

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 3 部門第 3 区分

【発行日】平成 21 年 7 月 23 日 (2009.7.23)

【公開番号】特開 2002-155210 (P2002-155210A)

【公開日】平成 14 年 5 月 28 日 (2002.5.28)

【出願番号】特願 2001-137745 (P2001-137745)

【国際特許分類】

C 0 8 L 101/00 (2006.01)

B 3 2 B 27/18 (2006.01)

C 0 8 K 5/3492 (2006.01)

C 0 8 K 5/5353 (2006.01)

【 F I 】

C 0 8 L 101/00

B 3 2 B 27/18 B

C 0 8 K 5/3492

C 0 8 K 5/5353

【手続補正書】

【提出日】平成 21 年 6 月 9 日 (2009.6.9)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

【補正方法】変更

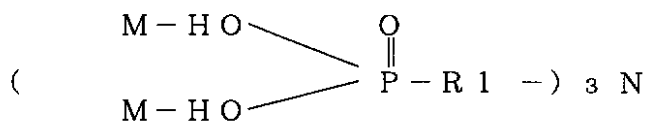
【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】ニトリロトリス（アルキレン）ホスホン酸塩（下記式 3）及び／又は 1 - ヒドロキシアルキレリデン - 1, 1' - ジホスホン酸塩（下記式 4）の少なくとも 1 種以上である窒素原子を含む環状構造単位を持つノンハロゲン系難燃剤（X）と有機樹脂（Y）を含有することを特徴とする難燃性樹脂組成物。

【化 2】

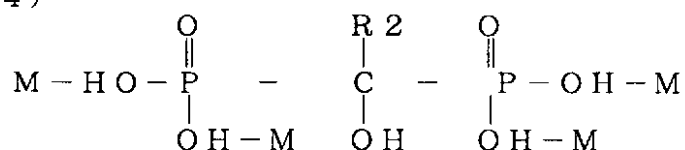
（式 3）



式中 R 1 は 2 価の基を表す。

【化 3】

（式 4）



式中 R 2 は 1 価の基を表す。

（M はメラミン、メラム、メレムのいずれか少なくとも一つを表す）

【請求項 2】前記有機樹脂（Y）がポリエステル樹脂及び／又は変性ポリエステル樹脂で

ある請求項 1 に記載の難燃性樹脂組成物。

【請求項 3】前記有機樹脂（Y）がイオン性基を導入された樹脂であることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の難燃性樹脂組成物。

【請求項 4】さらに硬化剤を含有する請求項 1 ～ 3 いずれかに記載の難燃性樹脂組成物。

【請求項 5】基材に請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の難燃性樹脂組成物を積層したことを特徴とする難燃性積層体。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0084

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0084】

#### 参考例 1

ポリエステル樹脂（A）をメチルエチルケトン／トルエン＝50／50重量比に溶解した樹脂溶液65固形部とリン酸メラミン（太平化学（株））35固形部をガラスビーズ型高速振とう機で5時間分散し分散溶液が得られた。得られた分散溶液は良好な分散性を示した。試験結果を表5に示した。分散樹脂溶液を乾燥膜厚が50μmになるように、100μm厚のポリエチレンテレフタレートフィルム（東洋紡（株）製E-5000）上にバーコーターで塗布乾燥して、難燃接着剤層を有する難燃性積層体を作製した。

【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0087

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0087】

以下、表5～表7に示す組成により同様にして、参考例2～11、比較例1～3の難燃性接着性フィルムを作成した。得られた難燃性接着性フィルムの試験結果を表5～表7に示す。ただし、配合比は固形分換算で表示した。

