

(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
2012年10月11日(11.10.2012)



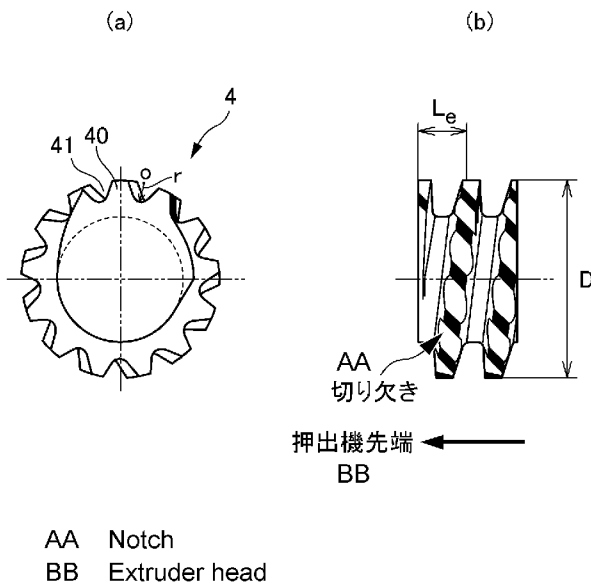
(10) 国際公開番号
WO 2012/137665 A1

- (51) 国際特許分類:
B29B 9/14 (2006.01) C08J 3/20 (2006.01)
B29B 9/06 (2006.01)
 - (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/058397
 - (22) 国際出願日: 2012年3月29日(29.03.2012)
 - (25) 国際出願の言語: 日本語
 - (26) 国際公開の言語: 日本語
 - (30) 優先権データ:
特願 2011-082312 2011年4月1日(01.04.2011) JP
 - (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): ポリ
プラスチック株式会社(Polyplastics Co., Ltd.)
[JP/JP]; 〒1088280 東京都港区港南二丁目18番
1号 Tokyo (JP).
 - (72) 発明者: および
 - (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 平郡 元一
(HIRAGORI, Motohito) [JP/JP]; 〒4168533 静岡県富
士市宮島973番地 ポリプラスチック株式
会社内 Shizuoka (JP). 高田 一成(TAKADA,
Kazunari) [JP/JP]; 〒4168533 静岡県富士市宮島9
73番地 ポリプラスチック株式会社内
Shizuoka (JP). 平田 邦紘(HIRATA, Kunihiro)
[JP/JP]; 〒4168533 静岡県富士市宮島973番地
ポリプラスチック株式会社内 Shizuoka (JP).
 - (74) 代理人: 正林 真之, 外(SHOBAYASHI, Masayuki
et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内1-7-
12 サピアタワー 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO,
CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI,
GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS,
KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT,
LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY,
MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA,
RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV,
SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC,
VN, ZA, ZM, ZW.
 - (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保
護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW,
MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシ
ア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨー
ロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE,
ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC,
MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR),
OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML,
MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告(条約第21条(3))

(54) Title: PROCESS FOR PRODUCING PELLETS OF GLASS-FIBER-REINFORCED THERMOPLASTIC RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称: ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの製造方法

[図2]



(57) Abstract: A process for producing pellets of a glass-fiber-reinforced thermoplastic resin composition is provided with which the productivity of pellets of a glass-fiber-reinforced thermoplastic resin composition can be rendered higher than in conventional processes and it is possible to minimize the probability that monofilament masses (unfibrillated glass-fiber bundles) remain in the produced pellets. In the process, a thermoplastic resin and glass fibers are kneaded with a screw which comprises a screw element having a specific shape. The specific screw element is a single-thread progressive screw element which has a flight part having circular-arc-shaped notches that satisfy specific requirements.

(57) 要約: 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が可能なガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。熱可塑性樹脂とガラス繊維とを混練するスクリューが、特定の形状を有するスクリューエレメントを有する。特定のスクリューエレメントとは、特定の条件を満たす、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順送りスクリューエレ

メントである。

WO 2012/137665 A1

明 細 書

発明の名称：

ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの製造方法に関する。

背景技術

[0002] 熱可塑性樹脂にガラス繊維を混合混練し、ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットを製造する方法としては、先ず、押出機に熱可塑性樹脂を供給し、該熱可塑性樹脂を溶融させる。次いで、溶融させた熱可塑性樹脂にガラス繊維を供給し、押出機内で熱可塑性樹脂とガラス繊維とを混合混練する。最後に、混合物を冷却、造粒する方法が一般的である。押出機は、一般的に、単軸押出機と同方向完全噛み合い型二軸押出機（以下、二軸押出機という場合がある）が使用される。単軸押出機と比較して、二軸押出機は、生産性と運転の自由度がより高いので、ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの製造には、二軸押出機がより好ましく用いられる。

[0003] 上記ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの製造において使用されるガラス繊維は、直径が $6\mu\text{m}$ ～ $20\mu\text{m}$ のモノフィラメントを300本～3000本くらいにまとめてロービングに巻き取ったものか、ロービングを長さ1～4mmにカットしたもの（以下、チョップドストランドという場合がある）である。チョップドガラスの方が容易に使用できるため、工業的にガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットを製造する場合においては、二軸押出機に熱可塑性樹脂を供給し、熱可塑性樹脂の溶融後、二軸押出機の途中からチョップドガラスを供給し、溶融状態の熱可塑性樹脂とガラス繊維とを混合混練し、混合物を押し出して、冷却固化する方法が最も多く行われている。

[0004] 上記の二軸押出機を用いて行うガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレ

トの生産性は、二軸押出機の可塑化と混合混練の能力によって決定される。二軸押出機の可塑化能力は、スクリーデザイン、スクリーが発生するトルク、スクリーの溝深さ（スクリーの外径と谷径の差）、スクリーの回転数等に依存する。特許文献1には、2本のスクリーの芯間距離の3乗で割った値をトルク密度と定義し、可塑化能力が高く、生産性に優れた二軸押出機が開示されている。

[0005] また、二軸押出機の混合混練能力は、スクリーデザインにも依存する。二軸押出機の可塑化能力の向上に伴い、滞留時間が減少した。このため、短時間で効率のよい混合混練能力を持ったスクリーデザインの開発が求められている。このように二軸押出機の可塑化能力、混練能力を高める技術に関する検討が行なわれている。

[0006] ところで、ガラス繊維としては、上述の通り、モノフィラメントが束になったものを使用する。ガラス繊維をモノフィラメントの束にせず二軸押出機に供給する方法では、モノフィラメントが綿状になり、流動性がなくなり、取り扱いが難しいためである。上記チョップドストランドは、二軸押出機内で、解繊されモノフィラメントになるまで混合混練される。同時に、モノフィラメントの長さが、平均で200 μ m～800 μ mになるまでチョップドストランドはスクリー等によって破断される。

[0007] 二軸押出機内での混合混練が不十分であると、モノフィラメントに解繊しないで、モノフィラメントの集合体（未解繊ガラス繊維束）の状態である、チョップドストランドの一部、もしくは全部が樹脂組成物ペレット中に残存する。ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットに、チョップドストランドの一部、もしくは全部が残存した場合、射出成形において、ゲートに上記チョップドストランドの一部又は全部が詰まり、射出成形ができなくなるか、射出成形ができたとしても、成形品に上記チョップドストランドの一部又は全部が存在し、外観不良又は機能低下の原因となる。

[0008] 特に近年、エレクトロニクス関連の技術の進歩に伴い、部品として使用されるガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物は、薄肉で、複雑な形状に成形する

ことが求められている。このような精密成形を行う成形機のゲートノズルは、1 mm以下になる場合も多い。精密成形品においては、未解繊ガラス繊維束の存在が、非常に重大な欠陥になる。

先行技術文献

特許文献

[0009] 特許文献1：特表平11-512666号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0010] 特許文献1の二軸押出機を使用すれば、生産性が向上するとされているが、特に上記のような精密成形品においては、高い吐出量の条件で滞留時間が短くなり、チョップドストランドを完全にモノフィラメントに解繊し、且つ、繊維長を短くすることが一層難しくなっている。

[0011] 本発明は、上記課題を解決するためになされたものであり、その目的は、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が可能なガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの製造方法を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0012] 本発明者らは、上記課題を解決するために鋭意研究を重ねた。

その結果、数値解析によって得られる物理量である、平均剪断応力履歴、平均剪断歪履歴、比エネルギー、最短粒子流出時間等のいずれも、未解繊ガラス繊維束を含むペレット数 N （単位重量あたりの未解繊ガラス繊維束を含むペレットの個数）と明確な相関がないこと、を見出すとともに、粒子追跡法によって導出される、各ガラス繊維束に加わる剪断応力の時間積分値の中で最も小さい値である最小剪断応力履歴値 T_{min} が、未解繊ガラス繊維束を含むペレット数 N と相関があることを見出した。

また、二軸押出機内で発生する剪断応力を解析し、吐出量 Q とスクリー

回転数 N_s との比 (Q/N_s) が一定の場合には、最小剪断応力履歴値 T_{min} を制御することで、未解繊ガラス繊維を含む単位量あたりのペレット数 N を制御できることを見出した。

さらに、上記比 (Q/N_s) が一定でない場合であっても、未解繊ガラス繊維を含む単位量あたりのペレット数 N は上記 T_{min} 及び (Q/N_s) を用いて特定の数式で表せることを見出した。

さらに、熱可塑性樹脂とガラス繊維とを混練するスクリーが、特定の形状を有するスクリーエレメントを有することで、上記課題を解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。より具体的には、本発明は以下のものを提供する。

[0013] (1) 互いに回転して噛み合うスクリーを備えた二軸の押出機を用いて、ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットを製造する方法であって、熱可塑性樹脂を前記押出機に供給して加熱、混練し可塑化する可塑化工程と、前記可塑化工程後に、一束以上のガラス繊維束を前記押出機に供給して、前記ガラス繊維束を解繊しながら、解繊されたガラス繊維と可塑化した前記熱可塑性樹脂とをスクリーで混練する混練工程と、前記混練工程後に、ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物を押出す押出工程と、押出された前記ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物をペレット化するペレット化工程とを備え、前記熱可塑性樹脂は、ポリブチレンテレフタレート樹脂、液晶性樹脂、及びポリアリーレンサルファイド樹脂から選択される少なくとも一種の樹脂から構成され、前記混練工程において、前記スクリーは、外周に、以下の不等式 (1) から (111) を満たす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順送りスクリーエレメントを一以上有するガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの製造方法。

$$0.05D \leq r \leq 0.15D \quad (1)$$

$$7 \leq n \leq 20 \quad (11)$$

$$Le \leq 0.3D \quad (111)$$

(上記不等式(1)中の r は、上記円弧状を形成する円の半径又は上記円弧状を形成する楕円の長径/2、もしくは短径/2であり、上記不等式(11)中の n は、上記一条の順送りスクリュウエレメントの1リード長あたりの切り欠き数であり、上記不等式(111)中の L_e は、上記一条の順送りスクリュウエレメントのリード長であり、上記不等式(1)、(11)中の D は、スクリュウ口径である。)

[0014] (2) 互いに回転して噛み合うスクリュウを備えた二軸の押出機を用いて、ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットを製造する方法であって、

