

(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2005-154584

(P2005-154584A)

(43) 公開日 平成17年6月16日(2005.6.16)

(51) Int.Cl.⁷

C08L 71/12

C08K 5/49

C08L 25/00

F I

C08L 71/12

C08K 5/49

C08L 25/00

Z A B

テーマコード (参考)

4 J O O 2

審査請求 未請求 請求項の数 14 O L (全 12 頁)

(21) 出願番号 特願2003-395446 (P2003-395446)

(22) 出願日 平成15年11月26日 (2003.11.26)

(71) 出願人 303046314

旭化成ケミカルズ株式会社

東京都千代田区有楽町一丁目1番2号

(74) 代理人 100108693

弁理士 鳴井 義夫

(74) 代理人 100068238

弁理士 清水 猛

(74) 代理人 100095902

弁理士 伊藤 穰

(74) 代理人 100103436

弁理士 武井 英夫

(72) 発明者 吉田 和郎

千葉県袖ヶ浦市中袖5番地1 旭化成ケミカルズ株式会社内

Fターム(参考) 4J002 BC03X BN14X CH07W

(54) 【発明の名称】 ポリフェニレンエーテル樹脂組成物

(57) 【要約】

【課題】 従来廃棄されるか、製品価値が下級の用途に利用されていた回収ポリスチレンを商品価値の高い変性ポリフェニレンエーテルとして提供することを目的とする。

【解決手段】 重量平均分子量60,000以上のポリフェニレンエーテル(A)と回収ポリスチレン(B)とを含むポリフェニレンエーテル樹脂組成物。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

重量平均分子量 60,000 以上のポリフェニレンエーテル (A) と回収ポリスチレン (B) とを含むポリフェニレンエーテル樹脂組成物。

【請求項 2】

ポリフェニレンエーテル (A) と回収ポリスチレン (B) とを含む予め熔融混合された混合物に、未使用のポリスチレン (C) を熔融混合して得られる樹脂組成物であることを特徴とする請求項 1 記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物。

【請求項 3】

ポリフェニレンエーテル (A) と未使用のポリスチレン (C) とを含む予め熔融混合された混合物に、回収ポリスチレン (B) を熔融混合して得られる樹脂組成物であることを特徴とする請求項 1 記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物。 10

【請求項 4】

さらに、リン系難燃剤 (D) を含有することを特徴とする請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物。

【請求項 5】

30 で測定された 0.5 g / 100 ml トルエン溶液の還元粘度が 0.6 dl / g 以上の回収ポリスチレン (B) を用いることを特徴とする請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物。

【請求項 6】

回収ポリスチレン (B) 5 ~ 70 重量 % を含むことを特徴とする請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物。 20

【請求項 7】

回収ポリスチレン (B) が、透明性を有するポリスチレン加工品を粉砕して得られたものであることを特徴とする請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物。

【請求項 8】

回収ポリスチレン (B) が、成形加工されたホモポリスチレン製の記録媒体ケース、及び / 又は、押出加工されたホモポリスチレンシートを裁断ないしは粉砕して得られたものであることを特徴とする請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物。 30

【請求項 9】

リン系難燃剤 (D) 1 ~ 35 重量 % を含むことを特徴とする請求項 1 ~ 8 のいずれか 1 項に記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物。

【請求項 10】

厚み 1.5 mm 難燃性がアンダーライターラボラトリーズ UL - 94 試験にて V - 0 であることを特徴とする請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物。

【請求項 11】

請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物からなることを特徴とする成形体。 40

【請求項 12】

成形体が、家電部品、OA 機器部品、または電気電子部品、通信機器部品、情報管理伝達部品からなる群から選択される 1 種であることを特徴とする請求項 11 に記載の成形体。

【請求項 13】

請求項 9 又は請求項 10 のポリフェニレンエーテル樹脂組成物からなることを特徴とする伝送媒体を変換する装置用部品である成形体。

【請求項 14】

請求項 9 又は請求項 10 のポリフェニレンエーテル樹脂組成物からなることを特徴とす 50

るメディアコンバーター筐体。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、ポリフェニレンエーテルと回収ポリスチレンを含むポリフェニレンエーテル樹脂組成物に関する。

【背景技術】

【0002】

ポリスチレン系樹脂は色々な成形加工性に優れ、安価であるため、日用品等をはじめ極めて多種にわたって利用されている。電氣的性質も優れるため、従来より電気機器関係にも利用されている。 10

一方、ポリフェニレンエーテル樹脂は、耐熱性、機械的性質、難燃性および電氣的性質に優れた樹脂として広く知られており、ポリスチレン系樹脂を配合してその成形加工性を改善し、更にはリン系難燃剤を配合して難燃性を向上させた材料、無機強化材や充填材を配合した材料など、変性ポリフェニレンエーテルとして知られており、上記の優れた特性を有することから、自動車部品、電気・電子部品、事務機器、工業製品、建材等の用途に広範囲に用いられている。

【0003】

このような変性ポリフェニレンエーテルに配合されるポリスチレン系樹脂としては、ホモポリスチレン（GPPS）やゴム変性ポリスチレン（HIPS）などの未使用の樹脂材料（バージン材）が使用されていた。 20

ところで、従来成形加工され使用されたポリスチレン系樹脂は、通常は廃棄されるか、製品価値が下級の用途に利用されていた。

また、ポリスチレン系樹脂の成形時等に発生するスプルー、ランナー等の成形端材やリサイクル可能な不良成形品等は、いわゆる工場内リサイクルとして処理されていた。

そこで、市場から回収したポリスチレン系樹脂の使用済み成形品及び上記成形端材や不良成形品等（以下、単に回収ポリスチレンという。）を再使用すれば、資源の有効利用と廃棄物処理の観点から、その効果は大きい。

