(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2022年8月25日(25.08.2022)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2022/176449 A1

(51) 国際特許分類:
*B29B 7/48* (2006.01)　*B29B 9/06* (2006.01)
*B29B 7/72* (2006.01)　*C08J 3/20* (2006.01)
*B29B 7/90* (2006.01)

(21) 国際出願番号：　PCT/JP2022/000874

(22) 国際出願日：　2022年1月13日(13.01.2022)

(25) 国際出願の言語：　日本語

(26) 国際公開の言語：　日本語

(30) 優先権データ：
特願 2021-022418　2021年2月16日(16.02.2021)　JP

(71) 出願人: 三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社 (**MITSUBISHI ENGINEERING-PLASTICS CORPORATION**) [JP/JP]; 〒1050021 東京都港区東新橋一丁目９番２号 Tokyo (JP).

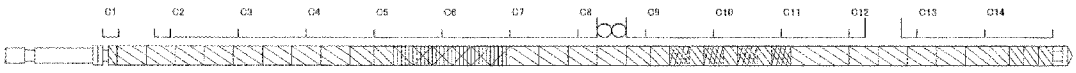
(72) 発明者: 田尻　敏之 (**TAJIRI, Toshiyuki**); 〒2540016 神奈川県平塚市東八幡五丁目６番２号 三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社内 Kanagawa (JP). 武塙 勝 (**TAKEHANA, Masaru**); 〒2540016 神奈川県平塚市東八幡五丁目６番２号 三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社内 Kanagawa (JP).

(74) 代理人: 小野 尚純, 外 (**ONO, Hisazumi** et al.); 〒1050003 東京都港区西新橋三丁目５番２号 西新橋第一法規ビル Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,

(54) **Title:** METHOD FOR PRODUCING FIBER-REINFORCED POLYBUTYLENE TEREPHTHALATE RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称： 繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物の製造方法




(57) **Abstract:** Provided is a method for producing, via a twin screw extruder, a fiber-reinforced polybutylene terephthalate resin composition comprising (A) 40-90 mass% polybutylene terephthalate resin, (B) 10-60 mass% reinforcing fibers, and (C) 0-35 mass% of other polymers or additives, said method being characterized by comprising a first step for using, as a raw material for (A), polybutylene terephthalate resin pellets having an average weight of 16-29 mg and kneading (A) and (C) with a first kneading part, a second step for adding (B) at a part downstream of the first kneading part and performing kneading with a second kneading part; and a third step for reducing pressure of a vent at a part downstream of the second kneading part and performing devolatilization, wherein the first kneading part comprises a configuration having a length of 5.0-9.0 D and comprising a specific screw configuration, the second kneading part comprises a specific screw configuration, and the production is carried out with a screw shaft torque density of 11.5-19 Nm/cm$^3$.

(57) 要約：（Ａ）ポリブチレンテレフタレート樹脂４０～９０質量%、（Ｂ）強化繊維１０～６０質量%、及び（Ｃ）その他のポリマーまたは添加剤０～３５質量%からなる繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を二軸押出機で製造する方法であって、（Ａ）の原料として平均重量が１６～２９ｍｇのポリブチレンテレフタレート樹脂ペレットを用い、（Ａ）と（Ｃ）を第１混練部で混練する第１工程、第１混練部の下流部に前記（Ｂ）を添加し第２混練部で混練する第２工程、第２混練部の下流部でベントを減圧にして脱揮し押出する第３工程、を含み、第１混練部は特定のスクリュー構成からなる、長さが５．０～９．０Ｄの構成からなり、前記第２混練部は特定のスクリュー構成よりなり、スクリュー軸トルク密度が１１．５～１９Ｎｍ／ｃｍ$^3$の条件で製造することを特徴とする繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物の製造方法。

WO 2022/176449 A1

［続葉有］

CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

**(84)** 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一　国際調査報告（条約第21条(3)）

# 明　細　書

## 発明の名称 ：

# 繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物の製造方法

## 技術分野

[0001] 本発明は、繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物の製造方法に関し、詳しくは、高トルクの二軸押出機を用いて、高い生産性で、従来よりも高い強度の繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を製造する方法に関する。

## 背景技術

[0002] ポリブチレンテレフタレート樹脂は、射出成形用を中心として各種電気電子部品、機械部品および自動車部品などに広く使用されている。特にガラス繊維、炭素繊維等に代表される強化繊維を配合した繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物は、機械的強度、耐熱性、耐薬品性等に優れ、自動車分野、電気電子機器分野等の部品として利用されている。

しかし、最近の部品の小型化、薄肉化、軽量化の進行に伴い、繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物はこれまで以上の高い機械的強度を有することが強く求められている。

[0003] 繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物は、通常、二軸押出機により製造される。二軸押出機は生産能力の向上のため、長年、可塑化能力、混練能力の向上が希求されてきた。そして、最近になり許容軸トルク密度が１８Ｎｍ／ｃｍ$^3$近くに達するような超高トルクの押出機（例えば、日本製鋼所社製「ＴＥＸαＩＩＩ」等）が開発され、これまでにない高トルク領域での生産が可能となり、それによりこれまでにない高い吐出量が可能となってきた。

[0004] しかしながら、このような超高トルク押出機を用いると樹脂の滞留時間は短くなり、樹脂温度が上昇し難くなり、ガラス繊維等の強化繊維との密着力が低下し、機械的強度が低下してしまう課題があることが判明した。

[0005] 特許文献１には、ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの生産性を従来よりも高めるとともに、製造されたペレット中にモノフィラメントの集合体（未解繊ガラス繊維束）が残存する確率を非常に低くすることを目的として、円弧状の切り欠きが形成されたフライト部を有する一条の逆送りスクリューエレメントを使用する発明が記載されている。そして、その際の条件を、（ｉ）逆送りスクリューエレメントにおけるスクリューのトルクを噛み合うスクリュー間の芯間距離の３乗で除した値であるトルク密度を１１Ｎｍ／ｃｍ$^3$以上とし、且つ、（ｉｉ）吐出量Ｑをスクリュー回転数Ｎｓで除したＱ／Ｎｓをスクリュー間の芯間距離の３乗で除したＱ／Ｎｓ密度を０．０１３ｋｇ／ｈ／ｒｐｍ／ｃｍ$^3$とすると規定されている。

[0006] しかしながら、特許文献１にはトルク密度については、段落［００６３］に「トルク密度が１１（Ｎｍ／ｃｍ$^3$）以上になることで、押出機内の材料の充満率が高まり、エネルギー密度が小さくなり、回転数を、従来より高くしても温度上昇が低いという効果がある。また、好ましいトルク密度の範囲は１３（Ｎｍ／ｃｍ$^3$）以上１８（Ｎｍ／ｃｍ$^3$）以下である。」と記載されているだけで、その実施例にはトルク密度がいくつであったかは一切記載されておらず、どのようにしてこのようなトルク密度を実現するか開示されていない。特許文献１の実施例では二軸押出機として「ＴＥＸ４４αＩＩ（日本製鋼所製）スクリューエレメントのシリンダー径Ｄが０．０４７ｍ」を使用しているが、ＴＥＸ４４αＩＩの許容軸トルク密度は１３Ｎｍ／ｃｍ$^3$であり、これ以上ではスクリュー軸やギアボックスが損傷するので、通常８０％以下のトルク密度で運転されるため、トルク密度は高くてもせいぜい１０．５Ｎｍ／ｃｍ$^3$である。

また、前記したような超高トルク密度の二軸押出機は特許文献１の出願当時には未だ世の中には出現していなかった。そのため特許文献１が具体的に開示しているのは従来の低トルク押出機での条件であって、本発明が対象とする超高トルク運転の際に発現する各種の課題についての記載や示唆はなく、ましてその解決策を提供するものではない。

## 先行技術文献

## 特許文献

[0007] 特許文献1：特開２０１２－２１３９９７公報

## 発明の概要

## 発明が解決しようとする課題

[0008] 繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を、超高トルクの押出機を使用して高トルク密度下で製造する場合には、滞留時間が短くなるので樹脂温度が上がり難く、その為強化繊維との密着性が不十分となり得られた樹脂組成物の強度が上がらないという問題が発現することが見出された。樹脂温度を上げるには吐出量を下げて混練時間を長くすることが考えられるが、生産量が低下するので、超高トルクの押出機を使用する意義がなくなってしまう。

本発明は、上記したような課題に鑑みてなされたもので、超高トルク押出機を用いて、高い生産性で、従来よりも高い強度の繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂（ペレット）を製造することを目的とする。

## 課題を解決するための手段

[0009] 本発明者は上記課題を解決するため鋭意検討した結果、高トルク領域での生産を、平均重量が特定の範囲にあるポリブチレンテレフタレート樹脂ペレットを原料として用い、混練部を、特定のスクリュー構成と長さのスクリューとする第１混練部と、特定のスクリュー構成の第２混練部とし、スクリュー軸トルク密度を１１．５～１９Ｎｍ／ｃｍ$^3$の条件で製造することにより、一定以上の樹脂温度を確保し、ポリブチレンテレフタレート樹脂と強化繊維との密着性を高め、強化繊維による強度向上をより強固にし、解繊され分散した強化繊維の繊維長の低下を少なく抑え、また樹脂の劣化がない状態で、これを高い生産性で行うことが可能となり、高い強度の繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂を製造することができることを見出した。

具体的には、下記の方法により、上記課題は解決される。

[0010] １．（Ａ）ポリブチレンテレフタレート樹脂４０～９０質量%、（Ｂ）強化繊維１０～６０質量%、及び（Ｃ）その他のポリマーまたは添加剤０～３５質量%（各成分の合計は１００質量%）からなる繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を二軸押出機で製造する方法であって、

