

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4220387号  
(P4220387)

(45) 発行日 平成21年2月4日(2009.2.4)

(24) 登録日 平成20年11月21日(2008.11.21)

(51) Int.Cl.

F 1

<b>C08L 69/00</b>	<b>(2006.01)</b>	<b>C08L 69/00</b>
<b>C08K 3/34</b>	<b>(2006.01)</b>	<b>C08K 3/34</b>
<b>C08L 67/00</b>	<b>(2006.01)</b>	<b>C08L 67/00</b>

請求項の数 5 (全 20 頁)

(21) 出願番号 特願2003-540246 (P2003-540246)  
 (86) (22) 出願日 平成14年10月14日 (2002.10.14)  
 (65) 公表番号 特表2005-507443 (P2005-507443A)  
 (43) 公表日 平成17年3月17日 (2005.3.17)  
 (86) 國際出願番号 PCT/EP2002/011475  
 (87) 國際公開番号 WO2003/037973  
 (87) 國際公開日 平成15年5月8日 (2003.5.8)  
 審査請求日 平成17年8月10日 (2005.8.10)  
 (31) 優先権主張番号 101 52 317.3  
 (32) 優先日 平成13年10月26日 (2001.10.26)  
 (33) 優先権主張国 ドイツ(DE)

(73) 特許権者 591063187  
 バイエル アクチエンゲゼルシャフト  
 B a y e r A k t i e n g e s e l l s  
 c h a f t  
 ドイツ連邦共和国 レーフエルクーゼン (番地なし)  
 D - 5 1 3 6 8 L e v e r k u s e n,  
 G e r m a n y  
 (74) 代理人 100062144  
 弁理士 青山 葵  
 (74) 代理人 100088801  
 弁理士 山本 宗雄

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】無機質強化、耐衝撃性、変性ポリカーボネート混合物

## (57) 【特許請求の範囲】

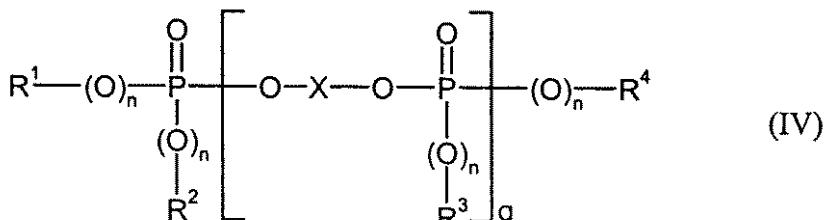
## 【請求項 1】

A ) ポリカーボネートおよび / またはポリエステルカーボネート  
 B ) 耐衝撃性変性剤、および  
 C ) 炭素含有化合物を含む珪灰石 (wollastonite) であって、炭素が化学的に結合され  
 元素分析によって決定した珪灰石 (wollastonite) に基づいた炭素含量が 0 . 3 ~ 0 .  
 6 重量 % である珪灰石を含有する、組成物。

## 【請求項 2】

式 (IV) :

## 【化 1】



[式中]

R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup> および R<sup>4</sup> がそれぞれの場合において互いに独立して、要すればハロゲン化された C<sub>1</sub> ~ C<sub>8</sub> - アルキル、または C<sub>5</sub> ~ C<sub>6</sub> - シクロアルキル、それぞれの場

10

20

合においてアルキルおよび / またはハロゲンによって要すれば置換されてもよい C<sub>6</sub> ~ C<sub>20</sub> アリールまたは C<sub>7</sub> ~ C<sub>12</sub> アラルキル、  
n は互いに独立して 0 または 1、  
q は 0 ~ 30、および

X は 6 ~ 30 の炭素原子を有する単核または多核の芳香族基、または 2 ~ 30 の炭素原子を有する直鎖または分岐脂肪族基であって、それらが OH - 置換されてもよく、および 8 個以下のエーテル結合を含んでもよい。]

であるリン化合物を含有する請求項 1 に記載の組成物。

**【請求項 3】**

全てのタイプの成型部品の製造のための請求項 1 に記載の組成物の使用。 10

**【請求項 4】**

請求項 1 に記載の組成物から得られ得る全てのタイプの成型部品。

**【請求項 5】**

請求項 1 に記載の組成物から得られ得る車体の外部部品。

**【発明の詳細な説明】**

**【技術分野】**

**【0001】**

本発明は特定組成の珪灰石 (wollastonite) で強化した耐衝撃性変性ポリカーボネート組成物、それらの製造方法、並びにそれから製造した成形部品に関する。

**【0002】**

無機質強化ポリカーボネート (PC) / ABS (アクリロニトリル - ブタジエン - スチレン) 成形組成物は公知である。 20

**【0003】**

ヨーロッパ第 0, 391, 413 号特許明細書によると、PC / ABS 組成物は粒子が平均直径 / 厚さ比率が 4 ~ 24 である無機充填剤 4 ~ 18 重量 % を含有する低い熱膨張線形係数、並びに高い強靭性および熱安定性を有すると記載されている。そのような充填剤はつまり板状無機質、例えば滑石粉またはマイカである。板状無機質を含有する PC / ABS 成形組成物には、低温度強靭性および耐化学薬品の不足という特徴がある。

**【0004】**

ファイバー状無機質である充填剤を含有している PC / ABS 成形組成物も公知である。 30

**【0005】**

平均ファイバー長さ 5 ~ 25 μm および、平均粒子径 0.1 ~ 10 μm である珪灰石を含有している PC / ABS 組成物は、米国特許第 5, 965, 655 号明細書に記載されている。この成形組成物は、特に改良表面特性 ('A 級表面') および低い熱膨張係数によって特徴づけられている。好ましく使用される珪灰石は、平均アスペクト比 (すなわちファイバー長さとファイバー直径の比) が 6 以下のものである。そのような珪灰石を含有する成形組成物は、不十分な弾性率、すなわち低すぎる引っ張り弾性率 / 曲げ弾性率を有している。さらに公開され成形組成物は、室温で脆性破壊挙動を示す。

**【0006】**

国際公開第 98 / 51737 号によると組成物は芳香族ポリカーボネート 65 ~ 85 重量部、ゴム改質グラフト共重合体 10 ~ 50 重量部および最大特性伸び率 (characteristic elongation) が 0.1 ~ 30 μm の無機充填剤 1 ~ 15 重量部からなると記載されている。滑石粉および珪灰石は、そのような充填剤として記載されている。 40

**【0007】**

そのようなポリカーボネートリッチな成形組成物は、不十分な低温度強靭性を有する。

**【0008】**

ヨーロッパ特許出願公開第 1, 038, 920 号明細書によると、成形組成物は特定の溶融ポリカーボネート、ABS および粒径 4 μm でアスペクト比 (aspect ratio) L / D = 20 の珪灰石 15 重量部を含有していると記載されている。そのような成形組成物は不 50

十分な低温度強靭性を有する。

【0009】

本発明の目的はつまり高い弾性率および良好な強靭性、また、特に低温度で、および特に車体の外部塗装に適当である無機充填剤入りの耐衝撃性変性ポリカーボネート組成物を提供することである。これら組成物はさらに防炎加工剤で耐炎性を付与してもよい。防炎加工、耐衝撃性変性および無機充填剤入りポリカーボネート組成物は、高い強靭性および硬質化の組合せ、特にノートのような薄肉塗装に適当であるという特徴がある。

【0010】

所定の炭素含量を有する珪灰石含有耐衝撃性変性ポリカーボネート組成物は望ましい特性を有することが解った。さらに高い弾性率、良好な強靭性（低温度でのものを含む）並びに防炎加工剤（特にオリゴンフォスフェート）を加えることによって付与された良好な耐炎性に加えて、本発明に記載された組成物は高い破断伸び、良好な加工挙動（高い溶融流動性）および優れたE S C（environmental stress cracking（環境応力亀裂））挙動（化学薬品の影響下での耐応力亀裂）を有する。