【0004】

ところで、回収ポリスチレンを利用したポリフェニレンエーテルを含む樹脂組成物は、従来から知られている（例えば、特許文献1、特許文献2、特許文献3参照）。 30

しかしながら、このような回収ポリスチレンとポリフェニレンエーテルを含む樹脂組成物は、未使用のポリスチレン系樹脂を用いたポリフェニレンエーテルを含む樹脂組成物に比べて機械物性や難燃性などの性能が劣り、満足できるものではなかった。

そして、グリーン購入法の施行に伴い、近年はリサイクル品への要求が高まっている。その観点から、回収ポリスチレンを用いた変性ポリフェニレンエーテルにおいても、未使用のポリスチレン系樹脂を用いた変性ポリフェニレンエーテルと同等の特性を有する材料の開発が望まれていた。

【0005】

【特許文献1】特開平04-214761号公報 40

【特許文献2】特開2001-093981号公報

【特許文献3】特開2001-239352号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明は、従来は廃棄されるか、製品価値が下級の用途に利用されていた回収ポリスチレンを用いて、未使用のポリスチレン系樹脂を用いた場合と同等の性能を有する商品価値の高い変性ポリフェニレンエーテルを提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明者は、上記課題を解決するために、鋭意研究した結果、回収ポリスチレンと一定以上の重量平均分子量を有するポリフェニレンエーテルとの樹脂組成物が上記課題を解決することを見いだし、本発明を完成するに至った。

即ち本発明は、

[1] 重量平均分子量 60,000 以上のポリフェニレンエーテル (A) と回収ポリスチレン (B) とを含むポリフェニレンエーテル樹脂組成物、

[2] ポリフェニレンエーテル (A) と回収ポリスチレン (B) とを含む予め熔融混合された混合物に、未使用のポリスチレン (C) を熔融混合して得られる樹脂組成物であることを特徴とする上記 [1] のポリフェニレンエーテル樹脂組成物。

[3] ポリフェニレンエーテル (A) と未使用のポリスチレン (C) とを含む予め熔融混合された混合物に、回収ポリスチレン (B) を熔融混合して得られる樹脂組成物であることを特徴とする上記 [1] のポリフェニレンエーテル樹脂組成物。 10

[4] 更に、リン系難燃剤 (D) を含有してなることを特徴とする上記 [1] ~ [3] のいずれか 1 項に記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物、

[5] 30 で測定された 0.5 g / 100 ml トルエン溶液の還元粘度が 0.6 dl / g 以上の回収ポリスチレン (B) を用いることを特徴とする上記 [1] ~ [4] のいずれか 1 項に記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物、

[6] 回収ポリスチレン (B) 5 ~ 70 重量 % を含を含むことを特徴とする上記 [1] ~ [5] のいずれか 1 項に記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物、

【 0008 】

20

[7] 回収ポリスチレン (B) が、透明性を有するポリスチレン加工品を粉砕して得られたものであることを特徴とする上記 [1] ~ [6] のいずれか 1 項に記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物、

[8] 回収ポリスチレン (B) が、成形加工されたホモポリスチレン製の記録媒体ケース、及び / 又は、押出加工されたホモポリスチレンシートを裁断ないしは粉砕して得られたものであることを特徴とする上記 [1] ~ [7] のいずれか 1 項に記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物、

[9] リン系難燃剤 (D) 1 ~ 35 重量 % を含を含むことを特徴とする上記 [1] ~ [8] のいずれか 1 項に記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物、

[10] 厚み 1.5 mm 難燃性がアンダーライターラボラトリーズ UL - 94 試験にて V - 0 であることを特徴とする上記 [1] ~ [9] のいずれか 1 項に記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物、 30

[11] 上記 [1] ~ [10] のいずれか 1 項に記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物からなることを特徴とする成形体、

[12] 成形体が、家電部品、OA 機器部品、または電気・電子部品、通信機器部品、情報管理伝達部品からなる群から選択される 1 種であることを特徴とする上記 [11] に記載の成形体、

[13] 上記 [9] 又は [10] のポリフェニレンエーテル樹脂組成物からなる伝送媒体を変換する装置用部品であることを特徴とする成形体、

[14] 上記 [9] 又は [10] のポリフェニレンエーテル樹脂組成物からなることを特徴とするメディアコンバーター筐体、 40
である。

【発明の効果】

【 0009 】

本発明によれば、未使用のポリスチレン系樹脂の代わりに、成形加工された成形体や成形屑を回収して得られた回収ポリスチレンを有効使用でき、資源の有効利用の点で、その効果は大きい。また得られた成形体は、未使用のポリスチレン系樹脂を使用して製造したものと同レベルの特性を有している。

【発明を実施するための最良の形態】

【 0010 】

50

本発明について、以下具体的に説明する。

本発明は、従来廃棄されるか、製品価値が下級の用途に利用されていた回収ポリスチレンと一定以上の重量平均分子量を有するポリフェニレンエーテルとを含むポリフェニレンエーテル樹脂組成物であり、未使用ポリスチレン系樹脂を用いた変性ポリフェニレンエーテルと同様に各種用途の成形体に使用できる。

