#### (19) **日本国特許庁(JP)**

# (12) 公 開 特 許 公 報(A)

(11)特許出願公開番号

特開2016-117894 (P2016-117894A)

(43) 公開日 平成28年6月30日(2016.6.30)

(51) Int.Cl.			FΙ		テーマコード(参考)
COBL	81/04	(2006.01)	C08L	81/04	4 J O O 2
COBK	3/00	(2006.01)	CO8K	3/00	
COSK	<i>5/2</i> 0	(2006.01)	CO8K	5/20	
COBK	3/28	(2006.01)	CO8K	3/28	

審査請求 有 請求項の数 24 OL 外国語出願 (全 68 頁)

(21) 出願番号 特願2015-245996 (P2015-245996) (22) 出願日 平成27年12月17日 (2015.12.17) (62) 分割の表示 特願2014-547324 (P2014-547324) の分割 原出願日 平成24年12月10日 (2012.12.10) (31) 優先権主張番号 61/576, 414 (32) 優先日 平成23年12月16日 (2011.12.16) (33) 優先権主張国 米国 (US) (71) 出願人 500100822

ティコナ・エルエルシー

アメリカ合衆国ケンタッキー州41042 , フローレンス, ディクシー・ハイウェイ 8040

(74)代理人 100140109

弁理士 小野 新次郎

(74)代理人 100075270

弁理士 小林 泰

(74)代理人 100101373

弁理士 竹内 茂雄

(74)代理人 100118902

弁理士 山本 修

(74)代理人 100112634

弁理士 松山 美奈子

最終頁に続く

# (54) 【発明の名称】ポリアリーレンスルフィド組成物用の成核系

# (57)【要約】 (修正有)

【課題】種々の形状及び寸法を有する部品により容易に 射出成形することができる、結晶化特性の向上の改善さ れたポリアリーレンスルフィド組成物の提供。

【解決手段】ポリアリーレンスルフィドと、無機結晶質化合物と、特定の構造の芳香族アミドオリゴマーを含む成核系と、を含む熱可塑性組成物。前記芳香族アミドオリゴマーが50~2000g/モルの分子量を有することが好ましい熱可塑性組成物。

【効果】向上した結晶化速度によって、前記熱可塑性組成物をより低い温度で成形して、同等の結晶化度をなお達成することができ、成形操作のエネルギー必要量を最小にし、加えて、より低い温度を用いることによって、高温成形操作に通常関連する「フラッシュ」の生成を減少させる。前記組成物はまた良好な粘度特性も有することができ、これにより種々の異なる形状及び寸法の部品に容易に成形することを可能にできる。

# 【選択図】図1

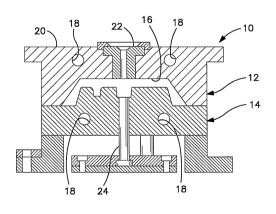


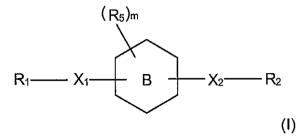
FIG. 1

### 【請求項1】

ポリアリーレンスルフィド;

無機結晶質化合物、及び次の一般式(I):

#### 【化1】



(式中、

環 B は 6 員の芳香環であり、ここで 1 ~ 3 個の環炭素原子は場合によっては窒素又は酸素によって置き換えられており、それぞれの窒素は場合によっては酸化されており、環 B は、場合によっては、 5 又は 6 員のアリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルに縮合又は結合していてよく;

(2)

R $_5$ は、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルであり;

m は 0 ~ 4 であり;

X,及びX,は、独立してC(O)HN又はNHC(O)であり;そして

 $R_1$  及び  $R_2$  は、独立して、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、及びヘテロシクリルから選択される)

を有する芳香族アミドオリゴマーを含む成核系;

を含む熱可塑性組成物。

### 【請求項2】

芳香族アミドオリゴマーが約3,000g/モル以下の分子量を有する、請求項1に記載の熱可塑性組成物。

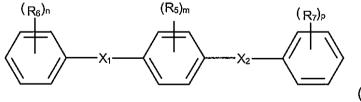
# 【請求項3】

環Bがフェニル又はナフチルである、請求項1又は請求項2に記載の熱可塑性組成物。

#### 【請求項4】

芳香族アミドオリゴマーが次の一般式( I V ):

### 【化2】



(IV)

(式中、

X<sub>1</sub>及びX<sub>2</sub>は、独立してC(O)HN又はNHC(O)であり;

 $R_5$ 、  $R_6$  、 及び  $R_7$  は、独立して、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルから選択され:

mは0~4であり;そして

n 及び p は、独立して 0 ~ 5 である)

を有するか、或いは芳香族アミドオリゴマーが次の一般式(V):

10

20

30

# 【化3】

$$(R_5)_p$$
 $(R_5)_m$ 
 $(R_8)_q$ 
 $(V)$ 

(式中、

X<sub>1</sub>及びX<sub>2</sub>は、独立してC(O)HN又はNHC(O)であり;

R  $_5$  、 R  $_7$  、 及び R  $_8$  は、独立して、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルから選択され:

mは0~4であり;そして

p 及び q は、独立して 0 ~ 5 である)

を有する、請求項1~3のいずれかに記載の熱可塑性組成物。

# 【請求項5】

式(IV)のm、n、及びpが0であるか、或いは式(IV)のmが0であり、及び/又はR $_6$ 及びR $_7$ が-С(О) HN-又は-NHC(О)-で置換されているフェニルである、請求項4に記載の熱可塑性組成物。

# 【請求項6】

オリゴマーが、次の化合物及びそれらの組み合わせ:

20

# 【表1-1】

構造	名称	
O H O	N1,N4-ジフェニル テレフタルアミド	
	N1,N4-ジフェニル イソテレフタルアミド	10
F F H F F	N1,N4-ビス(2,3,4,5,6- ペンタフルオロフェニル) テレフタルアミド	20
H H H H H H H H H H H H H H H H H H H	N1,N4-ビス(4-ベンズアミド フェニル)テレフタルアミド	
H, N, H	N4-フェニル-N1-[4-[[4- (フェニルカルバモイル) ベンゾイル]アミノ]フェニル] テレフタルアミド	30
H'N H	N4-フェニル-N1-[3-[[4- (フェニルカルバモイル) ベンゾイル]アミノ]フェニル] テレフタルアミド	

# 【表1-2】

構造	名称	
H.N. O. H. H.N. O. H.	N1,N3-ビス(4-ベンズアミド フェニル)ベンゼン-1,3- ジカルボキサミド	10
	N3-フェニル-N1-[3-[[3- (フェニルカルバモイル) ベンゾイル]アミノ]フェニル] ベンゼン-1,3-ジカルボキサミド	20
	N1,N3-ビス(3-ベンズアミド フェニル)ベンゼン-1,3- ジカルボキサミド	30
N N N N N N N N N N N N N N N N N N N	N1,N4-ビス(4-ピリジル) テレフタルアミド	

【表1-3】

構造	名称	
N H H	N1,N3-ビス(4-フェニル フェニル)ベンゼン-1,3- ジカルボキサミド	
	N1,N3,N5-トリフェニル ベンゼン-1,3,5- トリカルボキサミド	10
	N1,N3,N5-トリス(4-ベンズ アミドフェニル)ベンゼン- 1,3,5-トリカルボキサミド	20
	N-(4,6-ジベンズアミド- 1,3,5-トリアジン-2-イル) ベンズアミド	30

【表1-4】

構造	名称	
N I N H	N2,N7-ジシクロヘキシル ナフタレン-2,7- ジカルボキサミド	
H H	N2,N6-ジシクロヘキシル ナフタレン-2,6- ジカルボキサミド	10
	N1,N3,N5-トリス(3- ベンズアミドフェニル) ベンゼン-1,3,5- トリカルボキサミド	20
NH H	N,N'-ジシクロヘキシル イソテレフタルアミド	30
	N,N'-ジシクロヘキシル テレフタルアミド	

からなる群から選択される、請求項1~5のいずれかに記載の熱可塑性組成物。

#### 【請求頃7】

無機結晶質化合物が窒化ホウ素である、請求項1~6のいずれかに記載の熱可塑性組成物。

# 【請求項8】

熱可塑性組成物が、次の特徴:

- (a)成核系は組成物の約0.05重量%~約10重量%を構成する;
- ( b ) ポリアリーレンスルフィドは組成物の約30重量%~約95重量%を構成する;
- ( c )組成物中の無機結晶質化合物に対する芳香族アミドオリゴマーの重量比は約 0 .
- 8~約20である;
  - ( d ) 芳香族アミドオリゴマーは組成物の約0.1 重量%~約8 重量%を構成する;
  - ( e )無機結晶質化合物は組成物の約0.01重量%~約6重量%を構成する;
- の1以上を有する、請求項1~7のいずれかに記載の熱可塑性組成物。

50

#### 【請求項9】

耐衝撃性改良剤、無機充填剤、繊維充填剤、有機シランカップリング剤、潤滑剤、ジスルフィド、又はこれらの組み合わせを更に含む、請求項1~8のいずれかに記載の熱可塑性組成物。

# 【請求項10】

組成物が、ISO-10350にしたがって示差走査熱量測定法によって測定して約55%以上、例えば約75%~約95%の結晶化ポテンシャルを有する、請求項1~9のいずれかに記載の熱可塑性組成物。

### 【請求項11】

組成物が次の特徴:

(a) ISO - 10350にしたがって示差走査熱量測定法によって測定して、約15 ジュール / グラム以下の結晶化潜熱、及び約15ジュール / グラム以上の融解潜熱:

(b) ISO - 10350にしたがって示差走査熱量測定法によって測定して約250 以下の結晶化温度;

( c ) 毛細管流量計によって 1 2 0 0 秒 <sup>- 1</sup> の剪断速度及び 3 1 6 の温度で測定して 約 2 0 ポイズ以下の溶融粘度;

の1以上を有する、請求項1~10のいずれかに記載の熱可塑性組成物。

#### 【 請 求 項 1 2 】

請求項1~11のいずれかに記載の熱可塑性組成物を含む成形部品。

#### 【請求項13】

部品が約100ミリメートル以下の厚さを有するか、又は約100ミリメートル以下の厚さを有する造作を含む、請求項12に記載の成形部品。

### 【請求項14】

携帯電話、ラップトップコンピューター、小型ポータブルコンピューター、腕時計型機器、ペンダント型機器、ヘッドホン又はイヤホン機器、無線通信機能を有するメディアプレイヤー、携帯型コンピューター、リモートコントローラー、全地球測位システム機器、携帯型ゲーム機器、バッテリーカバー、スピーカー、カメラモジュール、又は集積回路である、請求項22に記載の成形部品を含む電子機器。

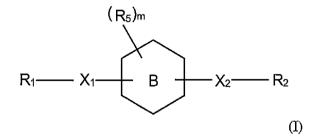
### 【請求項15】

例えば成形されたポンプがインペラーである、請求項 2 2 に記載の成形部品を含む液体ポンプ。

# 【請求項16】

約5重量%~約60重量%の窒化ホウ素、及び約40重量%~約95重量%の次の一般式(I):

# 【化4】



(式中、

環 B は 6 員の芳香環であり、ここで 1 ~ 3 個の環炭素原子は場合によっては窒素又は酸素によって置き換えられており、それぞれの窒素は場合によっては酸化されており、環 B は、場合によっては、 5 又は 6 員のアリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルに縮合又は結合していてよく;

R $_5$ は、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルであり;

10

20

30

40

mは0~4であり;

X<sub>1</sub>及びX<sub>2</sub>は、独立してC(O)HN又はNHC(O)であり;そして

 $R_1$ 及び  $R_2$  は、独立して、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、及びヘテロシクリルから選択される)

を有する少なくとも 1 種類の芳香族アミドオリゴマーを含む、ポリアリーレンスルフィド 組成物用の成核系。

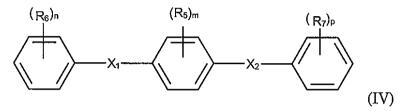
#### 【請求項17】

環Bがフェニル又はナフチルである、請求項16に記載の成核系。

### 【請求項18】

芳香族アミドオリゴマーが次の一般式(IV):

# 【化5】



# (式中、

X A 及び X 。は、独立して C (O) H N 又は N H C (O)であり;

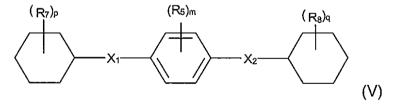
 $R_5$ 、  $R_6$  、 及び  $R_7$  は、独立して、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルから選択され;

mは0~4であり;そして

n 及び p は、独立して 0 ~ 5 である)

を有するか、或いは芳香族アミドオリゴマーが次の一般式(V):

### 【化6】



# (式中、

X<sub>1</sub>及びX<sub>2</sub>は、独立してC(O)HN又はNHC(O)であり;

 $R_5$ 、  $R_7$ 、 及び  $R_8$  は、独立して、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルから選択され;

mは0~4であり;そして

p及びqは、独立して0~5である)

を有する、請求項16に記載の成核系。

#### 【請求項19】

式(IV)のm、n、及びpが0であるか、或いは式(IV)のmが0であり、及び/又はR $_6$ 及びR $_7$ が-С(O) HN-又は-NHC(O)-で置換されているフェニルである、請求項30に記載の熱可塑性組成物。

# 【請求項20】

オリゴマーが N 1 , N 4 - ジフェニルテレフタルアミドである、請求項 1 6 ~ 1 9 の N ずれかに記載の成核系。

### 【請求項21】

芳香族アミドオリゴマーが成核系の約60重量%~約80重量%を構成し、窒化ホウ素が成核系の約20重量%~約40重量%を構成する、請求項16~20のいずれかに記載

10

20

30

50

の成核系。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

[0001]

[0001]本出願は、2011年12月16日出願の米国仮特許出願61/576,414 (その全部を本明細書中に包含する)の出願の利益を主張する。

【背景技術】

[0002]

[0002]ポリフェニレンスルフィド(PPS)は、高い熱的、化学的、及び機械的応力に 耐えることができる高性能ポリマーである。しかしながら、その比較的遅い結晶化速度の ために、ポリフェニレンスルフィドから部品を射出成形することは困難な可能性がある。 例えば、所望の結晶化度を達成するために、成形は一般に高い金型温度(約130 又は それ以上)において比較的長いサイクル時間の間行う。残念なことに、高い金型温度のた めに、通常は高価で腐食性の冷却媒体(例えばオイル)が必要になる。上述の問題に対処 する試みは、一般にポリマー組成物中に種々の添加剤を含ませてその結晶化特性の向上を 助けることを含む。しかしながら、今日までかかる試みは完全には成功していない。実際 、 種 々 の 産 業 ( 例 え ば エ レ ク ト ロ ニ ク ス 、 自 動 車 等 ) は 現 在 非 常 に 小 さ い 寸 法 公 差 を 有 す る射出成形部品を求めているので、問題は更により顕著になっている。これらの用途にお いては、ポリマーは、金型キャビティの小さい空間を迅速且つ均一に満たすことができる ように良好な流動特性を有していなければならない。しかしながら、必要な高い流動要件 を満たすようにされている従来のポリフェニレンスルフィドは、成形中において、特に高 い温度/長いサイクル時間を用いる場合に相当量の「フラッシュ」(2つの金型表面の接 合部においてキャビティから押出される過剰のポリマー材料)を引き起こす傾向を有する 。 大 量 の フ ラ ッ シ ュ の 生 成 は 生 成 物 の 品 質 に 影 響 を 与 え る 可 能 性 が あ り 、 ま た 部 品 を ト リ ミングする高コストで時間がかかる工程が必要になる。

[0003]

[0003]しかしながら、その比較的遅い結晶化速度のために、ポリフェニレンスルフィドから部品を射出成形することは困難な可能性がある。例えば、所望の結晶化度を達成するために、成形は一般に高い温度(約130 又はそれ以上)において比較的長いサイクル時間の間行う。残念なことに、高い金型温度のために、通常は、良好な機械特性を達成するために高価で腐食性の冷却媒体(例えばオイル)が必要になる。上述の問題に対処する試みは、一般にポリマー組成物中に種々の添加剤を含ませてその結晶化特性の向上を助けることを含む。しかしながら、今日までかかる試みは完全には成功していない。このように、良好な機械特性をなお達成しながら低い温度でポリアリーレンスルフィドを射出成形する好適な方法に対する必要性が存在する。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

[0004]

[0004] このように、種々の形状及び寸法を有する部品により容易に射出成形することができるポリアリーレンスルフィド組成物に対する必要性が継続して存在する。

【課題を解決するための手段】

[0005]

[0005]本発明の一態様によれば、ポリアリーレンスルフィド;並びに、無機結晶質化合物、及び次の一般式(I):

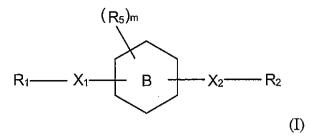
[0006]

10

20

30

#### 【化1】



### [0007]

(式中、

環 B は 6 員の芳香環であり、ここで 1 ~ 3 個の環炭素原子は場合によっては窒素又は酸素によって置き換えられており、それぞれの窒素は場合によっては酸化されており、環 B は、場合によっては、 5 又は 6 員のアリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルに縮合又は結合していてよく;

R $_5$ は、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルであり;

mは0~4であり;

X<sub>1</sub>及びX<sub>2</sub>は、独立してC(O)HN又はNHC(O)であり;そして

 $R_1$ 及び  $R_2$ は、独立して、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、及びヘテロシクリルから選択される)

を有する芳香族アミドオリゴマーを含む成核系;を含む熱可塑性組成物が開示される。

[0008]

[0006]本発明の他の態様によれば、ポリアリーレンスルフィド組成物用の成核系が開示される。本成核系は、約5重量%~約60重量%の窒化ホウ素、及び約40重量%~約95重量%の上記に示す一般式(I)を有する少なくとも1種類の芳香族アミドオリゴマーを含む。

[0009]

[0007] 本 発 明 の 他 の 特 徴 及 び 形 態 を 下 記 に お い て よ り 詳 細 に 示 す 。

[ 0 0 1 0 ]

[0008]明細書の残りにおいて、添付の図面の参照を含む当業者に対するそのベストモードを含む本発明の完全且つ実施可能な程度の開示をより詳しく示す。

【図面の簡単な説明】

[0011]

【図1】[0009]図1は、本発明において用いることができる射出成形装置の一態様の断面図である。

【 図 2 】 [0010] 図 2 は、 本 発 明 の 一 態 様 に し た が っ て 形 成 す る こ と が で き る 電 子 機 器 の 斜 視 図 で あ る 。

【図3】[0011]図3は、閉止した形態で示す図2の電子機器の斜視図である。

【図4】[0012]図4は、本発明の一態様にしたがって形成することができる水ポンプを示す。

【発明を実施するための形態】

[0012]

[0013]本明細書において用いる用語は特定の態様のみを記載する目的のためであり、本発明の範囲を限定することは意図しないことを理解すべきである。

[0013]

