

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4118741号  
(P4118741)

(45) 発行日 平成20年7月16日(2008.7.16)

(24) 登録日 平成20年5月2日(2008.5.2)

(51) Int.Cl.

F I

B 2 9 B 7/38 (2006.01)

B 2 9 B 7/38

B 2 9 B 9/06 (2006.01)

B 2 9 B 9/06

C O 8 L 25/04 (2006.01)

C O 8 L 25/04

C O 8 L 71/12 (2006.01)

C O 8 L 71/12

B 2 9 K 25/00 (2006.01)

B 2 9 K 25/00

請求項の数 16 (全 20 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2003-134922 (P2003-134922)  
 (22) 出願日 平成15年5月13日(2003.5.13)  
 (65) 公開番号 特開2004-136641 (P2004-136641A)  
 (43) 公開日 平成16年5月13日(2004.5.13)  
 審査請求日 平成18年2月8日(2006.2.8)  
 (31) 優先権主張番号 特願2002-242524 (P2002-242524)  
 (32) 優先日 平成14年8月22日(2002.8.22)  
 (33) 優先権主張国 日本国(JP)

(73) 特許権者 303046314  
 旭化成ケミカルズ株式会社  
 東京都千代田区有楽町一丁目1番2号  
 (74) 代理人 100151965  
 弁理士 松井 佳章  
 (74) 代理人 100068238  
 弁理士 清水 猛  
 (74) 代理人 100103436  
 弁理士 武井 英夫  
 (74) 代理人 100108693  
 弁理士 鳴井 義夫  
 (72) 発明者 大田 佳生  
 千葉県袖ヶ浦市中袖5番地1 旭化成株式  
 会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 新規な樹脂組成物の製造方法及びその樹脂組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記(a)～(c)の工程を経て、ポリフェニレンエーテル粉体50～99重量部およびポリスチレン系樹脂50～1重量部からなる樹脂組成物100重量部に対して難燃剤10～50重量部を熔融混練し難燃中間原料ペレットを得る工程又は該難燃中間原料ペレットを得る工程とポリフェニレンエーテル粉体70～99重量部及びポリスチレン系樹脂30～1重量部を熔融混練し非難燃中間原料ペレットを得る工程とからなる第一工程並びに前記第一工程で得られた難燃中間原料ペレット100～20重量部及び非難燃中間原料ペレット0～80重量部更にポリスチレン系樹脂5～100重量部を熔融混練する第二工程からなる難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法。

(a) ポリフェニレンエーテル粉体を、上から下方向に向かって、粉体ストックホッパー、粉体用重量式フィーダー、押出機第一供給口ホッパーの順序で供給する工程、

(b) ポリフェニレンエーテル粉体供給配管及びガス抜き用配管を該第一供給口ホッパー上部に、またギアボックス側からダイ方向に向かって、ポリフェニレンエーテル粉体供給配管、ガス抜き用配管の順番に配置し、かつ、ポリスチレン系樹脂を該第一供給口ホッパーのガス抜きベント配管の下流側に供給する工程、

(c) ポリフェニレンエーテル粉体を該粉体供給配管に通し、ギアボックス側の壁面角度60～85度の第一供給口ホッパー壁面に沿って、該第一供給口に供給し、さらに粉体に含まれるガスをガス抜き配管から抜く工程。

【請求項2】

10

20

第一工程において、フレキシブルコンテナ中のポリフェニレンエーテル樹脂をストックホッパーに供給することを特徴とする請求項 1 に記載の難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法。

【請求項 3】

第一工程において、該ポリフェニレンエーテル樹脂を不活性ガスと共にストックホッパーに供給し、粉体用重量式フィーダーを経て該第一供給口ホッパーに供給することを特徴とする請求項 1 または 2 に記載のポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法。

【請求項 4】

第一工程においてポリスチレン系樹脂を、押出機第一供給口ホッパーの下部に供給することを特徴とする請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法。

10

【請求項 5】

第一工程において、第一供給口ホッパー内の酸素濃度が 10 wt % 未満であることを特徴とする請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載の難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法。

【請求項 6】

第一工程において、押出機のスクリュ直径 D が 43 ~ 180 mm であることを特徴とする請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法。

【請求項 7】

20

第一工程の押出機において、粉体搬送ゾーンバレル温度を、150 ~ 300 に設定し、且つ可塑化ゾーンのバレル設定温度を 250 ~ 300 に設定することを特徴とする請求項 1 ~ 6 のいずれかに記載の難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法。

【請求項 8】

第一工程の押出機において、真空ベントを可塑化ゾーンの下流側に少なくとも 1 箇所設け、ガス成分を減圧脱気することを特徴とする請求項 1 ~ 7 のいずれかに記載の難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法。

【請求項 9】

第一工程の押出機において、ブレーカープレートの濾過面積を押出量 1 kg あたり 1 ~ 50 mm<sup>2</sup> に設定することを特徴とする請求項 1 ~ 8 のいずれかに記載の難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法。

30

【請求項 10】

第一工程の押出機において、スクリーンチェンジャーがプレート式スクリーンチェンジャーであることを特徴とする請求項 1 ~ 9 のいずれかに記載の難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法。

【請求項 11】

第一工程の押出機において、ペレットのカッティング方式がストランドカット方式、ホットカット方式およびアンダーウォーターカット方式から選ばれる一種であることを特徴とする請求項 1 ~ 10 のいずれかに記載の難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法。

40

【請求項 12】

該中間原料ペレットのサイズを、1 ~ 6 mm の球状または円柱状にカッティングすることを特徴とする請求項 1 ~ 11 のいずれかに記載の難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法。

【請求項 13】

該ポリフェニレンエーテルの分子量分布 (Mw / Mn) が、2.3 ~ 3.5 であることを特徴とする請求項 1 ~ 12 のいずれかに記載の難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法。

【請求項 14】

第二工程の押出機が単軸押出機であり、該押出機バレル温度を 150 ~ 290 且つ

50

スクリュ回転数を 100 ~ 800 rpm に設定し、溶融混練することを特徴とする請求項 1 ~ 13 のいずれかに記載の難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法。

【請求項 15】

第二工程の押出機が二軸同方向回転押出機であり、該押出機バレル設定温度を 150 ~ 290 且つスクリュ回転数を 200 ~ 1500 rpm に設定し、溶融混練することを特徴とする請求項 1 ~ 14 のいずれかに記載の難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法。

【請求項 16】

第二工程の押出機において、該非難燃中間原料ペレット、難燃中間原料、ポリスチレン系樹脂および添加剤の 100 重量部を第一供給口にフィードして、ガラスファイバーおよび/または粉体強化材を 5 ~ 60 重量部サイドフィードし、溶融混練することを特徴とする請求項 1 ~ 15 のいずれかに記載の難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

変性ポリフェニレンエーテル市場は、ロットサイズが大小様々あり、又グレード数が多く、着色も多種である。しかし、ポリフェニレンエーテル樹脂は、粉体であり、且つハンドリングの難しい樹脂のため、ポリフェニレンエーテル粉体から直接樹脂組成物を押出機で溶融混練するには、押出機一台毎に特殊な粉体供給設備を設置する必要がある。このような多品種・大小ロットサイズの組成物を生産できる新規なフェニレンエーテル難燃樹脂組成物を製造方法が求められている。

