

(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
2013年7月25日(25.07.2013)



(10) 国際公開番号
WO 2013/108344 A1

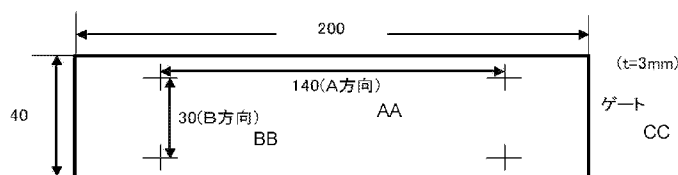
- (51) 国際特許分類:
C08L 77/06 (2006.01) C08L 71/12 (2006.01)
C08K 7/14 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/008164
- (22) 国際出願日: 2012年12月20日(20.12.2012)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2012-007596 2012年1月18日(18.01.2012) JP
特願 2012-118496 2012年5月24日(24.05.2012) JP
特願 2012-268975 2012年12月10日(10.12.2012) JP
- (71) 出願人: 宇部興産株式会社 (UBE INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒7558633 山口県宇部市大字小串1978番地の96 Yamaguchi (JP).
- (72) 発明者: 赤川 佳史 (AKAGAWA, Yoshifumi); 〒7558633 山口県宇部市大字小串1978番地の96宇部興産株式会社内 Yamaguchi (JP). 藪 直靖 (YABU, Naoyasu); 〒7558633 山口県宇部市大字小串1978番地の96宇部興産株式会社内 Yamaguchi (JP). 佐々木 亮輔 (SASAKI, Ryosuke); 〒7558633 山口県宇部市大字小串1978番地の96宇部興産株式会社内 Yamaguchi (JP). 児玉 齊 (KODAMA, Hitoshi); 〒7558633 山口県宇部市大
- (74) 代理人: 舛谷 威志 (MASUTANI, Tsuyoshi); 〒1110032 東京都台東区浅草1-42-4 パシフィックコート浅草 311号 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, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, 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, 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, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, 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, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, 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, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) Title: RESIN COMPOSITION, AND COMPOSITION CONTAINING POLYAMIDE RESIN AND GLASS FIBERS

(54) 発明の名称: 樹脂組成物及びポリアミド樹脂とガラス繊維とを含む組成物

[図1]



AA A direction
BB B direction
CC Gate

(57) Abstract: A first invention is a resin composition that contains a polyamide resin (A) and a poly(phenylene ether) resin. The polyamide resin (A) contains a unit derived from a dicarboxylic acid (a) and a unit derived from a diamine (b), the dicarboxylic acid (a) contains an oxalic acid compound, the diamine (b) contains two or more diamines selected from among the group consisting of 1,6-hexanediamine, 1,9-nonanediamine and 2-methyl-1,8-octanediamine, and the content of the poly(phenylene ether) resin is less than 60 mass % relative to the total quantity of the polyamide resin (A) and the poly(phenylene ether) resin. A second invention is a composition for a sliding component, and the composition contains a polyamide resin and glass fibers, and is characterized in that the polyamide resin contains a polyamide resin obtained by using an oxalic acid compound as a raw material.

(57) 要約:

[続葉有]



WO 2013/108344 A1



添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

第 1 の発明は、ポリアミド樹脂 (A) 及びポリフェニレンエーテル樹脂を含む樹脂組成物であり、前記ポリアミド樹脂 (A) が、ジカルボン酸 (a) 由来の単位及びジアミン (b) 由来の単位を含み、前記ジカルボン酸 (a) が、砒酸化合物を含み、前記ジアミン (b) が、1, 6-ヘキサレンジアミン、1, 9-ノナンジアミン及び 2-メチル-1, 8-オクタンジアミンからなる群より選択される 2 種以上のジアミンを含み、前記ポリフェニレンエーテル樹脂の含有量が、前記ポリアミド樹脂 (A) 及び前記ポリフェニレンエーテル樹脂の合計量に対し、60 質量%未満である樹脂組成物である。第 2 の発明は、ポリアミド樹脂及びガラス繊維を含む組成物であり、前記ポリアミド樹脂は、砒酸化合物を原料とするポリアミド樹脂を含むことを特徴とする摺動部品用の組成物である。

明 細 書

発明の名称：

樹脂組成物及びポリアミド樹脂とガラス繊維とを含む組成物

技術分野

[0001] 本発明は、ポリアミド樹脂及びポリフェニレンエーテル樹脂を含有する樹脂組成物に関する。本発明は、ポリアミド樹脂とガラス繊維とを含む組成物に関する。

背景技術

[0002] 従来から、ナイロン6及びナイロン66等に代表されるポリアミド樹脂は、優れた特性と溶融成形の容易さから、衣料用若しくは産業資材用繊維、又は汎用のエンジニアリングプラスチックとして広く用いられている。

[0003] 一方で、耐熱性不足や吸水による物性変化、酸、高温のアルコール又は熱水中での劣化などの問題点も指摘されており、より高い耐熱性、耐薬品性、耐熱水性を有し、かつ、より吸水性が低いポリアミド樹脂への要求が高まっている。

[0004] ジカルボン酸成分に蓚酸を用いるポリアミド樹脂はポリオキサミド樹脂と呼ばれ、同じアミノ基濃度の他のポリアミド樹脂と比較して融点が高いこと、吸水率が低いことが知られている（特許文献1）。

[0005] また、ポリフェニレンエーテルは、機械的性質や耐熱性が優れ、寸法安定性にも優れるため、幅広い用途で使用されている。

[0006] 他方、ポリアミド樹脂はエンジニアリングプラスチックとして優れた特性を示すことから、自動車部品、機械部品、電気電子部品に広く利用されている。ポリアミド樹脂は特に機械的特性や耐摩擦磨耗特性に優れているため、ギヤ、カム、軸受などの摺動部品の成形材料としても広く利用されている。

[0007] その中でもガラス繊維で強化されたポリアミド66は、特許文献2にも開示されているように、機械的特性や耐摩擦磨耗特性に優れているため、ギヤ、カム、軸受などの摺動部品の成形材料に使用され、一般的に、ガラス繊維

25～35質量%を含むポリアミド66が使用されている。

先行技術文献

特許文献

- [0008] 特許文献1：日本国特許第4487687号
特許文献2：WO/2006/054774
特許文献3：WO/2008/072754

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0009] ポリフェニレンエーテルは軟化点が高いために、溶融成形が困難である上に、成形温度を高くすると樹脂の分解が生ずる等の問題がある。そのため、スチレン系樹脂を配合して溶融成形を改善することが行われているが、得られる成形品の耐熱性や耐薬品性が低下し、ポリフェニレンエーテル系樹脂自体が有する本来の特性が損なわれやすいといった欠点がある。
- [0010] また、電気・電子用途に使用される部品には、従来のポリアミド樹脂はもとより、低吸水であるポリオキサミド樹脂より低い吸水性の樹脂が求められ、加えて、優れた電気特性や耐熱性を有する樹脂が求められている。
- [0011] 本発明が解決しようとする第1の課題は、吸水性が低く、耐熱性や電気特性に優れた樹脂組成物を提供することである。
- [0012] 一般的に使用されているガラス繊維を含むポリアミド66では、実使用時の寸法変化、摩擦係数や磨耗量が大きく、摺動部品に用いるには、十分でない場合があった。特に、電動パワーステアリングに用いられるギアは、実使用時の寸法変化が大きいと、バックラッシ（隙間）を調整する為の装置が必要になってくる。一般的に使用されているガラス繊維25～35質量%を含むポリアミド66の場合、その装置が、通常、必要になる。
- 尚、実使用時とは、温度 $23\text{℃}\pm 2\text{℃}$ 及び相対湿度 $50\%\pm 10\%$ の雰囲気下に、500時間以上、置いた状態を指す。
- [0013] 本発明が解決しようとする第2の課題は、一般的に使用されているガラス

繊維 25～35 質量%を含むポリアミド 66 よりも、実使用時の寸法変化、摩擦係数や磨耗量が小さい組成物を提供することである。

課題を解決するための手段

[0014] (第 1 の発明)

本発明者らは、特定のポリアミド樹脂及びポリフェニレンエーテル樹脂を含有する樹脂組成物が、低吸水性で、耐熱性や電気特性に優れていることを見出し、本発明を完成させた。すなわち、本発明は、ポリアミド樹脂 (A) 及びポリフェニレンエーテル樹脂を含む樹脂組成物であり、

前記ポリアミド樹脂 (A) が、ジカルボン酸 (a) 由来の単位及びジアミン (b) 由来の単位を含み、

前記ジカルボン酸 (a) が、羧酸化合物を含み、

前記ジアミン (b) が、1, 6-ヘキサンジアミン、1, 9-ノナンジアミン及び 2-メチル-1, 8-オクタンジアミンからなる群より選択される 2 種以上のジアミンを含み、

前記ポリフェニレンエーテル樹脂の含有量が、前記ポリアミド樹脂 (A) 及び前記ポリフェニレンエーテル樹脂の合計量に対し、60 質量%未満である樹脂組成物である。

[0015] (第 2 の発明)

本発明者らは、特定の原料を使用したポリアミド樹脂とガラス繊維を含む組成物が上記課題を達成しうることを見出した。

即ち、本発明は、ポリアミド樹脂及びガラスを含む組成物であり、前記ポリアミド樹脂は、羧酸化合物を原料とするポリアミド樹脂を含むことを特徴とする摺動部品用の組成物である。

発明の効果

[0016] 第 1 の発明の樹脂組成物は、吸水性が低く、電気特性や耐熱性に優れる。

また、第 2 の発明により、ガラス繊維 25～35 質量%を含むポリアミド 66 よりも、実使用時の寸法変化、摩擦係数や磨耗量が小さい組成物を提供することが可能となる。

図面の簡単な説明

[0017] [図1]寸法安定性を求める為の試験片を示す。

発明を実施するための形態

[0018] (第1の発明)

本発明は、ポリアミド樹脂(A)及びポリフェニレンエーテル樹脂を含む樹脂組成物であり、

前記ポリアミド樹脂(A)が、ジカルボン酸(a)由来の単位及びジアミン(b)由来の単位を含み、

前記ジカルボン酸(a)が、蓚酸化合物を含み、

前記ジアミン(b)が、1,6-ヘキサレンジアミン、1,9-ノナンジアミン及び2-メチル-1,8-オクタンジアミンからなる群より選択される2種以上のジアミンを含み、

前記ポリフェニレンエーテル樹脂の含有量が、前記ポリアミド樹脂(A)及び前記ポリフェニレンエーテル樹脂の合計量に対し、60質量%未満である樹脂組成物である。

[0019] [ポリアミド樹脂(A)]

本発明に用いられるポリアミド樹脂(A)は、ジカルボン酸(a)由来の単位とジアミン(b)由来の単位を含み、前記ジカルボン酸(a)が蓚酸化合物を含み、前記ジアミン(b)が、1,6-ヘキサレンジアミン、1,9-ノナンジアミン及び2-メチル-1,8-オクタンジアミンからなる群より選択される2種以上のジアミンを含む。

[0020] (1)ジカルボン酸(a)

本発明に用いられるジカルボン酸(a)は、アミノ基との反応性を有し、本発明のポリアミド樹脂の構成単位に、ジカルボン酸由来の単位を提供するジカルボン酸化合物であり、ジカルボン酸化合物の1種である蓚酸由来の単位を提供する蓚酸化合物を含む。ジカルボン酸化合物は、ジカルボン酸に由来した化合物が挙げられ、ジカルボン酸に由来した化合物としては、ジカルボン酸由来のエステルなどが挙げられる。