（Ａ）の原料として平均重量が１６ｍｇ以上２９ｍｇ以下のポリブチレンテレフタレート樹脂ペレットを用い、

（Ａ）と（Ｃ）を第１混練部で混練する第１工程、第１混練部の下流部に前記（Ｂ）を添加し第２混練部で混練する第２工程、第２混練部の下流部でベントを減圧にして脱揮し押出する第３工程、を含み、

第１混練部は、Ｒニーディングディスク、Ｎニーディングディスク、Ｌニーディングディスク、Ｌスクリュー、シールリング、ミキシングスクリュー、またはロータスクリューのうちの２種以上を組み合わせた、長さが５．０～９．０Ｄ（Ｄはシリンダー径）の構成からなり、

前記第２混練部は、Ｒニーディングディスク、Ｎニーディングディスク、Ｌニーディングディスク、Ｌスクリュー、シールリング、ミキシングスクリューのうち１種または２種以上を組み合わせた構成よりなり、

スクリュー軸トルク密度が１１．５～１９Ｎｍ／ｃｍ$^3$の条件で製造することを特徴とする繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物の製造方法。

２．前記（Ｃ）が、（Ａ）～（Ｃ）の合計１００質量%基準で、５～３０質量%のスチレン系ポリマーを含有する上記１に記載の製造方法。

３．第３工程で押し出された直後の樹脂のストランドの温度が２９０～３１０℃である上記１または２に記載の製造方法。

４．（Ａ）ポリブチレンテレフタレート樹脂の固有粘度が０．７２～０．８３ｄｌ／ｇである上記１～３のいずれかに記載の製造方法。

５．第２混練部の総計の長さが２．５Ｄ以上、５．０Ｄ以下である上記１～４のいずれかに記載の製造方法。

６．得られる樹脂組成物のＩＳＯ１７９－１，２によるノッチ付きシャルピ

ー衝撃強度が、９ｋＪ／ｍ$^2$以上である上記１～５のいずれかに記載の製造方法。

７．得られる樹脂組成物のＩＳＯ５２７による引張強度が、１４０ＭＰａ以上である上記１～６のいずれかに記載の製造方法。

８．スクリュー軸トルク密度が１３～１９Ｎｍ／ｃｍ$^3$である上記１～７のいずれかに記載の製造方法。

## 発明の効果

[0011] 本発明の繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物の製造方法によれば、高トルク領域で高吐出量で滞留時間の短い生産でありながら、ポリブチレンテレフタレート樹脂と強化繊維との密着性を高め、強化繊維による強度向上効果が極めて高くなり、また樹脂の劣化がないのでより高い強度となり、しかもこれを高い生産性で行うことが可能となる。そして、得られたポリブチレンテレフタレート樹脂組成物は、シャルピー衝撃強度で９ｋＪ／ｍ$^2$以上、引張強度で１４０ＭＰａ以上というような、今まで高トルク領域下の運転では達成できなかったような高強度の樹脂組成物を極めて高い生産性で製造することができる。

## 図面の簡単な説明

[0012] [図1]実施例又は比較例で使用した押出機のスクリュー構成の例を説明するための概念図である。

## 発明を実施するための形態

[0013] 以下、本発明について実施形態及び例示物等を示して詳細に説明するが、本発明は以下に示す実施形態及び例示物等に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲において任意に変更して実施できる。なお、本明細書において、「～」は、その前後に記載される数値を下限値および上限値として含む意味で使用される。

[0014] 本発明の繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物の製造方法は、（Ａ）ポリブチレンテレフタレート樹脂４０～９０質量％、（Ｂ）強化繊維１０～６０質量％、及び（Ｃ）その他のポリマーまたは添加剤０～３５質量

％（各成分の合計は１００質量％）からなる繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を二軸押出機で製造する方法であって、

（Ａ）の原料として平均重量が１６ｍｇ以上２９ｍｇ以下のポリブチレンテレフタレート樹脂ペレットを用い、

（Ａ）と（Ｃ）を第１混練部で混練する第１工程、第１混練部の下流部に前記（Ｂ）を添加し第２混練部で混練する第２工程、第２混練部の下流部でベントを減圧にして脱揮し押出する第３工程、を含み、

第１混練部は、Ｒニーディングディスク、Ｎニーディングディスク、Ｌニーディングディスク、Ｌスクリュー、シールリング、ミキシングスクリュー、またはロータスクリューのうちの２種以上を組み合わせた、長さが５．０～９．０Ｄ（Ｄはシリンダー径）の構成からなり、

前記第２混練部は、Ｒニーディングディスク、Ｎニーディングディスク、Ｌニーディングディスク、Ｌスクリュー、シールリング、ミキシングスクリューのうち１種または２種以上を組み合わせた構成よりなり、

スクリュー軸トルク密度が１１．５～１９Ｎｍ／ｃｍ$^3$の条件で製造することを特徴とする。

[0015] 本発明で使用する押出機は、ベント式二軸押出機であり、好ましくは噛合い型同方向回転二軸スクリュー押出機で、バレル内部に同方向に回転する二本のスクリューを有し、そのスクリュー途中には、複数枚のニーディングディスクによって構成される混練部が相互に噛み合う形態で設けられているものが好ましい。

[0016] ベント式二軸押出機は、原料供給口、ベント口、ジャケットを備えたシリンダー、押出機先端に取り付けられたダイ部から構成され、（Ａ）原料ポリブチレンテレフタレート樹脂のペレット及び（Ｃ）その他のポリマーまたは添加剤を供給する供給口、第１混練部、（Ｂ）強化繊維をサイドフィードする供給口、次いで第２混練部、ベント部を有する。そして、前記（Ａ）、（Ｃ）を第１混練部で混練する第１工程、第１混練部の下流部に前記（Ｂ）を添加し第２混練部で混練する第２工程、及び、第２混練部の下流部でベント

を減圧にして脱揮し押出する第３工程を含む工程により製造される。

[0017] 第１工程では、前記（Ａ）、（Ｃ）を原料供給口から押出機内に供給してスクリューで加熱、混練して溶融化させる。スクリュー途中には、複数枚のニーディングディスクによって構成される第１混練部が構成される。第１混練部は、ポリブチレンテレフタレート樹脂ペレット、その他のポリマーまたは添加剤を入れた後に混練する混練部であり、強化繊維が入る前までの混練部を意味する。そのスクリュー構成は、Ｒニーディングディスク、Ｎニーディングディスク、Ｌニーディングディスク、Ｌスクリュー、シールリング、ミキシングスクリュー、またはロータスクリューのうちの２種以上を組み合わせて構成され、長さは５．０～９．０Ｄ（Ｄはシリンダー径）とする。第１混練部は、平均重量が１６～２９ｍｇであるポリブチレンテレフタレート樹脂ペレット、その他ポリマーや添加剤を入れた後に混練する混練部であり、強化繊維が入る前までの混練部である。

この第１混練部は、１つにまとめられていてもよいし、複数に分割されていてもよい。即ち、第１混練部も分割し、その間に送りのスクリューを入れてもよい。重要なのは合計の混練部長さを５．０～９．０Ｄの範囲にすることである。

[0018] Ｒニーディングディスク（以下、Ｒと称することもある。）は順送りニーディングディスクエレメントであり、通常羽根が２枚以上で、その羽根ねじれ角度θは１０度から７５度であることが好ましい。このように羽根を所定角度ずらして設置していくことにより擬似スクリュー構造を形成し樹脂を送り方向に送り出しつつ強いせん断力を加え、混練を行うゾーンとなる。

Ｌニーディングディスク（以下、Ｌと称することもある。）は逆送りニーディングディスクエレメントであり、通常羽根が２枚以上で、かつ羽のねじれ角度θが－１０度から－７５度であることが好ましい。逆送りニーディングディスクエレメントは、送られてくる樹脂を堰止めたり、送られてくる樹脂を送り戻す方向に働く昇圧能力のあるエレメントであり、混練を促進するエレメントの下流側に設けることにより樹脂を堰きとめ、強力な混練効果を

発揮させるものである。

Ｎニーディングディスク（以下、Ｎと称することもある。）は、直交ニーディングディスクエレメントであり、通常羽根が２枚以上で、かつ羽根のねじれ角度θが７５度から１０５度である。羽根が略９０度ずらして設置されているため樹脂を送り出す力は弱いが混練力は強い。

[0019] Ｌスクリューは逆送りスクリューであり、シールリングはシールリング部の各隙間によって上流部の流れを制限するものであり、ミキシングスクリューはスクリューの山（フライト部）を切り欠いたスクリューエレメントであり、ロータスクリューは１条または複数の条が外周面上に設けられたスクリューエレメントである。

[0020] これらに中では、Ｒニーディングディスク、Ｎニーディングディスク、Ｌニーディングディスクが好ましく、これらを複数組み合わせた構成とすることが好ましい。

[0021] 第１工程の第１混練部のスクリュー構成は、前記した２種以上のエレメントの組合せで構成されるが、混練を促進するエレメントを上流側に、昇圧能力のあるエレメントを下流側に配置されることが好ましい。したがって、第１混練部では、上流側からＲ、Ｎ及びＬから選ばれる２種以上を、Ｒ→Ｎ→Ｌの順で配置するのが好ましく、各Ｒ、Ｎ及びＬは複数個配置することも好ましい。特に上流にＲ、次いで複数個のＮ、そのあとにＬを配置する構成が好ましい。

[0022] 第１混練部のスクリュー長さは、シリンダー径をＤとすると、５．０～９．０Ｄの範囲にする。このような範囲にあることで、ポリブチレンテレフタレート樹脂の溶融可塑化は十分となり、樹脂組成物の分解の発生も抑止することができる。第１混練部のスクリュー長さが５．０Ｄより短いと、剪断不足により樹脂の溶融可塑化が不十分となり、９．０Ｄを超えると過剰混練により局部的な樹脂組成物の分解が進行する傾向にあり、組成物の機械物性が劣ることになる。