本発明は、生産性、物性及び着色性に優れた難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

従来のポリフェニレンエーテル樹脂の中間体（中間原料）ペレットを造り、ポリフェニレンエーテル樹脂組成物を造る先行技術は、

（１）、ポリフェニレンエーテル粉体樹脂とポリスチレン系樹脂の中間体（中間原料ペレット）を製造し、該中間原料とポリスチレン系樹脂を溶融混練して、ポリフェニレンエーテル樹脂組成物を製造する技術が開示されている（例えば、特許文献 1 参照。）。

【0003】

（２）、ポリフェニレンエーテル粉体樹脂及び難燃剤を溶融混練して、2 ~ 5 mm 程度の難燃ポリフェニレンエーテル中間原料ペレットを造り、該中間原料及びポリスチレン系樹脂を溶融混練して、難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物を製造する技術が開示されている（例えば、特許文献 2 参照。）。

従来のポリフェニレンエーテル樹脂粉体濃度が高い条件で、高生産・高品質で押し出す先行技術は

（３）、ポリフェニレンエーテル粉体樹脂 70 重量部及びポリスチレン系樹脂 30 重量部で安定して高生産条件で押し出し、高品質のペレットを造る技術が開示されている。（例えば、特許文献 3 ~ 6 参照。）。

（４）、微粉を含まないポリフェニレンエーテル樹脂と難燃剤の難燃中間原料からポリフェニレンエーテル樹脂組成物を造る製造法が開示されている。（例えば、特許文献 7 参照。）。

【0004】

【特許文献 1】

特開平 04 - 117444 号公報

【特許文献 2】

特開平 07 - 216100 号公報

【特許文献 3】

10

20

30

40

50

特開平 09 - 070872 号公報

【特許文献 4】

特開平 10 - 024483 号公報

【特許文献 5】

特開平 10 - 180840 号公報

【特許文献 6】

特開平 10 - 180842 号公報

【特許文献 7】

特開平 2002 - 541290 号公報

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

ポリフェニレンエーテル粉体からポリフェニレンエーテル樹脂組成物を製造する場合、少なくとも 5 つの課題を抱えている。

(1)、ポリフェニレンエーテル樹脂組成物は、多品種で、ロットサイズも大小様々である。これらの多品種の組成物を造るには、押出機が小さいサイズから大きなサイズまで多数必要である。

【0006】

(2)、ポリフェニレンエーテルは、粉体であり、特にハンドリングが難しい樹脂であるため、特殊な粉体搬送装置を要し且つ粉の流出を防ぐ装置（バグフィルター、集塵ダクト）を各押出機に設置する必要がある。

例えば、

a. 粉体の嵩密度がペレットより低いため、押出量が低下する。

b. 押出機供給ホッパーにポリフェニレンエーテル粉体を供給するとき、ポリフェニレンエーテル粉体は、同搬ガスをうまく分離しないと、押出機での粉体の噛み込み不良を起こし、粉体の押出量低下を起こすので、物性のバラツキを起こす。

【0007】

(3)、ポリフェニレンエーテル粉体融点は、290 であり、且つポリフェニレンエーテルの熔融粘度が高いため、押出加工温度は高くなる。そのため、ハイインパクトポリスチレン中のゴムの劣化とポリフェニレンエーテル樹脂のゲル化による流動性低下を招く。

(4)、ポリフェニレンエーテル樹脂は、熔融粘度が高いため、生産性を上げるため、特に押出機搬送ゾーンのバレル温度を上げると、ポリフェニレンエーテル粉体がバレル壁面、スクリュ底部表面に付着し、熱劣化を起こす。その熱劣化したポリフェニレンエーテルは、難燃剤と反応し、着色時、着色不良の原因となる。また、熱安定剤が分解し、ゴムが劣化する。特に低温耐衝撃性が低下する。

【0008】

(5)、ポリフェニレンエーテル中間原料の種類が多いと、第一工程では、品種切り替えロスが多くなり、生産性低下を起こし、生産計画が複雑になり、労力が増加する。

これらのポリフェニレンエーテル粉体の課題を解決することが求められている。しかしながら、先行技術では、これらの課題に対して十分とは言えない。

本発明は、生産性、物性及び着色性に優れた難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法を確立することを目的とする。

【0009】

【課題を解決するための手段】

優れた生産性、物性及び着色性を持った難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法及びその得られる樹脂組成物に関して、上記目的を達成するために鋭意検討した結果、本発明に達した。

すなわち本発明は、下記 (a) ~ (c) の工程を経て、ポリフェニレンエーテル粉体 50 ~ 99 重量部およびポリスチレン系樹脂 50 ~ 1 重量部からなる樹脂組成物 100 重量部に対して難燃剤 10 ~ 50 重量部を熔融混練し難燃中間原料ペレットを得る工程又は該難燃中間原料ペレットを得る工程とポリフェニレンエーテル粉体 70 ~ 99 重量部及びポリ

10

20

30

40

50

リスチレン系樹脂 30 ~ 1 重量部を溶融混練し非難燃中間原料ペレットを得る工程とからなる第一工程並びに前記第一工程で得られた難燃中間原料ペレット 100 ~ 20 重量部及び非難燃中間原料ペレット 0 ~ 80 重量部更にポリスチレン系樹脂 5 ~ 100 重量部を溶融混練する第二工程からなる難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法である。

【0010】

(a) ポリフェニレンエーテル粉体を、上から下方向に向かって、粉体ストックホッパー、粉体用重量式フィーダー、押出機第一供給口ホッパーの順序で供給する工程、

(b) ポリフェニレンエーテル粉体供給配管及びガス抜き用配管を該第一供給口ホッパー上部に、またギアボックス側からダイ方向に向かって、ポリフェニレンエーテル粉体供給配管、ガス抜き用配管の順番に配置し、かつ、ポリスチレン系樹脂を該第一供給口ホッパーのガス抜きベント配管の下流側に供給する工程、

(c) ポリフェニレンエーテル粉体を該粉体供給配管に通し、ギアボックス側の壁面角度 60 ~ 85 度の第一供給口ホッパー壁面に沿って、該第一供給口に供給し、さらに粉体に含まれるガスをガス抜き配管から抜く工程。

【0011】

【発明の実施の形態】

以下、本発明を更に詳細に、図面を用いて説明する。

本発明の一例に係るポリフェニレンエーテル（以下 P P E と略記することがある。）粉体から中間原料ペレットを造り、難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物を製造する概要図を図 1 に示す。

図 1 中において、1 は、ポリフェニレンエーテル粉体を入れたフレキシブルコンテナバックである。2 は、ポリフェニレンエーテル粉体ストックホッパーである。フレキシブルコンテナは、2 の上に吊って、フレキシブルコンテナ下部を開き、ストックホッパーに供給する。3 は、4 の重量式フィーダーホッパー遮断弁である。この 3 の遮断弁の機構は、4 の重量式フィーダーのホッパーに、ホッパー中の原料重量下限値と上限値を設定しておき、原材料が下限値以下になったら、3 の遮断弁が開き、原料がストックホッパーから 4 の重量式フィーダーホッパーに投入し、上限値になったら、遮断弁は絞まる。4 は、ポリフェニレンエーテル粉体用重量式フィーダーである。5 は、ポリスチレン系樹脂のストックホッパーである。6 は、遮断弁である。7 は、ポリスチレン系重量式フィーダーである。8 は、ポリフェニレンエーテル粉体中のガスを抜くベント配管である。9 は、題意工程押出機の第一供給口ホッパーである。10 は、第一工程用二軸同方向回転押出機である。

