つ周辺環境負荷を低減した、物性バランスに優れた強化ポリカーボネート樹脂組成物、及びその成形体を提供する。

【解決手段】

芳香族ポリカーボネート樹脂（A成分）、珪酸塩化合物粒子（B成分）を含有する芳香族ポリカーボネート樹脂組成物であって、（A成分）と（B成分）の合計100重量部のうち（A成分）が40～99重量部、（B成分）が1～60重量部であり、（A成分）の末端OH基濃度が1～300ppmであり、（B成分）の全塩基性基量が0.1[m eq / g]未満であることを特徴とする芳香族ポリカーボネート樹脂組成物、及びこれを成形してなる樹脂成形体。

【選択図】

なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

芳香族ポリカーボネート樹脂（A成分）、珪酸塩化合物粒子（B成分）を含有する芳香族ポリカーボネート樹脂組成物であって、（A成分）と（B成分）の合計100重量部のうち（A成分）が40～99重量部、（B成分）が1～60重量部であり、（A成分）の末端OH基濃度が1～300ppmであり、（B成分）の全塩基性基量が0.1[m eq/g]未満であることを特徴とする芳香族ポリカーボネート樹脂組成物。

【請求項 2】

（B成分）の平均粒径が50μm以下であり、且つ粒径50μm以上の相対粒子量が50%以下であることを特徴とする請求項1記載の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物。

10

【請求項 3】

（B成分）が、SiO₂およびAl₂O₃を主成分としてなり、K₂O、MgO、Fe₂O₃が各々10重量%以下であることを特徴とする請求項1または2に記載の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物。

【請求項 4】

（B成分）がセリサイトであることを特徴とする請求項1乃至3のいずれかに記載の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

20

本発明の目的は、剛性、強度、寸法精度および熱安定性等の諸物性に優れ、且つ周辺環境負荷を低減した、物性バランスに優れた、強化ポリカーボネート樹脂組成物及びその成形体に関する。本発明に係る芳香族ポリカーボネート樹脂組成物は、OA（オフィスオートメーション）機器、情報・通信機器、家庭電化機器などの電気・電子機器、自動車分野、建築資材分野等、広範囲に亘る用途への利用が可能である。

【背景技術】

【0002】

熱可塑性樹脂は一般的に、耐水性、耐薬品性、電気絶縁性、機械的諸物性等に優れ、且つ成形加工が容易であるので、電気・電子・家電用材料、自動車用材料、建設資材等に広く用いられている。中でも芳香族ポリカーボネート樹脂やその組成物は、特に機械的特性や耐熱性、及び透明性に優れ、電気製品、コンピューター、プリンター、コピー機等の各種OA機器の筐体材料として、広く用いられている。

30

【0003】

近年、このような樹脂成形体に関しては、各種用途における軽量・薄肉化の要求を満たし且つ、更なる機械強度向上、寸法安定性、美麗な外観特性等の諸特性を同時に満たすことが要求されている。

【0004】

上述した様々な要求に対しては、芳香族ポリカーボネート樹脂に各種無機充填剤を添加して、寸法安定性、機械的物性、外観特性を改善させる方法が提案されている。例えば剛性や強度を向上させたポリカーボネート樹脂組成物とするためには、各種フィラーを強化材として添加することが数多く提案されており、具体的には例えば、珪酸塩化合物等を添加することが行われてきている（例えば特許文献1参照）。

40

【0005】

一方、このフィラーとしてタルクやマイカの様な珪酸塩化合物をポリカーボネート樹脂に添加すると、ポリカーボネート樹脂の分子量低下が著しく、物性に大きな影響を及ぼすという問題があった。

【0006】

このような、強化系ポリカーボネート樹脂組成物における分子量低下を抑制するための方法として、表面を処理したフィラーを用いる方法や、更に安定剤を樹脂組成物に添加する方法が提案されている（例えば特許文献2～4参照）。しかしこれらの方法では、十分な

50

分子量低下抑制がなされていないばかりか、表面処理や添加剤数の増加等により、ポリカーボネート樹脂組成物の製造工程の増加、コストの増加を生じ、用途に制限が生ずるという課題があり、その改良効果は十分ではなかった。

【0007】

更に、強化系ポリカーボネート樹脂組成物における物性改良方法として、用いるフィラーの表面積を小さくすることでポリカーボネート樹脂の分子量低下を抑制するという技術思想の基に、圧縮した珪酸塩化合物を用いる方法（例えば特許文献5参照）や、用いるフィラーとして粒径の小さなものを減らし、ポリカーボネート樹脂の分子量低下を抑制する方法が提案されている（例えば特許文献6参照）。