熱可塑性樹脂を前記押出機に供給して加熱、混練し可塑化する可塑化工程と、

前記可塑化工程後に、一束以上のガラス繊維束を前記押出機に供給して、前記ガラス繊維束を解繊しながら、解繊されたガラス繊維と可塑化した前記熱可塑性樹脂とをスクリュウで混練する混練工程と、

前記混練工程後に、ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物を押出す押出工程と、

押出された前記ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物をペレット化するペレット化工程と、を備え、

前記熱可塑性樹脂の粘度が、剪断速度 1000 sec^{-1} の条件で、 $100\text{ Pa}\cdot\text{s}$ 以下であり、

前記混練工程において、前記スクリュウは、外周に、以下の不等式(1)から(111)を満たす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順送りスクリュウエレメントを一以上有するガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの製造方法。

$$0.05D \leq r \leq 0.15D \quad (1)$$

$$7 \leq n \leq 20 \quad (11)$$

$$L_e \leq 0.3D \quad (111)$$

(上記不等式(1)中の r は、上記円弧状を形成する円の半径又は上記円弧状を形成する楕円の長径/2、もしくは短径/2であり、上記不等式(11)中の n は、上記一条の順送リスクリュウエレメントの1リード長あたりの切り欠き数であり、上記不等式(111)中の L_e は、上記一条の順送リスクリュウエレメントのリード長であり、上記不等式(1)、(11)中の D は、スクリュウ口径である。)

[0015] (3) 前記混練工程において、前記スクリュウは、外周に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リスクリュウエレメントを一以上有する(1)又は(2)に記載のガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの製造方法。

発明の効果

[0016] 本発明によれば、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でき、かつガラス繊維の繊維長分布を制御することができる。

図面の簡単な説明

[0017] [図1]図1は、押出機のスクリュウ構成の一例を示す模式図である。

[図2]図2は、円弧状の切り欠きが形成されたフライト部を有する順送リ一条のスクリュウエレメントを模式的に示す図である。

[図3]図3は、実施例で使用した押出機のスクリュウ構成を示す模式図である。

[図4]図4は、実施例で使用した具体的なスクリュウパターンを示す図である。

[図5]図5は、実施例で使用した具体的なスクリュウ形状を示す図である。

[図6]図6は、実施例で使用した押出機の $Q/N_s = 1.0$ の条件で、最小剪断応力履歴値($Pa \cdot sec$)とガラス繊維束の一部又は全部が未解繊のペレット数(個/ペレット10kg)との関係を示す図である。

[図7]図7は、実施例で使用した押出機の $Q/N_s = 1.0$ 、 $Q/N_s = 0.8$ 、 $Q/N_s = 0.5$ の条件での、最小剪断応力履歴値（ $Pa \cdot sec$ ）とガラス繊維束の一部又は全部が未解繊のペレット数（個/ペレット10kg）との関係（相関線）を示す図である。

[図8]図8は、実施例で使用した押出機の Q/N_s に依存しない最小剪断応力履歴値（ $Pa \cdot sec$ ）とガラス繊維束の一部又は全部が未解繊のペレット数（個/ペレット10kg）との関係（相関線）を示す図である。

[図9]図9は、切り欠き数 n と最小剪断応力履歴値 T_{min} との関係を示す図である。

[図10]図10は、スクリー元素の種類毎の剪断応力履歴値の分布を示す図である。

[図11]図11は、実施例、比較例で使用した押出機に配設されるスクリーのスクリー構成を示す模式図である。

発明を実施するための形態

[0018] 以下、本発明の実施形態について説明する。なお、本発明は以下の実施形態に限定されない。

<ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの製造方法>

本発明のガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの製造方法は、以下の工程を備える。

熱可塑性樹脂を押出機に供給して加熱、混練し可塑化する可塑化工程。

上記可塑化工程後に、一束以上のガラス繊維束を上記押出機に供給して、上記ガラス繊維束を解繊しながら、解繊されたガラス繊維と可塑化した上記熱可塑性樹脂とをスクリーで混練する混練工程。

上記混練工程後に、ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物を押出す押出工程。

押出された上記ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物をペレット化するペレット化工程。

[0019] 本発明の製造方法は、混練工程において、特定のスクリー元素を

備えるスクリューを用いる。

[0020] 以下、図1に記載の二軸押出機を用いる場合を例に、本発明のガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの製造方法を説明する。図1には、シリンダー1と、シリンダーに配設されたスクリュー2と、シリンダー1の下流側端部に設けられたダイ3と、を備える二軸押出機が示されている。そして、図1には、上記スクリュー2のスクリュー構成も示されている。具体的に、スクリュー2は、供給部20、可塑化部21、搬送部22、混練部23を、上流側からこの順で有する。供給部20及び可塑化部21で可塑化工程が行われる。搬送部22及び混練部23で混練工程が行われる。混練部23以降で押出工程が行われる。そして、押出機のダイ3からガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物が押し出されてからペレット化工程が行われる。

[0021] また、スクリュー2が配設されたシリンダー1は、供給部20に熱可塑性樹脂等の原料を供給するためのホッパ10と、搬送部22にガラス繊維束等の副原料を供給するためのフィード口11と、真空ポンプ等の減圧手段を有し所定の真空度で真空脱気を行なうための真空ベント12とを有する。

[0022] [可塑化工程]

可塑化工程では、ホッパ10から供給された熱可塑性樹脂を移送・溶融して、均質な溶融体を作る。先ず、熱可塑性樹脂について説明し、次いで、ホッパから供給された熱可塑性樹脂が均質な溶融体になるまでの可塑化工程の詳細を説明する。

[0023] (熱可塑性樹脂)

熱可塑性樹脂は、ポリブチレンテレフタレート樹脂、液晶性樹脂、ポリアリーレンサルファイド樹脂を指す。上記のような粘性が低い傾向にある樹脂であっても本発明の効果を奏する。粘性の低い上記の樹脂は、上記ガラス繊維束の未解繊の問題は生じやすい。粘性が低いと溶融状態では剪断応力が発生し難くなり、モノフィラメントを収束したガラス繊維束は、解繊し難くなるからである。粘性の低い樹脂とは、熱可塑性樹脂の粘度が、剪断速度 100 sec^{-1} の条件で、 $100 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以下である。

[0024] 一般的に、原料となる上記熱可塑性樹脂は、ペレット状に成形したものが使用される。なお、その他の成分を含む熱可塑性樹脂組成物をペレット状にしたものを原料として用いてもよい。

[0025] (可塑化工程の詳細)

可塑化工程は、スクリー２の供給部２０と可塑化部２１で行われる。供給部２０で使用するスクリーエレメントとしては、例えばフライトからなる搬送用のエレメント等が挙げられる。可塑化部２１に使用するスクリーエレメントとしては、一般的には、逆フライト、シールリング、順ニーディングディスク、逆ニーディングディスク等のスクリーエレメントの組み合わせ等が挙げられる。

[0026] 供給部２０では樹脂ペレットを移送する。供給部２０は、樹脂ペレットをホッパ１０側からダイ３方向側に移送する働きをする。溶融の準備段階として外部ヒータによる予熱が行われる場合が一般的である。また、樹脂ペレットは、回転するスクリー２とシリンダー１に挟まれるため、樹脂ペレットには摩擦力が加わり、摩擦熱が発生する。上記予熱や摩擦熱によって、樹脂ペレットが溶融し始める場合もある。場合によっては、供給部２０では、樹脂ペレットの移送がスムーズに進むように、スクリー２の溝深さの調整、予熱の温度調製を従来公知の方法で行う必要がある。

[0027] 可塑化部２１では、供給部２０から移送された樹脂ペレットに圧力を加えて樹脂ペレットを溶融する。可塑化部２１では、樹脂ペレットに剪断応力が加わる結果、樹脂ペレットは溶融しながら、さらに前方（ホッパ１０からダイ３の方向）へと移送される。

[0028] [混練工程]

混練工程では、可塑化工程後に、一束以上のガラス繊維束を押出機に供給して、上記ガラス繊維束を解繊しながら、解繊されたガラス繊維と可塑化工程で溶融した熱可塑性樹脂とを混練する。混練工程は、スクリー２の搬送部２２と混練部２３とで行われる。搬送部２２で使用するスクリーエレメントとしては、例えば順フライトからなる搬送用のエレメントが挙げられる

。また、混練部23で使用するスクリュウエレメントとしては、逆フライト、シールリング、順ニーディングディスク、逆ニーディングディスク等のスクリュウエレメントの組み合わせが一般的である。

[0029] 本発明の製造方法においては、スクリュウ2の混練部22の少なくとも一部に、外周に、上記不等式(1)から(111)を満たす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順送りスクリュウエレメントを備える。混練部22の少なくとも一部に上記のスクリュウエレメントを備えることで、製造されるペレット中に未解繊のガラス繊維束がほとんど残存しなくなる。

[0030] なお、本実施形態において、混練部22は、上記スクリュウエレメントと、外周に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ウエレメントと、を備える。

[0031] 先ず、ガラス繊維束について簡単に説明する。ガラス繊維束は、300本から3000本のモノフィラメントが束になったチョップドストランドである。特に、1100本か2200本が束になったチョップドストランドが好ましく使用されている。また、モノフィラメントの径は、特に限定されないが、6 μ mから20 μ mの範囲のものが好ましく、6 μ m、10 μ m、13 μ mのものが、市場では多く流通している。なお、ロービングのままモノフィラメントの束を連続的に二軸押出機に供給することもできる。しかし、ロービングをカットしたチョップドストランドは、輸送、二軸押出機への供給において、取り扱いが容易である。

[0032] 搬送部22では、フィード口11から投入されたガラス繊維束と溶融樹脂とを混練部23まで搬送する。この搬送部22においては、スクリュウの溝内部にガラス繊維束や溶融樹脂が完全に充満せず、ガラス繊維束に剪断力がかからない領域である。

[0033] 混練部23では、ガラス繊維束及び溶融樹脂に剪断応力がかかる。剪断応力がかかることでガラス繊維束の解繊及びモノフィラメントと溶融樹脂との混練が進む。

[0034] [押出工程、ペレット化工程]

ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物がどのように押出され、どのようにペレット化されるかは特に限定されない。例えば、ダイ3から棒状に押出されたガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物を切断してペレット化することができる。なお、切断方法は特に限定されず、従来公知の方法を利用することができる。なお、押出工程における吐出量が吐出量 Q にあたり、スクリュウの回転数が回転数 N_s にあたる。

[0035] <スクリュウエレメント>

従来のスクリュウの混練部としては、逆フライト、シールリング、順ニーディングディスク、逆ニーディングディスク等のスクリュウエレメントの組み合わせが一般的である。しかし、 Q/N_s が大きい条件で、高吐出の場合、一部のガラス繊維束は解繊されず、未解繊のまま残存することになる。

[0036] 本発明は、押出機内で各ガラス繊維束が受ける剪断応力履歴値を指標として決められた製造方法である。具体的には、各ガラス繊維束が二軸押出機内で受ける剪断応力履歴値の中の最小値である最小剪断応力履歴値 T_{min} を指標とする。最小剪断応力履歴値 T_{min} を指標とすることで、未解繊ガラス繊維束が残存する製造方法と、未解繊ガラス繊維束がほとんど残存しない製造方法とを区別することができる。本発明は、未解繊ガラス繊維束が残存したペレットをほとんど生じさせないガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの製造方法である。

