

(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
2025年1月2日(02.01.2025)



(10) 国際公開番号

WO 2025/004789 A1

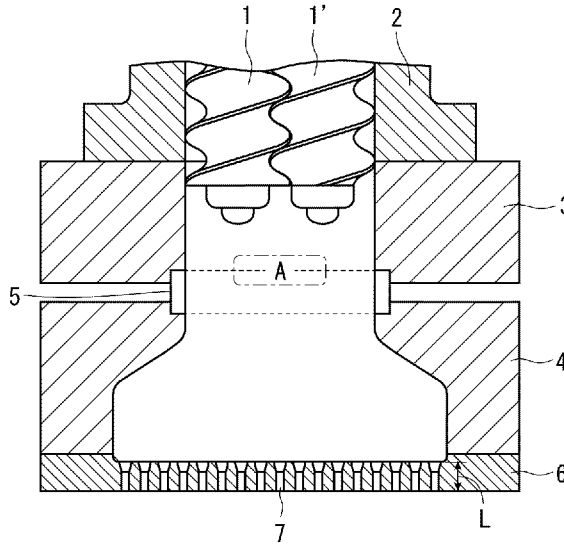
- (51) 国際特許分類:
B29B 9/06 (2006.01) *B29B 7/84* (2006.01)
B29B 7/46 (2006.01) *B29K 69/00* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2024/021180
- (22) 国際出願日: 2024年6月11日(11.06.2024)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2023-105976 2023年6月28日(28.06.2023) JP
- (71) 出願人: 三菱エンジニアリングプラスチック株式会社 (MITSUBISHI ENGINEERING-PLASTICS CORPORATION) [JP/

JP]; 〒1050021 東京都港区東新橋一丁目9番2号 Tokyo (JP).

- (72) 発明者: 田尻 敏之 (TAJIRI, Toshiyuki); 〒2540016 神奈川県平塚市東八幡五丁目6番2号 三菱エンジニアリングプラスチック株式会社内 Kanagawa (JP). 豊田 昭則 (TOYOTA, Akinori); 〒2540016 神奈川県平塚市東八幡五丁目6番2号 三菱エンジニアリングプラスチック株式会社内 Kanagawa (JP). 村松 裕可 (MURAMATSU, Yuka); 〒2540016 神奈川県平塚市東八幡五丁目6番2号 三菱エンジニアリングプラスチック株式会社内 Kanagawa (JP).

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING POLYCARBONATE RESIN COMPOSITION PELLET

(54) 発明の名称: ポリカーボネート樹脂組成物ペレットの製造方法



(57) Abstract: The present invention produces a polycarbonate resin composition pellet which has excellent transparency in a high-productivity manner which is more stable than before, by using a super-high-torque twin-screw extruder. This method for producing a polycarbonate resin composition pellet is characterized in that a polycarbonate resin particulate having a specific molecular weight and particle diameter is used as a starting material, kneading is performed with the screw shaft torque density in the range of 9.0-17.0 Nm/cm³ and the screw rotation speed in the range of 400-800 rpm, and under the conditions of the cube (cm³) of the discharge amount (kg/h) ÷ the screw rotation speed (rpm) ÷ the center-to-center distance of the two screw shafts being 0.015-0.026 kg/h/rpm/cm³, the unmelted ratio in the die holder is in the range of 2-30%, and a strand extruded from the die is

[続葉有]

(74) 代理人: 弁理士法人愛宕綜合特許事務所
(**ATAGO IP**); 〒1050003 東京都港区西新橋三丁目5番2号 西新橋第一法規ビル Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

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

添付公開書類:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

collected and made into pellets.

(57) 要約: 超高トルクの二軸押出機を用いて、高い生産性で、従来よりも安定的に、透明性に優れたポリカーボネート樹脂組成物ペレットを製造する。特定の分子量と粒径のポリカーボネート樹脂粉粒体を原料とし、スクリー軸トルク密度が $9.0 \sim 17.0 \text{ Nm/cm}^3$ 、スクリー回転数 $400 \sim 800 \text{ rpm}$ の範囲で、吐出量 (kg/h) $\div$ スクリー回転数 (rpm) $\div$ 二軸のスクリー軸の芯間距離の3乗 (cm^3) が $0.015 \sim 0.026 \text{ kg/h/rpm/cm}^3$ の条件で混練し、ダイホルダ内の未熔融率を $2 \sim 30\%$ の範囲とし、ダイから押し出したストランドを引き取りペレット化することを特徴とするポリカーボネート樹脂組成物ペレットの製造方法。

明 細 書

発明の名称：ポリカーボネート樹脂組成物ペレットの製造方法 技術分野

[0001] 本発明は、ポリカーボネート樹脂組成物ペレットの製造方法に関し、詳しくは、超高トルクの二軸押出機を用いて、高い生産性で、従来よりも安定的に、透明性に優れたポリカーボネート樹脂組成物ペレットを製造する方法に関する。

背景技術

[0002] ポリカーボネート樹脂は、耐衝撃性、耐熱性、電気絶縁性、寸法安定性等に優れ、これらの特性のバランスも良好であることから、各種の分野で広く使用されている。特にビスフェノール化合物を原料としたポリカーボネート樹脂は、透明性、耐衝撃性及び耐熱性に優れ、軽く割れにくいという利点があることから、ガラスの代替材料として、自動車部品や建材、またレンズ等の光学用部品に採用されている。また、近年では、スマートホン等の各種携帯端末、タブレット型パソコン、カーナビやカーオーディオ、携帯ゲーム機、デジタルカメラ等に利用されるディスプレイ装置のパネル用部材等の成形品として大いに利用されている。

[0003] これら成形品を成形するためには、ポリカーボネート樹脂原料に必要なより各種添加剤等を配合したポリカーボネート樹脂組成物ペレット（ペレットとは一度溶融した後に賦形した円筒状や球状、楕円球状のものをいう。）が用いられる。

ポリカーボネート樹脂組成物ペレットは通常、二軸押出機により製造され、二軸押出機は生産能力の向上のため、長年、可塑化能力、混練能力の向上が希求されてきた。そして、最近になり最大トルク密度が 18 Nm/cm^3 に達するような超高トルクの押出機（例えば、日本製鋼所社製「TEXα11」、芝浦機械社製「TEM-SX」等）が開発され、これまでにない高トルク領域での生産が可能となった。また、高トルク化によりスクリュウ回転

数を従来以上に上げることが可能となり、高エネルギー領域（高トルク密度且つ高スクリー回転数）での運転が可能となり、それにより、従来では考えられなかった高い吐出量を得ることが可能となってきた。

[0004] 押出機のトルク密度については、特許文献1に、ガラス繊維強化熱可塑性樹脂組成物ペレットの生産性を従来よりも高めるとともに、製造されたペレット中にモノフィラメントの集合体（未解繊ガラス繊維束）が残存する確率を非常に低くすることを目的として、円弧状の切り欠きが形成されたフライト部を有する一条の逆送りスクリーエレメントを使用する発明が記載されている。そして、その際の条件を、（i）逆送りスクリーエレメントにおけるスクリーのトルクを噛み合うスクリー間の芯間距離の3乗で除した値であるトルク密度を 11 Nm/cm^3 以上とし、且つ、（ii）吐出量 Q をスクリー回転数 N_s で除した Q/N_s をスクリー間の芯間距離の3乗で除した Q/N_s 密度を $0.013\text{ kg/h/rpm/cm}^3$ とするとの規定が記載されている。

[0005] しかしながら、特許文献1にはトルク密度については、段落[0063]に「トルク密度が $11\text{ (Nm/cm}^3\text{)}$ 以上になることで、押出機内の材料の充填率が高まり、エネルギー密度が小さくなり、回転数を、従来より高くしても温度上昇が低いという効果がある。また、好ましいトルク密度の範囲は 13 Nm/cm^3 以上 18 Nm/cm^3 以下である。」と単に記載されているだけで、その実施例にはトルク密度がいくつであったかは一切記載されていない。また、特許文献1の実施例では二軸押出機として「TEX44 α 11（日本製鋼所社製）、スクリーエレメントのシリンダー直径 D が 0.047 m 」を使用しているが、当該TEX44 α 11の許容軸トルク密度は 13.1 Nm/cm^3 であり、これ以上ではスクリー軸やギアボックスが損傷し、軸が折れるので、通常、80%以下のトルク密度で運転されるため、トルク密度は高くてもせいぜい 10.5 Nm/cm^3 である。

[0006] 前記したような超高トルク密度の二軸押出機は特許文献1の出願当時には未だ世の中には出現していなかった。そのため特許文献1が具体的に開示し

ているのは従来の低トルク押出機での条件であって、本発明が対象とする超高トルク運転の際に発現する各種の課題についての記載や示唆はなく、ましてその解決策を提供するものではない。

スクリューに沿ったトルク密度は押出機の根本が最も高く、このトルクは樹脂の溶融混練、搬送等に使われ、スクリュー先端に行くほど小さくなり、先端では0となる。特許文献1ではガラス繊維混練部の逆送りスクリューエレメントでのトルク密度の記載があるが、この部分でもスクリュー軸トルク密度はかなり小さく、 3 Nm/cm^3 以下と考えられる。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特開2012-213997公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] 通常、二軸押出では混練部で樹脂は完全に溶融し、真空ベント部で脱揮され、ダイからストランドとして吐出される。然しながら、高エネルギー領域でのコンパウンディングでは樹脂温度が上がりすぎる。それにより、色調が悪化する。