【0008】

しかしこれらの方法においても、十分な分子量低下抑制がなされていないばかりか、ポリカーボネート樹脂組成物の製造工程が増えるために、使用するエネルギーが増加し、環境への負荷が大きくなるなど、化学工業規模での製造には、未だ課題があった。

【0009】

【特許文献1】特開平10-77418号公報

【特許文献2】特開2003-82217号公報

【特許文献3】特開2005-220216号公報

【特許文献4】特開2005-306927号公報

【特許文献5】特開2004-217942号公報

【特許文献6】特開2007-297464号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

本発明の目的は、剛性、強度、寸法制度および熱安定性等の諸物性に優れ、且つ周辺環境負荷を低減した、物性バランスに優れた、強化ポリカーボネート樹脂組成物を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0011】

本発明者らは、上記目的を達成するために、無機化合物粒子、とりわけ珪酸塩化合物粒子により強化された芳香族ポリカーボネート樹脂組成物について検討した。中でも強化材として用いる無機化合物粒子と、他の添加剤との関係、具体的にはこれらの酸・塩基性特性と、ポリカーボネート樹脂組成物の特性との関係に着目し、検討した。

【0012】

そして芳香族ポリカーボネート樹脂組成物に用いる無機化合物粒子、具体的には珪酸塩化合物と、芳香族ポリカーボネートの末端OH基濃度とが特定の関係に有る際には、従来課題となっていた分子量の低下が抑制されるという、意外な事実を突き止め、本発明を完成させた。

【0013】

即ち、本発明の要旨は、芳香族ポリカーボネート樹脂（A成分）、珪酸塩化合物粒子（B成分）を含有する芳香族ポリカーボネート樹脂組成物であって、（A成分）と（B成分）の合計100重量部のうち、（A成分）が40～99重量部、（B成分）が1～60重量部であり、（A成分）の末端OH基濃度が1～300ppmであり、（B成分）の全塩基性基量が0.1[m eq/g]未満であることを特徴とする芳香族ポリカーボネート樹脂組成物に関する。

【発明の効果】

【0014】

本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物は、分子量低下が抑制されるので、従来の強化系芳香族ポリカーボネート樹脂組成物に比べて衝撃強度、曲げ強度、引張強度等の初期機械強度に優れるという特徴がある。

【0015】

10

20

30

40

50

この特性から奏する効果として、例えば樹脂成形体のヒンジ部における繰り返し疲労特性の低下抑制が挙げられる。これから、本発明の樹脂組成物を成形してなる樹脂成形体は、携帯電話やデジタルカメラの様な、小型、軽量、且つ複雑な構造を有する電気、電子機器筐体として有用である。

【0016】

また、本発明の樹脂成形体をセルタップねじ等で固定する際、ボス割れの発生をも抑制できるので、光学ハウジングや、各種筐体等に於いて、効果を発揮する。更には、芳香族ポリカーボネート樹脂の分子量低下が抑制されることから、成形時等におけるガスの発生が抑制され、樹脂成形体の外観不良や、これへの塗装性低下も抑制される。よって外観と機械的強度のバランスに優れた樹脂成形体を提供することが可能となり、上述した電気、電子機器筐体を含め、美しい外観と強度が要求される樹脂成形体、具体的には例えば、パソコン、プリンター、大型画像表示装置等の情報関連機器や、エアコン等の家電製品における、筐体や内部部品等に有用である。

10

【発明を実施するための最良の形態】

【0017】

以下、本発明について詳細に説明する。

【0018】

本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物は、芳香族ポリカーボネート樹脂（A成分）と、珪酸塩化合物粒子（B成分）を含有する芳香族ポリカーボネート樹脂組成物であって、（A成分）と（B成分）の合計100重量部のうち、（A成分）が40～99重量部、（B成分）が1～60重量部であり、（A成分）の末端OH基濃度が1～300ppmであり、（B成分）の全塩基性基量が0.1[mEq/g]未満であることを特徴とするものである。

20

【0019】

<ポリカーボネート樹脂（A成分）>

本発明に用いる芳香族ポリカーボネート樹脂（A成分）は特に制限はなく、従来公知の任意の芳香族ポリカーボネート樹脂を使用できる。具体的には例えば、芳香族ジヒドロキシ化合物とカーボネート前駆体とを、またはこれらに併せて少量のポリヒドロキシ化合物等を反応させてなる、直鎖または分岐の熱可塑性の芳香族ポリカーボネート重合体または共重合体である。

30

【0020】

そして本発明に用いる芳香族ポリカーボネート樹脂（A成分）の製造方法に制限はなく、従来公知の任意の方法により、得られたものを使用できる。具体的には例えば、界面重合法、溶融エステル交換法、ピリジン法、環状カーボネート化合物の開環重合法、プレポリマーの固相エステル交換法等が挙げられる。