【0011】

本発明の組成物は以下の成分を包含する：

【0012】

A ) ポリカーボネートおよび / またはポリエステルカーボネート  
 B ) 耐衝撃性変性剤、および  
 C ) 元素分析で決定した炭素含量（珪灰石に基づく）0 . 1 重量%以上、好ましくは0 . 2 ~ 2 重量%、特に好ましくは0 . 3 ~ 1 重量%、最も特に好ましくは0 . 3 ~ 0 . 6 重量%である炭素含有珪灰石。

【0013】

好ましくは以下を含有する組成物である：

A ) ポリカーボネートおよび / またはポリエステルカーボネート 3 0 ~ 8 5 重量部、好ましくは3 5 ~ 8 0 重量部および特に好ましくは4 0 ~ 7 0 重量部、  
 B ) ガラス転移温度が<10 であるグラフトベースを有するグラフトポリマー 1 ~ 5 0 重量部、好ましくは2 ~ 3 5 重量部、特に好ましくは3 ~ 3 0 重量部および特に3 ~ 2 5 重量部、  
 C ) 元素分析で決定した珪灰石に基づく炭素含量 0 . 1 重量%以上、好ましくは0 . 2 ~ 2 重量%、特に好ましくは0 . 3 ~ 1 重量%、最も特に好ましくは0 . 3 ~ 0 . 6 重量%である珪灰石 2 ~ 2 0 重量部、好ましくは3 ~ 1 8 重量部、特に好ましくは4 ~ 1 5 重量部、特に6 ~ 1 2 重量部、最も特に好ましくは7 ~ 1 0 重量部。

【0014】

組成物は別の成分、例えばビニル（コ）ポリマー、ポリアルキレンテレフタレート、防炎加工剤およびポリマー添加剤を含有してもよい。

【0015】

前記組成物から配合された好ましい成形組成物は、弾性率 2 9 0 0 M P a 以上である。耐炎性を付与していない組成物は、好ましくは強靭性 / 脆性転移温度（tough / brittle transition temperature）が高くとも 0 である。

【0016】

本発明による成分で使用されうるこれらの成分およびさらなる成分については、以下の例により詳細に記載する。

【0017】

（成分A）

本発明による成分 A の適当な芳香族ポリカーボネートおよび / または芳香族ポリエステルカーボネートは文献公知であり、文献公知の製造方法によって製造してもよい（芳香族ポリカーボネートの製造については、例えばシュネル（Schnell）、「ポリカーボネートの化学と物理」，インターライエンス・パブリッシャーズ（Interscience Publishers），1964年並びに西独特許第1,495,626号明細書、西独特許第2,232,875号明細書）。

7号明細書、西独特許第2,703,376号明細書、西独特許第2,714,544号明細書、西独特許第3,000,610号明細書、西独特許第3,832,396号明細書；芳香族ポリエステルカーボネートの製造については例えば西独特許第3,077,934号明細書)。

## 【0018】

芳香族ポリカーボネートの製造は、例えばジフェノールと炭酸ハライド好ましくはホスゲン、および／または芳香族ジカルボン酸ジハライド、好ましくはベンゼンジカルボン酸ジハライドとを、界面プロセスによって、要すれば連鎖停止剤、例えばモノフェノールを用い、および要すれば三官能またはより高い官能性分岐剤、例えばトリフェノールまたはテトラフェノールを用いて反応することによって合成される。

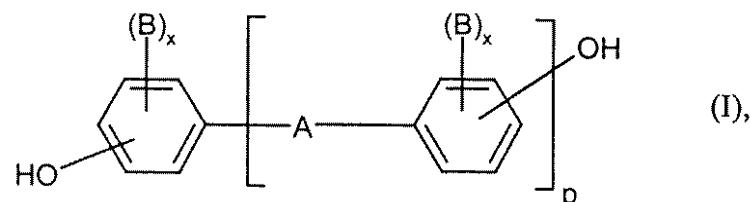
10

## 【0019】

好ましい芳香族ポリカーボネートおよび芳香族ポリエステルカーボネートの製造に用いるジフェノールは、好ましくは式(I)：

## 【0020】

## 【化1】



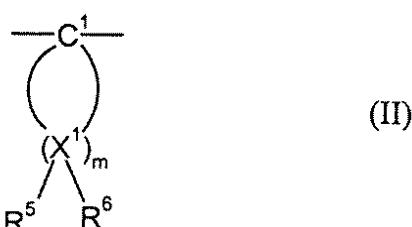
## 【式中】

Aは単結合、C<sub>1</sub>～C<sub>5</sub>-アルキレン、C<sub>2</sub>～C<sub>5</sub>-アルキリデン、C<sub>5</sub>～C<sub>6</sub>-シクロアルキリデン、-O-、-SO-、-CO-、-S-、-SO<sub>2</sub>-、C<sub>6</sub>～C<sub>12</sub>-アリーレン、それらは芳香環、要すればヘテロ原子含有芳香環が縮合してもよく、いわば濃縮物。

または式(II)または(III)で表される基であってもよく：

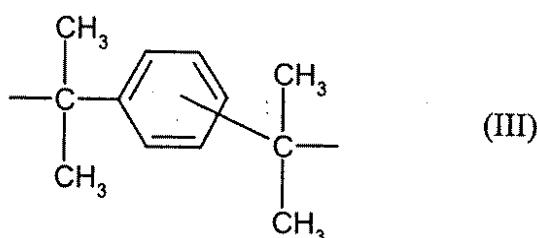
## 【0021】

## 【化2】



## 【0022】

## 【化3】



Bはいずれの場合もC<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>-アルキル、好ましくはメチル、ハロゲン、好ましくは塩素および／または臭素を示し、

xはいずれの場合も互いに単独し、0、1または2であることを示し、

pは1または0を示し、および

R<sup>5</sup>およびR<sup>6</sup>は、X<sup>1</sup>と独立に選択され、互いに独立して、水素またはC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>-ア

50

ルキル、好ましくは水素、メチルまたはエチルを示し、

$X^1$  は炭素を示し、および

$m$  は 4 ~ 7 の整数、好ましくは 4 または 5 であるが、少なくとも 1 つの  $X^1$  原子上で、  
 $R^5$  および  $R^6$  は同時にアルキルである。]

を有する化合物である。

#### 【0023】

好ましいジフェノールはヒドロキノン、レゾルシノール、ジヒドロキシジフェノール、  
 ビス - (ヒドロキシフェニル) -  $C_1$  -  $C_5$  アルカン、ビス - (ヒドロキシフェニル) -  
 $C_5$  -  $C_6$  - シクロアルカン、ビス - (ヒドロキシフェニル) - エーテル、ビス - (ヒドロキシフェニル) - スルホキシド、ビス - (ヒドロキシフェニル) - ケトン、ビス - (ヒドロキシフェニル) - スルホンおよび、 - ビス - (ヒドロキシフェニル) - ジイソブロピルベンゼン、並びにそれらの核臭素化および / または核 - 塩素化誘導体である。  
10

#### 【0024】

特に好ましいジフェノールは、4,4' - デヒドロキシジフェニル、ビスフェノール A  
 、2,4 - ビス(4 - ヒドロキシフェニル) - 2 - メチルブタン、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、4,4' - デヒドロキシジフェニルスルフィド、4,4'  
 - デヒドロキシジフェニルスルホン、並びにそれらのジブロモ化、およびテトラブロモ化  
 または塩素化誘導体、例えば 2,2 - ビス - (3 - クロロ - 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) - プロパンまたは  
 2,2 - ビス - (3,5 - ジブロモ - 4 - ヒドロキシフェニル) - プロパンである。特に  
 好ましくは 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)  
 である。  
20