【手続補正 4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0088

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0088】

【表 5】

			参 考 例							
			1	2	3	4	5	6	7	8
配 合 ・ 固 形 部	有 機 樹 脂 Y	ポリエステル樹脂及び 変性ポリエステル樹脂 (A)	A 65	B 50	B 50	B 50	D 70	C 25	C 70	D 20
		エポコート#1004 5)						5		5
		サイメル254 6)			10					
		コロネートHX 7)				5	10	10	10	5
	触 媒	p-tertブチルカルボン酸			0.1					
		ジブチルチンジラレート				0.1	0.5	0.5	0.5	0.5
	難 燃 剤 X	リン酸メラミン 1)	35							
		PMP-100 2)		50			20	60	20	70
		PMP-200 3)			40					
		PMP-300 4)				45				
	難燃性層膜厚 $\mu\text{m}$		40	50	50	40	60	30	60	20
物 性	難燃性 VTM-		0	0	0	0	0	0	0	0
	燃焼ガス		○	○	○	○	○	○	○	○
	基材フィルムとの密着性		100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100
	分散性		○	○	○	○	○~△	○	○	○~△
	耐水性		○	○	○	○	○	○	○	○
	成形材料との密着性		100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100

## 【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0089

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0089】

【表 6】

			参 考 例			
			9	10	11	12
配合・固形部	有機樹脂 Y	ポリエステル樹脂及び変性ポリエステル樹脂 (A)	E 70	F 50	G 40	H 50
		エピコート #1004 5)			10	
		サイメル 254 6)				
		コロネート HX 7)				10
	難燃剤	リン酸メラミン 1)	30		20	
		PMP-100 2)		50		
		PMP-200 3)			30	
		PMP-300 4)				40
	触媒	p-tert-ブチルカルボン酸				
		ジブチルチンジラウレート				0.1
難燃性層膜厚 $\mu\text{m}$			70	80	30	50
物性	難燃性 VTM-		0	0	0	0
	燃焼ガス		○	○	○	○
	基材フィルムとの密着性		100/100	100/100	100/100	100/100
	分散性		○	○	○	○
	耐水性		○	○	○	○
	成形材料との密着性		100/100	100/100	100/100	100/100

## 【手続補正 6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0099

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0099】

参考例 13 ~ 22、比較例 4 ~ 6

参考例 1 と同様にして、参考例 13 ~ 22、比較例 4 ~ 6 を行った。結果は表 12 ~ 14 に示す。

## 【手続補正 7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0100

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0100】

【表 1 2】

			参 考 例				
			1 3	1 4	1 5	1 6	1 7
配合・固形部	有機樹脂	ポリエステル樹脂及び変性 ポリエステル樹脂 (A)	I 7 0	J 5 0	J 5 0	J 4 0	K 7 0
		サイメル 2 5 4 6)			1 0		
		Y コローネート HX 7)				5	
	触媒	p-tertブチルカルボン酸			0. 1		
		ジブチルチンジラレート				0. 1	
	難燃剤	リン酸メラミン 1)	3 0				3 0
		PMP-1 0 0 2)		5 0			
		PMP-2 0 0 3)			4 0		
		X PMP-3 0 0 4)				5 5	
	難燃性層膜厚 $\mu\text{m}$		8 0	4 0	4 0	4 0	6 0
物性	難燃性 VTM-		0	0	0	0	0
	燃焼ガス		○	○	○	○	○
	基材フィルムとの密着性		100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100
	分散性		△	△	△	△	△
	耐水性		○	○	○	○	○
	成形材料との密着性		100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100

【手続補正 8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 1 0 1

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 1 0 1】

【表 13】

			参 考 例				
			18	19	20	21	22
配合・固形部	有機樹脂 Y	ポリエステル樹脂及び変性 ポリエステル樹脂 (A)	L 80	M 50	N 50	O 50	
		パラロイド B-449)					70
		エビコート#10045)			20		
		サイメル2546)					
		コロネートHX7)				10	
	難燃剤	リン酸メラミン1)	20				
		PMP-1002)		50			30
		PMP-2003)			30		
		PMP-3004)				40	
	触媒	p-トルエンホルホン酸					
		ジブチルチンジラレート				0.1	
	難燃性層膜厚 $\mu\text{m}$		80	50	50	50	50
	物性	難燃性 VTM-	0	0	0	0	0
		燃焼ガス	○	○	○	○	○
		基材フィルムとの密着性	100/100	100/100	100/100	100/100	50/100
		耐水性	○	○	○	○	○
		成形材料との密着性	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100