【0021】

芳香族ポリカーボネート樹脂の原料として使用される芳香族ジヒドロキシ化合物としては、2, 2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）プロパン（=ビスフェノールA）、2, 2-ビス（3, 5-ジブロモ-4-ヒドロキシフェニル）プロパン（=テトラブロモビスフェノールA）、ビス（4-ヒドロキシフェニル）メタン、1, 1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）エタン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）ブタン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）オクタン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル）プロパン、1, 1-ビス（3-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシ-3, 5-ジメチルフェニル）プロパン、2, 2-ビス（3-ブロモ-4-ヒドロキシフェニル）プロパン、2, 2-ビス（3, 5-ジクロロ-4-ヒドロキシフェニル）プロパン、2, 2-ビス（3-フェニル-4-ヒドロキシフェニル）プロパン、2, 2-ビス（3-シクロヘキシル-4-ヒドロキシフェニル）プロパン、1, 1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）-1-フェニルエタン、ビス（4-ヒドロキシフェニル）ジフェニルメタン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）-1, 1, 1-トリクロロプロパン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）-1, 1, 1, 3,

40

50

3, 3-ヘキサクロロプロパン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロパン等で例示されるビス(ヒドロキシアリール)アルカン類；

【0022】

1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロペンタン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン等で例示されるビス(ヒドロキシアリール)シクロアルカン類；9, 9-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレン、9, 9-ビス(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)フルオレン等で例示されるカルド構造含有ビスフェノール類；

【0023】

4, 4'-ジヒドロキシジフェニルエーテル、4, 4'-ジヒドロキシ-3, 3'-ジメチルジフェニルエーテル等で例示されるジヒドロキシジアリールエーテル類；4, 4'-ジヒドロキシジフェニルスルフィド、4, 4'-ジヒドロキシ-3, 3'-ジメチルジフェニルスルフィド等で例示されるジヒドロキシジアリールスルフィド類；

【0024】

4, 4'-ジヒドロキシジフェニルスルホキシド、4, 4'-ジヒドロキシ-3, 3'-ジメチルジフェニルスルホキシド等で例示されるジヒドロキシジアリールスルホキシド類；4, 4'-ジヒドロキシジフェニルスルホン、4, 4'-ジヒドロキシ-3, 3'-ジメチルジフェニルスルホン等で例示されるジヒドロキシジアリールスルホン類；ハイドロキノン、レゾルシン、4, 4'-ジヒドロキシジフェニル等が挙げられる。

【0025】

これらの中でもビス(4-ヒドロキシフェニル)アルカン類が好ましく、特に耐衝撃性の点から、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン [=ビスフェノールA] が好ましい。これらの芳香族ジヒドロキシ化合物は、1種類でも2種類以上を組み合わせる用いてもよい。

【0026】

芳香族ジヒドロキシ化合物と反応させるカーボネート前駆体としては、カルボニルハライド、カーボネートエステル、ハロホルメート等が使用され、具体的にはホスゲン；ジフェニルカーボネート、ジトリルカーボネート等のジアリールカーボネート類；ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート等のジアルキルカーボネート類；二価フェノールのジハロホルメート等が挙げられる。これらカーボネート前駆体もまた1種類でも2種類以上を組み合わせる用いてもよい。

【0027】

また本発明に用いる芳香族ポリカーボネート樹脂(A)としては、三官能以上の多官能性芳香族化合物を共重合した、分岐芳香族ポリカーボネート樹脂でもよい。三官能以上の多官能性芳香族化合物としては、具体的には例えばフロログルシン、4, 6-ジメチル-2, 4, 6-トリ(4-ヒドロキシフェニル)ヘプテン-2、4, 6-ジメチル-2, 4, 6-トリ(4-ヒドロキシフェニル)ヘプタン、2, 6-ジメチル-2, 4, 6-トリ(4-ヒドロキシフェニル)ヘプテン-3、1, 3, 5-トリ(4-ヒドロキシフェニル)ベンゼン、1, 1, 1-トリ(4-ヒドロキシフェニル)エタン等で例示されるポリヒドロキシ化合物類；3, 3-ビス(4-ヒドロキシアリール)オキシインドール (=イサチンビスフェノール)、5-クロロイサチン、5, 7-ジクロロイサチン、5-ブロムイサチン等が挙げられる。

【0028】

中でも1, 1, 1-トリ(4-ヒドロキシフェニル)エタンが好ましい。多官能性芳香族化合物は、前記芳香族ジヒドロキシ化合物の一部を置換して使用することができ、その使用量は適宜選択して決定すればよいが、芳香族ジヒドロキシ化合物に対して0.01~10モル%であることが好ましく、特に0.1~2モル%であることが好ましい。