本発明の目的（課題）は、このような課題に鑑みてなされたもので、超高トルク二軸押出機を用いた高エネルギー領域において、樹脂温度を下げ、色調YIの悪化を防ぐポリカーボネート樹脂ペレットを製造する方法を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明者は、上記課題を達成すべく、樹脂温度を下げる方法を鋭意検討した結果、粘度平均分子量が $11000\sim 27000$ で光散乱湿式法によるメジアン径 D_{50} が $400\sim 1500\mu\text{m}$ のポリカーボネート樹脂粉粒体を原料とし、スクリュー軸トルク密度は $9.0\sim 17.0\text{ Nm/cm}^3$ の範囲、スクリュー回転数は $400\sim 800\text{ rpm}$ の範囲で、吐出量 $(\text{kg/h})\div$ スク

リユー回転数（rpm）÷二軸のスクリーウの軸の芯間距離の3乗（ cm^3 ）が0.015～0.026 $\text{kg}/\text{h}/\text{rpm}/\text{cm}^3$ の条件で混練し、未熔融率を2～30%の範囲とすることにより、すなわち混練後に意図して未熔融部を2%～30%残すことにより、樹脂温度を大幅に下げられ、色調YIの増加を抑えることが可能なことを見出した。この効果は以下のように説明できる。

メジアン径 D_{50} が400～1500 μm というようなポリカーボネート樹脂粉粒体のガラス転移温度は140℃ほどである。また界面法で製造されるポリカーボネート樹脂は部分的に結晶構造を有するといわれているが、その融点は200℃程であり、融解する際に30 J/g程の融解熱を必要するといわれている。つまり、半熔融の状態では周囲の熔融ポリカーボネートに比べ、かなり温度が低く、溶ける際に周囲から多くの熱を吸収する。要するにお湯の中に氷を入れると、急速にお湯の温度が低下するようなものである。この未熔融部が少ないと周囲の熔融ポリカーボネートの温度を下げるできない。また未熔融部分が多すぎるとダイやメッシュ部で未熔融が堆積し、樹脂が流れず、ベントアップを引き起こす。未熔融率が2～30%であれば、フランジより先のブレーカープレートでの剪断、ダイホルダでの滞留、その先のダイ穴での強い縮流と剪断により、未熔融部は熔融する。あるいは微小に残った未熔融部ではストランドが切れることはない。

本発明は、以下のポリカーボネート樹脂組成物ペレットの製造方法に関する。

[0010] 1. 粘度平均分子量が11000～27000、光散乱湿式法によるメジアン径 D_{50} が400～1500 μm のポリカーボネート樹脂粉粒体を原料とし、二軸押出機によりポリカーボネート樹脂組成物ペレットを製造する方法であって、

1本のスクリーウ根本に掛かるスクリーウ軸トルク密度が9.0～17.0 Nm/cm^3 の範囲、スクリーウ回転数は400～800 rpmの範囲で、吐出量（ kg/h ）÷スクリーウ回転数（rpm）÷二軸のスクリーウ軸の

芯間距離の3乗 (cm^3) が $0.015 \sim 0.026 \text{ kg} / \text{h} / \text{rpm} / \text{cm}^3$ の条件で混練し、ダイホルダ手前のフランジ部での未熔融率を $2 \sim 30\%$ の範囲とし、ダイから押し出したストランドを引き取りペレット化することを特徴とするポリカーボネート樹脂組成物ペレットの製造方法。

2. 混練部の下流側にスクリー軸方向で長さが $2.0 \sim 6.0 D$ (D はシリンダー径) の開口部を有するベントを使用し真空脱揮し、ベント開口部の最下流位置からスクリー先端までの距離を $5.0 \sim 10.0 D$ とする上記1に記載の製造方法。

3. ダイから出た直後のストランドの温度が $260 \sim 330^\circ\text{C}$ の範囲である上記1または2に記載の製造方法。

4. 得られたポリカーボネート樹脂組成物ペレットから、JIS K 7361により透過光で求めた全光線透過率が 50% 以上である上記1～3のいずれかに記載の製造方法。

発明の効果

[0011] 本発明の製造方法によれば、高トルク密度で高スクリー回転数の高エネルギー領域で二軸押出機によるポリカーボネート樹脂組成物ペレットを、高い生産性（高い吐出量）で安定的に製造することが可能となる。樹脂温度を下げることができるので、色調（YI）の悪化を防ぐことができ、透明性に優れたポリカーボネート樹脂材料を得ることができる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]二軸押出機におけるダイ部近傍の一例を示す断面図である。

[図2]実施例で使用した二軸押出機のスクリー構成を示す横断面図である。

[図3]実施例において未溶解率を測定する際のダイホルダ開放時の熔融樹脂の写真である。

[図4]図3の熔融樹脂の未熔融率を測定するための画像である。

[図5]図4において、輝度の高い部分の抽出画像である。

[図6]図5の画像から、未熔融部の面積率を測定するために二値化した画像である。

発明を実施するための形態

[0013] 以下、本発明について実施形態および例示物を示して詳細に説明するが、本発明は当該実施形態及び例示物等に限定して解釈されるものではない。

[0014] 本発明のポリカーボネート樹脂組成物ペレットの製造方法で用いる原料は、粘度平均分子量（ M_v ）が11000～27000、光散乱湿式法によるメジアン径 D_{50} が400～1500 μm のポリカーボネート樹脂粉粒体である。

なお、ポリカーボネート樹脂粉粒体としては、例えばフレーク状、グラニュール状、パウダー状などを含む粉粒体形状のものをいう。

[0015] 粘度平均分子量（ M_v ）が11000未満では、得られるポリカーボネート樹脂組成物の強度が弱く、また27000より大きいと、樹脂温度が高くなり色調が悪化する。粘度平均分子量（ M_v ）は、好ましくは12000以上であり、より好ましくは13000以上であり、好ましくは26000以下、より好ましくは25000以下、さらには24000以下が好ましい。

[0016] ポリカーボネート樹脂粉粒体のメジアン径 D_{50} が、400 μm 未満では樹脂温度が高くなりすぎ色調が悪化する。また1500 μm より大きいと未溶融が多くなり、ベントアップを起こしやすくなる。メジアン径 D_{50} は好ましくは450 μm 以上、より好ましくは500 μm 以上であり、好ましくは1400 μm 以下、より好ましくは1300 μm 以下、さらに好ましくは1200 μm 以下が好ましい。

[0017] ポリカーボネート樹脂粉粒体の粒度測定はレーザ回折式粒子径分布測定装置によって求める D_{50} 値であり、具体的には、Malvern Panalytical社製、レーザ回折式粒子径分布測定装置「マスターサイザー3000」を使用し、光散乱湿式法にて、使用分散媒は精製水とし、分散剤として界面活性剤を使用して測定される値である。測定範囲は0.01～3500 μm である。

[0018] また、ポリカーボネート樹脂粉粒体の粒径は、JIS K0069（乾式ふるい分け試験方法）に準拠した方法で測定した粒径分布で表すこともでき

、この方法によるメジアン径 D_{50} から求めることもできる。この方法による粒径は、 $400 \sim 1500 \mu\text{m}$ 、好ましくは $450 \sim 1400 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $500 \sim 1300 \mu\text{m}$ の範囲内にある粉粒体である。

[0019] このようなメジアン径 D_{50} と粘度平均分子量を満たすポリカーボネート樹脂粉粒体は市販品の中から、適宜選択して採用することもできる。

[0020] 上記ポリカーボネート樹脂粉粒体は、原料として使用するポリカーボネート樹脂原料の100質量%であってもよいし、使用するポリカーボネート樹脂原料の50質量%以上が上記粘度平均分子量と粒径を満たせばよい。例えば、実施例にもあるように、ポリカーボネート樹脂粉粒体と、これより粒径が大きい、通常のポリカーボネート樹脂ペレットと組み合わせて原料とすることも好ましい。ポリカーボネート樹脂粉粒体の量は、50質量%超であることが好ましく、より好ましくは60質量%超、中でも70質量%超、80質量%超、85質量%超であることが好ましく、さらに90質量%超、95質量%超が特に好ましい。

[0021] [ポリカーボネート樹脂]

ポリカーボネート樹脂としては、芳香族ポリカーボネート樹脂、脂肪族ポリカーボネート樹脂、芳香族-脂肪族ポリカーボネート樹脂が挙げられるが、好ましくは、芳香族ポリカーボネート樹脂であり、具体的には、芳香族ジヒドロキシ化合物をホスゲン又は炭酸のジエステルと反応させることによって得られる芳香族ポリカーボネート重合体又は共重合体が用いられる。

[0022] 芳香族ジヒドロキシ化合物としては、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン(即ち、ビスフェノールA)、2, 2-ビス(3-メチル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン(即ち、ビスフェノールC)、テトラメチルビスフェノールA、 α , α' -ビス(4-ヒドロキシフェニル)-p-ジイソプロピルベンゼン、ハイドロキノン、レゾルシノール、4, 4'-ジヒドロキシジフェニル等が挙げられる。

[0023] ポリカーボネート樹脂の好ましい例としては、ジヒドロキシ化合物としてビスフェノールA又はビスフェノールAと他の芳香族ジヒドロキシ化合物と

を併用したポリカーボネート樹脂、ビスフェノールC又はビスフェノールCと他の芳香族ジヒドロキシ化合物（特にビスフェノールA）とを併用したポリカーボネート樹脂が挙げられる。