## 【手続補正9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0104

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0104】

## 実施例1

ポリエステル樹脂(A)をメチルエチルケトン/トルエン=50/50重量比に溶解した樹脂溶液70固形部とJPCN-300M(ニトリロトリス(メチレン)ホスホン酸メラミン塩:城北化学(株)製)30固形部をガラスビーズ型高速振とう機で5時間分散し分散溶液が得られた。得られた分散溶液は良好な分散性を示した。試験結果を表15に示した。分散樹脂溶液を乾燥膜厚が50 $\mu\text{m}$ になるように、100 $\mu\text{m}$ 厚のポリエチレンテレフタレートフィルム(東洋紡(株)製E-5000)上にバーコーターで塗布乾燥して、難燃接着剤層を有する難燃性積層体を作製した。

【手続補正10】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0106

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0106】

以下、表15~17に示す組成により同様にして、実施例2~10、比較例7~9の難燃性接着性フィルムを作成した。得られた難燃性接着性フィルムの試験結果を表15~17に示す。ただし、配合比は固形分換算で表示した。

【手続補正 1 1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 1 0 7

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 1 0 7】

【表 1 5】

			実 施 例					
			1	2	3	4	5	6
配合・固形部	有機樹脂	ポリエステル樹脂及び変性ポリエステル樹脂 (A)	A 70	B 50	B 50	C 50	D 70	B 25
		エピコート#1004 3)						5
		サイメル254 4)			10			
		コロネートHX 5)				5	10	10
	触媒	p-トルエン硫酸			0.1			
		ジブチルジラレート				0.1	0.5	0.5
	難燃剤	JPCN-300M 1)	30	50				
		HDDP-M 2)			40	60	20	70
	膜厚	難燃性中間層	50	30	30	30	50	20
		接着層	100	100	80	80	80	80
物性	難燃性 VTM -		0	0	0	0	0	0
	燃焼ガス		○	○	○	○	○	○
	基材フィルムとの密着性		100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100
	分散性		○	○	○	○	○	○
	耐水試験前の密着性		100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100
	耐水試験後の密着性		100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100

5) コロネートHX: ヘキサメチレンジイソシアネート(日本ポリウレタン(株)製)

【手続補正 1 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 1 0 8

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 1 0 8】

【表 1 6】

			実 施 例			
			7	8	9	10
配合・固形部	有機樹脂	ポリエステル樹脂及び変性ポリエステル樹脂 (A)	E 70	F 50	G 40	H 50
		エピコート#1004 3)			10	
		サイメル254 4)				
		コロネートHX 5)				10
	難燃剤	JPCN-300M 1)	30		20	40
		HDDP-M 2)		50	30	
	触媒	p-トルエンスルホン酸				
		ジブチルチンジラウレート				0.1
膜厚	難燃性中間層		80	50	40	60
	接着層		50	50	80	40
物性	難燃性 VTM-		0	0	0	0
	燃焼ガス		○	○	○	○
	基材フィルムとの密着性		100/100	100/100	100/100	100/100
	分散性		○	○	○	○
	耐水試験前の密着性		100/100	100/100	100/100	100/100
	耐水試験後の密着性		100/100	100/100	100/100	100/100

