

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4684148号
(P4684148)

(45) 発行日 平成23年5月18日 (2011.5.18)

(24) 登録日 平成23年2月18日 (2011.2.18)

(51) Int.Cl.

F I

B 2 9 B 7/88 (2006.01)

C 0 8 J 3/20 (2006.01)

C 0 8 L 71/12 (2006.01)

C 0 8 L 101/02 (2006.01)

C 0 8 L 53/02 (2006.01)

B 2 9 B 7/88

C 0 8 J 3/20 C E R Z

C 0 8 J 3/20 C E Z

C 0 8 L 71/12

C 0 8 L 101/02

請求項の数 12 (全 26 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2006-87345 (P2006-87345)
 (22) 出願日 平成18年3月28日 (2006.3.28)
 (65) 公開番号 特開2006-306061 (P2006-306061A)
 (43) 公開日 平成18年11月9日 (2006.11.9)
 審査請求日 平成20年4月15日 (2008.4.15)
 (31) 優先権主張番号 特願2005-94903 (P2005-94903)
 (32) 優先日 平成17年3月29日 (2005.3.29)
 (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
 東京都千代田区神田神保町一丁目105番地
 (74) 代理人 100108693
 弁理士 鳴井 義夫
 (74) 代理人 100095902
 弁理士 伊藤 穰
 (74) 代理人 100103436
 弁理士 武井 英夫
 (72) 発明者 山口 徹
 千葉県袖ヶ浦市中袖5番地1 旭化成ケミカルズ株式会社内

審査官 岩本 昌大

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

ポリフェニレンエーテル粉体 (A) 20 ~ 98.5 質量% と無機質充填剤粉体 (B) 1 ~ 60 質量%、官能基を有する熱可塑性エラストマー (C) 0.5 ~ 20 質量% を含有して熔融混練した強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物を製造する際に、バレル長さが 800 mm 以上ある二軸押出機を用いて、押出機バレルの駆動部側原料供給部から押出樹脂出口までの内の、最初の 45 ~ 80 % の長さを、ポリフェニレンエーテル粉体を溶融させない未溶融混合ゾーンとして、更に、未溶融混合ゾーンの第二、第三バレルが 200 以下の設定温度であることを特徴とする、強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法。

【請求項 2】

前記無機質充填剤粉体 (B) の量が 10 ~ 30 質量% である請求項 1 に記載の強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法。

【請求項 3】

前記 (B) 成分の強熱減量 (450 で 3 時間強熱した後の、元の質量に対する減少割合) が 1 ~ 50 質量% の範囲である、請求項 1 または 2 に記載の強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法。

【請求項 4】

前記 (A) 成分の内の 5 ~ 50 % を、未溶融混合ゾーンの途中からサイドフィードすることを特徴とする、請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の強化ポリフェニレンエーテル系樹脂

組成物の製造方法。

【請求項 5】

前記 (B) 成分が水簾クレーである、請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載の強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法。

【請求項 6】

前記 (B) 成分が有機化クレーである、請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法。

【請求項 7】

前記 (B) 成分が、シラン化合物で表面処理したクレーである、請求項 1 ~ 6 のいずれかに記載の強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法。

10

【請求項 8】

前記 (C) 成分が、イミダゾリジノン化合物で変性したスチレン系熱可塑性エラストマーである、請求項 1 ~ 7 のいずれかに記載の強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法。

【請求項 9】

前記 (A)、(B)、(C) 成分の合計 100 質量部に、更に、芳香族リン酸エステル系難燃剤 (D) 5 ~ 40 質量部を含有してなる、請求項 1 ~ 8 のいずれかに記載の強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法。

【請求項 10】

二軸押出機の熔融混練ゾーンの長さが、300 ~ 1620 mm の範囲である、請求項 1 ~ 9 のいずれかに記載の強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法。

20

【請求項 11】

請求項 1 ~ 10 のいずれかに記載の製造方法によって得られた強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物より成る成形体。

【請求項 12】

事務機、家電 OA 機器、建材、日用品、自動車部品のいずれかの用途に使用される、請求項 11 に記載の成形体。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

30

本発明は、成形体の表面外観、耐熱性、剛性、靱性等に優れ、量産性および生産安定性に優れた強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物は機械的性質、成形加工性、耐熱性、寸法安定性あるいは電気特性等に優れるため、家電分野、事務機分野や情報機器分野、自動車分野等に広く用いられている。特に近年、事務機、情報機器分野における複写機、パソコン等の外装、内部部品、或いはその周辺機器の様々な部品に広く用いられている。これらの用途部品にはより高い剛性、耐熱性、寸法安定性等が要求されることから無機質充填剤を配合した強化樹脂組成物が多く用いられている。しかし一般に、このような無機質充填剤をポリフェニレンエーテル系樹脂組成物に配合した場合、剛性や耐熱性が向上する反面、わずかな添加においても、落錘衝撃試験での面衝撃値等の耐衝撃性や成形品の表面外観が著しく低下することが知られている。

40

【0003】

本発明者は、ポリフェニレンエーテル粉体と無機質充填剤粉体および、官能基を有する熱可塑性エラストマーを予め混合した後に熔融混練することによって、これらの低下を抑制することが可能であることを見出したが、このような粉体原料を押出機等に長時間、連続的に供給して熔融混練する場合、通常、粉体の持つかさ高さのため多量に押出機に供給することは困難である。また、これら粉体原料に含まれる揮発成分や水分が、押出機内での熔融混練によって多量のガスや水蒸気となるため、原料供給口へのバックフィードによ

50

る押出機への粉体原料の供給障害や、押出樹脂の吐出不安定によるストランドの引取り不良、ストランド切れ等の誘因となり、更に押出途中、原料供給口へバックフィードした揮発成分や水分を吸湿、固着した粉体原料が、押出機への原料供給口付近で原料塊を形成して原料供給口を塞ぎ、押出運転の継続を困難にするなど、量産性、生産安定性が十分ではなかった。

【0004】

ところで、特許文献1には、ポリフェニレンエーテル粉体を用いた樹脂組成物の製造方法において、特定の粉体供給設備配置と特定の押出条件により、押出機への粉体供給をスムーズにして樹脂組成物の生産安定性を改良する方法が開示されている。しかし、これは主にポリフェニレンエーテル粉体とポリスチレン系樹脂、固形状難燃剤からなる樹脂組成物における生産性改良方法を示したものであり、本願のポリフェニレンエーテル粉体と無機質充填剤粉体を含有する樹脂組成物とは異なり、従って、その生産性改良方法も本願とは異なる手法をとっており、この手法を適用して本願組成物の生産性を改良することは困難である。

10

【0005】

また、特許文献2～3には、ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物に、特定の無機質充填剤、熱可塑性エラストマーを配合して、耐衝撃性、剛性、成形品の表面平滑性等を改良した樹脂組成物の製造方法も開示されている。この方法によって、耐衝撃性、剛性、成形品の表面平滑性の優れた樹脂組成物は得られるが、しかしその量産性や生産安定性に関しては十分に示されていなかった。

20

【0006】

【特許文献1】特開2004-137447公報

【特許文献2】特開2004-263079公報

【特許文献3】特開2004-137450公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

本発明は家電、事務機器、情報機器分野や自動車分野に有効に使用できる、成形体の表面外観、耐熱性、剛性、靱性に優れた強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の生産において、その量産性、生産安定性を改良した製造方法を提供することを目的とする。

30

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明者は、環境に悪影響を及ぼさず、耐熱性、剛性等に優れ、なおかつ成形品の表面外観や耐衝撃性、引張伸度等をさほど低下させずに、無機質充填剤で強化したポリフェニレンエーテル系樹脂組成物を大量に安定的に生産することを目的として鋭意検討した結果、ポリフェニレンエーテル粉体と無機質充填剤粉体および官能基を有する熱可塑性エラストマーを含有した原料を、二軸押出機を用いて熔融混練する際、使用する二軸押出機はバレルの長さが800mm以上あるものを用いること、更に押出機の駆動部側の原料供給部から押出樹脂出口までのバレルにおいて、最初の45～80%の長さを未熔融混合ゾーンとして利用して、そのゾーンではポリフェニレンエーテル粉体を熔融させず、その後の押出樹脂出口までの残りの長さ(バレル長全体の55～20%)を熔融混練ゾーンとして利用して原料全体を熔融混練して押出すことによって、量産性、生産安定性が著しく改善され、押出時に原料塊の発生による原料フィード詰りや、押出ストランドの引取り不良、ストランド切れ等のトラブルを起こすことなく、成形体の表面外観に優れて、剛性と靱性の物性バランスに優れた強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物が高い押出レートで、極めて安定的に長時間生産することが可能であることを見出した。

40

【0009】

即ち、本発明は、

1. ポリフェニレンエーテル粉体(A)20～98.5質量%と無機質充填剤粉体(B)1～60質量%、官能基を有する熱可塑性エラストマー(C)0.5～20質量%を含有

50

して溶融混練した強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物を製造する際に、バレル長さが800mm以上ある二軸押出機を用いて、押出機バレルの駆動部側原料供給部から押出樹脂出口までの内の、最初の45～80%の長さを、ポリフェニレンエーテル粉体を溶融させない未溶融混合ゾーンとして、更に、未溶融混合ゾーンの第二、第三バレルが200以下の設定温度であることを特徴とする、強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法、

2. 前記1.において、前記無機質充填剤粉体(B)の量が10～30質量%である、強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法、

【0010】

3. 前記1.または2.において、前記(B)成分の強熱減量(450℃で3時間強熱した後の、元の質量に対する減少割合)が1～50質量%の範囲である、強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法、

4. 前記1.～3.のいずれかにおいて、前記(A)成分の内の5～50%を、未溶融混合ゾーンの途中からサイドフィードすることを特徴とする、の強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法

5. 前記1.～4.のいずれかにおいて、前記(B)成分が水簾クレーである、強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法、

6. 前記1.～5.のいずれかにおいて、前記(B)成分が有機化クレーである、強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法、

【0011】

7. 前記1.～6.のいずれかにおいて、前記(B)成分が、シラン化合物で表面処理したクレーである、強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法、

8. 前記1.～7.のいずれかにおいて、前記(C)成分が、イミダゾリジノン化合物で変性したスチレン系熱可塑性エラストマーである、強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法、

9. 前記1.～8.のいずれかにおいて、前記(A)、(B)、(C)成分の合計100質量部に、更に、芳香族リン酸エステル系難燃剤(D)5～40質量部を含有してなる、強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法、