【0029】

本発明に用いるポリカーボネート樹脂の粘度平均分子量は任意であり、適宜選択して決

10

20

30

40

50

定すればよいが、通常、12000～40000程度である。この粘度平均分子量が低すぎると、得られる成形品の靱性が低くなり、実用的ではなくなる場合がある。逆に高すぎても、芳香族ポリカーボネート樹脂組成物の流動性が低下するため、射出成形では厚肉部品への適用に限定され、大型部品へ適用できない場合がある。

【0030】

よって本発明に用いる芳香族ポリカーボネート樹脂の粘度平均分子量 (M_v) は、中でも14000～30000、特に15000～25000であることが好ましい。

【0031】

尚、本発明で用いる粘度平均分子量 (M_v) は、ウベローデ粘度計を用いて、20℃にて、ポリカーボネート樹脂の塩化メチレン溶液の粘度を測定し、極限粘度 (η) を求め、次のSchneilの粘度式から算出される値を示す。

$$[\eta] = 1.23 \times 10^{-4} M_v^{0.83}$$

【0032】

本発明に用いる芳香族ポリカーボネート樹脂の末端OH基濃度は、1～300ppmである。この様に、用いる芳香族ポリカーボネート樹脂の末端OH基濃度を一定以上の低い値とすることにより、珪酸塩化合物粒子を含む樹脂組成物において芳香族ポリカーボネート樹脂自身の分子量低下抑制効果が著しく向上する。とりわけ、高温で成形する様な場合に於いては、特に効果が顕著となるので好ましい。

【0033】

よって、本発明に用いる芳香族ポリカーボネート樹脂の末端OH基濃度は、なかでも1～200ppm、特に10～100ppmであることが好ましい。

【0034】

尚、本発明における、芳香族ポリカーボネート樹脂の末端OH基濃度は、四塩化チタン／酢酸法 (Makromol. Chem. 88 215 (1965) に記載の方法) により比色定量にて測定した値であり、芳香族ポリカーボネート樹脂の重量に対する末端OH基量の重量ppm単位で表示したものである。

【0035】

更に、本発明に用いる芳香族ポリカーボネート樹脂 (A成分) は、バージン原料だけでなく、使用済みの製品から再生されたポリカーボネート樹脂、いわゆるマテリアルリサイクルされたポリカーボネート樹脂を使用することもできる。

【0036】

使用済みの製品としては、光学ディスク等の光記録媒体、導光板、自動車窓ガラス・自動車ヘッドランプレンズ・風防等の車両透明部材、飲料水用等のボトル容器、メガネレンズ、防音壁・ガラス窓・波板等の建築部材等が好ましく挙げられる。

【0037】

また製品の不適合品、スプルー、ランナー等から得られた粉碎品又はそれらを溶融して得たペレット等も使用可能である。再生されたポリカーボネート樹脂は、A成分の80重量%以下であることが好ましく、より好ましくは50重量%以下である。

【0038】

<珪酸塩化合物粒子 (B成分)>

本発明に用いる珪酸塩化合物粒子 (B成分) は、その全塩基性基量が0.1 [meq/g] 未満であることを特徴とする。

【0039】

この全塩基性基量が0.1 [meq/g] 以上であると、芳香族ポリカーボネート樹脂組成物とした際に、芳香族ポリカーボネート樹脂の分子量低下が抑制困難となる。また通常、この全塩基性基量は0.1 [meq/g] 以下であれば適宜選択して決定すればよいが、極端に低い珪酸塩化合物粒子は、化学産業規模での製造において経済的ではない場合があるので、その下限は通常、0.001程度である。よって本発明に用いる珪酸塩化合物粒子の全塩基性基量は中でも、0.001～0.05 [meq/g]、特に0.005～0.03 [meq/g] であることが好ましい。

10

20

30

40

50

【0040】

尚、本発明において珪酸塩化合物粒子の全塩基性基量は、常圧下、105℃にて3時間乾燥した試料を1g計量し、測定した値を示す。測定装置は任意であり、具体的には例えば、TAITEC社製 バイオシェーカ等が挙げられる。

【0041】

板状無機化合物粒子の平均粒子径は、本発明の樹脂成形体に付与すべき物性に応じて、適宜選択して決定すればよいが、具体的には例えば0.1～300μmである。平均粒子径が小さすぎると補強効果が不十分となり易く、逆に大きすぎると樹脂成形体外観や耐衝撃性が低下する場合がある。

【0042】

よって板状無機化合物粒子の平均粒子径は、中でも100μm以下、特に50μm以下であることが好ましく、1μm以上、中でも10μm以上、特に30μm以上であることが好ましい。

