

(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
2009年10月8日(08.10.2009)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2009/123271 A1

- (51) 国際特許分類:
C08L 69/00 (2006.01) C08K 3/38 (2006.01)
C08J 3/22 (2006.01) C08K 9/02 (2006.01)
C08K 3/28 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/056833
- (22) 国際出願日: 2009年3月26日(26.03.2009)
- (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 2008-090880 2008年3月31日(31.03.2008) JP
特願 2009-011912 2009年1月22日(22.01.2009) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 帝人化成株式会社 (TEIJIN CHEMICALS LTD.) [JP/JP]; 〒1000013 東京都千代田区霞が関三丁目2番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 新田 晃弘 (NITTA, Akihiro) [JP/JP]; 〒1000013 東京都千代田区霞が関三丁目2番1号 帝人化成株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 大島 正孝 (OHSHIMA, Masataka); 〒1600022 東京都新宿区新宿1丁目17番11号 B N御苑ビル 大島特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (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, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告(条約第21条(3))

(54) Title: AROMATIC POLYCARBONATE RESIN COMPOSITION AND MOLDED ARTICLE THEREOF

(54) 発明の名称: 芳香族ポリカーボネート樹脂組成物およびその成形品

(57) Abstract: Disclosed is a resin composition which provides a molded article that effectively blocks heat radiation of sunlight, while having excellent transparency. A molded article of the resin composition is also disclosed. The resin composition contains an aromatic polycarbonate resin (component A), particles of a hexaboride of at least one element selected from the group consisting of Y, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Sr and Ca (component B-1) and a resin other than the component A (component B-2). The total content of the component B-1 and the component B-2 is 0.001-1 part by weight relative to 100 parts by weight of the component A. The resin composition contains particles (1) composed of the component B-1 and particles (2) composed of the component B-1 and the component B-2, and the particles (1) and the particles (2) both have a number average secondary particle diameter of not more than 50 μm and a maximum secondary particle diameter of not more than 300 μm.

(57) 要約: 本発明の目的は、太陽光からの熱線を効果的に遮蔽し、透明性に優れた成形品を与える樹脂組成物およびその成形品を提供することにある。本発明は、芳香族ポリカーボネート樹脂(A成分)、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu、SrおよびCaからなる群より選ばれる少なくとも一種の元素の六ホウ化物粒子(B-1成分)・並びにA成分以外の樹脂(B-2成分)を含有し、B-1成分およびB-2成分の合計含有量は、100重量部のA成分に対し0.001~1重量部であり、B-1成分から構成される粒子(1)、並びにB-1成分およびB-2成分から構成される粒子(2)を含有し、粒子(1)および粒子(2)は共に、数平均2次粒子径が50 μm以下であり、且つ最大2次粒子径が300 μm以下である、樹脂組成物である。

WO 2009/123271 A1

明 細 書

芳香族ポリカーボネート樹脂組成物およびその成形品

5 技術分野

本発明は、芳香族ポリカーボネート樹脂を含有し、熱線遮蔽性を有する樹脂組成物およびその成形品に関する。詳しくは太陽光からの熱線を効果的に遮蔽し、透明性に優れた成形品を与える樹脂組成物およびその成形品に関する。

10 背景技術

芳香族ポリカーボネート樹脂は、優れた透明性、耐熱性、機械的強度を有し、電気、機械、自動車、医療用途等に幅広く使用されている。例えば、光学情報記録媒体、光学レンズ、建築物・車輛用グレージング材料などに用いられている。

建築物・車輛用グレージング材料等のいわゆる窓材は室内や車内の温度上昇を抑制するため、太陽光からの熱線を遮蔽する特性が求められている。このような要望に対して、六ホウ化物粒子を芳香族ポリカーボネート樹脂に含有させた樹脂組成物が提案されている。

例えば、特許文献1には、六ホウ化物微粒子を芳香族ポリカーボネート樹脂やアクリル樹脂に分散させた熱線遮蔽シートが提案されている。特許文献2には、平均粒径100nm以下のホウ化ランタン微粒子を芳香族ポリカーボネート樹脂中に分散させた樹脂シートが提案されている。特許文献3には、芳香族ポリカーボネート樹脂中に、ホウ化物微粒子および水酸基およびカルボキシル基から選ばれた少なくとも1種の官能基を有する低分子化合物を含有する樹脂組成物およびその成形品が提案されている。特許文献4には、末端水酸基濃度が100～1,800ppmの範囲内である芳香族ポリカーボネート樹脂にホウ化物微粒子を配合した樹脂組成物およびその成形品が提案されている。

これらの樹脂組成物を製造する際には、一般的に熔融押出法が使用される。具体的には、六ホウ化物粒子および各種添加剤を含有するマスターバッチを作製し

た後、そのマスターバッチおよび芳香族ポリカーボネート樹脂を溶融混練することで、樹脂組成物を調製する。一般的に、マスターバッチは、六ホウ化物粒子および各種添加剤を芳香族ポリカーボネート樹脂と混合する工程を複数回繰り返すことによって作成される。しかしながら、マスターバッチの作製方法によっては、

5 樹脂組成物のヘイズが高くなるという問題があった。

(特許文献1) 特開2003-327717号公報

(特許文献2) 特開2005-47179号公報

(特許文献3) 特表2007-519804号公報

(特許文献4) 特開2006-307172号公報

10

発明の開示

本発明の目的は、芳香族ポリカーボネート樹脂を含有し、太陽光からの熱線を効果的に遮蔽し、透明性に優れた成形品を与える樹脂組成物およびその成形品を提供することにある。また本発明の目的は、六ホウ化物粒子が均一に分散した樹脂組成物を製造する方法を提供することにある。

15

本発明者らは、六ホウ化物粒子を分散剤である樹脂中に分散させた後、芳香族ポリカーボネート樹脂と混合し、所定の濃度のマスターバッチとし、芳香族ポリカーボネート樹脂と混合することにより、樹脂組成物中に、六ホウ化物粒子(粒子(1))、および分散剤と六ホウ化物粒子とからなる粒子(粒子(2))が形成され、これらが所定の粒子径に調整され、熱線遮蔽性および透明性に優れた成形品を与える樹脂組成物が得られることを見出し、本発明を完成した。

20

即ち、本発明は、以下の発明を包含する。

1. 芳香族ポリカーボネート樹脂(A成分)、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu、SrおよびCaからなる群より選ばれる少なくとも一種の元素の六ホウ化物粒子(B-1成分)、並びにA成分以外の樹脂(B-2成分)を含有し、
- 25
- B-1成分およびB-2成分の合計含有量は、100重量部のA成分に対し0.001~1重量部であり、

- B-1成分から構成される粒子(1)、並びにB-1成分およびB-2成分から構成される粒子(2)を含有し、粒子(1)および粒子(2)は共に、数平均2次粒子径が $50\mu\text{m}$ 以下であり、且つ最大2次粒子径が $300\mu\text{m}$ 以下である、樹脂組成物。
- 5 2. B-1成分およびB-2成分を混合してB成分を調製した後、100重量部のA成分と0.001~1重量部のB成分とを混合して得られる前項1記載の樹脂組成物。
3. 六ホウ化物粒子(B-1成分)がその表面に被覆層を有する前項1記載の樹脂組成物。
- 10 4. 六ホウ化物粒子(B-1成分)の被覆層が、六ホウ化物粒子の表面に形成された表面修飾剤による予備被覆膜と、その上に形成されたSiの酸化物を主成分とする被覆膜とからなる前項3記載の樹脂組成物。
5. 六ホウ化物粒子(B-1成分)が、Laの六ホウ化物粒子である前項1記載の樹脂組成物。
- 15 6. B-2成分は、極性の官能基を有すると共に、芳香族ポリカーボネート樹脂(A成分)との親和性を有する主鎖を有する樹脂である前項1記載の樹脂組成物。
7. B-2成分は、アクリル樹脂である前項1記載の樹脂組成物。
8. 六ホウ化物粒子(B-1成分)の含有量は、100重量部の樹脂(B-2
- 20 成分)に対し、1~50重量部である前項1記載の樹脂組成物。
9. 樹脂(B-2成分)100重量部に対し、0.1~50重量部の窒化物粒子を含有する前項1記載の樹脂組成物。
10. 窒化物粒子が、Ti、Zr、Hf、V、NbおよびTaからなる群より選ばれる少なくとも一種の金属の窒化物粒子である前項9記載の樹脂組成物。
- 25 11. A成分100重量部あたり、熱安定剤(C成分)0.005~5重量部を含有する前項1記載の樹脂組成物。
12. A成分100重量部あたり、離型剤(D成分)0.005~5重量部を含有する前項1記載の樹脂組成物。

13. A成分100重量部あたり、紫外線吸収剤（E成分）0.005～5重量部を含有する前項1記載の樹脂組成物。

14. 前項1記載の樹脂組成物よりなる成形品。

15. (i) B-1成分とB-2成分とを混合してB成分を調製し、

5 (ii) A成分とB成分とを混合してマスターバッチを調製し、

(iii) マスターバッチとA成分とを混合する、

各工程を含む前項1記載の樹脂組成物の製造方法。

16. 100重量部のA成分と0.1～20重量部のB成分とを混合してマスターバッチを調製する前項15記載の製造方法。

10

図面の簡単な説明

図1は、実施例で作成された成形品の正面概略図[1-A]およびその側面図[1-B]である。

図2は、実施例1で得られたテストピースのEF-TEM写真である。

15

符号の説明

- 1 成形品本体
- 2 テストピースの切り出し部分
- 3 成形品のゲート部分
- 20 4 対象軸
- 5 粒子(1)
- 6 粒子(2)

発明を実施するための最良の形態

25 以下、本発明の詳細について、説明する。

(A成分：芳香族ポリカーボネート樹脂)

