(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号
特許第3609033号
(P3609033)
(45)発行日　平成17年1月12日(2005.1.12)　(24)登録日　平成16年10月22日(2004.10.22)

(51)Int.Cl.[7]	F I
C08L 71/12	C08L 71/12
C08K 3/00	C08K 3/00
//(C08L 71/12	C08L 71/12
C08L 67:00)	C08L 67:00

請求項の数 4　(全 13 頁)

(21)出願番号　特願2001-64678(P2001-64678)
(22)出願日　平成13年3月8日(2001.3.8)
(65)公開番号　特開2002-265776(P2002-265776A)
(43)公開日　平成14年9月18日(2002.9.18)
審査請求日　平成14年10月9日(2002.10.9)

前置審査

(73)特許権者　303046314
旭化成ケミカルズ株式会社
東京都千代田区有楽町一丁目１番２号
(74)代理人　100116713
弁理士　酒井　正己
(74)代理人　100094709
弁理士　加々美　紀雄
(74)代理人　100117145
弁理士　小松　純
(72)発明者　加茂　弘
千葉県袖ヶ浦市中袖５番地１　旭化成株式会社内

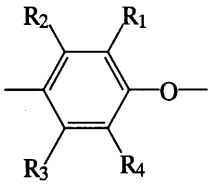
審査官　中川　淳子

最終頁に続く

(54)【発明の名称】樹脂組成物

(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
（Ａ）ポリフェニレンエーテル系樹脂８０～９９重量部および（Ｂ）液晶ポリエステル１～２０重量部、からなる樹脂組成物であって、樹脂組成物中のポリフェニレンエーテル系樹脂が、２０，０００以下の分子量のポリマーを５～３０重量％含有し、かつ分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が１．８～２．５６であることを特徴とする樹脂組成物。
【請求項２】
前記２０，０００以下の分子量のポリマーの含有割合が１０～２５重量％であることを特徴とする請求項１記載の樹脂組成物。
【請求項３】
（Ａ）ポリフェニレンエーテル系樹脂９３～９９重量部および（Ｂ）液晶ポリエステル１～７重量部であることを特徴とする請求項１または２記載の樹脂組成物。
【請求項４】
（Ａ）と（Ｂ）の合計１００重量部に対して、（Ｃ）無機充填剤が０．１～２００重量部添加されていることを特徴とする請求項１～３のいずれかに記載の樹脂組成物。
【発明の詳細な説明】
【０００１】
【発明の属する技術分野】
本発明は、耐衝撃性、耐薬品性、流動性、耐熱性および難燃性が同時に高いレベルで達成でき、特に耐衝撃性、耐薬品性および流動性に優れたポリフェニレンエーテル系樹脂組成

物に関するものである。
【０００２】
【従来の技術】
一般に、ポリフェニレンエーテルは耐熱性、耐熱水性、寸法安定性および機械的、電気的性質などの優れた性質を有する樹脂であるが、一方、その溶融粘度が高いために成形性が悪い、また耐薬品性が悪い、耐衝撃性が低い等の欠点を有している。ポリフェニレンエーテルのこのような欠点を改良するためポリフェニレンエーテルと他の樹脂とのアロイ化、あるいはポリフェニレンエーテルの変性が従来から行われてきた。
【０００３】
ポリフェニレンエーテルにポリスチレンをアロイして流動性を改良することが広く知られているが、耐熱性、耐薬品性が低下するなどの問題があった。ポリフェニレンエーテルと他の樹脂とのアロイ化に関連する技術として、例えば特開昭５６－１１５３５７号公報に、ポリフェニレンエーテルなどの重合体に液晶ポリエステルを配合し、ポリフェニレンエーテルの溶融加工性を改良することが提案されているが、耐衝撃性、耐薬品性、流動性の観点において、十分なものではなかった。また特開平２－９７５５５号公報には、はんだ耐熱性を向上させる目的で液晶ポリエステルに各種のポリアリレンオキサイドを配合することが提案され、さらには特開平６－１２２７６２号公報には、アミン類で変性したポリフェニレンエーテルと液晶ポリエステルを配合することが提案されているが、いずれも耐衝撃性、耐薬品性、流動性、耐熱性、難燃性バランスにおいて十分なものではなかった。
【０００４】
【発明が解決しようとする課題】
耐衝撃性、耐薬品性、流動性、耐熱性および難燃性が同時に高いレベルで達成でき、特に耐衝撃性、耐薬品性および流動性に優れたポリフェニレンエーテル系樹脂組成物を提供することである。
【０００５】
【課題を解決するための手段】
本発明者は上記課題を達成する技術を鋭意検討した結果、特定の分子量分布を有し、かつ特定の分子量成分を有するポリフェニレンエーテル系樹脂と液晶ポリエステルを特定の比率にて配合することにより、耐衝撃性、耐薬品性、流動性、耐熱性および難燃性が同時に高いレベルで達成でき、特に耐衝撃性、耐薬品性および流動性に優れる樹脂組成物が得られることを見いだし、本発明を完成するに至った。
【０００６】
すなわち本発明は、
１．（Ａ）ポリフェニレンエーテル系樹脂８０～９９重量部および（Ｂ）液晶ポリエステル１～２０重量部、からなる樹脂組成物であって、樹脂組成物中のポリフェニレンエーテル系樹脂が、２０，０００以下の分子量のポリマーを５～３０重量％含有し、かつ分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が１．８～２．５６であることを特徴とする樹脂組成物、
２．前記２０，０００以下の分子量のポリマーの含有割合が１０～２５重量％であることを特徴とする上記１記載の樹脂組成物、
３．（Ａ）ポリフェニレンエーテル系樹脂９３～９９重量部および（Ｂ）液晶ポリエステル１～７重量部であることを特徴とする請求項１または２記載の樹脂組成物、
４．（Ａ）と（Ｂ）の合計１００重量部に対して、（Ｃ）無機充填剤が０．１～２００重量部添加されていることを特徴とする上記１～３のいずれかに記載の樹脂組成物、
を提供するものである。
【０００７】
【発明の実施の形態】
以下、本願発明について具体的に説明する。
本発明の（Ａ）ポリフェニレンエーテル系樹脂とは、（式１）の繰り返し単位構造
【０００８】
【化１】