#### 【0025】

ジフェノールは単独でまたは任意の混合物として使うことができる。ジフェノールは公  
 知であり、公知の方法で得てもよい。

#### 【0026】

熱可塑性、芳香族ポリカーボネートの製造に適切な連鎖停止剤は、例えばフェノール、  
 p - クロロフェノール、p - t - ブチルフェノールまたは 2,4,6 - トリブロモフェノー  
 ル、並びに長鎖アルキルフェノール、例えば西独特許出願第 2,842,005 号明細書に  
 よる 4 - (1,3 - テトラメチルブチル) - フェノールまたはアルキル置換基に 8 ~ 20  
 の炭素原子を有するモノアルキルフェノールまたはジアルキルフェノール、例えば 3,5  
 - ジ - t - ブチルフェノール、p - i - オクチルフェノール、p - t - オクチルフェノー  
 ル、p - ドデシルフェノールおよび 2 - (3,5 - ジメチルヘプチル) - フェノールおよ  
 び 4 - (3,5 - ジメチルヘプチル) - フェノールである。使用される連鎖停止剤の総量  
 は通常 0.5 ~ 10 モル%、(ジフェノールの総モル量に基づく) である。  
30

#### 【0027】

熱可塑性、芳香族ポリカーボネートは、重量平均分子量 ( $M_w$  は例えば超遠心分離法  
 または光散乱測定により測定した) 10,000 ~ 200,000、好ましくは 15,000  
 ~ 80,000 を有している。  
40

#### 【0028】

熱可塑性、芳香族ポリカーボネートは公知の方法で分岐、より具体的かつ好ましくは使  
 用したジフェノールの総重量に基づいて、三官能またはそれ以上の化合物(例えば、3 お  
 よびそれ以上のフェノール基を有する化合物)を 0.05 ~ 2.0 モル% の量で導入する  
 ことによって分岐する。

#### 【0029】

ホモポリカーボネートおよびコポリカーボネートはいずれも好適である。本発明による  
 成分 A のコポリカーボネートの製造において、使用されうるジフェノールの総量に基づいて  
 1 ~ 25 重量%、好ましくは 2.5 ~ 25 重量% のヒドロキシアリーロキシ末端を有する  
 ポリジオルガノシロキサンを用いてもよい。これらは(米国特許第 3,419,634 号  
50

明細書)で知られており、および公知の方法によって調製することができる。ポリジオルガノシロキサン-含有コポリカーボネートの製法は西独特許出願第3,334,782によって示されている。

【 0 0 3 0 】

好ましいポリカーボネートは、ビスフェノールAホモポリカーボネートの他に、ビスフェノールAとジフェノールの総モル量に基づいて、15%以下の前記の好ましい、また特に好ましいジフェノール以外のジフェノール、特に2,2-ビス(3,5-ジプロモ-4-ヒドロキシフェニル)プロパンとのコポリカーボネートである。

〔 0 0 3 1 〕

芳香族ポリエステルカーボネートの製造のための芳香族ジカルボン酸ジハライドは、好みしくはイソフタル酸、テレフタル酸、ジフェニルエーテル-4,4'-ジカルボン酸およびナフタレン-2,6-ジカルボン酸のジ酸二塩化物である。

[ 0 0 3 2 ]

特に好ましいのは、イソフタル酸およびテレフタル酸のジ酸二塩化物の1:20および20:1の割合の混合物である。

( 0 0 3 3 )

ポリエステルカーボネートの製造において、炭酸ハライド、好ましくはホスゲンを、二官能性酸の誘導体として更に使用される。

[ 0 0 3 4 ]

適当に用いられる芳香族ポリエステルカーボネートの製造のための連鎖停止剤は、上記のモノフェノールに加えて、それらのクロロカルボン酸エステル、並びに芳香族モノカルボン酸の酸クロリド（要すればC<sub>1</sub>-C<sub>2,2</sub>アルキル基またはハロゲン原子で置換してもよい）並びに脂肪族C<sub>2</sub>-C<sub>2,2</sub>モノカルボン酸クロリドを含有する。

( 0 0 3 5 )

連鎖停止剤の総量はいずれの場合も 0.1 - 1.0 モル%で、フェノール連鎖停止剤の場合はジフェノール 1 モルあたりの量に基づき、かつモノカルボン酸クロリド連鎖停止剤の場合はジカルボン酸ジクロリド 1 モルあたりの量に基づく。

[ 0 0 3 6 ]

芳香族ポリエステルカーボネートはまた、結合した芳香族ヒドロキシカルボン酸を含有してもよい。

[ 0 0 3 7 ]

芳香族ポリエステルカーボネートは直鎖状並びに公知の方法で分岐状でありうる（西獨特許出願公開第2,940,024号明細書および西獨特許出願公開第3,007,934号明細書参照）。

[ 0 0 3 8 ]

分岐剤として、例えば、三官能性またはそれより高い官能性カルボン酸クロリド、例えばトリメシン酸トリクロリド、シアヌル酸トリクロリド、3,3',4,4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸テトラクロリド、1,4,5,8-ナフタレンテトラカルボン酸テトラクロリドまたはピロメリット酸テトラクロリドが使用され、0.01~1.0モル%の量(使用したジカルボン酸ジクロリドに基づく)で使用され、また三官能性または高い官能性フェノール、例えばフロログルシノール、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-2,4,4-ジメチル-2,4,6-トリ-(4-ヒドロキシフェニル)-ヘプタン、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、トリ-(4-ヒドロキシフェニル)-フェニル-メタン、2,2-ビス[4,4-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-シクロヘキシリ]-プロパン、2,4-ビス-(4-ヒドロキシ-フェニルイソプロピル)-フェノール、テトラ-(4-ヒドロキシフェニル)-メタン、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、2-(4-ヒドロキシフェニル)-2-(2,4-ジヒドロキシフェニル)-プロパン、テトラ-(4-[4-ヒドロキシフェニルイソプロピル]-フェノキシ)-メタン、1,4-ビス-[4,4'-ジヒドロキシ

トリフェニル - メチル] - ベンゼンを、0.01 ~ 1.0モル% (使用ジフェノールに基づく) の量で使用する。フェノール分岐剤はジフェノールとともに加えられ、酸クロリド分岐剤は、酸ジクロリドとともに導入してもよい。

#### 【0039】

熱可塑性、芳香族ポリエステルカーボネートにおけるカーボネート構造単位の割合は任意に変化する。好ましいカーボネート基の割合は、エステル基およびカーボネート基の総量に基づいて、100モル%以下、特に80モル%以下、特に好ましくは50モル%以下である。芳香族ポリスチルカーボネートのエステルの部分およびカーボネートの部分は、縮合重合物中でブロック型またはランダムに分散された形で存在しうる。

#### 【0040】

芳香族ポリカーボネートおよびポリエステルカーボネートの相対溶液粘度( $\eta_{rel.}$ )は、1.18 ~ 1.4、好ましくは1.20 ~ 1.32である(100mlのメチレンクロリド溶液中に0.5gのポリカーボネートまたはポリエステルカーボネートを含有する溶液中で、25°の温度で測定)。

#### 【0041】

熱可塑性芳香族ポリカーボネートおよびポリエステルカーボネートは単独または任意の混合物中で使用することができる。

#### 【0042】

(成分B)

成分Bは、ガラス転移温度<10°、好ましくは<0°、特に好ましくは<-20°である1またはそれ以上のグラフトベース上の少なくとも1つのビニルモノマーの1またはそれ以上のグラフトポリマーを包含する。

#### 【0043】

好ましくは以下のグラフトポリマーを有する：

B.1 少なくとも1ビニルモノマー5~95重量%、好ましくは30~90重量%

B.2 ガラス転移温度<10°、好ましくは<0°、特に好ましくは<-20°である1またはそれ以上のグラフトベース90~5重量%、好ましくは70~10重量%。

#### 【0044】

グラフトベースB.2は一般に0.05~10μm、好ましくは0.1~5μm、特に好ましくは0.2~1μmの平均粒径(d<sub>50</sub>値)を有する。

#### 【0045】

好ましくはビニル芳香族化合物、核 - 置換ビニル芳香族化合物、メタクリル酸(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)アルキルエステル、アクリル酸(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)アルキルエステル、ビニルシアニドおよび不飽和カルボン酸からなる群の少なくとも1つのモノマーから選択されたビニルモノマーである。