[0024] ポリカーボネート樹脂は、1種の繰り返し単位からなる単独重合体であってもよく、2種以上の繰り返し単位を有する共重合体であってもよい。このとき共重合体は、ランダム共重合体、ブロック共重合体等、種々の共重合形態を選択することができる。

[0025] ポリカーボネート樹脂の粘度平均分子量（ M_v ）は、ウベローデ粘度計を用いて、25℃にて、ポリカーボネート樹脂のメチレンクロライド溶液の粘度を測定し極限粘度（ $[\eta]$ ）を求め、次のSchneilの粘度式から算出される値である。

$$[\eta] = 1.23 \times 10^{-4} M_v^{0.83}$$

[0026] ポリカーボネート樹脂の製造方法は、特に限定されるものではなく、ホスゲン法（界面重合法）及び溶融法（エステル交換法）のいずれの方法で製造したポリカーボネート樹脂も使用することができる。界面重合法によるポリカーボネート樹脂は、色調YIが小さいものを得やすいこと、また、重合製造時にはフレーク状であるので、本発明において好適である。色調YIは後記する方法で2.0未満であることが好ましい。

[0027] ポリカーボネート樹脂は、バージン原料だけでなく、使用済みの製品からリサイクルされたポリカーボネート樹脂（いわゆるマテリアルリサイクルされたポリカーボネート樹脂）であってもよく、バージン原料とリサイクル樹脂の両方を含有することも好ましく、リサイクルポリカーボネート樹脂からなることでもよい。リサイクルポリカーボネート樹脂を使用する場合、ポリカーボネート樹脂中のリサイクルポリカーボネート樹脂の割合は40質量%以上、50質量%以上、60質量%以上、80質量%以上が好ましく、100質量%であってもよい。

[0028] 本発明の製造方法では二軸押出機が使用される。二軸押出機は各種のものを使用することが出来、スクリュウの回転方式は、同方向回転式でも、逆方

向回転式でもよいが、特に、同方向噛み合い型二軸押出機が好ましい。また、二軸押出機には、減圧或いは大気に開放されたベント口を設けることが好ましい。

[0029] 本発明では、最高トルク密度が好ましくは $16 \sim 20 \text{ Nm/cm}^3$ というような超高トルクの二軸押出機を使用し、二軸押出機のスクリー根本の1本のスクリー軸トルク密度が $9.0 \sim 17.0 \text{ Nm/cm}^3$ の条件で行う。

スクリー軸トルク密度とは、スクリー1本当りを駆動するのに必要なトルク Nm （スクリーの根本部分に掛かるトルク）をスクリー軸の芯間距離の3乗で除した値として定義され、単位は Nm/cm^3 となる。大きさの異なる押出機を用いた押出であっても、このトルク密度の値が同じであれば、単位体積当たりに樹脂に掛かるトルクは同じとなる。スクリーを駆動するモーターがトルク（ Nm ）を発生し、スクリー軸に伝わり、ポリカーボネート樹脂の搬送、溶融、の仕事をする。このトルクはスクリー軸の根本に掛かるトルクの強さを表す。そして、トルクは、スクリーの先端に向けて進むにつれその値は減少し、スクリーの先端でのトルクは 0 Nm となる。

押出機のスクリーを駆動するモーターが発生するトルクは、押出機の制御盤にスクリー許容トルク 100% に対する%単位で表示される。例えば、TEX44 α 111の場合、トルク 100% はトルク密度 17.9 Nm/cm^3 に相当するので、運転時の表示%からトルク密度を算出することができる。また、一般のVVVFインバータ制御では定トルク領域では電流値（A）を定格電流で割った値がトルク%に一致する。TEX44 α 111の最大トルク（2本のスクリー軸の根本に掛かるトルクの合計）は 2077 Nm であり、2本のスクリー軸間は 3.87 cm なので、スクリー1本の最大トルク密度（根本部）は 17.9 Nm/cm^3 となる。

[0030] ポリカーボネート樹脂粉粒体等の原料は、押出機の根本にある供給口から供給され、供給・搬送・予熱部において、供給、搬送、予熱される。次いで、混練のための混練部で溶融混練され、搬送される。

[0031] スクリュー構成は、押出機根本から原料送り方向に向けて、供給・搬送・予熱部はフルフライトの搬送スクリュー、混練部、溶融後の搬送のためのフルフライトスクリューで構成され、混練部の後のフルフライトスクリューの部分には好ましくは真空ベントが設けられている。この真空ベントで溶融樹脂中の揮発分、つまり、水分、残存溶媒、添加剤の揮発成分等が取り除かれる。

[0032] 混練部は、その構成にとくに制約はないが、Rニーディングディスク、Nニーディングディスク、Lニーディングディスク、Lスクリュー、シールリング、ミキシングスクリュー、またはロータスクリューのうちの2種以上を組み合わせた、長さが2.5D～8.0D（Dはシリンダー径）の構成からなることが好ましい。この混練部は総計の長さが2.5D～8.0Dであれば2か所以上に分けて設置しても構わない。

[0033] Rニーディングディスクは、順送りニーディングディスク（以下Rと称することもある）とも呼ばれ、通常羽根が2枚以上でその羽根のねじれ角度 θ は10度から75度である。このように羽根を所定角度ずらして設置することにより、樹脂を送ることができ、かつ強い剪断力を加えることができる。

Nニーディングディスクは、直交ニーディングディスク（以下Nと称することもある）とも呼ばれ、通常羽根が2枚以上で、かつ羽根のねじれ角度 θ が75度から105度である。羽根が略90度ずらして設置されているために樹脂を送る力は殆どないが混練力は強い。

Lニーディングディスクは、逆送りニーディングディスク（以下Lと称することもある）とも呼ばれ、通常羽根が2枚以上でその羽根のねじれ角度 θ は-10度から-75度である。Lニーディングディスクは送られてくる樹脂を堰き止めたり、送られた樹脂を送り戻す方向に働く昇圧能力のあるエレメントである。混練を促進するエレメントの下流側に設けることにより樹脂を堰き止め、強力な混練効果を発揮させるものである。

Lスクリューは、逆送りスクリューともよばれ、通常の送りスクリューに対して、反対の方向に螺旋しているスクリューであり、樹脂を堰き止めたり

、送られた樹脂を戻す方向に昇圧能力のあるエレメントである。Lニーディングディスクと同じく、混練を促進するエレメントの下流側に設けることにより樹脂を堰き止め、強力な混練効果を発揮させるものである。

[0034] 上記の羽根は通常楕円状であり、楕円状の2つの頂点に平坦部が施されている。この羽根のことをディスクとも称し、各ニーディングディスクは通常、ディスク3〜7枚により構成されている。このディスクは略三角状で3つの頂点をもつ場合もあり、これは三条ニーディングディスクともいう。同じく、R、N、Lのタイプがある。こちらも同様に使用することができる。ニーディングディスクの中には頂点をスクリー軸方向にツイストしたツイストニーディングディスク等もあり、同様な混練効果が得られる。

メジアン径 D_{50} が $400 \sim 1500 \mu m$ のポリカーボネート樹脂粉粒体を効率的に溶融するにはツイストニーディングディスクが好適に用いられる。

[0035] シールリングは、スクリーに嵌合されるリング状のものであって、流路の70〜90%程度を閉塞し樹脂の流れを滞留させ、これにより樹脂圧力を高めることができる。Lニーディングと同じく、混練を促進するエレメントの下流側に設けることにより樹脂を堰き止め、強力な混練効果を発揮できる。

ミキシングスクリーは、スクリーフライトの山の部分を削ってできたものであり、一条あるいは二条の送り、あるいは逆送りスクリーであって、強い剪断分散力を有するエレメントである。順送り切欠き型ミキシングスクリー、逆送り切欠き型ミキシングスクリーがある。

ロータスクリーは、楕円形状（2翼構造）もしくは三角形のロータ翼を形成しているもので、ロータとバレル内壁面間の隙間（チップクリアランス）により強力なせん断力を発現できる。

[0036] 混練部は上記したものうちの2種以上を組み合わせるのが好ましいが、Rニーディングディスク、Nニーディングディスク、Lニーディングディスクを組み合わせたものがより好ましく、例えば、1つ或いは複数のRのあとに複数のNを配置して次にLを配置する構成、RRNNNNNL等や、RN

NNLの構成等が好ましい。

[0037] 本発明の方法では、スクリー軸に掛かるトルク密度が $9.0 \sim 17.0 \text{ Nm/cm}^3$ の高トルク、スクリー回転数を $400 \sim 800 \text{ rpm}$ の高スクリー回転で行い、従来にない高吐出量の押出が可能である。スクリー回転数が 400 rpm 未満、トルク密度が 9.0 Nm/cm^3 未満であると、高吐出は得られない。またトルク密度が 17.0 Nm/cm^3 を超えれば少しのトルク変動で、スクリー軸が破損する可能性がある。スクリー回転 800 rpm を超えれば、急速に樹脂温度が上昇し、YIの上昇、全光線透過率の悪化を招く。透明性に優れたポリカーボネート樹脂組成物ペレットを高吐出（高い生産性）で生産するにはスクリー回転数 $400 \sim 800 \text{ rpm}$ の範囲かつ、トルク密度が $9.0 \sim 17.0 \text{ Nm/cm}^3$ の範囲でなければならない。