【0012】

11 は、真空ベントである。12 は、スクリーンチェンジャーである。13 は、ダイ部である。14 と 28 は、ストランドバスである。15 と 29 は、ストランドカッターである。16 と 30 は、篩である。17 は、中間原料輸送用コンテナである。18 は、液状難燃剤添加ノズルである。19 - 1 は、重量式液添フィーダーのギアポンプである。19 - 2 は、重量式液添フィーダーのタンクとロードセルである。20 は、中間原料ストックホッパーである。21 は、22 のフィーダーが R E F I L 時に開く遮断弁である。23 は、ポリスチレン系樹脂用重量式フィーダーである。24 は、第二工程押出機の第一供給口ホッパーである。25 は、第二工程用二軸同方向回転押出機である。26 は、真空ベントである。27 は、ダイ部である。

【0013】

続いて本発明を、上記で説明した図面の説明などを交えながら説明する。

本発明の難燃中間原料ペレットの樹脂組成について説明する。

本発明の難燃中間原料ペレットを得る第一工程においてポリフェニレンエーテル粉体は、50 ~ 99 重量部が好ましく、さらに 70 ~ 99 重量部が好ましい。ポリスチレン系樹脂は、50 ~ 1 重量部が好ましく、さらに、30 ~ 1 重量部が好ましい。

本発明のポリフェニレンエーテル粉体は、平均粒径は、30 ~ 800  $\mu\text{m}$  の範囲である。

本発明のポリフェニレンエーテル粉体の平均粒径測定方法は、コールカウンター測定機、レーザー回析式粒度計等で測定される値である。

## 【0014】

本発明のポリフェニレンエーテルの還元粘度（単位  $\text{g/dl}$ 、クロロホルム溶液、30 測定）が 0.25 ~ 0.6 の範囲、より好ましくは 0.35 ~ 0.55 の範囲にあるホモ重合体および/または共重合体である。この PPE の具体的なものとしては、例えばポリ（2, 6 - ジメチル - 1, 4 - フェニレンエーテル）、ポリ（2 - メチル - 6 - エチル - 1, 4 - フェニレンエーテル）、ポリ（2 - メチル - 6 - フェニル - 1, 4 - フェニレンエーテル）、ポリ（2, 6 - ジクロロ - 1, 4 - フェニレンエーテル）等が挙げられ、さらに、2, 6 - ジメチルフェノールと他のフェノール（例えば、2, 3, 6 - トリメチルフェノールや 2 - メチル - 6 - プチルフェノール）との共重合体が好ましく、中でもポリ（2, 6 - ジメチル - 1, 4 - フェニレン）エーテル、2, 6 - ジメチルフェノールと 2, 3, 6 - トリメチルフェノールとの共重合体が好ましく、さらに、ポリ（2, 6 - ジメチル - 1, 4 - フェニレン）エーテルが特に好ましい。

10

## 【0015】

ポリフェニレンエーテルの好ましい分子量分布  $M_w / M_n$  は、1.5 ~ 3.5 であり、特に好ましい分子量分布  $M_w / M_n$  は、2.3 ~ 3.5 である。 $M_w$  は、重量平均分子量であり、 $M_n$  は、数平均分子量である、ポリフェニレンエーテルの分子量はゲルパーミエシヨクロマトグラフィー（以下 GPC と略することがある。）で測定し、ポリスチレン換算量である。流動性のバランスを考慮すると、 $M_w / M_n$  は 1.5 以上が好ましい。また低分子量部分が多くなり、耐衝撃性が低下することを考慮すると  $M_w / M_n$  は、3.5 以下が好ましい。

20

## 【0016】

第一、二工程で用いるポリスチレン系樹脂とは、ゼネラルパーパスポリスチレン樹脂、ハイインパクトポリスチレン系樹脂、スチレン・アクリルコポリマー系樹脂、スチレン・アクリル・ブタジエンコポリマー系樹脂等である。特に好ましいポリスチレン系樹脂は、ゼネラルパーパスポリスチレンとハイインパクトポリスチレンである。ハイインパクトポリスチレンのゴム平均粒径は、1.0 ~ 2.0  $\mu\text{m}$  前後が好ましく、好ましいゴム濃度は、8 ~ 15 重量% である。ハイインパクトポリスチレンのゴムは、ハイスブタジエンゴム、又は、部分水素添加ブタジエンゴムが好ましい。部分水添ブタジエンゴムは、全二重結合の内、5 ~ 70 重量% が水添され、しかも 1, 2 - ビニル結合量及び 1, 4 - 結合量は、各々 3 重量% 以下及び 30 重量% 以上であることが必要である。

30

## 【0017】

本発明の難燃剤は、樹脂 100 重量部に対し、10 ~ 50 重量部添加することが好ましく、さらに 10 ~ 43 重量部が好ましい。難燃剤は、樹脂温度が上がりすぎ、PPE が架橋し、MFR が低下することを考慮すると 10 重量部以上であることが好ましい。樹脂と相溶できなくなり、難燃剤がブリータウトすることを考慮すると 50 重量部以下であることが好ましい。

難燃剤としては、一例として、トリフェニルフォスフェート、フェニルビスドデシルホスフェート、フェニルビスネオペンチルホスフェート、フェニル - ビス（3, 5, 5 - トリ - メチル - ヘキシルホスフェート）、エチルジフェニルホスフェート、2 - エチル - ヘキシルジ（p - トリル）ホスフェート、ビス - （2 - エチルヘキシル）p - トリルホスフェート、トリトリルホスフェート、ビス - （2 - エチルヘキシル）フェニルホスフェート、トリ - （ノニルフェニル）ホスフェート、ジ（ドデシル）p - トリルホスフェートが挙げられる。

40

## 【0018】

また、トリクレジルホスフェート、ジプチルフェニルホスフェート、2 - クロロエチルジフェニルホスフェート、p - トリルビス（2, 5, 5 - トリメチルヘキシル）ホスフェート及び 2 - エチルヘキシルジフェニルホスフェート、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、リン酸 - （3 - ヒドロキシフェニル）ジフェニル、レゾルシン・ビス（ジフェニルホスフェート）、2 - ナフチルジフェ

50

ニルフォスフェート、１-ナフチルジフェニルフォスフェート、ジ（２-ナフチル）フェニルフォスフェート等の燐酸エステル系難燃剤等が挙げられる。

【００１９】

本発明の難燃剤は、固体でも液体のどちらでも良く、固体の場合、該押出機の第一供給口ホッパーから供給し、液体の場合、樹脂の溶融混練後、添加するのが好ましい。難燃剤が液状の場合は、液状難燃剤を供給する液状添加装置が必要である。液状添加装置とは、液状の難燃剤をギアポンプ、プランジャーポンプ等を使って、押出機のサイドに注入ノズルから供給する装置で、流量の制御は、弁の開度を調節する装置又は、単位時間当たりの重量減を測定し、ポンプの回転数を制御する重量式フィーダーが好ましく、特に重量式フィーダーが好ましい。重量式液状添加フィーダーは、価格が安く、流量精度が高いので、近年良く使われている。