[0023] 第１工程でポリブチレンテレフタレート樹脂の混練溶融後はベントにより

ベントすることが好ましい。ベントの下流にはシールリングを設けることが好ましい。

[0024] 第２工程では、上記した第１工程後に、強化繊維を第１混練部の下流部に供給口からサイドフィードし、強化繊維と溶融化したポリブチレンテレフタレート樹脂とを第２混練部で混練する。第２混練部は、強化繊維が入り、それを開繊し混練する混練部を意味する。第２混練部のスクリュー構成は、Ｒニーディングディスク、Ｎニーディングディスク、Ｌニーディングディスク、Ｌスクリュー、シールリング、ミキシングスクリューのうち１種または２種以上を組み合わせた構成とする。これらが構成されてない状態で混練すると強化繊維の解繊と分散が不十分となりやすい。上記の中でも、ミキシングスクリュー、特に順送り切欠き型ミキシングスクリュー、逆送り切欠き型ミキシングスクリューを少なくとも有する構成とすることが好ましい。

[0025] 第２混練部のスクリュー長さは、２．５～５．０Ｄの範囲にすることが好ましい。この第２混練部は、１つに纏められていてもよいし、複数に分割されていてもよい。即ち、第２混練部を分割しその間に送りのスクリューを入れてもよい。いずれの構成でも合計の混練部長さを２．５～５．０Ｄの範囲にすることが好ましい。第２混練部のスクリュー長さをこのようにすることで強化繊維の解繊と分散が良好となり、樹脂組成物の強度が向上しやすい。

[0026] 運転は、高トルクの二軸押出機を使用し、スクリュー軸トルク密度が１１．５～１９Ｎｍ／ｃｍ$^3$の条件で行う。

スクリュー軸トルク密度とは、スクリュー１本当りを駆動するのに必要なトルクＮｍをスクリュー軸芯間距離の３乗で除した値として定義し、単位はＮｍ／ｃｍ$^3$となる。大きさの異なる押出機を用いた押出であっても、このトルク密度の値が同じであれば、単位体積当たりに樹脂に掛かるトルクは同じとなる。スクリューを駆動するモーターがトルク（Ｎｍ）を発生し、スクリュー軸に伝わり、ポリブチレンテレフタレート樹脂の搬送、溶融、強化繊維の搬送、開繊の仕事をする。本発明において、このトルク密度はスクリュー軸の根本に掛かるトルクの強さを表す。トルク密度は、スクリューの先端に

進むにつれその値は減少し、スクリューの先端ではほぼ０となる。

[0027] 押出機のスクリューを駆動するモーターが発生するトルクは、制御盤にスクリュー許容トルク１００％に対する％単位で表示される。例えば、ＴＥＸ４４αＩＩＩの場合、トルク１００％はトルク密度１７．６Ｎｍ／ｃｍ$^3$に相当するので、運転時の表示％からトルク密度を算出することができる。また、一般のＶＶＶＦインバータ制御では定トルク領域では電流値（Ａ）を定格電流で割った値がトルク％に一致する。

[0028] スクリュー軸トルク密度が１１．５～１９Ｎｍ／ｃｍ$^3$であるが、好ましくは１２．０Ｎｍ／ｃｍ$^3$以上、より好ましくは１２．５Ｎｍ／ｃｍ$^3$以上であり、さらに好ましくは１３Ｎｍ／ｃｍ$^3$以上であり、好ましくは１８Ｎｍ／ｃｍ$^3$以下、より好ましくは１７Ｎｍ／ｃｍ$^3$以下である。このような範囲とすることにより、高強度の繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を高吐出量で安定的に生産することが可能となる。

スクリュー軸トルク密度をこのような範囲とするには、そのようなトルク範囲になるように原料のフィード量を制御することにより調整することができる。

[0029] そして、本発明では、上記トルク密度条件下において、原料ポリブチレンテレフタレート樹脂として、平均重量が１６ｍｇ以上２９ｍｇ以下のポリブチレンテレフタレート樹脂ペレットを用いる。平均重量がこのようなペレットを押出機に供給することにより、樹脂温度を容易に適切な範囲に制御することが可能となる。小さすぎると樹脂温度は必要以上に上がり易く、大きいと樹脂温度が上がり難い。

平均重量は、好ましくは１８ｍｇ以上、より好ましくは１９ｍｇ以上、さらには２０ｍｇ以上が好ましく、好ましくは２７ｍｇ以下、より好ましくは２５ｍｇ以下、さらには２４ｍｇ以上が好ましい。

[0030] ポリブチレンテレフタレート樹脂ペレットの平均重量は、ペレットの個数平均重量であり、具体的には任意のペレット１００個について算出される平均値（ｍｇ／個）である。例えば製造時や運送時、ハンドリング時等に発生

するような、ペレット形状ではない破砕物や粉体、粉状のものはカウントされない。

[0031] 第２工程での樹脂温度は２８０～３２０℃、特には２９０～３１０℃となるようにするのが好ましい。樹脂温度の調整は、押出機への吐出量とスクリュー回転数を適宜調節したり、第１工程のスクリュー構成を調整する方法や第２工程のシリンダー設定温度を低く設定する方法が採られる。

[0032] 二軸押出機のスクリュー回転数は３００～８００ｒｐｍが好ましく、４００～７００ｒｐｍがより好ましい。また吐出量はＴＥＸ４４αＩＩＩでは４５０～６５０ｋｇ／ｈが好ましく、４８０～６３０ｋｇ／ｈがより好ましい。サイズの異なる押出機ではシリンダー径比の２．５乗に比例した吐出量が好ましい範囲となる。

[0033] 第２工程の後、第３工程では下流のベント部で減圧脱揮するが、その際の真空度は－０．０９７ＭＰａ～－０．０７ＭＰａとすることが好ましい。ここで、真空度はゲージ圧を意味する。

[0034] 次いで、ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物は押出機先端の押出ダイからストランド状に押し出す（押出工程）が、押し出された樹脂組成物のストランド温度が２９０～３１０℃、特には２９５～３１０℃となるようにするのが好ましい。

[0035] 押出ダイの形状は特に制限はなく、公知のものが使用される。ダイ穴の直径は所望するペレットの寸法にもよるが、通常２～５ｍｍ、好ましくは３～４ｍｍ程度である。

[0036] ストランドは、引き取りローラーによって引き取られ、水と接触され、冷却される。

水との接触は、冷却水槽に溜められた水中を搬送されるようにして冷却されてもよいし、ストランドに水をかけて水と接触させて冷却してもよく、メッシュベルトコンベアでストランドを引き、そこに放水装置にて水を掛ける方法でもよい。ストランドがダイから押し出されてから水冷却、あるいは水に入るまでの時間は短い方がよい。通常は、ダイから押し出されてから１秒

以内に水中に入るのがよい。

[0037] 冷却されたストランドは、引き取りローラーによりペレタイザーに送られ、カッティングされて、ペレットとされる。

[0038] 本発明の方法によれば、今まで高トルク領域下の運転では達成できなかったような高強度のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を、極めて高い生産性で製造することができる。得られたポリブチレンテレフタレート樹脂組成物（ペレット）は、極めて高強度のものとなる。具体的には、好ましくはノッチ付きシャルピー衝撃強度で９ｋＪ／ｍ$^2$以上、より好ましくは９．５ｋＪ／ｍ$^2$以上、中でも１０ｋＪ／ｍ$^2$以上、特には１０．５ｋＪ／ｍ$^2$以上、また、引張強度は好ましくは１４０ＭＰａ以上、より好ましくは１４５ＭＰａ以上、中でも１５０ＭＰａ以上、特には１５５ＭＰａ以上が可能となる。

ここで、ノッチ付きシャルピー衝撃強度はＩＳＯ１７９－１，２に準拠して測定され、引張強度は、ＩＳＯ５２７に準拠して測定される。これらの具体的な測定法の詳細は、実施例に記載する通りである。

[0039] 次に、本発明で使用する原料成分について、説明する。

[0040] （Ａ）ポリブチレンテレフタレート樹脂は、テレフタル酸単位及び１，４－ブタンジオール単位がエステル結合した構造を有するポリエステル樹脂であって、ポリブチレンテレフタレート樹脂（ホモポリマー）の他に、テレフタル酸単位及び１，４－ブタンジオール単位以外の、他の共重合成分を含むポリブチレンテレフタレート共重合体や、ホモポリマーと当該共重合体との混合物を含む。

[0041] ポリブチレンテレフタレート樹脂は、テレフタル酸以外のジカルボン酸単位を含んでいてもよく、他のジカルボン酸の具体例としては、イソフタル酸、オルトフタル酸、１，５－ナフタレンジカルボン酸、２，５－ナフタレンジカルボン酸、２，６－ナフタレンジカルボン酸、ビフェニル－２，２’－ジカルボン酸、ビフェニル－３，３’－ジカルボン酸、ビフェニル－４，４’－ジカルボン酸、ビス（４，４’－カルボキシフェニル）メタン、アントラセンジカルボン酸、４，４’－ジフェニルエーテルジカルボン酸等の芳香

族ジカルボン酸類、１，４－シクロヘキサンジカルボン酸、４，４’－ジシクロヘキシルジカルボン酸等の脂環族ジカルボン酸類、および、アジピン酸、セバシン酸、アゼライン酸、ダイマー酸等の脂肪族ジカルボン酸類等が挙げられる。