[0038] そして、本発明では、スクリー軸トルク密度が $9.0 \sim 17.0 \text{ Nm/cm}^3$ の範囲、スクリー回転数を $400 \sim 800 \text{ rpm}$ の範囲で、 $[\text{吐出量 (kg/h)} \div \text{スクリー回転数 (rpm)} \div \text{二軸のスクリー軸の芯間距離の3乗 (cm}^3\text{)}]$ を $0.015 \sim 0.026 \text{ kg/h/rpm/cm}^3$ となる条件で混練する。特定のポリカーボネート樹脂原料を用い、それを前記の条件で混練して、混練後のポリカーボネート樹脂組成物の未熔融部を $2 \sim 30\%$ とし、それにより、樹脂温度を大幅に下げられ、色調YIの増加を抑えることが可能となる。

$[\text{吐出量 (kg/h)} \div \text{スクリー回転数 (rpm)} \div \text{二軸のスクリー軸の芯間距離の3乗 (cm}^3\text{)}]$ は、好ましくは $0.016 \sim 0.025 \text{ kg/h/rpm/cm}^3$ であり、より好ましくは $0.017 \sim 0.024 \text{ kg/h/rpm/cm}^3$ である。

[0039] スクリー軸トルク密度は $9.0 \sim 17.0 \text{ Nm/cm}^3$ であるが、好ましくは 9.5 Nm/cm^3 以上、より好ましくは 10.0 Nm/cm^3 以上、 10.5 Nm/cm^3 以上がさらに好ましく、好ましくは 16.5 Nm/cm^3 以下、より好ましくは 16.0 Nm/cm^3 以下である。

[0040] 二軸押出機は、図1に示すように、2本のスクリー1、1'が収容されたシリンダーの先端2にフランジ3を介してダイホルダ4を有する。ダイ部には、ブレーカープレート（あるいはリングプレート）5があり、ブレーカープレート5内にはスクリーンメッシュを装着して異物等がろ過により除去することもできる。スクリーンメッシュを使用しない場合は、リング状のプレートであるリングプレートを設置するのが普通である。ダイホルダ4はダイプレート、フランジ3はヒンジプレートとも呼ばれる。ダイホルダ4には、ダイ穴7を有するダイ6が組み込まれている。

[0041] 混練後のポリカーボネート樹脂組成物の未溶融部の割合（％）は、ダイホルダ4手前のフランジ3の内部Aの未溶融率として確認できる。具体的には、上記条件で溶融混練した後に、押出機のダイホルダ4をそのフランジ3のヒンジで開放して、フランジ3の内部Aでの溶融した樹脂を下に垂れ流す。そしてベントを真空に吸引すると溶融部が透明に、未溶融部が白濁して見える。この時に樹脂に力を加えず、フランジ3の内部から出てきた樹脂を自然落下させる。未溶融部は白濁部として残るために、回転している左右のスクリー1、1'全体が見られる視野内で、2本のスクリー先端の全面から写真撮影する。その写真の溶融部、未溶融部が全体画面になるように写真を拡大する。

[0042] 図3はその状況を示す写真であり、実施例において未溶解率を測定する際の開放時の溶融樹脂の写真である。フランジ3の横のヒンジでダイホルダ4を図3中、手前に引き、ダイホルダ4から下に垂れ流れている樹脂の、図3中、白い破線で囲まれた部分を写真撮影して、図4にあるような画像を得る。

この画像を画像解析して、透明な溶融部と未溶融の白濁部とから、未溶融部の視野面積率を求めて、未溶融率（未溶融視野面積率：単位は％）を測定する。

[0043] 画像解析は、具体的には以下のようにして行った。

汎用の画像解析計測システムである「WinROOF2018」（三谷商

事社製）を用いて、図4にあるようなモノクロ画像とし、濃度変換機能を用いて、閾値を濃度67～255として輝度の高い部分を抽出し（図5）、その後、閾値63～225で白濁部（未熔融部）を選択するように二値化し（図6）、これから未熔融部の視野面積率を測定した。

この未熔融視野面積率は、未熔融体積率「未熔融部体積／（熔融部体積＋未熔融部体積）」ではない。熔融部は透明であり、表層の未熔融部も内部の未熔融部も見える。従って、未熔融体積率より未熔融視野面積率は大きな値となるが、本発明では未熔融率として、上記した方法で測定する未熔融視野面積率を用いる。

[0044] 未熔融率は2～30％であるが、好ましくは3％以上、より好ましくは4％以上であり、好ましくは25％以下、より好ましくは20％以下である。未熔融部を2％～30％残すことにより、樹脂温度を大幅に下げられ、色調YIの増加を抑えることが可能となる。未熔融率が2％未満では、YIが悪く透明性も不十分となり、30％を超える状態になると、急速にベントアップが生じて生産不能に陥りやすくなる。

[0045] 上記した高エネルギー領域で安定的に透明性に優れたポリカーボネート樹脂組成物ペレットを生産するには、シリンダー構成も適正化することが好ましい。ポリカーボネート樹脂は高湿度の環境で0.2％程度の水分を吸水している。また、製造工程では溶媒を使用し、その後工程で乾燥してもその溶媒が僅かながら残存している。通常は残存溶媒は0.1％以下である。このような水分や残存溶媒は二軸押出機の中での高温・熔融状態で気化し、揮発成分は真空ベントから脱揮されるが、ポリカーボネート樹脂の処理量が多い程、この揮発成分は増大する。すると、真空ベント部で多量の揮発成分による上昇気流が発生し、熔融樹脂を押し上げるベントアップが発生し易い。

[0046] このベントアップを抑制するには、混練部の下流に、スクリー軸方向長さが2.0～6.0Dの長さの開口部を有するベントシリンダーを使用し脱揮することにより、さらに抑制可能となる。2.0Dより短いと、脱揮が不十分となり、真空ベントで上流からベントアップが発生しやすい。6.0D

より長いと、全体的に押出機が長くなり、滞留時間が長くなり、樹脂温度が上昇しY Iが上昇しやすい。また真空ベントの開口の幅（スクリーに直角の幅の長さ）は0.3～1.5Dであることが好ましい。0.3D未満だと、脱揮能力が低くベントアップしやすい。1.5D超にすると、スクリー上を回転する樹脂の遠心力により、ベントアップする可能性がある。

シリンダーは、場合によりバレルと呼ばれることもあり、押出機メーカーにより呼称は変わるが同じものであり、二軸スクリーが入る筒状のパーツをいう。シリンダー直径とはシリンダーに左右2個の円筒が交わるように空いた穴の交わらない部分の円筒の直径をいう。ここでいう1Dとはシリンダー直径のことをいう。

[0047] また、この高エネルギー領域、つまり高吐出領域ではベント開口部の最下流位置からスクリー先端までの距離を5.0～10.0Dとすることが好ましい。これより短いと、ダイ穴やメッシュスクリーンでの圧力により、スクリー先端の樹脂滞留部が真空ベントに到達し、ベントアップを起こしやすい。この場合のベントアップはスクリーの下流からベント部に樹脂が盛り上がってきてベントアップを起こす。これより長いと、滞留時間が長くなり、樹脂温度が上昇しY Iが上昇し易い。

[0048] そして、押し出されたポリカーボネート樹脂組成物のストランド状の熔融物は、好ましくは水中冷却してカッティングされペレットとなる。

押出ダイ6の形状は特に制限はなく、公知のものが使用される。吐出ノズルのダイ穴7の直径は、押し出し圧、所望するペレットの寸法にもよるが、通常2～5mm程度である。押し出された直後のポリカーボネート樹脂組成物の温度は、好ましくは260～330℃、より好ましくは265～325℃である。

[0049] 本発明の方法において、粘度平均分子量11000～27000、メジアン径 D_{50} が400～1500 μm のポリカーボネート樹脂粉粒体を、好ましくは50質量%以上含む原料を使用するが、他の樹脂や添加剤を配合してもよい。このような配合成分は、ポリカーボネート樹脂粉粒体と一緒にまたは

別フィードにて、二軸押出機の根本の供給口から供給されることができし、あるいは分割した混練部の途中から添加することもできる。

他の配合成分としては、他の樹脂、リン系難燃剤や有機金属塩系難燃剤などの難燃剤、フッ素樹脂（P T F E）等の難燃助剤、各種エラストマー（耐衝撃性改良剤）、離型剤、安定剤、フィラー（充填材）、強化剤、着色材（染顔料）、紫外線吸収剤、帯電防止剤、防曇剤、アンチブロッキング剤、流動性改良剤、可塑剤、分散剤、抗菌剤等が好ましく挙げられる。

[0050] あるいはポリカーボネート樹脂ペレットを使用してもよい。通常ペレットの大きさは長さが2 mmから5 mm、太さ（直径）2 mmから5 mmのものである。重量としては10 mgから40 mg／個の範囲である。

ポリカーボネート樹脂ペレットは、未使用のいわゆるバージンのペレットであってもよいし、リサイクル材（再生材）ペレットであってもよい。リサイクル材ペレットの原料としては、例えばC DやD V D等の光学ディスク、導光板、自動車窓ガラスや自動車ヘッドランプレンズ、風防などの車両透明部材、水ボトルなどの容器、メガネレンズ、防音壁やガラス窓、波板などの建築部材などが好ましく挙げられる。また、成形時の不適合品、スプルーまたはランナーなどから得られた粉砕品、これらを粉砕、洗浄、分離回収したものをリペレットしたものであってもよい。

[0051] 本発明の方法で得られたポリカーボネート樹脂組成物ペレットは、透明性に優れ、J I S K 7 3 6 1により透過光で求めた全光線透過率（2 mm厚）が好ましくは50%以上、より好ましくは60%以上、さらに好ましくは65%以上、特には70%以上である。