- [0021] 本発明に用いられる蓚酸化合物は、蓚酸由来の単位を提供する化合物であり、蓚酸及び／又は蓚酸ジエステル等の蓚酸に由来した化合物である。蓚酸化合物はアミノ基との反応性を有するものであればよい。重合温度を高くして、ポリアミドを製造する場合、蓚酸そのものを原料として使用すると、蓚酸が熱分解することもあることから、重合温度を高くして製造する場合の蓚酸化合物は、蓚酸に由来した化合物が好ましい。
- [0022] 蓚酸に由来した化合物としては、重縮合反応における副反応を抑制する観点から、蓚酸ジエステルが好ましい。
- [0023] 蓚酸ジエステルとしては、脂肪族1価アルコールの蓚酸ジエステル、脂環式アルコールの蓚酸ジエステル、及び芳香族アルコールの蓚酸ジエステルが挙げられる。
- [0024] 脂肪族1価アルコールの蓚酸ジエステルとしては、蓚酸ジメチル、蓚酸ジエチル、蓚酸ジ n -（又は i -）プロピル、蓚酸ジ n -（又は i -、又は t -）ブチルが挙げられ、炭素原子数が3を超える脂肪族1価アルコールの蓚酸ジエステルが好ましく、蓚酸ジ n -ブチル、蓚酸ジ i -ブチル及び／又は蓚酸ジ t -ブチルがより好ましく、蓚酸ジ n -ブチルがさらに好ましい。
- [0025] 脂環式アルコールの蓚酸ジエステルとしては、蓚酸ジシクロヘキシル等が挙げられる。
- [0026] 芳香族アルコールの蓚酸ジエステルとしては、蓚酸ジフェニル等が挙げられる。
- [0027] 蓚酸ジエステルとしては、炭素原子数が3を超える脂肪族1価アルコールの蓚酸ジエステル、脂環式アルコールの蓚酸ジエステル及び芳香族アルコールの蓚酸ジエステルよりなる群から選択される少なくとも1種が好ましく、蓚酸ジ n -ブチル、蓚酸ジ i -ブチル及び／又は蓚酸ジ t -ブチルがより好ましく、蓚酸ジ n -ブチルがさらに好ましい。
- [0028] これらの蓚酸化合物は、単独で、あるいは2種以上で、ポリアミド樹脂（A）の製造時に添加することができる。
- [0029] 蓚酸化合物以外のジカルボン酸化合物としては、脂肪族ジカルボン酸、脂

環式ジカルボン、芳香族ジカルボン酸およびそれに由来した化合物が挙げられる。

- [0030] 脂肪族ジカルボン酸としては、マロン酸、ジメチルマロン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、2-メチルアジピン酸、トリメチルアジピン酸、ピメリン酸、2,2-ジメチルグルタル酸、3,3-ジエチルコハク酸、アゼライン酸、セバシン酸、スベリン酸が挙げられる。
- [0031] 脂環式ジカルボン酸としては、1,3-シクロペンタンジカルボン酸、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸が挙げられる。
- [0032] 芳香族ジカルボン酸としては、テレフタル酸、イソフタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、2,7-ナフタレンジカルボン酸、1,4-ナフタレンジカルボン酸、1,4-フェニレンジオキシジ酢酸、1,3-フェニレンジオキシジ酢酸、ジ安息香酸、4,4'-オキシジ安息香酸、ジフェニルメタン-4,4'-ジカルボン酸、ジフェニルスルホン-4,4'-ジカルボン酸、4,4'-ビフェニルジカルボン酸が挙げられる。
- [0033] これらの蓚酸化合物以外のジカルボン酸化合物は、単独で、あるいは2種以上で、ポリアミド樹脂(A)の製造時に添加することができる。
- [0034] さらに、トリメリット酸、トリメシン酸、ピロメリット酸などの多価カルボン酸を蓚酸化合物以外のジカルボン酸の有無に関わらず、熔融成形が可能な範囲内で用いることもできる。
- [0035] ポリアミド樹脂(A)に含まれる蓚酸化合物以外のジカルボン酸及び／又は多価カルボン酸由来の単位の含有量は、ポリアミド樹脂(A)に含まれる全ジカルボン酸及び全多価カルボン酸由来の単位の総量中に、50モル%未満が好ましく、20モル%以下であることがより好ましく、10モル%以下がさらに好ましく、5モル%以下がさらに好ましく、1モル%以下がさらに好ましい。
- [0036] (2) ジアミン(b)

本発明に用いるジアミン(b)は、1,6-ヘキサンジアミン、1,9-ノナンジアミン及び2-メチル-1,8-オクタンジアミンからなる群より

選択される2種以上のジアミンを含む。

[0037] ポリアミド樹脂(A)の高分子量化の観点から、ジアミン(b)は、炭素原子数が9のジアミンである1,9-ノナンジアミン及び2-メチル-1,8-オクタンジアミン(C9ジアミンともいう)を含むことが好ましい。ポリアミド樹脂(A)に含まれる1,9-ノナンジアミン及び2-メチル-1,8-オクタンジアミン由来の単位の含有量、即ち、C9ジアミン由来の単位の含有量は、ポリアミド樹脂(A)に含まれる全ジアミン由来の単位の総量中に、1モル%以上であることが好ましく、20モル%以上であることがより好ましく、40モル%以上であることがさらに好ましく、60モル%以上であることがさらに好ましく、80モル%以上であることがさらに好ましく、90モル%以上であることがさらに好ましい。

[0038] ジアミン(b)は、1,6-ヘキサジアミン、1,9-ノナンジアミン及び2-メチル-1,8-オクタンジアミンを含むことがより好ましく、ポリアミド樹脂(A)の融点と熱分解温度(窒素中でのポリマーの1%重量減少温度)と他の特性とのバランスの観点から、ポリアミド樹脂(A)に含まれる1,6-ヘキサジアミン、1,9-ノナンジアミン及び2-メチル-1,8-オクタンジアミン由来の単位の合計の含有量は、ポリアミド樹脂(A)に含まれる全ジアミン由来の単位の総量中に、10モル%以上であることが好ましく、20モル%以上であることがより好ましく、40モル%以上であることがさらに好ましく、60モル%以上であることがさらに好ましく、80モル%以上であることがさらに好ましく、90モル%以上であることがさらに好ましい。

[0039] 1,9-ノナンジアミン及び2-メチル-1,8-オクタンジアミンの合計と1,6-ヘキサジアミンとのモル比、即ち、C9ジアミンと1,6-ヘキサジアミンとのモル比は、1,9-ノナンジアミン、2-メチル-1,8-オクタンジアミン及び蔞酸化合物を重合してできるポリアミド(以下、ポリアミド92ということもある。)の優れた特性を維持し、特に溶融成形性、低吸水性を損なうことなく、ポリアミド樹脂(A)の融点を高く、特

に力学物性を向上させる観点から、1 : 99 ~ 99 : 1であることが好ましい。C9ジアミンと1, 6-ヘキサンジアミンとのモル比は、より好ましくは5. 1 : 94. 9 ~ 99 : 1、さらに好ましくは10 : 90 ~ 99 : 1であり、ポリアミド樹脂(A)の融点を300°C以下にし、重合及び成形加工(溶融成形性)をより容易にする観点から、さらに好ましくは20 : 80 ~ 99 : 1、さらに好ましくは30 : 70 ~ 98 : 2であり、ポリアミド樹脂(A)の融点を280°C以下にし、溶融成形性がより容易にする観点から、さらに好ましくは30 : 70 ~ 90 : 10、さらに好ましくは30 : 70 ~ 70 : 30である。

[0040] 炭素原子数が9のジアミンであるC9ジアミンの1, 9-ノナンジアミン及び2-メチル-1, 8-オクタンジアミンのモル比は、ポリアミド樹脂(A)の高分子量化の観点から、1 : 99 ~ 99 : 1であることが好ましく、5 : 95 ~ 95 : 5であることがより好ましく、5 : 95 ~ 40 : 60又は60 : 40 ~ 95 : 5であることがさらに好ましく、5 : 95 ~ 30 : 70又は70 : 30 ~ 90 : 10であることがさらに好ましい。1, 9-ノナンジアミン、2-メチル-1, 8-オクタンジアミン及び、1, 6-ヘキサンジアミン由来の単位を上記の含有量を含むことにより、結晶化速度を遅くすることが可能になり、押出成形等に優れたポリアミド樹脂(A)が得られる。

[0041] 本発明の効果を損なわない範囲で、他のジアミンを含むことができる。具体的には、1, 6-ヘキサンジアミン、1, 9-ノナンジアミン及び2-メチル-1, 8-オクタンジアミン以外の他のジアミンとしては、エチレンジアミン、プロピレンジアミン、1, 4-ブタンジアミン、1, 8-オクタンジアミン、1, 10-デカンジアミン、1, 12-ドデカンジアミン、3-メチル-1, 5-ペンタンジアミン、2, 2, 4-トリメチル-1, 6-ヘキサンジアミン、2, 4, 4-トリメチル-1, 6-ヘキサンジアミン、5-メチル-1, 9-ノナンジアミン等の脂肪族ジアミン、シクロヘキサンジアミン、メチルシクロヘキサンジアミン、イソホロンジアミン等の脂環

式ジアミン、*p*-フェニレンジアミン、*m*-フェニレンジアミン、*p*-キシレンジアミン、*m*-キシレンジアミン、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、4, 4'-ジアミノジフェニルスルホン、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル等の芳香族ジアミン等が挙げられ、これらを単独で、あるいは二種以上で、製造時に添加することができる。

[0042] 他のジアミン由来の単位の含有量としては、本発明の効果を損なわない範囲であれば特に限定されないが、ポリアミド樹脂 (A) の全ジアミン由来の単位中に、好ましくは、50モル%未満であり、より好ましくは20モル%以下であり、さらに好ましくは10モル%以下、さらに好ましくは5モル%以下、さらに好ましくは1モル%以下である。

[0043] (3) ポリアミド樹脂 (A) の製造

本発明に用いられるポリアミド樹脂 (A) は、ポリアミドを製造する方法として知られている任意の方法を用いて製造することができるが、高分子量化及び生産性の観点から、好ましくは、ジアミン (b) 及びジカルボン酸 (a) をバッチ式又は連続式で重縮合反応させることにより製造することであり、より好ましくは、ジアミン (b) 及びジカルボン酸 (a) を前重縮合工程と後重縮合工程とからなる二段重合法又はWO2008-072754公報記載の加圧重合法によって製造することである。

[0044] 二段重合法及び加圧重合法の例としては、具体的には、以下の操作が挙げられる。

[0045] (3-1) 二段重合法

(i) 前重縮合工程：まず反応器内を窒素置換した後、ジアミン (b) 及びジカルボン酸 (a) を混合する。混合する場合にジアミン (b) 及びジカルボン酸 (a) が共に可溶性な溶媒を用いても良い。ジアミン及び蓚酸化合物が共に可溶性な溶媒としては、トルエン、キシレン、トリクロロベンゼン、フェノール、トリフルオロエタノールなどを用いることができ、特にトルエンを好ましく用いることができる。例えば、ジアミンを溶解したトルエン溶液を50℃に加熱した後、これに対して蓚酸ジエステルを加える。