10

【００２０】

本発明の熱安定剤は、酸化亜鉛、硫化亜鉛、リン系の安定剤（例えば、旭電化製のMARK 2112、PEP 36、PEP 45等）、ヒンダードフェノール系安定剤（例えば、旭電化製のイルガノックス 1010等）を入れることが出来る。

本発明の非難燃中間原料ペレットの樹脂組成について説明する。

ポリフェニレンエーテル粉体は、７０～９９重量部が好ましく、さら８０～９９重量部が好ましい。ポリスチレン系樹脂は、３０～１重量部が好ましく、さらに２０～１重量部が好ましい。

【００２１】

20

次に本発明の第二工程について説明する。

本発明の該難燃中間原料ペレットは、１００～２０重量部が好ましく、さらに１００～３０重量部が好ましい。

本発明の該非難燃中間原料ペレットは、０～８０重量部が好ましく、さらに０～７０重量部が好ましい。

本発明のポリスチレン系樹脂は、５～１００重量部が好ましく、さらに１０～１００重量部が好ましい。

【００２２】

本発明の押出機は、単軸押出機又は二軸同方向回転押出機が好ましい。単軸押出機はコペリオン社（旧ブス社）のコニーダー、可塑化ゾーンにミキシングスクリュが付いた単軸押出機が好ましい。ミキシングスクリュとしては、バリヤスクリュ、Maddock、Blister Ring、Egan、ダルメージ、ユニメルトスクリュ等が好ましい。ミキシングスクリュの中で特に好ましいものは、分散混合スクリュと言われる剪断で混合するスクリュである。該押出機の長さLは、L＝２０～４８程度が好ましい。真空ベントは、水分、分解物の除去を行う上で設置することが好ましい。本発明の該押出機には、プレーカープレートに１０番から２００番の金属メッシュを付けて、異物を除去することが望ましい。プレーカープレートの濾過面積は、第一工程と同じであることが好ましい。ただし、強化材グレードを造る場合にはメッシュを外すことが必要である。

30

【００２３】

本発明の強化材であるフィラーは、重質炭酸カルシウム、膠質炭酸カルシウム、軟質炭酸カルシウム、シリカ、カオリン、クレー、酸化チタン、硫酸バリウム、酸化亜鉛、アルミナ、水酸化マグネシウム、タルク、マイカ、ガラスフレーク、ハイドロタルサイト、針状フィラー（ウオラストナイト、チタン酸カリウム、塩基性硫酸マグネシウム、セブライト、ゾノトライト、ホウ酸アルミニウム）、ガラスビーズ、シリカビーズ、アルミナビーズ、カーボンビーズ、ガラスバルーン、金属系導電性フィラー、非金属製導電性フィラー、カーボン、磁性フィラー、圧電・焦電フィラー、摺動性フィラー、封止材用フィラー、紫外線吸収フィラー、制振用フィラー、導電性フィラー（ケッチェンブラック、アセチレンブラック）等で、ファイバーは、ガラス繊維、炭素繊維、金属繊維等である。

40

【００２４】

本発明の耐衝撃性改良としての添加剤は、ポリオレフィン樹脂（高密度ポリエチレン、低

50

密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、線状低密度ポリエチレン、エチレン・プロピレン共重合体、エチレン・オクテン共重合体)が挙げられ、添加量は、本発明の第一工程および第二工程から得られた難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物100重量部に対して0.1~5重量部が好ましく、ならびにスチレン・エチレン・ブチレン・スチレンブロック共重合体および/またはスチレン・イソブレンブロック共重合体0~5重量部添加することが好ましい。

#### 【0025】

本発明のポリフェニレンエーテル粉体は、図1-(a)第一工程概要図のようにフレキシブルコンテナパックで供給するか、ニューマを使って、不活性ガスと共にストックホッパーに供給することが好ましい。ただし、ニューマを使う場合は、2のストックホッパーにガスとポリフェニレンエーテル粉体を分離するフィルターが必要である。ポリフェニレンエーテル粉体を輸送する不活性ガス流量は、1時間当たりポリフェニレンエーテル粉体1kgを輸送するのに1~100Nm<sup>3</sup>が好ましい。又、フィルター面積は、1時間当たり不活性ガス量1Nm<sup>3</sup>通気させるには0.1~10m<sup>2</sup>が好ましい。フィルターは、バグフィルター等が好ましく、自動逆洗装置が付いているものがさらに好ましい。

#### 【0026】

また、本発明のポリフェニレンエーテル粉体は、上方向から下方向に向かって、粉体ストックホッパー、粉体用重量式フィーダー、押出機第一供給口ホッパーの順序で供給することが必要である。

本発明のポリフェニレンエーテル粉体ストックホッパーは、不活性ガス(窒素ガス、炭酸ガス、アルゴンガス等が挙げられる。)を使って、酸素濃度を18wt%以下に下げることが好ましい。さらに好ましくは15wt%以下である。

本発明に使われる3の遮断弁は、プレートバルブ式やロータリーバルブ式が好ましい。

#### 【0027】

本発明の第一、二工程重量式フィーダーは、原材料の重量経時減少をロードセル等で測定し、所定の供給量に調整する装置であり、スイス国K-tron社製、ドイツ連邦国ブラベンダー社、米国アクリソン社、日本国クボタ社のフィーダー等が挙げられる。ポリフェニレンエーテル粉体の重量式フィーダーのスクリュ種は、2軸完全噛み合い方式のスクリュ、オーガタイプの2軸、単軸スクリュが好ましい。ポリスチレン系樹脂のフィーダースクリュは、二軸、単軸どちらでも使えるが、ペレット滑りが少なく堅い場合、単軸のスクリュが好ましい。又ベルト式重量式フィーダーも使用できる。

#### 【0028】

本発明の押出機第一供給口ホッパーは、押出機のパレルの上に取り付けるのが好ましい。該ホッパー内に不活性ガス(窒素ガス、炭酸ガス、アルゴンガス等が挙げられる。)を注入し、該ホッパー内の酸素濃度は、好ましくは10wt%未満、さらに好ましくは、5wt%未満、さらにさらに好ましくは2wt%未満である。

#### 【0029】

好ましい該ホッパーの壁面の角度は、60~85度である。ポリフェニレンエーテル粉体は、該壁面に落とすことが好ましい。なお、本発明の言うホッパーの壁面角度とは、水平面とホッパーとの成す角(通常鋭角)のことである。壁面角度は、粉体が壁面に溜まり、一度に流れたりして、押出機での供給量が安定しなくなることとを考慮すると60度以上が好ましい。また、ポリフェニレンエーテルの嵩密度の低下を考慮すると壁面角度は85度以下が好ましい。又、ポリフェニレンエーテル粉体は、該壁面に落とし、壁面を伝わらせて押出機に供給すると、ポリフェニレンエーテル粉体は、嵩密度低下を防止できるので、押出機スクリュへの食い込みを向上できる。すなわち、該ホッパーの配管レイアウトは、ギアボックス側から順にポリフェニレンエーテル粉体供給配管、ガス抜きベント配管と並べるのが好ましい。