[0052] 本発明の方法で得られたポリカーボネート樹脂組成物ペレットから成形品を製造する方法は、特に限定されるものではなく、ポリカーボネート樹脂について一般に採用されている成形法、すなわち、一般的な射出成形法、超高速射出成形法、射出圧縮成形法、多色射出成形法、ガスアシスト射出成形法、断熱金型を用いた成形法、急速加熱冷却金型を用いた成形法、発泡成形（超臨界流体も含む）、インサート成形、I M C（インモールドコーティング

成形) 成形法、押出成形法、シート成形法、熱成形法、回転成形法、積層成形法、プレス成形法などを採用することができる。

[0053] 得られた成形品は、プリンターや複写機等のOA機器、電気機器、電子機器、自動車等の車両、住宅、建築、その他の部品として好適に使用でき、特に、プリンターや複写機等のOA機器、コンピューター、パソコン、各種携帯端末、バッテリー等の筐体等として好適に使用できる。

実施例

[0054] 以下、実施例を示して本発明について更に具体的に説明する。ただし、本発明は以下の実施例に限定して解釈されるものではない。

[0055] 実施例および比較例に使用した押出機としては、超高トルクの押出機である日本製鋼所社製二軸押出機「TEX44 α 111」を使用した。このスクリュー軸の芯間距離は3.87cm、最大トルクは(2本のスクリュー軸の根本に掛かるトルクの合計)は2077Nmである。

使用したスクリュー構成は、図2のシリンダー構成1~3に示すスクリュー構成とした。混練部はいずれもニーディングディスクRRNNLの5組構成とした。各ニーディングディスクとしては5枚羽根からなる、長さ0.936Dのものをを使用した。1Dはシリンダー直径47mmである。

[0056] シリンダー構成は、図2に示したシリンダー構成1~3である。

<シリンダー構成1>

シリンダー位置C1にホッパーシリンダー、C2~C11を中間シリンダー(開口のないシリンダー)、C12を開口部の長いベントシリンダー(開口長さ4D、開口幅1D)、C13~C14を中間シリンダーとした。

<シリンダー構成2>

C1をホッパーシリンダー、C2~C12を中間シリンダー、C13を開口部の長いベントシリンダー(開口長さ4D、開口幅1D)、C14を中間シリンダーとした。

<シリンダー構成3>

C1をホッパーシリンダー、C2~C12を中間シリンダー、C13を通

常のベントシリンダー（開口長さ1 D、開口幅1 D）、C 1 4～C 1 5を中間シリンダーとした。

[0057] ブレーカープレート5内には40メッシュのスクリーンメッシュ1枚を装着した。ダイ6は、穴径が4.5 mm ϕ 、17穴、ランド長さLが16 mmのものを使用した。

[0058] （実施例1～7、比較例1～2）

使用した原料は、粘度平均分子量 $M_v = 14200$ 、光散乱湿式法によるメジアン径 D_{50} が $574 \mu m$ のポリカーボネート樹脂粉粒体（三菱エンジニアリングプラスチックス社製「H-7000」）。以下、PC-1と称する。）を使用した。JIS K0069乾式ふるい分け法で測定した D_{50} は $620 \mu m$ であった。

[0059] 実施例1

シリンダー構成をシリンダー構成1とし、シリンダー設定温度はシリンダー位置C2を70℃、C3～C14を250℃、フランジ、ダイホルダを250℃とした。スクリー回転数を700回転とし、PC-1を処理量（吐出量に同じ。）850 kg/hでC1のホッパーシリンダーにフィードし、吐出量/回転数/軸間距離の3乗を $0.021 \text{ kg/h/rpm/cm}^3$ の条件で混練した。この時のモータートルク（制御盤に表示されるトルク%）からスクリー軸トルク密度を求めた。フランジ3のヒンジでダイホルダ4を開放し、真空に吸引すると、ダイホルダ4手前のフランジ3内で溶融した透明のポリカーボネート樹脂の中に、未溶融の白濁したポリカーボネート樹脂が見られた。この溶融及び未溶融のポリカーボネート樹脂は自然落下し、下方に設置した水を張ったバットに溜まるので、10 kg程溜まったらその都度取り除いた。開放したダイホルダからは2本のスクリー先端が見られ、その部分を写真撮影し、拡大し、前述した画像解析により未溶融視野面積率（以下、未溶融率（%）と称する）を求め、表1に記載した。

一旦フィードとスクリー回転を止め、ダイホルダを閉め、同条件で運転し、ストランドを押出、冷却水槽を用い、ストランドを引き取り、ペレタイ

ザーでカットし、ペレットを得た。

得られたペレットを射出成形し、全光線透過率とYIを求めた。ダイから出てきたストランドの温度を熱電対で温度測定し、樹脂温度とした。

[0060] 全光線透過率は、JIS K 7361に従って、上記樹脂組成物ペレットを100℃で5時間乾燥した後、射出成形機（日本製鋼所社製「J55-60H」）を用い、シリンダー設定温度280℃、金型温度70℃にて、スクリー回転数100rpm、射出速度25mm/sの条件下にて、3段型プレート（90mm×50mm×厚みがゲート側から3mm（長さ20mm）、2mm（長さ45mm）、1mm（長さ25mm））を射出成形し、得られた3段型プレートの厚み2mmの部分について、日本電色工業社製のNDH-2000型ヘイズメーターを用いて全光線透過率（単位：%）を測定した。

[0061] また、同じ個所を日本電色社製、SPECTROPHOTOMETER「SE6000」を用い、透過光でYIを測定した。

[0062] 以上の結果から、以下の3段階（○、△、×）の基準で、総合評価を行った。

○：2mm厚で測定のYIが2.0未満であり、生産上の問題もない。

△：2mm厚で測定のYIが2.0未満であるが、連続生産が困難。

×：2mm厚で測定のYIが2.0以上、または生産不能。

これらの結果を表1に記載した。

[0063] 実施例2～5

スクリー回転数、吐出量、及び吐出量／回転数／軸間距離の3乗を表1に記載した通りとした以外は実施例1と同様に実験した。

[0064] 実施例6

シリンダー構成をシリンダー構成2にした以外は、実施例1と同様に実験した。真空ベント口を確認すると、スクリー下流の領域から僅かながら徐々に樹脂が上がってくるベントアップが確認された。すぐさまストランドを引き、ペレタイザーでカットし、短時間でペレットをサンプリングした。長

時間の運転では真空ベント口が閉塞し、押出機を止める必要があった。スクリー下流の領域から徐々にベントアップしたことから、ダイ穴やメッシュでの樹脂圧により、スクリー先端に樹脂が滞留し、ベントアップしたと考えられる。

[0065] 実施例 7

シリンダー構成をシリンダー構成 3 にした以外は、実施例 1 と同様に実験した。真空ベント口を確認すると、スクリー上流の領域から僅かながら徐々に樹脂が上がってくるベントアップが確認された。すぐさまストランドを引き、ペレタイザーでカットし、短時間でペレットをサンプリングした。長時間の運転では真空ベント口が閉塞し、押出機を止める必要があった。スクリー上流の領域から徐々にベントアップしたことから、樹脂からの揮発成分が多く、通常の開口の狭いベントでは揮発成分の上昇速度が速く徐々にベントアップしたと考えられる。

[0066] 比較例 1

スクリー回転数、吐出量、及び吐出量／回転数／軸間距離の 3 乗を表 1 に記載の条件とした以外は、実施例 1 と同様に実験した。ダイホルダ開放時の未熔融率は 33% と高かった。ダイホルダを閉めて、ストランドを引き出すと、スクリーの上流から急速にベントアップが発生し、押出機を停止せざるを得なかった。ペレットのサンプリングの時間もなかった。未熔融部が多く、メッシュでそれらが閉塞し、スクリー先端の長い範囲で樹脂が滞留し、急速なベントアップが発生したと考えられる。

[0067] 比較例 2

スクリー回転数、吐出量、及び吐出量／回転数／軸間距離の 3 乗を表 1 に記載の条件とした以外は、実施例 1 と同様に実験した。ダイホルダ開放時に確認したが未熔融は見られなかった（未熔融率 0%）。ダイホルダを閉めストランドを引き取り、カットし、ペレットを得た。ストランドの温度は高く、射出成型片の YI も高かった。未熔融部がないことにより、容易に樹脂温度が上昇し、色調が悪化したと考えられる。

以上の結果を、以下の表 1 に示す。

[0068] [表1]

	実施例							比較例	
	1	2	3	4	5	6	7	1	2
シリンダー構成	1	1	1	1	1	2	3	1	1
吐出量(kg/h)	850	700	850	700	800	850	850	700	600
スクリー回転数(rpm)	700	600	600	550	750	700	700	450	750
吐出量/回転数 /軸間距離の3乗 (kg/h/rpm/cm ³)	0.021	0.020	0.024	0.022	0.018	0.021	0.021	0.027	0.014
未溶融率(%)	6	7	15	14	5	7	7	33	0
トルク(%)	69	68	81	74	65	69	69	85	51
トルク密度(Nm/cm ³)	12.4	12.2	14.5	13.2	11.6	12.4	12.4	15.2	9.1
樹脂温度(°C)	275	271	266	267	275	273	274	261	295
ベントアップ	無し	無し	無し	無し	無し	下流から 徐々に ベントアップ	上流から 徐々に ベントアップ	上流から 急速に ベントアップ 生産不能	無し
全光線透過率(%)	84	84	84	84	83	84	83	—	79
YI	0.7	0.6	0.6	0.6	0.8	0.8	0.9	—	3.1
総合評価	○	○	○	○	○	△	△	×	×