- [0046] ジアミン (b) 及びジカルボン酸 (a) の仕込み比は、高分子量化の観点から、ジカルボン酸 (a) のモル量／ジアミン (b) のモル量で、0.8～1.5 (モル比)、好ましくは0.91～1.1 (モル比)、更に好ましくは0.99～1.01 (モル比) である。
- [0047] このように仕込んだ反応器内を攪拌及び／又は窒素バブリングしながら、常圧下で昇温する。反応温度は、最終到達温度が80～150℃、好ましくは100～140℃の範囲になるように制御するのが好ましい。最終到達温度での反応時間は3時間～6時間とすることが好ましい。
- [0048] (i i) 後重縮合工程：更に高分子量化を図るために、前重縮合工程で生成した重合物を常圧下において反応器内で徐々に昇温する。昇温過程において前重縮合工程の最終到達温度、すなわち好ましくは80～150℃から、最終的に、好ましくは295℃以上350℃以下、より好ましくは298℃以上345℃以下、更に好ましくは298℃以上340℃以下の温度範囲にまで到達させる。
- [0049] 昇温時間を含めて好ましくは1～8時間、より好ましくは2～6時間保持して反応を行うことが好ましい。さらに後重合工程において、必要に応じて減圧下での重合を行うこともできる。減圧重合を行う場合の好ましい最終到達圧力は13.3 Pa以上0.1 MPa未満である。
- [0050] (3-2) 加圧重合法
- まずジアミン (b) を耐圧容器内に入れ窒素置換した後、封圧下において反応温度まで昇温する。その後、反応温度において封圧状態を保ったまま、ジカルボン酸 (a) を耐圧容器内に注入し、重縮合反応を開始させる。反応温度は、ジアミン (b) 及びジカルボン酸 (a) の反応によって生じるポリアミドが、スラリー状、もしくは溶液状態を維持でき、かつ熱分解しない温度であれば特に制限されない。ジアミン (b) 及びジカルボン酸 (a) の仕込み比は、ジカルボン酸 (a) のモル量／ジアミン (b) のモル量で、0.8～1.5 (モル比)、好ましくは0.91～1.1 (モル比)、更に好ましくは0.99～1.01 (モル比) である。

[0051] 次に耐圧容器内を封圧状態に保ちながらポリアミド樹脂（A）の融点以上かつ熱分解しない温度以下に昇温する。例えば、成分（a）の場合、融点通常在は245～300℃であることから、250℃以上350℃以下、好ましくは255℃以上340℃以下、更に好ましくは260℃以上335℃以下に昇温する。所定温度に到達するまでの耐圧容器内の圧力は、およそ生成するアルコールの飽和蒸気圧から0.1MPaG、好ましくは1MPaGから0.2MPaGに調整する。所定温度に到達後は、生成したアルコールを留去しながら放圧し、必要に応じて常圧窒素気流下もしくは減圧下において継続して重縮合反応を行う。減圧重合を行う場合の好ましい最終到達圧力は13.3Pa以上0.1MPa未満である。

[0052] （4）ポリアミド樹脂（A）の特性

ポリアミド樹脂濃度が1.0g/dl（溶媒：96質量%硫酸）の溶液を用い、25℃で測定した本発明に用いられるポリアミド樹脂（A）の相対粘度は、物性や成形性の観点から、1.8～6.0が好ましく、2.0～5.5がより好ましく、2.5～4.5がさらに好ましい。

[0053] [ポリフェニレンエーテル樹脂]

本発明に用いられるポリフェニレンエーテル樹脂の具体例として、ポリ-1,4-フェニレンエーテル、ポリ-2,6-ジメチル-1,4-フェニレンエーテル、ポリ-2,6-ジエチル-1,4-フェニレンエーテル、ポリ-2,6-ジプロピル-1,4-フェニレンエーテル、ポリ-2-メチル-6-アリル-1,4-フェニレンエーテル、ポリ-2,6-ジメトキシ-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-2,6-ジクロロ-1,4-フェニレンエーテル、ポリ-2,6-ジクロロメチル-1,4-フェニレンエーテル、ポリ-2,3,6-トリメチル-1,4-フェニレンエーテル、ポリ-2,3,5,6-テトラフルオロ-1,4-フェニレンエーテル、ポリ-2,3-ジフェニル-1,4-フェニレンエーテル、ポリ-2,3-ジトリル-1,4-フェニレンエーテル、2,6-ジメチルフェノールと他のフェノール類との共重合

体などが挙げられる。その中でも、ポリ-2,6-ジメチル-1,4-フェニレンエーテルが好ましい。

[0054] 本発明で用いられるポリフェニレンエーテル樹脂は、変性されたポリフェニレンエーテルでもよく、また、未変性のポリフェニレンエーテルと変性されたポリフェニレンエーテルとの混合物であっても構わない。ポリアミド樹脂(A)との親和性の観点から、変性されたポリフェニレンエーテルが好ましい。ポリフェニレンエーテルの製造方法は、公知の方法であればよく、特に限定されるものではない。

[0055] 変性されたポリフェニレンエーテル樹脂は、ポリアミド樹脂(A)との親和性の観点から、カルボン酸基、カルボン酸無水物基、カルボン酸エステル基、カルボン酸金属塩基、カルボン酸イミド基、カルボン酸アミド基、及び/又はエポキシ基を有することが好ましく、カルボキシル基、酸無水物基、アミノ基及びエポキシ基からなる群より選択される少なくとも1つの官能基を有することがより好ましい。

[0056] 本発明に用いられるポリフェニレンエーテル樹脂の極限粘度に特別の制限はないが、30℃のクロロホルム中で測定した極限粘度が0.01~5 dl/gであることが好ましく、0.1~4.5 dl/gであることがより好ましい。

[0057] [樹脂組成物]

本発明の樹脂組成物において、ポリフェニレンエーテル樹脂の含有量は、耐熱性と成形性の観点から、ポリアミド樹脂(A)及びポリフェニレンエーテル樹脂の総量に対し、60質量%未満であり、好ましくは56質量%以下であり、より好ましくは51質量%以下である。

[0058] また、ポリアミド樹脂(A)及びポリフェニレンエーテル樹脂の合計の含有量は、それぞれの樹脂の効果、及び本発明の効果を維持する観点から、樹脂組成物全量中、50質量%以上が好ましく、70質量%以上がより好ましく、90質量%以上がさらに好ましい。

[0059] (1) 他のポリマー

本発明の樹脂組成物には、本発明に用いられるポリアミド樹脂（A）やポリフェニレンエーテル樹脂以外に、本発明の効果を損なわない範囲で、他のポリマーを含んでよい。他のポリマーとしては、他のポリアミド類、例えば、ポリアミド樹脂（A）以外のポリオキサミド、芳香族ポリアミド、脂肪族ポリアミド、脂環式ポリアミド等、並びにポリアミド及びポリフェニレンエーテル以外の熱可塑性ポリマーが挙げられる。

[0060] 他のポリマーの含有量は、本発明の効果を損なわない範囲であれば特に限定されないが、本発明の樹脂組成物中に、その合計が、50質量%未満が好ましく、30質量%以下がより好ましく、10質量%以下がさらに好ましい。

[0061] (2) 添加剤

本発明の樹脂組成物、本発明に用いられるポリアミド樹脂（A）やポリフェニレンエーテルは、本発明の効果を損なわない範囲において、他の添加剤を含有することができ、添加剤としては、例えば、顔料、染料、着色剤、耐熱剤、酸化防止剤、耐候剤、紫外線吸収剤、光安定剤、相溶化剤、滑材、結晶核材、結晶化促進剤、離型剤、帯電防止剤、可塑剤、帯電防止剤、難燃剤、ガラス繊維、潤滑剤、フィラー、補強繊維等を挙げることができる。これらの添加剤は、1種又は2種以上、含有することができる。その含有量は、本発明の効果を損なわない範囲であれば特に限定されないが、本発明の樹脂組成物中に、その合計が、50質量%以下が好ましく、30質量%以下がより好ましく、10質量%以下がさらに好ましい。

[0062] 耐熱剤としては、銅含有化合物が好ましく、その中でも、ヨウ化銅や臭化銅などのハロゲン化銅が好ましい。銅含有化合物の含有量としては、本発明の樹脂組成物中に、10～1000ppmが好ましい。通常は、アルキルハロゲン化合物が、二次酸化防止剤としてさらに添加される。

[0063] 酸化防止剤としては、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤、イオウ系酸化防止剤が挙げられ、1種又は2種以上、本発明の樹脂組成物中に含有することができる。

[0064] フェノール系酸化防止剤としては、例えば、トリエチレングリコール・ビス[3-(3-*t*-ブチル-5-メチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、1,6-ヘキサンジオール・ビス[3-(3,5-ジ-*t*-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-*t*-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-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンジルフォスフォネート-ジエチルエステル、N,N'-ヘキサメチレンビス(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシ-ヒドロシンナミド)、1,3,5-トリメチル-2,4,6-トリス(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン、3,9-ビス[2-{3-(3-*t*-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]ウンデカン等を挙げることができ、中でも、特にペンタエリスリチル-テトラキス[3-(3,5-ジ-*t*-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-*t*-ブチル-4-ヒドロキシ-ヒドロシンナミド)が挙げられ、1種又は2種以上、本発明の樹脂組成物中に含有することができる。

[0065] リン系酸化防止剤としては、例えば、トリス(2,4-ジ-*t*-ブチルフェニル)フォスファイト、2-[[2,4,8,10-テトラキス(1,1-ジメチルエーテル)ジベンゾ[d,f][1,3,2]ジオキサフォスフェビン6-イル]オキシ]-N,N-ビス[2-[[2,4,8,10-テトラキス(1,1-ジメチルエチル)ジベンゾ[d,f][1,3,2]ジオキサフォスフェビン6-イル]オキシ]-エチル]エタナミン、ビス(2,6-ジ-*t*-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などを挙げることができ、中でも特に2-[[2,4,8,10-テトラキス(1,1-ジメチルエチル)ジベンゾ[d,f][1,3,2]ジオキサフォスフェビン6-イル]オキシ]-エチル]エタナミンが挙げられ、1種又は2種以上、本発明の

樹脂組成物中に含有することができる。

[0066] イオウ系酸化防止剤としては、2, 2-チオージエチレンビス[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]、テトラキス[メチレン-3-(ドデシルチオ)プロピオネート]メタン等を挙げ、1種又は2種以上、本発明の樹脂組成物中に含有することができる。

[0067] 相溶化剤としては、アクリル酸、メタアクリル酸、マレイン酸、無水マレイン酸、イタコン酸、クエン酸、フマル酸、クロトン酸、メチルマレイン酸、メチルフマル酸、メサコン酸、シトラコン酸、グルタコン酸、シス-4-シクロヘキセン-1, 2-ジカルボン酸、エンドビシクロ[2. 2. 1]-5-ヘプテン-2, 3-ジカルボン酸及びこれらカルボン酸金属塩、マレイン酸モノメチル、イタコン酸モノメチル、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸ブチル、アクリル酸-2-エチルヘキシル、アクリル酸ヒドロキシエチル、メタクリル酸アミノエチル、マレイン酸ジメチル、イタコン酸ジメチル、無水マレイン酸、無水イタコン酸、無水シトラコン酸、エンドビシクロ-[2. 2. 1]-5-ヘプテン-2, 3-ジカルボン酸無水物、マレイミド、N-エチルマレイミド、N-ブチルマレイミド、N-フェニルマレイミド、アクリルアミド、メタクリルアミド、メタクリル酸グリシジル、アクリル酸グリシジル、エタクリル酸グリシジル、イタコン酸グリシジル、シトラコン酸グリシジルなどが挙げられ、1種又は2種以上、本発明の樹脂組成物中に含有することができる。