【0043】

更に、本発明に用いる珪酸塩化合物粒子においては、粒径50μm以上の相対粒子量が50%以下であることが、得られる芳香族ポリカーボネート樹脂組成物の外観性向上の観点から好ましい。ここで平均粒子径とは、X線透過による液相沈降方式で測定されたD50をいう。このような測定ができる装置としては、Sedigraph粒子径分析器(Micromeritics Instruments社製、型式：モデル5100)が挙げられる。

【0044】

本発明に用いる珪酸塩化合物粒子の化学組成は、珪酸塩化合物であれば任意であり、適宜選択して決定すればよい。珪酸塩化合物は、SiO₂およびAl₂O₃を主成分としてなり、また他の成分として、K₂O、MgO、Fe₂O₃等の金属酸化物を含有するものを示す。ここで主成分とは、SiO₂およびAl₂O₃の合計が、珪酸塩化合物の70重量%以上、中でも好ましくは80重量%以上であることを示す。

【0045】

本発明に用いる珪酸塩化合物としては、中でも、K₂O、MgO、Fe₂O₃の含有量が、各々、10重量%以下であることが好ましく、特にMgOとFe₂O₃の含有量が2重量%以下であることが好ましい。

【0046】

また本発明に用いる珪酸塩化合物粒子は、固体の無機化合物である。固体の形態（外観）は特に制限はなく、例えば球状、板状、針状、繊維状、不定形などのいずれであってもよい。

【0047】

中でも分子量低下抑制と、最終的に得られる樹脂組成物の機械強度維持、剛性向上の点から、板状の、珪酸塩化合物粒子等のものを用いることが好ましく、中でもセリサイトが好ましい。

【0048】

更に、本発明に用いる珪酸塩化合物粒子としては、I g. l o s s（灼熱減量；乾燥した珪酸塩化合物を1000℃で焼成したときの減量。）が少ないことが好ましく、具体的にはこのI g. l o s sが、10重量%以下、中でも8重量%以下であることが好ましい。

【0049】

本発明に用いる珪酸塩化合物粒子は、芳香族ポリカーボネート樹脂との界面密着性向上のために、収束剤又は表面処理剤により処理されていてもよい。このような集束剤や表面処理剤としては、具体的には例えば、エポキシ系化合物、アクリル系化合物、イソシアネート系化合物、シラン系化合物、チタネート系化合物等の官能性化合物が挙げられる。これらの化合物は、予め珪酸塩化合物粒子の表面処理又は収束処理を施して用いるか、又は材料調製、例えば混合、混練の際に同時に添加してもよい。

10

20

30

40

50

【0050】

表面処理剤の使用量は適宜選択して決定すればよいが、通常、珪酸塩化合物粒子に対して10重量%以下、中でも0.05～5重量%であることが好ましい。

【0051】

＜他の添加成分：離型剤＞

本発明のポリカーボネート樹脂組成物には、更に必要に応じて、本発明の目的を損なわない範囲で、上述した各成分に加えて、他の樹脂や、各種の樹脂添加剤を含有させてもよい。

【0052】

他の樹脂としては、具体的には例えば、ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂等のポリオレフィン系樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリフェニレンスルフィド樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリメタクリレート樹脂、フェノール樹脂、エポキシ樹脂などが挙げられる。

【0053】

また樹脂添加剤としては、従来公知の任意の離型剤、難燃剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤、熱安定剤、耐衝撃性改良剤、耐候性改良剤、帯電防止剤、染料、防曇剤、滑剤・アンチブロッキング剤、可塑剤、分散剤、防菌剤などが挙げられる。これらは、単独で、又は2種以上を任意の割合で併用してもよい。以下、具体例として離型剤について記す。

【0054】

本発明に用いる離型剤としては、従来公知の任意のものを使用できる。具体的には例えば、脂肪酸エステル類やポリオレフィン樹脂、酸変性等の変性ポリオレフィン樹脂等が挙げられる。

【0055】

これらの中でもポリカーボネート樹脂組成物の分子量や機械強度等の低下抑制の観点から、その水酸基価が低いもの、具体的には20以下であるものを用いることが好ましく、とりわけ、脂肪酸エステル類を用いる際には、水酸基価が低いものを用いることが好ましい。この際、本発明の樹脂組成物に用いる全離型剤の水酸基価の平均が20以下であれば、単一の場合にその水酸基価が20を超えるものを用いてもよい。よって本発明に用いる離型剤の水酸基価は15以下、中でも10以下、更には6以下、特に5以下であることが好ましい。