[0037] 先ず、最小剪断応力履歴値 T_{min} を指標にすることについて説明する。ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物の吐出量 Q 、混練部23におけるスクリュウエレメントのスクリュウ口径 D 、スクリュウ回転数 N_s 、最小剪断応力履歴値 T_{min} 、単分量あたりの未解繊ペレット数 N （未解繊のガラス繊維束を含むペレットの数）に基づいて、下記数式（IV）を導出する。下記数式（IV）は Q/N_s の条件が変化しても、一つの式で、未解繊ガラス繊維束を含むペレットの量を検討できる点においても有用である。また、混練部が有するスクリュウエレメントの種類が異なっても一つの数式（IV）で、未解繊ガ

ラス繊維束を含むペレットの量を検討できる。ただし二軸押出機のサイズが変更になると、数式(1V)を導出しなおす必要がある。同じ吐出量Q及び同じスクリー回転数Nsの条件であっても、小型の二軸押出機と大型の二軸押出機とでは、シリンダーからの伝熱量が異なり、熔融樹脂にかかる熱エネルギーが異なるからである。

[数1]

$$N = 10^{\alpha} \left\{ \frac{T_{\min}}{\left(\frac{Q}{Ns} \right)^{\gamma}} \right\}^{-\beta} \quad (1V)$$

[0038] 使用する二軸押出機を決めると、一義的にスクリー口径Dが決まる。このスクリー口径D、任意に決定した混練部23の長さL、任意に決定した成形条件である吐出量Q、スクリー回転数Nsに基づいて、最小剪断応力履歴値 T_{\min} を導出する。

[0039] 最小剪断応力履歴値 T_{\min} は、従来公知の二軸押出機内3次元流動解析ソフトウェアを用いて導出することができる。例えば、実施例に記載するような、粒子追跡解析で導出できる。最小剪断応力履歴値 T_{\min} は剪断応力の時間積分を行うことで得られる時間積分値であるが、積分区間は、熔融樹脂及びガラス繊維束に剪断応力がかかる区間であり、図1に示す押出機の場合には、混練部23の区間である。

[0040] 最小剪断応力履歴値 T_{\min} の導出方法は、特に限定されない。市販のソフトウェアを用いて導出する方法、実験により導出する方法等が挙げられる。

[0041] 未解織ペレット数Nについては、実験的に導出してもよいし、解析手法等を用いて導出してもよい。

[0042] そして、これらの導出結果に基づき、横軸を最小剪断応力履歴値 T_{\min} 、縦軸を未解織ペレット数Nとして、上記数式(1V)を表すグラフを作成することで、数式(1V)を導出する。

[0043] このグラフから未解繊ペレット数 N を所望の値以下にするために必要な最小剪断応力履歴値 T_{min} を導出することができる。

[0044] 続いて、二軸押出機のサイズを変更する場合について説明する。この場合、上記の関係式を導出しなおす必要があるが、所定の二軸押出機の場合の上記数式 (I V) を既に導出している場合には、以下の方法で容易に、異なるサイズの二軸押出機を使用する場合に適用できる数式を導出することができる。

[0045] スクリューエレメントのスクリュー口径 D が、 d_1 から d_2 に変更になる場合、小型の押出機での吐出量 Q_m と大型の押出機での吐出量 Q_M との間には下記数式 (V) が成立し、小型の押出機でのスクリュー回転数 N_{s_m} と大型の押出機でのスクリュー回転数 N_{s_M} との間には下記数式 (VI) が成立する。

[数2]

$$Q_M = \left(\frac{d_2}{d_1} \right)^\delta Q_m \quad \dots (V)$$

[数3]

$$N_{s_M} = \left(\frac{d_2}{d_1} \right)^{-\varepsilon} N_{s_m} \quad \dots (VI)$$

[0046] 熔融樹脂にかかる比エネルギーが同等になるように上記数式 (V)、(VI) の δ 及び ε を決定する。 δ 及び ε の決定方法としては、理論的に決定する方法、実験的に決定する方法のいずれでもよい。理論的に決定する方法としては、一般的には、断熱状態と仮定して、目的関数を比エネルギー、あるいは総剪断量、滞留時間等が、小型機と大型機で一致するように、パラメータ δ 及び ε が導出される。小型機と大型機の伝熱量の差を仮定して、目的関数としての比エネルギーが、小型機と大型機で一致するように、パラメータ δ 及び ε を導出することもできる。実験的に決定する方法としては、目的関数を、比エネルギーとするか、もしくは、物性を示すパラメータを採用し、目的関数が、小型機と大型機とで一致するように、統計的にパラメー

ター δ 及び ε を算出するような方法が挙げられる。

[0047] 小型の押出機と大型の押出機との間に成立する上記数式 (V)、(V I) を導出することで、大型の押出機に成立する単位量あたりの未解繊ペレット数 N と最小剪断応力履歴値 T_{min} との間の下記数式 (V I I) を容易に導出することができる。

[数4]

$$N = 10^{\alpha} \left\{ \frac{T_{min}}{\left(\frac{d2/d1}{(d2/d1)^{-\varepsilon} Ns} \right)^{\gamma}} \right\}^{-\beta} \dots (V I I)$$

[0048] このように、最小剪断応力履歴値 T_{min} の値が大きいほど、未解繊ペレット数 N の値が少なくなる傾向にある。したがって、最小剪断応力履歴値 T_{min} が大きくなるような条件で、ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットを製造する必要がある。

[0049] 原料とする熱可塑性樹脂の粘度が高いと、最小剪断応力履歴値 T_{min} の値が大きくなり、ガラス繊維束の解繊には有利であり、通常の方法でもガラス未解繊は発生し難い。本発明は、熱可塑性樹脂の粘度が低く、通常の方法では、ガラス繊維束の解繊が難しい場合に、特に有効な方法を提供するものである。二軸押出機で吐出量を上げていくと、熱可塑性樹脂の粘度が、押出機内でプロセッシングしている温度下で、剪断速度 1000 sec^{-1} の粘度が $100 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以下では、ガラス未解繊束が発生し易くなる。以後、粘度は 1000 sec^{-1} のときの値を表記) 特に、精密成形では流動性が求められ、粘度が $30 \sim 70 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ の樹脂を使用する。これにガラス繊維を加え、混練すると、樹脂組成物としては、 $50 \sim 200 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ の粘度になる。このような低粘度領域で、ガラス繊維束を解繊するスクリュウエレメントを説明する。

[0050] 外周に、切り欠きが形成されたフライト部を有する一条のスクリュウエレ

メントは、上記最小剪断応力履歴値 T_{min} が大きくなる傾向にあるため好ましい。外周に切り欠きが形成されたフライト部を有する一条のスクリュウエレメント自体は公知であり、例えば、特許文献（DE 4 1 3 4 0 2 6 A 1）に記載されている。

[0051] 特に、以下に説明する一条の順送りスクリュウエレメントを使用することで、未解織ペレット数 N を小さい値に抑えることができる。特に、上記切り欠きを有するスクリュウエレメントの中でも、順送りのものを使用することが、最小剪断応力履歴値 T_{min} の値が大きくなり、他のスクリュウエレメントを使用する場合よりも短時間で、ガラス繊維束を解織できるという理由で好ましい。

[0052] 混練部 23 で使用される、上記一条の順送りスクリュウエレメントについて説明する。この一条の順送りスクリュウエレメントは、外周に、下記不等式（I）から（III）を満たす円弧状の切り欠きが形成されたフライト部を有する。

$$0.05D \leq r \leq 0.15D \quad (I)$$

$$7 \leq n \leq 20 \quad (II)$$

$$L_e \leq 0.3D \quad (III)$$

（上記不等式（I）中の r は、上記円弧状を形成する円の半径又は上記円弧状を形成する楕円の長径／2、あるいは短径／2であり、上記不等式（II）中の n は、上記一条の順送りスクリュウエレメントの1リード長あたりの切り欠き数であり、上記不等式（III）中の L_e は、上記一条の順送りスクリュウエレメントのリード長であり、上記不等式（I）、（II）中の D は、スクリュウ口径である。）

[0053] 上記一条の順送りスクリュウエレメントについて、図2を用いて説明する。図2には、上記一条の順送りスクリュウエレメントの模式図が示されており、（a）は軸方向の断面図であり、（b）は側面図である。

- [0054] 図2に示す通り、一条の順送リスクリーエメント4は、フライト部40と、フライト部40の外周に形成される円弧状の切り欠き41とを有する。切り欠き41は、フライト部の外周からスクリーエメントの軸に向かう方向に形成される。図2では、楕円が円弧状を形成する場合を示したが、上記円弧状を形成する楕円又は円の中心はフライト部40の外周に存在する（図2(a)では上記楕円の中心をOで示した。）。上記切り欠きが、円弧状であり、且つこの円弧状が上記の円又は楕円で形成されることにより、製作上の利便さと、切り欠きによるフライト部の強度低下を最小にするという効果がある。なお、上記円弧状の一部が、上記の円又は楕円で形成されていればよい。また、本発明は切り欠き全体が上記の一つの円又は楕円で形成されるものに限定されない。しかし、円弧状の略全体が一つの円又は楕円で形成されるものが好ましい。
- [0055] また、上記円弧状は円で形成されるものが最も好ましい。また、上記円弧状が楕円で形成される場合には、切り欠きが延びる方向と楕円の長径が延びる方向とは、略一致することが好ましい。
- [0056] また、上記半径 r の大きさの範囲は、 $0.05D \leq r \leq 0.15D$ であることが好ましい。 r が上記範囲内であれば、最小剪断応力履歴値 T_{min} が大きくなる傾向にあるため好ましい。より好ましい r の大きさの範囲は、 $0.06D \leq r \leq 0.12D$ である。
- [0057] また、切り欠き数 n が多いほど、最小剪断応力履歴値 T_{min} が大きくなる傾向にある。しかし、切り欠き数 n が多くなり過ぎると、スクリーエメントの機械的強度が低くなるため、切り欠き数 n は不等式(11)の範囲に調整する。特に好ましい切り欠き数 n の範囲は、 $10 \leq n \leq 12$ であり、最も好ましい切り欠き数は11である。
- [0058] 上記スクリーエメントのリード長 L_e は、上記スクリーエメントのスクリー口径 D の0.3倍以下 (L_e が $0.3D$ 以下) である。上記リード長 L_e が $0.3D$ 以下であれば、吐出量 Q が非常に高い条件であっても、製造されるペレットに未解織のガラス繊維が含まれにくい傾向にある。な

お、吐出量 Q が非常に高いとは、例えば、上記スクリーエメントを軸方向の長さが $2D$ になるように設け、スクリー口径 D が 47 mm の2軸押出機で、およそ 300 kg/h 以上、スクリーの口径 D が 69 mm の2軸押出機で、 800 kg/h 以上であることを指す。このような高吐出領域でも、上述の未解織ガラス繊維による問題を抑えることができる。

[0059] 上記の通り、本発明に用いる上記スクリーエメントのリード長 L_e の上限は、 $0.3D$ 以下であることが好ましいが、下限は $0.1D$ 以上であることが好ましい。この下限値以上に設定することは、フライト部の厚みを維持して強度を保つという理由で好ましい。