本発明でA成分として使用される芳香族ポリカーボネート樹脂は、二価フェノールとカーボネート前駆体とを反応させて得られるものである。反応方法の一例

として界面重合法、溶融エステル交換法、カーボネートプレポリマーの固相エステル交換法および環状カーボネート化合物の開環重合法などを挙げることができる。

ここで使用される二価フェノールの代表的な例としては、ハイドロキノン、レゾルシノール、4, 4'-ビフェノール、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)プロパン(通称ビスフェノールA(以下、「BPA」と略称することがある))、2, 2-ビス(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)プロパン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ブタン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-1-フェニルエタン、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、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ペンタン、4, 4'-(p-フェニレンジイソプロピリデン)ジフェノール、4, 4'-(m-フェニレンジイソプロピリデン)ジフェノール、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-4-イソプロピルシクロヘキサン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)オキシド、ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルフィド、ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホキシド、ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)ケトン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)エステル、ビス(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)スルフィド、9, 9-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレンおよび9, 9-ビス(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)フルオレンなどが挙げられる。好ましい二価フェノールは、ビス(4-ヒドロキシフェニル)アルカンであり、なかでも耐衝撃性の点からビスフェノールAが特に好ましい。

本発明では、汎用の芳香族ポリカーボネートであるビスフェノールA系のポリカーボネート以外にも、他の2価フェノール類を用いて製造した特殊なポリカーボネートをA成分として使用することが可能である。

例えば、2価フェノール成分の一部または全部として、4, 4'-(m-フェニレンジイソプロピリデン)ジフェノール(以下“BPM”と略称することがある)、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 (以下
“B i s - T M C” と略称することがある)、9, 9-ビス (4-ヒドロキシフ
ェニル) フルオレンおよび9, 9-ビス (4-ヒドロキシ-3-メチルフェニ
ル) フルオレン (以下 “B C F” と略称することがある) を用いた芳香族ポリカ
5 ーボネート (単独重合体または共重合体) は、吸水による寸法変化や形態安定性
の要求が特に厳しい用途に適當である。これらのB P A以外の2価フェノールは、
該ポリカーボネートを構成する2価フェノール成分全体の5モル%以上、特に1
0モル%以上、使用するのが好ましい。殊に、高剛性かつより良好な耐加水分解
性が要求される場合には、樹脂組成物を構成するA成分が次の(1) ~ (3) の
10 共重合ポリカーボネートであるのが特に好適である。

- (1) 芳香族ポリカーボネートを構成する2価フェノール成分100モル%中、
B P Mが20~80モル% (より好適には40~75モル%、さらに好適には4
5~65モル%) であり、かつB C Fが20~80モル% (より好適には25~
60モル%、さらに好適には35~55モル%) である共重合ポリカーボネート。
15 (2) 芳香族ポリカーボネートを構成する2価フェノール成分100モル%中、
B P Aが10~95モル% (より好適には50~90モル%、さらに好適には6
0~85モル%) であり、かつB C Fが5~90モル% (より好適には10~5
0モル%、さらに好適には15~40モル%) である共重合ポリカーボネート。
(3) 芳香族ポリカーボネートを構成する2価フェノール成分100モル%中、
20 B P Mが20~80モル% (より好適には40~75モル%、さらに好適には4
5~65モル%) であり、かつB i s - T M Cが20~80モル% (より好適に
は25~60モル%、さらに好適には35~55モル%) である共重合ポリカ
ーボネート。

これらの特殊な芳香族ポリカーボネートは、単独で用いてもよく、2種以上を
25 適宜混合して使用してもよい。また、これらを汎用されているビスフェノールA
型のポリカーボネートと混合して使用することもできる。これらの特殊な芳香族
ポリカーボネートの製法および特性については、例えば、特開平6-17250
8号公報、特開平8-27370号公報、特開2001-55435号公報およ

び特開2002-117580号公報等に詳しく記載されている。

なお、上述した各種の芳香族ポリカーボネートの中でも、共重合組成等を調整して、吸水率およびT_g（ガラス転移温度）を下記の範囲内にしたものは、ポリマー自体の耐加水分解性が良好で、かつ成形後の低反り性においても格段に優れているため、形態安定性が要求される分野では特に好適である。

(i) 吸水率が0.05~0.15%、好ましくは0.06~0.13%であり、かつT_gが120~180℃である芳香族ポリカーボネート、あるいは

(ii) T_gが160~250℃、好ましくは170~230℃であり、かつ吸水率が0.10~0.30%、好ましくは0.13~0.30%、より好ましくは0.14~0.27%である芳香族ポリカーボネート。

ここで、芳香族ポリカーボネートの吸水率は、直径45mm、厚み3.0mmの円板状試験片を用い、ISO62-1980に準拠して23℃の水中に24時間浸漬した後の水分率を測定した値である。また、T_g（ガラス転移温度）は、JIS K7121に準拠した示差走査熱量計（DSC）測定により求められる値である。

カーボネート前駆体としてはカルボニルハライド、炭酸ジエステルまたはハロホルメートなどが使用され、具体的にはホスゲン、ジフェニルカーボネートまたは二価フェノールのジハロホルメートなどが挙げられる。

二価フェノールとカーボネート前駆体から界面重合法によって芳香族ポリカーボネート樹脂を製造するに当たっては、必要に応じて触媒、末端停止剤、二価フェノールが酸化するのを防止するための酸化防止剤などを使用してもよい。

また芳香族ポリカーボネート樹脂は、三官能以上の多官能性化合物を共重合した分岐ポリカーボネート樹脂、芳香族または脂肪族（脂環族を含む）の二官能性カルボン酸を共重合したポリエステルカーボネート樹脂、二官能性アルコール（脂環族を含む）を共重合した共重合ポリカーボネート樹脂、並びにかかる二官能性カルボン酸および二官能性アルコールを共に共重合したポリエステルカーボネート樹脂を含む。また、得られた芳香族ポリカーボネート樹脂の2種以上を混合した混合物であってもよい。

分岐ポリカーボネート樹脂は、本発明の樹脂組成物の有するドリップ防止能をさらに相乗的に改善可能であるため、その使用は好ましい。かかる分岐ポリカーボネート樹脂に使用される三官能以上の多官能性芳香族化合物としては、フロログルシン、フロログルシド、または4, 6-ジメチル-2, 4, 6-トリス(4-ヒドロキシフェニル)ヘプテン-2, 2, 4, 6-トリメチル-2, 4, 6-トリス(4-ヒドロキシフェニル)ヘプタン、1, 3, 5-トリス(4-ヒドロキシフェニル)ベンゼン、1, 1, 1-トリス(4-ヒドロキシフェニル)エタン、1, 1, 1-トリス(3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)エタン、2, 6-ビス(2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェノール、4- {4- [1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エチル]ベンゼン} - α , α -ジメチルベンジルフェノール等のトリスフェノール等が挙げられる。またテトラ(4-ヒドロキシフェニル)メタン、ビス(2, 4-ジヒドロキシフェニル)ケトン、1, 4-ビス(4, 4-ジヒドロキシトリフェニルメチル)ベンゼン、トリメリット酸、ピロメリット酸、ベンゾフェノンテトラカルボン酸およびこれらの酸クロライド等が挙げられる。中でも1, 1, 1-トリス(4-ヒドロキシフェニル)エタン、1, 1, 1-トリス(3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)エタンが好ましく、特に1, 1, 1-トリス(4-ヒドロキシフェニル)エタンが好ましい。

分岐ポリカーボネート樹脂中の多官能性化合物の割合は、ポリカーボネート樹脂全量中、0.001~1モル%、好ましくは0.005~0.9モル%、より好ましくは0.01~0.8モル%、特に好ましくは0.05~0.4モル%である。また特に溶融エステル交換法の場合、副反応として分岐構造が生ずる場合があるが、かかる分岐構造量についても、ポリカーボネート樹脂全量中、前記した範囲であることが好適である。なお、かかる分岐構造量については¹H-NMR測定により算出することが可能である。

脂肪族の二官能性のカルボン酸は、 α , ω -ジカルボン酸が好ましい。脂肪族の二官能性のカルボン酸としては例えば、セバシン酸(デカン二酸)、ドデカン二酸、テトラデカン二酸、オクタデカン二酸、イコサン二酸などの直鎖飽和脂肪

族ジカルボン酸、並びにシクロヘキサンジカルボン酸などの脂環族ジカルボン酸が好ましく挙げられる。二官能性アルコールとしては脂環族ジオールがより好適であり、例えばシクロヘキサンジメタノール、シクロヘキサンジオール、およびトリシクロデカンジメタノールなどが例示される。さらにポリオルガノシロキサン単位を共重合した、ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体の使用も可能である。

芳香族ポリカーボネート樹脂の製造方法である界面重合法、溶融エステル交換法、カーボネートプレポリマーの固相エステル交換法、および環状カーボネート化合物の開環重合法などの反応形式は、各種の文献および特許公報などで良く知られている方法である。前記以外の反応形式の詳細についても、各種文献および特許公報などで良く知られている。

芳香族ポリカーボネート樹脂の粘度平均分子量 (M) は、好ましくは $1 \times 10^4 \sim 5 \times 10^4$ であり、より好ましくは $1.4 \times 10^4 \sim 3 \times 10^4$ であり、さらに好ましくは $1.4 \times 10^4 \sim 2.4 \times 10^4$ である。粘度平均分子量が 1×10^4 未満の芳香族ポリカーボネート樹脂では、実用上期待される耐衝撃性などが得られない場合があり、また十分なドリップ防止能が得られないことから難燃性においても劣りやすい。一方、粘度平均分子量が 5×10^4 を超える芳香族ポリカーボネート樹脂から得られる樹脂組成物は、射出成形時の流動性に劣る点で汎用性に劣る。

粘度平均分子量は、まず、次式にて算出される比粘度 (η_{SP}) を 20°C で塩化メチレン 100ml にポリカーボネート 0.7g を溶解した溶液からオストワルド粘度計を用いて求め、

$$\text{比粘度 } (\eta_{SP}) = (t - t_0) / t_0$$

[t_0 は塩化メチレンの落下秒数、 t は試料溶液の落下秒数]