[0042] ジオール単位としては、１，４－ブタンジオールの外に他のジオール単位を含んでいてもよく、他のジオール単位の具体例としては、炭素原子数２～２０の脂肪族又は脂環族ジオール類、ビスフェノール誘導体類等が挙げられる。具体例としては、エチレングリコール、プロピレングリコール、１，５－ペンタンジオール、１，６－ヘキサンジオール、ネオペンチルグリコール、デカメチレングリコール、シクロヘキサンジメタノール、４，４’－ジシクロヘキシルヒドロキシメタン、４，４’－ジシクロヘキシルヒドロキシプロパン、ビスフェノールＡのエチレンオキシド付加ジオール等が挙げられる。また、上記のような二官能性モノマー以外に、分岐構造を導入するためトリメリット酸、トリメシン酸、ピロメリット酸、ペンタエリスリトール、トリメチロールプロパン等の三官能性モノマーや分子量調節のため脂肪酸等の単官能性化合物を少量併用することもできる。

[0043] ポリブチレンテレフタレート樹脂は、テレフタル酸と１，４－ブタンジオールとを重縮合させたポリブチレンテレフタレート単独重合体が好ましいが、また、ポリブチレンテレフタレート樹脂の結晶性を損なわない範囲で、カルボン酸単位として、前記のテレフタル酸以外のジカルボン酸１種以上及び／又はジオール単位として、前記１，４－ブタンジオール以外のジオール１種以上を含むポリブチレンテレフタレート共重合体であってもよく、ポリブチレンテレフタレート樹脂が、共重合により変性したポリブチレンテレフタレート樹脂である場合、その具体的な好ましい共重合体としては、ポリアルキレングリコール類、特にはポリテトラメチレングリコールを共重合したポリエステルエーテル樹脂や、ダイマー酸共重合ポリブチレンテレフタレート樹脂、イソフタル酸共重合ポリブチレンテレフタレート樹脂が挙げられる。

なお、これらの共重合体は、共重合量が、ポリブチレンテレフタレート樹

脂全セグメント中の１モル％以上、５０モル％未満のものをいう。中でも、共重合量が好ましくは２モル％以上５０モル％未満、より好ましくは３～４０モル％、特に好ましくは５～２０モル％である。このような共重合割合とすることにより、流動性、靭性が向上しやすい傾向にあり、好ましい。

[0044] ポリブチレンテレフタレート樹脂は、固有粘度ＩＶが０．７２～０．８３ｄｌ／ｇの範囲にあるものが好ましい。このような低めの固有粘度であることで、高トルク密度下での樹脂温度が２９０～３１０℃という、強化繊維との密着強度が高く且つ樹脂劣化による強度低下が起きにくい温度に制御しやすいことが見いだされた。固有粘度が０．７２ｄｌ／ｇ未満では強化繊維との密着性が不十分となりやすく、０．８３ｄｌ／ｇを超えると発熱しやすく樹脂劣化を生じて強度が低下しやすい。固有粘度は０．７３ｄｌ／ｇ以上がより好ましく、０．８２ｄｌ／ｇ以下がより好ましい。

なお、本発明において、ポリブチレンテレフタレート樹脂の固有粘度は、テトラクロロエタンとフェノールとの１：１（質量比）の混合溶媒中、ウベローデ粘度計でハギンズ定数０．３３、温度３０℃で測定する値である。なお、ガラス繊維はろ過により取り除いた上で測定するのが好ましい。

[0045] （Ｂ）強化繊維は、有機強化繊維であっても、無機強化繊維であってもよいが、無機強化繊維が好ましく、ガラス繊維、炭素繊維、アルミナ繊維、ボロン繊維、セラミック繊維等が好ましく、ガラス繊維または炭素繊維がより好ましく、ガラス繊維が特に好ましい。

[0046] ガラス繊維の種類は、特に制限はなく、例えばＥガラス、Ｃガラス、Ａガラス、Ｓガラス等のガラス繊維を挙げることができる。これらの中で、Ｅガラスの繊維がポリブチレンテレフタレート樹脂の熱安定性に悪影響を及ぼさない点で好ましい。

[0047] ガラス繊維の平均繊維径は特に制限されないが、１～１００μｍの範囲で選ぶことが好ましく、より好ましくは２～５０μｍ、更に好ましくは３～３０μｍ、特に好ましくは５～２０μｍである。平均繊維径が１μｍ未満のガラス繊維は、製造が容易でなく、コスト高になる恐れがあり、一方１００μ

ｍを超えると、ガラス繊維の引張強度が低下する恐れがある。なお、繊維断面は円形であっても扁平状であっても構わない。

[0048] ガラス繊維は、繊維断面が真円形であっても扁平であってもよいが、繊維断面の扁平率（長径／短径）が１～１．５の断面がほぼ円形のガラス繊維であることが好ましい。この扁平率は１～１．４が好ましく、１～１．２がより好ましく、１～１．１が特に好ましい。

[0049] 原料ガラス繊維の平均繊維長は、特に限定されないが、例えば１～１０ｍｍであることが好ましく、１．５～６ｍｍであることがより好ましく、２～５ｍｍであることがさらに好ましい。原料ガラス繊維の平均繊維長が１ｍｍ未満であると、補強効果が十分に発現しない恐れがあり、１０ｍｍを超えると、得られる樹脂組成物の成形が困難になる恐れがある。

[0050] 使用するガラス繊維は、ポリブチレンテレフタレート樹脂との密着性を向上させる目的で、アミノシラン、エポキシシラン等のカップリング剤などにより表面処理を行うことができる。

カップリング剤としては、例えば、ビニルトリクロロシラン、メチルビニルジクロロシラン等のクロロシラン系化合物、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、γ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン等のアルコキシシラン系化合物、β－（３，４－エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン等のエポキシシラン系化合物や、アクリル系化合物、イソシアネート系化合物、チタネート系化合物、エポキシ系化合物などを挙げることができる。

[0051] また、原料ガラス繊維は、通常はこれらの繊維を多数本集束したものを、所定の長さに切断したチョップドストランド（チョップドガラス繊維）として用いることが好ましく、このときガラス繊維には収束剤を配合することが好ましい。

ガラス繊維の集束剤としては特に制限はなく、例えば、酢酸ビニル樹脂、エチレン－酢酸ビニル共重合体、アクリル樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタ

ン樹脂、ポリエステル樹脂などの樹脂エマルジョン等を挙げることができ、好ましくはアクリル樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂である。

[0052] 強化繊維の量は、（Ａ）ポリブチレンテレフタレート樹脂、（Ｂ）強化繊維及び（Ｃ）その他のポリマーまたは添加剤の合計１００質量％基準で、１０～６０質量％である。このような範囲にあることで、樹脂組成物の強度が高く、外観や成形時の流動性に優れる樹脂組成物とすることができる。含有量が１０質量％未満の場合は補強効果が十分でなく、６０質量％を超える場合は、外観や耐衝撃性が劣り、樹脂組成物の流動性が不十分になりやすい。

[0053] （Ｃ）その他のポリマーまたは添加剤としては、ポリブチレンテレフタレート樹脂以外のその他のポリマー及び／又は各種の添加剤である。

添加剤としては、各種の樹脂添加剤が挙げられ、例えば、難燃剤、難燃助剤、安定剤、酸化防止剤、離型剤、紫外線吸収剤、耐候安定剤、滑剤、染顔料等の着色剤、触媒失活剤、帯電防止剤、発泡剤、可塑剤、結晶核剤、結晶化促進剤等が挙げられる。

[0054] 他の樹脂としては、例えば、ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリトリメチレンテレフタレート樹脂；ポリカーボネート樹脂；ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂等のポリオレフィン樹脂；ポリアミド樹脂；ポリイミド樹脂；ポリエーテルイミド樹脂；ポリフェニレンエーテル樹脂；ポリフェニレンサルファイド樹脂；ポリスルホン樹脂；ポリメタクリレート樹脂等が挙げられる。

なお、他の樹脂は、１種が含有されていてもよく、２種以上が任意の組み合わせ及び比率で含有されていてもよい。

[0055] （Ｃ）その他のポリマーまたは添加剤の量は、（Ａ）～（Ｃ）の合計１００質量％基準で、０～３５質量％であり、好ましくは５～３０質量％である。

[0056] ポリブチレンテレフタレート樹脂にはポリブチレンテレフタレート樹脂の結晶化による分子配向を抑えるため、非晶性樹脂を配合することが知られており、非晶性樹脂としてポリカーボネート樹脂やスチレン系ポリマーを配合

することがよく行われる。しかし、特にスチレン系ポリマーを配合した樹脂組成物はポリブチレンテレフタレート樹脂単独の場合より粘度が低く、強化繊維の解繊が難しく分散不良が起きやすい、また樹脂温度が上昇し難いので強化繊維との密着性が悪く樹脂組成物の強度が出ないという問題がある。

この問題を解決するには、吐出量を下げて混練時間を長くする方法があるが、これでは生産量が下がってしまう。また、樹脂温度を上げる方法では、スチレン系ポリマーの粘度が低いので強化繊維の解繊が十分できないが、本発明の方法によれば、これらの問題を解決して、強度の高い繊維強化樹脂組成物を生産性よく製造することができるので、特に有効である。

[0057] スチレン系ポリマーとしては、２５０℃、９１２ｓｅｃ$^{-1}$に於ける溶融粘度が７０～１０００ｐａ・ｓ、特には７０～５００ｐａ・ｓのものを使用することが好ましい。このような溶融粘度（$\eta_B$）のスチレン系ポリマーを、配合することにより、高い生産性と優れた生産安定性で、成形収縮率が小さく、強度の高い繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を製造することができる。ポリスチレン系ポリマーは高剪断領域の粘度を下げる効果があり、押出機の第２混錬部（繊維開繊部）で強化繊維束の中に樹脂を含侵し易くする効果がある。このために繊維表面と樹脂の密着強度を強めることができる。