[0068] 上記他のポリマー及び添加剤の添加方法は、それぞれを上記ポリアミド系樹脂に分散させることができる方法であれば、特に制限されるものではなく、その効果を損なわない任意の時点において、ポリアミド樹脂(A)に添加することができる。例えば、他のポリマー及び添加剤を、上記ポリアミド樹脂(A)の前重合工程及び/又は後重合工程に添加することができ、また、ポリフェニレンエーテル(B)に添加することもでき、また、本発明の樹脂組成物を製造する前、製造中、製造後に添加することもできる。

[0069] (3) 樹脂組成物の製造

本発明の樹脂組成物の製造方法は、ポリアミド樹脂（A）とポリフェニレンエーテル樹脂が含まれていればよく、特に制限はないが、例えば、ドライブレンドによる製造方法や単軸押出機、二軸押出機、多軸押出機、ニーダー等の熔融混練による製造方法が挙げられる。ポリアミド樹脂（A）とポリフェニレンエーテル樹脂の分散性の観点から、熔融混練による製造方法が好ましく、その中でも本発明の樹脂組成物の混練時の流動性の観点から、二軸押出機を使用した製造がより好ましい。

[0070] 本発明の樹脂組成物は、射出成形、押出成形、ブロー成形、真空成形、プレス成形等の公知の成形方法によって各種の成形品に成形することができる。特に射出成形、ブロー成形分野に有用である。

[0071] 本発明の樹脂組成物は、成形可能温度幅が広く、低い誘電率及び誘電正接を有しているため、例えば、高周波域で使用されるアンテナ、ETC、無線LAN及び携帯電話等に好適に使用できる。

[0072] その他にも、本発明の樹脂組成物は、ポリアミド樹脂及びポリフェニレンエーテルが本来有する優れた特性をバランス良く兼ね備え、優れた耐熱性を有していることから、自動車部品、工業材料、産業資材、機械部品、事務機器用部品、家庭用品、シート、フィルム、繊維等に有用に使用することができる。

[0073] （第2の発明）

本発明の組成物は、特定の原料を使用したポリアミド樹脂とガラス繊維を含む組成物である。

[0074] [ポリアミド樹脂]

本発明に用いるポリアミド樹脂は、蓚酸化合物を原料とするポリアミド樹脂を含む。組成物の実使用時の寸法変化、磨耗量、摩擦係数の低減の観点から、ポリアミド樹脂全量に対し、蓚酸化合物を原料とするポリアミド樹脂は10質量%以上が好ましく、50質量%以上がより好ましく、99質量%以上がさらに好ましい。

[0075] （1）蓚酸化合物を原料とするポリアミド樹脂

羧酸化合物としては、羧酸由来の単位を提供する化合物であり、羧酸及び／又は羧酸ジエステル等の羧酸に由来した化合物である。羧酸化合物はアミノ基との反応性を有するものであればよい。重合温度を高くして、ポリアミド樹脂を製造する場合、羧酸そのものを原料として使用すると、羧酸が熱分解することもあることから、重合温度を高くして、製造する場合の羧酸化合物は、羧酸に由来した化合物が好ましい。

[0076] 羧酸に由来した化合物としては、重縮合反応における副反応を抑制する観点から羧酸ジエステルが好ましい。

[0077] 羧酸ジエステルとしては、脂肪族1価アルコールの羧酸ジエステル、脂環式アルコールの羧酸ジエステル、及び芳香族アルコールの羧酸ジエステルが挙げられる。

[0078] 脂肪族1価アルコールの羧酸ジエステルとしては、羧酸ジメチル、羧酸ジエチル、羧酸ジ n -（又は i -）プロピル、羧酸ジ n -（又は i -、又は t -）ブチルが挙げられ、炭素原子数が3を超える脂肪族1価アルコールの羧酸ジエステルが好ましく、羧酸ジ n -ブチル、羧酸ジ i -ブチル及び／又は羧酸ジ t -ブチルがより好ましく、羧酸ジ n -ブチルがさらに好ましい。

[0079] 脂環式アルコールの羧酸ジエステルとしては、羧酸ジシクロヘキシル等が挙げられる。

[0080] 芳香族アルコールの羧酸ジエステルとしては、羧酸ジフェニル等が挙げられる。

[0081] 羧酸ジエステルとしては、炭素原子数が3を超える脂肪族1価アルコールの羧酸ジエステル、脂環式アルコールの羧酸ジエステル及び芳香族アルコールの羧酸ジエステルよりなる群から選択される少なくとも1種が好ましく、羧酸ジ n -ブチル、羧酸ジ i -ブチル及び／又は羧酸ジ t -ブチルがより好ましく、羧酸ジ n -ブチルがさらに好ましい。

[0082] これらの羧酸化合物は、単独で、あるいは2種以上で、羧酸化合物を原料とするポリアミド樹脂の製造時に添加することができる。

[0083] また、羧酸化合物を原料とするポリアミド樹脂には、羧酸化合物以外のジ

カルボン酸化合物も原料に用いることができる。

- [0084] 羧酸化合物以外のジカルボン酸化合物としては、脂肪族ジカルボン酸、脂環式ジカルボン、芳香族ジカルボン酸およびそれに由来した化合物が挙げられる。
- [0085] 脂肪族ジカルボン酸としては、マロン酸、ジメチルマロン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、2-メチルアジピン酸、トリメチルアジピン酸、ピメリン酸、2,2-ジメチルグルタル酸、3,3-ジエチルコハク酸、アゼライン酸、セバシン酸、スベリン酸が挙げられる。
- [0086] 脂環式ジカルボン酸としては、1,3-シクロペンタンジカルボン酸、1,4-シクロヘキサジカルボン酸が挙げられる。
- [0087] 芳香族ジカルボン酸としては、テレフタル酸、イソフタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、2,7-ナフタレンジカルボン酸、1,4-ナフタレンジカルボン酸、1,4-フェニレンジオキシジ酢酸、1,3-フェニレンジオキシジ酢酸、ジ安息香酸、4,4'-オキシジ安息香酸、ジフェニルメタン-4,4'-ジカルボン酸、ジフェニルスルホン-4,4'-ジカルボン酸、4,4'-ビフェニルジカルボン酸が挙げられる。
- [0088] これらの羧酸化合物以外のジカルボン酸化合物は、単独で、あるいは2種以上で、ポリアミド樹脂の製造時に添加することができる。
- [0089] さらに、トリメリット酸、トリメシン酸、ピロメリット酸などの多価カルボン酸を羧酸化合物以外のジカルボン酸の有無に関わらず、熔融成形が可能な範囲内で用いることもできる。
- [0090] 羧酸化合物を原料とするポリアミド樹脂に含まれる羧酸化合物以外のジカルボン酸及び／又は多価カルボン酸由来の単位の含有量は、羧酸化合物を原料とするポリアミド樹脂に含まれる全ジカルボン酸及び全多価カルボン酸由来の単位の総量中に、50モル%未満が好ましく、20モル%以下であることがより好ましく、10モル%以下がさらに好ましく、5モル%以下がさらに好ましく、1モル%以下がさらに好ましい。
- [0091] 羧酸化合物を原料とするポリアミド樹脂に用いられるジアミンとしては、

特に、限定はないが、エチレンジアミン、プロピレンジアミン、1, 4-ブタンジアミン、1, 6-ヘキサレンジアミン、2-メチル-1, 5-ペンタンジアミン、3-メチル-1, 5-ペンタンジアミン、1, 8-オクタンジアミン、1, 9-ノナンジアミン、2-メチル-1, 8-オクタンジアミン、1, 10-デカンジアミン、5-メチル-1, 9-ノナンジアミン、1, 12-ドデカンジアミン、2, 2, 4-トリメチル-1, 6-ヘキサレンジアミン、2, 4, 4-トリメチル-1, 6-ヘキサレンジアミン等の脂肪族ジアミン、シクロヘキサレンジアミン、メチルシクロヘキサレンジアミン、イソホロンジアミン等の脂環式ジアミン、p-フェニレンジアミン、m-フェニレンジアミン、p-キシレンジアミン、m-キシレンジアミン、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、4, 4'-ジアミノジフェニルスルホン、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル等の芳香族ジアミン等が挙げられ、これらを単独で、あるいは二種以上で、製造時に添加することができる。

[0092] これらの中でも、得られるポリアミド樹脂の融点と熱分解温度の関係から、1, 6-ヘキサレンジアミン、1, 9-ノナンジアミン、2-メチル-1, 8-オクタンジアミン及び1, 10-デカンジアミンよりなる群から選択される少なくとも1種が好ましく、1, 9-ノナンジアミン及び2-メチル-1, 8-オクタンジアミンがより好ましい。

[0093] 1, 9-ノナンジアミン及び2-メチル-1, 8-オクタンジアミンのモル比は、碳酸化合物を原料とするポリアミド樹脂の高分子量化の観点から、1 : 99 ~ 99 : 1であることが好ましく、5 : 95 ~ 95 : 5であることがより好ましい。さらに、得られるポリアミド樹脂の融点の観点から、1, 9-ノナンジアミン及び2-メチル-1, 8-オクタンジアミンのモル比は、5 : 95 ~ 40 : 60又は60 : 40 ~ 95 : 5であることが好ましく、5 : 95 ~ 30 : 70又は70 : 30 ~ 90 : 10であることがより好ましい。

[0094] 1, 9-ノナンジアミン及び2-メチル-1, 8-オクタンジアミンの含有量は、碳酸化合物を原料とするポリアミド樹脂の全ジアミン由来の単位中

に、好ましくは、50モル%以上であり、より好ましくは80モル%以上であり、さらに好ましくは90モル%以上、さらに好ましくは95モル%以上、さらにこのましくは99モル%以上である。

[0095] 羧酸化合物を原料とするポリアミド樹脂として、具体的には、ポリアミド92、ポリアミド102、ポリアミド122、ポリアミド62等の単独重合体、や、ポリアミド92/62、ポリアミド102/62、ポリアミド122/62等の共重合体が挙げられる。これらは1種又は2種以上を用いることができる。これらの中でも、ポリアミド92、ポリアミド102、ポリアミド92/62及びポリアミド102/62よりなる群から選択される少なくとも1種が好ましい。

[0096] 羧酸化合物を原料とするポリアミド樹脂は、JIS K-6920に準じ、96質量%の硫酸中、ポリアミド樹脂濃度1質量%、温度25℃の条件で測定した相対粘度が、2.3以上6.0以下が成形時の流動性と成形品の靱性の観点から好ましく、2.5以上5.0以下がより好ましく、2.7以上4.0以下がさらに好ましい。

[0097] (2) 羧酸化合物を原料とするポリアミド樹脂の製造

本発明に用いられる羧酸化合物を原料とするポリアミド樹脂は、ポリアミド樹脂を製造する方法として知られている任意の方法を用いて製造することができるが、高分子量化及び生産性の観点から、好ましくは、ジアミン及び羧酸化合物を含むジカルボン化合物をバッチ式又は連続式で重縮合反応させることにより製造することであり、より好ましくは、ジアミン及び羧酸化合物を含むジカルボン化合物を前重縮合工程と後重縮合工程からなる二段重合法もしくは、WO2008-072754公報記載の加圧重合法によって製造することである。