【0056】

水酸基価が20以下である脂肪酸エステル類としては、その化学構造等に制限はなく、従来公知の任意のものを使用できる。具体的には例えば、ベヘン酸エステル類、ステアリン酸エステル類、ラウリン酸エステル類、パルチミン酸エステル類、オレイン酸エステル類等の、脂肪酸エステル類等が挙げられる。

【0057】

脂肪酸エステル類は、ステアリン酸ステアリル等の、アルコール残基が直鎖構造のものや、ペンタエリスリトールテトラステアレート、ステアリン酸トリグリセリド等、分岐構造のものであっても良い。また脂肪酸残基とアルコール残基の組み合わせも特に制限は無く、ステアリン酸オクチルの様に、これら双方の残基における炭化水素基部分の炭素数が異なってもよい。

【0058】

また離型剤として用いるポリオレフィン樹脂類としても、従来公知の任意のものを使用できる。尚、芳香族ポリカーボネート樹脂の安定性を考慮し、酸変性ポリオレフィン樹脂類を用いてもよい。

【0059】

本発明に用いる変性ポリオレフィン樹脂としては、その原料であるポリオレフィン樹脂（以下、「未変性ポリオレフィン樹脂」ということがある。）に、カルボキシル基（カルボン酸（無水物）基、即ちカルボン酸基及び／またはカルボン酸無水物基を表す。以下同様。）、ハロホルミル基、エステル基、カルボン酸金属塩基、水酸基、アルコシル基、エ

10

20

30

40

50

ポキシ基、アミノ基、アミド基等の、ポリアルキレンテレフタレート樹脂と親和性のある官能基を付与した、変性ポリオレフィン樹脂を示す。

【0060】

未変性ポリオレフィン樹脂としては、従来公知の任意のものを使用でき、具体的には例えば炭素数2～30、好ましくは2～12、更に好ましくは2～10の、オレフィンの一種、または任意の割合の二種以上を含む（共）重合体（重合又は共重合を意味する。以下同様。）が挙げられる。

【0061】

炭素数2～30のオレフィンとしては、具体的には例えばエチレン、プロピレン、炭素数4～30（好ましくは4～12、更に好ましくは4～10）の α -オレフィン、及び炭素数4～30（好ましくは4～18、更に好ましくは4～8）のジエンが挙げられる。 α -オレフィンとしては、例えば1-ブテン、4-メチル-1-ペンテン、1-ペンテン、1-オクテン、1-デセン及び1-ドデセンが挙げられる。ジエンとしては、例えば、ブタジエン、イソプレン、シクロペンタジエン、1,1-ドデカジエン等が挙げられる。

【0062】

未変性ポリオレフィン樹脂としては、具体的には例えば、低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-プロピレンブロックポリマー、エチレン-プロピレンランダムコポリマー、ポリブテンや、これらの混合物が挙げられる。これらのうち耐熱性の点からプロピレンホモポリマー、エチレン-プロピレンブロックポリマー、エチレン-プロピレンランダムコポリマー等の結晶性ポリプロピレン系樹脂及びこれらの混合物が好ましい。

【0063】

未変性ポリオレフィン樹脂としては中でも、（共）重合体モノマーとしてエチレン、プロピレン、炭素数4～12の α -オレフィン、ブタジエン、イソプレン等が好ましく、更にはエチレン、プロピレン、炭素数4～8の α -オレフィン、ブタジエンが、特にエチレン、プロピレン、ブタジエンが好ましい。

【0064】

本発明に用いるポリオレフィン樹脂類の重量平均分子量は任意だが、通常、1000以上である。1000より小さいと揮発分が多くなり、成形体表面に曇りが発生する場合がある。逆に重量平均分子量が大きすぎると、分散が悪く、成形体の表面性が低下する場合があるので、通常、50000以下、中でも30000以下、更には10000以下、特に3000以下であることが好ましい。

【0065】

重量平均分子量が1000以上20000未満の、ワックスタイプとしては、具体的には例えば、酸化ポリエチレン（例えば、クラリアント社製 リコワックスPEDシリーズやPEシリーズ、セリダスト3700シリーズなど）、無水マレイン酸グラフト重合ポリプロピレン（例えば、クラリアント社製 リコワックスARシリーズ）、酸化酢酸ビニル共重合体（例えば、クラリアント社製 リコワックス371FP）、アミド変性ポリエチレンワックス（クラリアント社製 セリダスト9615A）等が挙げられる。

【0066】

本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物は、上述した芳香族ポリカーボネート樹脂（A成分）、珪酸塩化合物粒子（B成分）を含有し、（A成分）と（B成分）の合計100重量部のうち、（A成分）が40～99重量部、（B成分）が1～60重量部である。