#### 【0046】

モノマーB.1は特に好ましくは、次の混合物である：

B.1.1 ビニル芳香族化合物および/または核 - 置換ビニル芳香族化合物(例えばスチレン、-メチルスチレン、p-メチルスチレン、p-クロロスチレン)および/またはメタクリル酸-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-アルキルエステル(例えばメチルメタクリレート、エチルメタクリレート)50~99重量%および

B.1.2 ビニルシアニド(不飽和ニトリル、例えばアクリロニトリルおよびメタクリロニトリル)および/または(メタ)アクリル酸-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-アルキルエステル(例えばメチルメタクリレート、n-ブチルアクリレート、t-ブチルアクリレート)および/または不飽和カルボン酸の誘導体(例えば、無水物およびイミド(具体的にはマレイイン酸無水物およびN-フェニルマレイイミド)1~50重量%)。

#### 【0047】

モノマーB.1.1は好ましくはモノマーであるスチレン、-メチルスチレン、およびメチルメタクリレートの少なくとも1つから選択され、さらに好ましいモノマーB.1.2はモノマーであるアクリロニトリル、マレイイン酸無水物およびメチルメタクリレートの

10

20

30

40

50

少なくとも 1 つから選択される。

**【 0 0 4 8 】**

最も特に好ましいモノマーは B . 1 . 1 スチレンおよび B . 1 . 2 アクリロニトリルである。

**【 0 0 4 9 】**

グラフトポリマー B に好適なグラフトベース B . 2 は、例えばジエンゴム、 E P ( D ) M ( すなわち、エチレン / プロピレンおよび要すればジエン化合物をベースにしたもの、並びにアクリレート、ポリウレタン、シリコーン、クロロブレンおよびエチレン / ビニルアセテートゴム ) 。

**【 0 0 5 0 】**

好ましいグラフトベース B . 2 はジエンゴム ( 例えばブタジエン、イソブレンをベースにした ) またはジエンゴムまたはジエンゴムの共重合体またはそれら混合物と別の共重合体になり得るモノマーとの混合物 ( 例えば B . 1 . 1 および B . 1 . 2 による ) その混合物であるが、成分 B . 2 のガラス転移温度が < 10 °C 、好ましくは < 0 °C 、特に好ましくは < -10 °C 、特に < -20 °C 、例えば好ましくはスチレン ( グラフトベースに基づく ) 40 重量 % 以下、特に 30 重量 % 以下であるブタジエン / スチレン共重合体という条件のもとである。

**【 0 0 5 1 】**

純粋なポリブタジエンゴムは特に好ましい。

**【 0 0 5 2 】**

特に好ましいポリマー B は、例えば A B S ポリマー ( エマルジョン、バルクおよび懸濁 A B S ) 、例えば西独特許出願公開第 2 , 0 3 5 , 3 9 0 号明細書 ( = 米国特許第 3 , 6 4 4 , 5 7 4 号明細書 ) または西独特許出願公開第 2 , 2 4 8 , 2 4 2 号明細書 ( 英国特許第 1 , 4 0 9 , 2 7 5 号明細書 ) または Ullmanns Enzyklopädie Technischen der Chemie, Vo l. 1 9 ( 1 9 8 0 年 ) , 2 8 0 ページ以下に開示されているものである。グラフトベース B . 2 のゲル分率は、少なくとも 30 重量 % 、好ましくは少なくとも 40 重量 % ( トルエン中で測定 ) である。

**【 0 0 5 3 】**

グラフトポリマー B はフリーラジカル重合、例えばエマルジョン、懸濁液、溶液またはバルク重合、好ましくはエマルジョンまたはバルク重合によって製造されている。

**【 0 0 5 4 】**

特に好適なグラフトゴムは米国特許第 4 , 9 3 7 , 2 8 5 号明細書による有機ヒドロペルオキシドおよびアスコルビン酸からなる開始システムを用いたレドックス開始によって製造される A B S ポリマーである。

**【 0 0 5 5 】**

グラフトモノマー反応においてグラフトモノマーは知られているように、必ずしも完全にグラフトベース上にグラフト化される必要はないので、本発明によればグラフトポリマー B はまた、グラフトベース存在下におけるグラフトモノマーの ( 共 ) 重合によって得られる生成物およびワークアップの際に起こるものを含むものと理解されている。

**【 0 0 5 6 】**

ポリマー B の B . 2 による適切なアクリレートゴムは、好ましくはアクリル酸アルキルエステルと、要すれば B . 2 に基づいて 40 重量 % 以下の他の重合可能なエチレン性不飽和モノマーとのポリマーである。好ましい重合可能なアクリル酸エステルは C <sub>1</sub> ~ C <sub>8</sub> - アルキルエステル、例えばメチル、エチル、ブチル、n - オクチルおよび 2 - エチルヘキシリエステル、ハロゲン化アルキルエステル、好ましくはハロゲン - C <sub>1</sub> ~ C <sub>8</sub> - アルキルエステル、例えばクロロエチルアクリレート、並びにそれらのモノマーの混合物を包含する。

**【 0 0 5 7 】**

架橋のために、1 以上の重合可能な二重結合を含有しているモノマーを共重合することができる。好ましい架橋性モノマーの例は、C 原子 3 ~ 8 の不飽和モノカルボン酸と C 原

10

20

30

40

50

子 3 ~ 1 2 の不飽和一価アルコールまたは O H 基 2 ~ 4 および C 原子 2 ~ 2 0 の飽和ポリオールとのエステル、例えばエチレングリコールジメタクリレート、アリルメタクリレート；多価不飽和複素環式化合物、例えばシアヌル酸トリビニルおよびシアヌル酸トリアリル；多官能性ビニル化合物、例えばジビニルベンゼンおよびトリビニルベンゼン；およびリン酸トリアリルおよびフタル酸ジアリルである。

## 【0058】

好ましい架橋性モノマーは、アリルメタクリレート、エチレングリコールジメタクリレート、フタル酸ジアリルおよび少なくとも 3 つのエチレン性不飽和基を有する複素環式化合物である。

## 【0059】

特に好ましい架橋性モノマーは環状モノマーであるシアヌル酸トリアリル、イソシアヌル酸トリアリル、トリアクリロイルヘキサヒドロ - s - トリアジン、およびトリアリルベンゼンである。架橋性モノマーはグラフトベース B . 2 に基づいて 0 . 0 2 ~ 5 重量 % で、特に 0 . 0 5 ~ 2 重量 % である。

## 【0060】

少なくとも 3 つのエチレン性不飽和基を有する環状架橋性モノマーの場合において、その量をグラフトベース B . 2 の 1 重量 % 以下の量に制限するのが有効である。

## 【0061】

アクリル酸エステルとは別に、要すれば提供されたグラフトベース B . 2 の製造に用いることがある、好ましい「他の」重合可能な、エチレン性不飽和モノマーは、例えばアクリロニトリル、スチレン、 - メチルスチレン、アクリルアミド、ビニル - C<sub>1</sub> - C<sub>6</sub> アルキルエーテル、メチルメタクリレート、およびブタジエンである。グラフトベース B . 2 としての好ましいアクリル酸ゴムは、少なくとも 6 0 重量 % のゲル含量を有しているエマルジョンポリマーである。

## 【0062】

B . 2 によるさらに適切なグラフトベースは、グラフトサイトを有するシリコーンゴム、例えば西独特許出願公開第 3 , 7 0 4 , 6 5 7 号明細書、西独特許出願公開第 3 , 7 0 4 , 6 5 5 号明細書、西独特許出願公開第 3 , 6 3 1 , 5 4 0 号明細書および西独特許出願公開第 3 , 6 3 1 , 5 3 9 号明細書に記載されているものである。

## 【0063】

グラフトベース B . 2 のゲル含量は、適当な溶液中にて 2 5 で測定される (H.Hoffmann, H.Kroemer, R.Kuhn, Polymeranalytik I および II, Georg Thieme-Verlag, シュトゥットガルト, 1 9 7 7 年)。