#### 【0030】

粉体供給配管とベント配管の位置を逆にすると、粉体の嵩密度低下とガス抜き不良を起こし、押出量の大幅低下を引き起こす。ポリスチレン系樹脂用供給配管は、ベント配管の下

10

20

30

40

50



流側か、該ホッパーの下部に設置するのが好ましい。すなわち、ホッパー内上部には、ポリフェニレンエーテルに同搬されたガスと微細な粉体が存在しているので、例えば、ベントガス配管とポリスチレン系樹脂供給配管の設置位置を逆にすると、ガス抜きが低下するとともに微細な粉体がポリスチレン系配管又は、重量式フィーダーまで逆流し、粉体が溜まり、ポリフェニレンエーテルの流量が不安定になる。

#### 【0031】

本発明に使用される第一、二工程二軸同方向回転押出機の例としては、ドイツ国コベリオン社製ZSKシリーズ、東芝機械TEMシリーズ、日本製鋼所のTEXシリーズが使用できる。なかでもハイトルク型押出機のZSKメガコンパウンダー、TEMSシリーズ、TEX IIシリーズが好ましい。

10

本発明の押出機のスクリュ長径Dは、 $D = 43 \sim 180 \text{ mm}$ が好ましく、 $D = 70 \sim 180 \text{ mm}$ がさらに好ましい。押出機スクリュ長径は、生産性を考慮すると43mm以上が好ましく、発熱を抑えるため、回転数が低くなり過ぎ、生産性が低下することを考慮すると180mm以下が好ましい。

#### 【0032】

本発明の押出機可塑化ゾーンのスクリュ構成は、ポリフェニレンエーテル粉体の濃度が高いので、ニーディングディスクライト（略してKR）とニーディングディスクニュートラル（略してKN）を組み合わせる。例えば、KR、KR、KR、KR、KN、KRの順番に並べる構成が好ましい。

本発明の非難燃中間原料の押出機運転条件は、ポリフェニレンエーテル粉体濃度が高いので、ダイ出口の樹脂温度を370 未満に制御することが必要である。ポリフェニレンエーテル樹脂のダイ出口樹脂温度は、370 以上になるとポリフェニレンエーテルの架橋反応が起こり始め、分子量が上がり、流動性が大幅に低下する。又、ハイインパクトポリスチレンのゴム成分が熱劣化を起こし、特にゴム成分のTgが上がり、低温衝撃性が低下する。そのため、ダイ出口樹脂温度は、370 未満にする必要がある。ダイ出口樹脂温度は、370 未満が好ましく、さらに好ましくは360 未満である。

20

#### 【0033】

本発明の非難燃中間原料の押出機運転条件は、押出機スクリュ長径とスクリュ回転数の関係から下記式（1）で求められる。

$$2000 \times D^{-0.57} < N < 5000 \times D^{-0.57} \quad \text{式（1）}$$

30

N：スクリュ回転数 rpm

スクリュ回転数Nは、ポリフェニレンエーテル粉体の未溶融物の発生を考慮すると $2000 \times D^{-0.57} \text{ rpm}$ 以上であることが好ましい。また、Nは、発熱によりダイ出口樹脂温度が370 以上になることを考慮すると $5000 \times D^{-0.57} \text{ rpm}$ 以下であることが好ましい。

#### 【0034】

本発明の非難燃押出機運転条件の内、押出量は、下記式（2）および（3）から求められる。

$$7 \times 10^{-3} < DLQ < 18 \times 10^{-3} \quad \text{式（2）}$$

DLQ：無次元押出量（-）

40

$$DLQ = Q / (60 \times \rho \times 2 \times 3.14 \times N \times D^3) \quad \text{式（3）}$$

Q：押出量 kg/H

ρ：密度 ここでは、 $1000 \text{ kg/m}^3$

$$60 : \text{kg/H} / \text{rpm} \quad \text{kg/s} / \text{rps}$$

無次元押出量DLQは、樹脂温度を考慮すると $7 \times 10^{-3}$ 以上であることが好ましく、トルクが上がりすぎ、運転不可能になることを考慮すると $18 \times 10^{-3}$ 以下であることが好ましい。

#### 【0035】

本発明の押出機のパレル設定温度は、粉体搬送ゾーンは、150～300 に設定し、可塑化ゾーンのバレル設定温度を250～300 に設定する。粉体搬送ゾーンのバレル温

50

度は、ポリフェニレンエーテルと同伴されるガス量が多くなり、可塑化ゾーンでガスが膨張し、下流側に流れにくくなりポリフェニレンエーテルの搬送能力が低下することを考慮すると150以上であることが好ましい。又バレル壁面に付着滞留する粉体量が多くなり、滞留した粉体が熱劣化を起こし、異物の原因になることを考慮すると300以下が好ましい。可塑化ゾーンのバレル設定温度は、ポリフェニレンエーテルの溶融を考慮すると250以上が好ましく、又ポリフェニレンエーテルの濃度が高くなりダイ出口樹脂温度が高くなりすぎることを考慮すると300以下であることが好ましい。

#### 【0036】

本発明の難燃中間原料は、難燃剤の添加量が多いため、樹脂温度は320以下になるので、運転条件の制約は少ない。

10

本発明の該押出機の真空ベントは減圧脱気(50mmHg~750mmHg)した方が好ましい。

本発明のスクリーンチェンジャーは、押出を連続運転しながら、片方ずつ切り替えていく上下2連方式か、プレート方式では、1秒以内に切り替えられるものが好ましい。スクリーンチェンジャーは、連続運転で切り替えた方が、生産性の観点から好ましい。スクリーンチェンジャーに付けるブレーカープレートの有効濾過面積は、1時間あたり押出量1kgに対して1~50mm<sup>2</sup>が好ましく、2~40mm<sup>2</sup>がさらに好ましい。該濾過面積は、樹脂中の異物によるスクリーンチェンジャーの切り替え頻度や、ダイ圧の上昇による樹脂温度の上昇を考慮すると1mm<sup>2</sup>以上が好ましい。また該濾過面積は、ブレーカープレートが大きくなり、滞留部が増えて、滞留部で貯まった樹脂が熱劣化し、剥がれて、異物となり、品質トラブルを起こすことなどを考慮すると50mm<sup>2</sup>以下であることが好ましい。

20

#### 【0037】

本発明のダイ部は、ストランドカット用ダイ、ホットカット用ダイ、アンダーウォーターカット用ダイが好ましい。ダイホール直径は、1~8mm/ダイホールが好ましい。ダイホール径は、ペレットが小さくなり過ぎ、篩で分別できなくなることを考慮すると1mmより大きいことが好ましい。またダイホール径は、ストランドの場合、引き取り速度が速くなりすぎるので、カッターでカットできなることを考慮すると8mmより小さいことが好ましい。

#### 【0038】

30

本発明の第一、第二工程のペレットは、ストランドカット方式の場合、30~80に制御した冷却水を入れたストランドバスでストランドを冷却、又は噴水を掛けるベルトコンベアで冷却、又はドイツ連邦国のSCHEER社のWS WET CUT SYSTEMで冷却し、ペレタイザーで直径が1~6mm、長さが1~6mmの円柱状にカットするのが好ましい。又、ホットカット方式とアンダーウォーター方式の場合、ダイ穴から出てきた樹脂を回転刃で1~5mmの球状にカットするのが好ましい。