[0069] (実施例 8～14、比較例 3～4)

使用した原料は、粘度平均分子量 $M_v = 21500$ 、光散乱湿式法によるメジアン径 D_{50} が $1060\mu m$ のポリカーボネート樹脂粉粒体（三菱エンジニアリングプラスチックス社製「S-3000」）。以下、PC-2と称する。）を使用した。JIS K0069乾式ふるい分け法で測定した D_{50} は $1150\mu m$ であった。

実施例 8

実施例 1 において、ポリカーボネート PC-1 を PC-2 にした以外は実施例 1 と同様に実験した。

[0070] 実施例 9～12

スクリー回転数、吐出量、及び吐出量/回転数/軸間距離の3乗を表 2 に記載した通りとした以外は、実施例 8 と同様に実験した。

[0071] 実施例 13

シリンダー構成をシリンダー構成 2 にした以外は実施例 8 と同様に実験した。真空ベント口を確認すると、スクリー下流の領域から僅かながら徐々

に樹脂が上がってくるベントアップが確認された。すぐさまストランドを引き、ペレタイザーでカットし、短時間でペレットをサンプリングした。長時間の運転では真空ベント口が閉塞し、押出機を止める必要があった。スクリー下流の領域から徐々にベントアップしたことから、ダイ穴やメッシュでの樹脂圧により、スクリー先端に樹脂が滞留し、ベントアップしたと考えられる。

[0072] 実施例 14

シリンダー構成をシリンダー構成 3 にした以外は実施例 8 と同様に実験した。真空ベント口を確認すると、スクリー上流の領域から僅かながら徐々に樹脂が上がってくるベントアップが確認された。すぐさまストランドを引き、ペレタイザーでカットし、短時間でペレットをサンプリングした。長時間の運転では真空ベント口が閉塞し、押出機を止める必要があった。スクリー上流の領域から徐々にベントアップしたことから、樹脂からの揮発成分が多く、通常の開口の狭いベントでは揮発成分の上昇速度が速く徐々にベントアップしたと考えられる。

[0073] 比較例 3

スクリー回転数、吐出量、及び吐出量／回転数／軸間距離の 3 乗を表 2 に記載の条件とした以外は実施例 8 と同様に実験した。ダイホルダ開放時の未熔融率は 32% と高かった。ダイホルダを閉めて、ストランドを引き出すと、スクリーの上流から急速にベントアップが発生し、押出機を停止せざるを得なかった。ペレットのサンプリングの時間もなかった。未熔融部が多く、メッシュでそれらが閉塞し、スクリー先端の長い範囲で樹脂が滞留し、急速なベントアップが発生したと考えられる。

[0074] 比較例 4

スクリー回転数、吐出量、及び吐出量／回転数／軸間距離の 3 乗を表 2 に記載の条件とした以外は実施例 8 と同様に実験した。ダイホルダ開放時に確認したが未熔融は見られなかった（未熔融率 0%）。ダイホルダを閉めストランドを引き取り、カットし、ペレットを得た。ストランドの温度は高く

、射出成型片のYIも高かった。未熔融部がないことにより、容易に樹脂温度が上昇し、色調が悪化したと考えられる。

以上の結果を以下の表2に記載した。

[0075] [表2]

	実施例							比較例	
	8	9	10	11	12	13	14	3	4
シリンダー構成	1	1	1	1	1	2	3	1	1
吐出量(kg/h)	850	700	850	700	800	850	850	700	600
スクリー回転数(rpm)	700	600	600	550	750	700	700	450	750
吐出量/回転数 /軸間距離の3乗 (kg/h/rpm/cm ³)	0.021	0.020	0.024	0.022	0.018	0.021	0.021	0.027	0.014
未熔融率(%)	4	6	13	11	4	6	5	32	0
トルク(%)	74	73	83	79	70	74	74	84	56
トルク密度(Nm/cm ³)	13.2	13.1	14.9	14.1	12.5	13.2	13.2	15.0	10.0
樹脂温度(°C)	315	311	306	307	321	313	314	303	335
ベントアップ	無し	無し	無し	無し	無し	下流から 徐々に ベントアップ	上流から 徐々に ベントアップ	上流から 急速に ベントアップ 生産不能	無し
全光線透過率(%)	82	82	84	82	81	80	80	—	76
YI	1.3	1.2	1.1	1.1	1.6	1.5	1.8	—	4.2
総合評価	○	○	○	○	○	△	△	×	×

[0076] (実施例15～21、比較例5～7)

原料は、PC-2の80質量%に、粘度平均分子量が20800のポリカーボネート樹脂（三菱エンジニアリングプラスチックス社製「M70201R」）のペレット（ペレット径3mm、ペレット長さ3mm、平均重量20mg/個。以下、PC-3という。）を20質量%の割合で混合して使用した。

実施例15

ポリカーボネート樹脂PC-1を、PC-2を80質量%（680kg/h）、PC-3を20質量%（170kg/h）とした以外は実施例1と同様に実験した。

[0077] 実施例16～19

スクリー回転数、吐出量、及び吐出量/回転数/軸間距離の3乗を表3に記載した通りとした以外は、実施例15と同様に実験した。

[0078] 実施例 20

シリンダー構成をシリンダー構成 2 にした以外は実施例 15 と同様に実験した。真空ベント口を確認すると、スクリー下流の領域から僅かながら徐々に樹脂が上がってくるベントアップが確認された。すぐさまストランドを引き、ペレタイザーでカットし、短時間でペレットをサンプリングした。長時間の運転では真空ベント口が閉塞し、押出機を止める必要があった。スクリー下流の領域から徐々にベントアップしたことから、ダイ穴やメッシュでの樹脂圧により、スクリー先端に樹脂が滞留し、ベントアップしたと考えられる。

[0079] 実施例 21

シリンダー構成をシリンダー構成 3 にした以外は実施例 15 と同様に実験した。真空ベント口を確認すると、スクリー上流の領域から僅かながら徐々に樹脂が上がってくるベントアップが確認された。すぐさまストランドを引き、ペレタイザーでカットし、短時間でペレットをサンプリングした。長時間の運転では真空ベント口が閉塞し、押出機を止める必要があった。スクリー上流の領域から徐々にベントアップしたことから、樹脂からの揮発成分が多く、通常の開口の狭いベントでは揮発成分の上昇速度が速く徐々にベントアップしたと考えられる。

[0080] 比較例 5

スクリー回転数、吐出量、及び吐出量／回転数／軸間距離の 3 乗を表 3 に記載の条件とした以外は、実施例 15 と同様に実験した。ダイホルダ開放時の未熔融率は 36% と高かった。ダイホルダを閉めて、ストランドを引き出すと、スクリーの上流から急速にベントアップが発生し、押出機を停止せざるを得なかった。ペットのサンプリングの時間もなかった。未熔融部が多く、メッシュでそれらが閉塞し、スクリー先端の長い範囲で樹脂が滞留し、急速なベントアップが発生したと考えられる。

[0081] 比較例 6

スクリー回転数、吐出量、及び吐出量／回転数／軸間距離の 3 乗を表 3

に記載の条件とした以外は、実施例 15 と同様に実験した。ダイホルダ開放時に確認したが未溶融は見られなかった（未溶融率 0 %）。ダイホルダを閉めストランドを引き取り、カットし、ペレットを得た。ストランドの温度は高く、射出成型片の Y I も高かった。未溶融部がないことにより、容易に樹脂温度が上昇し、色調が悪化したと考えられる。

[0082] 比較例 7

原料として PC-3 を 100 質量%使用したこと以外は、実施例 19 と同様に実験した。ダイホルダ開放時の未溶融率は 35 % と高かった。ダイホルダを閉めて、ストランドを引き出すと、スクリーの上流から急速にベントアップが発生し、押出機を停止せざるを得なかった。ペットのサンプリングの時間もなかった。未溶融部が多く、メッシュでそれらが閉塞し、スクリー先端の長い範囲で樹脂が滞留し、急速なベントアップが発生したと考えられ、ペレットは溶融し難いことがわかる。

以上の結果を以下の表 3 に記載した。

[0083] [表3]

	実施例							比較例		
	15	16	17	18	19	20	21	5	6	7
シリンダー構成	1	1	1	1	1	2	3	1	1	1
吐出量(kg/h)	850	700	850	700	800	850	850	700	600	800
スクリー回転数(rpm)	700	600	600	550	750	700	700	450	750	750
吐出量/回転数 /軸間距離の3乗 (kg/h/rpm/cm ³)	0.021	0.020	0.024	0.022	0.018	0.021	0.021	0.027	0.014	0.018
未溶融率(%)	8	11	18	19	6	11	9	36	0	35
トルク(%)	72	71	82	78	68	72	71	81	54	67
トルク密度(Nm/cm ³)	12.9	12.7	14.7	14.0	12.2	12.9	12.7	14.5	9.7	12.0
樹脂温度(°C)	312	309	304	305	319	312	312	300	332	307
ベントアップ	無し	無し	無し	無し	無し	下流から 徐々に ベントアップ	上流から 徐々に ベントアップ	上流から 急速に ベントアップ 生産不能	無し	上流から 急速に ベントアップ 生産不能
全光線透過率(%)	81	80	81	81	79	79	79	-	74	-
YI	1.6	1.7	1.5	1.5	1.9	1.8	1.8	-	4.8	-
総合評価	○	○	○	○	○	△	△	×	×	×