## 【0064】

平均粒径 d<sub>50</sub> は、それより上と下にそれぞれ 5 0 重量 % の粒子が存在する粒径であり、かつ超遠心分離器測定によって決定されうる (W.Scholtan, H.Lange, Kolloid.Z. および Z.Polymer 250 (1 9 7 2 年), 7 8 2 - 1 7 9 6 )。

## 【0065】

## (化合物 C )

本発明によって使用することができる前記炭素含量を有する珪灰石は、例えば米国ニューヨーク、Willis boro の NYCO Minerals Inc. から Ny glo s (登録商標) および Ny glo s (登録商標) 4 - 1 0 9 9 2 または Ny glo s (登録商標) 5 - 1 0 9 9 2 として商業的に入手可能である。

## 【0066】

炭素含量は元素分析を用いて決定される。

## 【0067】

好ましい珪灰石は平均アスペクト比 > 6 、特に 7 、および平均ファイバー直径 1 ~ 1 5 μm 、好ましくは 2 ~ 1 0 μm 、特に 4 ~ 8 μm を有するものである。

## 【0068】

本発明が意味する範囲内の平均アスペクト比は、平均ファイバー長さの平均直径に対する

10

20

30

40

50

る比である。

**【0069】**

(成分D)

組成物中にさらなる成分として1もしくはそれ以上の熱可塑性ビニル(コ)ポリマーD.1および/またはポリアルキレンテレフタレートD.2を含有しうる。

**【0070】**

適切なビニル(コ)ポリマーD.1は、ビニル芳香族化合物、シアノ化ビニル(不飽和ニトリル)、(メタ)アクリル酸(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)アルキルエステル、不飽和カルボン酸、並びに不飽和カルボン酸の誘導体(例えば無水物およびイミド)からなる群からの少なくとも1つのモノマーのポリマーである。特に適しているのは、以下の成分の(コ)ポリマーである:

D.1.1 50~99重量部、好ましくは60~80重量部のビニル芳香族化合物および/または核-置換ビニル芳香族化合物、例えばスチレン、-メチルスチレン、p-メチルスチレン、p-クロロスチレンおよび/またはメタクリル酸(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-アルキルエステル、例えばメタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、および

D.1.2 1~50重量部、好ましくは20~40重量部のシアノ化ビニル(不飽和ニトリル)例えばアクリロニトリルおよびメタクリロニトリルおよび/または(メタ)アクリル酸(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)アルキルエステル(例えばメタクリル酸メチル、アクリル酸n-ブチル、アクリル酸t-ブチル)および/または不飽和カルボン酸(例えばマレイン酸)および/または不飽和カルボン酸の誘導体(例えば無水物およびイミド)(具体的には、無水マレイン酸およびN-フェニルマレイミド)。

**【0071】**

(コ)ポリマーD.1は樹脂性、熱可塑性およびゴムフリーである。

**【0072】**

特に好ましくはD.1.1スチレンおよびD.1.2アクリロニトリルの共重合体である。

**【0073】**

D.1による(コ)ポリマーは公知であり、フリーラジカル重合、特にエマルジョン、懸濁液、溶液またはバルク重合によって製造することができる。(コ)ポリマーは好ましくは平均分子量M<sub>w</sub>(光散乱法によって測定または沈降分離法によって測定した重量平均)15,000~20,000を有している。

**【0074】**

成分D.2のポリアルキレンテレフタレートは、芳香族ジカルボン酸またはそれらの反応性誘導体、例えばジメチルエステルまたは無水物、および脂肪族、脂環式または芳香脂肪族ジオールの反応生成物、並びにそれらの反応生成物の混合物である。

**【0075】**

好ましいポリアルキレンテレフタレートはジカルボン酸成分に基づいて、少なくとも80重量%を含有し、好ましくは少なくとも90重量%のテレフタル酸基、およびジオール成分に基づいて、少なくとも80重量%、好ましくは少なくとも90モル%のエチレングリコール基および/またはブタンジオール-1,4基を含有する。

**【0076】**

好ましいポリアルキレンテレフタレートは、テレフタル酸エステルに加えて、20モル以下、好ましくは10モル以下の8~14のC原子を有する他の芳香族または環状脂肪族ジカルボン酸、または4~12のC原子を有する脂肪族ジカルボン酸、例えばフタル酸、イソフタル酸、ナフタレン-2,6-ジカルボン酸、4,4'-ジフェニルジカルボン酸、コハク酸、アジピン酸、セバシン酸、アゼライン酸およびシクロヘキサンジ酢酸の基を含有してもよい。

**【0077】**

好ましいポリアルキレンテレフタレートは、エチレングリコール基またはブタンジオール-1,4基に加えて、20モル%以下、好ましくは10モル%以下の3~12のC原子

10

20

30

40

50

を有する他の脂肪族ジオールまたは6～21のC原子を有する脂環式ジオール、例えばブロパンジオール-1,3、2-エチルプロパンジオール-1,3、ネオペンチルグリコール、ペンタンジオール-1,5、ヘキサンジオール-1,6、シクロヘキサンジメタノール-1,4、3-エチルペンタンジオール-2,4、2-メチルペンタンジオール-2,4、2,2,4-トリメチルペンタンジオール-1,3、2-エチルヘキサンジオール-1,3、2,2-ジエチルプロパンジオール-1,3、ヘキサンジオール-2,5、1,4-ジ-(2-ヒドロキシエトキシ)-ベンゼン、2,2-ビス-(4-ヒドロキシプロポキシフェニル)-プロパンおよび2,2-ビス-(4-ヒドロキシプロポキシフェニル)-プロパン(西独特許出願公開第2,407,674号、2,407,776号、2,715,932号明細書参照)の基を含有してもよい。

10

## 【0078】

ポリアルキレンテレフタレートは比較的少量の三価または四価のアルコール、または三塩基または四塩基のカルボン酸を導入することによって分岐することができる(例えば西独特許出願公開第1,900,270および米国(US-PS)第3,692,744号明細書参照)。分岐剤の例は、トリメシン酸、トリメリット酸、トリメチロールエタンおよびトリメチロールプロパン、およびペントエリスリトールである。

## 【0079】

特に好ましくは、テレフタル酸およびその反応性誘導体(例えばそのジアルキルエステル)およびエチレングリコールおよび/またはブタンジオール-1,4から得られたポリアルキレンテレフタレートおよびそれらポリアルキレンテレフタレートの混合物である。

20

## 【0080】

ポリアルキレンテレフタレートの混合物は、ポリエチレンテレフタレート1～50重量%、好ましくは1～30重量%およびポリブチレンテレフタレート50～99重量%、好ましくは70～99重量%を含有する。

## 【0081】

好ましく使用されるポリアルキレンテレフタレートは、フェノール/o-ジクロロベンゼン(1:1重量部)中25で、Ubbelohde製粘度計で測定した極限粘度0.4～1.5dl/g、好ましくは0.5～1.2dl/gを有する。

## 【0082】

ポリアルキレンテレフタレートは公知の方法(例えばクンストstoff-ハンドブック(Kunststoff-Handbuch), Vol.VIII, 695ページ以下, カール・ハンサー・フェラッグ, ムニッヒ(Carl-Hanser-Verlag, Munich) 1973年参照)によって製造することができる。

30

## 【0083】

成分Dは、好ましくは0～50重量部、特に好ましくは30重量部以下、および最も特に好ましくは20重量部以下の量で本発明による組成物中に含有することができる。

## 【0084】

## (成分E)

組成物は好適な添加剤を添加することによって防炎性にすることができる。防炎加工剤の例は以下のものが挙げられる: ハロゲン化化合物、特に塩素および臭素ベースの化合物、リン含有化合物、並びにケイ素化合物、特にシリコーン化合物である。

40

## 【0085】

組成物は好ましくはモノマー状およびオリゴマー状リン酸およびホスホン酸エステル、フォスフォネートアミンおよびフォスファゼンからなる群からリン含有防炎加工剤を含むし、これらの群から1またはいくつかから選択された成分の混合物もまた防炎加工剤として使用されうる。ここに特記していない他のリン化合物もまた、単独または他の防炎加工剤との任意の組合せで使用しうる。