即ち本発明は、重量平均分子量60,000以上のポリフェニレンエーテル(A)と回収ポリスチレン(B)とを含む回収ポリスチレン・ポリフェニレンエーテル樹脂組成物である。回収ポリスチレンを重量平均分子量60,000以上のポリフェニレンエーテルと組み合わせて用いることにより、機械物性のみならず、さらにリン系難燃剤を併用することにより難燃性にも優れ、未使用のポリスチレン系樹脂を用いた変性ポリフェニレンエーテルと同レベルの特性を有するポリフェニレンエーテル樹脂組成物を完成するに至った。

10

【0011】

本発明における(A)重量平均分子量60,000以上のポリフェニレンエーテルとしては、下記の単独重合体または共重合体を挙げるができる。ポリフェニレンエーテルの単独重合体の代表例としては、ポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレン)エーテル、ポリ(2-メチル-6-エチル-1,4-フェニレン)エーテル、ポリ(2,6-ジエチル-1,4-フェニレン)エーテル、ポリ(2-エチル-6-n-プロピル-1,4-フェニレン)エーテル、ポリ(2,6-ジ-n-プロピル-1,4-フェニレン)エーテル、ポリ(2-メチル-6-n-ブチル-1,4-フェニレン)エーテル、ポリ(2-エチル-6-イソプロピル-1,4-フェニレン)エーテル、ポリ(2-メチル-6-クロロエチル-1,4-フェニレン)エーテル、ポリ(2-メチル-6-ヒドロキシエチル-1,4-フェニレン)エーテル等が挙げられる。

20

【0012】

この中で、ポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレン)エーテルが好ましく、特開昭63-301222号公報等に記載されている、2-(ジアルキルアミノメチル)-6-メチルフェニレンエーテルユニットや2-(N-アルキル-N-フェニルアミノメチル)-6-メチルフェニレンエーテルユニット等を部分構造として含んでいるポリフェニレンエーテルも好ましく用いられる。

共重合体の例としては、2,6-ジメチルフェノールと2,3,6-トリメチルフェノールとの共重合体、2,6-ジメチルフェノールとo-クレゾールとの共重合体あるいは2,6-ジメチルフェノールと2,3,6-トリメチルフェノール及びo-クレゾールとの共重合体等が挙げられる。

30

本発明組成物の出発原料として用いられるポリフェニレンエーテルは、0.5g/100mlクロロホルム溶液の30℃で測定された還元粘度が、好ましくは0.48~0.65dl/g、より好ましくは0.50~0.65dl/g、特に好ましくは0.51~0.60dl/gの範囲である。

【0013】

本発明組成物においては、加熱溶融混合して得られた後の最終樹脂組成物において、ポリフェニレンエーテルの重量平均分子量が60,000以上である必要があり、好ましくは65,000以上である。重量平均分子量が60,000未満の場合には、機械物性だけでなく難燃性が劣る。ポリフェニレンエーテルの重量平均分子量の上限には特に制限はないが、成形流動性の面から120,000程度が実用上の上限と判断される。

40

本発明におけるポリフェニレンエーテルの分子量の測定は、市販されている分子量既知の単分散ポリスチレンを基準として、ゲル・パーミエーション・クロマトグラフィーを用いて行い、ポリスチレン換算分子量として求めることができる。

【0014】

本発明で用いられる(B)回収ポリスチレンは、各種成形加工によって加工されたポリスチレン成形体(シート、フィルムを含む。)を回収して得られたものであり、小片に破碎されたものあるいは更に溶融冷却してペレットにしたものなどである。ハロゲン系難燃

50

剤を含まないホモポリスチレンおよびゴム変性ポリスチレンを利用できるが、好ましいのは、透明性を有するポリスチレン成形体である。透明性を有するポリスチレン成形体は、異物の混入を容易に確認できるだけでなく、樹脂の劣化程度の確認が容易であるため、再利用の手段（方法）を適宜選択できる為に好都合である。本発明で用いられる透明性ポリスチレンは、ほとんどゴム成分を含有しないホモポリスチレン（ゼネラルパーパスポリスチレン）である。本発明で用いられる透明性ポリスチレンの透明性は厳格なものではないが、厚み 3 mm の平板を J I S - K - 7 3 6 1 - 1 に準拠して得られた全光線透過率が約 5 0 % 以上のものが好ましく、より好ましくは 6 0 %、特に好ましくは 7 0 % 以上のものである。全光線透過率が低い回収ポリスチレンにはゴム変性ポリスチレン（ハイインパクトポリスチレン）が含有されている場合が多く、その中に含まれるゴムはほとんどの場合ポリブタジエンであり、そのゴム成分が劣化しているため本発明組成物には好ましくない。ゴム成分が劣化したハイインパクトポリスチレンは、流動性と難燃性に悪影響を及ぼす反面、耐衝撃性にはあまり寄与しない。水素添加ポリブタジエン、水素添加スチレン-ブタジエンブロック共重合体、水素添加スチレン-イソプレンブロック共重合体などの熱劣化を抑制したゴム成分を含むポリスチレンは、耐衝撃性において効果的に作用するため比較的有用である。

10

20

30

40

50

【0015】

本発明に好適な回収ポリスチレンとなる透明性を有するポリスチレン成形体の具体例としては、ホモポリスチレン（G P P S）製の C D ケース、M D ケース、カセットテープケースなどの記録媒体ケース、押出加工されたホモポリスチレンシートなどが挙げられる。

本発明に好適な回収ポリスチレンは、30 で測定された 0.5 g / 10 ml トルエン溶液のポリスチレンの還元粘度が 0.6 dl / g 以上であることが好ましく、0.7 dl / g 以上が特に好ましい。その上限は 1.5 dl / g 以下が好ましく、1.2 dl / g 以下がより好ましい。