[0014]「アルキル」とは、 1 ~ 1 0 個の炭素原子、幾つかの態様においては 1 ~ 6 個の炭素原子を有する一価の飽和脂肪族ヒドロカルビル基を指す。「 C  $_{\rm x}$   $_{\rm y}$  アルキル」とは、 x ~ y 個の炭素原子を有するアルキル基を指す。この用語は、例として、メチル( C H  $_{\rm 3}$  )、エチル( C H  $_{\rm 3}$  C H  $_{\rm 2}$  )、  $_{\rm 1}$  C H  $_{\rm 2}$  )、  $_{\rm 1}$  C H  $_{\rm 2}$  )、  $_{\rm 1}$  C H  $_{\rm 2}$  ) 、  $_{\rm 1}$  C H  $_{\rm 2}$  C H  $_{\rm 2}$  ) 、  $_{\rm 1}$  C H  $_{\rm 2}$  C H  $_{\rm 2}$  ) 、  $_{\rm 2}$  C H  $_{\rm 2}$  ) 、  $_{\rm 1}$  C H  $_{\rm 2}$  C H  $_{\rm 2}$  ) 、  $_{\rm 1}$  C H  $_{\rm 2}$  C H  $_{\rm 2}$  C H  $_{\rm 2}$  ) 、  $_{\rm 1}$  C H  $_{\rm 2}$  C H

10

20

30

40

 $(CH_3)_2CH)$ 、 $n-ブチル(CH_3CH_2CH_2CH_2)$ 、イソブチル((CH\_3)\_2CHCH\_2)、  $sec-ブチル((CH_3)(CH_3CH_2)CH)$ 、  $t-ブチル((CH_3)_3C)$ 、  $n-ペンチル(CH_3CH_2CH_2CH_2)$ 、及びネオペンチル((CH\_3)\_3CH\_2)のような線状及び分岐のヒドロカルビル基を包含する。

[0014]

[0015]「アルケニル」とは、 2 ~ 1 0 個の炭素原子、幾つかの態様においては 2 ~ 6 個の炭素原子又は 2 ~ 4 個の炭素原子を有し、少なくとも 1 つのビニル不飽和( > C = C < ) の部位を有する線状又は分岐のヒドロカルビル基を指す。例えば、( C  $_{\rm x}$  ~ C  $_{\rm y}$  )アルケニルとは、 x ~ y 個の炭素原子を有するアルケニル基を指し、例えば、エテニル、プロペニル、 1 , 3 . ブタジエニルなどを包含するように意図される。

[0015]

[0016]「アルキニル」とは、少なくとも1つの三重結合を含む線状又は分岐の一価炭化水素基を指す。「アルキニル」という用語は、また、二重結合及び三重結合のような他のタイプの結合を有するヒドロカルビル基を包含することができる。

[0016]

[0017]「アリール」とは、3~14個の炭素原子を有し、環へテロ原子を有さず、単一の環(例えばフェニル)又は複数の縮合(融合)環(例えばナフチル又はアントリル)を有する芳香族基を指す。環へテロ原子を有しない芳香環及び非芳香環を有する縮合、橋架、及びスピロ環系などの多環系に関しては、「アリール」という用語は、結合位置が芳香族炭化水素である場合に適用される(例えば、5,6,7,8-テトラヒドロナフタレン-2-イルは、その結合位置が芳香族フェニル環の2位であるので、アリール基である)

[0017]

[0018]「シクロアルキル」とは、3~14個の炭素原子を有し、環へテロ原子を有さず、単一の環、或いは縮合、橋架、及びスピロ環系などの多環を有する飽和又は部分飽和の環式基を指す。環へテロ原子を有しない芳香環及び非芳香環を有する多環系に関しては、「シクロアルキル」という用語は、結合位置が非芳香族炭素原子である場合に適用される(例えば、5,6,7,8・テトラヒドロナフタレン・5・イル)。「シクロアルキル」という用語は、アダマンチル、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロオクチル、及びシクロヘキセニルのようなシクロアルケニル基を包含する。「シクロアルケニル」という用語は、時には少なくとも1つの>C=C<環不飽和部位を有する部分飽和シクロアルキル環を指すように用いる。

[0018]

[0019]「ハロ」又は「ハロゲン」とは、フルオロ、クロロ、ブロモ、及びヨードを指す

[0019]

[0020]「ハロアルキル」とは、1~5個、又は幾つかの態様においては1~3個のハロ基でアルキル基が置換されていることを指す。

[0020]

[0021]「ヘテロアリール」とは、1~14個の炭素原子、並びに酸素、窒素、及びイオウから選択される1~6個のヘテロ原子を有する芳香族基を指し、単環系(例えばイミダゾリル)、及び多環系(例えばベンズイミダゾル・2・イル及びベンズイミダゾル・6・イル)を包含する。芳香環及び非芳香環を有する縮合、橋架、及びスピロ環系などの多環系に関しては、「ヘテロアリール」という用語は、少なくとも1つの環ヘテロ原子が存在し、結合位置が芳香環の原子である場合に適用される(例えば、1,2,3,4・テトラヒドロキノリン・6・イル及び5,6,7,8・テトラヒドロキノリン・3・イル)。幾つかの態様においては、ヘテロアリール基の1つ又は複数の窒素及び/又はイオウ環原子は、場合によっては酸化されて、Nオキシド(N O)、スルフィニル、又はスルホニル基を与えている。ヘテロアリール基の例としては、ピリジル、フラニル、チェニル、チアゾリル、イソチアゾリル、トリアゾリル、イミダゾリニル、イソオキサゾ

10

20

30

40

20

30

40

50

リル、ピロリル、ピラゾリル、ピリダジニル、ピリミジニル、プリニル、フタラジル、ナフチルピリジル、ベンゾフラニル、テトラヒドロベンゾフラニル、イソベンゾフラニル、ベンゾチアゾリル、ベンゾイソチアゾリル、ベンゾトリアゾリル、インドリル、イソインドリル、インドリジニル、ジヒドロインドリル、インダゾリル、インドリニル、ベンゾオキサゾリル、キノリル、イソキノリル、キナゾリノニル、ベンズイミダゾリル、ベンズイソオキサゾリル、ベンゾチエニル、ベンゾピリダジニル、プテリジニル、カルバゾリル、カルボリニル、フェナントリジニル、アクリジニル、フェナントロリニル、フェナジニル、フェノキサジニル、フェノチアジニル、及びフタルイミジルが挙げられるが、これらに限定されない。

[0021]

[0022]「複素環式」又は「複素環」又は「ヘテロシクロアルキル」又は「ヘテロシクリル」とは、1~14個の炭素原子、及び窒素、イオウ、又は酸素から選択される1~6個のヘテロ原子を有する飽和又は部分飽和環式基を指し、単環系、並びに縮合、橋架、及び口環系などの多環系を包含する。芳香環及び/又は非芳香環を有する多環系に関し、は、「複素環式」、「複素環」、「ヘテロシクロアルキル」、又は「ヘテロシクリルよいう用語は、少なくとも1つの環ヘテロ原子が存在し、結合位置が非芳香環の原子である場合に適用される(例えばデカヒドロキノリン・6・イル)。幾つかの態様においては複素環式基の1つ又は複数の窒素及び/又はイオウ原子は、場合によっては酸化されて、Nオキシド、スルフィニル、スルホニル基を与えている。ヘテロシクリル基の例としては、アゼチジニル、テトラヒドロピラニル、ピペリジニル、N・メチルピペリジン・3・イル、ピペラジニル、N・メチルピロリジン・3・イル、3・ピロリジニル、及びピロリジニルが挙げられるが、これらに限定されない。

[0022]

[0023] 上述の定義は、非置換基、並びに当該技術において公知の1以上の他の官能基で 置換されている基を包含することを理解すべきである。例えば、アリール、ヘテロアリー ル、シクロアルキル、又はヘテロシクリル基は、アルキル、アルケニル、アルキニル、ア ルコキシ、アシル、アシルアミノ、アシルオキシ、アミノ、第4級アミノ、アミド、イミ ノ、アミジノ、アミノカルボニルアミノ、アミジノカルボニルアミノ、アミノチオカルボ ニル、アミノカルボニルアミノ、アミノチオカルボニルアミノ、アミノカルボニルオキシ .アミノスルホニル、アミノスルホニルオキシ、アミノスルホニルアミノ、アリール、ア リールオキシ、アリールチオ、アジド、カルボキシル、カルボキシルエステル、(カルボ キシルエステル)アミノ、(カルボキシルエステル)オキシ、シアノ、シクロアルキル、 シクロアルキルオキシ、シクロアルキルチオ、グアニジノ、ハロ、ハロアルキル、ハロア ルコキシ、ヒドロキシ、ヒドロキシアミノ、アルコキシアミノ、ヒドラジノ、ヘテロアリ ール、ヘテロアリールオキシ、ヘテロアリールチオ、ヘテロシクリル、ヘテロシクリルオ キシ、ヘテロシクリルチオ、ニトロ、オキソ、オキシ、チオン、ホスフェート、ホスホネ ート、ホスフィネート、ホスホンアミデート、ホスホロジアミデート、ホスホロアミデー トモノエステル、環式ホスホルアミデート、環式ホスホロジアミデート、ホスホルアミデ ートジエステル、スルフェート、スルホネート、スルホニル、置換スルホニル、スルホニ ルオキシ、チオアシル、チオシアネート、チオール、アルキルチオ等、並びにかかる置換 基の組み合わせから選択される、1~8個、幾つかの態様においては1~5個、幾つかの 態様においては1~3個、及び幾つかの態様においては1~2個の置換基で置換されてい てよい。

[ 0 0 2 3 ]

[0024] 本議論は代表的な態様のみの説明であり、本発明のより広い形態を限定するようには意図しないことが当業者に理解される。

[0024]

[0025] 一般的に言えば、本発明は、ポリアリーレンスルフィドを含む熱可塑性組成物用

(14)

の成核系に関する。より詳しくは、本成核系は、無機結晶質化合物及び芳香族アミドオリ ゴマーの組合せを含む。実際のメカニズムは完全には理解されていないが、本発明者らは 、これらの異なるタイプの複数の成核剤の組合せによって、成核剤のいずれか1つを単独 で用いる場合に達成される特性よりも更に良好な優れた結晶化特性(例えば結晶化速度) が得られることを見出した。向上した結晶化速度によって、本熱可塑性組成物は、より低 い温度で成形して同等の結晶化度をなお達成することができる。成形操作のエネルギー必 要量を最小にすることに加えて、より低い温度を用いることによって、高温成形操作に通 常関連する「フラッシュ」の生成を減少させることもできる。例えば、成形操作中に生成 するフラッシュ(バリとしても知られる)の長さを、約0.17ミリメートル以下、幾つ かの態様においては約0.14ミリメートル以下、幾つかの態様においては約0.13ミ リメートル以下にすることができる。

[0025]

[0026] 本発明者らはまた、本成核系によって他の予期しなかった利益を与えることがで きることも見出した。例えば、本熱可塑性組成物は比較的低い溶融粘度を有することがで き、 これにより部品の製造中に金型キャビティ中に容易に流入させることができる。 例え ば、本組成物は、316 の温度及び1200秒 <sup>1</sup> の剪断速度において毛細管流量計に よって測定して約20ポイズ以下、幾つかの態様においては約15ポイズ以下、幾つかの 態様においては約0.1~約10ポイズの溶融粘度を有することができる。とりわけ、こ れらの溶融特性により、組成物を、過量のフラッシュを生成させることなく非常に小さい 寸法を有する部品に容易に射出成形することを可能にすることができる。

[0027] ここで、本発明の種々の態様を下記により詳細に説明する。

[0027]

I . 熱可塑性組成物:

A.ポリアリーレンスルフィド:

[0028]上述したように、本熱可塑性組成物は、一般に溶融することなく比較的高い温度 に耐えることができる少なくとも1種類のポリアリーレンスルフィドを含む。実際の量は 所 望 の 用 途 に よ っ て 変 化 す る 可 能 性 が あ る が 、 1 種 類 又 は 複 数 の ポ リ ア リ ー レ ン ス ル フ ィ ドは、通常は熱可塑性組成物の約30重量%~約95重量%、幾つかの態様においては約 3 5 重量%~約90重量%、幾つかの態様においては約40重量%~約80重量%を構成 する。1種類又は複数のポリアリーレンスルフィドは、一般に、式:

[0028]

【化2】

 $-[(Ar^{1})_{n}-X]_{m}-[(Ar^{2})_{i}-Y]_{j}-[(Ar^{3})_{k}-Z]_{j}-[(Ar^{4})_{o}-W]_{p}-$ 

[0029]

Ar<sup>1</sup>、Ar<sup>2</sup>、Ar<sup>3</sup>、及びAr<sup>4</sup>は、独立して、6~18個の炭素原子のアリーレ ン単位であり;

W、X、Y、及びZは、独立して、 - S O <sub>2</sub> - 、 - S - 、 - S O - 、 - C O - 、 - O -.-C(0)0-、又は1~6個の炭素原子のアルキレン若しくはアルキリデン基から選 択される二価の連結基であり、連結基の少なくとも1つは-S-であり;そして

n、m、i、j、k、l、o、及びpは、独立して、0、1、2、3、若しくは4であ り、但しこれらの合計は2以上である)

の繰り返し単位を有する。

[0030]

[0029] アリーレン単位の A r <sup>1</sup> 、 A r <sup>2</sup> 、 A r <sup>3</sup> 、 及び A r <sup>4</sup> は、選択的に置換又は非 置換であってよい。有利なアリーレン単位は、フェニレン、ビフェニレン、ナフチレン、 アントラセン、及びフェナントレンである。ポリアリーレンスルフィドは、通常は約30

10

20

30

40

モル%より多く、約50モル%より多く、又は約70モル%より多いアリーレンスルフィド(-S-)単位を含む。例えば、ポリアリーレンスルフィドは、少なくとも約85モル%の、2つの芳香環に直接結合しているスルフィド連結基を含んでいてよい。1つの特定の態様においては、ポリアリーレンスルフィドは、本発明においてその成分としてフェニレンスルフィド構造:-(C<sub>6</sub> H<sub>4</sub> -S)<sub>n</sub> -(式中、nは1以上の整数である)を含むものとして定義されるポリフェニレンスルフィドである。

[0031]

[0030]ポリアリーレンスルフィドの製造において用いることができる合成技術は当該技術において一般的に知られている。一例として、ポリアリーレンスルフィドを製造する方法には、ヒドロスルフィドイオンを与える材料(例えばアルカリ金属硫化物)を有機アミド溶媒中でジハロ芳香族化合物と反応させることを含ませることができる。アルカリ金属硫化物は、例えば、硫化リチウム、硫化ナトリウム、硫化カリウム、硫化ルビジウム、硫化セシウム、又はこれらの混合物であってよい。アルカリ金属硫化物が水和物又は水性混合物である場合には、アルカリ金属硫化物を、重合反応の前に脱水操作によって処理することができる。アルカリ金属硫化物はまた、その場で生成させることもできる。更に、少存在する可能性があるアルカリ金属ポリスルフィド又はアルカリ金属チオスルフェートのような不純物を除去するか又は(例えばかかる不純物を無害の材料に変化させるために)反応させることができる。

[ 0 0 3 2 ]

[0031] ジハロ芳香族化合物は、限定なしに、 o - ジハロベンゼン、 m - ジハロベンゼン 、p-ジハロベンゼン、ジハロトルエン、ジハロナフタレン、メトキシ-ジハロベンゼン 、ジハロビフェニル、ジハロ安息香酸、ジハロジフェニルエーテル、ジハロジフェニルス ルホン、ジハロジフェニルスルホキシド、又はジハロジフェニルケトンであってよい。ジ ハロ芳香族化合物は、単独か又はその任意の組合せのいずれかで用いることができる。具 体的な代表的ジハロ芳香族化合物としては、限定なしに、p‐ジクロロベンゼン;m‐ジ クロロベンゼン; o - ジクロロベンゼン; 2 , 5 - ジクロロトルエン; 1 , 4 - ジブロモ ベンゼン; 1, 4-ジクロロナフタレン; 1-メトキシ-2,5-ジクロロベンゼン; 4 , 4 ' - ジクロロビフェニル; 3 , 5 - ジクロロ安息香酸; 4 , 4 ' - ジクロロジフェニ ルエーテル;4,4′-ジクロロジフェニルスルホン;4,4′-ジクロロジフェニルス ルホキシド;及び4,4'-ジクロロジフェニルケトン;を挙げることができる。ハロゲ ン原子は、フッ素、塩素、臭素、又はヨウ素であってよく、同じジハロ芳香族化合物中の 2 つのハロゲン原子は、同一か又は互いと異なっていてよい。一態様においては、 o - ジ クロロベンゼン、m‐ジクロロベンゼン、p‐ジクロロベンゼン、又はこれらの 2 以上の 化合物の混合物をジハロ芳香族化合物として用いる。当該技術において公知なように、ポ リアリーレンスルフィドの末端基を形成するか、或いは重合反応及び/又はポリアリーレ ンスルフィドの分子量を調節するために、モノハロ化合物(必ずしも芳香族化合物ではな い)をジハロ芳香族化合物と組み合わせて用いることもできる。

# [0033]

[0032] 1 種類又は複数のポリアリーレンスルフィドはホモポリマー又はコポリマーであってよい。例えば、ジハロ芳香族化合物の選択的組み合わせによって、2以上の異なる単位を含むポリアリーレンスルフィドコポリマーを形成することができる。例えば、p・ジクロロベンゼンをm・ジクロロベンゼン又は4,4'・ジクロロジフェニルスルホンと組み合わせて用いる場合には、式:

[0034]

【化3】

50

10

20

30

の構造を有するセグメント、及び式:

### [0036]

### 【化4】

### [0037]

の構造を有するセグメント、又は式:

[0038]

# 【化5】

### [0039]

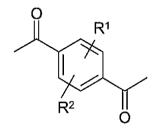
の構造を有するセグメントを含むポリアリーレンスルフィドコポリマーを形成することが できる。

### [0040]

[0033]他の態様においては、1000~20,000g/モルの数平均モル質量Mnを 有する第1のセグメントを含むポリアリーレンスルフィドコポリマーを形成することがで きる。第1のセグメントには、式:

### [0041]

### 【化6】



# [0042]

(式中、基R<sup>1</sup>及びR<sup>2</sup>は、互いに独立して、水素、フッ素、塩素、又は臭素原子、或い は1~6個の炭素原子を有する分岐若しくは非分岐のアルキル又はアルコキシ基である) の構造から誘導される第1の単位;及び/又は式:

### [0043]

# 【化7】

### [0044]

の構造から誘導される第2の単位を含ませることができる。

### [0045]

[0034] 第 1 の単位は p - ヒドロキシ安息香酸又はその誘導体の 1 つであってよく、第 2 の単位は2-ヒドロキシナフタレン-6-カルボン酸から構成することができる。第2の セグメントは、式:

10

20

30

40

20

30

40

50

【0046】 【化8】

-[Ar-S]<sub>a</sub>-

[0047]

(式中、Arは芳香族基、或いは1つより多い縮合芳香族基であり、 q は 2 ~ 100、特に5~20の数である)

のポリアリーレンスルフィド構造から誘導することができる。基Arはフェニレン又はナフチレン基であってよい。一態様においては、第2のセグメントは、ポリ(m - チオフェニレン)、ポリ(o - チオフェニレン)、又はポリ(p - チオフェニレン)から誘導することができる。

[0048]