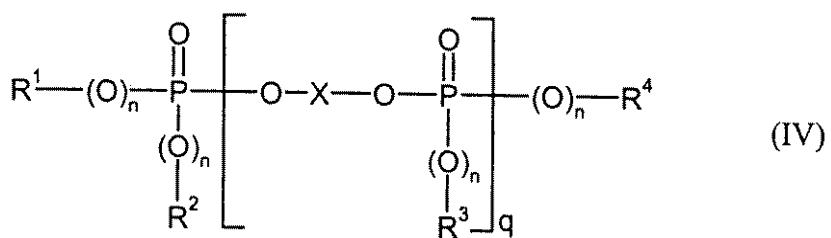
## 【0086】

好ましいモノマー状およびオリゴマー状リン酸およびホスホン酸エステルは、一般式(IV) :

50

【 0 0 8 7 】

【化 4】



[式中、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>およびR<sup>4</sup>がそれぞれの場合において互いに独立して、要すればハロゲン化されたC<sub>1</sub>～C<sub>8</sub>-アルキル、またはC<sub>5</sub>～C<sub>6</sub>-シクロアルキル、およびそれぞれの場合においてアルキル、好ましくはC<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>-アルキルおよび/またはハロゲン、好ましくは塩素または臭素によって要すれば置換されてもよいC<sub>6</sub>～C<sub>20</sub>アリールまたはC<sub>7</sub>～C<sub>12</sub>アラルキルを示し、

これは互いに独立して 0 または 1 を示し、

$q$  は  $0 \sim 30$ 、および

X は 6 ~ 30 の炭素原子を有する単核または多核の芳香族基、または 2 ~ 30 の炭素原子を有する直鎖または分岐脂肪族基であって、それらが OH - 置換されてもよく、および 8 個以下のエーテル結合を含んでもよい。1

のリン化合物である。

[ 0 0 8 8 ]

好ましくは R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> および R<sup>4</sup> は互いに独立して、C<sub>1</sub> ~ C<sub>4</sub>-アルキル、フェニル、ナフチルまたはフェニル-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>アルキルを示す。芳香族基 R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> および R<sup>4</sup> はまた部分的にハロゲンおよび / またはアルキル基、好ましくは塩素、臭素および / または C<sub>1</sub> ~ C<sub>4</sub>-アルキルで置換されてもよい。特に好ましいアリール基はクレシル、フェニル、キシレンイル、プロピルフェニルまたはブチルフェニル並びに対応する臭素化および塩素化誘導体である。

式(IV)中のXは好ましくは6~30のC原子を有する単核または多核の芳香族基を示す。これは好ましくは式(I)のジフェノールから誘導される。

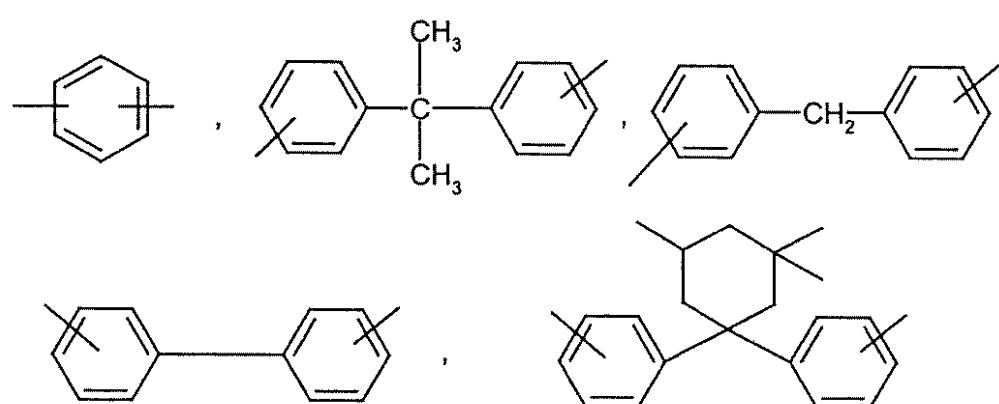
式(IV)中のnは、互いに独立して0または1であってよく、nは好ましくは1に等しい。

$q$  は 0 ~ 30 の値を示す。式(IV)の種々の成分の混合物が使用される際、好ましくは数値的に平均の  $q$  値、0.3 ~ 20、好ましくは 0.5 ~ 10、特に好ましくは 0.5 ~ 6 および最も特に好ましくは 0.6 ~ 2 を有する混合物を用いて下さい。

× は特に好きしくは

[ 0 0 8 9 ]

【化 5】



またはそれらの塩素化または臭素化誘導体であり、Xは特にレゾルシノール、ヒドロキノン、ビスフェノールAまたはジフェニルフェノールから誘導される。特にXはビスフェ

ノールAから誘導されるのが好ましい。

【0090】

本発明による成分Eはモノフォスフェイト( $q = 0$ )、オリゴフォスフェイト( $q = 1 \sim 30$ )またはモノフォスフェイトおよびオリゴフォスフェイトの混合物を使用しうる。

【0091】

式(IV)のモノリン化合物は、特にリン酸トリブチル、トリス-(2-クロロエチル)-リン酸、トリス-(2,3-ジブロモプロピル)-リン酸、リン酸トリフェニル、リン酸トリクレジル、リン酸ジフェニルクレジル、リン酸ジフェニルオクチル、リン酸ジフェニル-2-エチルクレジル、トリ-(イソプロピルフェニル)-リン酸、ハロゲン-置換アリールフォスフェイト、メチルリン酸ジメチルエステル、メチルリン酸ジフェニルエステル、フェニルリン酸ジエチルエステル、トリフェニルfosفينオキシドまたはトリクレジルfosفينオキシドを包含する。  
10

【0092】

成分Eによるリン化合物は公知であり(例えばヨーロッパ特許出願公開第0,363,608号明細書、ヨーロッパ特許出願公開第0,640,655号明細書参照)、公知の方法(例えばUllmanns Enzyklopädie der Technischen Chemie, Vol.18, 301ページ以下。1979年; Houben-Weyl, Methoden der Organischen Chemie, Vol.12/1, 43ページ; Beilstein Vol.6, 177ページ)と同様の方法で調製することができる。

【0093】

平均値 $q$ は、適した方法(ガスクロマトグラフィー(GC)、高速液体クロマトグラフィー(HPLC)、ゲル透過クロマトグラフィー(GPC))を用いてリン酸混合物の組成(分子量分布)を決定し、これから平均値 $q$ を計算することによって得てもよい。  
20

【0094】

さらにフォスフォネートアミンおよびフォスファゼンを防炎加工剤として使用してもよい。

【0095】

防炎加工剤は、単独またはそれらの混合物または他の防炎加工剤と混合した任意の混合物を使用しうる。

【0096】

成分Eは、好ましくは1~40重量部、特に好ましくは2~30重量部および最も特に好ましくは2~20重量部で本発明による組成物中に含有しうる。  
30

【0097】

(成分F)

成分Eに対応する防炎加工剤は、いわゆるアンチ-ドリップ剤(anti-drip agents)と共にしばしば使用され、その物質は燃焼の際に燃焼液滴を形成するのを軽減する。例示として、フッ素化ポリオレフィン、シリコーンおよびアラミド繊維からなる物質のクラスから選択される化合物が挙げられる。それらは本発明の組成物中で用いてもよい。フッ素化ポリオレフィンがアンチドリップ剤として好ましく用いられる。

【0098】

フッ素化ポリオレフィンは公知であり、例えばヨーロッパ特許出願公開第0,640,655号明細書に記載されている。それらはデュポン社(DuPont)から例えば商標名テフロン(登録商標)30N(Teflon 30N)として販売されている。  
40

【0099】

フッ素化されたポリオレフィンは、純粋な状態で、並びにグラフトポリマーのエマルジョン(成分B)または好ましくはスチレン/アクリロニトリルをベースにした共重合体のエマルジョンと共にフッ素化ポリオレフィンのエマルジョンの凝集した混合物の状態で使用されうる。その場合は、フッ素化ポリオレフィンはグラフトポリマーのエマルジョンまたは共重合体のエマルジョンとともにエマルジョンとして混合し、次いで凝集する。