なお、溶融粘度はＩＳＯ　１１４４３に準拠し、キャピラリーレオメーター及びスリットダイレオメーターを用いることで測定できる。具体的には、キャピラリー径１ｍｍ、キャピラリー長３０ｍｍのオリフィスを用い、２５０℃に加熱した内径９．５ｍｍの炉体に対し、ピストンスピード７５ｍｍ／ｍｉｎの速度でピストンを押し込んだ際の応力から、溶融粘度が算出可能である。

[0058] スチレン系ポリマーとしては、例えば、スチレンの単独重合体、ゴムの存在下スチレンを重合してなるグラフト共重合体、スチレンと（メタ）アクリロニトリルとの共重合体、スチレンと（メタ）アクリル酸アルキルエステルとの共重合体、スチレンと（メタ）アクリロニトリルと他の共重合可能な単

量体との共重合体、ゴムの存在下スチレンと（メタ）アクリロニトリルとをグラフト重合してなるグラフト共重合体等が挙げられる。具体的には、ポリスチレン（一般用ポリスチレン、ＧＰＰＳ）、耐衝撃性ポリスチレン（ハイインパクトポリスチレン、ＨＩＰＳ）、アクリロニトリル－スチレン共重合体（ＡＳ樹脂）、アクリロニトリル－ブタジエン－スチレン共重合体（ＡＢＳ樹脂）、スチレン・ブタジエン・スチレン共重合体（ＳＢＳ樹脂）、水添スチレン－ブタジエン－スチレン共重合体（水添ＳＢＳ）、水添スチレン－イソプレン－スチレン共重合体（ＳＥＰＳ）、スチレン－無水マレイン酸共重合体（ＳＭＡ樹脂）、アクリロニトリル－スチレン－アクリルゴム共重合体（ＡＳＡ樹脂）、メチルメタクリレート－ブタジエン－スチレン共重合体（ＭＢＳ樹脂）、メチルメタクリレート－アクリロニトリル－ブタジエン－スチレン共重合体（ＭＡＢＳ樹脂）、アクリロニトリル－アクリルゴム－スチレン共重合体（ＡＡＳ樹脂）、アクリロニトリル－エチレンプロピレン系ゴム－スチレン共重合体（ＡＥＳ樹脂）及びスチレン－ＩＰＮ型ゴム共重合体等の樹脂、又は、これらの混合物が挙げられる。

[0059] これらの中でも、アクリロニトリル－スチレン共重合体（ＡＳ樹脂）、ポリスチレン（ＧＰＰＳ）、耐衝撃性ポリスチレン（ＨＩＰＳ）、アクリロニトリル－ブタジエン－スチレン共重合体（ＡＢＳ樹脂）が好ましく、特にアクリロニトリル－スチレン共重合体（ＡＳ樹脂）、ポリスチレン（ＧＰＰＳ）、耐衝撃性ポリスチレン（ＨＩＰＳ）、アクリロニトリル－ブタジエン－スチレン共重合体（ＡＢＳ樹脂）が好ましい。

[0060] スチレン系ポリマーとしては、スチレン系エラストマーも使用できる。

スチレン系エラストマーとしては、ビニル芳香族化合物を重合成分とした重合体ブロックと、共役ジエンを重合成分とした重合体ブロックとからなるブロック共重合体及びその水素添加物が好ましい。

[0061] ビニル芳香族炭化水素の重合体ブロックを構成するビニル芳香族化合物としては、スチレン、α－メチルスチレン、ｏ－メチルスチレン、ｐ－メチルスチレン、ｐ－ｔ－ブチルスチレン、１，３－ジメチルスチレン、低級アル

キル置換スチレン、ビニルナフタレン、ビニルアントラセン等のスチレンまたはその誘導体などが挙げられる。これらは１種単独で使用することもできるし、２種以上を組み合せて使用することもできる。

[0062] 共役ジエンブロックを構成する共役ジエンとしては、ブタジエン、イソプレン、１，３－ペンタジエン、２，３－ジメチル－１，３－ブタジエン等が挙げられる。

[0063] スチレン系ポリマーは、１種を単独で用いてもよく２種以上を混合して用いてもよい。

スチレン系ポリマーの量は、（Ａ）～（Ｃ）の合計１００質量％基準で、５～３０質量％であることが好ましい。

[0064] 本発明の方法で製造されたポリブチレンテレフタレート樹脂組成物は極めて高い強度の成形品が可能なので、軽量化、薄肉化、強度の要求性能を十分に満足することが出来、例えば電気・電子機器分野、コンピュータ等のＯＡ機器分野、精密機器分野、光学機器分野、自動車分野、その他の各種工業分野等における成形品あるいは部品等に幅広く利用することができる。

## 実施例

[0065] 以下、実施例を示して本発明について更に具体的に説明する。ただし、本発明は以下の実施例に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲において任意に変更して実施できる。

[0066] 実施例及び比較例で使用した原料ポリブチレンテレフタレート樹脂ペレット、強化繊維、その他の樹脂は、以下の表１に記載の通りである。

[0067]

[表1]

| 成分 | 略号 | |
|---|---|---|
| PBT樹脂 | PBT1A | ポリブチレンテレフタレート樹脂<br>三菱エンジニアリングプラスチックス社製「ノバデュラン(登録商標)5008」<br>固有粘度0．85dl／g、平均重量が22mgのペレット |
| | PBT1B | 同上のポリブチレンテレフタレート樹脂で、<br>平均重量が14mgのペレット |
| | PBT1C | 同上のポリブチレンテレフタレート樹脂で、<br>平均重量が31mgのペレット |
| PBT樹脂 | PBT2A | ポリブチレンテレフタレート樹脂<br>三菱エンジニアリングプラスチックス社製「ノバデュラン(登録商標)5007」<br>固有粘度0．70dl／g、平均重量が22mgのペレット |
| | PBT2B | 同上のポリブチレンテレフタレート樹脂で、<br>平均重量が14mgのペレット |
| | PBT2C | 同上のポリブチレンテレフタレート樹脂で、<br>平均重量が31mgのペレット |
| 強化繊維 | B | ガラス繊維　日本電気硝子製「T－187」<br>平均繊維径：13．5μm　平均繊維長：3mm |
| 他の<br>ポリマー | C | アクリロニトリル－スチレン樹脂（AS樹脂）<br>デンカ社製「デンカAS　GR－AT－R」<br>250℃、912sec$^{-1}$に於ける溶融粘度：約300pa・s |

[0068] ［押出機］

押出機は、ベント式噛み合い型同方向回転二軸スクリュー押出機（日本製鋼所社製「ＴＥＸαＩＩＩ」、シリンダー径Ｄ＝４７ｍｍ）を使用した。

[0069] 実施例および比較例で使用したスクリュー構成は、第１混練部が以下のスクリュー１～４、第２混練部は以下のスクリュー１～３である。

第１混練部

スクリュー１：ＲＮＮＮＮＬ　　長さ５．６２Ｄ

スクリュー２：ＲＮＮＮＮＮＮＬ　　長さ７．４８Ｄ

スクリュー３：ＲＮＮＮＮＮＮＮＮＬ　長さ９．３６Ｄ

スクリュー４：ＲＮＮＮＬ　　長さ４．６８Ｄ

以上の各ニーディングは２条フライトで、長さ４４ｍｍである。

第２混練部

スクリュー１：逆送りミキシングスクリュー長さ４４ｍｍ　４個

長さ総計　１７６ｍｍ（３．７４Ｄ）

スクリュー２：逆送りミキシングスクリュー長さ４４ｍｍ　６個

長さ総計　２６４ｍｍ（５．６２Ｄ）

スクリュー３：逆送りミキシングスクリュー長さ４４ｍｍ　２個

長さ総計　８８ｍｍ（１．８７Ｄ）

[0070] 図１は、実施例又は比較例で使用した押出機のスクリュー構成の例を説明するための概念図である。

Ｃ１の位置にホッパーを設置し、表２以下に記載のポリブチレンテレフタレート樹脂ペレットを供給し、Ｒスクリューにより搬送した。第１混練部はシリンダーＣ６の位置にあり、下記表に記載のスクリュー１乃至４のいずれかで構成される。第１混練部で混練し、そこにＣ８からガラス繊維を３０質量％の量でサイドフィードし、Ｃ９～Ｃ１１の位置にある下記表に記載のスクリュー１乃至３のいずれかで構成される第２混練部で混練する。そしてＣ１２の真空ベントで減圧にし、ダイスからストランドを押出し、水槽冷却後にペレタイザーでペレットにカットする。スクリュー回転数、吐出量、トルク（トルク１００％に対する％）は表に記載の通りとし、トルク１００％は１本に掛かる軸トルク密度が１７．６Ｎｍ／ｃｍ$^3$に相当する。押出機根本のスクリュー軸接続部の軸トルク密度、押し出された直後のストランドの樹脂温度を表に記載した。なお、スクリュー軸に掛かった軸トルク密度はスクリュー許容トルク１７．６Ｎｍ／ｃｍ$^3$に測定されたトルク（％）の値を乗じて求めた。

[0071] 得られたペレットを射出成型機（日本製鋼所社製「Ｊ８５ＡＤ」）を用いて、ＩＳＯ２９４－１に従い、試験片タイプＡ（１７０ｍｍ×１０ｍｍ、厚み４ｍｍ）を成形した。

得られた試験片を用い、ＩＳＯ１７９－１，２に従いノッチ付きシャルピー衝撃強度（単位：ＫＪ／ｍ$^2$）を、ＩＳＯ５２７に従い引張強度（単位：ＭＰａ）を求めた。

さらに、ポリブチレンテレフタレート樹脂の劣化の程度を評価するために、得られたペレットのポリブチレンテレフタレート樹脂の固有粘度を、以下

の方法で測定した。

フェノール／テトラクロロエタン＝１／１の混合溶媒を使用し、ウベローデ粘度計で前記した方法で固有粘度を測定した。なお、ガラス繊維が含まれるペレットについては、混合溶媒で一旦溶融後にろ過し、ガラス繊維のみ取り除き、ろ過された溶液で固有粘度を測定した。