10. 前記1.～9.のいずれかにおいて、二軸押出機の溶融混練ゾーンの長さが、300～1620mmの範囲である、強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法、

11. 前記1.～10.のいずれかの製造方法によって得られた強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物より成る成形体、

12. 前記11.において、事務機、家電OA機器、建材、日用品、自動車部品のいずれかの用途に使用される成形体、

を提供するものである。

【発明の効果】

【0012】

本発明の製造方法によって、強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の量産性、生産安定性は著しく改良された。また、本発明の製造方法によって得られた樹脂組成物は、成形品の表面外観や耐熱性、剛性、流動性、靱性、難燃性に優れ、家電OA機器、事務機、情報機器分野、自動車分野等に有効に使用することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0013】

本発明を更に詳細に説明する。

本発明の製造方法は、バレルの長さが少なくとも800mmある二軸押出機を用いる必要があり、好ましくは1500～8000mm、より好ましくは2000～5000mm、特に好ましくは3000～4000mmである。本発明(A)成分と(B)成分との十分な溶融混練の観点から、バレルの長さは800mm以上である必要がある。

【0014】

本発明の製造方法において、二軸押出機の上流(駆動部)側から下流(押出樹脂出口)

10

20

30

40

50

までのバレル長さの内、最初の45～80%のゾーンは、本発明(A)成分であるポリフェニレンエーテル粉体を溶融させずに下流側へ送るための未溶融混合ゾーンを設ける必要がある。未溶融混合ゾーンは、押出スクリューを一条の正ネジスクリュー、二条の正ネジスクリューなどの送りスクリューのみを用いてシェアが掛かりにくく、粉体成分の搬送効率のよいスクリュー構成とする必要がある。特に粉体成分の搬送効率向上の観点から、長さ1.0～1.5Dの一条の正ネジスクリューを用いることが望ましい。またバレル温度も低め(水冷～280℃。原料の第一供給口である第一バレルは水冷、第二、第三バレルは200℃以下が好ましい)に設定するなどして設けることが可能である。好ましい未溶融混合ゾーンの範囲は50～70%であり、より好ましくは50～60%である。十分な生産性と組成物の物性保持等の観点から未溶融混合ゾーンは45%以上とる必要があり、(A)成分と(B)成分、(C)成分の十分な溶融混練の観点から、80%以下であることが必要である。また、未溶融混合ゾーンの後の押出樹脂出口までを溶融混練ゾーンとする必要がある。溶融混練ゾーンは、ニーディングディスクL、ニーディングディスクN、ニーディングディスクR、逆ネジスクリュー、SMEスクリューなどを、(A)成分と(B)成分、(C)成分の量比や(B)成分の種類などに応じて、スクリュー構成中に適宜組み入れることや、バレル設定温度を高め(330～250℃)に設定するなどして設けることが可能である。溶融混練ゾーンの範囲は全バレル長さの55～20%の範囲より選ばれ、好ましい溶融混練ゾーンの範囲は50～30%であり、より好ましくは50～40%の範囲である。十分な生産性と組成物の物性保持の観点から、溶融混練ゾーンは55%以下である必要があり、(A)成分と(B)成分、(C)成分との十分な溶融混練の観点から20%以上とることが必要である。溶融混練ゾーンの長さは、十分な溶融混練の観点から200mm以上あることが好ましく、樹脂成分の熱劣化防止による物性保持の観点から、2000mm以下であることが好ましい。より好ましい溶融混練ゾーンの範囲は300～1620mmである。

【0015】

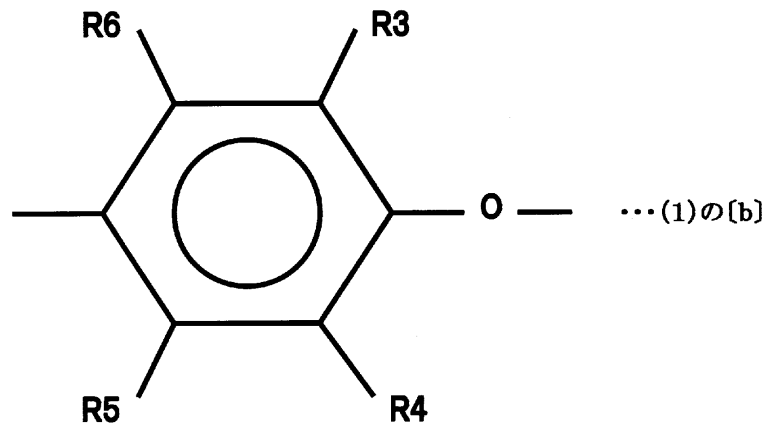
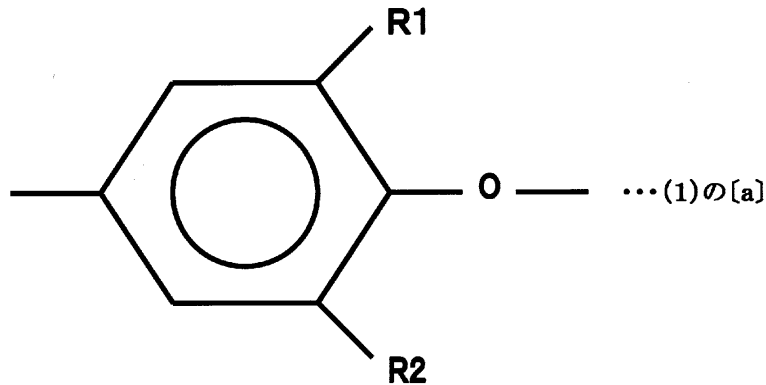
本発明の製造方法において、(A)成分と(B)成分を含有する原料成分を溶融混練した後の押出機の溶融混練ゾーンに、減圧ベントを設置して溶融混練時に発生する揮発成分を脱揮することによって、量産性および生産安定性がより一層改良される。減圧ベントは-600mmHgよりも強く減圧することが好ましい。また減圧ベントは2ヶ所以上設置しても良い。

本発明の製造方法において、二軸押出機のダイ出口から押出される樹脂組成物の温度は耐衝撃性、成形品表面外観保持の観点から、370℃未満に制御する必要がある。好ましくは360℃未満で、より好ましくは350℃未満である。

【0016】

本発明の(A)成分を構成するポリフェニレンエーテル粉体としては、次に示す一般式(1)を繰り返し単位とし、構成単位が一般式(1)の〔a〕または〔b〕からなる単体重合体、あるいは共重合体が使用できる。

【化 1】



(式中、R1 , R2 , R3 , R4 , R5 , R6 は炭素 1 ~ 4 のアルキル基、アリール基、ハロゲン、水素等の一価の残基であり、R5 , R6 は同時に水素ではない)

30

【 0 0 1 7 】

ポリフェニレンエーテルの単独重合体の代表例としては、ポリ(2 , 6 - ジメチル - 1 , 4 - フェニレン)エーテル、ポリ(2 - メチル - 6 - エチル - 1 , 4 - フェニレン)エーテル、ポリ(2 , 6 - ジエチル - 1 , 4 - フェニレン)エーテル、ポリ(2 - エチル - 6 - n - プロピル - 1 , 4 - フェニレン)エーテル、ポリ(2 , 6 - ジ - n - プロピル - 1 , 4 - フェニレン)エーテル、ポリ(2 - メチル - 6 - n - ブチル - 1 , 4 - フェニレン)エーテル、ポリ(2 - エチル - 6 - イソプロピル - 1 , 4 - フェニレン)エーテル、ポリ(2 - メチル - 6 - クロロエチル - 1 , 4 - フェニレン)エーテル、ポリ(2 - メチル - 6 - ヒドロキシエチル - 1 , 4 - フェニレン)エーテル、ポリ(2 - メチル - 6 - クロロエチル - 1 , 4 - フェニレン)エーテル等のホモポリマーが挙げられる。

40

ポリフェニレンエーテル共重合体としては、2 , 6 - ジメチルフェノールと 2 , 3 , 6 - トリメチルフェノールとの共重合体、2 , 6 - ジメチルフェノールと o - クレゾールとの共重合体あるいは 2 , 3 , 6 - トリメチルフェノールと o - クレゾールとの共重合体等、ポリフェニレンエーテル構造を主体としてなるポリフェニレンエーテル共重合体を含む。

【 0 0 1 8 】

また、本発明のポリフェニレンエーテルには、本発明の主旨に反しない限り、他の種々のフェニレンエーテルユニットを部分構造として含んでも構わない。これらフェニレンエーテルユニットとしては、例えば、特開平 0 1 - 2 9 7 4 2 8 号公報及び特開昭 6 3 - 3 0 1 2 2 2 号公報に記載されている、2 - (ジアルキルアミノメチル) - 6 - メチル

50

フェニレンエーテルユニットや、2-(N-アルキル-N-フェニルアミノメチル)-6-メチルフェニレンエーテルユニット等が挙げられる。

また、ポリフェニレンエーテルの主鎖中にジフェノキノン等が少量結合したものも含まれる。

【0019】

本発明(A)成分を構成するポリフェニレンエーテルにおいて、その一部または全部を不飽和カルボン酸或いはその官能的誘導体で変性した官能化ポリフェニレンエーテルで置き換えることも可能である。この場合、変性は不飽和カルボン酸やその官能的誘導体の中の1種により行われても良いし、2種以上の組み合わせによって行われても良い。

本発明に用いられるポリフェニレンエーテルの固有粘度(クロロホルム溶媒で30℃にて測定)は0.3~0.9の範囲が好ましく、より好ましくは0.4~0.6の範囲にあることである。熔融混練により無機質充填剤粉体を十分に微分散させるためには0.3以上が好ましく、成形加工性の観点から0.9以下が好ましい。

【0020】

本発明樹脂組成物の製造方法において、(A)成分であるポリフェニレンエーテル粉体の配合量は、20~98.5質量%の範囲より選ばれる。好ましくは30~90質量%、より好ましくは50~70質量%である。耐衝撃性、成形品の表面外観保持の観点から20質量%以上の配合が望ましく、剛性付与の観点から98.5質量%以下の配合が望ましい。

本発明樹脂組成物の製造方法において、配合する(A)成分全体の5~50%の割合を二軸押出機の未熔融混合ゾーンの途中からサイドフィードすることがより好ましい。特に好ましい範囲は10~30%である。(A)成分をサイドフィードする場合、十分な量産性と生産安定性の改良、組成物の物性改良の観点から5%以上とすることが望ましく、スムーズなサイドフィードによる生産安定性の観点等から50%以下にすることが望ましい。