求められた比粘度 (η_{SP}) から次の数式により粘度平均分子量 M を算出する。

$$\eta_{SP}/c = [\eta] + 0.45 \times [\eta]^2 c \quad (\text{但し } [\eta] \text{ は極限粘度})$$

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

$$c = 0.7$$

粘度平均分子量の算出法は、本発明の樹脂組成物や成形品の粘度平均分子量測定にも適用される。即ち、本発明においてこれらの粘度平均分子量は、塩化メチレン100mlに成形品0.7gを溶解した溶液から20℃で求めた比粘度(η_{sp})を前記式に挿入して求めたものである。

- 5 芳香族ポリカーボネート樹脂の形状は、特に限定されないが、芳香族ポリカーボネート樹脂に対する六ホウ化物粒子や窒化物粒子の分散性を向上させる点から
例えば芳香族ポリカーボネート樹脂パウダーが好ましい。さらに芳香族ポリカーボネート樹脂パウダーの粒子径分布は、特に限定されないが、パウダー全体に対する粒子径710 μ m以上のパウダーの含有量が50重量%以下、より好ましくは40重量%以下であり、かつパウダー全体に対する粒子径180 μ m未満のパウダーの含有量が0~40重量%、より好ましくは10~30重量%が好ましい。

10 パウダー全体に対する粒子径710 μ m以上のパウダーの含有量が50重量%を超える芳香族ポリカーボネート樹脂パウダーでは、本発明の樹脂組成物の製造過程で芳香族ポリカーボネート樹脂パウダーと六ホウ化物粒子や窒化物粒子との
15 間で分級などが生じやすくなるため、樹脂組成物中の六ホウ化物粒子や窒化物粒子が二次凝集しやすくなる。その結果、本発明の樹脂組成物から得られる成形体において、高い透明性や六ホウ化物粒子や窒化物粒子の配合量に応じた熱線吸収性能が出ない場合がある。

20 またパウダー全体に対する粒子径180 μ m未満のパウダーの含有量が40重量%を越える芳香族ポリカーボネート樹脂パウダーでは、本発明の樹脂組成物を製造するにあたり、溶融混練機のスクリュへの噛みこみ不良などが起こりやすくなるため、生産性を落す原因になることがある。

25 なお本発明でいう芳香族ポリカーボネート樹脂パウダーの粒子径分布は、まず芳香族ポリカーボネート樹脂パウダー200gをステンレス製JIS標準篩(22メッシュ、目開き710 μ m)に入れて上蓋をし、100往復(1往復の距離は40cm、1往復する時間は1秒)させた後、該標準篩上に残留したパウダーの質量を測定して、パウダー全体に対するこの残留パウダーの質量の割合を算出し、粒子径710 μ m以上のパウダーの含有量とする。続いて22メッシュ標準

篩から落下したパウダーを J I S 標準篩 (8 3 メッシュ、目開き 1 8 0 μm) に
入れて上蓋をし、 1 0 0 往復させた後、該標準篩上に残留したパウダーの質量を
測定して、パウダー全体に対するこの残留パウダーの質量の割合を算出し、粒子
径 1 8 0 ~ 7 1 0 μm 未満のパウダーの含有量とする。最後に 8 3 メッシュ標準
5 篩から落下したパウダーの質量を測定し、パウダー全体に対するこの落下パウダ
ーの質量の割合を算出し、粒子径 1 8 0 μm 未満のパウダーの含有量とするもの
である。

(B - 1 成分 : 六ホウ化物粒子)

本発明の B - 1 成分は、 Y (イットリウム)、 L a (ランタン)、 C e (セリウ
10 ム)、 P r (プラセオジウム)、 N d (ネオジウム)、 S m (サマリウム)、 E u
(ユウロピウム)、 G d (ガドリニウム)、 T b (テルビウム)、 D y (ジスプロ
シウム)、 H o (ホルミウム)、 E r (エルビウム)、 T m (ツリウム)、 Y b (イ
ッテルビウム)、 L u (ルテチウム)、 S r (ストロンチウム) および C a (カル
シウム) からなる群から選ばれる少なくとも一種の元素の六ホウ化物粒子である。

15 本発明の樹脂組成物は、 B - 1 成分から構成される粒子 (1) を含有する。粒
子 (1) の数平均 2 次粒子径は、 5 0 μm 以下、好ましくは 2 0 μm 以下、より
好ましくは 5 μm 以下、最も好ましくは 1 μm 以下である。また粒子 (1) の最
大 2 次粒子径は、 3 0 0 μm 以下、好ましくは 1 0 0 μm 以下、より好ましくは
5 0 μm 以下、最も好ましくは 2 0 μm 以下である。数平均 2 次粒子径が 5 0 μ
20 m より大きい場合、あるいは最大 2 次粒子径が 3 0 0 μm より大きい場合にはヘ
イズが高くなり、透明性が低下するだけでなく、例えば車両用窓等の製品として
見た場合、異物として認識されるため、製品とならない場合がある。

なお、この数平均 2 次粒子径および最大 2 次粒子径は以下の方法により測定さ
れる。すなわち、レーザー顕微鏡またはビデオマイクロスコープにより観察した
25 画像を 2 値化処理後、粒子径分布解析ソフトを用いて、数平均 2 次粒子径および
最大 2 次粒子径を測定する。なお、測定個数は 1, 0 0 0 個とする。

六ホウ化物粒子を構成する元素の中でも L a、C e、N d、G d が好ましく、
L a、C e がより好ましく、L a が特に好ましい。六ホウ化物粒子は粒子径 2 n

m~100nmが好ましく、5~90nmが特に好ましい。六ホウ化物粒子は、例えば住友金属鉱山（株）製KHDS-06等が市販され容易に入手可能である。

六ホウ化物粒子（B-1成分）は、その表面に被覆層を有することが望ましい。被覆層は、金属酸化物を主成分とすることが望ましい。被覆層は、Si、Ti、AlおよびZrからなる群より選ばれる少なくとも一種の金属の酸化物を主成分とすることがより好ましい。その中でもSiの酸化物を主成分とする被覆層であることが最も好ましい。Siの酸化物の六ホウ化物に対する比率は、ケイ酸化合物に含まれるSi換算で六ホウ化物微粒子1重量部に対して0.01~100重量部の範囲、より好ましくは0.1~10重量部の範囲である。このケイ酸化合物の比率が0.01重量部未満では二次被覆膜の形成が難しく、逆に100重量部を超えると粒子間の凝集が起こるからである。

被覆膜の厚さは、好ましくは1~100nm、より好ましくは5~90nm、さらに好ましくは10~80nmである。

被覆層は、六ホウ化物粒子を溶媒に分散させ、その溶媒に金属酸化物を含有する表面処理剤を添加混合し、化学的に反応させることで被覆させるかまたは物理的に被覆させることにより形成することができる。

例えば、Siを主成分とする被覆層はシラザン系処理剤、クロロシラン系処理剤、アルコキシ基を分子構造中に有する無機系処理剤、撥水性の改善が期待できるアミノ基含有アルコキシシランを分子末端若しくは側鎖に有する有機系処理剤およびアルコキシ基を分子末端若しくは側鎖に有する有機系処理剤などケイ素を含有する表面処理剤により形成される。使用される溶媒としては、水、アルコール等の有機溶媒、あるいは水と有機溶媒の混合物等が挙げられる。

被覆層は、六ホウ化物粒子（B-1成分）の表面に形成された表面修飾剤による予備被覆膜と、その上に形成されたSiの酸化物を主成分とする被覆膜とからなることがより好ましい。即ち、六ホウ化物粒子の表面に、予めシランカップリング剤などの表面修飾剤で予備被覆膜を形成し、次にSiの酸化物を主成分とする被覆膜を形成することが好ましい。

B-1成分の含有量は、100重量部の樹脂（B-2成分）に対し、好ましく

は1～50重量部、より好ましくは5～30重量部、さらに好ましくは7～20重量部である。

(B-2成分：A成分以外の樹脂)

B-2成分は、芳香族ポリカーボネート樹脂(A成分)以外の樹脂である。B-2成分は、極性の官能基を有すると共に、芳香族ポリカーボネート樹脂(A成分)との親和性を有する主鎖を有する樹脂が好ましい。上記官能基としては、例えば、アミノ基、カルボキシル基、スルホニル基、およびその塩等が挙げられるが、被覆六ホウ化物粒子と親和性を有する官能基であれば特に制限されない。

B-2成分として、アクリル樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエーテル樹脂、ポリエステル樹脂等が挙げられる。その中でも、特にアクリル樹脂が好ましい。アクリル樹脂としては、メタクリル酸メチル、メタクリル酸ブチル、メタクリル酸シクロヘキシル等を公知の重合方法で重合することにより得たもの、カプロラクトン変性カルボキシ(メタ)アクリレート、(メタ)アクリル酸、イタコン酸、マレイン酸、無水マレイン酸、ジメチルアミノエチル(メタ)アクリレート、ジエチルアミノエチル(メタ)アクリレート、ジメチルアミノプロピル(メタ)アクリレート、ジエチルアミノプロピル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシジメチルアミノプロピル(メタ)アクリレート、アミノエチル(メタ)アクリレート等の単量体を公知の重合方法で重合することにより得たものが挙げられる。その中でもメタクリル酸メチル、メタクリル酸ブチル、メタクリル酸シクロヘキシルを公知の重合方法で重合することにより得たものが好ましく用いられる。

B-2成分として、サンノプコ(SANNOPKO)(株)製の商品名SNシックナーA-850、SNシックナーA-815、エフカアディティブズ(EFKAADDITIONALS B. V.)社製の商品名EFKA4500、EFKA4530、およびビックケミー(BYK-Chemie)社製の商品名Disperbyk-116等のポリアクリレート系分散剤、エフカアディティブズ社製の商品名EFKA4046、EFKA4047、EFKA4520、およびコグニス(Cognis)社製の商品名TEXAPHORP60、TEXAPHORP63、TEXAPHORP610等のポリウレタン系分散剤、サンノプコ