5) コロネートHX：ヘキサメチレンジイソシアネート（日本ポリウレタン（株）製）

【手続補正13】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0109

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0109】



【表 17】

			比較例		
			7	8	9
配 固 形 部	有機樹脂	ポリエステル樹脂及び 変性ポリエステル樹脂	A 65	B 50	I 70
		サイメル254 5)		10	
	難 燃 剤	パークロロペンタシクロデカン	20		
		三酸化アンチモン	15		
		含水ケイ酸マグネシウム		40	
		タイエンS 1)			30
	触媒	p-トルエンスルホン酸		0.1	
膜 厚 μm	難燃性中間層		50	60	40
	接着層		50	40	60
物 性	難燃性 VTM-		0	3	0
	燃焼ガス		×	○	○
	基材フィルムとの密着性		100 /100	5 /100	100 /100
	分散性		○	○	×
	耐水試験前の密着性		100 /100	100 /100	100 /100
	耐水試験後の密着性		100 /100	100 /100	30 /100

1) タイエンS：ポリリン酸アンモニウム（太平化学（株）製）

【手続補正14】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0110

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0110】

#### 参考例23

ポリエステル樹脂（A）をメチルエチルケトン／トルエン＝50／50重量比に溶解した樹脂溶液70固形部とポリリン酸メラミン（太平化学（株）製）30固形部をガラスビーズ型高速振とう機で5時間分散し難燃性分散溶液が得られた。得られた難燃性分散溶液は良好な分散性を示した。試験結果を表18に示した。

【手続補正15】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0114

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0114】

以下、表18～23に示す組成により同様にして、参考例24～44、比較例10～15の難燃性接着性フィルムを作成した。得られた難燃性接着性フィルムの試験結果を表18～23に示す。ただし、配合比は固形分換算で表示した。

【手続補正16】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0115

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 1 1 5 】

【 表 1 8 】

			参 考 例							
			2 3	2 4	2 5	2 6	2 7	2 8	2 9	3 0
配合・固形部	有機樹脂 Y	ポリエステル樹脂及び変性ポリエステル樹脂 (A)	A 7 0	B 5 0	B 5 0	C 4 0	D 7 0	B 2 0	C 7 0	D 2 5
		エピコート#1 0 0 4 5)						5		5
		サイメル2 5 4 6)			1 0					
		コロネートHX 7)				5	1 0	5	1 0	1 0
	触媒	p-ートルエンルスルホン酸			0. 1					
		ジブチルチンジラケート				0. 1	0. 5	0. 5	0. 5	0. 5
	難燃剤 X	リン酸メラミン 1)	3 0							
		PMP-1 0 0 2)		5 0			2 0	7 0	2 0	6 0
		PMP-2 0 0 3)			4 0					
		PMP-3 0 0 4)				5 5				
膜厚	難燃性中間層 μm	6 0	3 0	3 0	3 0	4 0	2 0	5 0	2 5	
	接着層 μm	1 0 0	1 0 0	8 0	8 0	8 0	8 0	8 0	8 0	
物性	難燃性 VTM-		0	0	0	0	0	0	0	
	燃焼ガス		○	○	○	○	○	○	○	
	基材フィルムとの密着性		100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	
	分散性		○	○	○	○	○~△	○	○	○~△
	耐水性		○	○	○	○	○	○	○	○
	成形材料との密着性		100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100