【0021】

本発明の(B)成分を構成する無機質充填剤粉体は熱可塑性樹脂を強化するために一般的に用いられるものである。その具体例としては、シリカ、ワラストナイト、アルミナ、タルク、マイカ、クレー類、酸化チタン、亜鉛華、酸化鉄、炭酸カルシウム、硫酸バリウム等が挙げられる。中でも本発明の目的のために好適なのはタルク、マイカ、クレー類等のミネラルフィラーであり、特に好適なのは水簸クレーと有機化クレーである。本発明に用いられる無機質充填剤粉体の一次粒子の好ましい粒子サイズは平均粒子径0.001~10μmであり、より好ましくは0.01~2μm、特に好ましくは0.05~0.5μmである。成形品の表面外観や耐衝撃性の保持の観点から10μm以下が好ましく、十分な剛性付与の観点から0.001μm以上が好ましい。本発明に用いられる無機質充填剤粉体の強熱減量(ここで言う強熱減量とは、450℃の電気炉中で3時間強熱した後の、元の重量に対する質量の減少割合である)は60質量%以下であることが好ましく、より好ましくは1~50質量%、更に好ましくは1~30質量%、特に好ましくは3~10質量%の範囲より選ばれる。十分な量産性、生産安定性の観点から、本発明(B)成分の強熱減量は60質量%以下が好ましい。

【0022】

本発明(B)成分の無機質充填剤粉体は、予めシラン化合物等の処理剤で表面処理したものをを用いることが組成物中での分散性向上、樹脂との密着性向上の観点からも好ましい。用いられるシラン処理剤の具体例として、ビニルトリクロルシラン、ビニルトリエトキシシラン、γ-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン等のビニルシラン化合物、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化合物、ビス-(3-トリエトキシシリルプロピル)テトラサルファイド等の硫黄系シラン化合物、γ-メルカプトプロピルトリメトキシシラン等のメルカプトシラン化合物、γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、γ-ユレイドプロピルトリエトキシシラン等のアミノシラン化合物等が挙げられる。本発明の目的のために好適なのはメルカプトシラン化合物及びアミノシラン化

合物であり、特にメルカプトシラン化合物が好ましい。シラン化合物は単独で用いても二種類以上を併用しても良い。異なるシラン化合物で表面処理した無機質充填剤を混合して用いることもできる。また、これらシラン化合物で表面処理した無機質充填剤と共にシラン化合物以外の表面処理剤で表面処理した無機質充填剤や表面処理していない無機質充填剤を併用しても良い。

本発明樹脂組成物の製造方法において、(B)成分である無機質充填剤粉体の配合量は、1～60質量%の範囲より選ばれる。好ましくは5～50質量%、より好ましくは10～30質量%である。耐衝撃性、成形品の表面外観保持の観点から60質量%以下の配合が望ましく、剛性付与の観点から1質量%以上の配合が望ましい。

【0023】

本発明の(C)成分である、官能基を有する熱可塑性エラストマーとしては、スチレン系熱可塑性エラストマー、オレフィン系熱可塑性エラストマー、ウレタン系熱可塑性エラストマー、ポリエステル系熱可塑性エラストマー、ポリアミド系熱可塑性エラストマー、ポリブタジエン系熱可塑性エラストマー、弗素系熱可塑性エラストマー等が挙げられる。これらの中でスチレン系熱可塑性エラストマーが本発明では特に好適に用いられる。スチレン系熱可塑性エラストマーとは、ポリスチレンブロックとゴム中間ブロックとを有するブロック共重合体であり、ゴム中間ブロックとしてはポリブタジエン、ポリイソプレン、ポリ(エチレン・ブチレン)、ポリ(エチレン・プロピレン)、ビニル・ポリイソプレン等が挙げられる。ゴム中間ブロックはこれらの組み合わせであっても良い。配列様式はリニアタイプでもラジアルタイプでも良い。またポリスチレンブロックとゴム中間ブロックにより構成されるブロック構造は二型、三型、四型の何れであっても良い。本発明の目的のために特に好適なのはポリスチレン・ポリ(エチレン・ブチレン)・ポリスチレン構造で構成される三型のリニアタイプのブロック共重合体であるが、ゴム中間ブロック中に30質量%を超えない範囲でブタジエン単位が含まれたものであっても良い。

【0024】

また、本発明の(C)成分である官能基を有する熱可塑性エラストマーにおいて、官能基はカルボニル基およびアミノ基が耐衝撃性および成形品表面外観保持の観点から好ましい。カルボニル基は熱可塑性エラストマーを不飽和カルボン酸またはその官能的誘導体で変性することで導入される。不飽和カルボン酸またはその官能的誘導体としては、例えばマレイン酸、フマル酸、イタコン酸、ハロゲン化マレイン酸、シス-4-シクロヘキセン-1,2-ジカルボン酸、エンド-シス-ビスシクロ[2,2,1]-5-ヘプテン-2,3-ジカルボン酸等や、これらジカルボン酸の無水物、エステル、アミド、イミド等、更にアクリル酸、メタクリル酸等や、これらのモノカルボン酸のエステル、アミド等が挙げられる。アミノ基は熱可塑性エラストマーにイミダゾリジノン化合物あるいはピロリドン化合物を反応させることによって導入される。イミダゾリジノン化合物としては、例えば、1,3-ジエチル-2-イミダゾリジノン、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、1,3-ジプロピル-2-イミダゾリジノン、1-メチル-3-エチル-2-イミダゾリジノン、1-メチル-3-プロピル-2-イミダゾリジノン、1-メチル-3-ブチル-2-イミダゾリジノン、1-メチル-3-(2-メトキシエチル)-2-イミダゾリジノン、1-メチル-3-(2-エトキシエチル)-2-イミダゾリジノン、1,3-ジ-(2-エトキシエチル)-2-イミダゾリジノン、1,3-ジメチルエチレンチオウレア、N,N'-ジエチルプロピレンウレア、1,3-ジメチル-3,4,5,6-テトラヒドロ-2(1H)-ピリミジノン等が挙げられ、中でも1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノンが好ましい。ピロリドン化合物としては、例えば、1-シクロヘキシル-2-ピロリドン、1-メチル-2-ピロリドン、1-エチル-2-ピロリドン、1-プロピル-2-ピロリドン、1-ブチル-2-ピロリドン、1-イソプロピル-2-ピロリドン、1,5-ジメチル-2-ピロリドン、1-メトキシメチル-2-ピロリドン、1-メチル-2-ピペリドン、1,4-ジメチル-2-ピペリドン、1-エチル-2-ピペリドン、1-イソプロピル-2-ピペリドン、1-イソプロピル-5,5-ジメチル-2-ピペリドン等が挙げられ、中でも1-メチル-2-ピロリドン、1-メチル-2-ピペリドンが好

10

20

30

40

50

ましく、中でも 1 - メチル - 2 - ピペリドンが特に好ましい。

【 0 0 2 5 】

本発明樹脂組成物の製造方法において、(C)成分である熱可塑性エラストマーを添加する場合、押出機の最上流部から押出機にフィードすることが、組成物の靱性および、量産性、生産安定性向上の観点から望ましい。

本発明樹脂組成物の製造方法において、(C)成分である熱可塑性エラストマーの配合量は 0.5 ~ 20 質量% の範囲より選ばれる。好ましくは 1 ~ 15 質量%、より好ましくは 3 ~ 10 質量% である。耐衝撃性、成形品の表面外観保持の観点から 0.5 質量% 以上の配合が望ましく、剛性、耐熱性保持の観点から 20 質量% 以下の配合が望ましい。

【 0 0 2 6 】

本発明の (D) 成分である芳香族リン酸エステル系難燃剤は押出加工性改良、成形流動性向上、難燃性付与等が必要な場合に用いても良い。例えばトリフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェート、トリキシレニルホスフェート、クレジルジフェニルホスフェート、キシレニルジフェニルホスフェート、ジキシレニルフェニルホスフェート、ヒドロキシノンビスフェノール、レゾルシノールビスホスフェート、ビスフェノール A ビスホスフェート等のトリフェニル置換タイプの芳香族リン酸エステル類が特に好適に用いられる。これらは単独でも二種以上組み合わせて用いても良い。

【 0 0 2 7 】

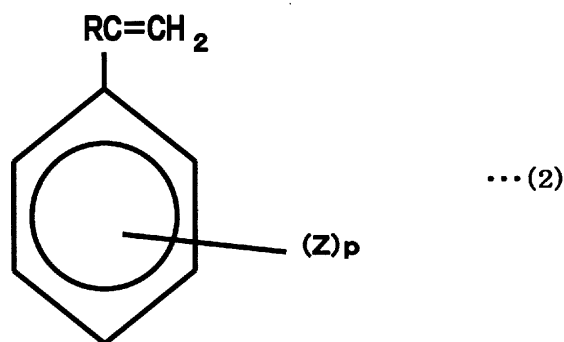
本発明樹脂組成物の製造方法において、(D)成分である芳香族リン酸エステル系難燃剤の配合量は (A) 成分であるポリフェニレンエーテル粉体と (B) 成分である無機質充填剤粉体、(C) 成分である官能基を有する熱可塑性エラストマーの合計量 100 質量部に対して、5 ~ 40 質量部の範囲より選ばれる。好ましくは 8 ~ 30 質量部、より好ましくは 10 ~ 20 質量部である。十分な難燃性付与の観点から 5 質量部以上の配合が望ましく、耐熱性保持の観点から 40 質量部以下の配合が望ましい。

本発明の製造方法によって製造される樹脂組成物には、必要に応じてスチレン系樹脂も配合することができる。本発明で使用されるスチレン系樹脂とは、スチレン系化合物またはスチレン系化合物と共重合可能な化合物を、ゴム質重合体存在下または非存在下に重合して得られる重合体である。

【 0 0 2 8 】

スチレン系化合物とは、一般式〔2〕で表される化合物を意味する。

【化 2】



(式中、R は水素、低級アルキルまたはハロゲンを示し、Z はビニル、水素、ハロゲン及び低級アルキルよりなる群から選択され、p は 0 ~ 5 の整数である。)

【 0 0 2 9 】

これらの具体例としては、スチレン、-メチルスチレン、2, 4 - ジメチルスチレン、モノクロロスチレン、p - メチルスチレン、p - t e r t - ブチルスチレン、エチルスチレン等が挙げられる。また、スチレン系化合物と共重合可能な化合物としては、メチルメタクリレート、エチルメタクリレート等のメタクリル酸エステル類；アクリロニトリル、メタクリロニトリル等の不飽和ニトリル化合物類；無水マレイン酸等の酸無水物等が挙