[0072]（実施例１－１）

ＰＢＴ１Ａを３５質量％、ＰＢＴ２Ａを３５質量％（相加平均の固有粘度ＩＶは０．７７５ｄｌ／ｇ）とし、第１混練部のスクリュー構成はスクリュー１として、第２混練部のスクリュー構成はスクリュー１とし、スクリュー回転数５００ｒｐｍ、吐出量６００ｋｇ／ｈとして、ペレットを製造した。押出は安定であり、ストランドが切れることはなかった。

（実施例１－２）

第１混練部のスクリュー構成をスクリュー２とした以外は実施例１－１と同様にして行った。

[0073]（比較例１－１）

第１混練部のスクリュー構成をスクリュー３とした以外は実施例１－１と同様にして行った。

（比較例１－２）

第１混練部のスクリュー構成をスクリュー４とした以外は実施例１－１と同様にして行った。

（比較例１－３）

吐出量を４００ｋｇ／ｈとした以外は実施例１－１と同様にして行った。

（比較例１－４）

吐出量を４００ｋｇ／ｈとした以外は実施例１－２と同様にして行った。

（比較例１－５）

吐出量を４００ｋｇ／ｈとした以外は比較例１－１と同様にして行った。

（比較例１－６）

吐出量を４００ｋｇ／ｈとした以外は比較例１－２と同様にして行った。

以上の結果を以下の表２～３に示す。

[0074] [表2]

| PBT1A/PBT2A=35/35 | IV=0.775 | 実施例1-1 | 実施例1-2 | 比較例1-1 | 比較例1-2 |
|---|---|---|---|---|---|
| 第1混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー2 | スクリュー3 | スクリュー4 |
| | 長さ | 5.62D | 7.48D | 9.36D | 4.68D |
| 第2混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 |
| | 長さ | 3.74D | 3.74D | 3.74D | 3.74D |
| スクリュー回転数 | rpm | 500 | 500 | 500 | 500 |
| 吐出量 | kg/h | 600 | 600 | 600 | 600 |
| トルク | % | 70 | 75 | 85 | 65 |
| 軸トルク密度 | $Nm/cm^3$ | 12.3 | 13.2 | 15.0 | 11.4 |
| 樹脂温度 | ℃ | 293 | 305 | 320 | 279 |
| 固有粘度 | dl/g | 0.77 | 0.76 | 0.74 | 0.77 |
| ガラス繊維長 | μm | 847 | 841 | 843 | 792 |
| シャルピー衝撃強度 | $kJ/m^2$ | 10.0 | 10.1 | 8.9 | 8.8 |
| 引張強度 | MPa | 151 | 152 | 139 | 137 |

[0075] [表3]

| PBT1A/PBT2A=35/35 | IV=0.775 | 比較例1-3 | 比較例1-4 | 比較例1-5 | 比較例1-6 |
|---|---|---|---|---|---|
| 第1混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー2 | スクリュー3 | スクリュー4 |
| | 長さ | 5.62D | 7.48D | 9.36D | 4.68D |
| 第2混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 |
| | 長さ | 3.74D | 3.74D | 3.74D | 3.74D |
| スクリュー回転数 | rpm | 500 | 500 | 500 | 500 |
| 吐出量 | kg/h | 400 | 400 | 400 | 400 |
| トルク | % | 47 | 50 | 57 | 44 |
| 軸トルク密度 | $Nm/cm^3$ | 8.3 | 8.8 | 10.0 | 7.7 |
| 樹脂温度 | ℃ | 302 | 315 | 329 | 292 |
| 固有粘度 | dl/g | 0.76 | 0.74 | 0.72 | 0.77 |
| ガラス繊維長 | μm | 732 | 743 | 752 | 722 |
| シャルピー衝撃強度 | $kJ/m^2$ | 8.7 | 8.7 | 8.3 | 8.6 |
| 引張強度 | MPa | 137 | 138 | 135 | 139 |

[0076] （実施例２－１，２－２、比較例２－１，２－２）

ＰＢＴ１Ａを５６質量％、ＰＢＴ２Ａを１４質量％とし、相加平均の固有粘度を０．８２ｄｌ／ｇとした以外は、実施例１－１、１－２、比較例１－１，１－２と同様にして行った。

結果を以下の表４に示す。

[表4]

| PBT1A/PBT2A=56/14 | IV=0.82 | 実施例2-1 | 実施例2-2 | 比較例2-1 | 比較例2-2 |
|---|---|---|---|---|---|
| 第1混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー2 | スクリュー3 | スクリュー4 |
| | 長さ | 5.62D | 7.48D | 9.36D | 4.68D |
| 第2混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 |
| | 長さ | 3.74D | 3.74D | 3.74D | 3.74D |
| スクリュー回転数 | rpm | 500 | 500 | 500 | 500 |
| 吐出量 | kg/h | 600 | 600 | 600 | 600 |
| トルク | % | 75 | 80 | 90 | 70 |
| 軸トルク密度 | $Nm/cm^3$ | 13.2 | 14.1 | 15.8 | 12.3 |
| 樹脂温度 | ℃ | 302 | 309 | 325 | 282 |
| 固有粘度 | dl/g | 0.8 | 0.78 | 0.72 | 0.81 |
| ガラス繊維長 | μm | 782 | 779 | 775 | 750 |
| シャルピー衝撃強度 | $kJ/m^2$ | 9.7 | 9.8 | 8.5 | 8.7 |
| 引張強度 | MPa | 145 | 146 | 136 | 137 |

[0077] （実施例３－１、３－２、比較例３－１，３－２）

ＰＢＴ１Ａを１４質量%、ＰＢＴ２Ａを５６質量%とし、相加平均の固有粘度を０．７３ｄｌ／ｇとした以外は、実施例１－１、１－２、比較例１－１，１－２と同様にして行った。

結果を以下の表５に示す。

[表5]

| PBT1A/PBT2A=14/56 | IV=0.73 | 実施例3-1 | 実施例3-2 | 比較例3-1 | 比較例3-2 |
|---|---|---|---|---|---|
| 第1混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー2 | スクリュー3 | スクリュー4 |
| | 長さ | 5.62D | 7.48D | 9.36D | 4.68D |
| 第2混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 |
| | 長さ | 3.74D | 3.74D | 3.74D | 3.74D |
| スクリュー回転数 | rpm | 500 | 500 | 500 | 500 |
| 吐出量 | kg/h | 600 | 600 | 600 | 600 |
| トルク | % | 67 | 72 | 81 | 62 |
| 軸トルク密度 | $Nm/cm^3$ | 11.8 | 12.7 | 14.3 | 10.9 |
| 樹脂温度 | ℃ | 290 | 301 | 315 | 277 |
| 固有粘度 | dl/g | 0.72 | 0.71 | 0.66 | 0.72 |
| ガラス繊維長 | μm | 852 | 863 | 878 | 760 |
| シャルピー衝撃強度 | $kJ/m^2$ | 9.5 | 9.6 | 8.6 | 8.4 |
| 引張強度 | MPa | 146 | 145 | 138 | 131 |

[0078] （実施例４－１、４－２、比較例４－１，４－２）

ＰＢＴ１Ａを７０質量%、固有粘度を０．８５ｄｌ／ｇとした以外は実施例１－１、１－２、比較例１－１，１－２と同様にして行った。

結果を以下の表６に示す。

[表6]

| PBT1A=70 | IV=0.85 | 実施例4-1 | 実施例4-2 | 比較例4-1 | 比較例4-2 |
|---|---|---|---|---|---|
| 第1混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー2 | スクリュー3 | スクリュー4 |
| | 長さ | 5.62D | 7.48D | 9.36D | 4.68D |
| 第2混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 |
| | 長さ | 3.74D | 3.74D | 3.74D | 3.74D |
| スクリュー回転数 | rpm | 500 | 500 | 500 | 500 |
| 吐出量 | kg/h | 600 | 600 | 600 | 600 |
| トルク | % | 75 | 80 | 90 | 70 |
| 軸トルク密度 | $Nm/cm^3$ | 13.2 | 14.1 | 15.8 | 12.3 |
| 樹脂温度 | ℃ | 307 | 311 | 329 | 286 |
| 固有粘度 | dl/g | 0.83 | 0.82 | 0.75 | 0.84 |
| ガラス繊維長 | μm | 783 | 762 | 765 | 748 |
| シャルピー衝撃強度 | $kJ/m^2$ | 9.3 | 9.2 | 8.5 | 8.6 |
| 引張強度 | MPa | 143 | 142 | 135 | 138 |

[0079] （実施例５－１、５－２、比較例５－１，５－２）

ＰＢＴ２Ａを７０質量％、固有粘度を０．７０ｄｌ／ｇとした以外は実施例１－１、１－２、比較例１－１，１－２と同様にして行った。

結果を以下の表７に示す。

[表7]

| PBT2A=70 | IV=0.70 | 実施例5-1 | 実施例5-2 | 比較例5-1 | 比較例5-2 |
|---|---|---|---|---|---|
| 第1混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー2 | スクリュー3 | スクリュー4 |
| | 長さ | 5.62D | 7.48D | 9.36D | 4.68D |
| 第2混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 |
| | 長さ | 3.74D | 3.74D | 3.74D | 3.74D |
| スクリュー回転数 | rpm | 500 | 500 | 500 | 500 |
| 吐出量 | kg/h | 600 | 600 | 600 | 600 |
| トルク | % | 66 | 70 | 80 | 60 |
| 軸トルク密度 | $Nm/cm^3$ | 11.6 | 12.3 | 14.1 | 10.6 |
| 樹脂温度 | ℃ | 288 | 298 | 313 | 274 |
| 固有粘度 | dl/g | 0.69 | 0.68 | 0.65 | 0.7 |
| ガラス繊維長 | μm | 862 | 872 | 865 | 742 |
| シャルピー衝撃強度 | $kJ/m^2$ | 9.1 | 9.4 | 8.6 | 8.2 |
| 引張強度 | MPa | 140 | 142 | 137 | 130 |