【0067】

A成分とB成分との樹脂組成物100重量部において、A成分の含有率が少なすぎると、樹脂組成物の流動性が低下し、逆に多すぎても機械的強度が低下する。またB成分の含有量が少なすぎると寸法安定性や剛性が不十分となり、耐衝撃性や荷重撓み温度が低下する。逆に多すぎても、得られる樹脂組成物を成形してなる樹脂成形体表面への塗装性や外観、そしてそれを成形する際の流動性が低下してしまう。

【0068】

よって本発明の樹脂組成物における珪酸塩化合物粒子（B成分）の含有量は、芳香族ポリカーボネート樹脂（A成分）との合計を100重量部とした際に、中でも10～50重量部とすることが好ましい。

【0069】

また離型剤を用いる際には、離型剤の含有量が少なすぎると、離型剤としての効果が不十分となり、逆に多すぎても、機械的強度や荷重撓み温度が低下する場合がある。よって本発明の樹脂組成物における離型剤の含有量は、（A成分）と（B成分）の合計100重量部に対して0.1～1.0重量部、中でも0.1～0.8重量部であることが好ましい。

【0070】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、公知の熱可塑性樹脂組成物の製造方法により製造することができる。具体的には、上述した成分、および必要に応じて含有させる他の添加成分等を、タンブラーやヘンシェルミキサーなどの各種混合機を用い予め混合した後、バンパリーミキサー、ロール、ブラベンダー、単軸混練押出機、二軸混練押出機、ニーダーなどで溶融混練することによって樹脂組成物を製造することができる。

【0071】

また、各成分を予め混合せずに、または、一部の成分のみ予め混合してフィダーを用いて押出機に供給して溶融混練して樹脂組成物を製造することもできる。更に、溶融混練により破壊され易い添加剤などは、これ以外を上流部分に一括投入し、次いで中流以降で、この様な、破壊され易い添加剤を添加し、樹脂成分と溶融混練する方法も、得られる樹脂組成物の機械的強度の点から好ましい。

【0072】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、各種製品（成形品）の製造（成形）用樹脂材料として使用される。成形方法は特に制限はなく、従来公知の任意の熱可塑性樹脂成形方法を用いることが出来る。

【0073】

具体的には例えば、一般的な射出成形法、超高速射出成形法、射出圧縮成形法、二色成形法、ガスアシストなどの中空成形法、断熱金型を用いた成形法、急速加熱金型を用いた成形法、発泡成形（超臨界流体も含む）、インサート成形、インモールドコーティング（IMC）成形法、押出成形法、シート成形法、熱成形法、回転成形法、積層成形法、プレス成形法などが挙げられる。

【実施例】

【0074】

以下に実施例を示し、本発明をより具体的に説明するが、本発明はその要旨を超えない限り、以下の実施例に限定されるものではない。

【0075】

（A成分）

A-1. 芳香族ポリカーボネート樹脂 Mv: 21500、末端OH基濃度: 30 ppm

【0076】

A-2. 芳香族ポリカーボネート樹脂 Mv: 21200、末端OH基濃度: 500 ppm

【0077】

（B成分） 珪酸塩化合物粒子として、B-1～B-3（B-1: マレーシア産セリサイト、B-2: 中国産セリサイト、B-3: 山口雲母社製マイカ A-21）を用いた。これらの諸物性を表1に記した。

【0078】

【表 1】

表1	組成(重量%)						平均 粒子径 (μm)	50 μm 以上の 相対粒子量 (重量%)	付着 水分 (重量%)	全塩基性基量 (meq/g)
	SiO_2	Al_2O_3	MgO	K_2O	Fe_2O_3	Ig.loss				
B-1	49.6	31.1	1.8	8.1	1.7	7.7	38	2	0.6	0.01
B-2	50	30.9	0.5	8.9	3.6	6.1	40	2	0.6	0.01
B-3	45.8	35.4	0.1	9.1	1.8	7.8	22	2	0.5	0.14

【0079】

全塩基性基量の測定は、常圧下、105℃にて3時間乾燥した試料を1g計量し、T A I T E C社製 バイオシェーカを用いて測定した。詳しくは、0.05モル／リットルの塩酸水溶液50ミリリットル中に、測定試料1グラムを混合し、24時間、室温にて振とうした後、試料を濾別し、水酸化ナトリウムによる中和滴定により求められる塩酸の消費量を全塩基性基量〔 meq/g 〕とした。

【0080】

(離型剤)

C-1：ベヘニルベヘネート（日本油脂社製 ユニスターM-2222SL） 水酸基価5.0、酸価：11.3

【0081】

C-2：ステアリルステアレート（花王社製 エキセパールSS） 水酸基価6.0、酸価0.6

【0082】

C-3：オレイン酸モノグリセリド（花王社製 レオドールMO-60） 水酸基価150、酸価1.0

【0083】

C-4：PEワックス（クラリアントジャパン社製 PE520） 水酸基価 0

【0084】

(難燃剤)