【 手 続 補 正 1 7 】

【 補 正 対 象 書 類 名 】 明 細 書

【 補 正 対 象 項 目 名 】 0 1 1 6

【 補 正 方 法 】 変 更

【 補 正 の 内 容 】

【 0 1 1 6 】

【表 19】

			参 考 例			
			3 1	3 2	3 3	3 4
配 合 ・ 固 形 部	有 機 樹 脂 Y	ポリエステル樹脂及び 変性ポリエステル樹脂 (A)	E 6 5	F 5 0	G 4 0	H 4 0
		エピコート#1004 5)			1 0	
		サイメル254 6)				
		コロネートHX 7)				1 0
	難 燃 剤	リン酸メラミン 1)	3 5		3 0	
		PMP-100 2)		5 0		
		PMP-200 3)			2 0	
		PMP-300 4)				5 0
	触 媒	p-tertブチルカルボン酸				
		ジブチルチンジラウレート				0. 1
膜 厚	難燃性中間層 $\mu\text{m}$		8 0	4 0	4 0	5 0
	接着層 $\mu\text{m}$		5 0	4 0	8 0	4 0
物 性	難燃性 VTM-		0	0	0	0
	燃焼ガス		○	○	○	○
	基材フィルムとの密着性		100 /100	100 /100	100 /100	100 /100
	分散性		○	○	○	○
	耐水性		○	○	○	○
	成形材料との密着性		100 /100	100 /100	100 /100	100 /100

【手続補正 18】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0118

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0118】

【表 2 1】

			参 考 例				
			3 5	3 6	3 7	3 8	3 9
配合・固形部	有機樹脂 Y	ポリエステル樹脂及び変性 ポリエステル樹脂 (A)	I 7 0	J 5 0	J 5 0	J 4 5	K 7 0
		サイメル 2 5 4      6)			1 0		
		コロネート HX      7)				5	
	触媒	p-tert-ブチルフェノール			0. 1		
		ジブチルチンジラレート				0. 1	
	難燃剤 X	リン酸メラミン      1)	3 0				3 0
		PMP-1 0 0      2)		5 0			
		PMP-2 0 0      3)			4 0		
		PMP-3 0 0      4)				5 0	
膜厚	難燃性中間層 $\mu\text{m}$		5 0	3 0	3 0	3 0	5 0
	接着層 $\mu\text{m}$		1 0 0	1 0 0	8 0	8 0	5 0
物性	難燃性    VTM-		0	0	0	0	0
	燃焼ガス		○	○	○	○	○
	基材フィルムとの密着性		100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100
	分散性		△	△	△	△	△
	耐水性		○	○	○	○	○
	成形材料との密着性		100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100

【手続補正 1 9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 1 1 9

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 1 1 9】

【表 2 2】

			参 考 例				
			4 0	4 1	4 2	4 3	4 4
配合・固形部	機樹脂 Y	ポリエステル樹脂及び変性 ポリエステル樹脂 (A)	L 8 0	M 5 0	N 5 0	O 5 0	
		パラロイド B-44 9)					7 0
		エビコート#1004 5)			2 0		
		サイメル254 6)					
		コロネートHX 7)				1 0	
	難燃剤	リン酸メラミン 1)	2 0				
		PMP-100 2)		5 0			3 0
		PMP-200 3)			3 0		
		PMP-300 4)				4 0	
	触媒	p-トルエン硫酸					
		ジブチルチンジラレート				0. 1	
	膜厚	難燃性中間層 $\mu\text{m}$	8 0	5 0	5 0	5 0	5 0
		接着層 $\mu\text{m}$	5 0	5 0	5 0	5 0	5 0
物性	難燃性 VTM-		0	0	0	0	0
	燃焼ガス		○	○	○	○	○
	基材フィルムとの密着性		100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	50 /100
	耐水性		○	○	○	○	○
	成形材料との密着性		100 /100	100 /100	100 /100	100 /100	100 /100

## 【手続補正 2 0】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 1 2 2

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 1 2 2】

【発明の効果】本発明は、特定の構造を含むノンハロゲン系難燃剤（X）を有機樹脂（Y）に分散させた組成物であり、この難燃剤分散体を塗布又は積層することにより難燃性、発煙抑制効果に優れ、基材成形体又は基材フィルムとの密着性が良好な難燃性樹脂組成物を提供できる。また、耐水性にも優れ、長期の使用によっても剥離等が生じにくい。また、有機樹脂にイオン性基を導入することにより、卓越した分散性を与えることができ、難燃性、密着性、耐水性等の諸特性をさらに大きく向上させることができる。本発明の難燃性樹脂組成物を塗布又は積層することにより、安価で優れた難燃性積層体を提供するもので家電製品等の分野における高い要求品質に答えることができる。