【0100】

さらにフッ素化ポリオレフィンはグラフトポリマー(成分B)またはD.1による共重  
50

合体、好ましくはスチレン／アクリロニトリルをベースとした共重合体とのプレコンパウンドとして使用されうる。フッ素化ポリオレフィンはグラフトポリマーおよび共重合体の粉末または粒状物質と共に粉末として混合され、および常套の設備、例えばインターナルニーダー、押出機または二軸押出機で200～330で溶融コンパウンド化される。

#### 【0101】

フッ素化ポリオレフィンはまた、フッ素化ポリオレフィンの水性分散剤の存在下に少なくとも1つのモノエチレン性不飽和モノマーをエマルジョン重合することによって得られるマスター・バッチの形態で使用してもよい。モノマー成分はスチレン、アクリロニトリルおよびそれらの混合物であることが好ましい。ポリマーは、酸性沈殿後乾燥してさらさらの粉末として用いられる。

10

#### 【0102】

凝集、プレコンパウンドまたはマスター・バッチは通常5～95重量%、好ましくは7～60重量%のフッ素化ポリオレフィンの固形分含量を有する。

#### 【0103】

成分Fは本発明による組成物中で好ましくは0.05～1.0重量部、特に好ましくは0.1～5重量部および最も特に好ましくは0.3～5重量部の量を含有し、組成物中のフッ素化ポリオレフィン自体の含量は好ましくは0.05～1重量部、特に0.1～0.5重量部であってよい。

#### 【0104】

#### (成分G(別の添加剤))

20

本発明による化合物は、さらに少なくとも1つの常套の添加剤、例えば潤滑剤および離型剤、例えばテトラステアリン酸ペンタエリスリトール、成核剤、帯電防止剤、安定剤、およびさらに充填剤および補強物質、並びに染料および顔料を含有しうる。

#### 【0105】

この明細書中の重量部に関するすべての数値は標準化したものであり、組成物中の成分A)～G)の重量の合計を100としたものである。

#### 【0106】

本発明による組成物は、公知の方法で各成分を混合し、常套の設備、例えばインターナルニーダー、押出機および二軸押出機で200～300で溶融コンパウンドおよび溶融押出することによって得られる。

30

#### 【0107】

個々の成分の混合は、公知の方法で、連続的かつ同時に、かつおよそ20(室温)並びにより高い温度で行ってもよい。

#### 【0108】

本発明による成形組成物は、すべてのタイプの成形部品を製造するのに使用されうる。それらは射出成形、押出成形およびプロー成形方法によって製造してもよい。さらなる方法としては、予め形成されたシートまたはフィルム、およびフィルム逆射出法(IMD)のプロセスからの熱成形によって成形部品を製造してもよい。

#### 【0109】

成形部品の例としてフィルム、化粧板(Profiled sections)、すべてのタイプのハウジング部品、例えば家庭用電気製品、例えばジュースプレス、コーヒーメーカー、ミキサー；事務用品、例えばモニター、プリンター、コピー機；自動車外部品および内部部品；パネル、パイプ、電気的な設備配管、窓、ドアおよび建物および建設部門(内部および外部使用)のための化粧板(Profiled sections)、および電気および電子機器部品、たとえばスイッチ、プラグ、ソケットである。

40

#### 【0110】

特に本発明による成形組成物は、例えば以下に示す成形部品および成形部品を製造するのにも使用されうる：

#### 【0111】

軌道車、船舶、エアクラフト、バスおよびその他の車両のための内部部品、自動車産業

50

における外部車体部品、小さな変圧器を含む電気機器のあるハウジング、情報処理および通信装置のあるハウジング、医療機器のハウジングおよびケーシング、マッサージ機器およびそのためのハウジング、子供用玩具、二次元壁成分 (two-dimensional wall elements)、安全装置のためのハウジング、熱的に絶縁である輸送用コンテナ、小動物の捕獲または飼育のための装置、洗面所および浴室の備品のための成形部品、換気扇のための塵除けカバー、物置小屋およびハウジング設備のための成形部品、ガーデニング用品のためのハウジング、およびガーデニングのための物品。

## 【0112】

以下の例は本発明のより詳細を説明するのを助ける。

## 【実施例】

10

## 【0113】

## (成分)

A 1 : 25 で  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$  溶媒中で 0.5 g / 100 ml の濃度で測定した相対溶液粘度 1.28 を有するビスフェノール A に基づく直鎖ポリカーボネート。

## 【0114】

A 2 : 25 で  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$  溶媒中で 0.5 g / 100 ml の濃度で測定した相対溶液粘度 1.24 を有するビスフェノール A に基づく直鎖ポリカーボネート。

## 【0115】

B : エマルジョン重合で製造された架橋ポリブタジエンゴム微粒子 (平均粒子径  $d_{50} = 0.3 \mu\text{m}$ ) 60 重量部での比率 73 : 27 のスチレンおよびアクリロニトリルの共重合体 40 重量部のグラフトポリマー。

20

## 【0116】

C - W1 : C 含有量 0.49 重量% および平均粒子径  $d_{50}$  が 4.8  $\mu\text{m}$  およびアスペクト比 8 : 1 である珪灰石 (Nyglós (登録商標) 410992, NYCO Minerals Inc., 米国, ニューヨーク, Willlsboro)。

## 【0117】

C - W2 : C 含有量 0.40 重量% および平均粒子径  $d_{50}$  が 6.5  $\mu\text{m}$  およびアスペクト比 13 : 1 である珪灰石 (Nyglós (登録商標) 510992, NYCO Minerals Inc., 米国, ニューヨーク, Willlsboro)。

## 【0118】

30

C - W3 (比較) : C 含有量 < 0.1 重量% および平均粒子径  $d_{50}$  が 2.5  $\mu\text{m}$  およびアスペクト比 5 : 1 である珪灰石 (NYADM3, NYCO Minerals Inc., 米国, ニューヨーク, Willlsboro)。

## 【0119】

C - W4 (比較) : C 含有量 < 0.1 重量% および平均粒子径  $d_{50}$  が 6.5  $\mu\text{m}$  およびアスペクト比 13 : 1 である珪灰石 (Nyglós (登録商標) 5, NYCO Minerals Inc., 米国, ニューヨーク, Willlsboro)。

## 【0120】

C - W5 (比較) : C 含有量 < 0.1 重量% および平均粒子径  $d_{50}$  が 4.8  $\mu\text{m}$  およびアスペクト比 8 : 1 である珪灰石 (Nyglós (登録商標) 4, NYCO Minerals Inc., 米国, ニューヨーク, Willlsboro)。

40

## 【0121】

C - T (比較) : Naintsch A3 (Naintsch Mineralwerk e GmbH, オーストラリア, グラツ)、製造情報による平均粒子径 ( $d_{50}$ ) が 1.2  $\mu\text{m}$  である滑石粉。

## 【0122】

D : 72 : 28 のスチレン / アクリロニトリル重量比および極限の粘度 0.55 dl/g (20 度ジメチルホルムアミドにおいて測定) であるスチレン / アクリロニトリルの共重合体。