(株) 製の商品名SNシックナーA-801、SNシックナーA-802、SNシックナーA-803、SNシックナーA-804、SNシックナーA-806、および楠本化成社製の商品名DISPARLONDA234、DISPARLONDA325等のポリエーテル系分散剤、並びにアベシア (Avecia) 社製の商品名Solsperse22000、Solsperse24000SC、Solsperse24000GR、Solsperse26000、Solsperse27000、Solsperse28000、Solsperse36000、Solsperse36600、Solsperse38500、および楠本化成社製の商品名DISPARLONDA70350、DISPARLONDA705、DISPARLONDA725、DISPARLONDA860、DISPARLONDA873N等のポリエステル系分散剤等が例示され、その中でもポリアクリレート系分散剤が好ましい。

本発明の樹脂組成物は、B-1成分およびB-2成分から構成される粒子(2)を含有する。粒子(2)の数平均2次粒子径は50 μ m以下、好ましくは20 μ m以下、より好ましくは5 μ m以下、最も好ましくは1 μ m以下である。また粒子(2)の最大2次粒子径は、300 μ m以下、好ましくは100 μ m以下、より好ましくは50 μ m以下、最も好ましくは20 μ m以下である。粒子(2)の数平均2次粒子径が50 μ mより大きい場合、あるいは最大2次粒子径が300 μ mより大きい場合にはヘイズが高くなり、透明性が低下するだけでなく、例えば車両用窓等の製品として見た場合、異物として認識されるため、製品とならない場合がある。

なお、この数平均2次粒子径および最大2次粒子径は粒子(1)と同様の方法により測定される。

本発明の樹脂組成物中の、粒子(1)と粒子(2)との割合は、粒子(1)/粒子(2)の比が、好ましくは3/7~7/3、より好ましくは4/6~6/4である。

なお、A成分とB成分を熔融混練する過程において、B成分からB-1成分が分離することによって、本発明の樹脂組成物中に粒子(1)と粒子(2)が共存

することとなる。

(窒化物粒子)

本発明の樹脂組成物は、樹脂（B-2成分）100重量部に対し、0.1～50重量部の窒化物粒子を含有することが好ましい。窒化物粒子は、Ti、Zr、
5 Hf、V、NbおよびTaからなる群より選ばれる少なくとも一種の金属の窒化物粒子であることが好ましい。

B-1成分およびB-2成分の合計含有量は、芳香族ポリカーボネート樹脂（A成分）100重量部に対し、0.001～1重量部、より好ましくは、0.01～0.5重量部、さらに好ましくは0.05～0.3重量部である。

10 本発明の樹脂組成物は、B-1成分およびB-2成分を混合してB成分を調製した後、100重量部のA成分と0.001～1重量部のB成分とを混合して得られる樹脂組成物であることが好ましい。

(C成分：熱安定剤)

本発明の樹脂組成物は熱安定剤（C成分）を含有していてもよい。熱安定剤
15 (C成分)として、リン系熱安定剤やヒンダードフェノール系安定剤が好ましい。リン系熱安定剤としては、亜リン酸、リン酸、亜ホスホン酸、ホスホン酸およびこれらのエステル等が挙げられる。

かかるエステルの具体例としては、次のものが挙げられる。ホスファイト化合物としては、トリフェニルホスファイト、トリス（ノニルフェニル）ホスファイト、
20 トリデシルホスファイト、トリオクチルホスファイト、トリオクタデシルホスファイト、ジデシルモノフェニルホスファイト、ジオクチルモノフェニルホスファイト、ジイソプロピルモノフェニルホスファイト、モノブチルジフェニルホスファイト、モノデシルジフェニルホスファイト、モノオクチルジフェニルホスファイト、トリス（2,4-ジ-tert-ブチルフェニル）ホスファイト、ビス（2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、2,2-メチレンビス（4,6-ジ-tert-ブチルフェニル）オクチルホスファイト、ビス（ノニルフェニル）ペンタエリスリトールジ
25 ホスファイト、ビス（2,4-ジ-tert-ブチルフェニル）ペンタエリスリ

トールジホスファイト、およびジステアリアルペンタエリスリトールジホスファイトなどが挙げられる。

ホスフェート化合物としては、トリブチルホスフェート、トリエチルホスフェート、トリメチルホスフェート、トリフェニルホスフェート、ジフェニルモノオールソキセニルホスフェート、ジブチルホスフェート、ジオクチルホスフェート、およびジイソプロピルホスフェートなどが挙げられる。

ホスホナイト化合物としては、テトラキス(2, 4-ジ-*i*so-プロピルフェニル)-4, 4'-ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス(2, 4-ジ-*n*-ブチルフェニル)-4, 4'-ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス(2, 4-ジ-*tert*-ブチルフェニル)-4, 4'-ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス(2, 4-ジ-*tert*-ブチルフェニル)-4, 3'-ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス(2, 4-ジ-*tert*-ブチルフェニル)-4, 3'-ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス(2, 6-ジ-*i*so-プロピルフェニル)-4, 4'-ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス(2, 6-ジ-*n*-ブチルフェニル)-4, 4'-ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス(2, 6-ジ-*tert*-ブチルフェニル)-4, 4'-ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス(2, 6-ジ-*tert*-ブチルフェニル)-4, 3'-ビフェニレンジホスホナイト、テトラキス(2, 6-ジ-*tert*-ブチルフェニル)-4, 3'-ビフェニレンジホスホナイト、およびビス(2, 4-ジ-*tert*-ブチルフェニル)-フェニル-フェニルホスホナイトなどが挙げられる。

ホスホネイト化合物としては、ベンゼンホスホン酸ジメチル、ベンゼンホスホン酸ジエチル、およびベンゼンホスホン酸ジプロピル等が挙げられる。

なかでもトリス(2, 4-ジ-*tert*-ブチルフェニル)ホスファイト、テトラキス(2, 4-ジ-*tert*-ブチルフェニル)-4, 4'-ビフェニレンジホスホナイトおよびビス(2, 4-ジ-*tert*-ブチルフェニル)-フェニル-フェニルホスホナイトが好ましい。

また、ヒンダードフェノール系安定剤としては、例えばオクタデシル-3-

(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネート、
ペンタエリスリチルテトラキス [3- (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒ
ドロキシフェニル) プロピオネート]、2, 6-ジ-tert-ブチル-p-ク
レゾール、4, 4'-ブチリデンビス- (6-tert-ブチル-3-メチルフ
5 エノール、1, 1, 3-トリス (2-メチル-4-ヒドロキシ-5-tert-
ブチルフェニル) メタン、2, 2-チオジエチレンビス- [3- (3, 5-ジ-
tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネート]、オクタデシル
-3- (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネ
ート、N, N'-ヘキサメチレンビス- (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-
10 ヒドロキシナミド)、3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-ベンジ
ルホスホネート-ジエチルエステル、1, 3, 5-トリメチル-2, 4, 6-ト
リス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル) ベンゼン、1,
6-ヘキサンジオールビス [3- (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロ
キシフェニル) プロピオネート]、トリス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4
15 -ヒドロキシベンジル) イソシアヌレート、および2, 4-ビス (n-オクチル
チオ-6- (4-ヒドロキシ-3, 5-ジ-tert-ブチルアニリノ) -1,
3, 5-トリアジンなどが挙げられる。これらの熱安定剤は、1種もしくは2種
以上を混合して用いてもよい。

熱安定剤 (C成分) の含有量は、芳香族ポリカーボネート樹脂 (A成分) 10
20 0重量部に対して、好ましくは0.005~5重量部、より好ましくは0.00
8~2重量部、更に好ましくは0.01~0.5重量部である。

(D成分：離型剤)

本発明の樹脂組成物は離型剤 (D成分) を含有していてもよい。離型剤 (D成
分) としては公知のものが使用できる。例えば、飽和脂肪酸エステル、不飽和脂
25 肪酸エステル、ポリオレフィン系ワックス (ポリエチレンワックス、1-アルケ
ン重合体など、酸変性などの官能基含有化合物で変性されているものも使用でき
る)、シリコン化合物、フッ素化合物 (ポリフルオロアルキルエーテルに代表
されるフッ素オイルなど)、パラフィンワックス、蜜蝋などを挙げることができ

る。なお、D成分は可塑剤の特性を持っており、本発明の樹脂組成物にD成分を添加することによって、B成分の分散性が良化する効果がある。離型剤（D成分）の含有量は、芳香族ポリカーボネート樹脂（A成分）100重量部に対して、好ましくは0.005～5重量部、より好ましくは0.008～2重量部、更に
5 好ましくは0.01～0.5重量部、最も好ましくは0.08～0.5重量部である。

（E成分：紫外線吸収剤）

本発明の樹脂組成物は紫外線吸収剤（E成分）を含有していてもよい。紫外線吸収剤（E成分）としては、紫外線吸収剤として公知のベンゾフェノン系化合物、
10 ベンゾトリアゾール系化合物、ヒドロキシフェニルトリアジン系化合物、環状イミノエステル系化合物、およびシアノアクリレート系化合物などが例示される。

ベンゾトリアゾール系化合物としては、2-（2H-ベンゾトリアゾール-2-イル）-p-クレゾール、2-（2H-ベンゾトリアゾール-2-イル）-4-
15 -（1,1,3,3-テトラメチルブチル）フェノール、2-（2H-ベンゾトリアゾール-2-イル）-4,6-ビス（1-メチル-1-フェニルエチル）フェノール、2-[5-クロロ（2H）-ベンゾトリアゾール-2-イル]-4-メチル-6-tert-ブチルフェノール、および2,2'-メチレンビス[6-（2H-ベンゾトリアゾール-2-イル）-4-（1,1,3,3-テトラメチルブチル）フェノール]などが好適に例示される。