[0098] 二段重合法及び加圧重合法としては、具体的には、以下の操作で示される。

[0099] (2-1) 二段重合法

(i) 前重縮合工程：まず反応器内を窒素置換した後、ジアミン及び羧酸化

合物を含むジカルボン化合物を混合する。混合する場合にジアミン及び蓚酸化合物を含むジカルボン化合物が共に可溶な溶媒を用いても良い。ジアミン及び蓚酸化合物が共に可溶な溶媒としては、トルエン、キシレン、トリクロロベンゼン、フェノール、トリフルオロエタノールなどを用いることができ、特にトルエンを好ましく用いることができる。例えば、ジアミンを溶解したトルエン溶液を50℃に加熱した後、これに対して蓚酸ジエステルを加える。

[0100] ジアミン及び蓚酸化合物を含むジカルボン化合物の仕込み比は、高分子量化の観点から、ジカルボン酸 (a) のモル量/ジアミン (b) のモル量で、0.8~1.5 (モル比)、好ましくは0.91~1.1 (モル比)、更に好ましくは0.99~1.01 (モル比) である。

[0101] このように仕込んだ反応器内を攪拌及び/又は窒素バブリングしながら、常圧下で昇温する。反応温度は、最終到達温度が80~150℃、好ましくは100~140℃の範囲になるように制御するのが好ましい。最終到達温度での反応時間は3時間~6時間である。

[0102] (ii) 後重縮合工程：更に高分子量化を図るために、前重縮合工程で生成した重合物を常圧下において反応器内で徐々に昇温する。昇温過程において前重縮合工程の最終到達温度、すなわち好ましくは80~150℃から、最終的に、好ましくは150℃以上350℃以下、より好ましくは180℃以上330℃以下、更に好ましくは200℃以上320℃以下の温度範囲にまで到達させる。

[0103] 昇温時間を含めて好ましくは1~8時間、より好ましくは2~6時間保持して反応を行うことが好ましい。さらに後重合工程において、必要に応じて減圧下での重合を行うこともできる。減圧重合を行う場合の好ましい最終到達圧力は13.3 Pa以上0.1 MPa未満である。

[0104] (2-2) 加圧重合法

まずジアミンを耐圧容器内に入れ窒素置換した後、封圧下において反応温度まで昇温する。その後、反応温度において封圧状態を保ったまま、蓚酸化

合物を含むジカルボン化合物を耐圧容器内に注入し、重縮合反応を開始させる。反応温度は、ジアミン及び蓚酸化合物を含むジカルボン化合物の反応によって生じるポリアミド樹脂が、スラリー状、もしくは溶液状態を維持でき、かつ熱分解しない温度であれば特に制限されない。ジアミン及び蓚酸化合物を含むジカルボン化合物の仕込み比は、蓚酸化合物を含むジカルボン化合物のモル量／ジアミンのモル量で、0.8～1.5（モル比）、好ましくは0.91～1.1（モル比）、更に好ましくは0.99～1.01（モル比）である。

[0105] 次に耐圧容器内を封圧状態に保ちながらポリアミド樹脂の融点以上かつ熱分解しない温度以下に昇温する。例えば、成分aの場合、融点は245～300℃であることから、250℃以上350℃以下、好ましくは255℃以上340℃以下、更に好ましくは260℃以上335℃以下に昇温する。所定温度に到達するまでの耐圧容器内の圧力は、およそ生成するアルコールの飽和蒸気圧から0.1MPaG、好ましくは1MPaGから0.2MPaGに調整する。所定温度に到達後は、生成したアルコールを留去しながら放圧し、必要に応じて常圧窒素気流下もしくは減圧下において継続して重縮合反応を行う。減圧重合を行う場合の好ましい最終到達圧力は13.3Pa以上0.1MPa未満である。

[0106] (3) 蓚酸化合物を原料とするポリアミド樹脂以外のポリアミド樹脂

蓚酸化合物を原料とするポリアミド樹脂以外のポリアミド樹脂としては、例えば、ポリカプロラクタム（ポリアミド6）、ポリウンデカン酸ラクタム（ポリアミド11）、ポリラウリルラクタム（ポリアミド12）、ポリエチレンアジパミド（ポリアミド26）、ポリテトラメチレンスクシナミド（ポリアミド44）、ポリテトラメチレングルタミド（ポリアミド45）、ポリテトラメチレンアジパミド（ポリアミド46）、ポリテトラメチレンアゼラミド（ポリアミド49）、ポリテトラメチレンセバカミド（ポリアミド410）、ポリテトラメチレンドデカミド（ポリアミド412）、ポリペンタメチレンスクシナミド（ポリアミド54）、ポリペンタメチレングルタミド（

ポリアミド55)、ポリペンタメチレンアジパミド(ポリアミド56)、ポリペンタメチレンアゼラミド(ポリアミド59)、ポリペンタメチレンセバカミド(ポリアミド510)、ポリペンタメチレンドデカミド(ポリアミド512)、ポリヘキサメチレンスクシナミド(ポリアミド64)、ポリヘキサメチレングルタミド(ポリアミド65)、ポリヘキサメチレンジアミノアジパミド(ポリアミド66)、ポリヘキサメチレンアゼラミド(ポリアミド69)、ポリヘキサメチレンセバカミド(ポリアミド610)、ポリヘキサメチレンドデカミド(ポリアミド612)、ポリノナメチレンアジパミド(ポリアミド96)、ポリノナメチレンアゼラミド(ポリアミド99)、ポリノナメチレンセバカミド(ポリアミド910)、ポリノナメチレンドデカミド(ポリアミド912)、ポリデカメチレンアジパミド(ポリアミド106)、ポリデカメチレンアゼラミド(ポリアミド109)、ポリデカメチレンドデカミド(ポリアミド1010)、ポリデカメチレンドデカミド(ポリアミド1012)、ポリドデカメチレンアジパミド(ポリアミド126)、ポリドデカメチレンアゼラミド(ポリアミド129)、ポリドデカメチレンセバカミド(ポリアミド1210)、ポリドデカメチレンドデカミド(ポリアミド1212)、やカプロラクタム/ヘキサメチレンジアミノアジピン酸共重合体(ポリアミド6/66)、カプロラクタム/ヘキサメチレンジアミノアゼライン酸共重合体(ポリアミド6/69)、カプロラクタム/ヘキサメチレンジアミノセバシン酸共重合体(ポリアミド6/610)、カプロラクタム/ヘキサメチレンジアミノウンデカン酸共重合体(ポリアミド6/611)、カプロラクタム/ヘキサメチレンジアミノドデカン酸共重合体(ポリアミド6/612)、カプロラクタム/アミノウンデカン酸共重合体(ポリアミド6/11)、カプロラクタム/ラウリルラクタム共重合体(ポリアミド6/12)、カプロラクタム/ヘキサメチレンジアミノアジピン酸/ラウリルラクタム(ポリアミド6/66/12)、カプロラクタム/ヘキサメチレンジアミノアジピン酸/ヘキサメチレンジアミノセバシン酸(ポリアミド6/66/610)及びカプロラクタム/ヘキサメチレンジアミノアジピン酸

／ヘキサメチレンジアミノドデカンジカルボン酸（ポリアミド6／66／612）が挙げられる。これらは1種又は2種以上を用いることができる。

[0107] [ガラス繊維]

本発明に用いるガラス繊維は、特に限定されないが、ガラス繊維と樹脂との接着性を向上させる観点から、収束材で収束されていることが好ましい。

[0108] 収束材も、特に限定されないが、ポリアミド樹脂との相溶性の観点から、ウレタン樹脂及び／又はアクリル樹脂であることが好ましい。それ以外の収束材の場合、ポリアミド樹脂との相溶性が十分でなく、物性等が低下する場合がある。

[0109] 本発明に用いるガラス繊維は、特に限定されないが、平均繊維径が、3 μ m以上13 μ m以下であり、3 μ m以上13 μ m以下の範囲外になると、本発明の成形体の寸法安定性及び機械特性が低下する。本発明の成形体の寸法安定性、機械特性及び摺動特性をさらに向上させる観点から、5 μ m以上12 μ m以下が好ましく、6 μ m以上11 μ m以下がより好ましい。

[0110] ガラス繊維の平均繊維径はJIS R3420で測定することができる。

[0111] ガラス繊維は、ポリアミド樹脂との接着性の観点から、表面処理剤により表面処理がされていることが好ましい。表面処理剤としては、例えば、シラン系化合物、クロム系化合物、チタン系化合物等が挙げられ、シラン系化合物及び／又はチタン系化合物の表面処理剤が好ましい。

[0112] シラン系化合物の表面処理剤としては、収束剤との接着に優れたアミノシラン系のカップリング剤が好ましく、例えば、 γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N-フェニル- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N- β -(アミノエチル)- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N- β -(アミノエチル)- γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -アミノジチオプロピルトリヒドロキシシラン、 γ -(ポリエチレンアミノ)プロピルトリメトキシシラン、N- β -(アミノプロピル)- γ -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-(トリメトキシシリルプロピル)-エチレンジアミン、 γ -ジブチルアミノプロ

ピルトリメトキシシラン等が挙げられる。これらは1種又は2種以上を用いることができる。

[0113] チタン系化合物の表面処理剤としては、イソプロピルトリオステアロイルチタネート、イソプロピルトリ(N-アミノエチル)チタネート、イソプロピルトリス(ジオクチルパイロホスフェート)チタネート、テトライソプロピルビス(ジオクチルホスファイト)チタネート、テトライソプロピルチタネート、テトラブチルチタネート、テトラオクチルビス(ジトリデシルホスファイト)チタネート、イソプロピルトリオクタノイルチタネート、イソプロピルトリドデシルベンゼンスルホニルチタネート、イソプロピルトリ(ジオクチルホスフェート)チタネート、ビス(ジオクチルパイロホスフェート)エチレンチタネート、イソプロピルジメタクリルイソステアロイルチタネート、テトラ(2, 2-ジアリルオキシメチル-1-ブチル)ビス(ジトリデシルホスファイト)チタネート、イソプロピルトリクミルフェニルチタネート、ビス(ジオクチルパイロホスフェート)オキシアセテートチタネート、イソプロピルイソステアロイルジアクリルチタネート等が挙げられる。これらは1種又は2種以上を用いることができる。

[0114] これらの中でも、N-β-(アミノエチル)γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-β-(アミノエチル)γ-アミノプロピルメチルジメトキシシラン及びγ-アミノプロピルトリエトキシシランよりなる群から選ばれる少なくとも1種が好ましい。

[0115] [組成物]

本発明の組成物は、蔞酸化合物を原料とするポリアミド樹脂及び、特定のガラス繊維を含む。

[0116] 本発明の組成物は、組成物全量に対し、機械物性や摺動性を向上させる観点から、ガラス繊維を10質量%以上80質量%以下含み、物性と摺動性をさらに向上させる観点から、ガラス繊維を15質量%以上60質量%以下含むことが好ましく、20質量%以上50質量%以下含むことがより好ましい。