本発明で用いられる（C）未使用のポリスチレン系樹脂は、樹脂メーカーで製造されたペレット状の一度も加工されたことないポリスチレン系樹脂である。本発明で用いられる未使用のポリスチレン系樹脂（以下、単に未使用のポリスチレンという。）としては、ゴム変性ポリスチレン（H I P S）が好ましく、ゴム成分が比較的多く含まれるものが好ましく、ポリブタジエンゴム含量が 8 重量% 以上のものがより好ましく、ポリブタジエンゴム含量 10 重量% 以上のハイインパクトポリスチレンが特に好ましい。またマトリックスポリスチレンの還元粘度（30、0.5 g / 10 ml トルエン溶液）は、0.5 ~ 1.2 dl / g の範囲が好ましく、0.55 ~ 0.90 dl / g の範囲がより好ましい。

【0016】

本発明において用いられるハイインパクトポリスチレンは、ゴム成分として 1, 4 - シス結合を 90 % 以上有するポリブタジエンを含有するゴム変性ポリスチレン、あるいは全二重結合の中、5 ~ 70 % が水素添加された部分水添ポリブタジエンを含有するゴム変性ポリスチレンが好適である。特に、全二重結合の中、5 ~ 70 % が水素添加され、しかも 1, 2 - ビニル結合量が 3 重量% 以下、好ましくは 2 重量% 以下であり、更に未水素添加の 1, 4 - 結合量は 30 重量% 以上である部分水添ポリブタジエンを含有するゴム変性ポリスチレンが好ましい。このような部分水添ポリブタジエンを含有するゴム変性ポリスチレンは、日本特許第 2 9 0 2 4 2 4 号に詳細に記述されている。

本発明で用いられる（D）リン系難燃剤としては、難燃剤として公知のリン酸エステル化合物、ホスファゼン化合物、ポリリン酸塩、赤リン等から選択された 1 種以上を使用することができる。

【0017】

リン酸エステル化合物の具体例としては、トリフェニルフォスフェート、トリスノニルフェニルフォスフェート、レゾルシノールビス（ジフェニルフォスフェート）、レゾルシノールビス〔ジ（2, 6 - ジメチルフェニル）フォスフェート〕、2, 2 - ビス〔4 - 〔ビス（フェノキシ）ホスホリルオキシ〕フェニル〕プロパン、2, 2 - ビス〔4 - 〔ビス（メチルフェノキシ）ホスホリルオキシ〕フェニル〕プロパン等が挙げられるがこれらに

制限されることはない。さらに上記以外にリン系難燃剤としては、例えばトリメチルホスフェート、トリエチルホスフェート、トリブチルホスフェート、トリオクチルフォスフェート、トリブトキシエチルホスフェート、トリクレジルホスフェート、クレジルフェニルホスフェート、オクチルジフェニルホスフェート、ジイソプロピルフェニルホスフェートなどのリン酸エステル系難燃剤、ジフェニル - 4 - ヒドロキシ - 2, 3, 5, 6 - テトラプロモベンジルホスフォネート、ジメチル - 4 - ヒドロキシ - 3, 5 - ジプロモベンジルホスフォネート、ジフェニル - 4 - ヒドロキシ - 3, 5 - ジプロモベンジルホスフォネート、トリス(クロロエチル)ホスフェート、トリス(ジクロロプロピル)ホスフェート、トリス(クロロプロピル)ホスフェート、ビス(2, 3 - ジプロモプロピル) - 2, 3 - ジクロロプロピルホスフェート、トリス(2, 3 - ジプロモプロピル)ホスフェート、およびビス(クロロプロピル)モノオクチルホスフェート、フェニルノニルフェニルハイドロキノンニルホスフェート、フェニルジノニルフェニルホスフェートなどのモノリン酸エステル化合物、および芳香族縮合リン酸エステル化合物などが挙げられる。

【0018】

これらの中、加工時のガス発生が少なく、熱安定性などに優れることから芳香族縮合リン酸エステル化合物が好適に用いられる。これらの芳香族縮合リン酸エステル化合物は、一般に市販されており、例えば、大八化学工業(株)のCR741、CR733S、PX200などが知られている。特に好ましいのは、酸価が0.1以下(JIS K2501に準拠して得られた値)の芳香族縮合リン酸エステル化合物およびフェノキシホスファゼンである。

これらのリン系難燃剤は、単独で用いても良いが、2種以上を併用することもできる。

本発明の樹脂組成物において、(A)ポリフェニレンエーテルと(B)回収ポリスチレン + (C)未使用ポリスチレンとの比率は、耐熱性や機械的特性など目的に応じて任意に選択されるが、一般には(A) / {(B) + (C)} = 10 / 90 ~ 95 / 5 (重量比)の範囲、好ましくは(A) / {(B) + (C)} = 20 / 80 ~ 90 / 10 (重量比)の範囲である。また、(B)回収ポリスチレンと(C)未使用のポリスチレンとの比率は、(B) / (C) = 1 / 99 ~ 100 / 0 (重量比)の範囲、好ましくは(B) / (C) = 10 / 90 ~ 90 / 10 (重量比)の範囲で任意に選択されるが、耐衝撃性を必要とする場合には(C)未使用のポリスチレンとしてのHIPSを全ポリスチレンの10重量%以上、好ましくは30重量%以上、更に好ましくは50重量%以上用いられる。

【0019】

本発明の樹脂組成物において、(B)回収ポリスチレンは全樹脂組成物中に好ましくは5 ~ 70重量%、より好ましくは7 ~ 50重量%含まれる。その含有量が5重量%未満では有効利用の観点からは好ましくなく、70重量%を越えると樹脂組成物の特性を保持する上で問題となる場合がある。