[0060] また、本発明の製造方法においては、混練部23に使用される外周面に切り欠きが形成されたフライト部を有する一条のスクリーエメントの長さを、 L/D (L は混練部23におけるスクリーの軸方向の長さ、 D はスクリー口径)で表現すると、 $1D$ 以上 $20D$ 以下で、連続で使用することが望ましい。連続で使用することで、最小剪断応力履歴値 T_{min} が、より大きくなる傾向になるからである。より好ましくは $2D$ 以上 $8D$ 以下である。なお、上記の好ましい長さは、樹脂の種類によって異なる。ポリブチレンテレフタレート樹脂の場合には $2D$ 以上 $3.5D$ 以下であることが好ましい。

[0061] さらに、本発明では、外周面に切り欠きが形成されたフライト部を有する一条のスクリーエメントの逆送りのスクリーエメントと上記順送りのスクリーエメントを組み合わせると、さらに効果的である。最も効果の高い組み合わせは、それぞれを交互に配置する組み合わせである。それぞれのスクリーエメントの長さは、適宜調整することができる。

[0062] 3次元流動解析の結果から、外周面に切り欠きが形成されたフライト部を有する一条のスクリーエメントを通過するガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物は、大半が、外周面の切り欠きを通過しながら前へ進んでいくことがわかっている。しかし、ごく一部が、フライトに沿って流れていく。このフライトに沿って流れていく部分では、ガラス繊維束にかかる剪断応力が低いので、ガラス繊維束は解織しにくい。前述のように、外周面に切り欠きが形

成されたフライト部を有する一条のスクリュウエレメントの長さを長くすることで、フライトに沿って流れていく部分の存在確率を低くすることができる。逆送りのスクリュウエレメントと順送りのスクリュウエレメントを組み合わせることで、さらにフライトに沿って流れていく部分の存在確率を低くすることができる。

[0063] 以上、本発明では、混練工程において、外周に切り欠きが形成されたフライト部を有する一条の順送りスクリュウエレメント、又は、逆送りスクリュウエレメントと順送りスクリュウエレメントを組み合わせることで、ガラス未解繊をほとんど含まないガラス強化樹脂組成物を効率よく高い生産性で製造することができる。

実施例

[0064] 以下、実施例及び比較例を示し、本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0065] <評価1>

評価1においては以下の材料を用いた。

熱可塑性樹脂：ポリブチレンテレフタレート樹脂（PBT）（メルトインデックス（MI）＝70g/10分、粘度60Pa·s at 1000sec⁻¹）

カーボンマスターバッチ

ガラス繊維束：直径が13μmのモノフィラメントを2200本束ねた長さ3mmのチョップドストランド

また、組成は以下の通りである。

PBTが67.5質量%、カーボンマスターバッチが2.5質量%、ガラス繊維束が30質量%

押出条件は以下の通りである。

押出機：同方向完全噛み合い型二軸押出機TEX44αII（日本製鋼所製）スクリュウエレメントのスクリュウ口径Dが0.047m

押出条件；

[表1]

吐出量Q [kg/hr]	100	300	650
Q / N s [kg/hr/rpm]	0.5, 0.8, 1.0		

バレル温度 ; 220℃

スクリーデザイン ;

(1) 概略

押出機のスクリーは図3のように表すことができ、図3に示すスクリーパターンの概略は以下の通りである。

C1 : ホッパ

C2 ~ C5 : 供給部

C5 ~ C6 : 可塑化部

C6 ~ C8 : 輸送部

C9 : フィード口

C10 : 混練部A

C11 : 混練部B (混練部b1、混練部b2からなる)

(2) 評価1で使用した具体的なスクリーパターンは、図4に示す通りである。なお、ニーディングディスクで、各ディスクが送り方向に45°位相がずれているものをFKとし、逆送りの1条のフライトで切り欠きのあるエレメントをBMSとする。また、1.0D等は、混練部b1の長さを表す。

図4(a)に示すスクリーパターンをFK1.0D (L/D=1)、

図4(b)に示すスクリーパターンをFK2.0D (L/D=2)、

図4(c)に示すスクリーパターンをBMS1.0D (L/D=1)、

図4(d)に示すスクリーパターンをBMS2.0D (L/D=2)、

図4(e)に示すスクリーパターンをBMS2.5D (L/D=2.5)

、

とする。L/Dは、混練部b1のリード長(L)とスクリーエレメントのスクリー口径(D)との比(L/D)である。なお、実施形態の説明における混練部23の長さLは、混練部b1の長さにあたる。

(3) スクリューの形状

図4に示すスクリューパターンはそれぞれC11の混練部Bのみ異なる。C11の混練部Bのスクリューの形状を図5に示す。図4(a)のパターンのスクリュー形状を図5(a)に示し、図4(b)のパターンのスクリュー形状を図5(b)に示し、図4(c)のパターンのスクリュー形状を図5(c)に示し、図4(d)のパターンのスクリュー形状を図5(d)に示し、図4(e)のパターンのスクリュー形状を図5(e)に示した。

図5(a)に示すスクリューは混練部b1が長さ1.0Dの順送りニーディングディスク、混練部b2が長さ0.5Dの逆送りフライト

図5(b)に示すスクリューは混練部b1が長さ2.0Dの順送りニーディングディスク、混練部b2が長さ0.5Dの逆送りフライト

図5(c)に示すスクリューは混練部b1が長さ1.0Dの切り欠き含有の1条の逆送りニーディングディスク、混練部b2が長さ0.5Dの逆送りフライト

図5(d)に示すスクリューは混練部b1が長さ2.0Dの切り欠き含有の1条の逆送りニーディングディスク、混練部b2が長さ0.5Dの逆送りフライト

図5(e)に示すスクリューは混練部b1が長さ2.5Dの切り欠き含有の1条の逆送りニーディングディスク、混練部b2が長さ0.5Dの逆送りフライト

[0066] $Q/N_s = 1.0$ の条件で、図6に示すような最小剪断応力履歴値 ($P a \cdot s e c$) とガラス繊維束の一部又は全部が未解織のペレット数 (個/ペレット10kg) との関係性を求めた。具体的には以下のような方法で導出した。

[0067] 先ず、上記関係の導出に必要な、 L/D 、吐出量 Q 、スクリュー回転数 N_s 、未解織ペレット数 N 、最小剪断応力履歴値 T_{min} の組を複数決定する。 L/D 、吐出量 Q 、スクリュー回転数 N_s を任意に決めて、以下の方法で、最小剪断応力履歴値 T_{min} を導出し、実験により未解織ペレット数 N を求めた。

具体的には以下のようにして求めた。

[0068] 先ず、シミュレーションによる最小剪断応力履歴値 (Pa・sec) の導出について説明する。

二軸押出機内3次元流動解析ソフト (アールフロー社製 Screw Flow-Multi) を用いて同方向完全噛み合い型二軸押出機内の樹脂挙動を解析した。

解析の際に用いた支配方程式は、連続式 (A)、ナビエーストークス式 (B)、温度バランス式 (C) である。

[数5]

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot \vec{v} = 0 \quad \dots (A)$$

[数6]

$$-\nabla p + \nabla \cdot \vec{\tau} = 0 \quad \dots (B)$$

[数7]

$$\frac{\partial T}{\partial t} + \rho C_p \vec{v} \cdot \nabla T = k \nabla^2 T + Q \quad \dots (C)$$

[0069] 解析仮定として、非圧縮性流体で、完全溶融・完全充満とした。また、粘度近似式はアレニウス近似及びWLF近似を使用した。解析手法は、有限体積法、SOR法、SIMPLEアルゴリズムであり、計算としては、まず定常解析を行い、これを初期値として、非定常解析を行った。非定常解析の後、トレーサー粒子を配置 (約5000個) して、トレーサー粒子にかかる局所情報を収集した (粒子追跡解析)。剪断応力の時間積分値の最小値 T_{min} は、トレーサー粒子にかかる局所情報の剪断応力を時間積分し、全粒子の最小値を求めたものである。

[0070] 次いで、実験による未解繊ペレット数の導出について説明する。

PBTを二軸押出機に供給した後、上記押出条件で、ガラスのチョップド

ストランドを供給し、混練混合した後、ダイから樹脂組成物を押出し、溶融した樹脂組成をダイから引取りストランドにして、水槽でストランドを冷却固化して、カッターで、ストランドを3mmの長さに切断してペレットを作成した。ペレットを10kg採取し、黒色のペレットの中のガラス未解繊（銀色の凝集塊）を目視にて探し、ガラス未解繊を含んだペレットの個数を数えた。

[0071] 未解繊ペレット数と最小剪断応力履歴値と間の関係を表す近似曲線（相関線）を、最小二乗方法で求めた。 $Q/N_s = 1.0$ で、混練部Bに前述のように図4（a）から（e）の異なるエレメントを入れ、かつ、異なるQで実験とシミュレーションを行った結果、以下のようなひとつの近似曲線が得られた。近似曲線については図6に示した。

[数8]

$$N = 10^{11.5042} T_{\min}^{-2.200} \dots (V I I I)$$

[0072] 上記数式（IV）の α が11.5042、 β が-2.200となった。

[0073] $Q/N_s = 0.8$ 、 $Q/N_s = 0.5$ の条件でも、上記と同様にして、図7に示すように、最小剪断応力履歴値（Pa・sec）とガラス繊維束の一部又は全部が未解繊のペレット数（個/ペレット10kg）との関係（相関線）を求めた。なお、図7には $Q/N_s = 1.0$ の場合の相関線についても示した。

[0074] 図7に示すように、 Q/N_s 毎に相関線が異なる。そこで、上記数式（IV）の形式の関数に最小二乗法で近似した。近似曲線を図8に示した。図8に示すように、 Q/N_s に依存しない一つの相関線で近似できた。なお、 γ は3.0であった。

[0075] 図8に示すように、所定の最小剪断応力履歴値以上であれば、単位量あたりの未解繊ペレット数が所定の値未満になることが確認できた。

[0076] 以上の通り、数式（IV）は Q/N_s の条件が変化しても、一つの式で、ペレット中に含まれる未解繊ガラス繊維束の量を検討でき、また、混練部が

有するスクリュウエレメントの種類が異なっても一つの数式（1V）で、ペレット中に含まれる未解繊ガラス繊維束の量を検討できることが確認された。

[0077] <評価2>

図3は、二軸押出機（スクリュウ口径Dが47mm）において、評価1で使用したのと同じPBT樹脂70質量%、ガラス繊維30質量%の組成の原料で、且つ、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スクリュウエレメントを長さ2.0Dとし、図1に示す二軸押出機の混練部23に使用した場合のシミュレーションを行い、最小剪断応力履歴値 T_{min} と、切り欠き個数（溝数） n の関係を導出した。円弧状を形成する楕円の中心は外周部として、上記楕円の短径/2は3mm、長径/2は4.15mmである。また、長径が延びる方向と切り欠きが延びる方向とは一致する。上記スクリュウエレメントのリード長は $L/D=0.25$ とし、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のフライト（BMS）と順逆送りのフライト（FMS）の比較を行った。

[0078] 評価1と同様の手法で最小剪断応力履歴値 T_{min} を導出することで、切り欠き数 n と最小剪断応力履歴値 T_{min} との関係を導出した。結果を図9に示した。

[0079] 図9によれば、BMS、FMSの効果はほぼ同等であることが確認された。FMSの方が切り欠き数の変更による最小剪断応力履歴値 T_{min} の変化が小さいことが確認された。したがって、BMSを使用するよりFMSを使用した方が安定して、ペレット中の未解繊ガラス繊維の数を抑えることができる。