10

20

30

40

50

げられ、スチレン系化合物と共に使用される。また、ゴム質重合体としては共役ジエン系ゴムおよび共役ジエンと芳香族ビニル化合物のコポリマーまたはこれらの水添物あるいはエチレン-プロピレン共重合体系ゴム等が挙げられる。本発明のために特に好適なポリスチレン系樹脂はポリスチレンおよびゴム強化ポリスチレンである。

【0030】

更に、本発明の製造方法によって製造される樹脂組成物には、必要に応じて酸化防止剤、紫外線吸収剤、熱安定剤等の安定剤類や着色剤、離型剤等も添加することができる。

本発明の製造方法によって製造された樹脂組成物を用いて成形体を成形する場合、特に成形法に制限は無いが、射出成形、押出成形、真空成形、圧空成形など既に広く知られた成形法が好適に用いられる。

【実施例】

【0031】

本発明について、実施例に基づき以下具体的に説明する。本発明がこれらの例によって何ら限定されるものではない。尚、以下の用いる部は質量部である。

実施例および比較例中の各測定値は以下の方法によって求めた。

(1) 引張伸度

A S T M D 6 3 8 に定められた形状の引張試験片(形式I)を用いて、チャック間距離115mm、標点間距離50mm、引張試験速度5mm/minの条件で引張試験を行い、引張伸度(破壊時歪%)を測定した。

【0032】

(2) 落錘(ダート)衝撃強度(耐衝撃性)

50mm×90mm×2.5mm(厚さ)の平板を用い、東洋精機(株)製の落錘グラフィックインパクトテスターにより、23における破壊時の全吸収エネルギーを測定した。

(3) ノッチ付きアイゾッド衝撃値(耐衝撃性)

A S T M の D 2 5 6 に基づき23にて測定した。

(4) 曲げ強度、曲げ弾性率

A S T M の D 7 9 0 による曲げ試験法に基づいて三点曲げ試験を23°Cで測定した。

【0033】

(5) グロス(光沢)

50mm×90mm×2.5mm(厚さ)の平板を用い、(株)村上色彩技術研究所製のグロスメーターGM-26Dにより平板中央のグロスを測定した。

(6) 外観

50mm×90mm×2.5mm(厚さ)の平板を用い、平板の表面外観を目視で判定した。

(7) 燃焼性

1.6mm厚みの試験片を用いて、UL-94試験法に基づいて測定した。

(8) 燃焼滴下性

2.0mm厚みの試験片を用いて、UL-94試験法の5VA法に基づいて測定した。

【0034】

原材料1 ポリフェニレンエーテル粉体

(R-1) 固有粘度(クロロホルム、30)0.47dl/gのポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレン)エーテル(商品名:S201A、旭化成ケミカルズ社製)。

原材料2 無機質充填剤粉体

(F-1) メルカプトシランで表面処理した平均粒子径0.2μmのクレー:米国J.M.Huber社製ニューキャップ290。強熱減量5.6質量%。

(F-2) メチルベンジル水添ジタローアンモニウムで有機処理した有機化クレー:米国エレメンティススペシャリティーズ社製BENTONE2010。強熱減量37質量%。

【0035】

原材料3 官能基を有する熱可塑性エラストマー

(H-1) アミノ基を有するスチレン系熱可塑性エラストマー

窒素ガスで置換した攪拌機付きリアクターのシクロヘキサン溶剤中で、n-ブチルリチウムを重合開始剤として用い、数平均分子量が40000、結合スチレン30質量%、ブタジエンの1,2-ビニル結合量が38%のポリスチレン-ポリブタジエン-ポリスチレンの構造で、ポリマー鎖末端がリビングリチウムイオン構造を示すブロック共重合体を重合した。重合終了後、使用したn-ブチルリチウム量から重合体溶液中に存在するリチウムイオンに対して1.5倍モルの1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノンを加え95にて10分間反応させた後、米国特許第4501857号に記載された方法にて水素添加反応をポリブタジエン部分のエチレン性不飽和結合量が20%未満になるまで定量的に継続して実施し、水素添加率81.6%のポリマーを得た。この水添反応後のポリマー溶液に熱劣化安定剤として2,6-ジ-tert-ブチル-p-クレゾールをポリマー100gに対して0.3部添加し、溶剤であるシクロヘキサンを加熱除去し、ポリスチレン-水素添加されたポリブタジエン-ポリスチレンの構造を有し、該ポリスチレン鎖末端に2級アミンが付加したスチレン系熱可塑性エラストマーを得た。

10

【0036】

(H-2) カルボニル基を有するスチレン系熱可塑性エラストマー

旭化成ケミカルズ(株)製タフテックH1041を100部、無水マレイン酸1.0部および日本油脂(株)製パーブチルD0.5部を均一に混合した後、押出機を用いて260にて熔融混練することで、官能基を有するスチレン系熱可塑性エラストマーを得た。ナトリウムメチラートをを用いた滴定法によって求めたH1041に対する無水マレイン酸の付加量は0.4部であった。

20

【0037】

原材料4 芳香族リン酸エステル系難燃剤

(D-1) ビスフェノールAビスジフェニルホスフェート：大八化学(株)製CR741

原材料5 スチレン系樹脂

(P-1) ハイインパクトポリスチレン：旭化成ケミカルズ(株)製H9405

(P-2) ゼネラルパーパスポリスチレン：旭化成ケミカルズ(株)製685

(P-3) スチレン-アクリロニトリル共重合体：旭化成ケミカルズ(株)製T9701

【0038】

[実施例1]

ポリフェニレンエーテル粉体(R-1)60部、無機質充填剤粉体(F-1)20部、官能基を有する熱可塑性エラストマー(H-1)5部とを、ZSK25二軸押出機(独国Werner & Pfleiderer社製、バレル数10、バレル長さ1080mm)の駆動部側供給口(トップフィード口)から押出機に供給し、芳香族リン酸エステル系難燃剤(D-1)15部をバレル9から液添して、スクリー回転数480rpmで押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル1を水冷、バレル2~3を150、バレル4~5を250、バレル6を280、バレル7~10を300とし、バレル7にニーディングディスクR、L、N、R、バレル9~10にニーディングディスクL2個、SME2個、ニーディングディスクR、L、N、を含むスクリーパターンとして、バレル7の途中~10にかけて熔融混練ゾーン(全バレル長さの38%)とし、熔融混練ゾーンの途中(バレル8)に減圧(-700mmHg)ベント1ヶ所を設けた。押出レート40kg/hr、ダイ出口樹脂温度315で4時間運転したが運転は安定していた。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果(押出運転中期のサンプリング品)を表-1に示す。

30

40

【0039】

[実施例2]

ポリフェニレンエーテル粉体(R-1)48部、無機質充填剤粉体(F-1)10部、官能基を有する熱可塑性エラストマー(H-1)8部とを、ZSK25二軸押出機(独国Werner & Pfleiderer社製、バレル数10、バレル長さ1080mm)の駆動部側供給口(トップフィード口)から押出機に供給し、スチレン系樹脂(P-1)2

50

0部、スチレン系樹脂(P-2)7部、スチレン系樹脂(P-3)7部とをバレル6からサイドフィードして、スクリュウ回転数480rpmで押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル1を水冷、バレル2~3を200、バレル4~6を280、バレル7~10を270、バレル7を300、バレル8~10を270とし、バレル5にニーディングディスクR、L、N、バレル7にニーディングディスクR、L、バレル9~10にニーディングディスクL、SME2個、ニーディングディスクR、R、N、を含むスクリュウパターンとして、バレル5の途中~10にかけて熔融混練ゾーン(全バレル長さの52%)とし、熔融混練ゾーンの途中(バレル8)に減圧(-700mmHg)ベント1ヶ所を設けた。押出レート30kg/hr、ダイ出口樹脂温度315で4時間運転したが運転は安定していた。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果(押出運転中期のサンプリング品)を表-1に示す。

10

【0040】

[実施例3]

ポリフェニレンエーテル粉体(R-1)60部、無機質充填剤粉体(F-1)18部、官能基を有する熱可塑性エラストマー(H-1)6部とを、ZSK58二軸押出機(独国Werner & Pfleiderer社製、バレル数13、バレル長さ3220mm)の駆動部側供給口(トップフィード口)から押出機に供給し、芳香族リン酸エステル系難燃剤(D-1)16部を押出機のバレル12から液添して、スクリュウ回転数500rpmで押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル1を水冷、バレル2~3を100、バレル4を150、バレル5~6を280、バレル7~8を300、バレル9~13を270とし、バレル7~8にかけてニーディングディスクR、R、N、L、バレル10にニーディングディスクL、N、バレル12にニーディングディスクL、バレル13にSME4個、ニーディングディスクR、を含むスクリュウパターンとして、バレル7の途中~13にかけて熔融混練ゾーン(全バレル長さの50%)とし、熔融混練ゾーンの途中(バレル9およびバレル11)に減圧(-700mmHg)ベント2ヶ所を設けた。押出レート400kg/hr、ダイ出口樹脂温度340で5時間運転したが運転は安定していた。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果(押出運転中期のサンプリング品)を表-1に示す。

20

【0041】

[実施例4]

ポリフェニレンエーテル粉体(R-1)60部、無機質充填剤粉体(F-1)18部、官能基を有する熱可塑性エラストマー(H-1)6部とを、ZSK58MC二軸押出機(独国Werner & Pfleiderer社製、バレル数13、バレル長さ3220mm)の駆動部側供給口(トップフィード口)から押出機に供給し、芳香族リン酸エステル系難燃剤(D-1)16部を押出機のバレル12から液添して、スクリュウ回転数600rpmで押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル1を水冷、バレル2~4を100、バレル5~6を200、バレル7を250、バレル8を280、バレル9を300、バレル10~13を270とし、バレル8~9にかけてニーディングディスクR、R、N、L、バレル10にニーディングディスクL、バレル12にニーディングディスクL、バレル13にSME2個、ニーディングディスクR2個、を含むスクリュウパターンとして、バレル8の途中~13にかけて熔融混練ゾーン(全バレル長さの39%)とし、熔融混練ゾーンの途中(バレル9およびバレル11)に減圧(-700mmHg)ベント2ヶ所を設けた。押出レート600kg/hr、ダイ出口樹脂温度340で10時間運転したが運転は安定していた。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果(押出運転中期のサンプリング品)を表-1に示す。