本発明の樹脂組成物において、難燃剤の含有量は、必要とされる難燃性レベルに応じて異なるが、一般にはポリフェニレンエーテルとポリスチレン(回収ポリスチレンおよび未使用のポリスチレンを含む。)との合計100重量部に対し、1 ~ 50重量部、好ましくは3 ~ 35重量部含まれていることが望ましい。

本発明の組成物では、難燃助剤としてポリテトラフルオロエチレン(PTFE)などのドリップ防止剤を含んでいてもよい。

このようなポリテトラフルオロエチレンは、分子量が10万以上、好ましくは20万 ~ 300万程度のものが望ましい。このため、ポリテトラフルオロエチレンが配合された樹脂組成物は、燃焼時のドリップが抑制される。さらに、ポリテトラフルオロエチレンとシリコーン樹脂とを併用すると、ポリテトラフルオロエチレンのみを添加したときに比べて、さらにドリップを抑制し、しかも燃焼時間を短くすることができる。

【0020】

本発明の組成物が、さらにゴム状物質、繊維状フィラー、非繊維状フィラー、オレフィン系ポリマー、脂環族飽和炭化水素樹脂、高級脂肪酸エステル、テルペン類、ワックス類

10

20

30

40

50

、石油炭化水素類、芳香族炭化水素系石油樹脂、ポリオキシアルキレン、フッ素系樹脂、帯電防止剤、紫外線吸収剤、顔料からなる群から選択される少なくとも1種の添加剤を含んでいてもよい。

ゴム状物質としては、ガラス転移温度が -100 以上、 50 以下の重合体または該重合体のモノマーを共重合してなる共重合体で、イソプレン系、ブタジエン系、オレフィン系、ポリエステルエラストマー系、アクリル系が挙げられる。これらはホモポリマーを用いても良いが、必要に応じて共重合体として用いることもできる。これらのうち、汎用的に用いられるものとしては、ブタジエン系、オレフィン系が挙げられる。ブタジエン系の共重合体としては、スチレンとの共重合体であるスチレン-ブタジエンブロック共重合体、あるいはその水添物が使用される。さらには、酸成分との3元系共重合体も有用であり、具体的にはアクリル酸-ブタジエン-スチレン共重合体、カルボン酸/カルボン酸無水物含有酸化合物-ブタジエン-スチレン共重合体などが挙げられる。

10

【0021】

オレフィン系ゴム状物質は、エチレン系、プロピレン系を用いるのが一般的であるが両者を組み合わせたエチレン-プロピレン共重合体も使用できる。またブタジエン系ゴム状物質と同様にさらに酸成分で変性されたオレフィン系ゴム成分も有用であり、さらにまたエポキシ基含有オレフィン系のゴム成分も使用しても良い。

繊維状フィラーは、本発明の成形体の強化目的の度合いにもよるがいわゆるアスペクト比で $2 \sim 100$ のものが良い。具体的には、ガラス繊維、中空ガラス繊維、カーボン繊維、中空カーボン繊維、酸化チタンウィスカー、繊維状ワラストナイトが挙げられる。

20

非繊維状フィラーは、強度と寸法安定性の改良が同時に得られることから、幅広く用いられる添加剤である。形状的には、板状、粒状、無定形とさまざまである。具体的な例としてはタルク、マイカ、クレー、シリカ、ガラスフレーク、ガラスビーズ、中空フィラー等が挙げられる。フィラーは、単体で用いても良いし、2種以上組み合わせて用いても良い。

【0022】

オレフィン系ポリマーは、耐薬品性や成形時の離型性を改良する際に有用である。ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブテンのようにホモポリマーを単体で使用しても良いし、目的に応じて組合せで使用しても良い。また製法においても、高密度型、低密度型や鎖状型、枝分かれ型などがあるがいずれも有用に使用することができる。また他の化合物との共重合体として使うこともできる。たとえばマレイン酸やクエン酸、またはその酸無水物のようなカルボン酸基含有化合物、アクリル酸エステルのようなアクリル酸基を含む酸化合物との共重合体等も有用に使用できる。

30

脂環族飽和炭化水素樹脂は芳香族炭化水素樹脂の水添物であり、芳香族炭化水素樹脂としては一般的に、 C_9 炭化水素樹脂、 C_5/C_9 炭化水素樹脂、インデン-クマロン樹脂、ビニル芳香族樹脂、テルペン-ビニル芳香族樹脂等が挙げられる。水添化率は高いほど良いが 30% 以上が望ましい。芳香族成分が多いと他の物性が損なわれるので好ましくない。

【0023】

テルペン類としては、 α -ピネン、 β -ピネン、ジベンテン類を原料とするテルペン類が使用される。芳香族炭化水素(フェノール、ビスフェノールA等)で変性されたものや水添されたテルペン等も有用に使用できる。

40

ワックス類としてはオレフィン系ワックス、モンタンワックスなどが一般的に使用されるが、中でも低分子量ポリエチレンなどは汎用的に用いられる。

石油炭化水素類としては液状石油留分が好適に使用される。

芳香族炭化水素系石油樹脂としては、 C_9 炭素類に代表される芳香族炭化水素留分重合物が使用される。

帯電防止剤としては一般的に成形体表面に吸湿性を持たせることでその効果を発揮するという作用を有するものであり。樹脂中に添加剤的に用いる場合と塗布など二次加工として付与する方法がある。添加剤的に使用されるものとしては、例えばポリアルキレングリ