産業上の利用可能性

[0084] 本発明の方法によれば、超高トルクの二軸押出機を用いて、高い生産性で

、従来よりも安定的に、透明性に優れたポリカーボネート樹脂組成物ペレットを製造できるので、産業上の利用性は非常に高い。

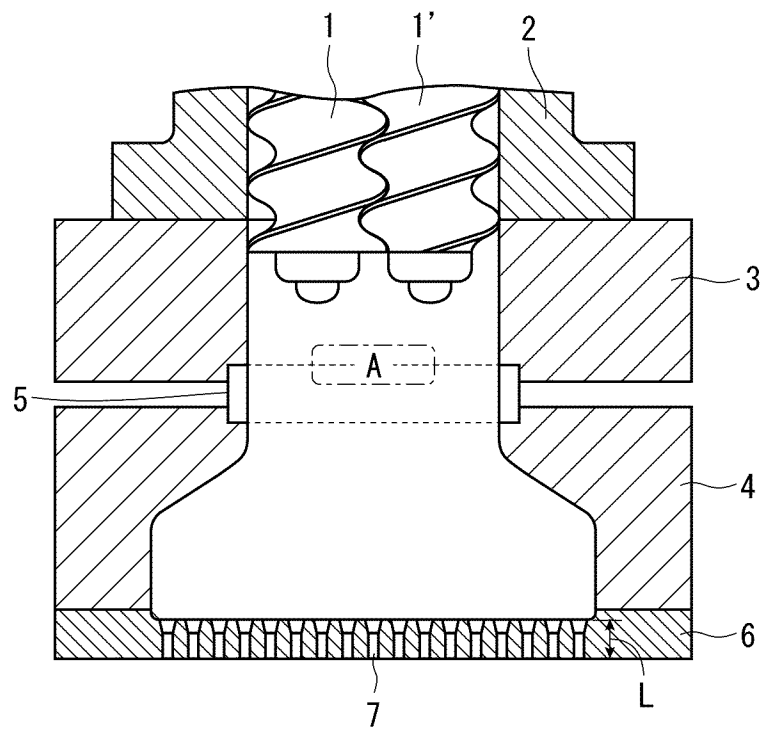
符号の説明

- [0085] 1、1' : スクリュー
2 : 押出機のシリンダー先端部
3 : フランジ
4 : ダイホルダ
5 : ブレーカープレート
6 : ダイ
7 : ダイ穴
A : フランジ3内の樹脂の未熔融率測定部

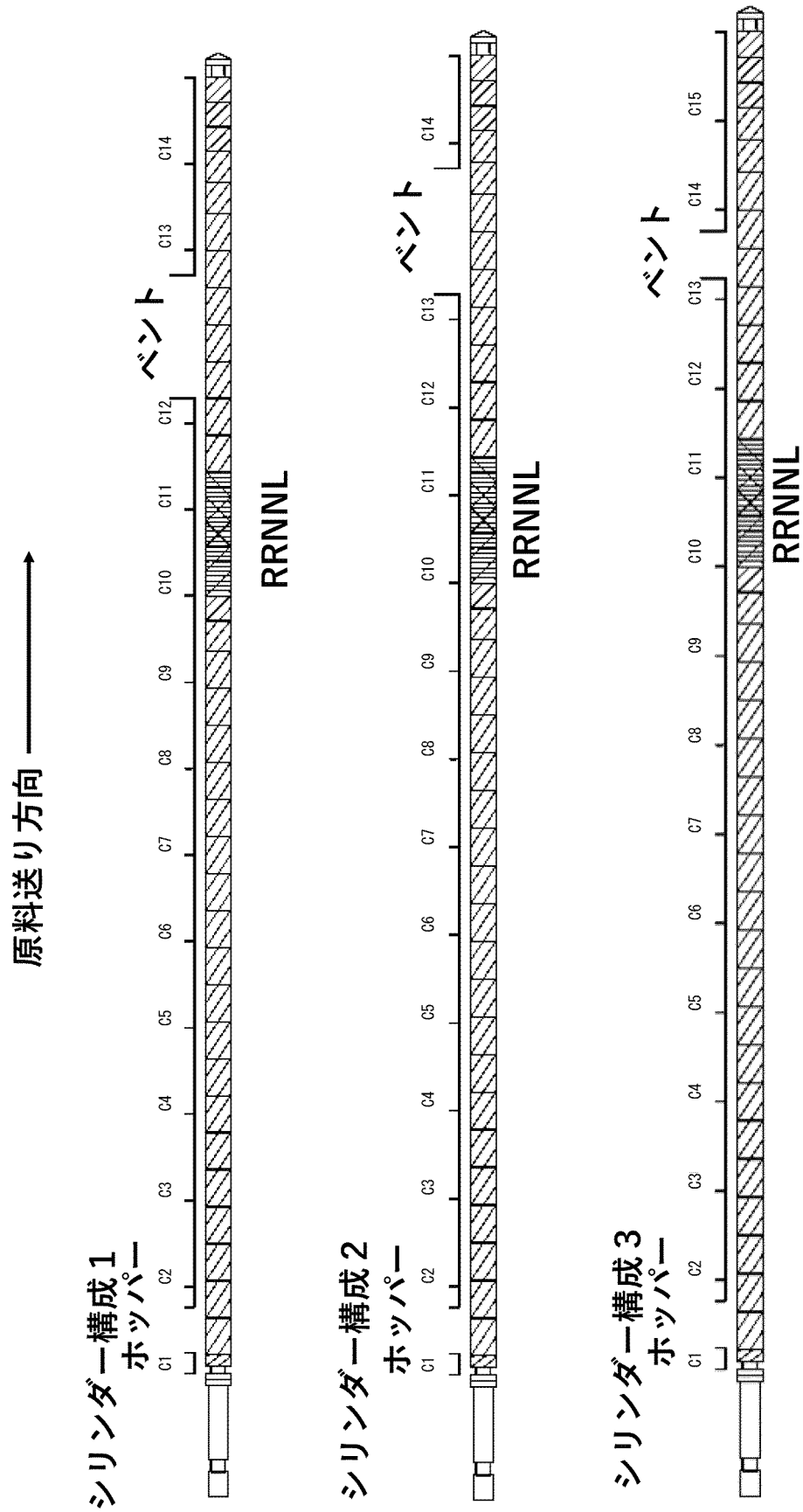
請求の範囲

- [請求項1] 粘度平均分子量が $11000 \sim 27000$ 、光散乱湿式法によるメジアン径 D_{50} が $400 \sim 1500 \mu m$ のポリカーボネート樹脂粉粒体を原料とし、二軸押出機によりポリカーボネート樹脂組成物ペレットを製造する方法であって、
- 1本のスクリー根本に掛かるスクリー軸トルク密度が $9.0 \sim 17.0 \text{ Nm/cm}^3$ の範囲、スクリー回転数は $400 \sim 800 \text{ rpm}$ の範囲で、吐出量 $(\text{kg/h}) \div \text{スクリー回転数}(\text{rpm}) \div \text{二軸のスクリー軸の芯間距離の3乗}(\text{cm}^3)$ が $0.015 \sim 0.026 \text{ kg/h/rpm/cm}^3$ の条件で混練し、ダイホルダ手前のフランジ部での未熔融率を $2 \sim 30\%$ の範囲とし、ダイから押し出したストランドを引き取りペレット化することを特徴とするポリカーボネート樹脂組成物ペレットの製造方法。
- [請求項2] 混練部の下流側にスクリー軸方向で長さが $2.0 \sim 6.0 \text{ D}$ (D はシリンダー径)の開口部を有するベントを使用し真空脱揮し、ベント開口部の最下流位置からスクリー先端までの距離を $5.0 \sim 10.0 \text{ D}$ とする請求項1に記載の製造方法。
- [請求項3] ダイから出た直後のストランドの温度が $260 \sim 330^\circ\text{C}$ の範囲である請求項1または2に記載の製造方法。
- [請求項4] 得られたポリカーボネート樹脂組成物ペレットから、JIS K7361により透過光で求めた全光線透過率が 50% 以上である請求項1～3のいずれかに記載の製造方法。

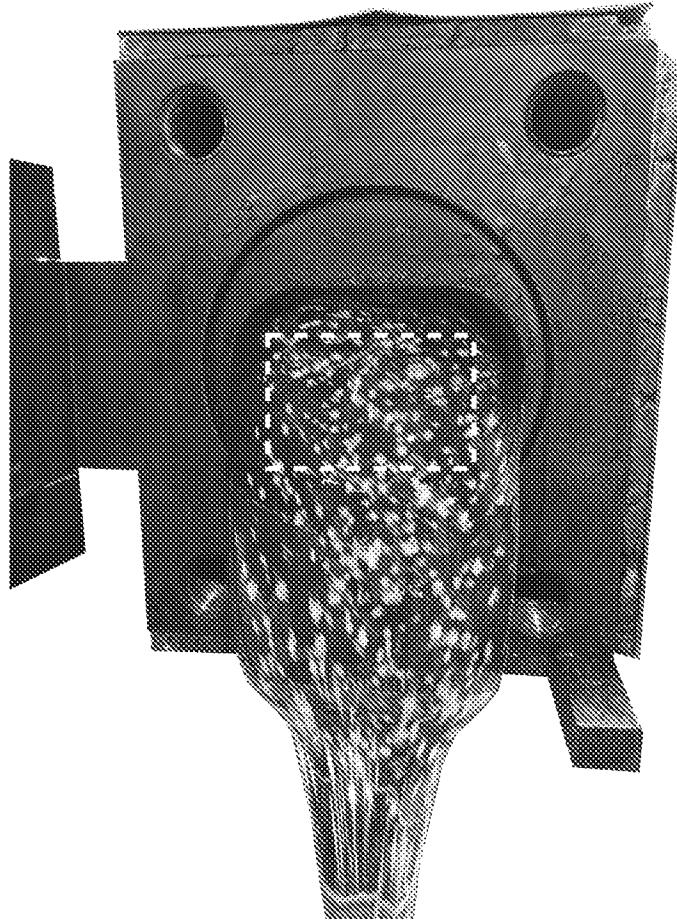
[図1]