20 ヒドロキシフェニルトリアジン系化合物としては、2-（4,6-ジフェニル-1,3,5-トリアジン-2-イル）-5-[(ヘキシル)オキシ]フェノールが好適に例示される。

環状イミノエステル系化合物としては、2,2'-p-フェニレンビス（3,1-ベンゾオキサジン-4-オン）が好適に例示される。

25 シアノアクリレート系化合物としては、1,3-ビス[(2-シアノ-3,3-ジフェニルアクリロイル)オキシ]-2,2-ビス[[（2-シアノ-3,3-ジフェニルアクリロイル）オキシ]メチル]プロパンが好適に例示される。

さらに紫外線吸収剤は、ラジカル重合が可能な単量体化合物の構造をとること

により、かかる紫外線吸収性単量体と、アルキル（メタ）アクリレートなどの単量体とを共重合したポリマー型の紫外線吸収剤であってもよい。紫外線吸収性単量体としては、（メタ）アクリル酸エステルのエステル置換基中にベンゾトリアゾール骨格、ベンゾフェノン骨格、トリアジン骨格、環状イミノエステル骨格、
5 およびシアノアクリレート骨格を含有する化合物が好適に例示される。

上記の中でも良好な熱安定性を有する点から、より好適な紫外線吸収剤として環状イミノエステル系化合物が挙げられる。その他化合物においても比較的高分子
10 量である方が良好な耐熱性が得られ、例えば、2, 2'-メチレンビス [6-(2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)-4-(1, 1, 3, 3-テトラメチル
ルブチル) フェノール]、2-(4, 6-ジフェニル-1, 3, 5-トリアジン-2-イル)-5-[(ヘキシル) オキシ] フェノール、および1, 3-ビス
[(2-シアノ-3, 3-ジフェニルアクリロイル) オキシ]-2, 2-ビス
[[(2-シアノ-3, 3-ジフェニルアクリロイル) オキシ] メチル] プロパン
15 が好適に例示される。

15 紫外線吸収剤（E成分）の含有量は、芳香族ポリカーボネート樹脂（A成分）100重量部に対して、好ましくは0.005～5重量部、より好ましくは0.01～3重量部、更に好ましくは0.05～0.5重量部である。

（その他の添加剤）

本発明の樹脂組成物は、必要に応じて、従来公知の各種の添加剤を含有するこ
20 とができる。かかる添加剤としては、例えば、酸化防止剤、光安定剤、着色剤、摺動剤、光拡散剤、蛍光増白剤、帯電防止剤、難燃剤、難燃助剤、可塑剤、強化充填材、衝撃改質剤、光触媒系防汚剤、およびフォトクロミック剤等が例示される。

（酸化防止剤）

25 酸化防止剤としては、ヒンダードフェノール化合物が好適に例示される。例えばテトラキス [メチレン-3-(3-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル) プロピオネート] メタン、オクタデシル-3-(3, 5-ジtert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネート、および3, 9-

ビス [2 - {3 - (3 - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシ - 5 - メチルフェニル) プロピオニルオキシ} - 1, 1 - ジメチルエチル] - 2, 4, 8, 10 - テトラオキサスピロ [5, 5] ウンデカンが好適に利用される。これら酸化防止剤の含有量は、芳香族ポリカーボネート樹脂 (A成分) 100重量部あたり、0.005 ~ 5重量部が好ましく、0.01 ~ 1重量部がより好ましい。

(光安定剤)

光安定剤として、ビス (2, 2, 6, 6 - テトラメチル - 4 - ピペリジル) セバケート、ビス (1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチル - 4 - ピペリジル) セバケート、テトラキス (2, 2, 6, 6 - テトラメチル - 4 - ピペリジル) - 1, 2, 3, 4 - ブタンテトラカルボキシレート、テトラキス (1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチル - 4 - ピペリジル) - 1, 2, 3, 4 - ブタンテトラカルボキシレート、ポリ {[6 - (1, 1, 3, 3 - テトラメチルブチル) アミノ - 1, 3, 5 - トリアジン - 2, 4 - ジイル] [(2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジル) イミノ] ヘキサメチレン [(2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジル) イミノ]}、およびポリメチルプロピル 3 - オキシ - [4 - (2, 2, 6, 6 - テトラメチル) ピペリジニル] シロキサンなどに代表されるヒンダードアミン系の光安定剤が挙げられる。

これら光安定剤の含有量は、芳香族ポリカーボネート樹脂 (A成分) 100重量部あたり、0.01 ~ 5重量部が好ましく、0.05 ~ 1重量部がより好ましい。

(着色剤)

本発明の樹脂組成物は、必要に応じて着色剤を配合することができるが、着色できるものであれば、特に制限はない。染料としてはペリレン系染料、クマリン系染料、チオインジゴ系染料、アンスラキノン系染料、チオキサントン系染料、紺青等のフェロシアン化物、ペリノン系染料、キノリン系染料、キナクリドン系染料、ジオキサジン系染料、イソインドリノン系染料、およびフタロシアニン系染料などを挙げるができる。顔料としては、カーボンブラック、酸化チタン、銅フタロシアニン、硫酸バリウム、更にビスベンゾオキサゾリルースチルベン誘

5 導体、ビスベンゾオキサゾリルナフタレン誘導体、ビスベンゾオキサゾリルチオフェン誘導体、およびクマリン誘導体などの蛍光増白剤を使用することができる。これら染料および蛍光増白剤の含有量は、芳香族ポリカーボネート樹脂100重量部あたり、0.0001~1重量部が好ましく、0.0005~0.5重量部がより好ましい。

(樹脂組成物の製造)

本発明の樹脂組成物は、工程(i)、工程(ii)および工程(iii)の各工程により製造することができる。

(工程(i))

10 工程(i)は、六ホウ化物粒子(B-1成分)とA成分以外の樹脂(B-2成分)とを混合してB成分を調製する工程である。B-1成分は、100重量部のB-2成分に対し、好ましくは1~50重量部、より好ましくは5~30重量部、さらに好ましくは7~20重量部用いる。B成分は、B-1成分およびB-2成分を溶剤中で混ぜて分散させた後、乾燥させて溶剤を蒸発させ調製することが好
15 ましい。

(工程(ii))

工程(ii)は、芳香族ポリカーボネート樹脂(A成分)とB成分とを混合してマスターバッチを調製する工程である。

20 B成分の量は、100重量部のA成分に対して、好ましくは0.1~20重量部、より好ましくは1~12重量部、さらに好ましくは3~12重量部である。マスターバッチにおけるB成分の量を上記範囲にすることにより、工程(iii)において、粒子(1)および粒子(2)の分散性が良好となり、得られる本発明の樹脂組成物において、粒子(1)および粒子(2)の数平均2次粒子径が50 μ m以下とし、且つ最大2次粒子径を300 μ m以下にすることができる。

25 混合は、V型ブレンダー、ヘンシェルミキサー、メカノケミカル装置、押出混合機などで予備混合した後、ベント式二軸ルーダーに代表される押出機で熔融混練し、ペレタイザー等の機器によりペレット化することが好ましい。予備混合の後、押出造粒器やブリケッティングマシーンなどにより造粒してもよい。

押出機としては、原料中の水分や、溶融混練樹脂から発生する揮発ガスを脱気できるベントを有するものが好ましく使用できる。ベントからは発生水分や揮発ガスを効率よく押出機外部へ排出するための真空ポンプが好ましく設置される。

- 5 また押出原料中に混入した異物などを除去するためのスクリーンを押出機ダイス部前のゾーンに設置し、異物を樹脂組成物から取り除くことも可能である。かかるスクリーンとしては金網、スクリーンチェンジャー、焼結金属プレート（ディスクフィルターなど）などを挙げることができる。

押出機として、二軸押出機の他にバンバリーミキサー、混練ロール、単軸押出機、3軸以上の多軸押出機などを用いることができる。

- 10 上記の如く押出された樹脂は、直接切断してペレット化するか、またはストランドを形成した後かかるストランドをペレタイザーで切断してペレット化される。ペレット化に際して外部の埃などの影響を低減する必要がある場合には、押出機周囲の雰囲気的清浄化することが好ましい。得られたペレットの形状は、円柱、角柱、および球状など一般的な形状を取り得るが、より好適には円柱である。かかる円柱の直径は好ましくは1～5 mm、より好ましくは1.5～4 mm、さらに好ましくは2～3.3 mmである。一方、円柱の長さは好ましくは1～30 m、より好ましくは2～5 mm、さらに好ましくは2.5～3.5 mmである。

- 15 得られたマスターバッチをさらにA成分と混合して2次マスターバッチを調製してもよい。A成分の量は、マスターバッチに対し、好ましくは1～100重量部、より好ましくは10～50重量部である。また得られた2次マスターバッチをさらにA成分と混合して3次マスターバッチを調製してもよい。A成分の量は、マスターバッチに対し、好ましくは1～100重量部、より好ましくは10～50重量部である。さらに3次以上のマスターバッチを調製してもよい。

(工程 (i i i))

- 25 工程 (i i i) は、工程 (i i) で得られたマスターバッチとA成分とを混合して樹脂組成物を得る工程である。混合は工程 (i i) と同じ方法で行うことができる。

(成形品)

本発明の成形品は、本発明の樹脂組成物からなるペレットを射出成形して得ることができる。射出成形として、通常の成形方法だけでなく、射出圧縮成形、射出プレス成形、ガスアシスト射出成形、発泡成形（超臨界流体を注入する方法を含む）、インサート成形、インモールドコーティング成形、断熱金型成形、急速
5 加熱冷却金型成形、二色成形、サンドイッチ成形、積層成形および超高速射出成形などを挙げることができる。また成形はコールドランナー方式およびホットランナー方式のいずれも選択することができる。