[0080] <評価3>

PBT樹脂70質量%、ガラス繊維30質量%（ガラスモノフィラメント径 $13\mu\text{m}$ ）の組成で、二軸押出機（スクリュウ口径47mm）の混練部に、一般に使用されるニーディングディスク（図5（a）及び（b）記号FK）や、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ウエ

レメント（図5（c）（d）（e）記号BMS）を使用した場合の、それぞれのシミュレーションを、評価1に記載の方法と同様の方法でそれぞれ行い、トレーサー粒子にかかる局所情報の剪断応力を時間積分した剪断応力履歴値の分布を図10に示した。切り欠きの中心は外周部として、逆送りのフライト（図中記号BMS）のリード長 L_e を $L/D=0.25$ とし、切り欠きの円弧状を形成する円の半径は $r=3\text{mm}$ としている。

[0081] ニーディングディスク（FK）では、剪断応力履歴値の小さいところから、広い範囲に分布が広がっている。小さい剪断応力履歴値を有することは、ガラス未解繊が残存する確率が高いことを意味している。一方、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ウエレメントでは、剪断応力履歴値の分布は狭いため、最小の剪断応力履歴値の値が大きい。このため、上記切り欠きを有するスクリュウエレメントを使用すれば、ペレット中に未解繊ガラス繊維束が残存し難くなる。

[0082] <評価4>

次に、この最小剪断応力履歴値を、指標として、切り欠きエレメントに求められる形状を、流動解析により説明する。図1に示す二軸押出機（スクリュウ口径 47mm ）において、PBT樹脂70質量%、ガラス繊維30質量%の組成で、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スクリュウエレメントを混練部23に使用した場合のシミュレーションを行った。具体的には、評価1と同様の方法で求めた最小剪断応力履歴値 T_{min} と、切り欠き個数（溝数） n の関係を求めた。円弧状の切り欠きの中心は外周部として、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ウエレメント（BMS）については、リード長 L_e が $L/D=0.2$ 、 0.25 、 0.3 の3条件で評価を行なった。また、円弧状は楕円から形成され、この楕円の短径/2は 3mm 、長径/2（切り欠きが延びる方向）は 4.1mm とした。評価4の結果を表2に示した。

[表2]

n	最小剪断応力履歴値 (kPas)		
	リード長 = 0.2	リード長 = 0.25	リード長 = 0.3
15	33.2	33.7	39.6
13	28.6	31.0	40.4
11	28.1	24.8	31.9
7	25.1	22.9	28.3
5	18.8	-	-
3	-	15.2	20.1

[0083] 表2によると、最小剪断応力履歴値 T_{min} は、1リード長 L_e あたりの切り欠きの数 n が、13～15で高い値を示している。切り欠きの数 n が多い方が、最小剪断応力履歴値 T_{min} が高い。しかしながら、切り欠き数 n が増加すると、スクリューエレメントの機械的強度が低下するので、13から15が好ましいといえる。

[0084] <評価5>

図1に示す二軸押出機（口径47mm）において、PBT樹脂70質量%、ガラス繊維30質量%の組成で、円弧状切り欠きが形成されたフライト部を有する一条のスクリューエレメントを混練部23に使用した場合のシミュレーションを行なった。具体的には、評価1に記載の方法と同様の方法で求めた最小剪断応力履歴値 T_{min} と、切り欠きの深さ方向の長径との関係を示している。切り欠きの中心はフライト部の外周上で、切り欠きの形状は楕円で、外周上の切り欠きの短径/2は3mm、長径/2（切り欠きが延びる方向）が3mm、4mm、5mmの場合でシミュレーションを行なった。また、切り欠き数 n を11、上記切り欠きを有するスクリューエレメントのリード長 L_e は $L/D=0.25$ とした。評価5の結果を表3に示した。

[表3]

長径/2 (mm)	短径/2 (mm) 外周上	最小剪断応力履歴値 (kPas)
3	3	25.8
4	3	30.0
5	3	30.2

[0085] 表3によると、最小剪断応力履歴値 T_{min} は、切り欠きの溝深さの長径/2

が4～5 mmで極大値を有する。口径Dに対して、外周上の切欠きの上記半径の範囲は0.064D、溝深さ方向の長径/2は、0.085D～0.11Dである。

[0086] <評価6>

短径の大きさを表3に示すものに変更した以外は、評価4と同様の方法で、最小剪断応力履歴値 T_{min} と、切り欠きが形成される方向に対して垂直方向に延びる長径の関係を示した。評価6の結果を表4に示した。

[表4]

短径 / 2 (mm)	長径 / 2 (mm) 外周上	最小剪断応力履歴値 (kPas)
3	3.0	25.8
3	3.5	26.1
3	4.0	26.2
3	4.5	27.0
3	5.0	29.3

[0087] 評価6によれば、円弧状を形成する楕円の長径が、切り欠きが延びる方向に対して垂直方向に延びるものであっても、長径が大きくなることで、最小剪断応力履歴値の値は大きくなることが確認された。また、評価5と評価6との比較から、上記楕円の長径は、切り欠きが延びる方向に延びる方が効果が高い。

[0088] <評価7>

円弧状を形成するものが円になった以外は、評価5と同様の方法で、最小剪断応力履歴値 T_{min} と、円の半径の関係を示した。評価7の結果を表5に示した。

[表5]

半径 (mm)	最小剪断応力履歴値 (kPas)
3.0	25.8
3.5	28.6
4.0	32.5
4.5	36.9
5.0	39.9

[0089] 円弧を形成するのが円の場合においても、半径が大きくなることで、最小剪断応力履歴値が大きくなることが確認された。また、評価4～6の比較から、円弧状を形成するのが楕円よりも円の方が、最小剪断応力履歴値が大きくなることが確認された。

[0090] <実施例>

実施例においては以下の材料を用いた。

熱可塑性樹脂：ポリブチレンテレフタレート樹脂（PBT）（メルトインデックス（MI）＝70g／10分）

カーボンマスターバッチ

ガラス繊維束：直径が13 μ mのモノフィラメントを2200本束ねた長さ3mmのチョップドストランド

また、組成は以下の通りである。

PBTが67.5質量%、カーボンマスターバッチが2.5質量%、ガラス繊維束が30質量%

押出機：同方向完全噛み合い型二軸押出機TEX44 α 11（日本製鋼所製）スクリューエレメントのスクリュー口径Dが0.047m

実施例の成形におけるシリンダー温度（ $^{\circ}$ C）を下記表に記載した。

[表6]

C1	C2	C3	C4	C5	C6	C7	C8	C9	C10	C11	DH
水冷	200	270	270	270	270	270	270	270	250	250	270

[0091] 実施例で使用した具体的なスクリューパターンは、図11に示す通りである。なお、ニーディングディスクで、各ディスクが90 $^{\circ}$ 位相がずれているものをCK、逆送りの1条のフライトで切り欠きのあるスクリューエレメントをBMS、順送りの1条のフライトで切り欠きのあるスクリューエレメントをFMSとする。なお、外周上の切り欠きの短径／2は3mm、長径／2（切り欠きが延びる方向）は、4.15mmである。

比較例1：図11（a）に示すスクリューは混練部（C8）が長さ2.5Dの90 $^{\circ}$ 位相の直交ニーディングディスク

実施例1：図11(b)に示すスクリューは混練部(C8)が長さ2.5Dの外周に切り欠きが形成されたフライト部を有する一条の順送リスクリューエレメントFMS

実施例2：図11(c)に示すスクリューは混練部(C8)が長さ3.0Dの外周に切り欠きが形成されたフライト部を有する一条の順送リスクリューエレメントFMS

実施例3：図11(d)に示すスクリューは混練部(C8)の長さが3.0Dであり、外周に切り欠きが形成されたフライト部を有する一条の逆送リスクリューエレメントBMSと順送リスクリューエレメントFMSの組み合わせで、FMS1Dの次にBMS1D、その次にFMSを配置

[0092] 次いで、実験による未解繊ペレット数の導出について説明する。PBTを二軸押出機に供給した後、ガラスのチョップドストランドを二軸押出機に供給した。下記表7に示す押出条件で、混練混合した後、ダイからガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物を押出し、溶融した樹脂組成をダイから引取りストランドにして、水槽でストランドを冷却固化して、カッターで、ストランドを3mmの長さに切断してペレットを作成した。ペレットを10kg採取し、黒色のペレットの中のガラス未解繊（銀色の凝集塊）を目視にて探し、未解繊ガラス繊維を含んだペレットの個数を数えた。上記ペレットの個数を以下の表7に示した。

[表7]

混練部 L/D	比較例1		実施例1		実施例2				実施例3	
	CK2.5D		FMS2.5D		FMS3.0D				BMS/FMS 3.0D	
Q[kg/H]	650	650	650	650	650	650	700	750	700	750
Ns[rpm]	725	650	725	650	725	650	700	750	700	750
Q/Ns	0.90	1.00	0.90	1.00	0.90	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
未解繊ガラス 繊維束を含む ペレット数 [個/10kg]	76	165	2	21	0	0	2	5	0	0

[0093] 本実施例では、スクリュー口径Φ=47mmの二軸押出機を使用しているが、このサイズで、Q=650kg/hの吐出は、従来にはなく非常に高い

ものである。このため、従来から一般的に使用されてきた図11(a)のスクリーでは、未解繊ガラス繊維束を含むペレット数が多量に発生している。これに対して実施例1～3においては、未解繊ガラス繊維束を含むペレットがほとんど発生していない。

[0094] 図11(a)のスクリーでは、90°位相の直交ニーディングディスクCKを使用した。これを外周に切り欠きが形成されたフライト部を有する一条の順送りスクリーエレメントFMSに変更し、混練部の長さを3.0Dにすると、未解繊ガラス繊維束を含むペレットは発生しない。しかし、さらに吐出量を増加すると、未解繊ガラス繊維束を含むペレットが発生する。図11(d)に示すスクリーパターンは、混練部は、FMS1D、BMS1D、FMS1Dの組み合わせである。混練部に逆送りと順送りの切り欠きエレメントを組み合わせることで、未解繊ガラス繊維束を含むペレット発生はさらに削減される。

符号の説明

[0095]	1	シリンダー
	10	ホッパ
	11	フィード口
	12	真空ベント
	2	スクリー
	20	供給部
	21	可塑化部
	22	搬送部
	23	混練部
	3	ダイ
	4	一条の順送りスクリーエレメント
	40	フライト部
	41	切り欠き

請求の範囲

[請求項1]

互いに回転して噛み合うスクリューを備えた二軸の押出機を用いて、ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットを製造する方法であって、

熱可塑性樹脂を前記押出機に供給して加熱、混練し可塑化する可塑化工程と、

前記可塑化工程後に、一束以上のガラス繊維束を前記押出機に供給して、前記ガラス繊維束を解繊しながら、解繊されたガラス繊維と可塑化した前記熱可塑性樹脂とをスクリューで混練する混練工程と、

前記混練工程後に、ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物を押出す押出工程と、

押出された前記ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物をペレット化するペレット化工程と、を備え、