#### 【0039】

本発明のペレットのサイズは、円柱状長さ1~6mm、直径1~6mm、球状で直径1~6mmが好ましい。該ペレットは、切り粉と呼ばれる微粉末が増えることを考慮すると1mm以上であることが好ましい。又該ペレットは、可塑化が不十分になることを考慮すると6mm以下であることが好ましい。該ペレットの平均径は、ポリスチレン系樹脂のペレット平均径に対して、±1.00mm以内に合わせることが好ましい。理由は、ポリフェニレンエーテル中間原料ペレットとポリスチレンペレットをブレンドするとき、平均径を揃えると分級がなくなるからである。樹脂メーカーの常識では、ペレットサイズの平均径は、3mm目標でカッティングするのが常識である。

40

#### 【0040】

本発明の第一、第二工程の篩は、長さが長すぎるペレット、又は短いペレットを除去する装置であり、ペレット中に含まれる連粒ペレット、切り粉(カッターでの、ペレット切りくず)も除去される。特に、切り粉と呼ばれる75μm以下のカッターの切り屑は、ホッパー壁面、供給配管壁面に付着し、掃除が大変になるので、ペレットに混入しないように

50

製造するのが常識である。

#### 【0041】

##### 【実施例】

本発明を実施例に基づいて説明する。

まず始めに、第一工程の説明をする。

中間原料種の製造例（第一工程）

なお、本発明の第一工程で用いた押出機の運転条件は下記に示す通りである。（以下、ポリフェニレンエーテルをPPEと、ポリスチレンをPSと略記することがある。）

（A）原料

PPE樹脂A： 平均粒径：500 μm Mw/Mn：2.8 還元粘度：0.51 10

#### 【0042】

（B）押出機

押出機： 日本国東芝機械社製の二軸同方向回転押出機TEM-136SS（押出機長さ8バレル L/D=32）を使用した。

スクリュ構成とバレル構成

No.1バレル： 供給ゾーン

No.2～No.4バレル： 搬送ゾーン

No.5バレル： 可塑化ゾーン

No.6バレル： 真空ベントバレル（絶対圧100 mmHgで真空ベントを行った。）

No.7バレル： インジェクションバレル 20

No.8バレル： クローズドバレル

#### 【0043】

バレル温度

No.1バレル 70

No.2～No.4バレル： 250

No.5バレル： 290

No.6～No.8バレル： 270

スクリュ回転数： 300 rpm

スクリーンチェンジャー： プレート式スクリーンチェンジャー

スクリーンチェンジャーのブレードプレート有効濾過面積： 500 cm<sup>2</sup> 金属メッシュ： 20番/60番/20番を組み合わせた金属メッシュ（ブレードプレートに張り付け） 30

ダイプレート： 4、5 mm の穴径150穴

#### 【0044】

ストランドバスの長さ： 5 m

ストランド水の温度： 40

ストランドは、ストランド水に2 m浸漬したのち、空冷し、エアワイパーでストランド表面に付着している水を吹き飛ばした。

ストランドのペレタイザーの入り口温度： 140

ペレットサイズ（長さ）： 3 mm目標（その後篩で、連粒ペレット、長ペレットを分離して、99 wt%が2.5～3.5 mmの円柱状のペレットを製造。） 40

#### 【0045】

第一供給口ホッパー： 角度70度の斜面を持った角形

第一供給口ホッパー内の酸素濃度： 2.5 wt%

第一供給ホッパーの配管レイアウト：（ギアボックス側から下流の順）

1. ポリフェニレンエーテル供給配管

2. ベントガス配管

3. ポリスチレン供給配管

異物の確認

ペレット中の異物の数は、内寸160×160 mm、厚み1 mmのプレス金型で、250 50

で圧縮成形した成形品の炭化物の数を数えた。100 μm以上を1点/個とした。

#### 【0046】

(1) 非難燃中間原料

重量式フィーダー：K - トロン社の重量式フィーダー（ポリフェニレンエーテル粉体用とポリスチレンペレット用）

各重量式フィーダーの設定

PPE用フィーダー： 85重量部

PS用フィーダー： 15重量部（A & M製ゼネラルパーパスポリスチレン685 / A & M製ハイインパクトポリスチレンH9405 = 5重量部 / 10重量部）

安定剤用フィーダー： 1重量部 / 安定剤（685 / 酸化亜鉛 / アデカ社製リン系安定剤PEP36 = 50 / 25 / 25）（安定剤マスターバッチ）

10

#### 【0047】

(2) 難燃中間原料

各重量式フィーダーの設定

PPE用フィーダー： 100重量部

トリフェニレンホスフェート（以下TPPと略記することがある。）用フィーダー： 37重量部

安定剤用フィーダー： 1重量部 / 安定剤（685 / 酸化亜鉛 / アデカ社製リン系安定剤PEP36 = 50 / 25 / 25）（安定剤マスターバッチ）

20

#### 【0048】

[製造1]

フレキシブルコンテナからポリフェニレンエーテル粉体を20m<sup>3</sup>のストックホッパーに5t投入し、ストックホッパーからフィーダーホッパーにREFIL量400kgを仕込んだ。

また、ストックホッパー、フィーダーホッパーおよび第一供給口ホッパーを窒素パージした。

非難燃中間原料の押出条件は、押出量を3000kg / Hに設定した。非難燃中間原料のペレットの平均径は、3.1mmであった。異物測定は、上述に従って実施した。ダイ出口の樹脂温度は、350であった。得られた中間原料種をaとする。

30

#### 【0049】

[製造2]

押出量を1500kg / Hにした以外は、製造1と同一条件で製造した。得られた中間原料種をbとする。

[製造3]

スクリュ回転数を500rpmに変えた以外は、製造1と同一条件で製造した。得られた中間原料種をcとする

#### 【0050】

[製造4]

ベント配管とポリフェニレンエーテル粉体供給配管を入れ替えた以外は、製造1と同一条件で製造した。

40

[製造5]

第一供給ホッパー壁面角度を40度に変えた以外は、製造1と同一条件で製造した。ポリフェニレンエーテル粉体がホッパー壁面に貯まり、押出量低下が起こり、又貯まったポリフェニレンエーテル粉体が瞬間的に供給されるので、押出量増加繰り返し、時には押出機のトルクオーバーで止まることがあった。

#### 【0051】

[製造6]

ポリフェニレンエーテル粉体をフレキシブルコンテナから重量式ホッパーにニューマを使って送った以外は、製造1と同一条件で製造した。ただし、ポリフェニレンエーテル粉体は、ニューマで搬送するため、重量式ホッパーのガス抜き配管の末端にバグフィルターを

50

設置し、ガスとポリフェニレンエーテル粉体を分離出来るようにした。ニューマで搬送するとポリフェニレンエーテル粉体の嵩密度が下がったため、重量式フィーダースクリュで粉体フラッシング現象（粉体がガスを含むと嵩密度が低下し、液状化現象）を起こし、第一供給ホッパーにポリフェニレンエーテル粉体が一気に流れ、押出機がトルクオーバーで停止した。

【 0 0 5 2 】

[製造 7]

窒素パージを止めた以外は、製造 1 と同一条件で製造した。得られた中間原料種を d とする。

[製造 8]

バレル温度を 3 4 0 に設定した以外は、製造 1 と同一条件で製造した。得られた中間原料種を e とする。

[製造 9]