…（式１）

【０００９】
（R_1、R_4は、それぞれ独立して、水素、第一級もしくは第二級の低級アルキル、フェニル、アミノアルキルまたは炭化水素オキシを表す。R_2、R_3は、それぞれ独立して、水素、第一級もしくは第二級の低級アルキルまたはフェニルを表す。）
からなり、還元粘度（０．５ｇ／ｄｌ、クロロホルム溶液、３０℃測定）が、０．１５～１．０ｄｌ／ｇの範囲にあるホモ重合体及び／または共重合体である。さらに好ましい還元粘度は、０．２０～０．７０ｄｌ／ｇの範囲、最も好ましくは０．４０～０．６０の範囲である。
【００１０】
具体例としては、ポリ（２，６－ジメチル－１，４－フェニレンエーテル）、ポリ（２－メチル－６－エチル－１，４－フェニレンエーテル）、ポリ（２－メチル－６－フェニル－１，４－フェニレンエーテル）、ポリ（２，６－ジクロロ－１，４－フェニレンエーテル）等が挙げられ、さらに、２，６－ジメチルフェノールと他のフェノール類（例えば、２，３，６－トリメチルフェノールや２－メチル－６－ブチルフェノール）との共重合体のようなポリフェニレンエーテル共重合体も挙げられる。中でもポリ（２，６－ジメチル－１，４－フェニレンエーテル）、２，６－ジメチルフェノールと２，３，６－トリメチルフェノールとの共重合体が好ましく、さらにポリ（２，６－ジメチル－１，４－フェニレンエーテル）が好ましい。
【００１１】
本発明で使用する（Ａ）ポリフェニレンエーテルの製造方法の例として、米国特許第３３０６８７４号明細書記載の第一銅塩とアミンのコンプレックスを触媒として用い、２，６－キシレノールを酸化重合する方法がある。米国特許第３３０６８７５号、同第３２５７３５７号および同第３２５７３５８号の明細書、特公昭５２－１７８８０号および特開昭５０－５１１９７号および同６３－１５２６２８号の各公報等に記載された方法も（Ａ）ポリフェニレンエーテルの製造方法として好ましい。
【００１２】
本発明の（Ａ）ポリフェニレンエーテル系樹脂は、重合行程後のパウダーのまま用いてもよいし、押出機などを用いて、窒素ガス雰囲気下あるいは非窒素ガス雰囲気下、脱揮下あるいは非脱揮下にて溶融混練することでペレット化して用いてもよい。
本発明の（Ａ）ポリフェニレンエーテル系樹脂は、種々のジエノフィル化合物により官能化されたポリフェニレンエーテルも含まれる。ジエノフィル化合物としては例えば無水マレイン酸、マレイン酸、フマル酸、フェニルマレイミド、イタコン酸、アクリル酸、メタクリル酸、メチルアリレート、メチルメタクリレート、グリシジルアクリレート、グリシジルメタクリレート、ステアリルアクリレート、スチレンなどの化合物が挙げられる。さらにこれらジエノフィル化合物により官能化する方法としては、ラジカル発生剤存在下あるいは非存在下で押出機などを用い、脱揮下あるいは非脱揮下にて溶融状態で官能化する方法、あるいはラジカル発生剤存在下あるいは非存在下で、ポリフェニレンエーテルが非溶融状態で官能化する方法等が挙げられる。
【００１３】
本発明の（Ａ）ポリフェニレンエーテル系樹脂には、ポリフェニレンエーテル樹脂単独又はポリフェニレンエーテル樹脂と芳香族ビニル系重合体との混合物であり、さらに他の樹脂が混合されたものも含まれる。芳香族ビニル系重合体とは、例えば、アタクティックポリスチレン、シンジオタクティックポリスチレン、ハイインパクトポリスチレン、アクリ

ロニトリル－スチレン共重合体などが挙げられる。ポリフェニレンエーテル樹脂と芳香族ビニル系重合体との混合物を用いる場合は、ポリフェニレンエーテル樹脂と芳香族ビニル系重合体との合計量に対して、ポリフェニレンエーテル樹脂が７０ｗｔ％以上、好ましくは８０ｗｔ％以上、さらに好ましくは９０ｗｔ％以上である。