また本発明によれば、樹脂組成物を押出成形し、各種異形押出成形品、シート、フィルムなどの形とすることもできる。またシート、フィルムの成形にはインフ
10 レーション法や、カレンダー法、キャスト法なども使用可能である。さらに特定の延伸操作をかけることにより熱収縮チューブとして成形することも可能である。また本発明の樹脂組成物を回転成形やブロー成形などにより成形体とすることも可能である。これらの成形プロセスについては、例えば、特開2005
-179504号公報に詳しく記載されている。

15 なお、本発明の成形品は、厚みが2～50mm、好ましくは4～30mm、最大投影面積が400～23,000cm²、好ましくは600～18,000cm²であることが好ましい。成形品は、居住空間や車両の窓として利用することができる。

(成形品への積層)

20 本発明の成形品は、その表面にハードコート層をはじめとする各種の機能層を設けることができる。そのなかでも、成形品の表面の耐傷付性・耐候性等を高める点からハードコート層を設けることが好ましい。その他の機能層としては、図柄層、導電層（発熱層、電磁波吸収層、帯電防止層）、撥水・撥油層、親水層、紫外線吸収層、赤外線吸収層、割れ防止層、並びに金属層（メタライジング層）
25 などが例示される。これらの機能層は、ハードコート層の表面、ハードコート層とは反対側の成形品表面、成形品層が複数層ある場合の成形品層と成形品層との間、プライマー層と成形品表面との間の一部分、並びにプライマー層とハードコート
のトップ層との間の一部分などにおいて設けることが可能である。

図柄層は通常印刷により形成される。印刷方法としては、グラビヤ印刷、平板印刷、フレキソ印刷、ドライオフセット印刷、パット印刷、スクリーン印刷などの従来公知の印刷方法を製品形状や印刷用途に応じて使用することができる。

上記のハードコート層の形成法および特性については、例えば、特開2005-179504号公報、特開2006-255928号公報等に詳しく記載されている。

印刷で使用する印刷インキの構成としては、主成分として樹脂系と油系などを使用することが可能であり、樹脂系としては、ロジン、ギルソナイト、セラック、コパールなどの天然樹脂やフェノール系およびその誘導体、アミノ系樹脂、ブチル化尿素、メラミン樹脂、ポリエステル系アルキッド樹脂、スチレン樹脂、アクリル樹脂、フェノール樹脂、エポキシ樹脂、ポリアミド樹脂、芳香族ポリカーボネート樹脂、飽和ポリエステル樹脂、非晶性ポリアリレート樹脂、非晶性ポリオレフィン樹脂、塩化ビニル樹脂、酢酸ビニル樹脂、塩化ビニル-酢酸ビニル共重合体、ブチラール樹脂、メチルセルロース樹脂、エチルセルロース樹脂、ウレタン樹脂などの合成樹脂を使用することができる。耐熱性の高いインキ成分が必要とされる場合は、芳香族ポリカーボネート樹脂および非晶性ポリアリレート樹脂などをバインダーとした印刷インキが好ましく挙げられる。また印刷インキに顔料や染料などにより所望の色に調整することができる。

本発明者が現在最良と考える本発明の形態は、前記の各要件の好ましい範囲を集約したものとなるが、例えば、その代表例を下記の実施例中に記載する。もちろん本発明はこれらの形態に限定されるものではない。

実施例

以下、実施例により本発明を更に詳細に説明する。なお、得られた成形体は以下の方法によって評価した。

(1) HAZE :

厚さ18mm、長さ55mm×幅55mmのテストピースのHAZE (%)を(株)村上色彩技術研究所製HR-100により測定した。

(2) 日射熱取得率：

分光光度計（日立ハイテクノロジーズ社製、U-4100）を用いて、JIS R 3106（1998）「板ガラス類の透過率・反射率・放射率・日射熱取得率の試験方法」に準拠した方法により、波長300～2,100 nmにおける厚さ
5 18 mm、長さ55 mm×幅55 mmのテストピースの日射熱取得率を測定した。

(3) 粒子径：

厚さ18 mm、長さ55 mm×幅55 mmのテストピースをレーザー顕微鏡（キーエンス社製 VK9700）により観察し、数平均2次粒子径および最大2
10 次粒子径を測定した。なお、測定個数は1,000個とした。

(4) 外観評価：

厚さ18 mm、長さ55 mm×幅55 mmのテストピースの表面を目視で観察し、下記の基準に従って評価を実施した。

○：表面に異物が観察されず良好。

15 ×：表面に異物が観察された。

(5) テストピース中の粒子（1）と粒子（2）との割合：

ウルトラマイクロトームを用いて、50～100 nm厚に薄切し、観察のためのテストピースを作成した。テストピースをEF-TEM写真（電子分光型透過電子顕微鏡）で観察（倍率：25,000倍）し、B-1成分のみからなる粒子

20 （1）と、B-1成分とB-2成分とからなる粒子（2）との数を測定した。

実施例 1

(I) ペレットの製造

以下の（i）～（iii）の工程に従いペレットを製造した。

25 (工程 i)：粒子含有樹脂（B成分）の調製

(被覆六ホウ化ランタン粒子（B-1成分）の調製)

平均粒子径80 nmの六ホウ化ランタン粒子（住友金属鉱山（株）製：KHD S-06）8重量部を、シランカップリング剤である γ -アミノプロピルトリエ

トキシシラン 0.5 重量部と水 392 重量部に攪拌混合し、六ホウ化ランタン粒子表面に γ -アミノプロピルトリエトキシシランを吸着させて表面修飾を行った。

次に、遠心分離機で水を除去した後、表面修飾された六ホウ化ランタン粒子とエタノール 280 重量部と水 70 重量部の混合溶媒中にテトラエトキシシラン 45 重量部を添加し、加水分解重合により六ホウ化ランタン粒子表面にシリカの被覆膜を形成した。その後、遠心分離機でアルコールと水を除去した後、乾燥し、更に 450℃で 30 分加熱処理して、被覆六ホウ化ランタン粒子を得た。なお、この被覆六ホウ化ランタン粒子における (a) 六ホウ化ランタンと (b) 被覆層の重量比は (a) / (b) = 40 / 60 であった。

10 (被覆六ホウ化ランタン粒子 (B-1 成分) と、樹脂 (B-2 成分) との混合)
得られた被覆六ホウ化ランタン粒子 (B-1 成分) 20 重量部と、トルエン 75 重量部と、アクリル樹脂系分散剤 (B-2 成分、EFKA Additives 社製: EFKA-4530) 5 重量部とを混合し、分散処理を行い、被覆六ホウ化ランタン粒子の分散液とした ((i) 液)。

15 (窒化チタン粒子の分散液の調製)

一方、色調調製のために平均粒子径が 80 nm の窒化チタン粒子 (住友金属鉱山 (株) 製) 20 重量部と、トルエン 75 重量部と、アクリル樹脂系分散剤 (B-2 成分、EFKA Additives 社製: EFKA-4530) 5 重量部とを混合し、分散処理を行い、窒化チタン粒子の分散液を得た ((ii) 液)。

20 次に、(i) 液と (ii) 液とを、被覆六ホウ化ランタン粒子中の六ホウ化ランタンと窒化チタン粒子の重量比が 8 : 2 (被覆六ホウ化ランタン粒子と窒化チタン粒子の重量比が 95 : 5) となるように混合した。その後、遠心分離機でトルエンを除去した後、乾燥して粒子含有樹脂 (B 成分) を得た。

(工程 (ii): マスターバッチの調製)

25 0.28 重量部の PC (A 成分) および粒子含有樹脂 (B 成分) 0.01 重量部をスーパーフローターにて均一に混合し、0.29 重量部のマスターバッチを得た。

(工程 (ii-1): 2 次マスターバッチの調製)

次に、0.29重量部のマスターバッチと4.26重量部のPC(A成分)、0.02重量部のS100A、0.03重量部のPEPQ、0.10重量部のVPGおよび0.30重量部のUV1577を、タンブラーで均一に混合し、押出機に供給するための5重量部の2次マスターバッチを得た。

5 (工程(iii))

得られた5重量部の2次マスターバッチと、95重量部のPC(A成分)を押出機に供給した。使用された押出機は、スクリュ径77mmφのベント式二軸押出機((株)日本製鋼所製:TEX77CHT(完全かみ合い、同方向回転、2条ネジスクリュ))であった。該押出機は、スクリュ根元から見てL/D約8
10 ~11の部分に順に送りのニーディングディスクと逆送りのニーディングディスクとの組合せからなる混練ゾーンを有し、その後、L/Dが約16~17の部分に送りのニーディングディスクからなる混練ゾーンを有していた。更に該押出機は、後半の混練ゾーンの直後にL/Dが0.5長さの逆送りのフルフライトゾーンを有していた。ベント口はL/D約18.5~20の部分に1箇所設けられた。
15 押出条件は吐出量320kg/h、スクリュ回転数160rpm、およびベントの真空度3kPaであった。また押出温度は第1供給口230℃からダイス部分280℃まで段階的に上昇させる温度構成であった。

ダイスから押出されたストランドは、温水浴中で冷却され、ペレタイザーにより切断されペレット化された。切断された直後のペレットは、振動式篩部を10
20 秒ほど通過することにより、切断の不十分な長いペレットおよびカット屑のうち除去可能なものが除去された。

(II) 樹脂板成形品のテストピースの作成

上記(I)の方法で製造されたペレットをプラテンの4軸平行制御機構を備えた射出プレス成形可能な大型成形機((株)名機製作所製:MDIP2100、
25 最大型締め力33540kN)を用いて射出プレス成形し、図1に示す厚み18mmで長さ700mm×幅800mmの成形品を製造した。成形機は、樹脂原料を十分に乾燥可能なホッパードライヤー設備を付帯しており、かかる乾燥後のペレットが圧空輸送により成形機供給口に供給され成形に使用された。