30

40

【0042】

[実施例5]

ポリフェニレンエーテル粉体(R-1)60部、無機質充填剤粉体(F-1)18部、官能基を有する熱可塑性エラストマー(H-1)6部とを、ZSK58MC二軸押出機(独国Werner & Pfleiderer社製、バレル数13、バレル長さ3220mm

50

）の駆動部側供給口（トップフィード口）から押出機に供給し、芳香族リン酸エステル系難燃剤（D - 1）16部を押出機のバレル12から液添して、スクリュー回転数650rpmで押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル1を水冷、バレル2～6を100、バレル7を200、バレル8を250、バレル9を280、バレル10を300、バレル11～13を270とし、バレル10にニーディングディスクR、R、N、L、バレル10にニーディングディスクL、バレル12にニーディングディスクL、バレル13にSME2個、ニーディングディスクR2個、を含むスクリューパターンとして、バレル10～13にかけて溶融混練ゾーン（全バレル長さの30%）とし、溶融混練ゾーンの途中（バレル11）に減圧（-700mmHg）ベント1ヶ所を設けた。押出レート650kg/hr、ダイ出口樹脂温度335で10時間運転したが運転は安定していた。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果（押出運転中期のサンプリング品）を表-2に示す。

10

【0043】

[実施例6]

ポリフェニレンエーテル粉体（R - 1）60部、無機質充填剤粉体（F - 1）18部、官能基を有する熱可塑性エラストマー（H - 2）6部とを、ZSK58MC二軸押出機（独国Werner & Pfleiderer社製、バレル数13、バレル長さ3220mm）の駆動部側供給口（トップフィード口）から押出機に供給し、芳香族リン酸エステル系難燃剤（D - 1）16部を押出機のバレル12から液添して、スクリュー回転数520rpmで押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル1を水冷、バレル2～3を100、バレル4を150、バレル5～6を250、バレル7を280、バレル8を300、バレル9～13を270とし、バレル7～8にかけてニーディングディスクR、R、N、L、バレル10にニーディングディスクL、バレル12にニーディングディスクL、バレル13にSME2個、ニーディングディスクR2個、を含むスクリューパターンとして、バレル7の途中～13にかけて溶融混練ゾーン（全バレル長さの50%）とし、溶融混練ゾーンの途中（バレル9およびバレル11）に減圧（-700mmHg）ベント2ヶ所を設けた。押出レート400kg/hr、ダイ出口樹脂温度340で10時間運転したが運転は安定していた。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果（押出運転中期のサンプリング品）を表-2に示す。

20

【0044】

30

[実施例7]

ポリフェニレンエーテル粉体（R - 1）60部、無機質充填剤粉体（F - 1）18部、官能基を有する熱可塑性エラストマー（H - 1）6部とを、ZSK58MC二軸押出機（独国Werner & Pfleiderer社製、バレル数13、バレル長さ3220mm）の駆動部側供給口（トップフィード口）から押出機に供給し、芳香族リン酸エステル系難燃剤（D - 1）16部を押出機のバレル12から液添して、スクリュー回転数400rpmで押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル1を水冷、バレル2～3を100、バレル4を150、バレル5～6を250、バレル7を280、バレル8を300、バレル9～13を270とし、バレル7～8にかけてニーディングディスクR、R、N、L、バレル10にニーディングディスクL、バレル12にニーディングディスクL、バレル13にSME2個、ニーディングディスクR2個、を含むスクリューパターンとして、バレル7の途中～13にかけて溶融混練ゾーン（全バレル長さの50%）とし、溶融混練ゾーンの途中（バレル9およびバレル11）に減圧（-700mmHg）ベント2ヶ所を設けた。押出レート350kg/hr、ダイ出口樹脂温度337で10時間運転したが運転は安定していた。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果（押出運転中期のサンプリング品）を表-2に示す。

40

【0045】

[実施例8]

ポリフェニレンエーテル粉体（R - 1）40部、無機質充填剤粉体（F - 1）18部、官能基を有する熱可塑性エラストマー（H - 1）6部とを、ZSK58二軸押出機（独国

50

Werner & Pfleiderer 社製、バレル数 13、バレル長さ 3220 mm) の駆動部側供給口 (トップフィード口) から押出機に供給し、ポリフェニレンエーテル粉体 (R - 1) 20 部をバレル 5 から押出機にサイドフィードし、芳香族リン酸エステル系難燃剤 (D - 1) 16 部を押出機のバレル 12 から液添して、スクリュウ回転数 520 rpm で押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル 1 を水冷、バレル 2 ~ 3 を 100、バレル 4 を 150、バレル 5 を 250、バレル 6 を 280、バレル 7 ~ 8 を 300、バレル 9 ~ 13 を 270 とし、バレル 7 ~ 8 にかけてニーディングディスク R、R、N、L、バレル 10 にニーディングディスク L、N、バレル 12 にニーディングディスク L、バレル 13 に SME 4 個、ニーディングディスク R、を含むスクリュウパターンとして、バレル 7 の途中 ~ 13 にかけて熔融混練ゾーン (全バレル長さの 50%) とし、熔融混練ゾーンの途中 (バレル 9 およびバレル 11) に減圧 (-700 mmHg) ベント 2ヶ所を設けた。押出レート 600 kg/hr、ダイ出口樹脂温度 340 で 5 時間運転したが運転は安定していた。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果 (押出運転中期のサンプリング品) を表 - 2 に示す。

【0046】

[実施例 9]

ポリフェニレンエーテル粉体 (R - 1) 40 部、無機質充填剤粉体 (F - 1) 10 部、官能基を有する熱可塑性エラストマー (H - 1) 5 部とを、ZSK 58 二軸押出機 (独国 Werner & Pfleiderer 社製、バレル数 13、バレル長さ 3220 mm) の駆動部側供給口 (トップフィード口) から押出機に供給し、ポリフェニレンエーテル粉体 (R - 1) 20 部、無機質充填剤粉体 (F - 1) 10 部とを、バレル 5 から押出機にサイドフィードし、芳香族リン酸エステル系難燃剤 (D - 1) 15 部を押出機のバレル 12 から液添して、スクリュウ回転数 520 rpm で押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル 1 を水冷、バレル 2 ~ 3 を 100、バレル 4 を 150、バレル 5 を 250、バレル 6 を 280、バレル 7 ~ 8 を 300、バレル 9 ~ 13 を 270 とし、バレル 7 ~ 8 にかけてニーディングディスク R、R、N、L、バレル 10 にニーディングディスク L、N、バレル 12 にニーディングディスク R、L、バレル 13 に SME 2 個、ニーディングディスク R 2 個、を含むスクリュウパターンとして、バレル 7 の途中 ~ 13 にかけて熔融混練ゾーン (全バレル長さの 50%) とし、熔融混練ゾーンの途中 (バレル 9 およびバレル 11) に減圧 (-700 mmHg) ベント 2ヶ所を設けた。押出レート 500 kg/hr、ダイ出口樹脂温度 340 で 5 時間運転したが運転は安定していた。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果 (押出運転中期のサンプリング品) を表 - 3 に示す。

【0047】

[実施例 10]

ポリフェニレンエーテル粉体 (R - 1) 50 部、無機質充填剤粉体 (F - 1) 20 部、官能基を有する熱可塑性エラストマー (H - 1) 5 部とを、ZSK 58 二軸押出機 (独国 Werner & Pfleiderer 社製、バレル数 13、バレル長さ 3220 mm) の駆動部側供給口 (トップフィード口) から押出機に供給し、ポリフェニレンエーテル粉体 (R - 1) 10 部を、バレル 5 から押出機にサイドフィードし、芳香族リン酸エステル系難燃剤 (D - 1) 15 部を押出機のバレル 12 から液添して、スクリュウ回転数 520 rpm で押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル 1 を水冷、バレル 2 ~ 3 を 150、バレル 4 を 200、バレル 5 を 250、バレル 6 を 280、バレル 7 ~ 8 を 300、バレル 9 ~ 13 を 270 とし、バレル 7 ~ 8 にかけてニーディングディスク R、R、N、L、バレル 10 にニーディングディスク L、R、バレル 12 にニーディングディスク L、N、バレル 13 に SME 2 個、ニーディングディスク R 2 個、を含むスクリュウパターンとして、バレル 7 の途中 ~ 13 にかけて熔融混練ゾーン (全バレル長さの 50%) とし、熔融混練ゾーンの途中 (バレル 9 およびバレル 11) に減圧 (-700 mmHg) ベント 2ヶ所を設けた。押出レート 600 kg/hr、ダイ出口樹脂温度 340 で 5 時間運転したが運転は安定していた。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結

果（押出運転中期のサンプリング品）を表 - 3 に示す。

【 0 0 4 8 】

[実施例 1 1]

ポリフェニレンエーテル粉体（R - 1）50部、無機質充填剤粉体（F - 1）20部とを、ZSK58二軸押出機（独国Werner & Pfleiderer社製、バレル数13、バレル長さ3220mm）の駆動部側供給口（トップフィード口）から押出機に供給し、ポリフェニレンエーテル粉体（R - 1）10部、官能基を有する熱可塑性エラストマー（H - 1）とを、バレル5から押出機にサイドフィードし、芳香族リン酸エステル系難燃剤（D - 1）15部を押出機のバレル12から液添して、スクリュー回転数520rpmで押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル1を水冷、バレル2～3を150、バレル4を200、バレル5を250、バレル6を280、バレル7～8を300、バレル9～13を270とし、バレル7～8にかけてニーディングディスクR、R、N、L、バレル10にニーディングディスクL、R、バレル12にニーディングディスクL、N、バレル13にSME2個、ニーディングディスクR2個、を含むスクリューパターンとして、バレル7の途中～13にかけて熔融混練ゾーン（全バレル長さの50%）とし、熔融混練ゾーンの途中（バレル9およびバレル11）に減圧（-700mmHg）ベント2ヶ所を設けた。押出レート400kg/hr、ダイ出口樹脂温度340で5時間運転したが運転は安定していた。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果（押出運転中期のサンプリング品）を表 - 3 に示す。

【 0 0 4 9 】

[実施例 1 2]