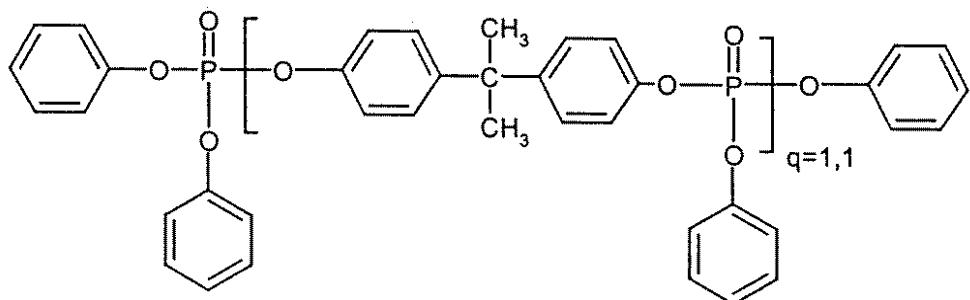
## 【0123】

50

E : オリゴフォスフェイト

【0124】

【化6】



10

モノマーのおよびオリゴマーのリン酸塩の平均  $q$  値の割合を決定するために、最初に HPLC 測定を用いた：

カラムタイプ：Li Chrosor p R P - 8

溶離剤勾配：アセトニトリル / 水 50 : 50 ~ 100 : 0

濃度 5 mg / ml

【0125】

数 重量平均値は次いで各成分（即ち、モノフォスフェートおよびオリゴフォスフェート）の比率から公知である方法で測定する。

【0126】

20

（成分 F）

水中の成分 B による SAN グラフトポリマー水性エマルジョンおよびテトラフルオロエチレンポリマー水性エマルジョンの凝集混合物としてのテトラフルオロエチレンポリマー。混合物中においてグラフトポリマー B とテトラフルオロエチレンポリマー F の重量比は 90 重量% ~ 10 重量% である。テトラフルオロエチレンポリマー E は固体分含量 60 重量% を有し、平均粒子径は 0.05 ~ 0.5 μm である。SAN グラフトポリマーエマルジョンは固体物含量 34 重量% および平均ラテックス粒子径  $d_{50} = 0.4 \mu m$  を有する。

【0127】

成分 F を製造するために、テトラフルオロエチレンポリマー（テフロン（登録商標）30 0 N, デュポン社）を、SAN グラフトポリマー B のエマルジョンと混合し、高分子固体分に基づいて 1.8 重量% のフェノール系酸化防止剤で安定化する。混合物を MgSO<sub>4</sub> (エプソム塩 (Epsom salt)) および酢酸の水溶液を用いて pH 4 ~ 5, 8.5 ~ 9.5 で凝固し、濾過および洗浄して実質的に電解質フリーにし、次いで遠心分離によって大部分の水を除去し、最後に粉状になるまで 100 度乾燥する。この粉末は次いで上記凝結体中のさらなる成分と配合してもよい。

G1 : PET S (ペンタエリスリトールテトラステアリン酸)

G2 : リン酸塩安定剤

【0128】

珪灰石含有炭素は、元素分析によって平均値を決定する。クロロホルムで C-W1 および C-W2 の珪灰石 A を 24 時間抽出し、得られたものは以下の量の抽出物質（いずれの場合も珪灰石の総使用量に基づく）のみである：

C-W1 : 0.06 重量%

C-W2 : 0.03 重量%

【0129】

それらの値は、炭素が化学的に結合された炭素の形態であり、無機および炭素含有化合物の化合物の物理的混合は存在しないことを確認する。

【0130】

応力亀裂特性 (ESCI 特性) は、大きさ 80 mm × 10 mm × 4 mm のロッドで検査する。トルエンの 50 容量% およびイソシアネートの 50 容量% の混合物、またはトルエン

40

50

の 60 容量 % およびイソプロパノール 40 容量 % の混合物は、防炎加工組成物を有する試験媒体として使用した。試験片は環状型テンプレートを使用して予備延伸し ( $\gamma = 0.2 \sim 2.4$  % ) 、各々の試験媒体中において室温で保存する。E S C 特性は試験媒体における 5 分以内のロッド破碎での極小予備延伸に基づいて評価する。

【 0 1 3 1 】

ノッチ耐衝撃性  $a_k$  および耐衝撃性  $a_n$  は ISO 180 / 1 A および ISO 180 / 1 U により決定する。強靭性脆性転移温度を決定するために、耐ノッチ衝撃値  $a_k$  は異なる温度で測定、評価する。室温から開始して試験温度を脆性破碎が観測されるまで段階的に 5 °ずつ削減する。

【 0 1 3 2 】

弾性率および破断点伸びは ISO 527 による延伸試験によって決定した。

10

【 0 1 3 3 】

防炎加工された試験片の炎特性は、UL - Subj. 94 V によって、射出成形機 240 で製造した。大きさ 127 mm × 12.7 mm × 0.8 mm のロッド上で測定した。

【 0 1 3 4 】

溶融粘度は 260 、DIN 54811 による剪断率  $1,000 \text{ s}^{-1}$  で決定する。

【 0 1 3 5 】

本発明による組成物の特性およびそこから形成した成形部品の要約を表 1 および 2 に示す。

【 0 1 3 6 】

20

表 1 は確定炭素含量を有する特定の珪灰石で強化した成形組成物（実施例 1 および 2 ）が比較例との比較によって極めてより良好な破断点伸び、より低い低温強度（強靭性 / 脆性転移）および耐応力破壊により優れていることを確認すると同時に高い延伸強度および弾性モジュラスを有することを確認する。

【 0 1 3 7 】

表 1

【表1】

成分	1	2	比較 V1	比較 V2	比較 V3	比較 V4
A1	55.1	55.1	55.1	55.1	55.1	55.1
B	14.7	14.7	14.7	14.7	14.7	14.7
D	22.0	22.0	22.0	22.0	22.0	22.0
C-W1	7.4					
C-W2		7.4				
C-W3			7.4			
C-W4				7.4		
C-W5					7.4	
C-T						7.4
G1	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7
G2	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
特性						
弾性率 [MPa]	3000	3000	2600	2850	2850	3000
破断点伸び [%]	87	81	29	33	30	58
強靭性 ／脆性転移温度 [°C]	-10	0	15	15	15	5
5分後の $\varepsilon_x$ での E S C破断 [%]	1.0	1.0	0.6	0.8	0.6	0.6

10

20

30

【0138】

表2 成形組成物およびそれらの特性

【表2】

成分 [重量部]	比較	3	
	V5		
A2(ポリカーボネート)	63.2	63.2	
B(グラフト)	4.9	4.9	
D(SAN)	4.9	4.9	
E(BDP)	12.8	12.8	10
F(テフロンマスター・バッチ)	3.9	3.9	
C-W4(Nyglos 5)	9.8	..	
C-W2(Nyglos 5 10992)	-	9.8	
G1(PETS)	0.4	0.4	
G2(亜リン酸塩安定剤)	0.1	0.1	
<hr/>			
特性			
a <sub>n</sub> [kJ/m <sup>2</sup> ]	130	183	20
弾性率 [MPa]	3532	3785	
破断点伸び [%]	21.9	27.2	
溶融粘度 [260°C/1000s <sup>-1</sup> ]	151	143	
ESC 特性			
ε <sub>x</sub> での破断 [%]	2.4	2.4	
0.8 mm での UL 94 V	V-0	V-0	30

## 【0139】

表2のデータは防炎加工、耐衝撃性変性ポリカーボネート成形組成物の場合、改良された強度値、破断点伸びおよび優れた流動性と優れた ESC 特性とを合わせた弾性率は確定炭素含量を有する特定の珪灰石を用いることによって成し得るということを示す。

---

フロントページの続き

(72)発明者 マルク・ファタウアー

ドイツ連邦共和国デー - 5 0 8 5 8 ケルン、マックス・ペッヒシュタイン - シュトラーセ 18 番

(72)発明者 アンドレアス・ザイデル

ドイツ連邦共和国デー - 4 1 5 4 2 ドルマゲン、ビルネンヴェーク 5 番

(72)発明者 デトレフ・ヨアヒミ

ドイツ連邦共和国デー - 4 7 8 0 0 クレーフェルト、シャイブラー・シュトラーセ 103 番

(72)発明者 ディーター・ヴィットマン

ドイツ連邦共和国デー - 5 1 3 7 5 レーフエルクーゼン、エルンスト・ルートヴィッヒ - キルヒナー - シュトラーセ 41 番

審査官 吉澤 英一

(56)参考文献 特開2001-192545(JP,A)

特開平11-199767(JP,A)

特開平11-286599(JP,A)

特開平07-149948(JP,A)

特表2004-520470(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C08L 1/00-101/16