【００１４】

本発明に用いるポリフェニレンエーテル系樹脂の数平均分子量（Ｍｎ）、重量平均分子量（Ｍｗ）および分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は以下の方法で求めることができる。東洋曹達（株）製ゲルパーミェーションクロマトグラフィーＨＬ－８０２ＲＴＳで標準ポリスチレンを用いて検量線を作成し測定する。標準ポリスチレンの分子量は２６４、３６４、４６６、５６８、２８００、１６７００、１８６０００、１２６００００のものを用いる。カラムは東洋曹達（株）製ＴＳＫｇｅｌＧ２５００ＨＸＬ、ＴＳＫｇｅｌＧ３０００ＨＸＬ、ＴＳＫｇｅｌＧ４０００ＨＸＬ、ＴＳＫｇｅｌＧ５０００ＨＸＬを直列につないで使用する。また、溶媒はクロロホルム、溶媒の流量は０．９ｍｌ／ｍｉｎ、カラムの温度は４０℃で測定する。検出部のＵＶの波長は標準ポリスチレンが２５４ｎｍ、ポリフェニレンエーテル系樹脂が２８３ｎｍで測定する。

【００１５】

本発明の樹脂組成物におけるポリフェニレンエーテル系樹脂は、樹脂組成物よりなるペレットあるいは成形品を室温にてクロロホルムに溶解させ、濾過することで不溶分を取り除き、可溶分を大量のメタノール中に再沈殿させ、さらにメタノールにて洗浄後、減圧乾燥することにより得ることもできる。

本発明のポリフェニレンエーテル系樹脂の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、１．８～２．５６であり、好ましくは２．０～２．５６であり、さらに好ましくは２．２～２．５６である。１．８未満の場合は流動性が低下し、３．５を越えると耐衝撃性と耐薬品性が低下し好ましくない。

【００１６】

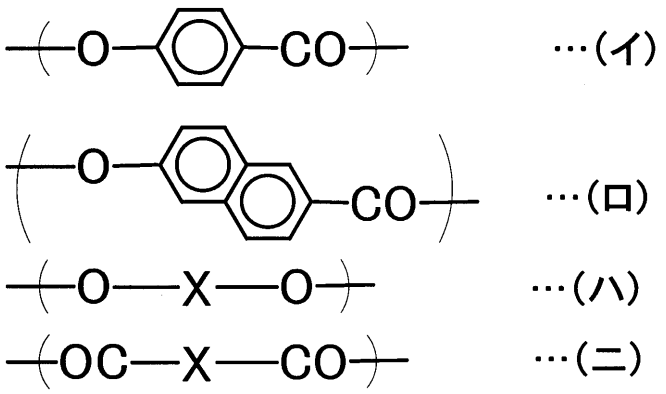
また本発明のポリフェニレンエーテル系樹脂は、２０，０００以下の分子量のポリマーを５～３０重量％、好ましくは１０～２５重量％、より好ましくは１２～２４重量％含有する。これらの範囲内にあることで、耐衝撃性、耐薬品性と流動性という相反する特性を同時に高いレベルで達成できる。含有量が５重量％未満の場合は大幅に流動性が低下し、３０重量％を超えると耐衝撃性と耐薬品性が低下し好ましくない。

【００１７】

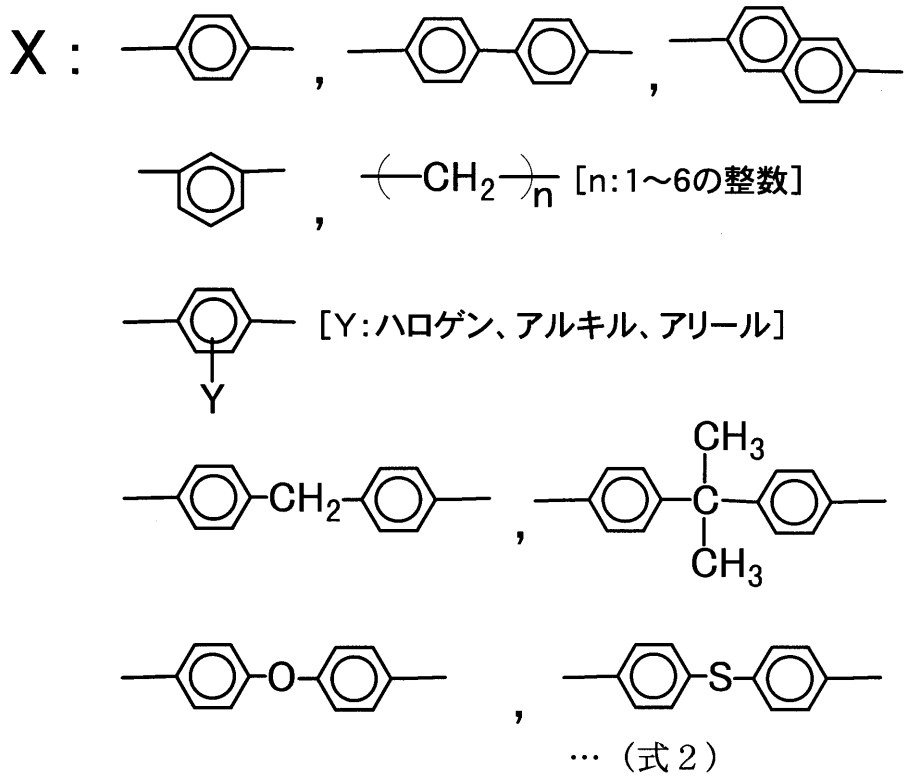
本発明の（Ｂ）液晶ポリエステルはサーモトロピック液晶ポリマーと呼ばれるポリエステルで、公知のものを使用できる。例えば、ｐ－ヒドロキシ安息香酸およびポリエチレンテレフタレートを主構成単位とするサーモトロピック液晶ポリエステル、ｐ－ヒドロキシ安息香酸および２－ヒドロキシ－６－ナフトエ酸を主構成単位とするサーモトロピック液晶ポリエステル、ｐ－ヒドロキシ安息香酸および４，４′－ジヒドロキシビフェニルならびにテレフタル酸を主構成単位とするサーモトロピック液晶ポリエステルなどが挙げられ、特に制限はない。本発明で使用される（Ｂ）液晶ポリエステルとしては、下記構造単位（イ）、（ロ）、および必要に応じて（ハ）および／または（ニ）からなるものが好ましく用いられる。