ポリフェニレンエーテル粉体の分子量分布  $M_w / M_n$  を 2 . 0 の物を使った以外は、実施例 1 と同一条件で実施した。押出トルクが少し高め以外は、製造 1 と同様なものが得られた。得られた中間原料種を f とする。

【 0 0 5 3 】

[製造 1 0]

ポリフェニレンエーテル粉体 / P S 樹脂を 6 0 重量部 / 4 0 重量部にした以外は、製造 1 と同一条件で製造した。樹脂温度は 3 2 5 と低く、生産性も増加した。得られた中間原料種を g とする。

[製造 1 1]

難燃中間原料は、押出量を 2 1 0 0 k g / H に設定した。それ以外は、製造 1 と同一条件で製造した。難燃中間原料のペレットの平均径は、3 . 1 m m であった。ダイ出口樹脂温度は、3 0 5 であった。得られた中間原料種を h とする。

【 0 0 5 4 】

[製造 1 2]

搬送ゾーンのバレル設定温度を 3 4 0 にした以外は、製造 1 1 と同一条件で製造した。得られた中間原料種を i とする。

[製造 1 3]

窒素パージを止めた以外は、製造 1 1 と同一条件で製造した。得られた中間原料種を j とする。

【 0 0 5 5 】

[製造 1 4]

ポリフェニレンエーテル粉体 / ポリスチレンのブレンド物 ( 6 8 5 / H 9 4 0 5 の混合物 = 1 0 重量部 / 1 0 重量部 ) / 安定剤マスターバッチ / 難燃剤 ( 2 , 2 - ビス - { 4 - [ ビス ( フェノキシ ) ホスホリルオキシ ] フェニル } プロパン第八化学製商品名 E 8 9 0 ) = 9 0 重量部 / 1 0 重量部 / 1 重量部 / 4 3 重量部の組成物を押出量 2 1 0 0 k g / H 、難燃剤は、バレル 7 のインジェクションバレルに設置しているインジェクションノズルから注入した以外は、製造 1 1 と同一条件で製造した。難燃中間原料のペレットの平均径は、3 . 1 m m であった。得られた中間原料種を k とする。

以下、実施例により更に説明する。

【 0 0 5 6 】

[第二工程]

( C ) 押出機

押出機：東芝機械の T E M 5 8 S S ( 9 バレル ) を使用した。

スクリュ構成とバレル構成

N o . 1 バレル：供給ゾーン

N o . 2 ~ 4 バレル：搬送ゾーン

N o . 5 バレル：可塑化ゾーン

10

20

30

40

50

No. 6 バレル：強化材サイドフィードバレル

No. 7 バレル：強化材混練用バレル

No. 8 バレル：真空ベントバレル

No. 9 バレル：クロ - ズドバレル

【0057】

バレル温度

No. 1 バレル：50

No. 2 ~ No. 4 バレル：250

No. 5 バレル：290

No. 6 ~ No. 9 バレル：270

10

スクリュ回転数：600rpm

No. 8 バレルの真空ベントは、絶対圧100mmHgで減圧ベントを行った。

【0058】

重量式フィーダーは、非難燃中間原料ペレット、難燃中間原料ペレット及びポリスチレン系樹脂用（難燃剤、耐衝撃改良剤、着色剤当添加剤は、ポリスチレン系樹脂とブレンドする）の3つを用意した。

可塑化ゾーンスクリュ構成（No. 5）は、ニーディングディスクライト2ヶ、ニーディングディスクニュートラル1ヶ、ニーディングディスクレフト1ヶ、ニーディングディスクライト1ヶとした。

強化材混練ゾーン（No. 8）は、ニーディングディスクライト2ヶ、ニーディングディスクニュートラル1ヶ、ニーディングディスクレフト1ヶ、ニーディングディスクライト1ヶとした。

20

【0059】

押出量：500kg/H

金属メッシュ：20番/60番/20番/100番を組み合わせた金属メッシュをブレーカープレートに張り付けた。

ダイプレート：4mmの穴径25穴

ストランドバスの長さ：5m

ストランド水：40

ストランドは、ストランド水に2m浸漬したのち、空冷し、エアワイパーでストランド表面に付着している水を吹き飛ばした。

30

ストランドのペレタイザーの入り口温度：140

ペレットサイズ（長さ）：3mm目標（その後篩で、連粒ペレット、長ペレットを分離して、99wt%が2.5~3.5mmの円柱状のペレットを製造）。

【0060】

ペレットを射出成形機（シリンダー温度設定240~300、金型温度設定50~85の条件下）で成形して、Izod（ASTM D258 1/4インチ幅の成形片ノッチ付き 23）、HDT（ASTM D648 18.6kg荷重 1/4インチ幅の成形片）、MFR（ASTM D1238 10kg荷重 250）を測定した。着色性は、160mm×160mm×厚み0.5mmの平板をプレス成形機で250にて、ペレットをプレス成形して、着色性を目視判定した。

40

【0061】

【実施例1~8】

表3に示すような配合で上述した第二工程を実施した。着色性および生産性に優れ、物性バランスが良好であることがわかった。

【0062】

【表1】

	製造1	製造2	製造3	製造4	製造5	製造6	製造7	製造8
中間原料種	a	b	c				d	e
PPE還元粘度	0.51	0.51	0.51	0.51	0.51	0.51	0.51	0.51
Mw/Mn	2.90	2.90	2.90	2.90	2.90	2.90	2.90	2.90
PPE供給方法	フレコン/ストックホッパー	フレコン/ストックホッパー	フレコン/ストックホッパー	フレコン/ストックホッパー	フレコン/ストックホッパー	フレコン/ストックホッパー	フレコン/ストックホッパー	フレコン/ストックホッパー
PPE重量部	85	85	85	85	85	85	85	85
PS重量部	15	15	15	15	15	15	15	15
安定剤	1	1	1	1	1	1	1	1
PPE供給配管	ギアボックス側	ギアボックス側	ギアボックス側	ギアボックス側	ギアボックス側	ギアボックス側	ギアボックス側	ギアボックス側
ガス抜き配管	中間	中間	中間	中間	中間	中間	中間	中間
PS系供給配管	ダイ側	ダイ側	ダイ側	ダイ側	ダイ側	ダイ側	ダイ側	ダイ側
ホッパー角度 度	70	70	70	70	40	70	70	70
搬送ゾーンパレル温度 °C	260	260	260	260	260	260	260	340
酸素濃度 wt%	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	21	1.5
異物	0	13	27	15	—	—	54	78
運転安定性	安定	安定	安定	ガス抜き不良のため、パウダーが第一供給ホッパーに貯まった 運転不可能	ガス抜き不良のため、パウダーが第一供給ホッパー面に貯まった 運転不可能	重量式フィーダーで粉体が液化化現象を起こし、粉体が押出機供給口ホッパーに充満した 運転不可能	安定	安定
押出量 kg/H	3000	1500	3000	3000	3000	3000	3000	3000
回転数 rpm	300	300	500	300	300	300	300	300
無次元押出量	0.0107	0.0054	0.0064	—	—	—	0.0107	0.0107