[0035] 1 種類又は複数のポリアリーレンスルフィドは、線状、半線状、分岐、又は架橋 型であってよい。線状ポリアリーレンスルフィドは、通常は80モル%以上の繰り返し単 位: - ( A r - S ) - を含む。かかる線状ポリマーはまた少量の分岐単位又は架橋単位を 含んでいてもよいが、分岐又は架橋単位の量は、通常はポリアリーレンスルフィドの全モ ノマー単位の約1モル%未満である。線状ポリアリーレンスルフィドポリマーは、上記に 記載の繰り返し単位を含むランダムコポリマー又はブロックコポリマーであってよい。半 線 状 ポ リ ア リ ー レ ン ス ル フ ィ ド は 、 更 に 、 3 つ 以 上 の 反 応 性 官 能 基 を 有 す る 少 量 の 1 種 類 以上のモノマーがポリマー中に導入されている架橋構造又は分岐構造を有していてよい。 一例として、半線状ポリアリーレンスルフィドの形成において用いるモノマー成分に、分 岐ポリマーの製造において用いることができる分子あたり2以上のハロゲン置換基を有す る一定量のポリハロ芳香族化合物を含ませることができる。かかるモノマーは、式:R′ X 。(式中、それぞれの X は、塩素、臭素、及びヨウ素から選択され、 n は 3 ~ 6 の整数 であり、R'は、約4個以下のメチル置換基を有していてよい価数nの多価芳香族基であ り、R'中の炭素原子の総数は6~約16の範囲内である)によって表すことができる。 半線状ポリアリーレンスルフィドを形成する際に用いることができる分子あたり2個より 多いハロゲンで置換されている幾つかのポリハロ芳香族化合物の例としては、1,2,3 - トリクロロベンゼン、1,2,4-トリクロロベンゼン、1,3-ジクロロ-5-ブロ モベンゼン、1,2,4-トリヨードベンゼン、1,2,3,5-テトラブロモベンゼン 、ヘキサクロロベンゼン、1,3,5-トリクロロ-2,4,6-トリメチルベンゼン、 2 , 2 ' , 4 , 4 ' - テトラクロロビフェニル、2 , 2 ' , 5 , 5 ' - テトラヨードビフ ェニル、 2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラブロモ - 3 , 3 ' , 5 , 5 ' - テトラメチルビフェ ニル、1,2,3,4-テトラクロロナフタレン、1,2,4-トリブロモ-6-メチル ナフタレン等、及びこれらの混合物が挙げられる。

[0049]

[0036]特定の構造に関係なく、ポリアリーレンスルフィドの数平均分子量は、通常は約15,000g/モル以上、幾つかの態様においては約30,000g/モル以上である。幾つかの場合においては、ポリアリーレンスルフィドの形成中に少量の塩素を用いることができる。しかしながら、ポリアリーレンスルフィドはなお、約1000pm以下、幾つかの態様においては約900pm以下、幾つかの態様においては約1~約800pm、幾つかの態様においては約2~約700pmのような低い塩素含量を有する。しかしながら、幾つかの態様においては、ポリアリーレンスルフィドは塩素又は他のハロゲンを概して含まない。

[0050]

B.成核系:

[0037]本発明の成核系は、通常は、熱可塑性組成物の約0.05重量%~約10重量%、幾つかの態様においては約0.1重量%~約5重量%、幾つかの態様においては約0. 2重量%~約3重量%を構成する。これらの全体的な濃度の範囲内において、芳香族アミドオリゴマーと無機結晶質化合物の相対量は、一般に所望の特性を達成するために種々の 異なる量の範囲内で制御することができる。しかしながら、本発明者らは、無機結晶質化合物に対する芳香族アミドオリゴマーの重量比が約0.8~約20、幾つかの態様においては約1.5~約5である場合に特に良好な特性を達成することができることを見出した。例えば、芳香族アミドオリゴマーは、成核系の約40重量%~約95重量%~約80重量%、並びに熱可塑性組成物の約0.1量%~約8重量%~約8重量%、差できる。また、無機結晶質化合物は、成核系の約5重量%~約60重量%~約40重量%、幾つかの態様においては約0.2重量%~約40重量%、無機結晶質化合物は、成核系の約5重量%~約60重量%、幾つかの態様においては約10重量%~約50重量%、幾つかの態様においては約20重量%~約40重量%、並びに熱可塑性組成物の約0.01重量%~約6重量%~約20重量%~約40重量%、並びに熱可塑性組成物の約0.01重量%~約6重量%~約20重量%を構成させることができる。

[0051]

i . 芳香族アミドオリゴマー:

[0038] 芳香族アミドオリゴマーは、一般に比較的低い分子量を有しており、したがってポリアリーレンスルフィドの高剪断粘度を減少させ、また結晶化特性も向上させるのに役立たせることができる。例えば、オリゴマーは、通常は約3,000g/モル以下、幾つかの態様においては約50~約2,000g/モル、幾つかの態様においては約100~約1,500g/モル、幾つかの態様においては約200~約1,200g/モルの分子量を有する。

[0052]

[ 0 0 5 3 ]

[0040] 芳香族アミドオリゴマーは、言及した利益を与えるが、一般に認められる程度まではポリアリーレンスルフィドのポリマー骨格と反応しないので、ポリマーの機械特性は悪影響を受けない。反応性をより良好に最小にするのを助けるために、オリゴマーは、通常は1以上の芳香環(ヘテロ芳香族を含む)から形成されるコアを含む。オリゴマーはまた、1以上の芳香環から形成される末端基を含んでいてもよい。かかる「芳香族」オリゴマーは、したがって、ベースポリマーとの反応性をあったとしても少ししか有しない。例えば、かかる芳香族アミドオリゴマーの一態様は、下式(I):

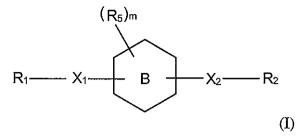
[0054]

10

20

30

### 【化9】



[0055]

(式中、

環 B は 6 員の芳香環であり、ここで 1 ~ 3 個の環炭素原子は場合によっては窒素又は酸素によって置き換えられており、それぞれの窒素は場合によっては酸化されており、環 B は、場合によっては、 5 又は 6 員のアリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルに縮合又は結合していてよく;

R $_5$ は、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルであり;

mは0~4であり;

X<sub>1</sub>及びX<sub>2</sub>は、独立してC(O)HN又はNHC(O)であり;そして

R  $_1$  及び R  $_2$  は、独立して、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、及びヘテロシクリルから選択される)

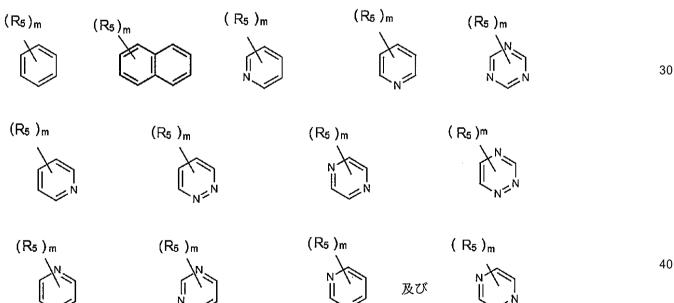
で与えられる。

# [0056]

[0041] 幾つかの態様においては、環Bは次のもの:

[0057]

# 【化10】



[0058]

(式中、

mは、0、1、2、3、又は4であり、幾つかの態様においては、mは、0、1、又は2であり、幾つかの態様においては、mは0又は1であり、幾つかの態様においては、mは0であり;

R $_5$ は、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルである)

50

10

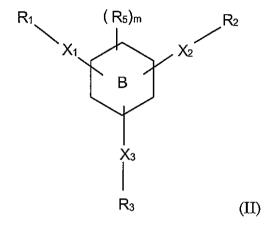
から選択することができる。環Bはフェニルであってよい。

### [0059]

[0042] 幾つかの態様においては、オリゴマーは、環Bが2つのみのアミド基(例えば、C(O) HN又はNHC(O))に直接結合している二官能性化合物である。かかる態様においては、式(I)中のmは0であってよい。勿論、幾つかの態様においては、環Bはまた3以上のアミド基に直接結合していてもよい。例えば、かかる化合物の一態様は、一般式(II):

# [0060]

# 【化11】



[0061]

(式中、

環 B 、 R  $_5$  、 X  $_1$  、 X  $_2$  、 R  $_1$  、 及び R  $_2$  は上記に定義した通りであり;

mは0~3であり;

 $X_3$  は C ( O ) H N 又 L N H C ( O ) T T T T T

R $_3$ は、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、及びヘテロシクリルから選択される)

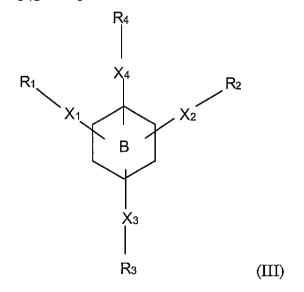
によって与えられる。

# [0062]

[0043]かかる化合物の他の態様は、一般式(III):

[0063]

# 【化12】



【 0 0 6 4 】 ( 式中、 10

20

30

40

環 B 、 R  $_5$  、 X  $_1$  、 X  $_2$  、 X  $_3$  、 R  $_1$  、 R  $_2$  、 及び R  $_3$  は上記に定義した通りであり; X  $_4$  は C ( O ) H N 又は N H C ( O )であり; そして

R  $_4$  は、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、及びヘテロシクリルから選択される)

によって与えられる。

### [0065]

[0044] 幾つかの態様においては、上述の構造中の R  $_1$  、 R  $_2$  、 R  $_3$  、 及び / 又は R  $_4$  は 、次のもの:

[0066]

【化13】

10

















20

30











[ 0 0 6 7 ]

(式中、

nは、0、1、2、3、4、又は5であり、幾つかの態様においては、nは、0、1、 又は2であり、幾つかの態様においては、nは0又は1であり;そして

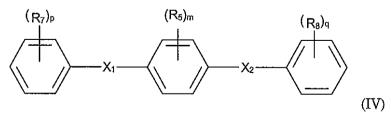
R<sub>6</sub>は、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルである) から選択することができる。

[0068]

[0045] 一態様においては、芳香族アミドオリゴマーは次の一般式(IV):

[0069]

# 【化14】



40

[0070]

(式中、

X<sub>1</sub>及びX<sub>2</sub>は、独立してC(O)HN又はNHC(O)であり;

R  $_5$  、 R  $_7$  、 及び R  $_8$  は、独立してハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、及びヘテロシクリルから選択され;

m は 0 ~ 4 であり; そして

p 及び q は、独立して 0 ~ 5 である)

を有する。

[0071]

[0046]他の態様においては、芳香族アミドオリゴマーは次の一般式(V):

[0072]

【化15】

$$(R_5)_p$$
 $(R_8)_q$ 
 $(V)$ 

[0073]

(式中、

X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>、R<sub>5</sub>、R<sub>7</sub>、R<sub>8</sub>、m、p、及びqは上記に定義した通りである) を有する。

[0074]

[0047] 例えば、幾つかの態様においては、式(IV)及び式(V)中のm、p、及び q は 0 に等しくて、コア及び末端芳香族基は非置換であってよい。他の態様においては、m は 0 であってよく、p及び q は 1 ~ 5 であってよい。例えばかかる態様においては、 R  $_7$  及び / 又は R  $_8$  はハロ(例えばフッ素)であってよい。他の態様においては、 R  $_7$  及び / 又は R  $_8$  は、アリール(例えばフェニル)、又は構造: - C(O)R  $_1$   $_2$  N - 又は - N R  $_1$   $_3$  C(O) - (式中、 R  $_1$   $_2$  及び R  $_1$   $_3$  は、独立して水素、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、及びヘテロシクリルから選択される)を有するアミド基で置換されているアリールであってよい。例えば 1 つの特定の態様においては、 R  $_6$  及び / 又は R  $_7$  は - C(O)H N - 又は - N H C(O) - で置換されているフェニルである。更に他の態様においては、 R  $_7$  及び / 又は R  $_8$  はヘテロアリール(例えばピリジニル)であってよい。

[0075]

[0048]更に他の態様においては、芳香族アミドオリゴマーは次の一般式(VI):

[0076]

【化16】

$$(R_5)_m$$
 $(R_6)_m$ 
 $X_2$ 
 $(R_6)_r$ 

(VI)

20

30

20

30

40

50

### [0077]

(式中、

X 1 、 X 2 、 及び X 3 は、独立して C ( O ) H N 又は N H C ( O )であり;

 $R_5$ 、  $R_7$ 、  $R_8$ 、 及び  $R_9$  は、独立して、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、及びヘテロシクリルから選択され;

 $m \downarrow 0 \sim 3 \ \sigma \ \delta \ j \ ; \ \mathcal{E} \cup \mathcal{E}$ 

p、q、及びrは、独立して0~5である)

を有する。

### [0078]

[0049]更に他の態様においては、芳香族アミドオリゴマーは次の一般式(VII):

[0079]

# 【化17】

$$(R_7)_p$$
 $(R_8)_q$ 
 $(R_8)_q$ 
 $(R_9)_r$ 

(VII)

### [0800]

(式中、

 $X_1$ 、 $X_2$ 、 $X_3$ 、 $R_5$ 、 $R_7$ 、 $R_8$ 、 $R_9$ 、m、p、q、Qびr は上記に定義した通りである)

を有する。

### [0081]

[0050] 例えば、幾つかの態様においては、式(VI)中又は式(VII)中のm、p、q、及びr は、0 に等しくて、コア及び末端芳香族基は非置換であってよい。他の態様においては、m は 0 であってよく、p、q、及びr は 1 ~ 5 であってよい。例えばかかる態様においては、R  $_7$ 、R  $_8$ 、及び / 又はR  $_9$  はハロ(例えばフッ素)であってよい。他の態様においては、R  $_7$ 、R  $_8$ 、及び / 又はR  $_9$  は、アリール(例えばフェニル)、又は構造: - C(O)R  $_1$   $_2$  N - 又は - NR  $_1$   $_3$  C(O) - (式中、R  $_1$   $_2$  及びR  $_1$   $_3$  は、独立して水素、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、及びヘテロシクリルから選択される)を有するアミド基で置換されているアリールであってよい。例えば 1 つの特定の態様においては、R  $_7$ 、R  $_8$ 、及び / 又はR  $_9$  はヘテロアリール(例えばピリジニル)であってよい、R  $_7$ 、R  $_8$ 、及び / 又はR  $_9$  はヘテロアリール(例えばピリジニル)であってよい

11.

[ 0 0 8 2 ]

[0051]本発明の芳香族アミドオリゴマーの具体的な態様を下表にも示す。

[ 0 0 8 3 ]

【表1-1】

【表1-1】			
化合物#	構造	名称	
A		N1,N4-ジフェニル テレフタルアミド	10
В	O N H	N1,N4-ジフェニル イソテレフタルアミ ド	
C	F F H F F	N1,N4-ビス (2,3,4,5,6-ペンタフル オロフェニル) テレフタルアミド	20
D	H N H	N1,N4-ビス(4-ベンズ アミドフェニル) テレフタルアミド	
E	H H H H H H H H H H H H H H H H H H H	N4-フェニル -N1-[4-[[4-(フェニル カルバモイル) ベンゾイル]アミノ] フェニル]テレフタル アミド	30
F1	H, N, H	N4-フェニル -N1-[3-[[4-(フェニル カルバモイル) ベンゾイル]アミノ] フェニル] テレフタルアミド	40

[ 0 0 8 4 ]

20

30

40

# 【表1 - 2】

化合物#	構造	名称
F2	H, N H H N O N H	N1,N3-ビス(4-ベンズ アミドフェニル) ベンゼン-1,3- ジカルボキサミド
G1		N3-フェニル -N1-[3-[[3-(フェニル カルバモイル) ベンゾイル]アミノ] フェニル]ベンゼン- 1,3-ジカルボキサミド
G2		N1,N3-ビス(3-ベンズ アミドフェニル) ベンゼン-1,3- ジカルボキサミド
Н	N H N N	N1,N4-ビス(4-ピリジ ル)テレフタルアミド
I		N1,N3-ビス(4-フェニ ルフェニル)ベンゼン -1,3-ジカルボキサミ ド

[ 0 0 8 5 ]

【表1-3】

化合物#	構造	名称	
J		N1,N3,N5-トリフェ ニルベンゼン-1,3,5- トリカルボキサミド	10
K		N1,N3,N5-トリス(4- ベンズアミドフェニ ル)ベンゼン-1,3,5- トリカルボキサミド	20
L		N-(4,6-ジベンズアミ ド-1,3,5-トリアジン -2-イル)ベンズアミド	30
M1	N N N H	N2,N7-ジシクロヘキ シルナフタレン- 2,7-ジカルボキサミド	

[0086]

【表1-4】

化合物#	構造	名称
M2	H N N N H	N2,N6-ジシクロヘキ シルナフタレン-2,6- ジカルボキサミド
N		N1,N3,N5-トリス(3- ベンズアミドフェニ ル)ベンゼン-1,3,5- トリカルボキサミド
01		N,N'-ジシクロヘキシ ルイソテレフタルア ミド
O2		N,N'-ジシクロヘキシ ルテレフタルアミド

### [0087]

# i i . 無機結晶質化合物:

[0052] 一般に、任意の種々の無機結晶質化合物を、芳香族アミドオリゴマーと組み合わせて成核剤として用いることができる。かかる化合物の例としては、例えば、ホウ素含有化合物(例えば、窒化ホウ素、四ホウ酸ナトリウム、四ホウ酸カリウム、四ホウ酸カルウム等)、アルカリ土類金属炭酸塩(例えば、炭酸カルシウムマグネシウム)、酸化物(例えば、酸化チタン、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化亜鉛、三酸化アンチ)、ケイ酸塩(例えば、タルク、ケイ酸ナトリウム・アルミニウム、ケイ酸カルシウム等)、アルカリ土類金属の塩(例えば、炭酸カルシウム、硫酸カルシウム等)などを挙げることができる。窒化ホウ素(BN)は、本発明の熱可塑性組成物中において用いると特に有益であることが分かった。窒化ホウ素は、種々の異なる結晶形(例えば、h・BN・六方晶、c・BN・立方晶又は閃亜鉛鉱、及びw・BN・ウルツ鉱)で存在し、いずれも一般的に本発明において用いることができる。六方晶の結晶形がその安定性及び柔軟性のために特に好適である。