【００１８】

【化２】



【００１９】
ここで、構造単位（イ）、（ロ）はそれぞれ、ｐ－ヒドロキシ安息香酸から生成したポリエステルの構造単位と、２－ヒドロキシ－６－ナフトエ酸から生成した構造単位である。構造単位（イ）、（ロ）を使用することで、優れた耐熱性、流動性や剛性などの機械的特性のバランスに優れた本発明の熱可塑性樹脂組成物を得ることができる。上記構造単位（ハ）、（ニ）中のＸは、下記（式２）よりそれぞれ任意に１種あるいは２種以上選択することができる。
【００２０】
【化３】



…（式２）

【００２１】
構造式（ハ）において好ましいのは、エチレングリコール、ハイドロキノン、４，４′－ジヒドロキシビフェニル、２，６－ジヒドロキシナフタレン、ビスフェノールＡそれぞれから生成した構造単位であり、さらに好ましいのは、エチレングリコール、４，４′－ジヒドロキシビフェニル、ハイドロキノンであり、特に好ましいのは、エチレングリコール、４，４′－ジヒドロキシビフェニルである。構造式（ニ）において好ましいのは、テレフタル酸、イソフタル酸、２，６－ジカルボキシナフタレンそれぞれから生成した構造単

位であり、さらに好ましいのは、テレフタル酸、イソフタル酸である。

【００２２】

構造式（ハ）および構造式（ニ）は、上記に挙げた構造単位を少なくとも１種あるいは２種以上を併用することができる。具体的には、２種以上併用する場合、構造式（ハ）においては、１）エチレングリコールから生成した構造単位／ハイドロキノンから生成した構造単位、２）エチレングリコールから生成した構造単位／４，４′－ジヒドロキシビフェニルから生成した構造単位、３）ハイドロキノンから生成した構造単位／４，４′－ジヒドロキシビフェニルから生成した構造単位、などを挙げることができる。

【００２３】

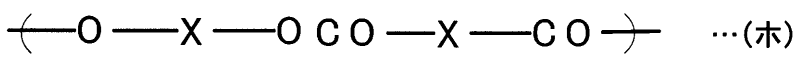
また、構造式（ニ）においては、１）テレフタル酸から生成した構造単位／イソフタル酸から生成した構造単位、２）テレフタル酸から生成した構造単位／２，６－ジカルボキシナフタレンから生成した構造単位、などを挙げることができる。ここでテレフタル酸量は２成分中、好ましくは４０ｗｔ％以上、さらに好ましくは６０ｗｔ％以上、特に好ましくは８０ｗｔ％以上である。テレフタル酸量を２成分中４０ｗｔ％以上とすることで、比較的に流動性、耐熱性が良好な樹脂組成物となる。液晶ポリエステル（Ｂ）成分中の構造単位（イ）、（ロ）、（ハ）、（ニ）の使用分割は特に限定されない。ただし、構造単位（ハ）と（ニ）は基本的にほぼ等モル量となる。

【００２４】

また、構造単位（ハ）、（ニ）からなる構造単位（ホ）を、（Ｂ）成分中の構造単位として使用することもできる。具体的には、１）エチレングリコールとテレフタル酸から生成した構造単位、２）ハイドロキノンとテレフタル酸から生成した構造単位、３）４，４′－ジヒドロキシビフェニルとテレフタル酸から生成した構造単位、４）４，４′－ジヒドロキシビフェニルとイソフタル酸から生成した構造単位、５）ビスフェノールＡとテレフタル酸から生成した構造単位、などを挙げることができる。

【００２５】

【化４】



…(ホ)

【００２６】

本発明の（Ｂ）液晶ポリエステル成分には、必要に応じて本発明の特徴と効果を損なわない程度の少量の範囲で、他の芳香族ジカルボン酸、芳香族ジオール、芳香族ヒドロキシカルボン酸から生成する構造単位を導入することができる。本発明の（Ｂ）成分の溶融時での液晶状態を示し始める温度（以下、液晶開始温度という）は、好ましくは１５０～３５０℃、さらに好ましくは１８０～３２０℃である。液晶開始温度をこの範囲にすることは、得られる樹脂組成物を好ましい色調と耐熱性と成形加工性バランスの良いものとする。