- [0117] また、本発明の組成物は、組成物全量に対し、ポリアミド樹脂を20質量%以上90質量%以下含むことが好ましく、機械物性や摺動性の観点から、ポリアミド樹脂を40質量%以上85質量%以下含むことが好ましく、50質量%以上80質量%以下含むことがより好ましい。
- [0118] さらに、本発明の組成物は、ヨウ化第一銅、ヨウ化カリウム及びメラミンを含むことが好ましく、組成物全量に対し、ヨウ化第一銅、ヨウ化カリウム及びメラミンを0.1質量%以上2.0質量%以下含むことが好ましく、0.2質量%以上1.0質量%以下含むことがより好ましく、0.25質量%以上0.38質量%以下含むことがさらに好ましい。また、ヨウ化第一銅、ヨウ化カリウム及びメラミンの質量比（ヨウ化第一銅：ヨウ化カリウム：メラミン）は、2～4：40～60：1～3であることが好ましく、2.5～3.5：45～55：1.5～2.5であることがより好ましい。
- [0119] 本発明の組成物は、成形性の観点から、脂肪酸金属を含むことが好ましく、組成物全量に対し、脂肪酸金属を100ppm以上300ppm以下含むことが好ましい。
- [0120] 脂肪酸金属としては、ステアリン酸亜鉛、ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸バリウム、ステアリン酸アルミニウム、ステアリン酸マグネシウム、ステアリン酸リチウム、ラウリン酸カルシウム、リノール酸亜鉛、リノール酸カルシウム、2-エチルヘキソイン酸亜鉛等が挙げられ、成形性の観点から、ステアリン酸リチウム、ステアリン酸カルシウム及びステアリン酸ナトリウムよりなる群から選択される少なくとも1種が好ましい。
- [0121] 本発明の組成物には、本発明の組成物の特性を損なわない範囲内で、通常配合される各種の添加剤、改質剤、強化材、例えば、熱安定剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、耐候剤、フィラー、可塑剤、発泡剤、ブロッキング防止剤、粘着性付与剤、シール性改良剤、防曇剤、離型剤、架橋剤、発泡剤、難燃剤、着色剤（顔料、染料等）、カップリング剤、ガラス繊維等の無機強化材等を含有することができる。
- [0122] 本発明の組成物には、本発明の組成物の特性を損なわない範囲内で、ポリ

アミド樹脂以外の熱可塑性樹脂を含むことができ、ポリアミド樹脂以外の熱可塑性樹脂としては、高密度ポリエチレン（HDPE）、中密度ポリエチレン（MDPE）、低密度ポリエチレン（LDPE）、直鎖状低密度ポリエチレン（LLDPE）、超高分子量ポリエチレン（UHMWPE）、ポリプロピレン（PP）、エチレン／プロピレン共重合体（EPR）、エチレン／ブテン共重合体（EBR）、等のポリオレフィン系樹脂及び、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、クロトン酸、メサコン酸、シトラコン酸、グルタコン酸、シス-4-シクロヘキセン-1, 2-ジカルボン酸、エンドビスシクロ-[2, 2, 1]-5-ヘプテン-2, 3-ジカルボン酸等のカルボキシル基及びその金属塩（Na、Zn、K、Ca、Mg）、無水マレイン酸、無水イタコン酸、無水シトラコン酸、エンドビスシクロ-[2, 2, 1]-5-ヘプテン-2, 3-ジカルボン酸無水物等の酸無水物基、アクリル酸グリシジル、メタクリル酸グリシジル、エタクリル酸グリシジル、イタコン酸グリシジル、シトラコン酸グリシジル等のエポキシ基等の官能基が含有された化合物により変性された、上記ポリオレフィン系樹脂、ポリブチレンテレフタレート（PBT）、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリフェニレンオキシド（PPO）等のポリアーテル系樹脂、ポリフェニレンスルフィド（PPS）、ポリメタクリロニトリル、アクリロニトリル／スチレン共重合体（AS）、メタクリロニトリル／スチレン共重合体、アクリロニトリル／ブタジエン／スチレン共重合体（ABS）が挙げられる。

[0123] 本発明の組成物の製造方法は、特に制限はなく、通常、以下の製造方法を挙げることができる。円筒型混合機等の混合機を用いる方法、二軸押出機、単軸押出機、多軸押出機、バンバリミキサー、ロールミキサー、ニーダー等の押出機を用いる方法、混合機と押出機を組み合わせる方法等をあげることができる。

[0124] 本発明の組成物は、実使用時の寸法安定性、摩擦係数、磨耗量が低いことから、摺動性部品に用いられることが好ましい。

[0125] [成形品]

本発明の組成物を成形品にする方法としては、例えば、射出成形、押出成形などが挙げられ、これらの中でも、射出成形による方法が好ましい。

[0126] 本発明のポリアミド樹脂組成物を成形してなる成形品としては、射出成形品が好ましい。射出成形品の中でも、摺動部品が好ましく、摺動部品の中でも、ギア、プーリー、カム及び軸受よりなる群から選択される1種が好ましい。

実施例

[0127] (第1の発明)

以下、実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらにより制限されるものではない。

[0128] [物性測定、成形、評価方法]

以下の方法により、成形や測定を行った。

[0129] (1) 相対粘度 (η_r)

溶媒が96質量%硫酸であり、ポリアミド樹脂の濃度が1.0g/dlのである溶液を用いて、オスワルド粘度計により25℃で相対粘度を測定した。

[0130] (2) 試験片の作製

得られた樹脂組成物を射出成形機に投入し、樹脂温度300℃、金型温度95℃にて試験片を作成した。試験片の寸法は、荷重たわみ温度測定用の試験片が128mm×12.7mm×6.2mm、吸水率測定用の試験片が100mm×30mm×1mm、電気特性用の試験片が80mm×80mm×3mmである。

[0131] (3) 荷重たわみ温度 (熱変形温度)

ASTM D648に準拠し、荷重1.82MPaで、試験片の荷重たわみ温度を測定した。

[0132] (4) 衝撃強さ (シャルピーノッチ有)

ASTM D6110に準拠し、温度23℃で、試験片の衝撃強さを測定

した。

[0133] (5) 飽和吸水率

23℃の蒸留水に試験片を浸漬させ、試験片の質量を測定し、試験片の質量の変化率が0.2%の範囲内で5日おきに3回続いた場合に試験片への水分の吸収が飽和に達したと判断して、水に浸漬する前の試験片の質量(Zg)と飽和に達した時の試験片の質量(Yg)から次の式(1)により飽和吸水率(%)を算出した。

$$\text{飽和吸水率 (\%)} = (Y - Z) / Z \times 100 \quad (1)$$

[0134] (6) 電気特性

IEC60250に準拠し、23℃、50%RHの環境下で、安藤電気製誘電体損測定装置TR-10Cを用いて、周波数1MHz時の試験片の誘電率及び誘電正接を測定した。

[0135] [ポリアミド樹脂(A)]

・ポリアミド92

ポンプを直結した原料投入口、窒素ガス導入口、放圧口、攪拌機、温度計、トルクメーター、圧力計、圧力調整装置及びポリマー抜出口を備えた内容積が約150Lの圧力容器に、ジアミン(b)の1,9-ノナンジアミン20.1kg(127mol)と2-メチル-1,8-オクタンジアミン3.5kg(22mol)を仕込み、圧力容器を窒素ガスで0.5MPaGに加圧した後、次に常圧まで窒素ガスを放出する操作を繰り返し、窒素置換を行った後、封圧下、攪拌しながら系内を昇温した。約1時間かけて内温を150℃にした後、ジカルボン酸(a)の蔞酸ジブチル30.2kg(149mol)をポンプにより流速1.49L/分で反応容器内に供給すると同時に昇温した。供給直後の圧力容器内の内圧は、重縮合反応により生成したブタノールによって0.35MPaGまで上昇し、重縮合物の温度は約170℃まで上昇した。その後、温度を235℃まで昇温した。その間、生成したブタノールは放圧口より抜き出しながら、内圧を1.0MPaGに調節した。重縮合物の温度が235℃に達した直後から放圧口よりブタノールを抜き出し、内

圧を常圧にした。常圧にしたところから、1.5 L/分で窒素ガスを流しながら昇温を開始し、重縮合物の温度を260℃にし、260℃においてトルクの値が一定値になるまで反応させた。その後、攪拌を止めて系内を窒素で1 MP a Gに加圧して静置した後、内圧0.5 MP a Gまで放圧し、ポリアミド92（以下、PA92と呼ぶこともある。）を圧力容器下部抜出口より紐状に抜き出した。紐状のPA92を直ちに水冷し、それをペレタイザーによってペレット化した。相対粘度は、3.13であった。得られるPA92は、PA92に含まれる全ジカルボン酸由来の単位の総量中に、蓚酸化合物由来の単位の含有量が100モル%であり、全ジアミン（b）由来の単位の総量中に、1,9-ノナンジアミン及び2-メチル-1,8-オクタンジアミン由来の単位の合計の含有量が、100モル%であり、1,9-ノナンジアミン及び2-メチル-1,8-オクタンジアミンのモル比は、83:17~86:14である。

[0136] ・ポリアミド92/62

ポンプを直結した原料投入口、窒素ガス導入口、放圧口、攪拌機、温度計、トルクメーター、圧力計、圧力調整装置及びポリマー抜出口を備えた内容積が約150 Lの圧力容器に、ジアミン（b）の1,9-ノナンジアミン10.5 kg（66.4モル）、2-メチル-1,8-オクタンジアミン1.8 kg（11.6モル）と1,6-ヘキサメチレンジアミン8.3 kg（71.0モル）を仕込み、圧力容器を窒素ガスで0.5 MP a Gに加圧した後、次に常圧まで窒素ガスを放出する操作を5回繰り返し、窒素置換を行った後、封圧下、攪拌しながら系内を昇温した。約1時間かけて内温を170℃にした後、ジカルボン酸（a）の蓚酸ジブチル30.2 kg（149モル）をポンプにより流速1.49 L/分で反応容器内に供給すると同時に昇温した。供給直後の圧力容器内の内圧は、重縮合反応により生成したブタノールによって0.35 MP a Gまで上昇し、重縮合物の温度は約190℃まで上昇した。その後、温度を250℃まで昇温した。その間、生成したブタノールは放圧口より抜き出しながら、内圧を0.5 MP a Gに調節した。重縮合

物の温度が250℃に達した直後から放圧口よりブタノールを抜き出し、内圧を常圧にした。常圧にしたところから、1.5L/分で窒素ガスを流しながら昇温を開始し、重縮合物の温度を270℃にし、270℃においてトルクの値が一定値になるまで反応させた。その後、攪拌を止めて系内を窒素で1MPaGに加圧して静置した後、内圧0.5MPaGまで放圧し、ポリアミド樹脂(A-2)(以下、PA92/62と呼ぶこともある。)を压力容器下部抜出口より紐状に抜き出した。紐状のPA92/62を直ちに水冷し、それをペレタイザーによってペレット化した。相対粘度は、2.78であった。得られるPA92/62は、PA92/62に含まれる全ジカルボン酸由来の単位の総量中に、蓚酸化合物由来の単位の含有量が100モル%であり、全ジアミン(b)由来の単位の総量中に、1,9-ノナンジアミン、2-メチルー1,8-オクタンジアミン、及び1,6-ヘキサメチレンジアミン由来の単位の合計の含有量が、100モル%であり、1,9-ノナンジアミン、2-メチルー1,8-オクタンジアミン、及び1,6-ヘキサメチレンジアミンの重量比は、50:8.8:41.2~52:9.2:38.8である。

[0137] [ポリフェニレンエーテル樹脂]

・フマル酸で変性したポリフェニレンエーテル

ポリフェニレンエーテル樹脂は、フマル酸で変性したポリフェニレンエーテルである出光興産株式会社製のザレック(登録商標)CX-1(以下、フマル酸変性PPEと呼ぶこともある。)を用いた。

[0138] [実施例1]