### [0088]

# C.他の添加剤:

[0053] 成 核 剤 及 び ポ リ ア リ ー レン ス ル フ ィ ド に 加 え て 、 熱 可 塑 性 組 成 物 に は そ の 全 体 的

10

20

30

20

30

40

50

な特性を向上させることを助ける種々の他の異なる成分を含ませることもできる。例えば 一態様においては、少なくとも1種類の耐衝撃性改良剤を組成物中において用いて、その 機械特性を向上させることを助けることができる。好適な耐衝撃性改良剤の例としては、 例えば、ポリエポキシド、ポリウレタン、ポリブタジエン、アクリロニトリル・ブタジエ ン - スチレン、ポリシロキサン等、並びにこれらの混合物を挙げることができる。 1 つの 特定の態様においては、分子あたり少なくとも2つのオキシラン環を含むポリエポキシド 改良剤を用いる。ポリエポキシドは、末端エポキシ基、骨格オキシラン単位、及び/又は 懸垂エポキシ基を含む線状又は分岐のホモポリマー又はコポリマー(例えば、ランダム、 グラフト、ブロック等)であってよい。かかるポリエポキシドを形成するのに用いるモノ マーは変化してよい。例えば、1つの特定の態様においては、ポリエポキシド改良剤は少 なくとも1つのエポキシ官能性(メタ)アクリルモノマー成分を含む。「(メタ)アクリ ル」という用語は、アクリル及びメタクリルモノマー、並びにアクリレート及びメタクリ レートモノマーのようなその塩又はエステルを包含する。好適なエポキシ官能性(メタ) アクリルモノマーとしては、グリシジルアクリレート及びグリシジルメタクリレートのよ うな1,2-エポキシ基を含むものを挙げることができるが、これらに限定されない。他 の好適なエポキシ官能性モノマーとしては、アリルグリシジルエーテル、グリシジルエタ クリレート、及びグリシジルイタコネートが挙げられる。

#### [0089]

[0054] 所望の場合には、所望の溶融粘度を達成するのを助けるために更なるモノマーを ポリエポキシド中において用いることもできる。かかるモノマーは変化してよく、例えば 、エステルモノマー、(メタ)アクリルモノマー、オレフィンモノマー、アミドモノマー 等を挙げることができる。例えば、1つの特定の態様においては、ポリエポキシド改良剤 に、2~20個の炭素原子、好ましくは2~8個の炭素原子を有するもののような少なく とも 1 種類の線状又は分岐の ・オレフィンモノマーを含ませる。具体例としては、エチ レン、プロピレン、1‐ブテン;3‐メチル‐1‐ブテン;3,3‐ジメチル‐1‐ブテ ン;1-ペンテン;1以上のメチル、エチル、又はプロピル置換基を有する1-ペンテン ; 1 以上のメチル、エチル、又はプロピル置換基を有する 1 - ヘキセン; 1 以上のメチル 、エチル、又はプロピル置換基を有する1-ヘプテン;1以上のメチル、エチル、又はプ ロピル置換基を有する1-オクテン;1以上のメチル、エチル、又はプロピル置換基を有 する1-ノネン;エチル、メチル、又はジメチル置換1-デセン;1-ドデセン;及びス チレン;が挙げられる。特に望ましい - オレフィンコモノマーはエチレン及びプロピレ ンである。本発明の1つの特に望ましい態様においては、ポリエポキシド改良剤は、エポ キシ官能性(メタ)アクリルモノマー成分及び - オレフィンモノマー成分から形成され るコポリマーである。例えば、ポリエポキシド改良剤はポリ(エチレン・co‐グリシジ ルメタクリレート)であってよい。本発明において用いることができる好適なポリエポキ シ ド 改 良 剤 の 1 つ の 具 体 例 は 、 Arkema か ら Lotader ( 登 録 商 標 ) AX8840 の 名 称 で 商 業 的 に 入手できる。Lotader (登録商標) AX8950は、5g/10分のメルトフローレートを有し 、8重量%のグリシジルメタクリレートモノマー含量を有する。

# [0090]

[0055] 熱可塑性組成物の機械特性を向上させるために用いることができる更に他の好適な添加剤は有機シランカップリング剤である。カップリング剤は、例えば、ビニルアルコキシシラン、エポキシアルコキシシラン、アミノアルコキシシラン、メルカプトアルコキシシラン、及びこれらの組み合わせのような当該技術において公知の任意のアルコキシシランカップリング剤であってよい。アミノアルコキシシラン化合物は、通常は、式:R5-Si-(R6)3(式中、R5-は、NH2のようなアミノ基;約1~約10個の炭素原子、又は約2~約5個の炭素原子のアミノアルキル、例えばアミノメチル、アミノエチル、アミノプロピル、アミノブチルなど;約2~約10個の炭素原子のアルケン、例えばエチレン、プロピレン、ブチレンなど;及び約2~約10個の炭素原子、又は約2~約5個の炭素原子のアルキン、例えばエチン、プロピン、ブチンなどからなる群から選択され;R6-は、約1~約10原子、又は約2~約5個の炭素原子

20

30

40

50

のアルコキシ基、例えばメトキシ、エトキシ、プロポキシなどである)を有する。一態様においては、 R 5 は、アミノメチル、アミノエチル、アミノプロピル、エチレン、エチン、プロピレン、及びプロピンからなる群から選択され、 R 6 は、メトキシ基、エトキシ基、及びプロポキシ基からなる群から選択される。他の態様においては、 R 5 は、約2 ~ 約10個の炭素原子のアルケン、例えばエチレン、プロピレン、ブチレンなど、並びに約2~約10個の炭素原子のアルキン、例えばエチン、プロピン、ブチンなどからなる群から選択され、 R 6 は、約1~約10原子のアルコキシ基、例えばメトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基などである。また、種々のアミノシランの組み合わせを混合物中に含ませることもできる。

### [0091]

[0056] 混合物中に含ませることができるアミノシランカップリング剤の幾つかの代表例 としては、アミノプロピルトリエトキシシラン、アミノエチルトリエトキシシラン、アミ ノプロピルトリメトキシシラン、アミノエチルトリメトキシシラン、エチレントリメトキ シシラン、エチレントリエトキシシラン、エチントリメトキシシラン、エチントリエトキ シシラン、アミノエチルアミノプロピルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルトリエ トキシシラン、3-アミノプロピルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルメチルジメ トキシシラン又は 3 - アミノプロピルメチルジエトキシシラン、 N - (2 - アミノエチル ) - 3 - アミノプロピルトリメトキシシラン、N - メチル - 3 - アミノプロピルトリメト キシシラン、N - フェニル - 3 - アミノプロピルトリメトキシシラン、ビス(3 - アミノ プロピル)テトラメトキシシラン、ビス(3-アミノプロピル)テトラエトキシジシロキ サン、及びこれらの組み合わせが挙げられる。アミノシランはまた、アミノアルコキシシ ラン、例えば - アミノプロピルトリメトキシシラン、 - アミノプロピルトリエトキシ シラン、 - アミノプロピルメチルジメトキシシラン、 - アミノプロピルメチルジエト キシシラン、N - ( - アミノエチル) - - アミノプロピルトリメトキシシラン、N -フェニル - アミノプロピルトリメトキシシラン、 - ジアリルアミノプロピルトリメ トキシシラン、及び - ジアリルアミノプロピルトリメトキシシランであってもよい。 1 つの好適なアミノシランは、Degussa、Sigma Chemical Company、及びAldrich Chemical Companyから入手できる3 - アミノプロピルトリエトキシシランである。

# [ 0 0 9 2 ]

[0057] また、所望の特性及び/又は色を達成するのを助けるために、熱可塑性組成物中 において充填剤を用いることもできる。用いる場合には、かかる無機充填剤は、通常は、 熱 可 塑 性 組 成 物 の 約 5 重 量 % ~ 約 6 0 重 量 % 、 幾 つ か の 態 様 に お い て は 約 1 0 重 量 % ~ 約 5 0 重量%、幾つかの態様においては約1 5 重量%~約4 5 重量%を構成する。クレイ鉱 物は本発明において用いるのに特に好適な可能性がある。かかるクレイ鉱物の例としては 、 例えば、 タルク( M g  $_3$  S i  $_4$  O  $_1$   $_0$  ( O H )  $_2$  )、 ハロイサイト( A l  $_2$  S i  $_2$  O  $_5$ ( O H )  $_4$  ) 、  $_5$   $_4$  ) 、  $_5$   $_5$  ( O H )  $_4$  ) 、  $_4$  ) 、  $_4$   $_5$   $_5$  ( O H )  $_4$  ) 、  $_4$   $_5$   $_5$ ) ( A l , M g , F e ) <sub>2</sub> ( S i , A l ) <sub>4</sub> O <sub>1 0</sub> [ ( O H ) <sub>2</sub> , ( H <sub>2</sub> O ) ] )、モン モリロナイト(Na, Ca)<sub>0,33</sub>(Al, Mg)<sub>2</sub>Si<sub>4</sub>O<sub>10</sub>(OH)<sub>2</sub>·nH<sub>2</sub>  $H_{2}O$ )  $\times$   $\mathcal{N}$   $\mathcal{N}$  、パイロフィライト( A 1  $_2$  S i  $_4$  O  $_1$   $_0$  ( O H )  $_2$  )等、並びにこれらの組み合わせが 挙げられる。クレイ鉱物の代わりか又はそれに加えて、更に他の無機充填剤を用いること もできる。例えば、ケイ酸カルシウム、ケイ酸アルミニウム、マイカ、珪藻土、珪灰石な どのような他の好適なシリケート充填剤を用いることもできる。例えば、マイカは本発明 において用いるのに特に好適な鉱物である可能性がある。地質学的存在状態における相当 な相違を有する幾つかの化学的に異なるマイカ種が存在するが、全て実質的に同じ結晶構 造を有する。本明細書において用いる「マイカ」という用語は、モスコバイト(KA1ヵ ドライト ( K ( L i , A l )  $_{2}$   $_{-3}$  ( A l S i  $_{3}$  ) O  $_{1}$   $_{0}$  ( O H )  $_{2}$  )、グローコナイト

(K,Na)(Al,Mg,Fe) $_2$ (Si,Al) $_4$ O $_1$  $_0$ (OH) $_2$ )等、並びにこれらの組み合わせのような任意のこれらの種を総称的に包含すると意図される。

# [0093]

[0058]また、熱可塑性組成物中において繊維充填剤を用いることもできる。用いる場合には、かかる繊維充填剤は、通常は、熱可塑性組成物の約5重量%~約60重量%、幾つかの態様においては約15重量%~約50重量%、幾つかの態様においては約15重量%~約45重量%を構成する。繊維充填剤としては、限定なしにポリマー繊維、ガラス繊維、炭素繊維、金属繊維など、又は複数の繊維タイプの組み合わせなどの1以上の繊維タイプを挙げることができる。一態様においては、繊維はガラス短繊維又はガラス繊維粗紡糸(トウ)であってよい。繊維の直径は、用いる特定の繊維によって変化してよく、短繊維形態又は連続形態のいずれかで入手できる。繊維は、例えば、約100μm未満、例えば約50μm~約50μm~約50μm、例えば約5μm~約15μmの繊維径を有していてよい。

# [0094]

[0059]また、実質的に分解することなくポリ(アリーレンスルフィド)の加工条件(通 常は約290~約320)に耐えることができる潤滑剤を、熱可塑性組成物中におい て用いることもできる。かかる潤滑剤の代表例としては、脂肪酸エステル、その塩、エス テ ル 、 脂 肪 酸 ア ミ ド 、 有 機 ホ ス フ ェ ー ト エ ス テ ル 、 及 び エ ン ジ ニ ア リ ン グ プ ラ ス チ ッ ク 材 料の加工において潤滑剤として通常的に用いられているタイプの炭化水素ワックスが挙げ られ、これらの混合物が包含される。好適な脂肪酸は、通常は、ミリスチン酸、パルミチ ン酸、ステアリン酸、アラキン酸、モンタン酸、オクタデカン酸、パリナリン酸などのよ うに、約12~約60個の炭素原子の骨格炭素鎖を有する。好適なエステルとしては、脂 肪酸エステル、脂肪アルコールエステル、ワックスエステル、グリセロールエステル、グ リコールエステル、及びコンプレックスエステルが挙げられる。脂肪酸アミドとしては、 脂肪酸第1級アミド、脂肪酸第2級アミド、メチレン及びエチレンビスアミド、並びにア ルカノールアミド、例えば、パルミチン酸アミド、ステアリン酸アミド、オレイン酸アミ ド、 N , N ' - エチレンビスステアラミドなどが挙げられる。ステアリン酸カルシウム、 ステアリン酸亜鉛、ステアリン酸マグネシウムなどのような脂肪酸の金属塩;パラフィン ワックス、ポリオレフィン及び酸化ポリオレフィンワックス、並びに微結晶質ワックスな どの炭化水素ワックス;も好適である。特に好適な潤滑剤は、ステアリン酸の酸、塩、又 はアミド、例えばペンタエリトリトールテトラステアレート、カルシウムステアレート、 又はN,N'-エチレンビスステアラミドである。用いる場合には、1種類又は複数の潤 滑剤は、通常は、熱可塑性組成物の約0.05重量%~約1.5重量%、幾つかの態様に おいては約0.1重量%~約0.5重量%を構成する。

# [0095]

[0060] 熱可塑性組成物中において用いることができる更に他の添加剤はジスルフィド化合物である。いかなる特定の理論にも縛られることは望まないが、ジスルフィド化合物は、溶融加工中にポリアリーレンスルフィドとのポリマー開裂反応を起こすことができ、これにより組成物の全体的な溶融粘度が更に低下する。用いる場合には、ジスルフィド化合物は、通常は組成物の約0.01重量%~約3重量%、幾つかの態様においては約0.02重量%~約1重量%、幾つかの態様においては約0.05~約0.5重量%を構成する。また、ポリアリーレンスルフィドの量とジスルフィド化合物の量との比は、約1000:1~約10:1、約500:1~約20:1、又は約400:1~約30:1であってよい。好適なジスルフィド化合物は、通常は、次式:

R<sup>3</sup>-S-S-R<sup>4</sup>

を有するものである。

### [0096]

[0061] 上式中、R $^3$  及びR $^4$  は、同一か又は異なっていてよく、独立して 1 $^{\circ}$  ~約 2 $^{\circ}$  0 個の炭素を含む炭化水素基である。例えば、R $^3$  及び R $^4$  は、アルキル、シクロアルキル、アリール、又は複素環式基であってよい。幾つかの態様においては、R $^3$  及び R $^4$  は、一

10

20

30

40

20

30

40

50

般に、フェニル、ナフチル、エチル、メチル、プロピル等のような非反応性官能基である。かかる化合物の例としては、ジフェニルジスルフィド、ナフチルジスルフィド、ジメチルジスルフィド、ジエチルジスルフィド、及びジプロピルジスルフィドが挙げられる。R3及びR4はまた、ジスルフィド化合物の1つ又は複数の末端における反応性官能基とにしていてもよい。例えば、R3及びR4の少なくとも1つは、末端カルボキシル基、ヒドロキシル基、置換アミノ基、ニトロ基などを含んでいてよい。化合物の例としては、限定なしに、2,2~・ジアミノジフェニルジスルフィド、3,3~・ジアミノジフェニルジスルフィド、ジルジスルフィド、ジチオグリコール酸、 , ・・ジチオジ乳酸、 , ・・ジチオジ乳酸、 , ・・ジチオジ乳酸、 , ・・ジチオビス(ベンゾチアゾール)、2,2~・ジチオビス(ベンズイミダゾール)、2,2~・ジチオビス(ベンゾオキサゾール)、及び2・(4~・モルホリノジチオ)ベンゾチアゾールを挙げることができる。

# [0097]

[0062]組成物中に含ませることができる更に他の添加剤としては、例えば、抗菌剤、顔料、酸化防止剤、安定剤、界面活性剤、ワックス、流動促進剤、固体溶媒、並びに特性及び加工性を向上させるために加える他の材料を挙げることができる。

#### [0098]

[0063] 成 核 系 、 ポ リ ア リ ー レン ス ル フ ィ ド 、 及 び 他 の 随 意 的 な 添 加 剤 を 混 合 す る 方 法 は 、当該技術において公知なように変化させることができる。例えば、材料は、材料を分散 してブレンドする溶融加工装置に同時か又は順々に供給することができる。バッチ及び/ 又は連続溶融加工技術を用いることができる。例えば、ミキサー/ニーダー、バンバリー ミキサー、ファレル連続ミキサー、一軸押出機、二軸押出機、ロールミル等を用いて、材 料をブレンド及び溶融加工することができる。1つの特に好適な溶融加工装置は、同時回 転二軸押出機(例えば、Leistritz同時回転完全噛み合い二軸押出機)である。かかる押 出機には供給及び排出口を含ませることができ、高強度分配分散混合を与えることができ る。 例えば、ポリアリーレンスルフィド及び成核剤を、二軸押出機の同一か又は異なる供 給口に供給し、溶融ブレンドして実質的に均一な溶融混合物を形成することができる。溶 融ブレンドは、高剪断/加圧及び加熱下で行って十分な分散を確保することができる。例 えば、溶融加工は、約50~約500、幾つかの態様においては約100~約25 0 の温度で行うことができる。更に、溶融加工中のみかけ剪断速度は、約100秒<sup>1</sup> ~ 約 1 0 , 0 0 0 秒 <sup>- 1</sup> 、 幾 つ か の 態 様 に お い て は 約 5 0 0 秒 <sup>- 1</sup> ~ 約 1 , 5 0 0 秒 <sup>- 1</sup> の範囲にすることができる。勿論、所望の均一度を達成するために、溶融加工中の滞留時 間(これは処理速度に逆比例する)のような他の変数を制御することもできる。

# [0099]

[0064]溶融ブレンドに加えて、成核剤とポリアリーレンスルフィドを混合するために他の技術を用いることもできる。例えば、成核剤の1以上を、ポリアリーレンスルフィドの重合の1以上の段階中に供給することができる。例えば、芳香族アミドオリゴマーを重合装置に加えることもできる。それは任意の時点で導入することができるが、通常は重合を開始する前に、通常はポリアリーレンスルフィドに関する前駆体モノマーと共にオリゴマーを供給することが望ましい。反応混合物は、一般に重合反応容器内で昇温温度に加熱して反応物質の溶融重合を開始させる。

### [0100]

[0065] それらを一緒に混合する方法に関係なく、結晶化度及び結晶化速度を、本発明の成核系によって大きく向上させることができる。例えば、熱可塑性組成物(成形前)の結晶化ポテンシャルは、約55%以上、幾つかの態様においては約65%以上、幾つかの態様においては約75%~約95%にすることができる。結晶化ポテンシャルは、融解潜熱(Hf)から結晶化潜熱(Hc)を減じ、この差を融解潜熱で割り、次に100をかけることによって求めることができる。融解潜熱(Hf)及び結晶化潜熱(Hc)は、当該技術において周知なように、ISO標準規

格10350にしたがって示差走査熱量測定法(DSC)によって求めることができる。結晶化潜熱は、例えば約15ジュール/グラム(J/g)以下、幾つかの態様においては約12J/g以下、幾つかの態様においては約1~約5J/gにすることができる。また、融解潜熱は、約15ジュール/グラム(J/g)以上、幾つかの態様においては約20J/g以上、幾つかの態様においては約22」/g以上、幾つかの態様においては約22~約28J/gにすることができる。

[0102]

[0101]