【００２７】

本発明の（Ｂ）液晶ポリエステル成分の２５℃、１ＭＨｚにおける誘電正接（ｔａｎδ）は、好ましくは０．０３以下であり、さらに好ましくは０．０２５以下である。この誘電正接の値が小さければ小さいほど、誘電損失は小さくなり、この樹脂組成物を電気・電子部品の原料として用いる時、発生する電気的ノイズが抑制され好ましい。特に２５℃、高周波数領域下、すなわち１～１０ＧＨｚ領域において、誘電正接（ｔａｎδ）は、好ましくは０．０３以下であり、さらに好ましくは０．０２５以下である。

【００２８】

本発明の（Ｂ）液晶ポリエステル成分の見かけの溶融粘度（液晶開始温度＋３０℃でずり速度１００／秒）は、好ましくは１０～３，０００Ｐａ・ｓ、さらに好ましくは１０～２，０００Ｐａ・ｓ、特に好ましくは１０～１，０００Ｐａ・ｓである。見かけの溶融粘度をこの範囲にすることは、得られる組成物の流動性を好ましいものとする。本発明の（Ｂ）成分の溶融状態（液晶状態）における熱伝導率は、好ましくは０．１～２．０Ｗ／ｍＫ

、さらに好ましくは０．２～１．５Ｗ／ｍＫ、特に好ましくは０．３～１．０Ｗ／ｍＫである。溶融状態（液晶状態）での熱伝導率をこの範囲にすることで、得られる組成物の射出成形サイクルを比較的短縮化することができる。

【００２９】

本発明における（Ａ）ポリフェニレンエーテル系樹脂の配合量は、８０～９９重量部で、好ましくは８０～９５重量部である。この配合量が９９重量部より多いと、流動性が大きく低下してしまう。この配合量が８０重量部より少ないと、耐熱性の低下を招いたり、比重が大きくなってしまい好ましくない。本発明における（Ｂ）成分の液晶ポリエステルの配合量は、１～２０重量部で、好ましくは５～２０重量部である。この配合量が２０重量部より多いと、比重が大きくなってしまったり、コスト高を招く。この配合量が１重量部より少ないと、十分な流動性と耐衝撃性と耐薬品性が得られず好ましくない。

【００３０】

本発明における（Ｃ）無機充填剤とは、強度付与剤として、ガラス繊維、金属繊維、チタン酸カリウム、炭素繊維、炭化ケイ素、セラミック、窒化ケイ素、マイカ、ネフェリンシナイト、タルク、ウオラストナイト、スラグ繊維、フェライト、ガラスビーズ、ガラスパウダー、ガラスバルーン、石英、石英ガラスなどの無機化合物があげられる。中でも、流動性、耐熱性、機械特性、のバランスからガラス繊維、炭素繊維が好ましく用いられ、さらに好ましくはガラス繊維が用いられる。これら無機系の充填剤の形状は限定されるものではなく、繊維状、板状、球状などが任意に選択できる。また、これらの無機系の充填剤は、２種類以上併用することも可能である。また、必要に応じて、シラン系、チタン系などのカップリング剤で予備処理して使用することができる。

【００３１】

また（Ｃ）無機充填剤の配合量は、成分（Ａ）と成分（Ｂ）の合計１００重量部に対して、０．１～２００重量部、好ましくは１～１００重量部、さらに好ましくは２～２０重量部である。この配合量が０．１より少ないと、十分な剛性と耐熱性と耐衝撃性が得られにくい。また２００重量部より多いと、十分な流動性が得られにくい。

本発明では、上記の成分の他に、本発明の特徴および効果を損なわない範囲で必要に応じて他の附加的成分、例えば、酸化防止剤、難燃剤（有機リン酸エステル系化合物、シリコン化合物、フォスファゼン化合物、籠状シルセスキオキサン化合物等）、エラストマー、可塑剤（オイル、低分子量ポリエチレン、エポキシ化大豆油、ポリエチレングリコール、脂肪酸エステル類等）、難燃助剤、耐候（光）性改良剤、ポリオレフィン用造核剤、スリップ剤、各種着色剤、離型剤等を添加してもかまわない。

【００３２】

本発明の樹脂組成物は種々の方法で製造することができる。例えば、単軸押出機、二軸押出機、ロール、ニーダー、ブラベンダープラストグラフ、バンバリーミキサー等による加熱溶融混練方法が挙げられるが、中でも二軸押出機を用いた溶融混練方法が最も好ましい。この際の溶融混練温度は特に限定されるものではないが、通常１５０～３５０℃の中から任意に選ぶことができる。