50

コール、ポリアルキレンオキサイド、ポリアルキルスルホン酸塩などが用いられる。

紫外線吸収剤としてはヒンダードアミン系、ベンゾトリアゾール系、ベンゾフェノン系、エポキシ系などが挙げられる。一種のみの使用でも良いが、組合せで用いるとさらに効果が期待できる。

これらのその他添加剤の添加量としては特に制限されるものではないが、たとえばポリフェニレンエーテルとポリスチレン（回収ポリスチレンおよび未使用のポリスチレンを含む）との合計 100 重量部に対し、0.01～70 重量部が好ましく、0.1～50 重量部含まれていることがより好ましい。

【0024】

本発明の回収ポリスチレン・ポリフェニレンエーテル樹脂組成物は、1段階で熔融混合して得ることもできるが、樹脂組成物特性及び品質安定性の観点から、より好ましい製造方法は2段階熔融混合押出法である。即ち、予め熔融混合して得られた、重量平均分子量60,000以上のポリフェニレンエーテル（A）と回収ポリスチレン（B）との混合物ペレットに未使用のポリスチレン（C）を熔融混合して樹脂組成物を得る方法、または予め熔融混合して得られた、ポリフェニレンエーテル（A）と未使用のポリスチレン（C）との混合物ペレットに回収ポリスチレン（B）を熔融混合して樹脂組成物を得る方法であり、特に前者の2段階熔融混合押出法が好ましい。2段階熔融混合押出法においては、1段目の予備熔融混合のポリフェニレンエーテル比率が、ポリフェニレンエーテルとポリスチレンの合計量に対して50～99重量%、好ましくは60～95重量%、更に好ましくは70～90重量%の比率であることが好ましい。

本発明の樹脂組成物は、従来ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物に使用されていた公知の成型法が特に制限なく適用可能である。成型法としては、射出成形、押出成形、真空・圧空成形などの公知の成型法が採用される。

【0025】

このような成型法で得られる本発明の成形体は、家電、OA機器、または電気電子部品、建材、日用品、玩具、ゲーム機器、雑貨類、情報通信機器、通信部材類、自動車部品からなる群から選択される1種以上の用途に、好適である。

家電、OA機器、電気電子部品としては、テレビハウジング、テレビシャーシー、デフレーションヨーク、他のテレビ部品、ACアダプター、電源ボックス、エアコン部品、オーディオ部品、照明カバー、モニターハウジング、モニターシャーシー、ノート型PCハウジング、各種記憶媒体ドライブ部品、ノート型PCバッテリー、液晶プロジェクターハウジング、PDAハウジング、アンテナカバー、プリンターハウジング、各種複写機ハウジング、プリンターシャーシー、トナーカートリッジ、インクタンク、給紙用トレイ、スキャナーハウジング、スキャナーフレーム、携帯電話ハウジング、携帯電話バッテリー等が挙げられる。

建材、日用品、玩具、ゲーム機器、雑貨類としては、浴槽部材、シャワーヘッド、ポンプハウジング、空気清浄機部品、サイジング、台所用品、パイプ類、雨どい、遮音壁、窓枠、サッシ、信号機部品、パチンコ部品、おもちゃ類、TVゲーム機器、スポーツ用品、公園遊具、釣具、パイプ類、食品容器、化粧品容器、機械カバー等が挙げられる。

【0026】

情報通信機器、通信部材類としては、ターミナルアダプター、ルーター、モデム、ケーブルガイド、電線被覆材、デジタルカメラ周辺部品、フラッシュメモリーカード部品等が挙げられる。また、自動車部品としては、インストールメントパネル、センタークラスター、メータークラスター、グローブボックス、エアバッグ、デフロスターガーニッシュ、エアダクト、ヒーターコントロール、ステアリングコラムカバー、ニーボルスター、エアデフロスター、ドアトリム、サンシェード、ルーフライナー、リアパーセルシェルフ、ピラーカバー、ピラーインパクトアブソーバー、ボンネットエアースコープ、ラジエターグリル、ヘッドランプ部品、シグナルランプ部品、フォグランプ部品、バンパー、ヘッドランプフィニッシャー、ライセンスプレートフィニッシャー、フェンダー、ドアハンドル、ドアミラー、ドアパネル、リアクォーターパネル、リアコンビネーションランプ部品、

テールゲートパネル、ラゲッジルームトリム、ホイールカバー、サイドリアカバー、セーターキャップ、スポイラー、リアフィニッシャー、バッテリートレイ、バッテリーハウジング、フロントエンドモジュール等が挙げられる。

これらの中で好ましい用途は、難燃性と電気特性に優れる伝送媒体を変換する装置用部品用途であり、特にメディアコンバーター筐体用途に適する。

【実施例】

【0027】

本発明を実施例に基づいて説明する。

以下、本発明を実施例によりさらに詳しく説明するが、本発明はこれらの実施例に何ら限定されるものではない。

各成分として、以下のものを使用した。

(1) PPE-1: ポリフェニレンエーテルとして、0.5 g / 100 ml クロロホルムでの還元粘度が30 で0.53 dl / gのポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレン)エーテルを使用した。

(2) PPE-2: ポリフェニレンエーテルとして、0.5 g / 100 ml クロロホルムでの還元粘度が30 で0.42 dl / gのポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレン)エーテルを使用した。

(3) HIPS: 結合構造中のシス1,4結合構造単位が約98%のポリブタジエン12重量%を含有する体積平均ゴム粒子径1.5 μm、マトリックスポリスチレンの30 下で測定された0.5 g / 100 ml トルエン溶液の還元粘度が0.65 dl / gであるゴム変性ポリスチレン。