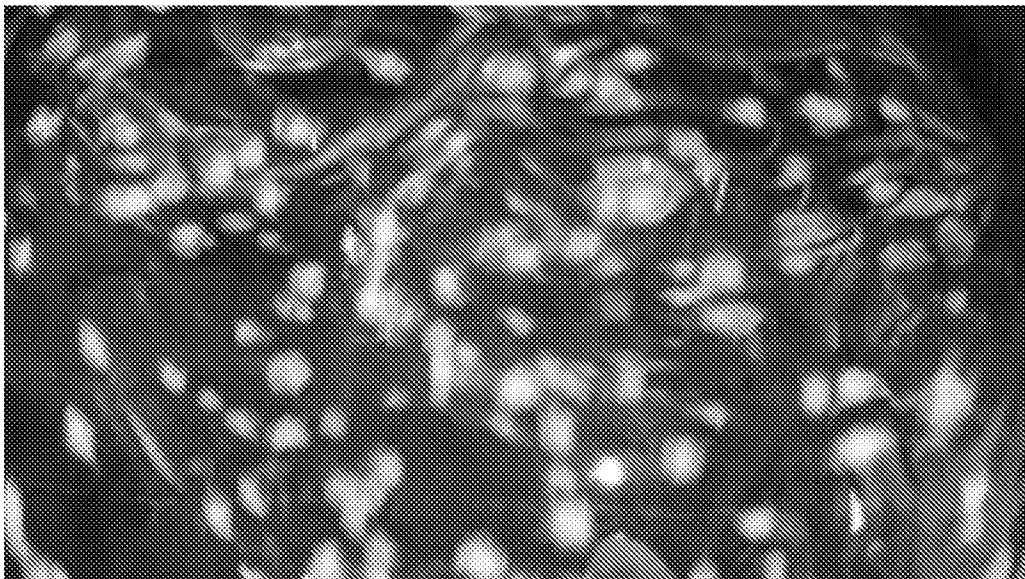
[図2]



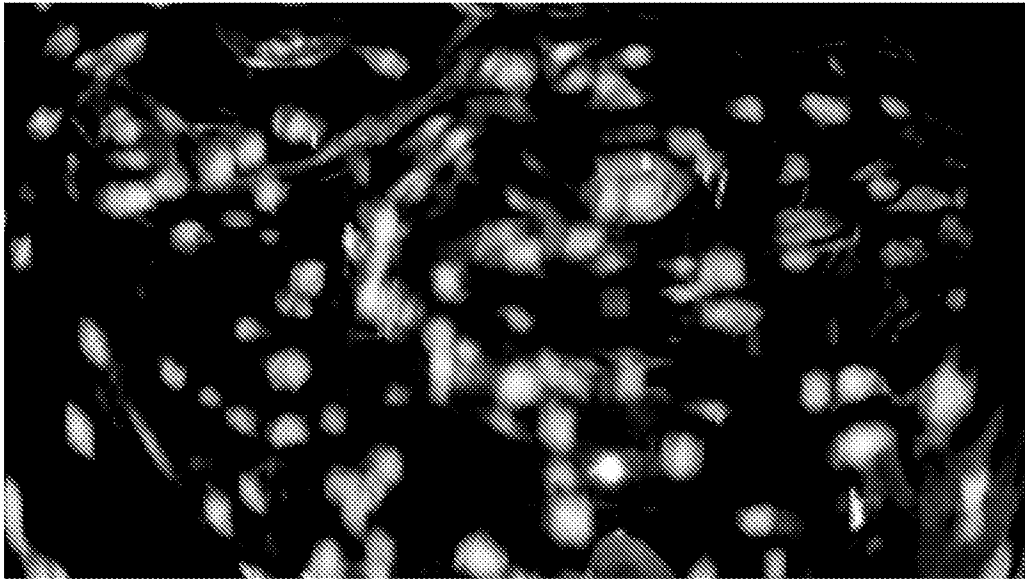
[図3]



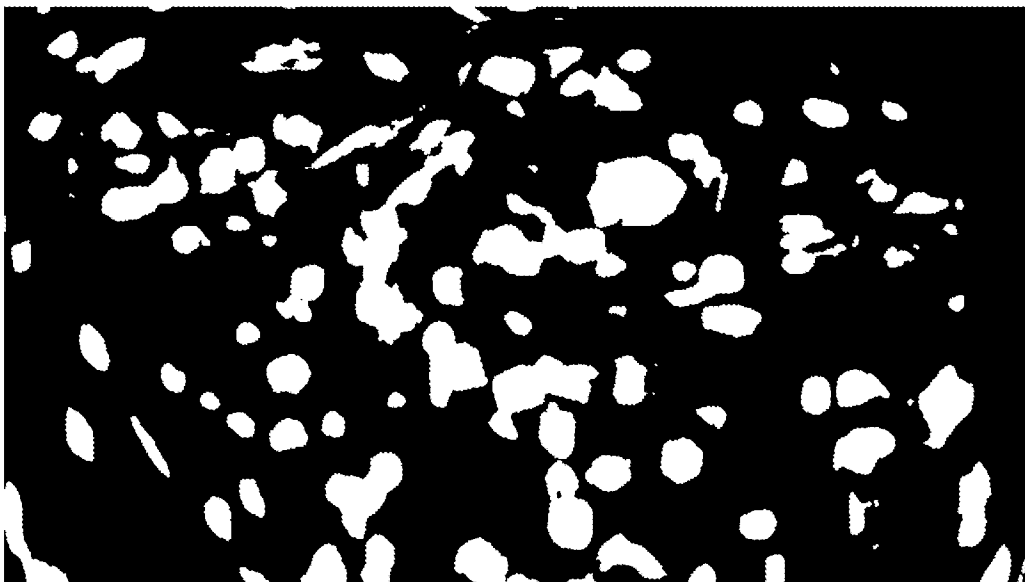
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/021180

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**B29B 9/06**(2006.01)i; **B29B 7/46**(2006.01)i; **B29B 7/84**(2006.01)i; **B29K 69/00**(2006.01)n

FI: B29B9/06; B29B7/46; B29B7/84; B29K69:00

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; B29C31/00-31/10; B29C37/00-37/04; B29C71/00-71/02; B29K69/00

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

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996

Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2024

Registered utility model specifications of Japan 1996-2024

Published registered utility model applications of Japan 1994-2024

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2023/089929 A1 (MITSUBISHI ENGINEERING PLASTICS CORP.) 25 May 2023 (2023-05-25) paragraphs [0077]-[0104], fig. 1	1-4
A	JP 2003-73484 A (ASAHI KASEI KABUSHIKI KAISHA) 12 March 2003 (2003-03-12)	1-4
A	JP 09-66524 A (MITSUBISHI GAS CHEMICAL COMPANY, INC.) 11 March 1997 (1997-03-11)	1-4
A	JP 2020-40356 A (MITSUBISHI ENGINEERING PLASTICS CORP.) 19 March 2020 (2020-03-19)	1-4



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

“D” document cited by the applicant in the international application

“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

07 August 2024

Date of mailing of the international search report

20 August 2024

Name and mailing address of the ISA/JP

Japan Patent Office (ISA/JP)
3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915
Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/021180

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO	2023/089929	A1	25 May 2023	(Family: none)	
JP	2003-73484	A	12 March 2003	(Family: none)	
JP	09-66524	A	11 March 1997	US	5717055 A
JP	2020-40356	A	19 March 2020	JP	2022-130699 A

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

B29B 9/06(2006.01)i; B29B 7/46(2006.01)i; B29B 7/84(2006.01)i; B29K 69/00(2006.01)n

FI: B29B9/06; B29B7/46; B29B7/84; B29K69/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

B29B7/00-11/14; B29B13/00-15/06; B29C31/00-31/10; B29C37/00-37/04; B29C71/00-71/02; B29K69/00

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

1971-2024年

日本国実用新案登録公報

1996-2024年

日本国登録実用新案公報

1994-2024年

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

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	WO 2023/089929 A1（三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社）25.05.2023 (2023 - 05 - 25) 段落[0077]-[0104], 図1	1-4
A	JP 2003-73484 A（旭化成株式会社）12.03.2003（2003 - 03 - 12）	1-4
A	JP 09-66524 A（三菱瓦斯化学株式会社）11.03.1997（1997 - 03 - 11）	1-4
A	JP 2020-40356 A（三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社）19.03.2020 (2020 - 03 - 19)	1-4

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの

“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献

“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献

“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

“&” 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

07.08.2024

国際調査報告の発送日

20.08.2024

名称及びあて先

日本国特許庁(ISA/JP)

〒100-8915

日本国

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

権限のある職員（特許庁審査官）

松林 芳輝 3W 6104

電話番号 03-3581-1101 内線 3367

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2024/021180

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2023/089929	A1	25.05.2023	(ファミリーなし)			
JP	2003-73484	A	12.03.2003	(ファミリーなし)			
JP	09-66524	A	11.03.1997	US	5717055	A	
JP	2020-40356	A	19.03.2020	JP	2022-130699	A	