パーフルオロブタンスルホン酸カリウム塩（三菱マテリアル社製 KFB S）

【0085】

[ペレット作成]

表2に示す成分、割合にて配合した樹脂組成物をタンブラーミキサーにて均一混合した後、2箇所のフィード口を有する二軸押出機（30mmφ）を用いて、シリンダー温度260℃で樹脂組成物をメインホッパーから混練機内へフィードし、溶融、混練し、ペレットを製造した。

【0086】

[機械物性評価]

得られたペレットを、射出成形機（住友重機械工業社製、サイキャップM-2、型締め力75T）を用い、シリンダー温度290℃、金型温度110℃、成形サイクル50秒の条件で、ISO多目的試験片を製造し、曲げ弾性率（ISO178に準拠）及びシャルピー衝撃強度（ISO179に準拠、非ノッチにて測定。）の測定を行った。結果を表2、3に記した。

【0087】

[熱安定性評価]

得られたペレットを上述の機械物性評価試験片製造と同型の射出成形機、金型を用い、シリンダー温度を320℃に上げて試験片を製造。ペレットと前記試験片の粘度平均分子量を比較することにより、熱安定性を比較した。結果を表2、3に示した。

【0088】

10

20

30

40

【表 2】

表2		実施例								比較例		
		1	2	3	4	5	6	7	8	1	2	3
A	A-1	90	80	70	60	50	70	70	80	100	70	
	A-2											70
B	B-1	10	20	30	40	50	30		20			30
	B-2							30				
	B-3										30	
C	C-1											
	C-2											
	C-3											
	C-4	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
難燃剤									0.1			
曲げ弾性率 MPa		3200	4800	6600	8800	10500	6400	6500	4640	2300	6700	6600
シャルピー衝撃強度 (非ノッチ KJ/m ²)		66	52	47	36	32	45	46	49	NB	25	35
粘度平均分子量 (ペレット)		21000	20500	20000	20000	19500	20000	21000	18300	21500	18000	20000
粘度平均 分子量 (成形品)	290℃	20500	20500	20000	19500	19000	20000	20500	18000	21500	17000	19200
	320℃	20200	19700	19700	19200	18700	19700	20200	17500	21200	16000	18500

【 0 0 8 9 】

【表 3】

表3		実施例							比較例		
		9	10	11	12	13	14	15	4	5	6
A	A-1	90	80	70	60	50	70	70	100	70	70
	A-2										
B	B-1	10	20	30	40	50	30				
	B-2							30			
	B-3									30	30
C	C-1	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5		0.5	0.5	0.5	
	C-2						0.5				
	C-3										0.5
	C-4										
難燃剤											
曲げ弾性率 Mpa		3210	4750	6550	8750	10400	6300	6580	2300	6550	6500
シャルピー衝撃強度 (非ノッチ KJ/m ²)		63	49	44	34	25	42	46	NB	22	18
粘度平均分子量 (ペレット)		20500	20000	19500	19500	19000	19500	21000	21000	17000	17000
粘度平均 分子量 (成形品)	290℃	20000	20000	19500	19000	18500	19500	20500	21500	16500	16500
	320℃	19500	19000	19000	18500	18000	19000	20000	21000	15500	15000

【 0 0 9 0 】

実施例 1～15では、本発明の構成によって、物性バランスに優れたポリカーボネート樹脂組成物となっていることが判る。具体的には、添加物の添加前後に於いて分子量の低

下が抑制されるので、得られる樹脂成形体の曲げ強度やシャルピー衝撃強度が高く、優れたものとなる。

【0091】

尚、実施例8の樹脂組成物は、難燃性試験（UL-94）に於いて、V-0の優れた難燃性を示した。且つ、その樹脂組成物は表2に記した通り、他の実施例と比べて著しい物性値の低下は見られず、難燃性と諸物性とのバランスに優れたものであることが判る。

【0092】

比較例1、4では充填剤を用いていない為に分子量低下はないが、当然、曲げ弾性率は改善されていない。比較例2、5及び6では、セリサイトに代えてマイカを用いるので、曲げ弾性率は高くなる一方で、分子量低下が著しく、この様な樹脂組成物を成形して樹脂成形体とするには、不向きなものとなることが判る。

10

【0093】

比較例3では、セリサイトを用いてはいるが、芳香族ポリカーボネートの末端OH量が多い為に、分子量の低下が著しく、曲げ弾性率とシャルピー衝撃強度の双方とも低いものとなっていることが判る。