成形はシリンダ温度275℃、ホットランナー設定温度275℃、金型温度は固定側115℃、可動側120℃、プレスストローク：0.5mm、中間型締め状態から最終型締め状態までの金型の移動速度0.02mm/秒、および加圧の保持時間：600秒であった。圧縮時の圧力は25MPaとし、該圧力で加圧の保持時間中保持した。射出速度はゲート部充填までの領域で5mm/秒、それ以降の領域で16mm/秒とした。また可動側金型パーティング面は最終の前進位置において固定側金型パーティング面に接触しないものとした。ランナはHOTSYS社製のバルブゲート型のホットランナー（直径8mmφ）を用いた。充填完了直前に型圧縮を開始し、オーバーラップは0.5秒とした。充填完了後直ちにバルブゲートを閉じて熔融樹脂がゲートからシリンダへ逆流しない条件とした。かかる成形においては、その4軸平行制御機構により、傾き量および振れ量を表す $\tan\theta$ は約0.000025以下で保持された。

得られた成形品を取り出し後、60分間放置して十分に冷却した。成形品は透明性の高い緑色であった。次に、図1中の斜線で示す成形品の中央部を長さ55mm×幅55mmとなるように切り出し、テストピースを得た。

上記（I I）の方法で得られたテストピースを評価した結果を表1に示す。またテストピースのEF-TEM写真（電子分光型透過電子顕微鏡、倍率：25,000倍）を図2に示す。図2中白い部分が樹脂（B-2成分）で、黒い点が被覆六ホウ化ランタン粒子（B-1成分）であり、B-1成分のみからなる粒子（1）と、B-1成分とB-2成分とからなる粒子（2）が存在することが分かる。

実施例2

工程（i i）において、0.09重量部のPC（A成分）および粒子含有樹脂（B成分）0.01重量部をスーパーフローターにて均一に混合し、0.1重量部のマスターバッチを調製した。

また工程（i i-1）において、0.1重量部のマスターバッチと4.45重量部のPC（A成分）、0.02重量部のS100A、0.03重量部のPEP

Q、0.10重量部のVPGおよび0.30重量部のUV1577をタンブラーで均一に混合し、押出機に供給するための5重量部の2次マスターバッチを得た。

以上の工程以外は、実施例1と同様にペレットを製造した。その後、実施例1と同じ成形を行いテストピースを作成した。得られたテストピースを評価した結果を表1に示す。

比較例1

工程(i i)において、0.04重量部のPC(A成分)および粒子含有樹脂(B成分)0.01重量部をスーパーフローターにて均一に混合し、マスターバッチを調製した。

また工程(i i-1)において、0.05重量部のマスターバッチおよび0.23重量部のPC(A成分)をV型ブレンダーにて均一混合し、0.28重量部の2次マスターバッチを調製した。

0.28重量部の2次マスターバッチと4.27重量部のPC、0.02重量部のS100A、0.03重量部のPEPQ、0.10重量部のVPGおよび0.30重量部のUV1577をタンブラーで均一に混合し、押出機に供給するための5重量部の3次マスターバッチを得た以外は、実施例1と同様にペレットを製造した。その後、実施例1と同じ成形を行いテストピースを作成した。得られたテストピースを評価した結果を表1に示した。

20

比較例2

工程(i i)において、0.28重量部のPC(A成分)のみをスーパーフローターにて均一に混合し、0.29重量部のマスターバッチを調製した。

次に0.29重量部のマスターバッチと4.55重量部のPC(A成分)、0.02重量部のS100A、0.03重量部のPEPQ、0.10重量部のVPGおよび0.30重量部のUV1577をタンブラーで均一に混合し、2次マスターバッチを調製した。

上記工程以外は、実施例1と同様にペレット原料を製造した。その後、実施例

1と同じ成形を行い、樹脂板のテストピースを作成した。得られたテストピースを評価した結果を表1に示した。

比較例3

- 5 工程(i i)において、41重量部のPCおよび粒子含有樹脂(B成分)1.5重量部をスーパーフローターにて均一に混合し、42.5重量部のマスターバッチを調製した。

- 次に42.5重量部のマスターバッチと7.05重量部のPC、0.02重量部のS100A、0.03重量部のPEPQ、0.10重量部のVPGおよび0.10重量部のUV1577をタンブラーで均一に混合し、50重量部の2次マスターバッチを調製した。

上記工程以外は、実施例1と同様にペレットを製造した。その後、実施例1と同じ成形を行いテストピースを作成した。得られたテストピースを評価した結果を表1に示した。

- 15 なお、上記で記号表記の各成分は下記の通りである。

PC：ビスフェノールAとホスゲンから界面重縮合法により製造された粘度平均分子量23,700の芳香族ポリカーボネート樹脂パウダー(帝人化成(株)製：パンライトL-1250WP(商品名))

- 20 S100A：ステアリン酸とグリセリンの部分エステル(理研ビタミン(株)製：リケマールS-100A)

VPG：ペンタエリスリトールと脂肪族カルボン酸(ステアリン酸およびパルミチン酸を主成分とする)とのフルエステル(コグニスジャパン(株)製：ロキシオールVPG861)

- 25 PEPQ：ホスホナイト系熱安定剤(Sandoz社製：サンドスタブP-EPQ)

UV1577：2-(4,6-ジフェニル-1,3,5-トリアジン-2-イル)-5-[(ヘキシル)オキシ]フェノール(チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社製：Tinuvin1577)

表 1

分類	成分	詳細	実施例 1	実施例 2	比較例 1	比較例 2	比較例 3
組成	A成分	PC	100	100	100	100	100
	B成分	粒子含有樹脂	0.01	0.01	0.01	0	1.5
	C成分	PEPG	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03
	D成分	VPG	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
		S-100A	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02
E成分	UV1577	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	
押出	マスターバッチ濃度(%)		3.45	10	20	-	3.53
	HAZE(%)		0.9	1.8	3.4	0.2	5.5
評価結果	日射熱取得率(%)		0.47	0.49	0.50	0.77	0.52
	外観評価		○	○	×	○	×
	粒子(1)	数平均2次粒子径(μm)	0.08	37	53	-	62
		最大2次粒子径(μm)	0.13	195	245	-	320
	粒子(2)	数平均2次粒子径(μm)	0.16	42	62	-	78
最大2次粒子径(μm)		0.25	260	280	-	380	
粒子(1)/(2)		1.5	1.1	0.7	-	0.5	

発明の効果

- 本発明の樹脂組成物は、六ホウ化物粒子が均一に分散されているので、太陽光からの熱線を効果的に遮蔽し透明性に優れる。本発明の成形品は、熱線遮蔽性および透明性に優れる。本発明の樹脂組成物の製造方法によれば、六ホウ化物粒子が均一に分散し、遮蔽性および透明性に優れた樹脂組成物を製造することができる。

産業上の利用可能性

- 10 本発明の成形品は、居住空間や車両の窓として利用することができる。

請求の範囲

1. 芳香族ポリカーボネート樹脂（A成分）、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu、SrおよびCaからなる群より選ばれる少なくとも一種の元素の六ホウ化物粒子（B-1成分）、並びにA成分以外の樹脂（B-2成分）を含有し、
5 B-1成分およびB-2成分の合計含有量は、100重量部のA成分に対し0.001~1重量部であり、
B-1成分から構成される粒子（1）、並びにB-1成分およびB-2成分から
10 構成される粒子（2）を含有し、粒子（1）および粒子（2）は共に、数平均2次粒子径が50 μ m以下であり、且つ最大2次粒子径が300 μ m以下である、樹脂組成物。
2. B-1成分およびB-2成分を混合してB成分を調製した後、100重量
15 部のA成分と0.001~1重量部のB成分とを混合して得られる請求項1記載の樹脂組成物。
3. 六ホウ化物粒子（B-1成分）がその表面に被覆層を有する請求項1記載
20 の樹脂組成物。
4. 六ホウ化物粒子（B-1成分）の被覆層が、六ホウ化物粒子の表面に形成
された表面修飾剤による予備被覆膜と、その上に形成されたSiの酸化物を主成分とする被覆膜とからなる請求項3記載の樹脂組成物。
- 25 5. 六ホウ化物粒子（B-1成分）が、Laの六ホウ化物粒子である請求項1に記載の樹脂組成物。
6. B-2成分は、極性の官能基を有すると共に、芳香族ポリカーボネート