PA92を70質量%及びフマル酸変性PPEを30質量%の割合で、二軸押出機に供給し、シリンダー温度300℃の条件下で熔融混練し、ストランドとして押し出し、冷却固化させた後、ペレタイザーにて切断し、ペレット状の樹脂組成物を得た。得られた樹脂組成物のペレットを乾燥させた。乾燥したペレットの試験片を作製し、荷重たわみ温度、衝撃強さ、飽和吸水率、誘電率及び誘電正接を測定した。結果を表1に示す。

[0139] [実施例 2]

PA92を50質量%及びフマル酸変性PPEを50質量%の割合に変更した以外は、実施例1と同様にした。結果を表1に示す。

[0140] [実施例 3]

PA92の代わりにPA92/62を用いた以外は、実施例1と同様にした。結果を表1に示す。

[0141] [実施例 4]

PA92の代わりにPA92/62を用いた以外は、実施例2と同様にした。結果を表1に示す。結果を表1に示す。

[0142] [比較例 1]

PA92の試験片を作製し、荷重たわみ温度、衝撃強さ、飽和吸水率、誘電率及び誘電正接を測定した。結果を表1に示す。

[0143] [比較例 2]

PA92/62の試験片を作製し、荷重たわみ温度、衝撃強さ、飽和吸水率、誘電率及び誘電正接を測定した。結果を表1に示す。

[0144] [比較例 3]

PA92の代わりに宇部興産株式会社製のポリアミド6である1015B（以下、PA6と呼ぶこともある。）を用い、シリンダー温度280℃で混練した以外は実施例1と同様にした。結果を表1に示す。

[0145] [比較例 4]

PA92の代わりに宇部興産株式会社製のポリアミド66であり2020B（以下、PA66と呼ぶこともある。）を用いて、シリンダー温度290℃で混練した以外は実施例1と同様にした。結果を表1に示す。

[0146] [比較例 5]

PA92を40質量%とフマル酸変性PPEを60質量%の割合で、実施例1と同条件で混練を行ったが、紐状の樹脂組成物であるストランドを得ることができなかった。

[0147] [比較例 6]

PA92/62を40質量%とフマル酸変性PPEを60質量%の割合で、実施例1と同条件で混練を行ったが、紐状の樹脂組成物であるストランドを得ることができなかった。

[0148] [比較例7]

フマル酸変性PPEの試験片は、フマル酸変性PPEの成型加工性が悪く、試験片が作製できなかった。

[0149] [表1]

	PA92 (質量%)	PA92/62 (質量%)	PA6 (質量%)	PA66 (質量%)	フマル酸変性 PPE (質量%)	荷重 たわみ 温度(°C)	衝撃強さ (シャルピー) (kJ/m ²)	減速率 (1MHz)	減速正接 (1MHz)	熱和 膨張率 (%)
実施例1	70	---	---	---	30	101	4	3.1	0.008	0.96
実施例2	50	---	---	---	50	107	4	3.1	0.007	0.86
実施例3	---	70	---	---	30	98	7	3.5	0.010	1.13
実施例4	---	50	---	---	50	100	6	3.5	0.014	1.10
比較例1	100	---	---	---	---	88	5	3.1	0.004	1.01
比較例2	---	100	---	---	---	78	7	3.9	0.009	1.26
比較例3	---	---	70	---	30	70	5	4.1	0.020	2.50
比較例4	---	---	---	70	30	90	5	3.8	0.020	2.00
比較例5	40	---	---	---	60	---	---	---	---	---
比較例6	---	40	---	---	60	---	---	---	---	---
比較例7	---	---	---	---	100	---	---	---	---	---

[0150] (第2の発明)

以下において実施例及び比較例を掲げて本発明をさらに詳しく説明するが、本発明の要旨を越えない限り以下の例に限定されるものではない。以下に、各種評価方法、使用した材料を示す。

[0151] (1) 寸法安定性

住友重機械工業社製SE100Dの射出成形機を用いて、図1の200mm×40mm×3mm tの試験片を作成し、その試験片を23°C、湿度50

%RHの条件下に放置し、約400時間の間隔で吸水による重量変化を測定し、平衡に達した時点を飽和吸水率とした。その試験片内のケガキ線間距離をOLYMPUS製マイクロ스코ープにて測定し、次の式により寸法安定性を算出した。尚、MDは、図1のA方向（流れ方向）の寸法安定性を指し、TDは、図1のB方向（垂直方向）の寸法安定性を指す。

寸法安定性 = (金型ケガキ線間距離 - 試験片内のケガキ線間距離) / 金型ケガキ線間距離 × 100

[0152] (2) 限界PV値

住友重機械工業社製SE100Dの射出成形機を用いて、100mm×30mm×3mmの試験片を作成し、23℃、湿度50%RHの条件下に500時間以上おいた後、JIS K7218A法に準拠し、鈴木式摩擦摩耗試験機で、材質がJIS規格G4051に記載のS45Cの炭素鋼である外径25.6mm、内径20mm、高さ15mmのリングを用いて、作成した試験片の限界PV値を、リングオンプレート方式で、試験速度を500mm/s、試験荷重を試験開始時に20kgf（196N）を掛け、10分毎に20kgf（196N）づつ荷重を上昇させていく条件で、測定した。試験片が溶融した荷重の直前の荷重を限界PV値とした。

[0153] (3) 動摩擦係数

上記限界PV値の測定装置を用いて、限界PV値の測定と同様に、リングオンプレート方式で、試験速度を500mm/s、20kgf（196N）の一定荷重を掛け、滑り距離が3km及び5kmの条件で測定を行った。次の式から動摩擦係数を算出した。

動摩擦係数 = (摩擦抵抗力) / (試験片にかけた荷重)

[0154] (4) 摩耗量

上記限界PV値の測定装置を用いて、動摩擦係数の測定と同条件にて測定を行ない、測定前の試験片の重量と測定終了後の試験片の重量の差から摩耗量を算出した。

摩耗量 = (測定前の試験片重量) - (測定後の試験片重量)

[0155] [材料]

(1) 蓚酸化合物を原料とするポリアミド樹脂 (ポリアミド92)

ポンプを直結した原料投入口、窒素ガス導入口、放圧口、攪拌機、温度計、トルクメーター、圧力計、圧力調整装置及びポリマー抜出口を備えた内容積が約150Lの圧力容器に、ジアミン(b)の1,9-ノナンジアミン20.1kg(127モル)と2-メチル-1,8-オクタンジアミン3.5kg(22モル)を仕込み、圧力容器を窒素ガスで0.5MPaGに加圧した後、次に常圧まで窒素ガスを放出する操作を繰り返し、窒素置換を行った後、封圧下、攪拌しながら系内を昇温した。約1時間かけて内温を150℃にした後、ジカルボン酸(a)の蓚酸ジブチル30.2kg(149モル)をポンプにより流速1.49L/分で反応容器内に供給すると同時に昇温した。供給直後の圧力容器内の内圧は、重縮合反応により生成したブタノールによって0.35MPaGまで上昇し、重縮合物の温度は約170℃まで上昇した。その後、温度を235℃まで昇温した。その間、生成したブタノールは放圧口より抜き出しながら、内圧を1.0MPaGに調節した。重縮合物の温度が235℃に達した直後から放圧口よりブタノールを抜き出し、内圧を常圧にした。常圧にしたところから、1.5L/分で窒素ガスを流しながら昇温を開始し、重縮合物の温度を260℃にし、260℃においてトルクの値が一定値になるまで反応させた。その後、攪拌を止めて系内を窒素で1MPaGに加圧して静置した後、内圧0.5MPaGまで放圧し、ポリアミド92(以下、PA92と呼ぶこともある。)を圧力容器下部抜出口より紐状に抜き出した。紐状のPA92を直ちに水冷し、それをペレタイザーによってペレット化した。相対粘度は、3.13であった。得られるPA92は、PA92に含まれる全ジカルボン酸由来の単位の総量中に、蓚酸化合物由来の単位の含有量が100モル%であり、全ジアミン(b)由来の単位の総量中に、1,9-ノナンジアミン及び2-メチル-1,8-オクタンジアミン由来の単位の合計の含有量が、100モル%であり、1,9-ノナンジアミン及び2-メチル-1,8-オクタンジアミンのモル比は、83:17

～86：14である。

(2) 羧酸化合物を原料とするポリアミド樹脂以外のポリアミド樹脂（ポリアミド66）

・ポリアミド66（PA66-1）（以下、（PA66-1）と称する場合がある。）

JIS K-6920に準じ、96質量%の硫酸中、ポリアミド濃度1質量%、温度25℃の条件で測定した相対粘度が2.6～2.8であるポリアミド66。

・ポリアミド66（PA66-2）（以下、（PA66-2）と称する場合がある。）

JIS K-6920に準じ、96質量%の硫酸中、ポリアミド樹脂濃度1質量%、温度25℃の条件で測定した相対粘度が3.2～3.4であるポリアミド66。

[0156] (3) ガラス繊維

・ガラス繊維（GF-1）（以下、（GF-1）と称する場合がある。）

平均繊維径が6.5μmのガラス繊維である日本電気硝子株式会社製のECS03T-251DEを用いた。

・ガラス繊維（GF-2）（以下、（GF-2）と称する場合がある。）

平均繊維径が10.5μmのガラス繊維である日本電気硝子株式会社製のECS03T-251Hを用いた。

・ガラス繊維（GF-3）（以下、（GF-3）と称する場合がある。）

平均繊維径が6.5μmのガラス繊維である日本電気硝子株式会社製のECS03T-289DEを用いた。

・ガラス繊維（GF-4）（以下、（GF-4）と称する場合がある。）

平均繊維径が13.0μmのガラス繊維である日本電気硝子株式会社製のECS03T-289を用いた。

[0157] [実施例1、2、比較例1、2]

表2に記載のポリアミド樹脂及びガラス繊維を、表2に記載の割合で、バ

レル温度 260℃ に設定した 44mmφ ベント付二軸押出機で混練し、ペレタイザーにて、ペレット化し、組成物のペレットを得た。

次に、得られた組成物のペレットを 110℃、10 Torr (1330 Pa) の条件で 24 時間乾燥した後、シリンダ温度 260℃、金型温度 80℃ で射出成形して各種の試験片を得た。得られた試験片について上記の評価方法にて評価した。その結果を表 2 に示す。

[0158] [表2]

			単位	実施例1	実施例2	比較例1	比較例2
ポリアミド樹脂	PA32		割合%	70	70		
	PA66-1					70	
	PA66-2						75
ガラス繊維	GF-1				30		
	GF-2		30				
	GF-3					35	
	GF-4				30		
寸法安定性	収縮率	流れ方向	%	0.02	0.02	0.08	0.08
		縦糸方向		0.02	0.04	0.13	0.28
電熱特性	線膨張係数		cm/cm/°C	20.1	20.0	12.9	23.44
	線膨張係数 μ	3mm	-	0.25	0.31	0.43	0.44
		5mm	-	0.36	0.38	0.45	0.44
	熱収縮	5mm	%	0.01	0.01	0.02	0.02
		7mm	%	0.01	0.01	0.02	0.02

[0159] 表 2 に示す結果より、碳酸化合物を原料とするポリアミド樹脂とガラス繊維を含む組成物が、寸法安定性、耐摩耗性に優れることは明らかである。

産業上の利用可能性

[0160] 第 1 の発明のポリアミド系樹脂とポリフェニレンエーテル系樹脂とを含む樹脂組成物は、吸水性が低く、優れた耐熱性及び成型加工性を有し、かつ低い誘電率や誘電正接を有している。本発明の樹脂組成物は、電気・電子部品、OA 部品、車両部品、機械部品などの幅広い分野に使用することができる。