[0067] 本発明の熱可塑性組成物はまた、優れた機械特性を有することも分かった。例え ば、本組成物は小さい部品を形成する場合に有用な高い衝撃強さを有することができる。 本組成物は、例えば、ISO試験No.180(ASTM-D256方法Aと技術的に同 等である)にしたがって23 において測定して、約4kJ/m<sup>2</sup>より高く、幾つかの態 様 に お い て は 約 5 ~ 約 4 0 k J / m ² 、 幾 つ か の 態 様 に お い て は 約 6 ~ 約 3 0 k J / m ² のノッチ付きアイゾッド衝撃強さを有することができる。本組成物の引張及び曲げ機械特 性もまた良好である。例えば、本熱可塑性組成物は、約20~約500MPa、幾つかの 態 様 に お い て は 約 5 0 ~ 約 4 0 0 M P a 、 幾 つ か の 態 様 に お い て は 約 1 0 0 ~ 約 3 5 0 M P a の 引 張 り 強 さ ; 約 0 . 5 % 以 上 、 幾 つ か の 態 様 に お い て は 約 0 . 6 % ~ 約 1 0 % 、 幾 つかの態様においては約0.8%~約3.5%の引張破壊歪み;及び/又は約5,000 M P a ~ 約 2 5 , 0 0 0 M P a 、 幾 つ か の 態 様 に お い て は 約 8 , 0 0 0 M P a ~ 約 2 2 , 000MPa、幾つかの態様においては約10,000MPa~約20,000MPaの 引張弾性率;を示すことができる。引張特性は、ISO試験No.527(ASTM-D 6 3 8 と技術的に同等である)にしたがって 2 3 において測定することができる。本熱 可 塑 性 組 成 物 は ま た 、 約 2 0 ~ 約 5 0 0 M P a 、 幾 つ か の 態 様 に お い て は 約 5 0 ~ 約 4 0 0 M P a 、 幾つかの態様においては約100~約350 M P a の曲げ強さ;約0.5%以 上、幾つかの態様においては約0.6%~約10%、幾つかの態様においては約0.8% ~ 約3 . 5 % の曲げ破壊歪み;及び/又は約5 , 0 0 0 M P a ~ 約2 5 , 0 0 0 M P a 、 幾 つ か の 態 様 に お い て は 約 8 , 0 0 0 M P a ~ 約 2 2 , 0 0 0 M P a 、 幾 つ か の 態 様 に お いては約10,000MPa~約20,000MPaの曲げ弾性率;も示すことができる 。 曲 げ 特 性 は 、 ISO 試 験 No . 1 7 8 ( ASTM-D79 0と 技 術 的 に 同 等 で あ る ) に したがって23 において測定することができる。

# [0103]

### II.成形部品:

[0068]本発明の熱可塑性組成物は、小さい寸法公差を有する射出成形部品において用いるのに特に良く適している。例えば、当該技術において公知なように、射出は2つの主要段階、即ち射出段階及び保持段階で行うことができる。射出段階中においては、金型キャ

10

20

30

40

20

30

40

50

ビティを溶融した熱可塑性組成物で完全に満たす。保持段階は射出段階が完了した後に開始し、保持圧を制御して更なる材料をキャビティ中に充填して、冷却中に起こる体積収縮を補う。ショットが形成されたら、それを次に冷却することができる。冷却が完了したら、成形サイクルを終了し、この時点で金型を開放し、例えば金型内の排出ピンを用いて部品を排出する。

### [0104]

[0069]本発明においては、一般に任意の好適な射出成形装置を用いることができる。例 えば図1を参照すると、本発明において用いることができる射出成形装置又は用具10の 一態様が示されている。この態様においては、装置10は、第1の金型基部12及び第2 の金型基部14を含み、これらは一緒になって物品又は部品を画定する金型キャビティ1 6 を画定する。成形装置10はまた、第1の金型半部分12の外側の外表面20からスプ ルー22を通って金型キャビティ16に伸長している樹脂流路も含む。樹脂流路にはラン ナー及びゲートも含ませることができ、これらは両方とも単純にする目的のために示して いない。熱可塑性組成物は、種々の技術を用いて樹脂流路に供給することができる。例え ば、熱可塑性組成物は、回転スクリュー(図示せず)を含む押出機バレルに取り付けられ ている供給ホッパーに(例えばペレットの形態で)供給することができる。スクリューが 回転するにつれてペレットは前方へ移動して圧力及び摩擦を受けて、これによって熱が発 生してペレットが溶融する。また、押出機バレルと連通している加熱媒体によって更なる 熱を組成物に与えることもできる。また、装置10の閉止位置において金型キャビティ1 6を画定する第2の金型半部分14内に滑動可能に固定されている1以上の排出ピン24 を用いることもできる。排出ピン24は周知の形態で操作して、成形装置10の開放位置 においてキャビティ16から成形部品を取り出すことができる。

# [0105]

[0070]また、冷却機構を与えて金型キャビティ内の樹脂を固化させることもできる。例えば図1においては、金型基部12及び14はそれぞれ1以上の冷却ライン18を含んでおり、これを通して冷却媒体を流して、溶融した材料を固化させるために金型基部のに所望の金型温度を与える。本熱可塑性組成物の独特の結晶化特性のために、同等の結晶化度をなお達成しながら成形サイクル中の「冷却時間」を実質的に減少て求められる「標準化冷却時間は、全冷却時間を成形部品の平均厚さで割ることに減少で表すことができる。本発明の結果として、例えば、標準化冷リメートル、幾つかの態様においては約0.5~約6秒/ミリメートルの範囲にすることができる。代表的な冷却時間は、組成物を金型キャビティ中に射出することができる。代表的な冷却時間は、分の影様においては約5~約40秒間、幾つかの態様においては約10~約35秒間の範囲にすることができる。

# [0106]

[0071] 成形サイクルのために必要な冷却時間を最小にすることに加えて、本発明の方法及び組成物によって、同等の結晶化度をなお達成しながら部品をより低い温度で成形することを可能にすることもできる。例えば、金型温度(例えば金型の表面の温度)を、約50~約120、幾つかの態様においては約60~約110、幾つかの態様においては約70~約90にすることができる。成形操作のためのエネルギー必要量を最小にすることに加えて、かかる低い金型温度を、幾つかの従来の技術よりも低腐食性で安価である冷却媒体を用いて達成することができる。例えば、冷却媒体として液体水を用いることができる。

# [0107]

[0072]用いる成形技術に関係なく、高い流動性及び良好な機械特性の独特の組合せを有する本発明の熱可塑性組成物は、小さい寸法公差を有する部品のために特に良く適していることが分かった。例えば、本熱可塑性組成物は電子部品において用いるための部品に成形することができる。この部品は、約100ミリメートル以下、幾つかの態様においては

20

30

40

50

約50ミリメートル以下、幾つかの態様においては約100マイクロメートル~約10ミリメートル、幾つかの態様においては約200マイクロメートル~約1ミリメートルの厚さを有する平面状の基材の形態であってよい。或いは、この部品は単純に上述の厚さ範囲内の幾つかの部分(例えば壁部、突起部等)を有していてよい。かかる成形部品を用いることができる電子部品の例としては、例えば、携帯電話、ラップトップコンピューター、小型ポータブルコンピューター(例えば超軽量型コンピューター、ネットブックコンピューター、及びタブレットコンピューター)、腕時計型機器、ペンダント型機器、ヘッドホン又はイヤホン型機器、無線通信機能を有するメディアプレイヤー、携帯型コンピューター(時には携帯情報端末とも呼ばれる)、リモートコントローラー、全地球測位システム(GPS)機器、携帯ゲーム機器、バッテリーカバー、スピーカー、カメラモジュール、集積回路(例えばSIMカード)等が挙げられる。

[0108]

[0073]しかしながら、無線電子機器が特に好適である。好適な無線電子機器の例としては、デスクトップコンピューターまたは他のコンピューター装置、ラップトップコンピューターのカータブルコンピューターのポータブルコンピューターのようなポータブル電子機器を挙げることができる。1つの好適な配置においては、ポータブル電子機器は携帯型の電子機器であってよい。ポータブル携帯型コンピューター(時には携帯電話、無線通信機能を有するメディアプレイヤー、携帯型コンピューター(GPS)機器、及び携帯ゲーム機器を挙げることができる。この機器はまた、複数の従来の機器の機能を合わせた複合型機器であってもよい。複合型機器の例としては、メディアプレイヤーの機能を含む携帯電話、無線通信機能を含むゲーム機器、ゲーム及びeメール機能を含む携帯電話、並びに、eメールを受信し、携帯電話の呼び出しをサポートし、音楽プレイヤーの機能を有し、ウエブ閲覧をサポートする携帯機器が挙げられる。

[0109]

[0074] 図 2 ~ 3 を参照すると、電子機器100の1つの特定の態様をポータブルコンピ ューターとして示す。電子機器100は、液晶ダイオード(LCD)ディスプレイ、有機 発光ダイオード(OLED)ディスプレイ、プラズマディスプレイ、又は任意の他の好適 なディスプレイのようなディスプレイ部材103を含む。示されている態様においては、 機 器 はラップトップコンピューターの形態 であり、 したがってディスプレイ部材103は 基部部材106に回転可能に接続されている。しかしながら、基部部材106は随意的で あり、機器がタブレットポータブルコンピューターの形態である場合のような他の態様に おいては取り除くことができることを理解すべきである。しかしながら、図2~3に示さ れ る 態 様 に お い て は 、 デ ィ ス プ レ イ 部 材 1 0 3 及 び 基 部 部 材 1 0 6 は 、 そ れ ぞ れ 電 子 機 器 100の1以上の部品を保護及び/又は支持するためのハウジング(それぞれ86及び8 8 ) を含む。ハウジング 8 6 は例えばディスプレイスクリーン 1 2 0 を支持することがで き、基部部材106には、種々のユーザーインターフェース部品のための空洞部及びイン ターフェース(例えばキーボード、マウス、及び他の周辺機器への接続手段)を含ませる ことができる。本発明の熱可塑性組成物は一般に電子機器100の任意の部分を形成する ために、例えば冷却ファンを形成するために用いることができるが、通常はハウジング8 6 及び / 又は 8 8 の全部又は一部を形成するために用いる。例えば、機器がタブレットポ ータブルコンピューターである場合には、ハウジング88は存在させなくてよく、本熱可 塑性組成物はハウジング86の全部又は一部を形成するために用いることができる。しか しながら、本発明によって達成される独特の特性のために、1つ又は複数のハウジング或 いは1つ又は複数のハウジングの部分は、上述の範囲内のような非常に小さい壁厚さを有 するように成形することができる。

[0110]

[0075] 明示してはいないが、機器100にはまた、記憶装置、処理回路、及び入力・出力コンポーネントのような当該技術において公知の回路を含ませることもできる。回路内の無線送受信機回路を用いて、高周波(RF)信号を送信及び受信することができる。同

軸通信路及びマイクロストリップ通信路のような通信路を用いて、送受信機回路とアンテナ構造体との間で高周波信号を伝達することができる。通信路を用いて、アンテナ構造体と回路との間で信号を伝達することができる。通信路は、例えばRF送受信機(時にはラジオと呼ばれる)と多周波帯アンテナとの間を接続する同軸ケーブルであってよい。

### [0111]

[0076]本熱可塑性組成物によって、更に他の用途のための部品を形成することができる 。例えば、本発明の成形部品を含ませることができる1つの部品は、液体ポンプ(例えば 水ポンプ)である。液体ポンプは、ダイレクトリフトポンプ、容積式ポンプ(例えば、回 転 式 、 往 復 式 、 又 は リ ニ ア 式 ) 、 タ ー ボ 形 ポン プ ( 例 え ば 遠 心 式 ) 、 重 力 ポン プ 等 で あ っ てよい。ターボ形ポンプ(回転するインペラー、プロペラ、又はローターによってポンプ 移送されている流体にエネルギーを連続的に与える)が特に好適である。例えば、遠心式 ポンプにおいては、流体は、回転軸に沿ってか又はその近傍でポンプインペラーに導入し て、インペラーによって加速して、ディフューザー又は渦形室中に放射状に外へ向かって 流動させ、それから下流の配管中に排出する。このようなポンプは、自動車用途において エンジンを通して冷却液を移動させるためにしばしば用いられる。自動車エンジンに付随 する高い温度のために、本発明の熱可塑性組成物はこのような自動車冷却システムの遠心 形ポンプにおいて用いるのに特によく適している。例えば、幾つかの態様においては、水 インペラーの全部又は一部 ( 例えばブレード ) を、本発明の熱可塑性組成物から形成する ことができる。遠心式ポンプはまた、一般にポンプの幾つかの部品を収容して、それらを 熱、 腐食等から保護するハウジングも含む。 幾つかの態様においては、ハウジングの一部 又は全部を本発明の熱可塑性組成物から形成することができる。

#### [ 0 1 1 2 ]

[0077]図4を参照すると、本発明の熱可塑性組成物を用いることができる遠心式ポンプの1つの特定の例が示されている。示されている態様においては、ポンプは、ベアリング202を介してハウジング203上に支持されている回転シャフト201を含む。本発明の熱可塑性組成物を含ませることができるポンプインペラー204は、回転シャフト201の端部に堅く固定されている。プーリーハブ205も、回転シャフト201の基端部上に堅く固定されている。ベアリング202とポンプインペラー204との間に、ハウジング203の側部上に固定されている固定部材206a、及び回転シャフト201と固定で噛合している回転部材206bによって構成されているメカニカルシール206が形立されている。ポンプにはまた、本発明の熱可塑性組成物を含ませることができるハウジング207を含ませることもできる。ハウジング207は、渦形室208がその間に画定とれるように、ポンプハウジング203に(例えば締め付けボルトによって)固定することもできる。示してはいないが、吸引部分及び排出口をハウジング207内に与えることもできる。

### [0113]

[0078] 勿論、本熱可塑性組成物は水ポンプ又はその幾つかの部分の形成に限定されず、パイプ及びパイプの部分、フランジ、バルブ、バルブシート、シール材、センサーハウジング、サーモスタット、サーモスタットハウジング、誘導弁、ライニング、プロペラ、冷却ファンなどをはじめとする流体取扱いシステム中に含ませることができる全ての形態の部品の形成において用いることができる。

### [0114]

[0079]本発明は以下の実施例を参照してより良好に理解することができる。

# 【実施例】

# [0115]

### 試験法:

[0080]溶融粘度:溶融粘度は走査剪断速度粘度として求め、ISO試験No.11443(ASTM-D3835と技術的に同等である)にしたがって1200秒 <sup>1</sup> の剪断速度及び約316 の温度において、Dynisco 7001毛細管流量計を用いて測定した。流量計オリフィス(ダイ)は、1mmの直径、20mmの長さ、20.1のL/D比、及び18

10

20

30

40

(36)

0°の入口角を有していた。バレルの直径は9.55mm±0.005mmであり、ロッドの長さは233.4mmであった。

# [0116]

[0081] 熱特性: 熱特性は、ISO試験No. 1 1 3 5 7 にしたがって示差走査熱量測定 法(DSC)によって求めた。DSC手順においては、TA-Q100装置上で行うDSC測定 を用いて、ISO標準規格10350に示されているように試料を20 /分で加熱及び 冷却した。ペレット及び成形試料の両方に関して、加熱及び冷却プログラムは、チャンバ ーを 2 5 に平衡化することによって開始し、次に 2 0 /分の加熱速度での 3 2 0 温度への第1の加熱段階を行い、次に試料を320 において1分間平衡化し、次に20 / 分の冷却速度での50 の温度への第1の冷却段階を行い、次に試料を50 て 1 分間平衡化し、次に 2 0 / 分の加熱速度での 3 2 0 への第 2 の加熱段階を行う 2 サイクル試験であった。結果はTAソフトウエアプログラムを用いて評価し、溶融温度、吸 熱及び発熱ピーク、並びにDSCプロットにおけるピーク下の面積を同定及び定量した。 DSCプロットにおけるピーク下の面積は、試料1gあたりのジュール(J/g)として 求めた。例えば、樹脂又は成形試料の融解熱は、吸熱ピークの面積を積分することによっ て求められる。面積値は、コンピューターソフトウエアを用いてDSCプロット下の面積 ( 例えば吸熱の面積 ) をジュール / グラム ( J / g ) の単位に変換することによって求め られる。結晶化の発熱は、第1の冷却サイクル及び第2の加熱サイクル中において求める 。また、結晶化ポテンシャル(%)は次式:

結晶化ポテンシャル(%) = 1 0 0 × ( A - B ) / A (式中、

A は吸熱ピークの面積(例えば第1の融解熱)の合計であり;そして B は発熱ピークの面積(例えば結晶化前の融解熱)である) のようにして計算することができる。

# [0117]

[0082] 引張弾性率、引張応力、及び引張伸び:ISO試験No.527(ASTM-D638と技術的に同等である)にしたがって引張特性を試験した。80mmの長さ、10mmの厚さ、及び4mmの幅を有する同じ試験片試料について、弾性率及び強度の測定を行った。試験温度は23 であり、試験速度は1又は5mm/分であった。

### [0118]

[0083]曲げ弾性率、曲げ応力、及び曲げ歪み:ISO試験No.178(ASTM-D790と技術的に同等である)にしたがって曲げ特性を試験した。この試験は64mmの支持スパンに関して行った。試験は、未切断のISO-3167多目的棒材の中央部分について行った。試験温度は23 であり、試験速度は2mm/分であった。

### [0119]

[0084] ノッチ付きアイゾッド衝撃強さ:ISO試験No.180(ASTM-D256方法Aと技術的に同等である)にしたがってノッチ付きアイゾッド特性を試験した。この試験は、タイプAのノッチを用いて行った。試験片は、一枚歯フライス盤を用いて多目的棒材の中央部分から切り出した。試験温度は23 であった。

### [0120]

[0085]荷重撓み温度(DTUL):ISO試験No.75-2(ASTM-D648-07と技術的に同等である)にしたがって荷重撓み温度を測定した。80mmの長さ、10mmの厚さ、及び4mmの幅を有する試験片試料を、規定荷重(最大外繊維応力)が1.8MPaである沿層方向3点曲げ試験にかけた。試験片をシリコーン油浴中に降下させ、0.25mm(ISO試験No.75-2に関しては0.32mm)歪むまで温度を2/分で上昇させた。

#### [0121]

[0086] フラッシュ:フラッシュを求めるために、試料をまず 1 3 5 において 3 ~ 4 時間乾燥した。次に、以下の条件: 3 2 1 の溶融温度、 1 . 5 秒間の射出時間、 3 0 , 0 0 p s i の射出圧力、 1 , 0 0 0 p s i において 1 0 秒間の保持時間及び圧力、並びに

10

20

30

40

20秒間のスクリュー後退時間を用いて、試料を二重タブフラッシュ金型中に射出成形した。より詳しくは、試料は、0.5インチの1つのタブが1.5秒間で樹脂によって満たされ、0.75インチの他のタブが未充填のままであるように射出した。冷却した後、MediaCybernetics自動画像分析システムを用いて部品のフラッシュを測定した。

[0122]

N 1 , N 4 - ジフェニルテレフタルアミド: 化合物 A の合成: [0087]テレフタロイルクロリド及びアニリンからの化合物 A の合成は、次式:

[ 0 1 2 3 ]