ポリフェニレンエーテル粉体（R - 1）42部、無機質充填剤粉体（F - 1）30部、官能基を有する熱可塑性エラストマー（H - 1）8部とを、ZSK58MC二軸押出機（独国Werner & Pfleiderer社製、バレル数13、バレル長さ3220mm）の駆動部側供給口（トップフィード口）から押出機に供給し、芳香族リン酸エステル系難燃剤（D - 1）20部を押出機のバレル12から液添して、スクリュー回転数550rpmで押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル1を水冷、バレル2～6を100、バレル7を200、バレル8を250、バレル9を280、バレル10を300、バレル11～13を270とし、バレル10にニーディングディスクR、R、N、L、バレル10にニーディングディスクL、バレル12にニーディングディスクL、バレル13にSME2個、ニーディングディスクR2個、を含むスクリューパターンとして、バレル10～13にかけて熔融混練ゾーン（全バレル長さの30%）とし、熔融混練ゾーンの途中（バレル11）に減圧（-700mmHg）ベント1ヶ所を設けた。押出レート400kg/hr、ダイ出口樹脂温度351で10時間運転したが運転は安定していた。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果（押出運転中期のサンプリング品）を表 - 3 に示す。

【 0 0 5 0 】

[実施例 1 3]

ポリフェニレンエーテル粉体（R - 1）15部、無機質充填剤粉体（F - 1）30部、官能基を有する熱可塑性エラストマー（H - 1）8部とを、ZSK58MC二軸押出機（独国Werner & Pfleiderer社製、バレル数13、バレル長さ3220mm）の駆動部側供給口（トップフィード口）から押出機に供給し、スチレン系樹脂（P - 1）47部をバレル10からサイドフィードして、スクリュー回転数520rpmで押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル1を水冷、バレル2～4を100、バレル5を200、バレル6を250、バレル7を280、バレル8を300、バレル9～13を270とし、バレル8にニーディングディスクR、R、N、L、バレル11にニーディングディスクL、バレル12にニーディングディスクL、バレル13にSME2個、ニーディングディスクR2個、を含むスクリューパターンとして、バレル8～13にかけて熔融混練ゾーン（全バレル長さの45%）とし、熔融混練ゾーンの途中（バレル11）に減圧（-700mmHg）ベント1ヶ所を設けた。押出レート550kg/hr

、ダイ出口樹脂温度 340 で 10 時間運転したが運転は安定していた。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果（押出運転中期のサンプリング品）を表 - 4 に示す。

【0051】

[実施例 14]

ポリフェニレンエーテル粉体（R - 1）40 部、無機質充填剤粉体（F - 1）20 部、官能基を有する熱可塑性エラストマー（H - 1）5 部とを、TEM75SS 二軸押出機（東芝機械社製、バレル数 13、バレル長さ 3910 mm）の駆動部側供給口（トップフィード口）から押出機に供給し、ポリフェニレンエーテル粉体（R - 1）20 部を押出機のバレル 5 からサイドフィードし、芳香族リン酸エステル系難燃剤（D - 1）15 部を押出機のバレル 12 から液添して、スクリュウ回転数 500 rpm で押出した。その際、シリ
ンダー設定温度を、バレル 1 を水冷、バレル 2 ~ 6 を 150 、バレル 7 を 250 、バ
レル 8 を 280 、バレル 9 ~ 13 を 300 とし、バレル 10 にニーディングディスク
R、R、N、L、バレル 12 にニーディングディスク L、バレル 13 にニーディングディ
スク R 2 個、を含むスクリュウパターンとして、バレル 10 ~ 13 にかけて熔融混練ゾ
ン（全バレル長さの 28%）とし、熔融混練ゾーンの途中（バレル 11）に減圧（- 70
0 mmHg）ベント 1ヶ所を設けた。押出レート 1000 kg/hr、ダイ出口樹脂温度
345 で 10 時間運転したが運転は安定していた。得られた樹脂組成物の生産性および
物性試験結果（押出運転中期のサンプリング品）を表 - 4 に示す。

【0052】

[実施例 15]

ポリフェニレンエーテル粉体（R - 1）60 部、無機質充填剤粉体（F - 1）15 部、官能基を有する熱可塑性エラストマー（H - 1）6 部とを、TEM75SS 二軸押出機（東芝機械社製、バレル数 13、バレル長さ 3910 mm）の駆動部側供給口（トップフィード口）から押出機に供給し、芳香族リン酸エステル系難燃剤（D - 1）19 部を押出機のバレル 12 から液添してスクリュウ回転数 450 rpm で押出した。その際、シリ
ンダー設定温度を、バレル 1 を水冷、バレル 2 ~ 5 を 100 、バレル 6 を 200 、バレル
7 を 250 、バレル 8 を 280 、バレル 9 を 300 、バレル 9 ~ 13 を 270 と
し、バレル 9 にニーディングディスク R、R、N、L、バレル 10 にニーディングディ
スク L、バレル 12 にニーディングディスク L、バレル 13 にニーディングディスク R 2 個
、を含むスクリュウパターンとして、バレル 9 ~ 13 にかけて熔融混練ゾーン（全バレル
長さの 35%）とし、熔融混練ゾーンの途中（バレル 11）に減圧（- 700 mmHg）
ベント 1ヶ所を設けた。押出レート 1000 kg/hr、ダイ出口樹脂温度 336 で 1
0 時間運転したが運転は安定していた。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果
（押出運転中期のサンプリング品）を表 - 4 に示す。

【0053】

[実施例 16]

実施例 15 の無機質充填剤粉体（F - 1）15 部を、全量無機質充填剤粉体（F - 2）に置き換えた以外は、実施例 15 の操作を繰り返した。押出レート 1000 kg/hr、ダイ出口樹脂温度 333 で 10 時間運転したが運転は安定していた。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果（押出運転中期のサンプリング品）を表 - 4 に示す。

【0054】

[比較例 1]

ポリフェニレンエーテル粉体（R - 1）60 部、無機質充填剤粉体（F - 1）20 部、官能基を有する熱可塑性エラストマー（H - 1）5 部とを、ZSK25 二軸押出機（独
Werner & Pfleiderer 社製、バレル数 10、バレル長さ 1080 mm）の
駆動部側供給口（トップフィード口）から押出機に供給し、芳香族リン酸エステル系難燃
剤（D - 1）15 部を押出機バレル 9 から液添して、スクリュウ回転数 480 rpm で押
出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル 1 を水冷、バレル 2 ~ 10 を 300 に
設定して、バレル 3 ~ 4 にかけてニーディングディスク R、R、L、N、L、バレル 8 に
ニーディングディスク R、R、N、L、バレル 10 にニーディングディスク R、R、N、

10

20

30

40

50

L、R、Rを含むスクリーパターンとして、バレル3の途中～10にかけて熔融混練ゾーン（全バレル長さの74%）とし、熔融混練ゾーンの途中（バレル5）に減圧（-700 mmHg）ベント1ヶ所を設けた。押出レート10 kg/hで運転を開始した。開始から20分程でトップフィード原料供給口の原料塊詰りによるフィードアップ発生。再スタート後も運転は安定せず、その後も駆動部側原料供給口の原料フィードアップ等による押出機の停止や吐出のバラツキによるストランド切れが高頻度で見られた。停止と再スタートを繰り返して2時間程運転したが安定生産は困難な状態であった。また再スタート後の押出樹脂には樹脂のヤケによる微細な黒点が多数、目視で確認された。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果（押出運転中期のサンプリング品）を表-5に示す。

【0055】

10

[比較例2]

押出機のスクリー回転数を250 rpmに変更した以外は、比較例1を繰り返した。運転開始から20分程でトップフィード原料供給口の原料塊詰りによるフィードアップ発生。比較例1と同様、安定生産は困難な状態であった。また再スタート後の押出樹脂には樹脂のヤケによる黒点が多数、目視で確認された。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果（押出運転中期のサンプリング品）を表-5に示す。

【0056】

[比較例3]

比較例2の、運転開始から最初のフィードアップ発生による停止までの、運転初期のサンプリング品の物性試験結果を表-5に示す。

20

[比較例4]

ポリフェニレンエーテル粉体（R-1）60部と、芳香族リン酸エステル系難燃剤（D-1）15部とを、予め二軸押出機を用いて熔融混練して得たコンセントレート（ペレット）を75部、無機質充填剤粉体（F-1）20部、官能基を有する熱可塑性エラストマー（H-1）5部とを比較例1で用いた二軸押出機を用いて、芳香族リン酸エステル系難燃剤の液添を行わずに、全量、駆動部側供給口（トップフィード口）から押出機に供給する以外は、比較例1の操作を繰り返した。押出レート30 kg/h、ダイ出口樹脂温度320 で2時間程運転した。運転自体は安定していたが、押出樹脂には無機質充填剤粉体の分散不良による凝集物によるブツが多数見られた。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果（押出運転中期のサンプリング品）を表-5に示す。

30

【0057】

[比較例5]

ポリフェニレンエーテル粉体（R-1）60部、無機質充填剤粉体（F-1）20部、官能基を有する熱可塑性エラストマー（H-1）5部とを、比較例1で用いた二軸押出機の駆動部側供給口（トップフィード口）から押出機に供給し、芳香族リン酸エステル系難燃剤（D-1）15部を押出機バレル9から液添して、スクリー回転数480 rpmで押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル1を水冷、バレル2～3を280、バレル4～5を300、バレル6～10を270 に設定して、バレル5にニーディングディスクR、R、N、L、バレル7にニーディングディスクL、バレル9にニーディングディスクL、バレル10にニーディングディスクR、R、SME2個を含むスクリーパターンとして、バレル5～10にかけて熔融混練ゾーン（全バレル長さの60%）とし、熔融混練ゾーンの途中（バレル8）に減圧（-700 mmHg）ベント1ヶ所を設けた。押出レート10 kg/hで運転を開始した。開始から1時間程でトップフィード原料供給口の原料塊詰りによるフィードアップ発生。開始から7時間程度運転したが、再スタート後も幾度か駆動部側原料供給口の原料フィードアップによる押出機の停止が見られ、安定生産は困難な状態であった。また再スタート後の押出樹脂には樹脂のヤケによる微細な黒点が目視で確認された。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果（押出運転中期のサンプリング品）を表-6に示す。

40

【0058】

[比較例6]