[0080] （実施例１－３）

第２混練部のスクリュー構成をスクリュー２とした以外は実施例１－１と同様にして行った。

（実施例１－４）

第２混練部のスクリュー構成をスクリュー３とした以外は実施例１－１と同様にして行った。このとき２分に１回ストランドが切れ、生産性に少し問題があることが分かった。スクリュー構成が弱く、ガラス繊維の開繊性が不十分であった可能性がある。

結果を以下の表８に示す。

[表8]

| PBT1A/PBT2A=35/35 | IV=0.775 | 実施例1-3 | 実施例1-4 |
|---|---|---|---|
| 第1混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー1 |
| | 長さ | 5.62D | 5.62D |
| 第2混錬部 | | スクリュー2 | スクリュー3 |
| | 長さ | 5.62D | 1.87D |
| スクリュー回転数 | rpm | 500 | 500 |
| 吐出量 | kg/h | 600 | 600 |
| トルク | % | 70 | 75 |
| 軸トルク密度 | $Nm/cm^3$ | 13.2 | 13.2 |
| 樹脂温度 | ℃ | 309 | 290 |
| 固有粘度 | dl/g | 0.737 | 0.77 |
| ガラス繊維長 | μm | 721 | 932 |
| シャルピー衝撃強度 | $kJ/m^2$ | 9.1 | 10.2 |
| 引張強度 | MPa | 142 | 155 |

[0081] （実施例６－１、６－２、比較例６－１、比較例６－２）

ＰＢＴ１Ａを３０質量%、ＰＢＴ２Ａを３０質量%とし、相加平均固有粘度を０．７７５ｄｌ／ｇとし、更にＡＳ樹脂を１０質量%添加した以外は実施例１－１、１－２、比較例１－１、比較例１－２と同様にして行った。

結果を以下の表９に示す。

[表9]

| PBT1A/PBT2A=30/30 ＋AS 10% | PBT IV=0.775 | 実施例6-1 | 実施例6-2 | 比較例6-1 | 比較例6-2 |
|---|---|---|---|---|---|
| 第1混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー2 | スクリュー3 | スクリュー4 |
| | 長さ | 5.62D | 7.48D | 9.36D | 4.68D |
| 第2混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 |
| | 長さ | 3.74D | 3.74D | 3.74D | 3.74D |
| スクリュー回転数 | rpm | 500 | 500 | 500 | 500 |
| 吐出量 | kg/h | 600 | 600 | 600 | 600 |
| トルク | % | 70 | 75 | 85 | 65 |
| 軸トルク密度 | $Nm/cm^3$ | 12.3 | 13.2 | 15.0 | 11.4 |
| 樹脂温度 | ℃ | 290 | 302 | 318 | 276 |
| 固有粘度 | dl/g | 0.77 | 0.76 | 0.74 | 0.77 |
| ガラス繊維長 | μm | 853 | 855 | 860 | 799 |
| シャルピー衝撃強度 | $kJ/m^2$ | 10.6 | 10.5 | 8.7 | 8.6 |
| 引張強度 | MPa | 156 | 155 | 138 | 137 |

[0082] （比較例７－１）

実施例１－１で使用したＰＢＴ１ＡをＰＢＴ１Ｂ、ＰＢＴ２ＡをＰＢＴ２Ｂとした以外は実施例１－１と同様にして行った。

（比較例７－２）

実施例１－１で使用したＰＢＴ１ＡをＰＢＴ１Ｃ、ＰＢＴ２ＡをＰＢＴ２Ｃとした以外は実施例１－１と同様にして行った。

結果を以下の表１０に示す。

[表10]

| | | PBT1A/PBT2A | PBT1B/PBT2B | PBT1C/PBT2C |
|---|---|---|---|---|
| PBT1/PBT2=35/35 | IV=0.775 | 実施例1-1 | 比較例7-1 | 比較例7-2 |
| 第1混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 |
| | 長さ | 5.62D | 5.62D | 5.62D |
| 第2混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 |
| | 長さ | 3.74D | 3.74D | 3.74D |
| スクリュー回転数 | rpm | 500 | 500 | 500 |
| 吐出量 | kg/h | 600 | 600 | 600 |
| トルク | % | 70 | 73 | 71 |
| 軸トルク密度 | $Nm/cm^3$ | 12.3 | 12.8 | 12.5 |
| 樹脂温度 | ℃ | 293 | 312 | 281 |
| 固有粘度 | dl/g | 0.77 | 0.74 | 0.77 |
| ガラス繊維長 | μm | 847 | 853 | 781 |
| シャルピー衝撃強度 | $kJ/m^2$ | 10.0 | 8.8 | 8.7 |
| 引張強度 | MPa | 151 | 138 | 139 |

[0083] （比較例８－１）

実施例１－２で使用したＰＢＴ１ＡをＰＢＴ１Ｂ、ＰＢＴ２ＡをＰＢＴ２Ｂとした以外は実施例１－２と同様にして行った。

（比較例８－２）

実施例１－２で使用したＰＢＴ１ＡをＰＢＴ１Ｃ、ＰＢＴ２ＡをＰＢＴ２Ｃとした以外は実施例１－２と同様にして行った。

結果を以下の表１１に示す。

[表11]

| | | PBT1A/PBT2A | PBT1B/PBT2B | PBT1C/PBT2C |
|---|---|---|---|---|
| PBT1/PBT2=35/35 | IV=0.775 | 実施例1-2 | 比較例8-1 | 比較例8-2 |
| 第1混錬部 | | スクリュー2 | スクリュー2 | スクリュー2 |
| | 長さ | 7.48D | 7.48D | 7.48D |
| 第2混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 |
| | 長さ | 3.74D | 3.74D | 3.74D |
| スクリュー回転数 | rpm | 500 | 500 | 500 |
| 吐出量 | kg/h | 600 | 600 | 600 |
| トルク | % | 75 | 78 | 72 |
| 軸トルク密度 | $Nm/cm^3$ | 13.2 | 13.7 | 12.7 |
| 樹脂温度 | ℃ | 305 | 316 | 282 |
| 固有粘度 | dl/g | 0.76 | 0.72 | 0.77 |
| ガラス繊維長 | μm | 841 | 848 | 770 |
| シャルピー衝撃強度 | $kJ/m^2$ | 10.1 | 8.9 | 8.8 |
| 引張強度 | MPa | 152 | 132 | 138 |

[0084] （比較例９－１）

実施例２－２で使用したＰＢＴ１ＡをＰＢＴ１Ｂ、ＰＢＴ２ＡをＰＢＴ２Ｂとした以外は実施例２－２と同様にして行った。

（比較例９－２）

実施例２－２で使用したＰＢＴ１ＡをＰＢＴ１Ｃ、ＰＢＴ２ＡをＰＢＴ２Ｃとした以外は実施例２－２と同様にして行った。

結果を以下の表１２に示す。

[表12]

| | | PBT1A/PBT2A | PBT1B/PBT2B | PBT1C/PBT2C |
|---|---|---|---|---|
| PBT1/PBT2=56/14 | IV=0.82 | 実施例2-2 | 比較例9-1 | 比較例9-2 |
| 第1混錬部 | | スクリュー2 | スクリュー2 | スクリュー2 |
| | 長さ | 7.48D | 7.48D | 7.48D |
| 第2混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 |
| | 長さ | 3.74D | 3.74D | 3.74D |
| スクリュー回転数 | rpm | 500 | 500 | 500 |
| 吐出量 | kg/h | 600 | 600 | 600 |
| トルク | % | 80 | 82 | 76 |
| 軸トルク密度 | $Nm/cm^3$ | 14.1 | 14.5 | 13.3 |
| 樹脂温度 | ℃ | 309 | 324 | 288 |
| 固有粘度 | dl/g | 0.78 | 0.76 | 0.80 |
| ガラス繊維長 | μm | 779 | 820 | 775 |
| シャルピー衝撃強度 | $kJ/m^2$ | 9.8 | 8.8 | 8.8 |
| 引張強度 | MPa | 146 | 133 | 137 |

[0085] （比較例１０－１）

実施例３－２で使用したＰＢＴ１ＡをＰＢＴ１Ｂ、ＰＢＴ２ＡをＰＢＴ２Ｂとした以外は実施例３－２と同様にして行った。

（比較例１０－２）

実施例３－２で使用したＰＢＴ１ＡをＰＢＴ１Ｃ、ＰＢＴ２ＡをＰＢＴ２Ｃとした以外は実施例３－２と同様にして行った。

結果を以下の表１３に示す。

[表13]

| | | PBT1A/PBT2A | PBT1B/PBT2B | PBT1C/PBT2C |
|---|---|---|---|---|
| PBT1/PBT2=14/56 | IV=0.73 | 実施例3-2 | 比較例10-1 | 比較例10-2 |
| 第1混錬部 | | スクリュー2 | スクリュー2 | スクリュー2 |
| | 長さ | 7.48D | 7.48D | 7.48D |
| 第2混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 |
| | 長さ | 3.74D | 3.74D | 3.74D |
| スクリュー回転数 | rpm | 500 | 500 | 500 |
| 吐出量 | kg/h | 600 | 600 | 600 |
| トルク | % | 72 | 75 | 71 |
| 軸トルク密度 | $Nm/cm^3$ | 12.7 | 13.2 | 12.5 |
| 樹脂温度 | ℃ | 301 | 315 | 280 |
| 固有粘度 | dl/g | 0.71 | 0.69 | 0.73 |
| ガラス繊維長 | μm | 863 | 882 | 790 |
| シャルピー衝撃強度 | $kJ/m^2$ | 9.6 | 8.7 | 8.6 |
| 引張強度 | MPa | 145 | 135 | 137 |