前記熱可塑性樹脂は、ポリブチレンテレフタレート樹脂、液晶性樹脂、及びポリアリレンサルファイド樹脂から選択される少なくとも一種の樹脂から構成され、

前記混練工程において、前記スクリューは、外周に、以下の不等式 (I) から (III) を満たす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順送りスクリューエレメントを一以上有するガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの製造方法。

$$0.05D \leq r \leq 0.15D \quad (I)$$

$$7 \leq n \leq 20 \quad (II)$$

$$Le \leq 0.3D \quad (III)$$

(上記不等式 (I) 中の r は、上記円弧状を形成する円の半径又は上記円弧状を形成する楕円の長径/2、もしくは短径/2であり、上記不等式 (II) 中の n は、上記一条の順送りスクリューエレメントの

1 リード長あたりの切り欠き数であり、上記不等式 (111) 中の L_e は、上記一条の順送りスクリューエレメントのリード長であり、上記不等式 (1)、(11) 中の D は、スクリュー口径である。)

[請求項2]

互いに回転して噛み合うスクリューを備えた二軸の押出機を用いて、ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットを製造する方法であって、

熱可塑性樹脂を前記押出機に供給して加熱、混練し可塑化する可塑化工程と、

前記可塑化工程後に、一束以上のガラス繊維束を前記押出機に供給して、前記ガラス繊維束を解繊しながら、解繊されたガラス繊維と可塑化した前記熱可塑性樹脂とをスクリューで混練する混練工程と、

前記混練工程後に、ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物を押出す押出工程と、

押出された前記ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物をペレット化するペレット化工程と、を備え、

前記熱可塑性樹脂の粘度が、剪断速度 1000 s e c^{-1} の条件で、 $100 \text{ P a} \cdot \text{s}$ 以下であり、

前記混練工程において、前記スクリューは、外周に、以下の不等式 (1) から (111) を満たす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順送りスクリューエレメントを一以上有するガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの製造方法。

$$0.05D \leq r \leq 0.15D \quad (1)$$

$$7 \leq n \leq 20 \quad (11)$$

$$L_e \leq 0.3D \quad (111)$$

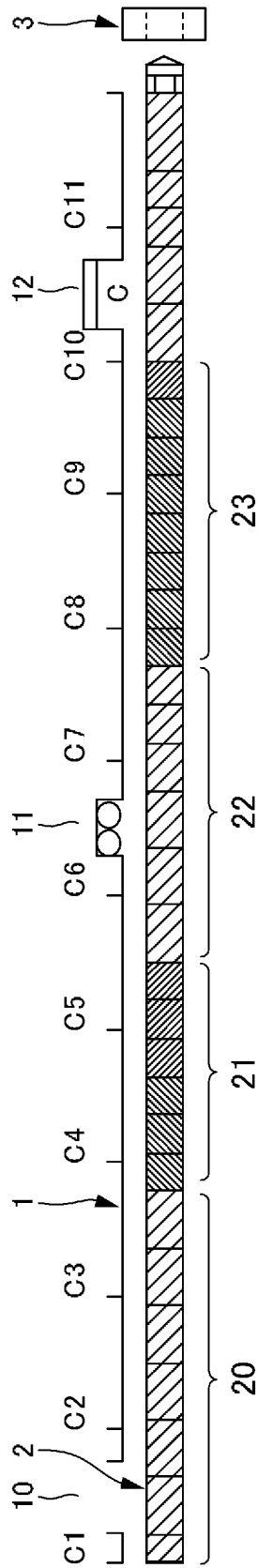
(上記不等式 (1) 中の r は、上記円弧状を形成する円の半径又は上

記円弧状を形成する楕円の長径／2、もしくは短径／2であり、上記不等式（11）中の n は、上記一条の順送りスクリューエレメントの1リード長あたりの切り欠き数であり、上記不等式（111）中の L は、上記一条の順送りスクリューエレメントのリード長であり、上記不等式（1）、（11）中の D は、スクリュー口径である。）

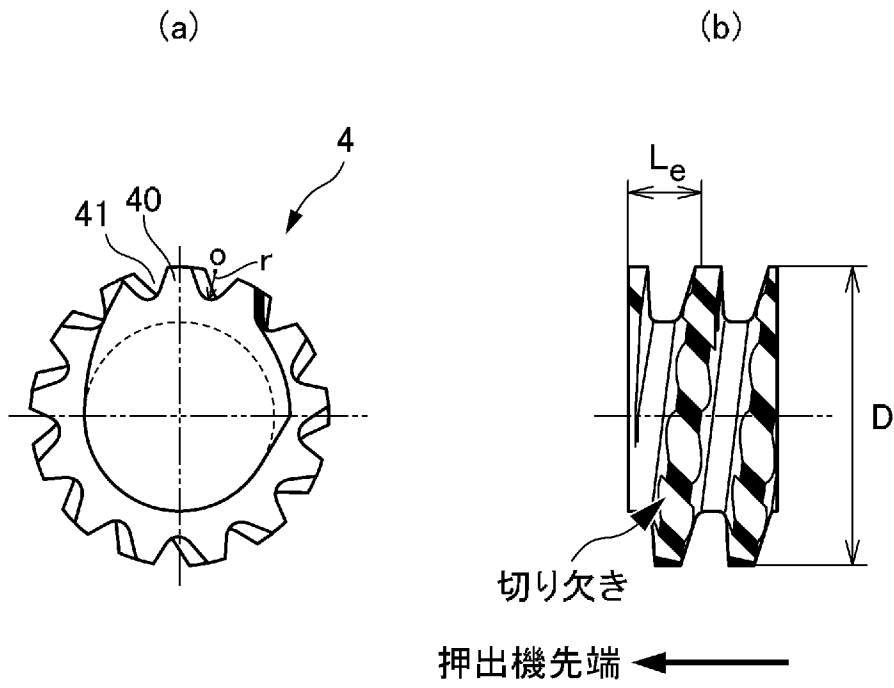
[請求項3]

前記混練工程において、前記スクリューは、外周に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一以上有する請求項1又は2に記載のガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの製造方法。

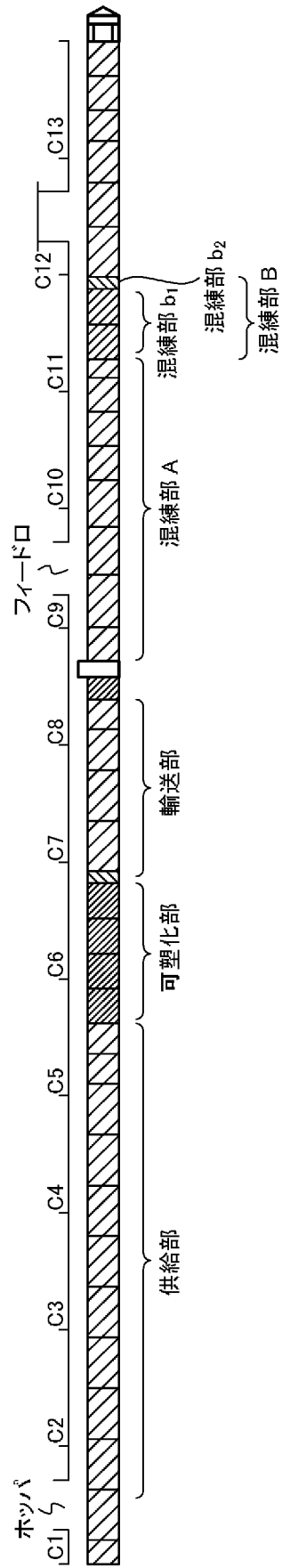
[図1]



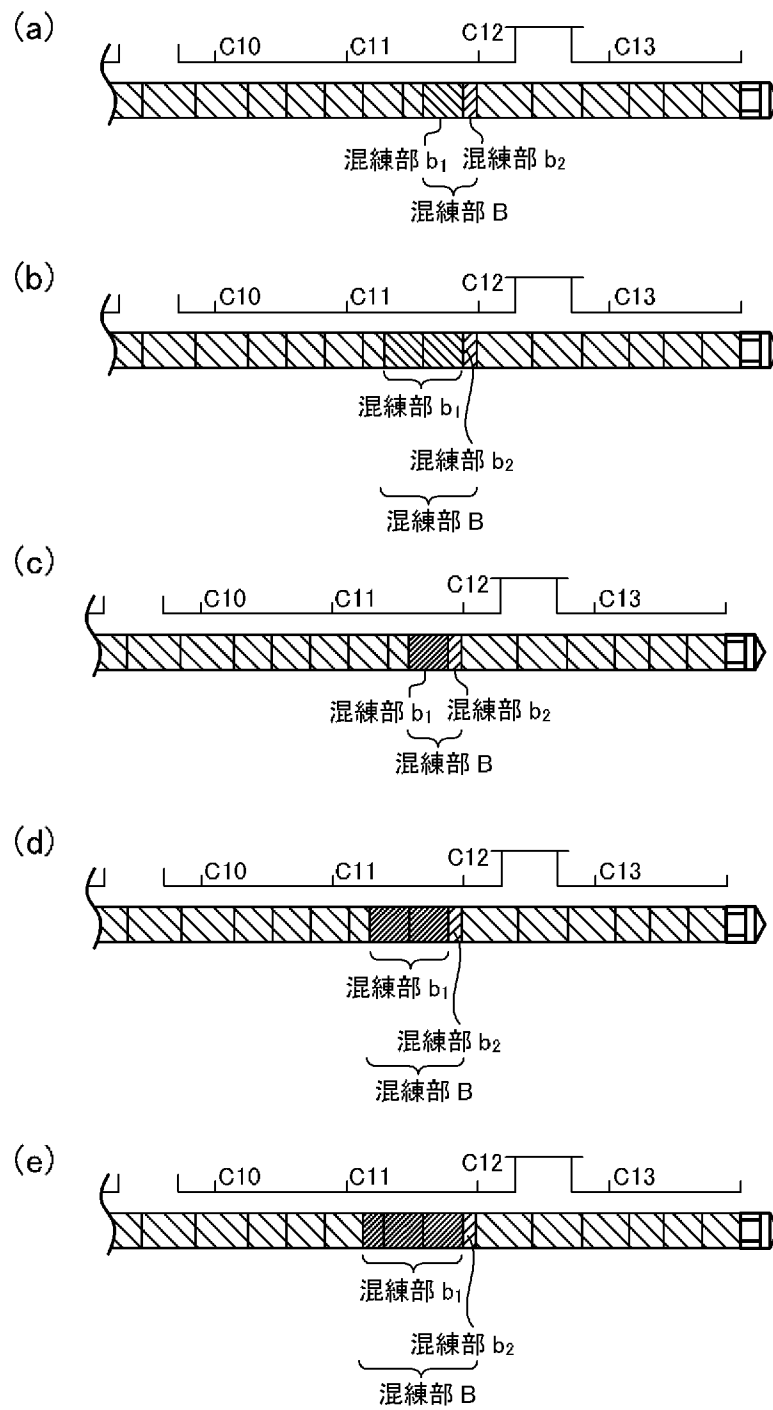
[図2]