(4) GPPS: PSジャパン(株)製、製品名PSJ-ポリスチレン680。

【0028】

(5) RePS-1: スチレンホモポリマー製CDケースを粉砕した後、200メッシュのスクリーンを装着した押出機を通してペレット化された回収ポリスチレン。30 で測定した0.5 g / 10 ml トルエン溶液の還元粘度は0.85 dl / g。

(6) RePS-2: スチレンホモポリマー製OPSシートを細断した後、ペレット化された回収ポリスチレン。30 で測定した0.5 g / 100 ml トルエン溶液の還元粘度は0.77 dl / g。

(7) RePS-3: スチレンホモポリマー製発泡トレイを加熱収縮・粉砕した後、ペレット化された回収ポリスチレン。30 で測定した0.5 g / 100 ml トルエン溶液の還元粘度は0.58 dl / g。

(8) FR-1: リン系難燃剤として、大八化学工業(株)社製、製品名CR741(芳香族縮合リン酸エステル化合物)を使用した。

(9) SEBS: スチレン-ブタジエンブロック共重合体の水素添加物。旭化成(株)、製品名タフテックH1272を使用した。

(10) PE: 低密度ポリエチレン。旭化成(株)製、製品名サンテックLD-M1804を使用した。

【0029】

得られた樹脂組成物の特性評価は、以下の方法及び条件で行った。

(1) ポリフェニレンエーテルの重量平均分子量(PPE-MW)の測定

樹脂組成物1.5 gをトルエン30 gに溶解し、遠心分離および濾過によりトルエン可溶分と不溶分とに分離する。トルエン可溶分にメタノール180 mlを加えてポリマー分を再沈させ、再沈ポリマーを濾過して取り出し、さらに150 にて真空乾燥して分子量測定用サンプルとした。

分子量測定サンプルの調製濃度をポリフェニレンエーテル約1 g / クロロホルム1リットルとし、昭和電工(株)製、ShodexGPC System21を用いて、検出器波長283 nmにセットして自動分析し、分子量既知の単分散ポリスチレンを基準としたポリスチレン換算分子量としてのポリフェニレンエーテルの重量平均分子量(PPE-MW)分析結果を得た。

10

20

30

40

50

【 0 0 3 0 】

(2) 難 燃 性

U L - 9 4 垂 直 燃 焼 試 験 に 基 づ き、 1 . 5 m m 厚 みの 射 出 成 形 試 験 片 を 用 い て 測 定 し 難 燃 性 レ ベ ル を ラ ン ク 付 け し た。 難 燃 性 の レ ベ ル は、 V - 0 が 最 も 優 れ、 V - 1、 V - 2 の ラ ン ク に な る に し た が っ て 劣 る。

(3) ア イ ゾ ッ ド 衝 撃 強 度

A S T M - D - 2 5 6 に 準 拠 し、 6 . 4 m m 厚 みの 射 出 成 形 試 験 片 に て 測 定 し た

。

(4) 耐 薬 品 性

A S T M - D - 6 3 8 に 基 づ き、 射 出 成 形 さ れ た 3 . 2 m m 厚 みの 試 験 片 を 用 い て、 通 常 の 引 張 強 度 (T S a) を 測 定 し た。 一 方 で、 試 験 片 を 試 験 片 表 面 の ひ ず み が 1 % に な る 円 弧 の 形 状 を 有 す る パ ー に 取 り 付 け て、 薬 品 (イ ソ プ ロ ピ ル ア ル コ ー ル と シ ク ロ ヘ キ サ ン と の 重 量 比 6 0 / 4 0 の 混 合 液) に 浸 し て 3 0 分 保 持 し た 後、 同 様 に 引 張 強 度 (T S b) を 測 定 し た。 T S b の T S a に 対 す る 割 合 (引 張 強 度 保 持 率) % で 表 し た。

【 0 0 3 1 】

[実 施 例 1 ~ 4、 比 較 例 1 ~ 3]

表 1 に 示 す 組 成 に て、 先 ず 第 一 工 程 の 溶 融 混 合 物 を 得 た。 第 1 工 程 の 押 出 機 は、 ウ ェ ル ナ ー 社 製 の 二 軸 同 方 向 回 転 押 出 機 Z S K - 4 0 M C (ス ク リ ュ ー 径 4 0 m m、 バ レ ル 数 1 1、 L / D = 約 4 7) を 使 用 し た。 難 燃 剤 (F R) は バ レ ル 途 中 の 注 入 口 か ら 添 加 し た。 バ レ ル 温 度 は、 バ レ ル N o . 1 は 水 冷、 前 段 (バ レ ル N o . 2 ~ 6) を 2 9 0、 後 段 (バ レ ル N o . 7 ~ 1 1) を 2 7 0 に 設 定 し た。

原 料 の 供 給 口 お よ び フ ィ ー ダ ー ホ ッ パ ー へ は 窒 素 を 供 給 し、 原 料 供 給 ラ イ ン の 酸 素 濃 度 を 2 w t % 以 下 に な る よ う に し た。 各 原 料 の 押 出 機 へ の 供 給 は 重 量 式 フ ィ ー ダ ー を 用 い た

。

ダ イ の プ レ ー カ ー プ レ ー ト に は 1 0 0 メ ッ シ ュ の ス ク リ ー ン を 装 着、 第 1 ベ ン ト 口 は 約 9 0 0 h P a に 真 空 吸 引、 第 2 ベ ン ト 口 は 閉 止、 ス ク リ ュ ー 回 転 数 6 0 0 r p m、 1 5 0 k g / h r に て 溶 融 混 合 押 出 を 行 い、 ス ト ラ ン ド を 冷 却 裁 断 し て 予 備 溶 融 混 合 ペ レ ッ ト を 製 造 し た。 そ の 際 安 定 剤 と し て 酸 化 亜 鉛 を 0 . 2 重 量 部 お よ び 旭 電 化 工 業 (株) 製 の ア デ カ ス タ プ P E P 3 6 を 0 . 2 重 量 部 添 加 し た。