このようにして得られる本発明の樹脂組成物は、従来より公知の種々の方法、例えば、射出成形、押出成形、中空成形により各種部品の成形体として成形できる。

【００３３】

これら成形体は、特に難燃性が要求される用途、例えば、自動車用耐熱部品あるいは事務機器用耐熱部品に好適である。自動車用耐熱部品は例えば、オルタネーターターミナル、オルタネーターコネクター、ＩＣレギュレーター、ライトディヤー用ポテンショメーターベース、排気ガスバルブなどの各種バルブ、燃料関係・排気系・吸気系各種パイプ、エアーインテークノズルスノーケル、インテークマニホールド、燃料ポンプ、エンジン冷却水ジョイント、キャブレターメインボディー、キャブレタースペーサー、排気ガスセンサー、冷却水センサー、油温センサー、ブレーキパットウェアーセンサー、スロットルポジションセンサー、クランクシャフトポジションセンサー、エアーフローメーター、ブレーキバット磨耗センサー、エアコン用サーモスタットベース、暖房温風フローコントロールバ

ルブ、ラジエーターモーター用ブラッシュホルダー、ウォーターポンプインペラー、タービンベイン、ワイパーモーター関係部品、デュストリビュター、スタータースィッチ、スターターリレー、トランスミッション用ワイヤーハーネス、ウィンドウウォッシャーノズル、エアコンパネルスィッチ基板、燃料関係電磁気弁用コイル、ヒューズ用コネクター、ホーンターミナル、電装部品絶縁板、ステップモーターローター、ブレーキピストン、ソレノイドボビン、エンジンオイルフィルター、点火装置ケースなどの部品、ホイールキャップ、ランプソケット、ランプハウジング、ランプエクステンション、ランプリフレクターなどが好適である。中でも軽量性、耐熱性、難燃性、機械特性のバランスからランプエクステンション、ランプリフレクターが好適である。

【００３４】

また、事務機器用耐熱部品は、例えば、エアコン部品、タイプライター部品、ワードプロセッサー部品などに代表される家庭、事務電気製品部品、オフィスコンピューター関連部品、電話機関連部品、ファクシミリ関連部品、複写機関連部品などに好適である。

本発明を以下、実施例に基づいて説明する。但し本発明はその主旨を越えない限り以下の実施例に限定されるものではない。

【００３５】

（実施例で用いる成分）

１．ポリフェニレンエーテル

ＰＰＥ－１：２，６－ジメチルフェノールを酸化重合して得た還元粘度０．４２のポリ（２，６－ジメチル－１，４－フェニレンエーテル）。Ｍｗ＝３４，６００、Ｍｗ／Ｍｎ＝１．９０

ＰＰＥ－２：還元粘度０．４６、Ｍｗ＝４０，７００、Ｍｗ／Ｍｎ＝２．４２

ＰＰＥ－３：還元粘度０．５２、Ｍｗ＝５１，９００、Ｍｗ／Ｍｎ＝１．９５

ＰＰＥ－４：還元粘度０．５１、Ｍｗ＝４８，０００、Ｍｗ／Ｍｎ＝２．７９

ＰＰＥ－５：還元粘度０．５５、Ｍｗ＝５８，２００、Ｍｗ／Ｍｎ＝３．３１

ＰＰＥ－６：還元粘度０．５７、Ｍｗ＝５７，９００、Ｍｗ／Ｍｎ＝１．８８

ＰＰＥ－７：還元粘度０．３９、Ｍｗ＝４３，０００、Ｍｗ／Ｍｎ＝２．８７

ＰＰＥ－８：還元粘度０．３７、Ｍｗ＝４１，６００、Ｍｗ／Ｍｎ＝３．４１

【００３６】

（分子量測定条件）

ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（以下ＧＰＣという）：東洋曹達（株）製ゲルパーミェーションクロマトグラフィーＨＬ－８０２ＲＴＳで標準ポリスチレンを用いて検量線を作成し測定した。標準ポリスチレンの分子量は２６４、３６４、４６６、５６８、２８００、１６７００、１８６０００、１２６００００のものを用いた。カラムは東洋曹達（株）製ＴＳＫｇｅｌＧ２５００ＨＸＬ、ＴＳＫｇｅｌＧ３０００ＨＸＬ、ＴＳＫｇｅｌＧ４０００ＨＸＬ、ＴＳＫｇｅｌＧ５０００ＨＸＬを直列につないで使用した。また、溶媒はクロロホルム、溶媒の流量は０．９ｍｌ／ｍｉｎ、カラムの温度は４０℃で測定した。検出部のＵＶの波長は標準ポリスチレンが２５４ｎｍ、ポリフェニレンエーテル系樹脂が２８３ｎｍで測定した。

【００３７】

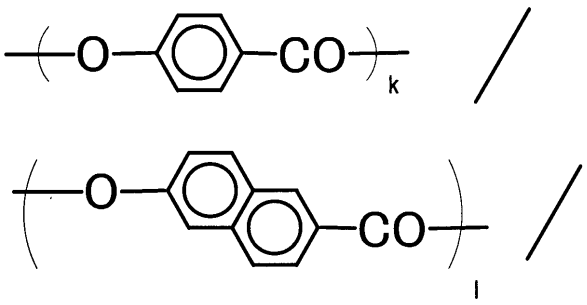
液晶ポリエステル

ＬＣＰ－１：窒素雰囲気下において、ｐ－ヒドロキシ安息香酸、２－ヒドロキシ－６－ナフトエ酸、無水酢酸を仕込み、加熱溶融し、重縮合することにより、以下の理論構造式を有する液晶ポリエステルを得た。