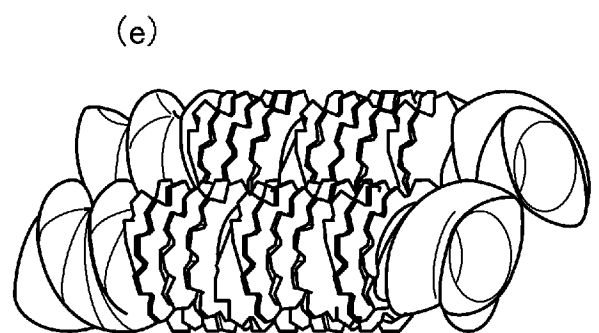
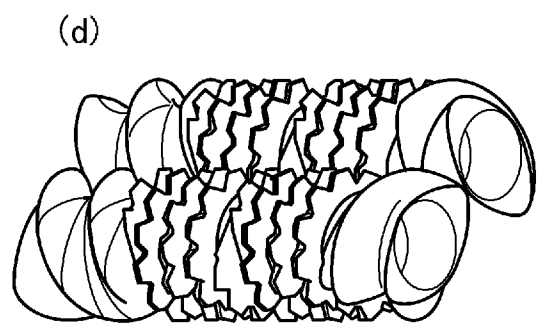
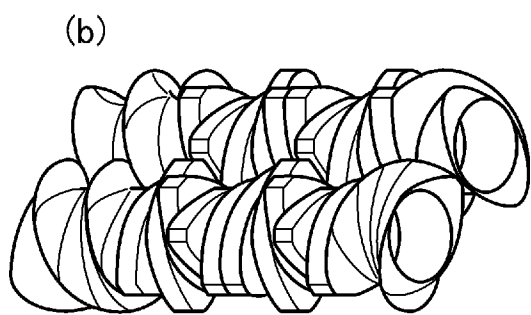
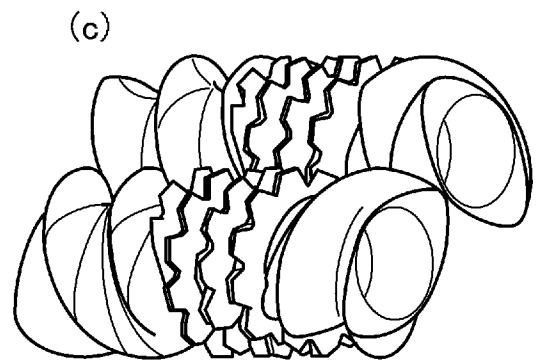
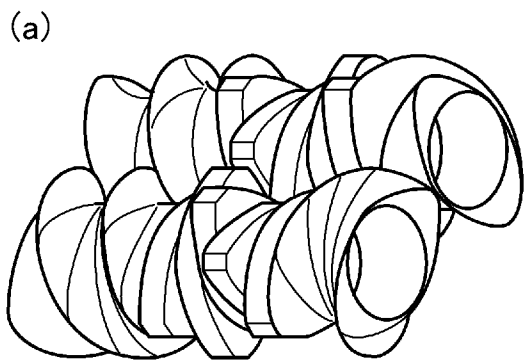
[図3]



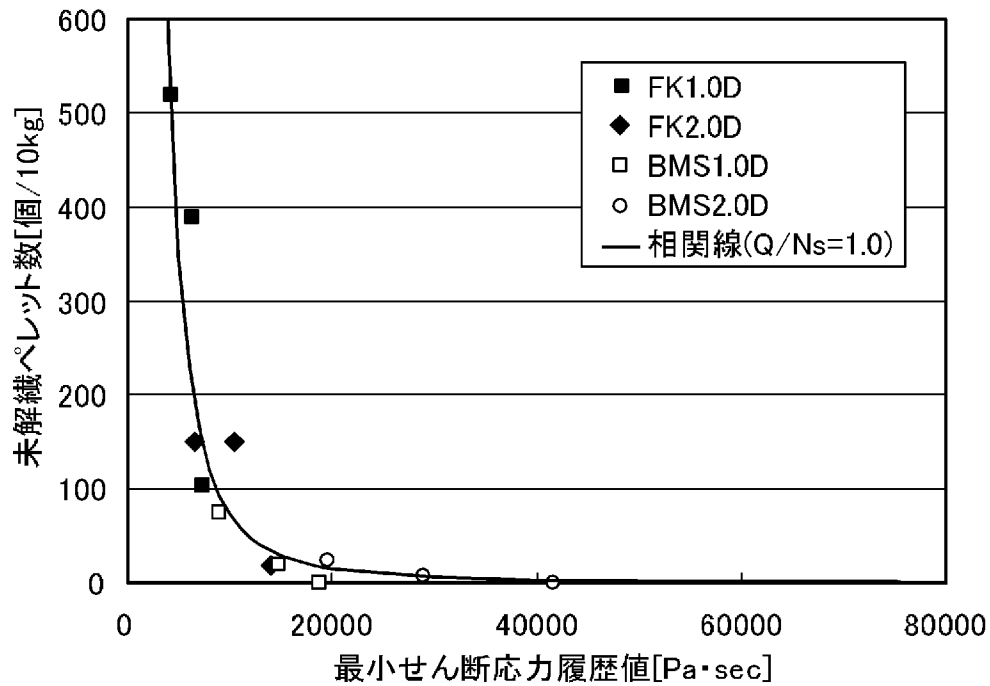
[図4]



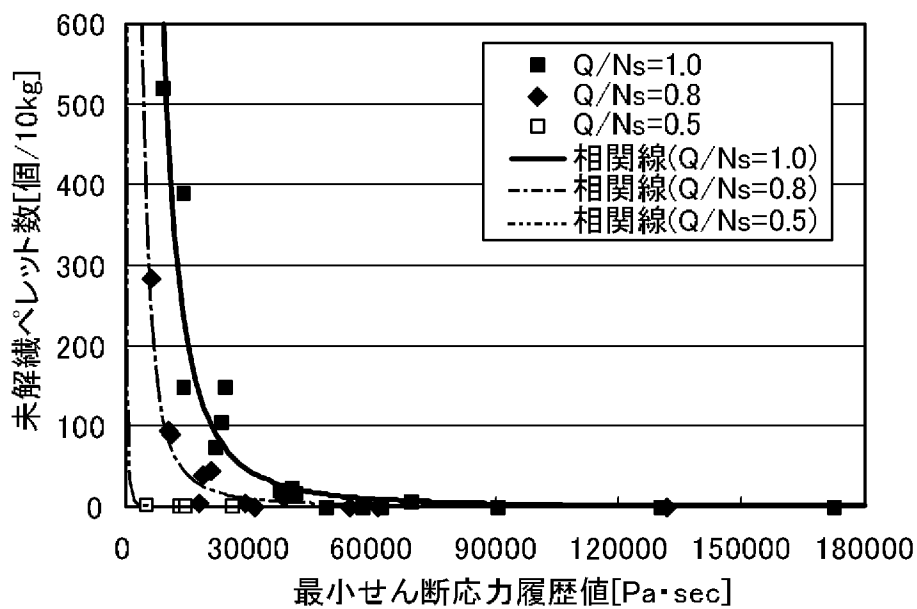
[図5]



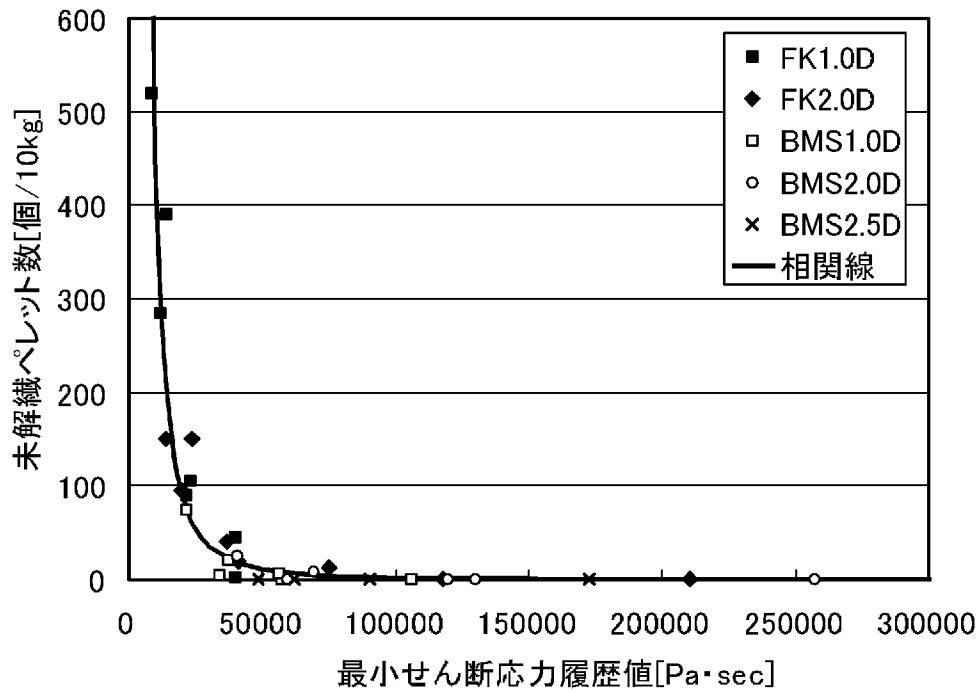
[図6]



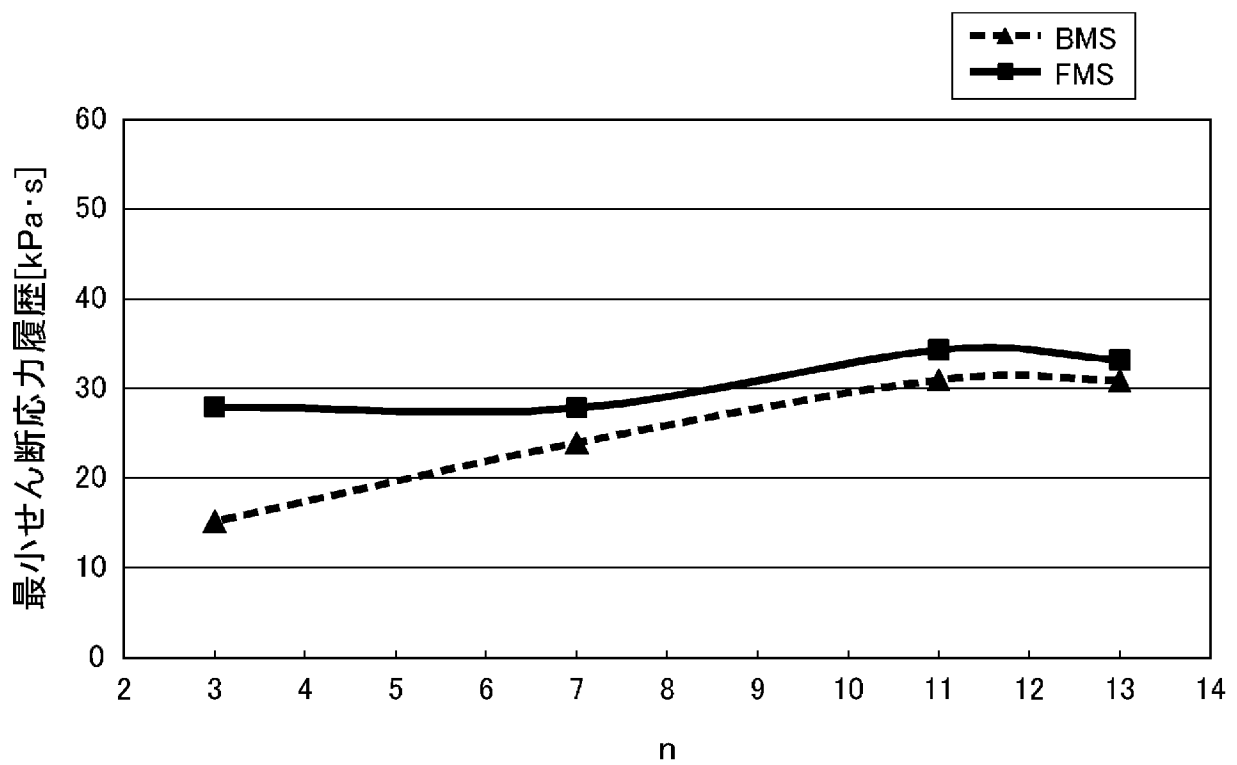
[図7]