第 2 工 程 は、 表 1 に 示 す 組 成 に 基 づ き、 予 備 溶 融 混 合 ペ レ ッ ト と そ の 他 の 成 分 を 混 合 し、 ス ク リ ュ ー 径 5 0 m m (ベ ン ト 口 付 き、 3 段 ダ ル メ ー ジ 付 き) の 単 軸 押 出 機 を 用 い、 シ リ ン ダ ー 最 高 設 定 温 度 2 9 0、 ダ イ プ レ ー ト に は 1 0 0 メ ッ シ ュ の ス ク リ ー ン を 装 着、 ベ ン ト 口 は 約 9 0 0 h P a に 真 空 吸 引、 ス ク リ ュ ー 回 転 数 3 0 0 r p m、 1 0 0 k g / h r に て 溶 融 混 合 押 出 を 行 い、 2 段 階 溶 融 混 合 の 樹 脂 組 成 物 ペ レ ッ ト を 得 た。

得 ら れ た 樹 脂 組 成 物 の 特 性 は、 前 記 評 価 方 法 に よ り 測 定 し、 表 1 の 結 果 を 得 た。

【 0 0 3 2 】

[実 施 例 5]

表 1 に 示 す 組 成 に て、 ウ ェ ル ナ ー 社 製 の 二 軸 同 方 向 回 転 押 出 機 Z S K - 4 0 M C (ス ク リ ュ ー 径 4 0 m m、 バ レ ル 数 1 1、 L / D = 約 4 7) を 使 用 し て、 予 備 溶 融 混 合 を 行 わ ず に 一 段 階 で 溶 融 混 合 し て 組 成 物 を 得 た。 難 燃 剤 (F R) は バ レ ル 途 中 の 注 入 口 か ら 添 加 し た。 バ レ ル 温 度 は、 バ レ ル N o . 1 は 水 冷、 前 段 (バ レ ル N o . 2 ~ 6) を 2 9 0、 後 段 (バ レ ル N o . 7 ~ 1 1) を 2 7 0 に 設 定 し た。

原 料 の 供 給 口 お よ び フ ィ ー ダ ー ホ ッ パ ー へ は 窒 素 を 供 給 し、 原 料 供 給 ラ イ ン の 酸 素 濃 度 を 2 w t % 以 下 に な る よ う に し た。 各 原 料 の 押 出 機 へ の 供 給 は 重 量 式 フ ィ ー ダ ー を 用 い た

。

ダ イ の プ レ ー カ ー プ レ ー ト に は 1 0 0 メ ッ シ ュ の ス ク リ ー ン を 装 着、 第 1 ベ ン ト 口 は 約 9 0 0 h P a に 真 空 吸 引、 第 2 ベ ン ト 口 は 閉 止、 ス ク リ ュ ー 回 転 数 6 0 0 r p m、 1 5 0 k g / h r に て 混 練 り 押 出 を 行 い、 ス ト ラ ン ド を 冷 却 裁 断 し て 予 備 溶 融 混 合 ペ レ ッ ト を 製 造 し た。 そ の 際、 安 定 剤 と し て 酸 化 亜 鉛 を 0 . 2 重 量 部 お よ び 旭 電 化 工 業 (株) 製 の ア デ カ ス タ プ P E P 3 6 を 0 . 2 重 量 部 添 加 し た。 得 ら れ た 樹 脂 組 成 物 の 特 性 は、 前 記 評 価 方

10

20

30

40

50

法により測定し、表 1 の結果を得た。

【 0 0 3 3 】

【 表 1 】

表 1

製 造 方 法			2段階混合法							1段階混合法
			実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	比較例1	比較例2	比較例3	実施例5
第1工程 配 合 (重量部)	成 分									
	PPE-1		46.5	46.5	46.5	46.5	46.5		20	46.5
	PPE-2							46.5	26.5	
	HIPS		7.5	7.5	7.5		7.5	7.5	7.5	20
	GPPS		3	3	3		3	3	3	
	RePS-1					13				13
	FR		17	17	17	17	17	17	17	17
	SEBS									1.5
PE									2.0	
第2工程 配 合 (重量部)	HIPS		12.5	12.5	12.5	20	12.5	12.5	12.5	
	GPPS						10			
	RePS-1		10					10	10	
	RePS-2			10						
	RePS-3				10					
	SEBS		1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	
PE		2	2	2	2	2	2	2		
組成物 特 性	項 目	単位								
	PPE MW	—	68000	68000	68000	68000	68000	44000	54000	67000
	難燃性	—	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-2	V-2	V-0
	アイゾット 衝撃強度	J/m	120	110	90	130	110	60	80	100
	耐薬品性	%	85	80	70	90	85	10	30	70

【 産 業 上 の 利 用 可 能 性 】

【 0 0 3 4 】

ポリスチレン成型品を市場から回収し、資源の有効利用を目的として変性ポリフェニレンエーテルに利用する。 30

本発明の回収ポリスチレン - ポリフェニレンエーテル樹脂組成物は、家電部品、OA機器部品、電気・電子部品、建材、日用品、玩具、ゲーム機器部品、雑貨類、自動車部品、パイプ類、通信機器部品、情報管理伝達部品の用途に好適である。