【化18】

にしたがって行うことができる。

#### [0125]

[0088] 実験装置は、塔頂メカニカルスターラーと接続したガラスロッドスターラーを取り付けた2Lのガラスビーカーで構成されていた。ジメチルアセトアミド(DMAc)(3L)をビーカーに加え、ビーカーを氷浴中に浸漬して系を10~15 に冷却した。次に、連続的に撹拌しながらアニリン(481.6g)を溶媒に加え、得られた混合物を10~15 に冷却した。テレフタロイルクロリド(300g)を冷却した撹拌混合物に徐々に加えて、反応の温度が30 より低く維持されるようにした。酸塩化物を1~2時間かけて加え、その後、混合物を10~15 において更に3時間、次に室温において一晩撹拌した。反応混合物は乳白色(溶媒中の生成物の微細懸濁液)であり、濾紙及びブフナー漏斗を用いて真空濾過した。粗生成物をアセトン(2L)で洗浄し、次に熱水(2L)で洗浄した。次に生成物を室温において一晩空気乾燥し、次に真空オーブン内において150 で4~6時間乾燥した。生成物(464.2g)は高結晶質の白色の固体であった。融点は、示差走査熱量測定法(DSC)によって測定して346~348 であった。

[0126]

N 1 , N 4 - ジフェニルイソテレフタルアミド:化合物 B の合成: [0089]イソフタロイルクロリド及びアニリンからの化合物 B の合成は、次式:

[0127]

【化19】

[ 0 1 2 8 ]

にしたがって行うことができる。

#### [0129]

[0090]実験装置は、塔頂メカニカルスターラーと接続したガラスロッドスターラーを取り付けた2Lのガラスビーカーで構成されていた。DMAc(1.5L)をビーカーに加え、ビーカーを氷浴中に浸漬して溶媒を10~15 に冷却した。次に、連続的に撹拌しながらアニリン(561.9g)を溶媒に加え、得られた混合物を10~15 に冷却した。イソフタロイルクロリド(350g、200gのDMAc中に溶解)を冷却した撹拌混合物に徐々に加えて、反応の温度が30 より低く維持されるようにした。酸塩化物を1時間かけて加え、その後、混合物を10~15 において更に3時間、次に室温において一晩撹拌した。反応混合物は乳白色の外観であった。1.5Lの蒸留水を加えることによって沈殿させ、次に濾紙及びブフナー漏斗を用いて真空濾過することによって生成物を回収した。次に粗生成物をアセトン(2L)で洗浄し、次に熱水(2L)で再び洗浄した

10

20

30

40

10

20

30

50

。次に生成物を室温において一晩空気乾燥し、次に真空オーブン内において150 で4~6時間乾燥した。生成物(522g)は白色の固体であった。融点は、DSCによって測定して290 であった。

### [0130]

N 4 - フェニル - N 1 - [ 4 - [[ 4 - (フェニルカルバモイル)ベンゾイル]アミノ ]フェニル]テレフタルアミド:化合物 E の合成:

[0091] 4 - アミノベンズアニリド及びテレフタロイルクロリドからの化合物 E の合成は、次式:

### [0131]

### 【化20】

### [0132]

にしたがって行うことができる。

### [0133]

[0092]実験装置は、塔頂メカニカルスターラーと接続したガラスロッドスターラーを取り付けた1Lのガラスビーカーで構成されていた。4・アミノベンズアニリド(20.9g)を加温したDMAc(250mL)(或いはN・メチルピロリドンを用いることもできる)中に溶解した。テレフタロイルクロリド(10g)を40~50 に維持したジアミンの撹拌溶液に加え、酸塩化物を加えることによって反応温度は50~80 に上昇した。酸塩化物の添加が完了した後、反応混合物を70~80 に加温し、その温度に約3時間保持し、室温において一晩静置した。次に、水(500mL)を加え、次に真空濾過を行い、次に熱水(1L)で洗浄することによって生成物を単離した。次に、生成物を、真空オーブン内において150 で約6~8時間乾燥して、淡黄色の固体を与えた(収率約90%)。DSCによる融点は462 であった。

### [ 0 1 3 4 ]

N 1 , N 3 , N 5 - トリフェニルベンゼン - 1 , 3 , 5 - トリカルボキサミド:化合物 J の合成:

[0093]化合物」は、トリメソイルクロリド及びアニリンから次式:

## [0135]

# 【化21】

### [0136]

にしたがって合成することができる。

### [0137]

[0094] 実験装置は、塔頂メカニカルスターラーと接続したガラスロッドスターラーを取り付けた 2 L のガラスビーカーで構成されていた。トリメソイルクロリド ( 2 0 0 g ) を

ジメチルアセトアミド(DMAc)(1L)中に溶解し、氷浴によって10~20 に冷却した。アニリン(421g)を酸塩化物の撹拌溶液に1.5~2時間かけて滴加した。アミンの添加が完了した後、反応混合物を更に45分間撹拌し、その後、温度を90 に約1時間上昇させた。混合物を室温において一晩静置した。1.5Lの蒸留水を加えることによって沈殿させ、次に濾紙及びブフナー漏斗を用いて真空濾過することによって生成物を回収した。粗生成物をアセトン(2L)で洗浄し、次に熱水(2L)で再び洗浄した。次に生成物を室温において一晩空気乾燥し、次に真空オーブン内において150 で4~6時間乾燥した。生成物(250g)は白色の固体であり、DSCによって測定して319.6 の融点を有していた。

### [0138]

[0095]イソフタロイルクロリド及びシクロヘキシルアミンからの化合物 O 1 の合成は、 次式:

[0139]

## 【化22】



[0140]

にしたがって行うことができる。

# [0141]

実験装置は、塔頂メカニカルスターラーと接続したガラスロッドスターラーを取り付け た1Lのガラスビーカーで構成されていた。シクロヘキシルアミン(306g)を、室温 において、ジメチルアセトアミド(1L)(或いはN-メチルピロリドンを用いることも できる)及びトリエチルアミン(250g)中で混合した。次に、連続的に撹拌しながら イソフタロイルクロリド ( 2 5 0 g ) 1 . 5 ~ 2 時間かけてアミン溶液にゆっくりと加え た。酸塩化物の添加速度は、反応温度が60 未満に維持されるように保持した。ベンゾ イルクロリドの添加が完了した後、反応混合物を85~90 に徐々に加温し、次に約4 に冷却した。混合物を室温において一晩(少なくとも3時間)静置した。1. 5 L の 蒸 留 水 を 加 え る こ と に よ っ て 沈 殿 さ せ 、 次 に 濾 紙 及 び ブ フ ナ ー 漏 斗 を 用 い て 真 空 濾 過することによって生成物を回収した。次に、粗生成物をアセトン(250mL)で洗浄 し、熱水(500mL)で再び洗浄した。次に、生成物(収率約90%)を室温において 一晩空気乾燥し、次に真空オーブン内において150 で4~6時間乾燥した。生成物は 白色の固体であった。プロトンNMR特性分析は次の通りであった:<sup>1</sup>H-NMR(400MHz d。-DMSO): 8.3 (s, 2H, CONH), 8.22 (s, 1H, Ar), 7.9 (d, 2H, Ar), 7.5 (s, 1H, Ar), 3. 7 (ブロード s, 2H, シクロヘキシル), 1.95 -1.74 (ブロード s, 4H, シクロヘキシル) 及び1.34 -1.14 (m, 6H, シクロヘキシル)。

[0142]

実施例1:

[0096] 1 8 m m の直径を有するWerner Pfleiderer ZSK 25同時回転完全噛み合い二軸押 出機内において、下表 1 に示す成分を混合した。

[ 0 1 4 3 ]

10

20

30

### 【表1-5】

表1:試料成分

	FORTRON(登録商標)	化合物 A	化合物 B	化合物 E	化合物J
試料	0205 PPS (重量%)	(重量%)	(重量%)	(重量%)	(重量%)
対照	100	-	F	-	-
1	98.0	2.0	-	-	-
2	98.0	<u>.</u>	2.0	-	-
3	98.0	_	•	2.0	-
4	98.0	-	-	-	2.0

10

## [0144]

[0097] 試料 1 、 2 、 及び 4 から形成されたペレットの熱特性を求め、その結果を下表 2 に示す。

[0145]

## 【表2】

表2:熱特性

武料	MV (ポイズ)	結晶化前融点	結晶化前	第1加熱,	第1の	第2加熱, 融点	第2の副解熱	再結晶温度	再結晶	結晶化ポテン
		(°C)	(J/g)	(°C)	(J/g)	(°C)	(J/g)	(°C)	(J/g)	シャル (%)
対照	504	126.3	23.9	282.2	39.3	280.9	38.5	233.2	45.0	39
1	494	122.9	19.1	281.4	45.3	279.6	44.8	231.8	43.5	58
2	470	123.0	24.8	280.1	43.8	279.5	44.2	230.7	46.8	43
4	447	125.9	24.5	280.5	41.8	279.9	43.7	231.8	46.5	41

20

## [0146]

[0098]上記に示すように、芳香族アミドオリゴマーを加えると、結晶化ポテンシャルが増加し、結晶化温度(再結晶温度)が低下するという点で結晶化特性に影響を与えた。

30

# [ 0 1 4 7 ]

[0099]また、試料1、2、及び4を、Mannesmann Demag D100 NCIII射出成形機上で、 130 の金型温度においてTバーに成形した。熱特性を試験し、その結果を下表3に示す。

[ 0 1 4 8 ]

# 【表3】

表3:熱特性

	結晶化	結晶化前	第1加熱,	第1の	第2加熱,	第2の	再結晶	再結晶	結晶化
試料	前融点	融解熱	融点	融解熱	融点	融解熱	温度	融解熱	ポテンシャル
	(C)	(J/g)	(C)	(J/g)	(C)	(J/g)	(C)	(J/g)	(%)
対照	107.7	9.0	285.8	42.3	282.1	38.7	207.7	43.8	78.8
1	105.6	3.7	286.1	44.4	282.8	42.8	226.3	41.4	91.7
2	106.7	11.3	283.3	47.6	280.1	41.6	212.8	45.3	76.2
4	107.1	6.8	282.5	45.3	280.3	40.7	203.3	43.0	85.0

[0149]

[00100]ペレット及び成形試料は両方とも、芳香族アミドオリゴマー成核剤を加えることによって増加した結晶化ポテンシャルを示した。また、機械特性も試験し、その結果を

下表4に示す。

[0150]

【表4】

表4:機械特性

試料	引張弾性率 (1mm/分) (MPa)	引張応力 (5mm/分) (MPa)	引張歪み (5mm/分) (%)	曲げ弾性率 (MPa)	3.5%に おける 曲げ応力 (MPa)	アイゾッド ノッチ付き (kJ/m²)	DTUL (°C)
別照	3444	52.5	1.7	3539	118.7	4.1	109.4
1	3849	73.2	2.4	3847	124.9	3.9	113.5
2	3663	59.5	1.8	3716	-	3.4	101.8
4	3579	73.1	2.4	3707	124.8	3.3	104.7

# [0151]

## 実施例2:

[00101] 1 8 m m の直径を有するWerner Pfleiderer ZSK 25同時回転完全噛み合い二軸押出機内において、下表 5 に示す成分を混合した。

[ 0 1 5 2 ]

【表5】

表5:試料成分

試料	FORTRON(登録商標) 0205 PPS (重量%)	化合物 A (重量%)	化合物 E (重量%)
対照	100	_	-
5	99.5	0.5	-
6	98.0	2.0	-
7	97.0	3.0	-
8	98.0	-	2.0

# [0153]

[00102]形成されたら、試料をMannesmann Demag D100 NCIII射出成形機上でTバーに成形した。機械特性を試験し、その結果を下表 6 に示す。

[0154]

【表6】

表 6:機械特性

試料	MV (ポイス)	引張弾性率 (1mm/分) (MPa)	引張応力 (5mm/分) (MPa)	引張歪み (5mm/分) (%)	曲げ 弾性率 (MPa)	曲げ応力 (MPa)	アイツ ット ノッチ付き (kJ/m²)	DTUL (°C)
対照	504	3444	52.5	1.7	3539	118.7	4.1	109.4
5	522	3858	63.2	1.8	3847	119.0	3.1	109.5
6	494	3849	73.2	2.4	3847	124.9	3.9	113.5
7	457	4006	73.4	2.3	3923	125.2	3.5	118.1
8	551	3817	59.5	1.7	3798	129.3	2.8	112.1

10

20

30

40

### [0155]

### 実施例3:

[00103] 1 8 m m の直径を有するWerner Pfleiderer ZSK 25同時回転完全噛み合い二軸押出機内において、下表 7 に示す成分を混合した。

[0156]

【表7】

表7:試料成分

試料	FORTRON (登録商標) 0205 PPS (重量%)	化合物A (重量%)	化合物E (重量%)	窒化 ホウ素 (重量%)	Glycolube P (重量%)	アミノ シラン (重量%)	ガラス 繊維 (4mm) (重量%)
対照1	59.3	-	-	-	0.3	0.4	40.0
対照 2	59.1	-	-	0.2	0.3	0.4	40.0
9	58.7	0.6	-	-	0.3	0.4	40.0
10	58.5	0.6	-	0.2	0.3	0.4	40.0
11	58.1	1.2	-	_	0.3	0.4	40.0
12	58.1	-	1.2	-	0.3	0.4	40.0

[0157]

[00104]試料から形成されたペレットの熱特性を求め、その結果を下表 8 に示す。

[ 0 1 5 8 ]

【表8】

表8:熱特性

	MV	結晶化前	結晶化前	第1加熱	第1の	第2加熱	第2の	再結晶	再結晶	結晶化
試料	(ポイズ)	融点	融解熱	融点	融解熱	融点	副解熱	温度	副解熱	ポテンシャル
		(°C)	(J/g)	(°C)	(J/g)	(°C)	(J/g)	(°C)	(J/g)	(%)
対照1	2648	126.1	11.1	280.9	22.7	277.4	22.2	214.3	23,1	51.1
対照 2	2590	124.8	8.2	281.0	21.3	280.8	21.4	236.5	23.6	61.4
9	2756	124.5	6.5	281.2	22.7	280.0	20.0	230.5	23.5	71.2
10	2740	122.7	10.3	279.9	24,1	280.1	22.1	237.3	24.5	83.3
11	2434	124.4	10.3	279.9	24.8	278.8	22.6	230.4	23.5	58.8
12	2358	121.8	8.2	282.2	22.2	279.1	21.2	226.3	23.9	63.2

### [0159]

[00105]上記に示すように、芳香族アミドオリゴマーのみを加えると(試料 9 、 1 1 、及び 1 2 )、成核剤を含まなかった対照 1 と比べて結晶化ポテンシャルが増加するという点で結晶化特性に影響を与えた。窒化ホウ素及び芳香族オリゴマーを含んでいた試料 1 0 も、対照 1 と比べて 8 3 . 3 % の特別に高い結晶化ポテンシャルを示した。驚くべきことに、これは、芳香族アミドオリゴマーのみを含む試料(試料 9 、 1 1 、及び 1 2 )、並びに窒化ホウ素のみを含む試料(対照 2 )よりも遙かに高かった。

### [0160]

[00106]また、ペレットをMannesmann Demag D100 NCIII射出成形機上でTバーに成形した。熱特性を試験し、その結果を下表9に示す。

[0161]

10

20

30

### 【表9】

表9:熱特性

	結晶化	結晶化	第1加熱,	第1の	第2加熱,	第2の	再結晶	再結晶	結晶化	フラッシュ
試料	前融点	前融解	融点	融解熱	融点	融解熱	温度	融解熱	ポ テンシャル	
	(C)	熱(J/g)	(C)	(J/g)	(C)	(J/g)	(C)	(J/g)	(%)	(mm)
分照1	105.7	2.6	281.8	23.4	277.8	22.4	217.1	24.9	88.9	0.21
対照 2	105.0	3.2	281.2	23.7	281.2	21.9	239.9	24.5	86.4	0.17
9	104.7	2.7	281.7	23.6	279.8	22.3	234.1	24.9	88.6	0.14
10	105.6	3.6	281.6	24.5	280.9	23.4	240.0	25.3	85.2	0.12
11	104.5	2.1	280.8	23.4	281.1	23.3	239.9	24.4	91.1	0.19
12	104.4	3.2	281.8	23.3	279.1	21.6	230.6	25.3	86.1	0.20

## [0162]

[00107]示されるように、窒化ホウ素及び芳香族オリゴマーを含んでいた試料10は、対照1(成核剤なし)、試料9、11、又は12(芳香族アミドオリゴマーのみ)、及び対照2(窒化ホウ素のみ)よりも低いフラッシュの量を示した。また、機械特性を試験し、その結果を下表10に示す。

[0163]

【表10】

表10:機械特性

試料	引張弾性率 (1mm/分) (MPa)	引張応力 (5mm/分) (MPa)	引張歪み (5mm/分) (%)	曲げ弾性率 (MPa)	3.5%に おける 曲げ応力 (MPa)	曲げ歪み (%)	アイゾッド ノッチ付き (kJ/m²)	DTUL (°C)
対照1	15,654	201.2	1.8	14,920	304.0	2.3	10.7	264.5
対照 2	15,548	202.1	1.8	14,978	304.6	2.3	10.0	266.6
9	15,998	205.9	1.8	15,417	301.8	2.2	9.6	269.7
10	16,047	207.1	1.8	15,560	302.0	2.2	10.2	266.7
11	15,858	200.9	1.8	15,326	291.0	2.1	9.0	269.7
12	15,710	199.9	1.8	15,269	283.2	2.0	9.2	268.0

# [0164]

[00108]より良好な熱特性を有することに加えて、試料10(窒化ホウ素及び芳香族オリゴマー)はまた、対照1(成核剤なし)、試料9、11、又は12(芳香族アミドオリゴマーのみ)、及び対照2(窒化ホウ素のみ)よりも良好な引張り強さを示した。

[0165]

実施例4:

[00109] 2 5 m m の直径を有するWerner Pfleiderer ZSK 25同時回転完全噛み合い二軸押出機内において、下表 1 1 に示す成分を混合した。

[0166]

10

20

30

## 【表11】

表11:試料成分

試料	FORTRON (登録商標) 0202 PPS (重量%)	FORTRON (登録商標) 0203 PPS (重量%)	化合物 A (重量%)	窒化 ホウ素 (重量%)	Glycolube P (重量%)	アミノ シラン (重量%)	ガラス 繊維 (4mm) (重量%)
対照3	59.3		-	-	0.3	0.4	40.0
対照4		59.3	-		0.3	0.4	40.0
13	58.6		0.6	0.1	0.3	0.4	40.0
14		58.6	0.6	0.1	0.3	0.4	40.0

FORTRON ガラス 2,2'-ジチオジ アミノ 窒化 Glycolube P 繊維 (登録商標) 化合物A 試料 ホウ素 安息香酸 シラン (重量%) (重量%) 0214 PPS (4mm) (重量%) (重量%) (重量%) (重量%) (重量%) 58.10.50.30.440.0 15 0.6 0.10.6 0.3 0.4 40.0 16 57.6 0.1 1.0

### [0167]

[00110]試料から形成されたペレットの熱特性を求め、その結果を下表12に示す。

# [0168]

# 【表12】

表12:熱特性

	MV	結晶化前	結晶化前	第1加熱,	第1の	第2加熱,	第2の	再結晶	再結晶	結晶化
試料	(牛口	点幅	融解熱	融点	融解熱	融点	融解熱	温度	融解熱	ポテンシャル
	ポイズ)	(°C)	(J/g)	(C)	(J/g)	(°C)	(J/g)	(°C)	(J/g)	(%)
対照3	2.171	120.6	12.2	282.9	26.9	279.6	23.5	223.9	27.0	54.7
対照 4	2,196	120.5	7.4	282.9	26.8	279.1	23.3	225.4	27.0	72.2
13	1.682	117.1	1.0	282.6	28.0	282.5	26.9	244.2	28.8	96.3
14	1,862	117.9	2.1	282.5	28.5	282.4	26.9	244.2	27.9	92.8
15	2,326	121.7	8.3	280.1	24.5	281.0	23.3	238.9	25.7	66.1
16	1.053	122.8	6.0	281.0	26.6	282,5	24.8	241.9	26.5	77.4