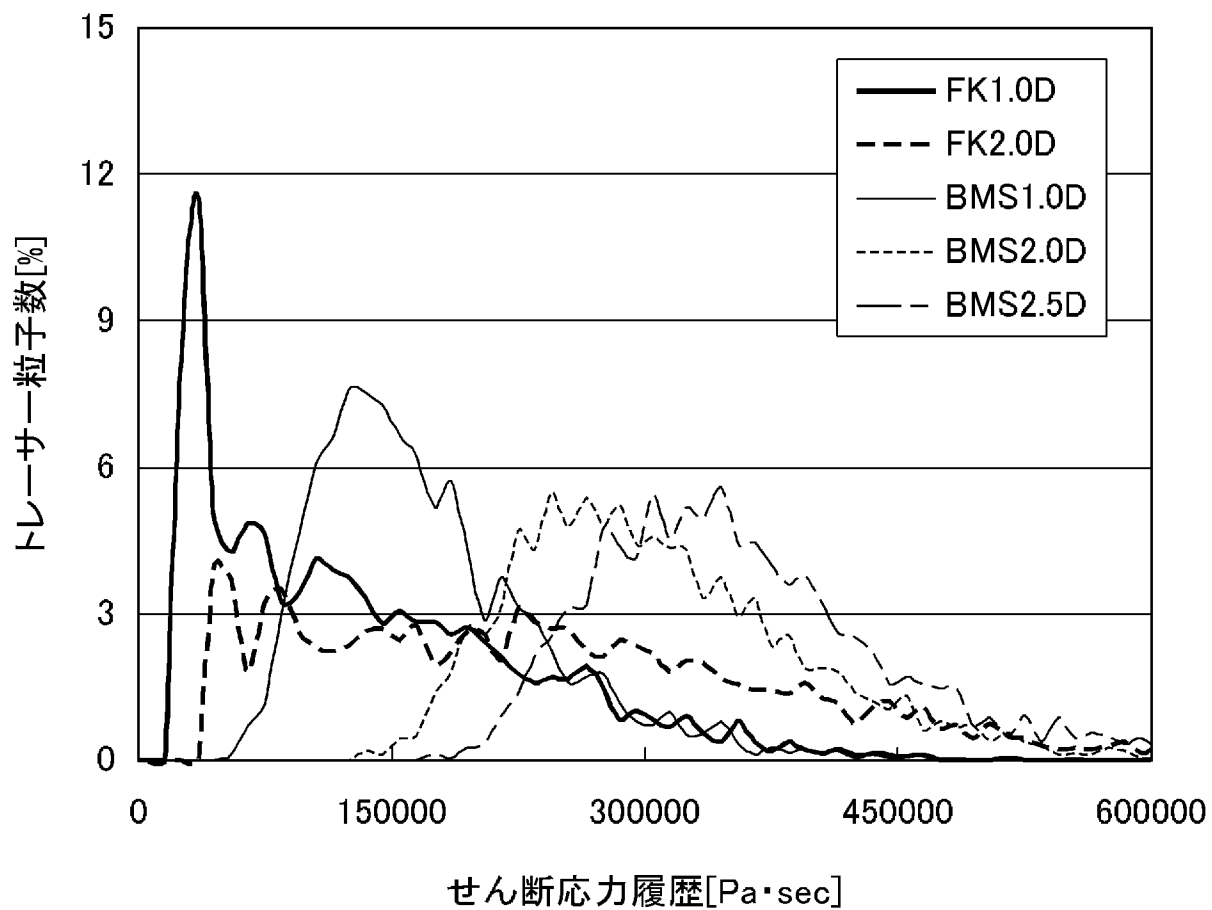
[図8]



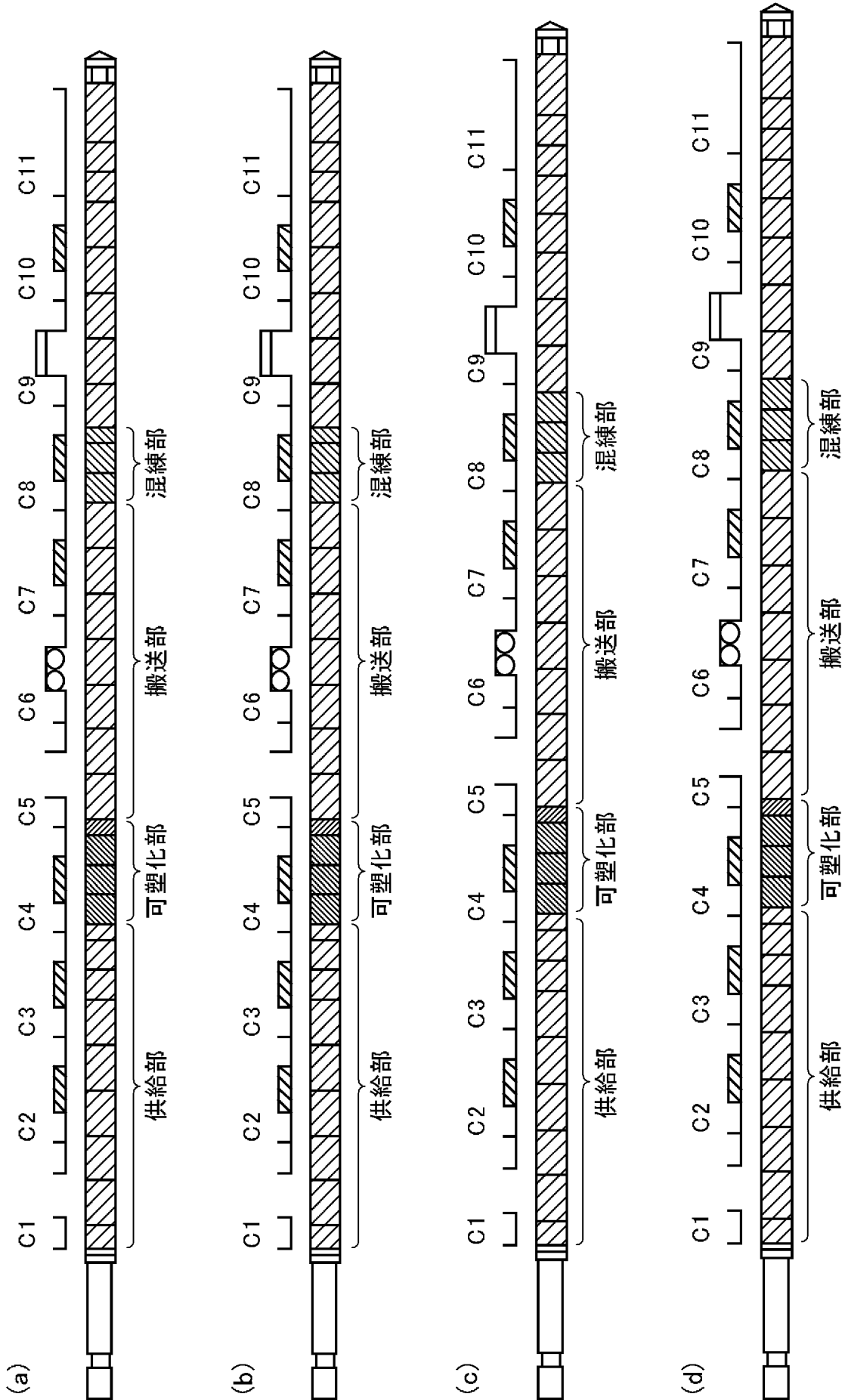
[図9]



[図10]



[図11]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/058397

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B29B9/14(2006.01)i, B29B9/06(2006.01)i, C08J3/20(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

B29B7/00-11/14, B29B13/00-15/06, C08J3/20

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

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

WPI

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2002-103327 A (Asahi Kasei Corp.), 09 April 2002 (09.04.2002), entire text (Family: none)	1-3
A	JP 2010-654 A (The Japan Steel Works, Ltd.), 07 January 2010 (07.01.2010), entire text (Family: none)	1-3
A	JP 2002-18842 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 22 January 2002 (22.01.2002), entire text (Family: none)	1-3

 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
04 June, 2012 (04.06.12)Date of mailing of the international search report
03 July, 2012 (03.07.12)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/058397

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 8-60001 A (Toray Industries, Inc.), 05 March 1996 (05.03.1996), entire text & US 5824410 A & US 5679456 A & US 6060010 A & US 6428728 B1 & EP 635542 A3	1-3
A	WO 2006/123824 A1 (Polyplastics Co., Ltd.), 23 November 2006 (23.11.2006), entire text & JP 4786648 B & KR 10-2008-0007606 A & CN 101175619 A	1-3
A	WO 2005/099984 A1 (Polyplastics Co., Ltd.), 27 October 2005 (27.10.2005), entire text & JP 4343223 B & US 2007/0194478 A1 & CN 1942296 A	1-3
A	JP 10-180841 A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 07 July 1998 (07.07.1998), entire text (Family: none)	1-3

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））
 Int.Cl. B29B9/14(2006.01)i, B29B9/06(2006.01)i, C08J3/20(2006.01)i

B. 調査を行った分野
 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））
 Int.Cl. B29B7/00-11/14, B29B13/00-15/06, C08J3/20

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 1971-2012年
 日本国実用新案登録公報 1996-2012年
 日本国登録実用新案公報 1994-2012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）
 WPI

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
A	JP 2002-103327 A（旭化成株式会社）2002.04.09, 全文（ファミリーなし）	1-3
A	JP 2010-654 A（株式会社日本製鋼所）2010.01.07, 全文（ファミリーなし）	1-3
A	JP 2002-18842 A（住友化学工業株式会社）2002.01.22, 全文（ファミリーなし）	1-3

C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

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

国際調査を完了した日 04.06.2012	国際調査報告の発送日 03.07.2012
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/J P） 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 相田 元 電話番号 03-3581-1101 内線 3430

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 8-60001 A (東レ株式会社) 1996. 03. 05, 全文 & US 5824410 A & US 5679456 A & US 6060010 A & US 6428728 B1 & EP 635542 A3	1-3
A	WO 2006/123824 A1 (ポリプラスチック株式会社) 2006. 11. 23, 全文 & JP 4786648 B & KR 10-2008-0007606 A & CN 101175619 A	1-3
A	WO 2005/099984 A1 (ポリプラスチック株式会社) 2005. 10. 27, 全文 & JP 4343223 B & US 2007/0194478 A1 & CN 1942296 A	1-3
A	JP 10-180841 A (旭化成工業株式会社) 1998. 07. 07, 全文 (ファミリーなし)	1-3