なお、組成の成分比はモル比を表す。

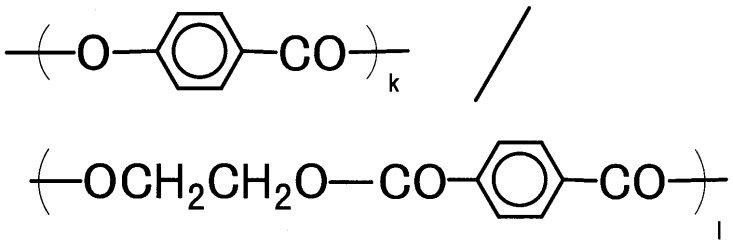
【００３８】

【化５】



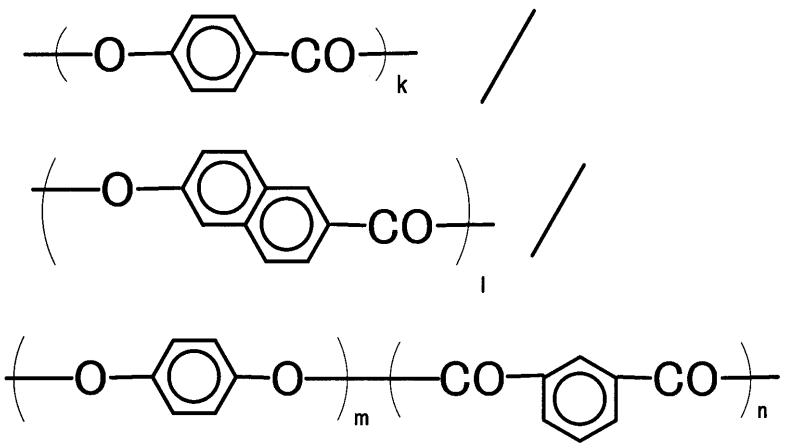
k/l＝0.73/0.27

【００３９】
ＬＣＰ－２：窒素雰囲気下において、ｐ－ヒドロキシ安息香酸、ポリエチレンテレフタレート、無水酢酸を仕込み、加熱溶融し、重縮合することにより、以下の理論構造式を有する液晶ポリエステルを得た。
なお組成の成分比はモル比を表す。
【００４０】
【化６】



k/l＝0.82/0.18

【００４１】
ＬＣＰ－３：窒素雰囲気下において、ｐ－ヒドロキシ安息香酸、２－ヒドロキシ－６－ナフトエ酸、ハイドロキノン、イソフタル酸、無水酢酸を仕込み、加熱溶融し、重縮合することにより、以下の理論構造式を有する液晶ポリエステルを得た。
なお組成の成分比はモル比を表す。
【００４２】
【化７】



k/l/m/n＝0.7/0.2/0.1/0.1

【００４３】
各樹脂組成物の成形と物性評価を、以下の方法に従って実施した。
（１）成形
得られたペレットを、シリンダー温度３３０／３３０／３２０／３１０℃、射速８５％、金型温度９０℃に設定した射出成形機［ＩＳ－８０ＥＰＮ：東芝機械（株）社製］を用いて成形を行った。ただし、比較例１と比較例３の厚さ１．６ｍｍのたんざく試験片については、最大射出ゲージ圧１３ＭＰａにしてもショートしたので、金型温度１４０℃に設定して成形を実施した。
（２）耐衝撃性
ＡＳＴＭ　Ｄ２５６に準拠した厚み３．２ｍｍの成形片に成形した。得られた成形片を用いて、ノッチなしアイゾット衝撃強さを測定した。「Ｉｚｏｄ」と略すことがある。
【００４４】
（３）耐薬品性
厚み３．２ｍｍのＡＳＴＭダンベル試験片を０．５％のひずみ下にて、イソプロパノール／シクロヘキサン（６０／４０重量％）混合溶液中に、２３℃で３０分間浸漬後、溶剤が十分に揮発した後に、以下の条件にて引張り試験を行い、引張り強度（TS_1）を得た。装置はオートグラフ（ＡＧ－５０００、島津製作所（株）社製）を用い、チャック間距離１１５ｍｍ、試験速度５ｍｍ／ｍｉｎで引張り試験を実施した。一方、溶剤に浸漬しなかったサンプルを同様に引張り試験を実施し、引張り強度（TS_0）を測定した。よって以下の式に従い、引張り保持率（％）を求めた。
引張り保持率（％）＝　TS_1／　TS_0×１００
この値が大きいほど、耐薬品性に優れることを意味する。
また溶剤に浸漬後、取り出した時点で試験片が破断したサンプルは表中、「×」と表した。
【００４５】
（４）流動性
得られたペレットを、上記（１）の成形条件にて、厚さ１．６ｍｍのＡＳＴＭタンザク試験片を成形するに際し、１ｍｍショートするときのゲージ圧力を測定した。この圧力をＳＳＰ（ＭＰａ）（「Ｓｈｏｒｔ　Ｓｈｏｔ　Ｐｒｅｓｓｕｒｅ」を略した。）とし、この値が小さいほど流動性に優れる。
（５）耐熱性（ＤＴＵＬ）
厚み３．２ｍｍ×長さ１２７ｍｍ×幅１２．７ｍｍのＡＳＴＭタンザク試験片に成形した。得られた成形片を用いて、ＡＳＴＭ　Ｄ６４８に準拠し、１．８２ＭＰａ荷重下での荷重たわみ温度を測定した。
【００４６】
（６）難燃性
（平均燃焼時間）
厚み１．６ｍｍ×長さ１２７ｍｍ×幅１２．７ｍｍのＡＳＴＭタンザク試験片に成形し、Ｕｎｄｅｒｗｒｉｔｅｒｓ　ＬａｂｏｒａｔｏｒｉｅｓのＵＬ－９４垂直燃焼試験に基ずき、燃焼試験を実施した。５本の試験片について燃焼試験を実施し、１０秒間の接炎後、炎を離してから炎が消えるまでの燃焼時間をt_1（秒）とし、再び１０秒間の接炎後、炎を離してから炎が消えるまでの燃焼時間をt_2（秒）とし、各５本について、t_1とt_2の平均燃焼時間を求めた。
（滴下の有無）
上記燃焼試験時、各５本のt_1とt_2、すなわちあわせて１０点のうち、１点でも滴下があるか否かを判断した。
○：１０点とも滴下のなかったもの。
×：１点でも滴下のあったもの。
【００４７】
【実施例１】