【表 2】

	製造9	製造10	製造11	製造12	製造13	製造14
	f	g	h	i	j	k
PPE 還元粘度	0.51	0.51	0.51	0.51	0.51	0.51
Mw/Mn	2.00	2.90	2.90	2.90	2.90	2.90
PPE供給方法	フレコン/ストックホッパー	フレコン/ストックホッパー	フレコン/ストックホッパー	フレコン/ストックホッパー	フレコン/ストックホッパー	フレコン/ストックホッパー
PPE重量部	85	60	100	100	100	90
PS重量部	10	40	0	0	0	10
TPP	—	—	37	37	37	—
E890	—	—	—	—	—	50
安定剤	1	1	1	1	1	1
PPE供給配管	ギアボックス側	ギアボックス側	ギアボックス側	ギアボックス側	ギアボックス側	ギアボックス側
ガス抜き配管	中間	中間	中間	中間	中間	中間
PS系供給配管	ダイ側	ダイ側	ダイ側	ダイ側	ダイ側	ダイ側
ホッパー角度 度	70	70	70	70	70	70
搬送ゾーンバレル温度 °C	260	260	260	340	260	260
酸素濃度 wt%	1.5	1.5	1.5	1.5	21	1.5
異物	0	0	3	3	3	3
運転安定性	安定	安定	安定	安定	安定	安定
押出量 kg/H	3000	4080	2100	2100	2100	2100
回転数 rpm	300	300	300	300	300	300
無次元押出量	0.0107	0.0147	0.007	0.007	0.007	0.007

【 0 0 6 4 】

【表 3】

10

20

30

40



	実施例1	実施例2	実施例3	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8
a	49.5				49.5		35.3
b		49.5					
c							
d							
e							
f							
g			49.5				
h	33.6	33.6	33.6	52.5			
i							
j							
k							
H9302	16.9	16.9	16.9	39	38.3	60	20
685	—	—	—	8.5	12.2	40	15
H1272	1.5	1.5	1.5	2	2	2	2
M1804	—	—	—	2	1.5	1.5	—
酸化チタン	2	2	2	—	1.5	1.5	—
ガラスファイバー	—						30
搬送ゾーンバレル温度 ℃	260	260	260	260	260	260	260
回転数rpm	600	600	600	600	600	600	600
押出量kg/H	500	500	500	500	500	500	500
物性							
着色性	○	△	○	○	○	○	○
Izod kg-cm/cm	12.3	11.4	13.5	11.4	11.9	10.5	3.1
-30℃Izod	8.9	6.5	9.4	8.7	9.0	8.4	2.4
HDT °C	119	119	107	80.2	120	80	136
MFR(250℃ 10kg荷重)	6.9	5.7	10.4	70	6.5	71	8.0

## 【発明の効果】

以上説明したように、本発明の難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法は優れた生産性を達成し、得られた樹脂組成物は優れた物性及び着色性を有する。

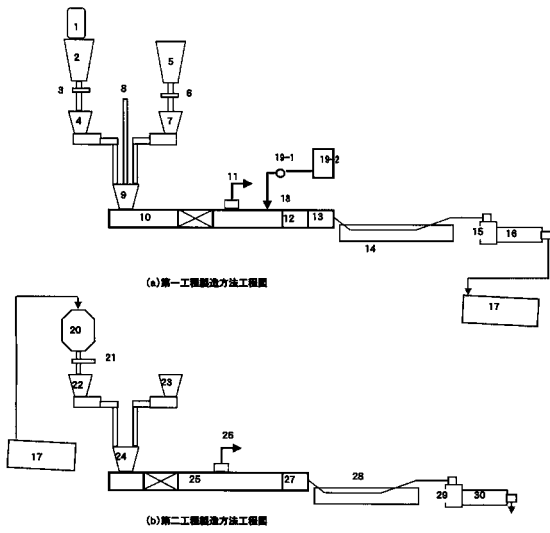
## 【図面の簡単な説明】

【図 1】本発明の一例に係る難燃ポリフェニレンエーテル樹脂組成物の製造方法に関する概略を示す説明図である。

## 【符号の説明】

- |          |                               |    |
|----------|-------------------------------|----|
| 1 .      | ポリフェニレンエーテル粉体のフレキシブルコンテナパッケージ |    |
| 2 .      | ポリフェニレンエーテル粉体ストックホッパー         |    |
| 3 .      | 遮断弁                           | 10 |
| 4 .      | ポリフェニレンエーテル粉体用重量式フィーダー        |    |
| 5 .      | ポリスチレン系樹脂用ストックホッパー            |    |
| 6 .      | 遮断弁                           |    |
| 7 .      | ポリスチレン系樹脂用重量式フィーダー            |    |
| 8 .      | ガス抜き配管                        |    |
| 9 .      | 第一工程用押出機第一供給口ホッパー             |    |
| 10 .     | 第一工程用二軸同方向回転押出機               |    |
| 11 .     | 真空ベント                         |    |
| 12 .     | スクリーンチェンジャー                   |    |
| 13 .     | ダイ部                           | 20 |
| 14 .     | ストランドバス                       |    |
| 15 .     | ストランドカッター                     |    |
| 16 .     | 篩い                            |    |
| 17 .     | 中間原料輸送用コンテナ                   |    |
| 18 .     | 液状難燃剤添加ノズル                    |    |
| 19 - 1 . | 重量式液状添加難燃剤フィーダー（ギアポンプ）        |    |
| 19 - 2 . | 重量式液状添加難燃剤フィーダー（タンクとロードセル）    |    |
| 20 .     | 中間原料用ストックホッパー                 |    |
| 21 .     | 遮断弁                           |    |
| 22 .     | 中間原料用重量式フィーダー                 | 30 |
| 23 .     | ポリスチレン系重量式フィーダー               |    |
| 24 .     | 第二工程押出機第一供給口ホッパー              |    |
| 25 .     | 第二工程用二軸同方向回転押出機               |    |
| 26 .     | 真空ベント                         |    |
| 27 .     | ダイ部                           |    |
| 28 .     | ストランドバス                       |    |
| 29 .     | ストランドカッター                     |    |
| 30 .     | 篩い                            |    |
| 31 .     | 液状難燃剤添加ノズル                    |    |
| 32 .     | 重量式液状添加難燃剤フィーダー（ギアポンプ）        | 40 |
| 33 .     | 重量式液状添加難燃剤フィーダー（タンクとロードセル）    |    |

【図1】



## フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I  
B 2 9 K 71/00 (2006.01) B 2 9 K 71:00

審査官 山本 晋也

(56)参考文献 特開平 0 9 - 0 4 0 8 5 8 ( J P , A )  
特開平 0 8 - 2 4 4 0 2 6 ( J P , A )  
特開平 0 8 - 0 0 1 6 6 5 ( J P , A )  
特開平 1 0 - 2 3 5 6 4 3 ( J P , A )  
特開昭 6 1 - 0 9 2 8 1 1 ( J P , A )  
特開平 0 9 - 0 7 0 8 7 2 ( J P , A )  
特開平 1 0 - 0 2 4 4 8 3 ( J P , A )  
特開平 1 0 - 1 8 0 8 4 0 ( J P , A )  
特開平 1 0 - 1 8 0 8 4 2 ( J P , A )  
特開 2 0 0 0 - 1 5 4 2 8 9 ( J P , A )

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

B29B 7/00- 11/16  
B29C 47/00- 47/96  
C08J 3/00- 3/28  
C08J 5/00- 5/22  
C08K 3/00- 13/08  
C08L 1/00-101/14  
B01F 7/00- 7/32  
B01F 15/00- 15/06  
B01J 2/00- 2/30