[0086] （比較例１１－１）

実施例６－２で使用したＰＢＴ１ＡをＰＢＴ１Ｂ、ＰＢＴ２ＡをＰＢＴ２Ｂとした以外は実施例６－２と同様にして行った。

（比較例１１－２）

実施例６－２で使用したＰＢＴ１ＡをＰＢＴ１Ｃ、ＰＢＴ２ＡをＰＢＴ２Ｃとした以外は実施例６－２と同様にして行った。

結果を以下の表１４に示す。

[表14]

| | | PBT1A/PBT2A | PBT1B/PBT2B | PBT1C/PBT2C |
|---|---|---|---|---|
| PBT1/PBT2=30/30 + AS 10% | PBT IV=0.775 | 実施例6-2 | 比較例11-1 | 比較例11-2 |
| 第1混錬部 | | スクリュー2 | スクリュー2 | スクリュー2 |
| | 長さ | 7.48D | 7.48D | 7.48D |
| 第2混錬部 | | スクリュー1 | スクリュー1 | スクリュー1 |
| | 長さ | 3.74D | 3.74D | 3.74D |
| スクリュー回転数 | rpm | 500 | 500 | 500 |
| 吐出量 | kg/h | 600 | 600 | 600 |
| トルク | % | 75 | 78 | 72 |
| 軸トルク密度 | $Nm/cm^3$ | 13.2 | 13.6 | 12.7 |
| 樹脂温度 | ℃ | 302 | 314 | 281 |
| 固有粘度 | dl/g | 0.76 | 0.73 | 0.77 |
| ガラス繊維長 | μm | 855 | 872 | 803 |
| シャルピー衝撃強度 | $kJ/m^2$ | 10.5 | 8.9 | 8.8 |
| 引張強度 | MPa | 155 | 139 | 138 |

## 産業上の利用可能性

[0087] 本発明の製造方法によれば、機械的強度に優れた繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を高度の生産性で製造することができ、それからなる成形品は軽量化、薄肉化、強度の要求性能を十分に満足することができ、自動車分野、電気電子機器分野、精密機械分野の部品等、広範囲の用途に利用が可能である。

# 請求の範囲

[請求項1] （Ａ）ポリブチレンテレフタレート樹脂４０～９０質量％、（Ｂ）強化繊維１０～６０質量％、及び（Ｃ）その他のポリマーまたは添加剤０～３５質量％（各成分の合計は１００質量％）からなる繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を二軸押出機で製造する方法であって、

（Ａ）の原料として平均重量が１６ｍｇ以上２９ｍｇ以下のポリブチレンテレフタレート樹脂ペレットを用い、

（Ａ）と（Ｃ）を第１混練部で混練する第１工程、第１混練部の下流部に前記（Ｂ）を添加し第２混練部で混練する第２工程、第２混練部の下流部でベントを減圧にして脱揮し押出する第３工程、を含み、

第１混練部は、Ｒニーディングディスク、Ｎニーディングディスク、Ｌニーディングディスク、Ｌスクリュー、シールリング、ミキシングスクリュー、またはロータスクリューのうちの２種以上を組み合わせた、長さが５．０～９．０Ｄ（Ｄはシリンダー径）の構成からなり、

前記第２混練部は、Ｒニーディングディスク、Ｎニーディングディスク、Ｌニーディングディスク、Ｌスクリュー、シールリング、ミキシングスクリューのうち１種または２種以上を組み合わせた構成よりなり、

スクリュー軸トルク密度が１１．５～１９Ｎｍ／ｃｍ$^3$の条件で製造することを特徴とする繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物の製造方法。

[請求項2] 前記（Ｃ）が、（Ａ）～（Ｃ）の合計１００質量％基準で、５～３０質量％のスチレン系ポリマーを含有する請求項１に記載の製造方法。

[請求項3] 第３工程で押し出された直後の樹脂のストランドの温度が２９０～３１０℃である請求項１または２に記載の製造方法。

[請求項4] （Ａ）ポリブチレンテレフタレート樹脂の固有粘度が０．７２～０．８３ｄｌ／ｇである請求項１～３のいずれかに記載の製造方法。

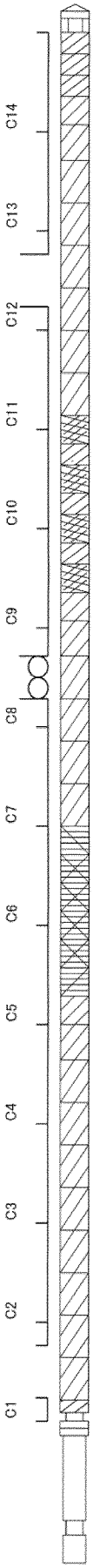
[請求項5] 第２混練部の総計の長さが２．５Ｄ以上、５．０Ｄ以下である請求項１～４のいずれかに記載の製造方法。

[請求項6] 得られる樹脂組成物のＩＳＯ１７９－１，２によるノッチ付きシャルピー衝撃強度が、９ｋＪ／ｍ$^2$以上である請求項１～５のいずれかに記載の製造方法。

[請求項7] 得られる樹脂組成物のＩＳＯ５２７による引張強度が、１４０ＭＰａ以上である請求項１～６のいずれかに記載の製造方法。

[請求項8] 前記スクリュー軸トルク密度が１３～１９Ｎｍ／ｃｍ$^3$である請求項１～７のいずれかに記載の製造方法。

[図1]



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
**PCT/JP2022/000874**

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

***B29B 7/48***(2006.01)i; ***B29B 7/72***(2006.01)i; ***B29B 7/90***(2006.01)i; ***B29B 9/06***(2006.01)i; ***C08J 3/20***(2006.01)i
FI: B29B7/48; C08J3/20 B CFD; B29B7/72; B29B7/90; B29B9/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

B29B7/00-7/94; B29B9/06; C08J3/20; B29C48/00-48/96

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2022
Registered utility model specifications of Japan 1996-2022
Published registered utility model applications of Japan 1994-2022

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

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|---|---|---|
| Y | JP 2012-213997 A (POLYPLASTICS CO., LTD.) 08 November 2012 (2012-11-08)<br>claims, paragraphs [0022]-[0098], fig. 3 | 1-8 |
| Y | JP 2018-48227 A (ASAHI KASEI CORP) 29 March 2018 (2018-03-29)<br>claims, paragraphs [0027]-[0088] | 1-8 |
| A | JP 2012-504057 A (STEER ENGINEERING PRIVATE LIMITED) 16 February 2012 (2012-02-16)<br>entire text | 1-8 |

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☑ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

| Date of the actual completion of the international search | Date of mailing of the international search report |
|---|---|
| **01 February 2022** | **08 February 2022** |
| Name and mailing address of the ISA/JP<br>**Japan Patent Office (ISA/JP)**<br>**3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915**<br>**Japan** | Authorized officer<br><br>Telephone No. |

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**
**Information on patent family members**

International application No.
**PCT/JP2022/000874**

| Patent document cited in search report | Publication date (day/month/year) | Patent family member(s) | Publication date (day/month/year) |
|---|---|---|---|
| JP 2012-213997 A | 08 November 2012 | (Family: none) | |
| JP 2018-48227 A | 29 March 2018 | (Family: none) | |
| JP 2012-504057 A | 16 February 2012 | US 2011/0182133 A1<br>entire text | |

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2022/000874

A.　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

B29B 7/48(2006.01)i; B29B 7/72(2006.01)i; B29B 7/90(2006.01)i; B29B 9/06(2006.01)i;
C08J 3/20(2006.01)i
FI: B29B7/48; C08J3/20 B CFD; B29B7/72; B29B7/90; B29B9/06

B.　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

B29B7/00-7/94; B29B9/06; C08J3/20; B29C48/00-48/96

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

| | |
|---|---|
| 日本国実用新案公報 | １９２２－１９９６年 |
| 日本国公開実用新案公報 | １９７１－２０２２年 |
| 日本国実用新案登録公報 | １９９６－２０２２年 |
| 日本国登録実用新案公報 | １９９４－２０２２年 |

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C.　関連すると認められる文献

| 引用文献のカテゴリー* | 引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する請求項の番号 |
|---|---|---|
| Y | JP 2012-213997 A (ポリプラスチックス株式会社) 08.11.2012 (2012-11-08)<br>特許請求の範囲，００２２－００９８，図３ | 1-8 |
| Y | JP 2018-48227 A (旭化成株式会社) 29.03.2018 (2018-03-29)<br>特許請求の範囲，００２７－００８８ | 1-8 |
| A | JP 2012-504057 A (スティール エンジニアリング プライベート リミテッド) 16.02.2012 (2012-02-16)<br>全文 | 1-8 |

☐ Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
“&” 同一パテントファミリー文献

| 国際調査を完了した日 | 国際調査報告の発送日 |
|---|---|
| 01.02.2022 | 08.02.2022 |

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）
▲高▼橋　理絵 4R 5797
電話番号 03-3581-1101 内線 3469

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2022/000874

| 引用文献 | 公表日 | パテントファミリー文献 | 公表日 |
|---|---|---|---|
| JP 2012-213997 A | 08.11.2012 | （ファミリーなし） | |
| JP 2018-48227 A | 29.03.2018 | （ファミリーなし） | |
| JP 2012-504057 A | 16.02.2012 | US 2011/0182133 A1<br>全文 | |