# [0169]

[00111] 上記に示すように、芳香族アミドオリゴマーを加えると組成物の結晶化ポテンシャルが増加した。また、ペレットをMannesmann Demag D100 NCIII射出成形機上で、130 及び80 においてTバーに成形した。熱特性を試験し、その結果を下表13及び14に示す。

# [0170]

10

20

30

### 【表13】

表13:130°Cにおいて成形したTバーに関する熱特性

	結晶化前	結晶化前	第1加熱,	第1の	第2加熱,	第2の	再結晶	————— 再結晶	結晶化	45.
試料	融点	融解熱	融点	融解熱	融点	融解熱	温度	融解熱	ポ テンシャル	フラッシュ
	(C)	(J/g)	(C)	(J/g)	(°C)	(J/g)	(°C)	(J/g)	(%)	(mm)
対照3	117.5	1.0	283.0	26.3	282.2	25.4	244.0	28.9	96.3	0.258
対照 4	117.6	0.7	283.3	25.7	280.7	24.1	239.3	27.5	97.2	0.249
13	114.1	0.5	283.0	24.7	283.6	24.0	250.5	26.1	98.1	0.233
14	101.2	0.5	282.4	25.0	283.7	24.5	250.3	26.9	98.2	0.258
15	118.9	0.0	282.7	22.4	283.6	22.8	245.3	24.5	99.8	0.289
16	100.7	1.2	283.3	24.8	284.4	24.8	248.7	27.4	95.2	0.186

[0171]

# 【表14】

表14:80℃において成形したTバーに関する熱特性

	結晶化前	結晶化前	第1加熱,	第1の	第2加熱,	第2の	再結晶	再結晶	結晶化	フラッシュ
試料	融点	融解熱	融点	融解熱	融点	融解熱	温度	融解熱	ポ テンシャル	
	(°C)	(J/g)	(°C)	(J/g)	(C)	(J/g)	$(\mathcal{C})$	(J/g)	(%)	(mm)
対照3	104.8	3.2	283.5	25.3	280.1	23.5	224.0	27.0	87.2	0.065
対照 4	106.9	1.7	283.6	24.1	280.4	22.9	233.2	27.2	92.7	0.079
13	103.2	1.6	281.9	26.6	282.4	26.3	245.7	28.6	93.9	0.081
14	103.0	1.5	282.3	25.7	282.6	24.3	248.9	27.2	94.1	0.059
15	107.1	2.2	281.5	24.0	281.4	22.5	239.7	25.1	90.6	0.040
16	104.4	2.4	282.7	25.3	283.2	23.5	243.2	24.9	90.4	0.004

# [0172]

[00112]示されるように、芳香族アミドオリゴマーを含む試料(試料 1 3 ~ 1 6 )は対照 3 及び対照 4 よりも高い結晶化ポテンシャル及び高い再結晶温度を示し、これはより速い結晶化プロセスを示した。 8 0 において成形した試料は 1 3 0 において成形した試料よりも低い量のフラッシュを示し、結晶化ポテンシャルは芳香族アミドオリゴマー及び窒化ホウ素の存在下において 9 0 % より高く保持された。また、機械特性も試験し、その結果を下表 1 5 及び 1 6 に示す。

[0173]

10

20

## 【表15】

表15:機械特性(130℃において成形)

試料	引張弾性率 (1mm/分) (MPa)	引張応力 (5mm/分) (MPa)	引張歪み (5mm/分) (%)	曲げ弾性率 (MPa)	曲げ応力 (MPa)	曲げ歪み (%)	アイゾッド ノッチ付き (kJ/m²)	DTUL (°C)
対照3	15,047	185.1	1.6	14,686	272.1	1.9	9.6	271.2
対照 4	14,821	191.2	1.8	14,408	275.4	2.0	10.1	269.3
13	15,725	184.9	1.5	15,309	267.7	1.8	10.7	272.4
14	15,678	190.5	1.7	14,863	273.2	2.0	9.4	271.0
15	14,808	175.5	1.8	14,043	251.5	2.0	7.3	262.4
16	14,908	163.5	1.5	13,410	243.2	2.1	14.4	262.4

[ 0 1 7 4 ]

【表 1 6 】

表16:機械特性(80℃において成形)

試料	引張弾性率 (1mm/分) (MPa)	引張応力 (5mm/分) (MPa)	引張歪み (5mm/分) (%)	曲げ弾性率 (MPa)	曲げ応力 (MPa)	曲げ歪み (%)	アイゾッド <i>トッ</i> チ付き (kJ/m²)	DTUL (°C)
対照3	14,337	181.1	1.8	13,530	261.7	2.1	9.9	268.7
対照 4	14,345	182.5	1.8	13,891	262.3	2.1	10.2	267.1
13	15,402	186.7	1.7	14,522	278.3	2.1	9.5	271.4
14	15,205	184.7	1.7	14,167	275.7	2.1	9.4	274.0
15	14,292	168.4	1.8	13,410	243.2	2.1	7.6	261.3
16	13,914	154.5	1.6	13,227	234.7	2.0	13.9	266.9

# [ 0 1 7 5 ]

# 実施例5:

[00113] 2 5 m m の直径を有するWerner Pfleiderer ZSK 25同時回転完全噛み合い二軸 押出機内において、下表 1 7 に示す成分を混合した。

[0176]

【表17】

表17:試料成分

試料	FORTRON (登録商標) 0203 PPS (重量%)	化合物 J (重量%)	窒化ホウ素 (重量%)	Glycolube P (重量%)	アミノ シラン (重量%)	ガラス繊維 (4mm) (重量%)
対照4	59.3	-	-	0.3	0.4	40.0
17	58.6	0.6	0.1	0.3	0.4	40.0

[ 0 1 7 7 ]

[00114]試料から形成されたペレットの熱特性を求め、その結果を下表18に示す。

[ 0 1 7 8 ]

10

20

30

### 【表18】

表18:ペレットの熱特性

		1		l	l		l			
	MV	結晶化前	結晶化前	第1加熱,	第1の	第2加熱	第2の	再結晶	再結晶	結晶化
試料	(キロ	為嬌	融解熱	融点	副解熱	融点	副解熱	温度	副解熱	ポテンシャル
	ポイズ)	(°C)	(J/g)	(°C)	(J/g)	(°C)	(J/g)	(°C)	(J/g)	(%)
対照 4	2.196	120.5	7.4	282.9	26.8	279.1	23.3	225.4	27.0	72.2
17	2.192	121.3	4.5	281.4	25.4	281.8	24.4	243.7	27.5	82.2

## [0179]

10

20

30

[00115]上記に示すように、芳香族アミドオリゴマーを加えると組成物の結晶化ポテンシャルが増加した。また、ペレットをMannesmann Demag D100 NCIII射出成形機上でTバーに成形した。熱特性を試験し、その結果を下表19及び下表14に示す。

[0180]

# 【表19】

表19:Tバーの熱特性

試料	結晶化前 融点	結晶化前副解熱	第1加熱, 融点	第1の 融解熱	第2加熱, 融点	第2の 融解熱	再結晶温度	再結晶融解熱	結晶化ポテンシャル	フラッシュ
	(C)	(J/g)	(°C)	(J/g)	(C)	(J/g)	(C)	(J/g)	(%)	(mm)
対照 4	117.6	0.7	283.3	25.7	280.7	24.1	239.3	27.5	97.2	0.249
17	106.9	1.9	283.1	23.7	283.5	22.4	244.1	25.0	92.0	0.196

### [0181]

[00116]示されるように、芳香族アミドオリゴマーを含む試料(試料 1 7 )は、対照 4 よりも高い再結晶温度を示し、これはより速い結晶化プロセスを示した。より速い結晶化のために、試料 1 7 のフラッシュ性能も対照 4 より良好であった。また、機械特性も試験し、その結果を下表 2 0 に示す。

[0182]

# 【表20】

表20:機械特性

試料	引張弾性率 (1mm/分) (MPa)	引張応力 (5mm/分) (MPa)	引張歪み (5mm/分) (%)	曲げ弾性率 (MPa)	曲げ応力 (MPa)	曲げ歪み (%)	アイゾット ノッチ付き (kJ/m²)	DTUL (°C)
対照 4	14,821	191.2	1.8	14,408	275.4	2.0	10.1	269.3
17	14,891	167.4	1.3	15,602	281.97	1.9	11.1	272.1

# [0183]

40

### 実施例6:

[00117] 2 5 m m の直径を有するWerner Pfleiderer ZSK 25同時回転完全噛み合い二軸押出機内において、下表 2 1 に示す成分を混合した。

# [0184]

## 【表21】

表21:試料成分

試料	FORTRON (登録商標) 0203 PPS (重量%)	化合物 J (重量%)	化合物 O1 (重量%)	窒化 ホウ素 (重量%)	Glycolube P (重量%)	アミノ シラン (重量%)	ガラス繊維 (4mm) (重量%)
対照 5	59.3				0.3	0.4	40
対照 6	59.1			0.2	0.3	0.4	40
18	58.6	0.6		0.1	0.3	0.4	40
19	58.6		0.6	0.1	0.3	0.4	40
20	58.6		0.6		0.3	0.4	40

[0185]

[00118]試料から形成されたペレットの熱特性を求め、その結果を下表22に示す。

[0186]

# 【表22】

表22:ペレットの熱特性

試料 灰分含量(重量%) 溶融粘度(キロポイズ) 対照5 41.35 2.397 対照6 40.78 2.23718 40.89 2.192 19 40.64 2.111 20 40.80 1.870

[ 0 1 8 7 ]

[00119]また、機械特性も試験し、その結果を下表23及び24に示す。

[0188]

# 【表23】

表23:機械特性(130℃において成形)

試彩	引張弾性率 (1mm/分) (MPa)	引張応力 (5mm/分) (MPa)	引張歪み (5mm/分) (%)	曲げ弾性率 (MPa)	曲げ応力 (MPa)	曲げ歪み (%)	アイゾット ノッチ付き (kJ/m²)	DTUL (°C)
対照 5	15129	185.33	1.57	15110	291.18	2.07	10	271.7
対照 6	14983	197.53	1.76	14775	289.19	2.08	10.60	272.60
18	14891	167.43	1.35	15078	282.65	1.97	11.10	272.10
19	15150	167.80	1.31	15602	281.97	1.89	10.40	271.60
20	15176	150.46	1.12	15460	279.01	1.88	10.90	268.00

[0189]

10

20

30

# 【表24】

表24:機械特性(80℃において成形)

試料	引張弾性率 (1mm/分) (MPa)	引張応力 (5mm/分) (MPa)	引張歪み (5mm/分) (%)	曲げ弾性率 (MPa)	曲げ応力 (MPa)	曲げ歪み (%)	アイゾッド ノッチ付き (kJ/m²)	DTUL (°C)
対照 5	15025	189.58	1.70	14658	291.55	2.24	10.2	269.9
対照6	151.70	186.74	1.62	14561	287.36	2.21	10.20	270.90
18	14731	166.73	1.40	14607	289.43	2.20	10.50	270.10
19	15004	188.51	1.65	14936	292.33	2.18	10.60	270.70
20	14724	191.30	1.81	14372	280.22	2.21	10.60	272.60

# [0190]

[00120]本発明のこれら及び他の修正及び変更は、本発明の精神及び範囲から逸脱することなく当業者によって実施することができる。更に、種々の態様の幾つかの形態は全体的又は部分的に交換することができることを理解すべきである。更に、当業者であれば、上記の記載は例示のみの目的であり、特許請求の範囲において更に記載される発明を限定することは意図しないことを認識するであろう。

# 【図1】

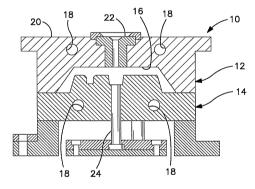


FIG. 1

# 【図2】

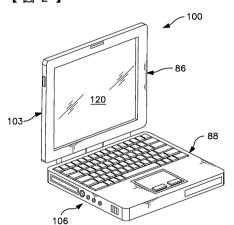
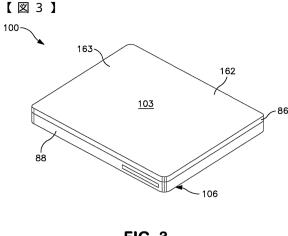


FIG. 2

10

2Ó1

205



【図 4 】

209

208

206

207

FIG. 3

FIG. 4

# 【手続補正書】

【提出日】平成28年1月15日(2016.1.15)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

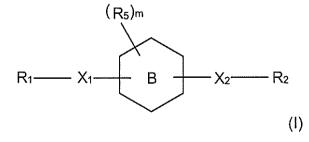
【特許請求の範囲】

【請求項1】

ポリアリーレンスルフィド;

無機結晶質化合物、及び次の一般式(I):

# 【化1】



# (式中、

環 B は 6 員の芳香環であり、ここで 1 ~ 3 個の環炭素原子は場合によっては窒素又は酸素によって置き換えられており、それぞれの窒素は場合によっては酸化されており、環 B は、場合によっては、 5 又は 6 員のアリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルに縮合又は結合していてよく;

R $_5$ は、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルであり;

mは0~4であり;

X,及びX,は、独立してC(O)HN又はNHC(O)であり;そして

 $R_1$  及び  $R_2$  は、独立して、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、及びヘテロシクリルから選択される)

を有する芳香族アミドオリゴマーを含む成核系;

を含む熱可塑性組成物。

### 【請求項2】

芳香族アミドオリゴマーが<u>50~2,000</u>g/モルの分子量を有する、請求項1に記載の熱可塑性組成物。

### 【請求項3】

環Bがフェニル又はナフチルである、請求項1又は請求項2に記載の熱可塑性組成物。

## 【請求項4】

芳香族アミドオリゴマーが次の一般式(IV):

# 【化2】

$$(R_6)_n$$
 $(R_7)_p$ 
 $X_1$ 
 $(IV)$ 

(式中、

X<sub>1</sub>及びX<sub>2</sub>は、独立してC(O)HN又はNHC(O)であり;

 $R_5$ 、  $R_6$  、 及び  $R_7$  は、独立して、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルから選択され;

mは0~4であり;そして

n 及び p は、独立して 0 ~ 5 である)

を有するか、或いは

芳香族アミドオリゴマーが次の一般式( V ):

### 【化3】

$$(R_7)_p$$
 $(R_8)_q$ 
 $(V)$ 

(式中、

X<sub>1</sub>及びX<sub>2</sub>は、独立してC(O)HN又はNHC(O)であり;

 $R_5$ 、  $R_7$ 、 及び  $R_8$  は、独立して、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルから選択され:

mは0~4であり;そして

p 及び q は、独立して 0 ~ 5 である)

を有する、請求項1~3のいずれかに記載の熱可塑性組成物。

# 【請求項5】

式(IV)のm、n、及びpが0であるか、或いは式(IV)のmが0であり、及び/

又は R $_6$  及び R $_7$  が - C (O) H N - 又は - N H C (O) - で置換されているフェニルで ある、請求項4に記載の熱可塑性組成物。

# 【請求項6】

オリゴマーが、次の化合物及びそれらの組み合わせ:

# 【表1-1】

構造	名称
H N	N1,N4-ジフェニル テレフタルアミド
	N1,N4-ジフェニル イソテレフタルアミド
F F O H O F F	N1,N4-ビス(2,3,4,5,6- ペンタフルオロフェニル) テレフタルアミド
H N H	N1,N4-ビス(4-ベンズアミド フェニル)テレフタルアミド
H. O. H. N.	N4-フェニル-N1-[4-[[4- (フェニルカルバモイル) ベンゾイル]アミノ]フェニル] テレフタルアミド
H, N, H	N4-フェニル-N1-[3-[[4- (フェニルカルバモイル) ベンゾイル]アミノ]フェニル] テレフタルアミド

# 【表1-2】

構造	名称
H,NON-H	N1,N3-ビス(4-ベンズアミド フェニル)ベンゼン-1,3- ジカルボキサミド
	N3-フェニル-N1-[3-[[3- (フェニルカルバモイル) ベンゾイル]アミノ]フェニル] ベンゼン-1,3-ジカルボキサミド
	N1,N3-ビス(3-ベンズアミド フェニル)ベンゼン-1,3- ジカルボキサミド
N H N N	N1,N4-ビス(4-ピリジル) テレフタルアミド

【表1-3】

構造	名称
DH NH H	N1,N3-ビス(4-フェニル フェニル)ベンゼン-1,3- ジカルボキサミド
	N1,N3,N5-トリフェニル ベンゼン-1,3,5- トリカルボキサミド
	N1,N3,N5-トリス(4-ベンズ アミドフェニル)ベンゼン- 1,3,5-トリカルボキサミド
	N-(4,6-ジベンズアミド- 1,3,5-トリアジン-2-イル) ベンズアミド

## 【表1-4】

構造	名称
H H	N2,N7-ジシクロヘキシル ナフタレン-2,7- ジカルボキサミド
H N H	N2,N6-ジシクロヘキシル ナフタレン-2,6- ジカルボキサミド
	N1,N3,N5-トリス(3- ベンズアミドフェニル) ベンゼン-1,3,5- トリカルボキサミド
O O O O O O O O O O O O O O O O O O O	N,N'-ジシクロヘキシル イソテレフタルアミド
N-H H	N,N'-ジシクロヘキシル テレフタルアミド

からなる群から選択される、請求項1~5のいずれかに記載の熱可塑性組成物。

# 【請求項7】

無機結晶質化合物が窒化ホウ素である、請求項1~6のいずれかに記載の熱可塑性組成物。

## 【請求項8】

熱可塑性組成物が、次の特徴:

- (a)成核系は組成物の0.05重量%~10重量%を構成する;
- ( b ) ポリアリーレンスルフィドは組成物<u>の 3</u> 0 重量 % ~ 9 5 重量 % を構成する;
- ( c )組成物中の無機結晶質化合物に対する芳香族アミドオリゴマーの重量比<u>は 0</u> . 8 ~ 2 0 である;
  - (d) 芳香族アミドオリゴマーは組成物の0.1重量%~8重量%を構成する;
  - (e)無機結晶質化合物は組成物<u>の0</u>.01重量%<u>~6</u>重量%を構成する;

の1以上を有する、請求項1~7のいずれかに記載の熱可塑性組成物。

### 【請求項9】

熱可塑性組成物が、次の特徴:

- ( a ) 成核系は組成物の 0 . 1 重量 % ~ 5 重量 % を構成する;
- ( b ) ポリアリーレンスルフィドは組成物の40重量%~80重量%を構成する;
- (c)組成物中の無機結晶質化合物に対する芳香族アミドオリゴマーの重量比は1~1 0である;
  - ( d ) 芳香族アミドオリゴマーは組成物の 0 . 2 重量 % ~ 4 重量 % を構成する;
- ( e ) 無機結晶質化合物は組成物の0.05重量%~3重量%を構成する;
- の1以上を有する、請求項1~8のいずれかに記載の熱可塑性組成物。