樹脂（A成分）との親和性を有する主鎖を有する樹脂である請求項1に記載の樹脂組成物。

7. B-2成分は、アクリル樹脂である請求項1に記載の樹脂組成物。

5

8. 六ホウ化物粒子（B-1成分）の含有量は、100重量部の樹脂（B-2成分）に対し、1～50重量部である請求項1に記載の樹脂組成物。

9. 樹脂（B-2成分）100重量部に対し、0.1～50重量部の窒化物粒子を含有する請求項1に記載の樹脂組成物。

10

10. 窒化物粒子が、Ti、Zr、Hf、V、NbおよびTaからなる群より選ばれる少なくとも一種の金属の窒化物粒子である請求項9に記載の樹脂組成物。

11. A成分100重量部あたり、熱安定剤（C成分）0.005～5重量部を含有する請求項1に記載の樹脂組成物。

15

12. A成分100重量部あたり、離型剤（D成分）0.005～5重量部を含有する請求項1に記載の樹脂組成物。

20

13. A成分100重量部あたり、紫外線吸収剤（E成分）0.005～5重量部を含有する請求項1に記載の樹脂組成物。

14. 請求項1に記載の樹脂組成物よりなる成形品。

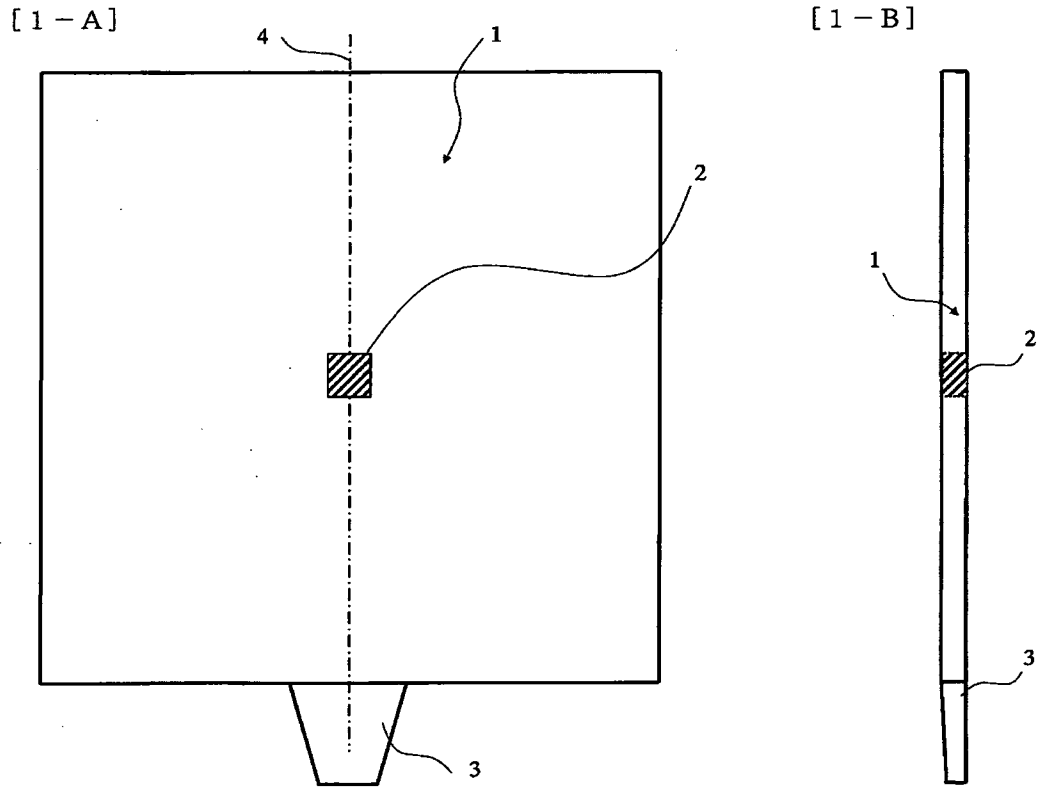
25

15. (i) B-1成分とB-2成分とを混合してB成分を調製し、
(ii) A成分とB成分とを混合してマスターバッチを調製し、
(iii) マスターバッチとA成分とを混合する、

各工程を含む請求項 1 記載の樹脂組成物の製造方法。

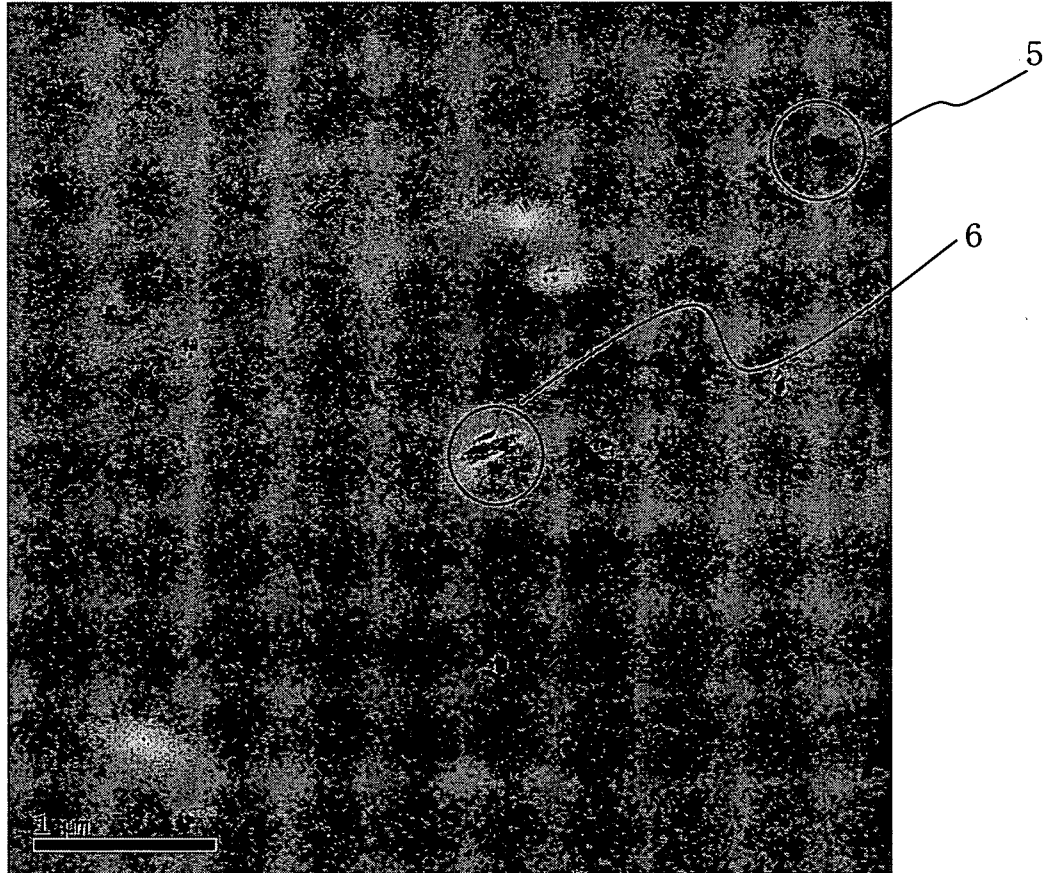
16. 100重量部のA成分と0.1~20重量部のB成分とを混合してマスターバッチを調製する請求項 15 記載の製造方法。

図 1



2 / 2

図 2



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/056833

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L69/00(2006.01)i, C08J3/22(2006.01)i, C08K3/28(2006.01)i, C08K3/38(2006.01)i, C08K9/02(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)

C08L69/00, C08J3/22, C08K3/28, C08K3/38, C08K9/02

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2009	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2009

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.
P, X	WO 2008/075752 A1 (Teijin Chemicals Ltd.), 26 June, 2008 (26.06.08), Claims; page 16, lines 10 to 17; reference examples 2, 3; examples 1 to 5 (Family: none)	1-16
Y	JP 2004-059875 A (Sumitomo Metal Mining Co., Ltd.), 26 February, 2004 (26.02.04), Claims; Par. No. [0023]; examples 1, 6 & US 2004/0028920 A1 & KR 10-2004-0012567 A & CN 1477150 A	1-8, 11-16

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
02 June, 2009 (02.06.09)

Date of mailing of the international search report
09 June, 2009 (09.06.09)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/056833

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2004-162020 A (Sumitomo Metal Mining Co., Ltd.), 10 June, 2004 (10.06.04), Claims; Par. Nos. [0034] to [0035] & US 2004/0071957 A1 & CN 1514259 A	1-8,11-16
Y	WO 2007/119742 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 25 October, 2007 (25.10.07), Claims; Par. Nos. [0015] to [0016] & JP 2007-284540 A & EP 2009057 A1	1-8,11-16
Y	JP 2006-249345 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 21 September, 2006 (21.09.06), Claims; Par. No. [0025] (Family: none)	1-8,11-16
A	JP 2007-527805 A (Degussa GmbH), 04 October, 2007 (04.10.07), Claims & US 2006/0281846 A1 & EP 1722984 A & WO 2005/084955 A & DE 102004051457 A & CA 2558151 A & KR 10-2006-0127244 A & CN 1925989 A & AT 397531 T	1-16

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. C08L69/00(2006.01)i, C08J3/22(2006.01)i, C08K3/28(2006.01)i, C08K3/38(2006.01)i, C08K9/02(2006.01)i

B. 調査を行った分野
 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. C08L69/00, C08J3/22, C08K3/28, C08K3/38, C08K9/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの
 日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2009年
 日本国実用新案登録公報 1996-2009年
 日本国登録実用新案公報 1994-2009年

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

C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
PX	WO 2008/075752 A1 (帝人化成株式会社) 2008.06.26, 特許請求の範囲, 第16頁第10-17行, 参照例2,3及び実施例1-5 (ファミリーなし)	1-16
Y	JP 2004-059875 A (住友金属鉱山株式会社) 2004.02.26, 特許請求の範囲, [0023]及び実施例1,6 & US 2004/0028920 A1 & KR 10-2004-0012567 A & CN 1477150 A	1-8, 11-16
Y	JP 2004-162020 A (住友金属鉱山株式会社) 2004.06.10, 特許請求の範囲及び[0034]-[0035] & US 2004/0071957 A1 & CN 1514259 A	1-8, 11-16

C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

<p>* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</p>	<p>の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献</p>
---	---

国際調査を完了した日 02.06.2009	国際調査報告の発送日 09.06.2009
--------------------------	--------------------------

国際調査機関の名称及びあて先 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	特許庁審査官 (権限のある職員) ▲吉▼澤 英一	4 J	9 5 4 3
	電話番号 03-3581-1101 内線 3457		

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	WO 2007/119742 A1 (出光興産株式会社) 2007. 10. 25, 特許請求の範囲及び[0015] - [0016] & JP 2007-284540 A & EP 2009057 A1	1-8, 11-16
Y	JP 2006-249345 A (出光興産株式会社) 2006. 09. 21, 特許請求の範囲及び[0025] (ファミリーなし)	1-8, 11-16
A	JP 2007-527805 A (デグサ ゲーエムベーハー) 2007. 10. 04, 特許請求の範囲 & US 2006/0281846 A1 & EP 1722984 A & WO 2005/084955 A & DE 102004051457 A & CA 2558151 A & KR 10-2006-0127244 A & CN 1925989 A & AT 397531 T	1-16