50

ポリフェニレンエーテル粉体 (R - 1) 50 部、無機質充填剤粉体 (F - 1) 20 部、官能基を有する熱可塑性エラストマー (H - 1) 5 部とを、比較例 1 で用いた二軸押出機の駆動部側供給口 (トップフィード口) から押出機に供給し、ポリフェニレンエーテル粉体 (R - 1) 10 部を、押出機バレル 6 からサイドフィードし、芳香族リン酸エステル系難燃剤 (D - 1) 15 部を押出機バレル 9 から液添して、スクリュウ回転数 480 rpm で押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル 1 を水冷、バレル 2 ~ 3 を 280、バレル 4 ~ 5 を 300、バレル 6 ~ 10 を 270 に設定して、バレル 5 にニーディングディスク R、R、N、L、バレル 7 にニーディングディスク L、バレル 9 にニーディングディスク L、バレル 10 にニーディングディスク R、R、SME 2 個を含むスクリュウパターンとして、バレル 5 ~ 10 にかけて熔融混練ゾーン (全バレル長さの 60%) とし、熔融混練ゾーンの途中 (バレル 8) に減圧 (-700 mmHg) ベント 1 ヶ所を設けた。押出レート 10 kg/hr で運転を開始した。開始から 1 時間程でトップフィード原料供給口の原料塊詰りによるフィードアップ発生。更に、再スタートから 30 分後にサイドフィーダーへの原材料の逆流によるフィードアップが発生した。開始から 7 時間程度運転したが、再スタート後も幾度か同様なトラブルによる押出機の停止が見られ、安定生産は困難な状態であった。また再スタート後の押出樹脂には微細な黒点が目視で確認された。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果 (押出運転中期のサンプリング品) を表 - 6 に示す。

【0059】

[比較例 7]

ポリフェニレンエーテル粉体 (R - 1) 60 部、無機質充填剤粉体 (F - 1) 18 部、官能基を有する熱可塑性エラストマー (H - 1) 6 部とを、ZSK 58 二軸押出機 (独国 Werner & Pfleiderer 社製、バレル数 13、バレル長さ 3220 mm) の駆動部側供給口 (トップフィード口) から押出機に供給し、芳香族リン酸エステル系難燃剤 (D - 1) 16 部を押出機バレル 12 から液添して、スクリュウ回転数 500 rpm で押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル 1 を水冷、バレル 2 を 270、バレル 3 ~ 4 を 280、バレル 5 を 300、バレル 6 ~ 13 を 270 に設定して、バレル 4 にニーディングディスク R、R、N、L、バレル 8 にニーディングディスク R、L、バレル 12 にニーディングディスク L、N、バレル 13 にニーディングディスク R、SME 3 個を含むスクリュウパターンとして、バレル 4 ~ 13 にかけて熔融混練ゾーン (全バレル長さの 77%) とし、熔融混練ゾーンの途中 (バレル 9 およびバレル 11) に減圧 (-700 mmHg) ベント 2 ヶ所を設けた。押出レート 200 kg/hr で運転を開始した。開始から 15 分程でトップフィード原料供給口のフィードアップ発生。押出レートを 150 kg/hr に下げて再スタート。その後も、同様なトラブルによる押出機停止や、吐出の不安定によるストランド切れ等が頻繁に見られ、安定生産は困難な状態であった。停止と再スタートを繰り返して 2 時間程度運転を行った。また再スタート後の押出樹脂には微細な黒点が目視で確認された。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果 (押出運転中期のサンプリング品) を表 - 6 に示す。

【0060】

[比較例 8]

ポリフェニレンエーテル粉体 (R - 1) 60 部、無機質充填剤粉体 (F - 1) 18 部、官能基を有する熱可塑性エラストマー (H - 1) 6 部とを、ZSK 58 二軸押出機 (独国 Werner & Pfleiderer 社製、バレル数 13、バレル長さ 3220 mm) の駆動部側供給口 (トップフィード口) から押出機に供給し、芳香族リン酸エステル系難燃剤 (D - 1) 16 部を押出機バレル 12 から液添して、スクリュウ回転数 550 rpm で押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル 1 を水冷、バレル 2 を 150、バレル 3 を 200、バレル 4 を 250、バレル 5 を 280、バレル 6 を 300、バレル 7 ~ 13 を 270 に設定して、バレル 6 にニーディングディスク R、R、N、L、バレル 8 にニーディングディスク R、L、バレル 10 にニーディングディスク L、バレル 12 にニーディングディスク L、バレル 13 にニーディングディスク R、R、SME 2 個を含

むスクリーパターンとして、バレル6～13にかけて溶融混練ゾーン（全バレル長さの60%）とし、溶融混練ゾーンの途中（バレル9およびバレル11）に減圧（-700 mmHg）ベント2ヶ所を設けた。押出レート350 kg/hで運転を開始した。開始から1時間程でトップフィード原料供給口のフィードアップ発生。再スタート後も、同様なトラブルによる押出機停止や、吐出の不安定によるストランド切れ等が頻繁に見られ、安定生産は困難な状態であった。幾度か再スタートと停止を繰り返して5時間程度運転を行った。また再スタート後の押出樹脂には微細な黒点が目視で確認された。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果（押出運転中期のサンプリング品）を表-6に示す。

【0061】

[比較例9]

押出機のスクリー回転数を550 rpmから350 rpmに落した以外は、比較例8の操作を繰り返した。押出レート200 kg/hで運転を開始した。開始から90分程度で、トップフィード原料供給口のフィードアップが発生。再スタート後も、同様なトラブルによる押出機停止や、吐出の不安定によるストランド切れ等が頻繁に見られ、安定生産は困難な状態であった。幾度か再スタートと停止を繰り返して3時間程度運転を行った。

押出樹脂（ストランド）には混練不十分かと思われるザラツキがあった。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果（押出運転中期のサンプリング品）を表-7に示す。

【0062】

[比較例10]

ポリフェニレンエーテル粉体（R-1）50部、無機質充填剤粉体（F-1）18部、官能基を有する熱可塑性エラストマー（H-1）6部とを、ZSK58二軸押出機（独国Werner & Pfleiderer社製、バレル数13、バレル長さ3220 mm）の駆動部側供給口（トップフィード口）から押出機に供給し、ポリフェニレンエーテル粉体10部を押出機バレル5からサイドフィードし、芳香族リン酸エステル系難燃剤（D-1）16部を押出機バレル12から液添して、スクリー回転数550 rpmで押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル1を水冷、バレル2を150、バレル3を200、バレル4を250、バレル5を280、バレル6を300、バレル7～13を270に設定して、バレル6にニーディングディスクR、R、N、L、バレル8にニーディングディスクR、L、バレル10にニーディングディスクL、バレル12にニーディングディスクL、バレル13にニーディングディスクR、R、SME2個を含むスクリーパターンとして、バレル6～13にかけて溶融混練ゾーン（全バレル長さの60%）とし、溶融混練ゾーンの途中（バレル9およびバレル11）に減圧（-700 mmHg）ベント2ヶ所を設けた。押出レート350 kg/hで運転を開始した。開始から15分程でサイドフィーダーの原料供給口に原料の逆流によるフィードアップ発生により運転を停止した。再スタート後も、同様なトラブルによる押出機停止や、吐出の不安定によるストランド切れ等が頻繁に見られ、安定生産は困難な状態であった。幾度か再スタートと停止を繰り返して2時間程度運転を行った。また再スタート後の押出樹脂には微細な黒点が目視で確認された。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果（押出運転中期のサンプリング品）を表-7に示す。

【0063】

[比較例11]

ポリフェニレンエーテル粉体（R-1）60部、無機質充填剤粉体（F-1）15部、官能基を有する熱可塑性エラストマー（H-1）6部とを、TEM75SS二軸押出機（東芝機械社製、バレル数13、バレル長さ3910 mm）の駆動部側供給口（トップフィード口）から押出機に供給し、芳香族リン酸エステル系難燃剤（D-1）19部を押出機バレル12から液添して、スクリー回転数550 rpmで押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル1を水冷、バレル2を150、バレル3を200、バレル4を250、バレル5を280、バレル6を300、バレル7～13を270に設定して、バレル6にニーディングディスクR、R、N、L、バレル8にニーディングディスク

10

20

30

40

50

L、バレル10にニーディングディスクL、バレル12にニーディングディスクL、バレル13にニーディングディスクR、Rを含むスクリーパターンとして、バレル6～13にかけて溶融混練ゾーン（全バレル長さの60%）とし、溶融混練ゾーンの途中（バレル9およびバレル11）に減圧（-700mmHg）ベント2ヶ所を設けた。押出レート500kg/hrで運転を開始した。開始から45分程でトップフィード原料供給口に原料フィードアップ発生により運転を停止した。再スタート後も、同様なトラブルによる押出機停止や、吐出の不安定によるストランド切れ等が頻繁に見られ、安定生産は困難な状態であった。幾度か再スタートと停止を繰り返して5時間程度運転を行った。また再スタート後の押出樹脂には微細な黒点が目視で確認された。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果（押出運転中期のサンプリング品）を表-7に示す。

10

【0064】

[比較例12]

ポリフェニレンエーテル粉体（R-1）50部、無機質充填剤粉体（F-1）15部、官能基を有する熱可塑性エラストマー（H-1）6部とを、TEM75SS二軸押出機（東芝機械社製、バレル数13、バレル長さ3910mm）の駆動部側供給口（トップフィード口）から押出機に供給し、ポリフェニレンエーテル粉体（R-1）10部を押出機バレル4からサイドフィードし、芳香族リン酸エステル系難燃剤（D-1）19部を押出機バレル12から液添して、スクリー回転数550rpmで押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル1を水冷、バレル2を150、バレル3を200、バレル4を250、バレル5を280、バレル6を300、バレル7～13を270に設定して、バレル6にニーディングディスクR、R、N、L、バレル8にニーディングディスクL、バレル10にニーディングディスクL、バレル12にニーディングディスクL、バレル13にニーディングディスクR、Rを含むスクリーパターンとして、バレル6～13にかけて溶融混練ゾーン（全バレル長さの60%）とし、溶融混練ゾーンの途中（バレル9およびバレル11）に減圧（-700mmHg）ベント2ヶ所を設けた。押出レート500kg/hrで運転を開始した。開始から25分程でサイドフィーダーの原料供給口に原料フィードアップ発生により運転を停止した。再スタート後も、同様なトラブルによる押出機停止や、吐出の不安定によるストランド切れ等が頻繁に見られ、安定生産は困難な状態であった。幾度か再スタートと停止を繰り返して2時間程度運転を行った。また再スタート後の押出樹脂には微細な黒点が目視で確認された。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果（押出運転中期のサンプリング品）を表-7に示す。

20

30

【0065】

[比較例13]