ポリフェニレンエーテル（ＰＰＥ－１）と液晶ポリエステル（ＬＣＰ－１）を表１に示す割合（重量部）で、２５０～３１０℃に設定したベントポート付き二軸押出機（ＺＳＫ－２５；ＷＥＲＮＥＲ＆ＰＦＬＥＩＤＥＲＥＲ社製）を用いて溶融混練し、ペレットとして得た。ペレットの一部２ｇを１００ｍｌのクロロホルムに室温にて溶解させ、不溶物は濾過により取り除き、可溶分を大量のメタノール中に注ぐことにより、ポリマーを沈殿させた。ついでメタノールにて洗浄後、１４０℃で１時間減圧乾燥し、ポリマーを得た。そして、このポリマーの分子量分布をＧＰＣを用いて測定し、さらに２０，０００以下の分子量の重量分率を求め各々その結果を表１に示した。また、残ったペレットを用い、上に示した方法により、成形加工し、物性評価を実施した。その結果を表１に示した。

【００４８】

【実施例２～６】

各成分を表１に示す割合で配合し実施例１と同様の操作を行った。なお、表中ＨＩＰＳはハイインパクトポリスチレン（Ｈ９４０５、Ａ＆Ｍ社製）ＧＦはガラス繊維（マイクログラスＲＥＳ０３－ＴＰ３０、日本硝子繊維社製）である。

【００４９】

【比較例１～６】

各成分を表１に示す割合で配合し実施例１と同様の操作を行った。

【００５０】

【比較例７】

液晶ポリエステル（ＬＣＰ－１）を用いなかったこと以外は、実施例１と同様に行った。

【００５１】

		実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2	実施例4	実施例5	比較例3	実施例6	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7
組成	(A) PPE−1	95					90	93		90				100
	PPE−2		95											
	PPE−3			93						5				
	PPE−4				90									
	PPE−5					80			70					
	PPE−6										95			
	PPE−7											95		
	PPE−8												95	
	HIPS						5							
	(B) LCP−1	5	5	7	5			5		2.5	5	5	5	
	LCP−2				5	10			15	2.5				
	LCP−3					10	5		15					
	(C) GF					5		2	20					
	2万以下の分子量の重量分率(%)	16.6	19.1	10.1	21.7	25.4	16.7	16.4	23.3	16.5	4.2	31.1	34.8	15.5
	Mw／Mn	2.38	2.56	2.23	2.84	3.36	2.39	2.37	3.29	2.33	2.11	3.12	3.60	2.42
物性	耐衝撃性 Izod(J/m)	1580	1390	1720	1480	1250	1560	1450	1370	1640	1280	509	385	1540
	耐薬品性 引張り保持率(%)	95	88	100	85	91	90	98	95	95	98	×	×	73
	流動性 SSP(MPa)	9.6	10	6.8	5.0	7.8	9.2	8.2	4.9	7.4	>13	6.0	5.4	>13
	耐熱性 DTUL(℃)	185	184	183	182	185	181	186	188	182	185	184	183	185
	難燃性 平均燃焼時間(秒)	8.0	8.5	7.8	13.5	11.3	10.5	8.3	8.7	9.9	12.1	15.4	18.8	11.1
		V-1	V-1	V-1	V-1	V-1	V-1	V-1	V-1	V-1	V-1	V-1	V-2	V-1
	滴下の有無	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	×	○

【００５２】

【発明の効果】

本発明により、耐衝撃性、耐薬品性、流動性、耐熱性、難燃性が同時に高いレベルで達成でき、特に耐衝撃性、耐薬品性、流動性に優れたポリフェニレンエーテル系樹脂組成物を提供することが可能となった。

フロントページの続き

(56)参考文献 特開２０００－１５９９５７（ＪＰ，Ａ）
特開２０００－１５９９５８（ＪＰ，Ａ）
特開２０００－２２６４９３（ＪＰ，Ａ）
特開平０９－１３７０５６（ＪＰ，Ａ）
特開平０６－０５７１５９（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.[7]，ＤＢ名)
C08L 71/12
C08K 3/00-3/34
C08L 67/00-67/08