### 【請求項10】

耐衝撃性改良剤、無機充填剤、繊維充填剤、有機シランカップリング剤、潤滑剤、ジスルフィド、又はこれらの組み合わせを更に含む、請求項1~<u>9</u>のいずれかに記載の熱可塑性組成物。

#### 【請求項11】

前記繊維充填剤がガラス繊維であり、前記ガラス繊維は5重量%~60重量%の量で存在する、請求項10に記載の熱可塑性組成物。

### 【請求項12】

前記有機シランカップリング剤がアルコキシシランカップリング剤を含み、前記アルコキシシランカップリング剤は、ビニルアルコキシシラン、エポキシアルコキシシラン、アミノアルコキシシラン、メルカプトアルコキシシラン、及びこれらの組み合わせから選択される、請求項10又は請求項11に記載の熱可塑性組成物。

### 【請求項13】

組成物が、ISO-10350にしたがって示差走査熱量測定法によって測定して<u>65</u>%以上、例え<u>ば7</u>5%<u>~9</u>5%の結晶化ポテンシャルを有する、請求項1~<u>12</u>のいずれかに記載の熱可塑性組成物。

### 【請求項14】

組成物が次の特徴:

- (a) ISO 10350にしたがって示差走査熱量測定法によって測定して<u>、1</u>5ジュール / グラム以下の結晶化潜熱、及び15ジュール / グラム以上の融解潜熱;
- (b) ISO 10350にしたがって示差走査熱量測定法によって測定し<u>て2</u>50 以下の結晶化温度;
- ( c ) 毛細管流量計によって 1 2 0 0 秒 <sup>- 1</sup> の剪断速度及び 3 1 6 の温度で測定し<u>て</u> 2 0 ポイズ以下の溶融粘度;
- の1以上を有する、請求項1~13のいずれかに記載の熱可塑性組成物。

### 【請求項15】

請求項1~14のいずれかに記載の熱可塑性組成物を含む成形部品。

### 【請求項16】

部品<u>が1</u>00ミリメートル以下の厚さを有するか、又<u>は1</u>00ミリメートル以下の厚さ を有する部分を含む、請求項15に記載の成形部品。

# 【請求項17】

携帯電話、ラップトップコンピューター、小型ポータブルコンピューター、腕時計型機器、ペンダント型機器、ヘッドホン又はイヤホン機器、無線通信機能を有するメディアプレイヤー、携帯型コンピューター、リモートコントローラー、全地球測位システム機器、携帯型ゲーム機器、バッテリーカバー、スピーカー、カメラモジュール、又は集積回路である、請求項16に記載の成形部品を含む電子機器。

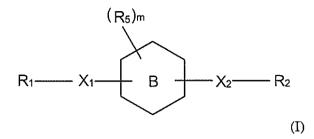
### 【請求項18】

例えば成形されたポンプがインペラーである、請求項<u>15</u>に記載の成形部品を含む液体ポンプ。

# 【請求項19】

<u>5</u>重量%<u>~ 6</u> 0 重量%の窒化ホウ素、及<u>び 4</u> 0 重量%<u>~ 9</u> 5 重量%の次の一般式(I) ·

## 【化4】



(式中、

環 B は 6 員の芳香環であり、ここで 1 ~ 3 個の環炭素原子は場合によっては窒素又は酸素によって置き換えられており、それぞれの窒素は場合によっては酸化されており、環 B は、場合によっては、 5 又は 6 員のアリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルに縮合又は結合していてよく;

R $_5$ は、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルであり;

mは0~4であり;

X<sub>1</sub>及びX<sub>2</sub>は、独立してC(O)HN又はNHC(O)であり;そして

 $R_1$  及び  $R_2$  は、独立して、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、及びヘテロシクリルから選択される)

を有する少なくとも 1 種類の芳香族アミドオリゴマーを含む、ポリアリーレンスルフィド 組成物用の成核系。

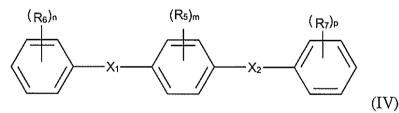
#### 【請求項20】

環Bがフェニル又はナフチルである、請求項19に記載の成核系。

## 【請求項21】

芳香族アミドオリゴマーが次の一般式( I V ):

### 【化5】



(式中、

X <sub>1</sub> 及び X <sub>2</sub> は、独立して C ( O ) H N 又は N H C ( O )であり;

 $R_5$ 、  $R_6$  、 及び  $R_7$  は、独立して、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルから選択され;

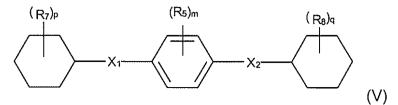
m は 0 ~ 4 であり; そして

n 及び p は、独立して 0 ~ 5 である)

を有するか、或いは

芳香族アミドオリゴマーが次の一般式(V):

### 【化6】



(式中、

X<sub>1</sub>及びX<sub>2</sub>は、独立してC(O)HN又はNHC(O)であり;

 $R_5$ 、 $R_7$ 、及び  $R_8$  は、独立して、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルから選択され;

mは0~4であり;そして

p及びqは、独立して0~5である)

を有する、請求項19に記載の成核系。

#### 【請求項22】

式(IV)のm、n、及びpが0であるか、或いは式(IV)のmが0であり、及び/又はR $_6$ 及びR $_7$ が-C(O)HN-又は-NHC(O)-で置換されているフェニルである、請求項21に記載の熱可塑性組成物。

## 【請求項23】

オリゴマーが N 1 , N 4 - ジフェニルテレフタルアミドである、請求項<u>19</u> ~ <u>2 2</u>のいずれかに記載の成核系。

### 【請求項24】

芳香族アミドオリゴマーが成核系<u>の 6</u> 0 重量 % <u>~ 8</u> 0 重量 % を構成し、窒化ホウ素が成核系<u>の 2</u> 0 重量 % <u>~ 4</u> 0 重量 % を構成する、請求項<u>1 9</u> ~ <u>2 3</u> のいずれかに記載の成核系

### 【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0130

【補正方法】変更

【補正の内容】

[0130]

N 1 , N 4 - ビス(4 - ベンズアミドフェニル)テレフタルアミド: 化合物 E の合成: [0091] 4 - アミノベンズアニリド及びテレフタロイルクロリドからの化合物 E の合成は、次式:

### 【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0190

【補正方法】変更

【補正の内容】

[0190]

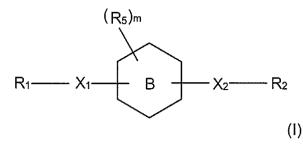
[00120]本発明のこれら及び他の修正及び変更は、本発明の精神及び範囲から逸脱することなく当業者によって実施することができる。更に、種々の態様の幾つかの形態は全体的又は部分的に交換することができることを理解すべきである。更に、当業者であれば、上記の記載は例示のみの目的であり、特許請求の範囲において更に記載される発明を限定することは意図しないことを認識するであろう。

本発明の具体的態様は以下のとおりである。

[ 1 ] ポリアリーレンスルフィド;

無機結晶質化合物、及び次の一般式(I):

#### 【化23】



# (式中、

環 B は 6 員の芳香環であり、ここで 1 ~ 3 個の環炭素原子は場合によっては窒素又は酸素によって置き換えられており、それぞれの窒素は場合によっては酸化されており、環 B は、場合によっては、 5 又は 6 員のアリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルに縮合又は結合していてよく;

R  $_5$  は、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルであり;

m は 0 ~ 4 であり;

X <sub>1</sub> 及び X <sub>2</sub> は、独立して C <u>( O ) H N 又は N H C ( O ) であり;そして</u>

 $R_1$  及び  $R_2$  は、独立して、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、及びヘテロシクリルから選択される)

を有する芳香族アミドオリゴマーを含む成核系;

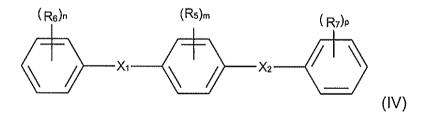
を含む熱可塑性組成物。

\_\_\_ [2] 芳香族アミドオリゴマーが約3,000g/モル以下の分子量を有する、[1] に記載の熱可塑性組成物。

[ 3 ] 環 B がフェニル又はナフチルである、 [ 1 ] 又は [ 2 ] に記載の熱可塑性組成物

 [4] 芳香族アミドオリゴマーが次の一般式(IV):

 【化24】



# ( 式中、

X <sub>1</sub> 及び X <sub>2</sub> は、独立して C ( O ) H N 又は N H C ( O )であり;

 $R_5$ 、 $R_6$ 、及び $R_7$ は、独立して、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルから選択され;

mは0~4であり;そして

n 及び p は、独立して 0 ~ 5 である)

を有するか、或いは芳香族アミドオリゴマーが次の一般式(V):

## 【化25】

$$(R_7)_p$$
 $(R_8)_q$ 
 $(R_8)_q$ 
 $(V)$ 

# (式中、

X<sub>1</sub>及びX<sub>2</sub>は、独立してC(O)HN又はNHC(O)であり;

 $R_5$ 、 $R_7$ 、及び $R_8$ は、独立して、ハロ、ハロアルキル、アルキニル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルから選択され;

mは0~4であり;そして

p 及び q は、独立して 0 ~ 5 である)

を有する、[1]~[3]のいずれかに記載の熱可塑性組成物。

 [5]式(IV)のm、n、及びpが0であるか、或いは式(IV)のmが0であり、

 及び/又はR。及びRっが・C(O)HN・又は・NHC(O)・で置換されているフェ

 ニルである、[4]に記載の熱可塑性組成物。

[ 6 ] オリゴマーが、次の化合物及びそれらの組み合わせ:

【表25-1】

構造	名称
	N1,N4-ジフェニル テレフタルアミド
N-H ON-H	N1,N4-ジフェニル イソテレフタルアミド
F F O N O F F	N1,N4-ビス(2,3,4,5,6- ペンタフルオロフェニル) テレフタルアミド
H, N-N-N-N-N-N-N-N-N-N-N-N-N-N-N-N-N-N-N-	N1,N4-ビス(4-ベンズアミド フェニル)テレフタルアミド
NH N	N4-フェニル-N1-[4-[[4- (フェニルカルバモイル) ベンゾイル]アミノ]フェニル] テレフタルアミド
H, N, H	N4-フェニル-N1-[3-[[4- (フェニルカルバモイル) ベンゾイル]アミノ]フェニル] テレフタルアミド

# 【表25-2】

構造	名称
H,NON-H H-NON-H	N1,N3-ビス(4-ベンズアミド フェニル)ベンゼン-1,3- ジカルボキサミド
	N3-フェニル-N1-[3-[[3- (フェニルカルバモイル) ベンゾイル]アミノ]フェニル] ベンゼン-1,3-ジカルボキサミド
	N1,N3-ビス(3-ベンズアミド フェニル)ベンゼン-1,3- ジカルボキサミド
$\begin{array}{c c} & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & \\ & & & \\ & \\ & & \\ & \\ & & \\ & & \\ & \\ & & \\ & & \\ & \\ & & \\ & & \\ & \\ & & \\ & & \\ & \\ & & \\ & &$	N1,N4-ビス(4-ピリジル) テレフタルアミド

# 【表25-3】

<u>+1#∵4</u> ±	AT Tile
構造	名称
N-H N-H	N1,N3-ビス(4-フェニル フェニル)ベンゼン-1,3- ジカルボキサミド
	N1,N3,N5-トリフェニル ベンゼン-1,3,5- トリカルボキサミド
	N1,N3,N5-トリス(4-ベンズ アミドフェニル)ベンゼン- 1,3,5-トリカルボキサミド
	N-(4,6-ジベンズアミド- 1,3,5-トリアジン-2-イル) ベンズアミド

### 【表25-4】

構造	名称
N H H	N2,N7-ジシクロヘキシル ナフタレン-2,7- ジカルボキサミド
H N N H	N2,N6-ジシクロヘキシル ナフタレン-2,6- ジカルボキサミド
	N1,N3,N5-トリス(3- ベンズアミドフェニル) ベンゼン-1,3,5- トリカルボキサミド
O O O O O O O O O O O O O O O O O O O	N,N'-ジシクロヘキシル イソテレフタルアミド
N H H	N,N'-ジシクロヘキシル テレフタルアミド

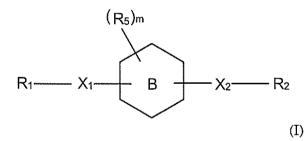
からなる群から選択される、[1]~[5]のいずれかに記載の熱可塑性組成物。

- [7]無機結晶質化合物が窒化ホウ素である、[1]~[6]のいずれかに記載の熱可 塑性組成物。
  - [8]熱可塑性組成物が、次の特徴:
  - ( a ) 成核系は組成物の約0.05重量%~約10重量%を構成する;
  - ( b ) ポリアリーレンスルフィドは組成物の約30重<u>量%~約95重量%を構成する;</u>
- ( c )組成物中の無機結晶質化合物に対する芳香族アミドオリゴマーの重量比は約0.8~約20である;
- ( d ) 芳香族アミドオリゴマーは組成物の約 0 . 1 重量 % ~ 約 8 重量 % を構成する;
- ( e ) 無機結晶質化合物は組成物の約0 . 0 1 重量%~約6 重量%を構成する;
- の1以上を有する、[1]~[7]のいずれかに記載の熱可塑性組成物。
  - [ 9 ] 耐衝撃性改良剤、無機充填剤、繊維充填剤、有機シランカップリング剤、潤滑剤

- <u>、ジスルフィド、又はこれらの組み合わせを更に含む、[1]~[8]のいずれかに記載</u>の熱可塑性組成物。
- [ 1 0 ] 組成物が、 I S O 1 0 3 5 0 にしたがって示差走査熱量測定法によって測定 して約 5 5 %以上、例えば約 7 5 % ~ 約 9 5 %の結晶化ポテンシャルを有する、 [ 1 ] ~ [ 9 ] のいずれかに記載の熱可塑性組成物。
- [ 1 1 ] 組成物が次の特徴:
- (a) ISO 10350にしたがって示差走査熱量測定法によって測定して、約15 ジュール / グラム以下の結晶化潜熱、及び約15ジュール / グラム以上の融解潜熱;
- \_\_\_\_( b ) I S O 1 0 3 5 0 にしたがって示差走査熱量測定法によって測定して約 2 5 0 以下の結晶化温度;
- <u>( c )毛細管流量計によって1200秒 <sup>1</sup> の剪断速度及び316 の温度で測定して</u>約20ポイズ以下の溶融粘度;
- の1以上を有する、[1]~[10]のいずれかに記載の熱可塑性組成物。
  - [12][1]~[11]のいずれかに記載の熱可塑性組成物を含む成形部品。
- [13]部品が約100ミリメートル以下の厚さを有するか、又は約100ミリメート ル以下の厚さを有する部分を含む、[12]に記載の成形部品。
- [14]携帯電話、ラップトップコンピューター、小型ポータブルコンピューター、腕時計型機器、ペンダント型機器、ヘッドホン又はイヤホン機器、無線通信機能を有するメディアプレイヤー、携帯型コンピューター、リモートコントローラー、全地球測位システム機器、携帯型ゲーム機器、バッテリーカバー、スピーカー、カメラモジュール、又は集積回路である、「22]に記載の成形部品を含む電子機器。
- \_\_\_ [ 1 5 ] 例えば成形されたポンプがインペラーである、 [ 2 2 ] に記載の成形部品を含む液体ポンプ。
- [ 1 6 ] 約 5 重量% ~ 約 6 0 重量%の窒化ホウ素、及び約 4 0 重量% ~ 約 9 5 重量%の

   次の一般式(I):

# 【化26】



# (式中、

環Bは6員の芳香環であり、ここで1~3個の環炭素原子は場合によっては窒素又は酸素によって置き換えられており、それぞれの窒素は場合によっては酸化されており、環Bは、場合によっては、5又は6員のアリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルに縮合又は結合していてよく;

 $R_5$  は、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルであり;

<u> mは0~4であり;</u>

- X<sub>1</sub>及びX<sub>2</sub>は、独立してC(O)<u>HN又はNHC(O)であり</u>;そして
- $R_1$  及び  $R_2$  は、独立して、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、及びヘテロシクリルから選択される)
- <u>を有する少なくとも1種類の芳香族アミドオリゴマーを含む、ポリアリーレンスルフィド</u> 組成物用の成核系。
  - [ 17]環 B がフェニル又はナフチルである、 [ 16]に記載の成核系。
- [ 1 8 ] 芳香族アミドオリゴマーが次の一般式(IV):

### 【化27】

$$(R_6)_n$$
 $(R_7)_p$ 
 $X_1$ 
 $(IV)$ 

# (式中、

X <sub>1</sub> 及び X <sub>2</sub> は、独立して C ( O ) H N 又は N H C ( O )であり;

 $R_5$ 、 $R_6$ 、及び $R_7$ は、独立して、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルから選択され;

mは0~4であり;そして

n 及び p は、独立して 0 ~ 5 である)

を有するか、或いは芳香族アミドオリゴマーが次の一般式 (V):

## 【化28】

$$(R_7)_p$$
 $(R_8)_q$ 
 $(R_8)_q$ 
 $(V)$ 

## ( 式中、

- Χ ₁ 及び Χ ゥ は、独立して C (O)HN又はNHC(O)であり;

 $R_5$ 、 $R_7$ 、及び $R_8$ は、独立して、ハロ、ハロアルキル、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、シクロアルキル、又はヘテロシクリルから選択され;

mは0~4であり;そして

p 及び q は、独立して 0 ~ 5 である)

を有する、[16]に記載の成核系。

 [19]式(IV)のm、n、及びpが0であるか、或いは式(IV)のmが0であり

 、及び/又はR。及びRっが・C(O)HN・又は・NHC(O)・で置換されているフェニルである、[30]に記載の熱可塑性組成物。

<u>[20]オリゴマーがN1,N4-ジフェニルテレフタルアミドである、[16]~[</u>19]のNずれかに記載の成核系。

[21]芳香族アミドオリゴマーが成核系の約60重量%~約80重量%を構成し、室化ホウ素が成核系の約20重量%~約40重量%を構成する、[16]~[20]のいずれかに記載の成核系。

# フロントページの続き

- (72)発明者 ルオ,ロン
  - アメリカ合衆国ケンタッキー州41042, フローレンス, チャールストン・コート 1619
- (72)発明者 ナイアー,カムレシュ・ピー
  - アメリカ合衆国ケンタッキー州41042,フローレンス,メドーランズ・トレイル 664ビー
- (72)発明者 チャオ,シンユー
  - アメリカ合衆国オハイオ州 4 5 2 4 3 , シンシナティ , ケンウッド・ロード 6 5 8 5
- (72)発明者 グレイ,スティーブン・ディー
  - アメリカ合衆国ウィスコンシン州53092,メクォン,ノース・シダーバーグ・ロード 105
- F ターム(参考) 4J002 CN021 DF017 DJ008 DJ038 DJ048 DJ058 DL008 EP026 EX019 EX069 EX079 EX089 FA048 FD018 GJ02 GM00 GQ00

【外国語明細書】 2016117894000001.pdf