。

第2の発明の組成物は、自動車、電気・電子、産業資材、工業材料、日用品及び家庭用品などの各種摺動部材として好適に使用することができる。

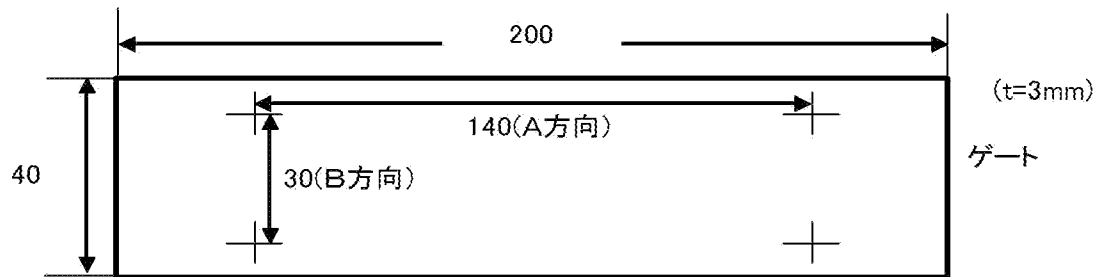
請求の範囲

- [請求項1] ポリアミド樹脂（A）及びポリフェニレンエーテル樹脂を含む樹脂組成物であり、
前記ポリアミド樹脂（A）が、ジカルボン酸（a）由来の単位及びジアミン（b）由来の単位を含み、
前記ジカルボン酸（a）が、蓚酸化合物を含み、
前記ジアミン（b）が、1，6-ヘキサンジアミン、1，9-ノナンジアミン及び2-メチル-1，8-オクタンジアミンからなる群より選択される2種以上のジアミンを含み、
前記ポリフェニレンエーテル樹脂の含有量が、前記ポリアミド樹脂（A）及び前記ポリフェニレンエーテル樹脂の合計量に対し、60質量%未満である樹脂組成物。
- [請求項2] 前記ジアミン（b）が、1，9-ノナンジアミン及び2-メチル-1，8-オクタンジアミンを含む請求項1に記載の樹脂組成物。
- [請求項3] 前記ジアミン（b）が、1，6-ヘキサンジアミン、1，9-ノナンジアミン及び2-メチル-1，8-オクタンジアミンを含む請求項1に記載の樹脂組成物。
- [請求項4] 前記1，9-ノナンジアミン及び前記2-メチル-1，8-オクタンジアミンの合計と前記1，6-ヘキサンジアミンとのモル比が5.1：94.9～99.9：1である請求項3に記載の樹脂組成物。
- [請求項5] 前記1，9-ノナンジアミンと前記2-メチル-1，8-オクタンジアミンのモル比が、5：95～95：5である請求項2～4のいずれか1項に記載の樹脂組成物。
- [請求項6] 前記ジカルボン酸（a）が蓚酸ジエステルである請求項1～5のいずれか1項に記載の樹脂組成物。
- [請求項7] 請求項1～6のいずれか1項に記載の樹脂組成物を用いて製造される成形品。
- [請求項8] ポリアミド樹脂及びガラス繊維を含む組成物であり、

前記ポリアミド樹脂は、羧酸化合物を原料とするポリアミド樹脂を含むことを特徴とする摺動部品用の組成物。

- [請求項9] ポリアミド樹脂及びガラス繊維を含む組成物であり、
 前記ポリアミド樹脂は、羧酸化合物を原料とするポリアミド樹脂を含み、
 前記ガラス繊維の繊維径が $3\ \mu\text{m}$ 以上 $13\ \mu\text{m}$ 以下である組成物。
- [請求項10] 前記ガラス繊維の繊維径が $3\ \mu\text{m}$ 以上 $13\ \mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする請求項8に記載の組成物。
- [請求項11] 組成物全量に対し、ガラス繊維を10質量%以上80質量%以下含む請求項8～10のいずれか1項に記載の組成物。
- [請求項12] 請求項8～11のいずれか1項に記載の組成物からなる摺動部品。
- [請求項13] 摺動部品がギアであることを特徴とする請求項12に記載の摺動部品。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/008164

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L77/06(2006.01)i, C08K7/14(2006.01)i, C08L71/12(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)

C08L77/00-77/12, C08K3/00-13/08, C08L71/00-71/14

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	1996-2013
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2013	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2013

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CA/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2011/013536 A1 (Ube Industries, Ltd.), 10 February 2011 (10.02.2011), claims; paragraphs [0096] to [0100], [0102] to [0106], [0113] to [0117]; example 9 & EP 2463341 A1	1-13
X A	WO 2009/151145 A1 (Ube Industries, Ltd.), 17 December 2009 (17.12.2009), claims; page 36, lines 9 to 14; page 44, line 12 to page 45, line 2; page 57, lines 15 to 17; page 60, line 3 to page 61, line 11; page 63, lines 21 to 23; page 72, lines 20 to 21; page 136, line 20 to page 143, line 14; referential example 42; examples 117, 256, 257, 321, 323 to 329, 331, 332; referential examples 321, 352; examples 416, 417, 503, 504 (Family: none)	8-13 1-7

 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
07 March, 2013 (07.03.13)Date of mailing of the international search report
19 March, 2013 (19.03.13)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/008164

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	WO 2011/016535 A1 (Ube Industries, Ltd.), 10 February 2011 (10.02.2011), claims; paragraphs [0027], [0107], [0120] to [0124] & EP 2463342 A1	8-13 1-7
X A	JP 2011-116889 A (Ube Industries, Ltd.), 16 June 2011 (16.06.2011), claims; paragraphs [0014], [0015], [0024] to [0027]; examples 8 to 16 (Family: none)	9,11 1-8,10,12,13
A	JP 2011-063695 A (Ube Industries, Ltd.), 31 March 2011 (31.03.2011), claims; paragraphs [0013], [0024], [0026], [0042] (Family: none)	1-13
A	JP 2011-231167 A (Ube Industries, Ltd.), 17 November 2011 (17.11.2011), claims; paragraphs [0013], [0022], [0026] (Family: none)	1-13
A	WO 2011/111713 A1 (Ube Industries, Ltd.), 15 September 2011 (15.09.2011), claims; paragraphs [0018], [0019], [0029], [0031]; examples 8, 9 (Family: none)	1-13

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/008164

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The inventions of claims 1-7 relate to: a resin composition which contains "a polyphenylene ether resin" and "a polyamide (A)" wherein "a dicarboxylic acid (a) contains an oxalic acid compound" and "a diamine (b) contains two or more kinds of diamines that are selected from the group consisting of 1,6-hexanediamine, 1,9-nonanediamine and 2-methyl-1,8-octanediamine"; and a molded article which is produced using the resin composition.

(Continued to extra sheet)

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/008164

Continuation of Box No.III of continuation of first sheet(2)

The inventions of claim 8 and claims 10-13 that are directly or indirectly dependent on claim 8 relate to: a composition for "a sliding component", which contains "a polyamide resin which uses an oxalic acid compound as a starting material" and "glass fibers"; and "a sliding component" which is formed from the composition.

The inventions of claim 9 and claims 11-13 that are directly or indirectly dependent on claim 9 relate to: a composition which contains "a polyamide resin which uses an oxalic acid compound as a starting material" and "glass fibers" having "fiber diameters of from 3 μm to 13 μm (inclusive)"; and "a sliding component" which is formed from the composition.

Although these inventions have a technical feature of "a polyamide resin which uses an oxalic acid compound as a starting material" in common, this technical feature cannot be a special technical feature since it is set forth in documents 1-4 that are cited in this international search report.

Consequently, the present international application does not comply with the requirement of unity of invention.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. C08L77/06(2006.01)i, C08K7/14(2006.01)i, C08L71/12(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. C08L77/00-77/12, C08K3/00-13/08, C08L71/00-71/14

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 1971-2013年
 日本国実用新案登録公報 1996-2013年
 日本国登録実用新案公報 1994-2013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)
 CA/REGISTRY (STN)

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
X	WO 2011/013536 A1 (宇部興産株式会社) 2011.02.10, 請求の範囲, [0096]-[0100], [0102]-[0106], [0113]-[0117], 実施例9 & EP 2463341 A1	1-13
X A	WO 2009/151145 A1 (宇部興産株式会社) 2009.12.17, 請求の範囲, 第36頁第9-14行, 第44頁第12行-第45頁第2行, 第5 7頁第15-17行, 第60頁第3行-第61頁第11行, 第63 頁第21-23行, 第72頁第20-21行, 第136頁第20行 -第143頁第14行, 参考例42, 実施例117, 256, 25	8-13 1-7

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 07.03.2013	国際調査報告の発送日 19.03.2013
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) 内田 靖恵 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
	7, 321, 323-329, 331, 332, 参考例321, 352, 実施例416, 417, 実施例503, 504 (ファミリーなし)	
X A	WO 2011/016535 A1 (宇部興産株式会社) 2011.02.10, 特許請求の範囲, [0027], [0107], [0120]-[0124] & EP 2463342 A1	8-13 1-7
X A	JP 2011-116889 A (宇部興産株式会社) 2011.06.16, 特許請求の範囲, 【0014】, 【0015】, 【0024】 - 【0027】, 実施例8-16 (ファミリーなし)	9, 11 1-8, 10, 12, 13
A	JP 2011-063695 A (宇部興産株式会社) 2011.03.31, 特許請求の範囲, 【0013】, 【0024】, 【0026】, 【0042】 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 2011-231167 A (宇部興産株式会社) 2011.11.17, 特許請求の範囲, 【0013】, 【0022】, 【0026】 (ファミリーなし)	1-13
A	WO 2011/111713 A1 (宇部興産株式会社) 2011.09.15, 請求の範囲, [0018], [0019], [0029], [0031], 実施例8, 9 (ファミリーなし)	1-13

第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. 請求項 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. 請求項 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. 請求項 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

請求項1-7に係る発明は、「ジカルボン酸（a）が、蔞酸化合物を含み、」「ジアミン（b）が、1, 6-ヘキサンジアミン、1, 9-ノナンジアミン及び2-メチルー1, 8-オクタンジアミンからなる群より選択される2種以上のジアミンを含む」「ポリアミド樹脂（A）」、及び「ポリフェニレンエーテル樹脂」を含む樹脂組成物、並びに、該樹脂組成物を用いて製造される成形品に関するものである。

請求項8、及び請求項8を直接的又は間接的に引用する請求項10-13に係る発明は、「蔞酸化合物を原料とするポリアミド樹脂」と「ガラス繊維」を含む「摺動部品用の」組成物、及び該組成物からなる「摺動部品」に関する発明である。

（特別ページに続く。）

1. 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。
2. 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。
4. 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。

(第Ⅲ欄の続き)

請求項 9、及び請求項 9 を直接的又は間接的に引用する請求項 1 1 - 1 3 に係る発明は、「蓚酸化合物を原料とするポリアミド樹脂」と「繊維径が $3 \mu\text{m}$ 以上 $13 \mu\text{m}$ 以下である」「ガラス繊維」を含む組成物、及び該組成物からなる「摺動部品」に関するものである。

これらの発明は「蓚酸化合物を原料とするポリアミド樹脂」という同一の技術的特徴を有しているが、当該技術的特徴は国際調査報告で引用された文献 1 - 4 に記載されているから、特別な技術的特徴ではない。

したがって、この国際出願は発明の単一性の要件を満足していない。