ポリフェニレンエーテル粉体（R-1）60部、無機質充填剤粉体（F-1）15部、官能基を有する熱可塑性エラストマー（H-1）6部とを、TEM75SS二軸押出機（東芝機械社製、バレル数13、バレル長さ3910mm）の駆動部側供給口（トップフィード口）から押出機に供給し、芳香族リン酸エステル系難燃剤（D-1）19部を押出機バレル12から液添して、スクリー回転数550rpmで押出した。その際、シリンダー設定温度を、バレル1を水冷、バレル2～4を100、バレル5を150、バレル6～8を200、バレル9を250、バレル10を280、バレル11を300、バレル12～13を270に設定して、バレル11～12にニーディングディスクR、R、N、L、バレル13にニーディングディスクR、R、Nを含むスクリーパターンとして、バレル11～13にかけて溶融混練ゾーン（全バレル長さの18%）とし、溶融混練ゾーンの途中（バレル9およびバレル11）に減圧（-700mmHg）ベント2ヶ所を設けた。押出レート1000kg/hrで運転を開始した。押出しストランドに混練不十分と思われるブツが見られた。押出レートを1000kg/hrから850kg/hrに下げて更に、スクリー回転数を550rpmから650rpmに上げて運転を継続したが、ブツは改善されなかった。運転自体は安定しており、ダイ出口押出樹脂温度332で3時間ほど運転を行なった。得られた樹脂組成物の生産性および物性試験結果（押出運転中期のサンプリング品）を表-8に示す。

40

50

【 0 0 6 6 】

【 表 1 】

表-1

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4
引張伸度 %	9 0	1 1 2	9 8	9 9
ダート J	4 2	4 2	4 9	4 7
ノッチ付き I Z O D J / m	7 2	8 7	1 1 7	1 1 5
曲げ強度 MP a	1 1 5	8 2	1 1 0	1 1 2
曲げ弾性率 MP a	3 6 0 0	2 6 2 0	3 3 7 0	3 4 0 0
グロス	8 4	8 5	9 0	8 8
成形品外観	○	○	○	○
燃焼性 (U L 9 4)	V - 1	—	V - 0	V - 0
燃焼滴下防止性 (5 V A)	合格		合格	合格
押出レート kg / h r	4 0	3 0	4 0 0	5 0 0
生産安定性	○	○	○	○

(— は測定せず)

【 0 0 6 7 】

【 表 2 】

表-2

	実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8
引張伸度 %	9 2	7 4	7 5	1 2 5
ダート J	4 5	3 8	4 5	5 3
ノッチ付き I Z O D J / m	1 1 5	6 9	1 1 3	1 2 3
曲げ強度 MP a	1 1 4	1 1 1	1 1 1	1 1 2
曲げ弾性率 MP a	3 4 5 0	3 3 9 0	3 3 9 0	3 4 2 0
グロス	8 6	9 0	8 8	9 4
成形品外観	○	○	○	○
燃焼性 (U L 9 4)	V - 0	V - 1	V - 0	V - 0
燃焼滴下防止性 (5 V A)	合格	合格	合格	合格
押出レート kg / h r	6 5 0	4 0 0	3 5 0	6 0 0
生産安定性	○	○	○	○

【 0 0 6 8 】

【表 3】

表-3

	実施例 9	実施例 10	実施例 11	実施例 12
引張伸度 %	110	116	89	42
ダート J	44	49	42	36
ノッチ付き IZOD J/m	87	94	77	66
曲げ強度 MPa	124	127	129	128
曲げ弾性率 MPa	3640	3710	3760	3620
グロス	87	87	85	72
成形品外観	○	○	○	○
燃焼性 (UL94)	V-1	V-1	V-1	V-1
燃焼滴下防止性 (5VA)	合格	合格	合格	合格
押出レート kg/hr	500	600	400	400
生産安定性	○	○	○	○

10

【0069】

【表 4】

表-4

	実施例 13	実施例 14	実施例 15	実施例 16
引張伸度 %	43	94	166	143
ダート J	27	38	48	50
ノッチ付き IZOD J/m	52	63	100	152
曲げ強度 MPa	68	110	98	106
曲げ弾性率 MPa	2560	3470	3190	3220
グロス	56	82	90	98
成形品外観	○	○	○	○
燃焼性 (UL94)	—	V-1	V-0	V-0
燃焼滴下防止性 (5VA)		合格	合格	合格
押出レート kg/hr	550	1000	1000	1000
生産安定性	○	○	○	○

20

30

(— は測定せず)

【0070】

【表 5】

表-5

	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4
引張伸度 %	1 2	1 6	9 2	4
ダート J	2 2	3 8	4 5	4
ノッチ付き I ZOD J/m	3 4	6 0	1 1 2	3 2
曲げ強度 MP a	1 2 7	1 2 2	1 1 8	1 2 3
曲げ弾性率 MP a	3 7 6 0	3 6 6 0	3 4 3 0	3 6 5 0
グロス	7 7	8 7	9 0	6 2
成形品外観	×(黒点あり)	×(黒点あり)	○	×(ブツあり)
燃焼性 (UL 9 4)	HB	HB	V-1	HB
燃焼滴下防止性 (5 V A)	失格	失格	合格	失格
押出レート kg/hr	1 0	1 0	1 0	3 0
生産安定性	×	×	×	○

10

【 0 0 7 1 】

【表 6】

表-6

	比較例 5	比較例 6	比較例 7	比較例 8
引張伸度 %	2 8	2 3	2 6	6 2
ダート J	3 6	3 9	3 3	2 8
ノッチ付き I ZOD J/m	5 1	6 4	5 3	4 0
曲げ強度 MP a	1 2 7	1 2 7	1 1 5	1 2 6
曲げ弾性率 MP a	3 6 5 0	3 5 7 0	3 5 5 0	3 6 3 0
グロス	8 5	8 8	7 8	8 2
成形品外観	×(黒点あり)	×(黒点あり)	×(黒点あり)	×(黒点あり)
燃焼性 (UL 9 4)	HB	HB	HB	HB
燃焼滴下防止性 (5 V A)	失格	失格	—	—
押出レート kg/hr	1 0	1 0	1 5 0 ~ 2 0 0	3 5 0
生産安定性	×	×	×	×

20

30

(— は測定せず)

【 0 0 7 2 】

【表 7】

表-7

		比較例 9	比較例 10	比較例 11	比較例 12
引張伸度	%	18	20	37	21
ダート	J	29	24	35	34
ノッチ付き IZOD	J/m	56	55	89	86
曲げ強度	MPa	128	125	100	97
曲げ弾性率	MPa	3720	3600	3220	3180
グロス		78	76	82	80
成形品外観		×(ブツあり)	×(黒点あり)	×(黒点あり)	×(黒点あり)
燃焼性 (UL94)		HB	HB	—	—
押出レート	kg/hr	200	350	350	500
生産安定性		×	×	×	×

(— は測定せず)

【0073】

【表 8】

表-8

		比較例 13
引張伸度	%	8
ダート	J	5
ノッチ付き IZOD	J/m	35
曲げ強度	MPa	115
曲げ弾性率	MPa	3210
グロス		74
成形品外観		×(未熔融物あり)
押出レート	kg/hr	850
生産安定性		○

【産業上の利用可能性】

【0074】

本発明の強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の製造方法によって、成形体の表面外観、耐熱性、剛性、耐衝撃性等に優れた強化ポリフェニレンエーテル系樹脂組成物の量産性および生産安定性は著しく改善され、量産機で従来にない高い押出レートで長時間安定的に製造することが可能となった。なおかつ良好な機械物性を保持しており、家電OA機器、事務機、情報・通信機器、電気電子部品、建材、日用品、玩具、ゲーム機器、雑貨類、自動車部品等に広く用いることができる。例えば、テレビハウジング、テレビシャーシ、デフレクションヨーク等のテレビ部品、ACアダプター、電源ボックス、エアコン部品、オーディオ部品、照明カバー、TVゲーム機部品、モニターハウジング、モニターシャーシ、ノート型PCハウジング、ノート型PCバッテリー、MDシャーシ類、DVDシャーシ類、車載用CDチェンジャートレイ、車載用DVDデッキフレーム、モーターカバー、ギアボックス、液晶プロジェクターハウジング、PDAハウジング、アンテナカバー、プリンターハウジング、プリンターシャーシ、プリンター光学箱、トナーカートリッジ、インクタンク、給紙用トレイ、スキャナーハウジング、スキャナーフレーム、携帯電話ハウジング、携帯電話バッテリー等の家電OA機器や電気電子部品、浴槽部材、シャワーヘッド、ポンプハウジング、空気清浄機部品、サイジング、台所用品、パイプ類、雨どい

、遮音壁、窓枠、サッシ、信号機部品、パチンコ部品、おもちゃ類、スポーツ用品、公園遊具、釣具、パイプ類、食品容器、化粧品容器、機械カバー等の建材、日用品、玩具、雑貨類、ターミナルアダプター、ルーター、モデム、ケーブルガイド、電線被覆材、デジタルカメラ周辺部品、フラッシュメモリーカード部品等の情報通信機器、通信部材、インストールメントパネル、センタークラスター、メータークラスター、グローブボックス、エアバック、デフロスターガーニッシュ、エアーダクト、ヒーターコントロール、ステアリングコラムカバー、ニーボルスター、エアーデフロスター、ドアトリム、サンシェード、ルーフライナー、リアパーセルシェルフ、ピラーカバー、ピラーインパクトアブソーバー、ボンネットエアスコープ、ラジエターグリル、ヘッドランプ部品、シグナルランプ部品、フォグランプ部品、バンパー、ヘッドランプフィニッシャー、ライセンスプレートフィニッシャー、フェンダー、ドアハンドル、ドアミラー、ドアパネル、リアクォーターパネル、リアコンビネーションランプ部品、テールゲートパネル、ラゲッジルームトリム、ホイールカバー、サイドリアカバー、センターキャップ、スポイラー、リアフィニッシャー、バッテリートレイ、バッテリーハウジング、フロントエンドモジュール等の自動車部品の用途等が挙げられる。

 フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I
C 0 8 K	3/00	(2006.01)
C 0 8 L	53/02	
B 2 9 K	71/00	(2006.01)
C 0 8 K	3/00	
B 2 9 K	71:00	

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

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

B 2 9 B	7 / 0 0 - 7 / 9 4
C 0 8 K	3 / 0 0 - 1 3 / 0 8
C 0 8 L	1 / 0 0 - 1 0 1 / 1 4
C 0 8 J	3 / 0 0 - 3 / 2 8、9 9 / 0 0