(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
2009 年 12 月 30 日(30.12.2009)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2009/157265 A1

(51) 国際特許分類:
C08L 97/02 (2006.01) *C08L 23/26* (2006.01)
C08L 23/10 (2006.01) *C08L 53/02* (2006.01)
C08L 23/16 (2006.01) *C08L 101/00* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2009/059461

(22) 国際出願日: 2009 年 5 月 22 日(22.05.2009)

(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 2008-163762 2008 年 6 月 23 日(23.06.2008) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): トヨタ紡織株式会社 (TOYOTA BOSHOKU KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒4488651 愛知県刈谷市豊田町１丁目１番地 Aichi (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 羽柴 正典 (HASHIBA Masanori) [JP/JP]; 〒4488651 愛知県刈谷市豊田町１丁目１番地 トヨタ紡織株式会社内 Aichi (JP).

(74) 代理人: 小島 清路(KOJIMA Seiji); 〒4560031 愛知県名古屋市熱田区神宮三丁目８番２０号 神宮東熱田ビル４階 Aichi (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, 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, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

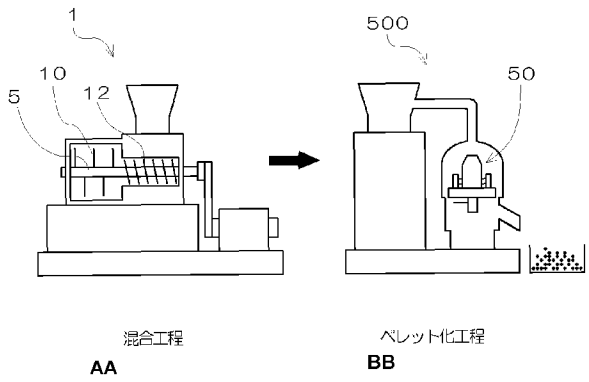
(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ,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

[続葉有]

(54) **Title**: THERMOPLASTIC RESIN COMPOSITION, METHOD FOR PRODUCING SAME, AND MOLDINGS

(54) 発明の名称: 熱可塑性樹脂組成物及びその製造方法並びに成形体

[図3]



AA Mixing step
BB Pelletization step

(57) **Abstract**: Provided are a thermoplastic resin composition which, while including from 40 to 95 mass% vegetable material, can be injection molded and has excellent impact resistance, a method for producing same and a molding comprising same. The composition includes vegetable material (kenaf core), thermoplastic resin (PP), (C_1) styrene-based thermoplastic elastomer (hydrogenated styrene/butadiene copolymer) and acid-modified thermoplastic resin (acid-modified PP) and/or (C_2) acid modified styrene-based thermoplastic elastomer (acid-modified hydrogenated styrene/butadiene copolymer), and the vegetable material content with respect to the total of these components is from 40 to 95 mass%. The method includes a step in which the vegetable material is admixed while melting the thermoplastic resin and (C_1) and/or (C_2) using a mixing and melting apparatus, and a step in which the mixture obtained is extruded and pellets are obtained. The molding is obtained by injection molding said thermoplastic resin composition.

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2009/157265 A1

添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

本発明の目的は、植物性材料を４０～９５質量%と多く含みながら射出成形可能であり且つ耐衝撃性に優れた熱可塑性樹脂組成物及びその製造方法並びにこの熱可塑性樹脂組成物からなる成形体を提供することである。本発明は、植物性材料（ケナフコア）と、熱可塑性樹脂（ＰＰ）と、（C_1）スチレン系熱可塑性エラストマー（水添スチレン・ブタジエン共重合体）及び酸変性熱可塑性樹脂（酸変性ＰＰ）及び／又は（C_2）酸変性スチレン系熱可塑性エラストマー（酸変性水添スチレン・ブタジエン共重合体）とを含み、これらの合計に対して植物性材料が４０～９５質量%。混合溶融装置を用いて、熱可塑性樹脂及び（C_1）及び／又は（C_2）を溶融させながら植物性材料と混合する工程と、得られた混合物を押し固めてペレットを得る工程とを備える。本成形体は前記熱可塑性樹脂組成物が射出成形されてなる。

明　細　書

発明の名称 ： 熱可塑性樹脂組成物及びその製造方法並びに成形体

技術分野

[0001] 本発明は熱可塑性樹脂組成物及びその製造方法並びに成形体に関する。更に詳しくは、植物性材料を５０～９５質量%と多く含有する熱可塑性樹脂組成物及びその製造方法並びに成形体に関する。

背景技術

[0002] 近年、ケナフ等の成長が早く、二酸化炭素吸収量が多い植物性材料は、二酸化炭素排出量削減及び二酸化炭素の固定化等の観点から注目され、樹脂との複合用途で期待されている。

しかし、特に多量の植物性材料を樹脂に混合し、更には、得られた複合材料を成形するには大きな困難を伴う。これは複合材料に従来の樹脂と同等の十分な流動性を付与することが難しいからであると考えられる。多量の植物材料を含む複合材料を扱う技術としては下記特許文献１及び２が知られている。

[0003] 特許文献1：特開２００５－１０５２４５号公報

特許文献2：特開２０００－２１９８１２号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0004] 上記特許文献１では、ケナフ繊維の含有量が５０質量%を超える場合に、樹脂組成物の流動性が著しく低下するので射出成形において、満足する製品形状や製品形態が得られない等の問題が発生することが示されている。一方、上記特許文献２では、樹脂にロジンや可塑剤を加えず、植物繊維のみを配合した場合には植物繊維が均一に分散され難く、樹脂と植物繊維の間の親和性が悪いことなどから、強度等に劣り、又品質の均一性にも欠け、実用性に乏しい材料しか得られないことが示されている。

即ち、いずれの文献においても、５０質量%を超える多量の植物性材料を

含む射出成形可能な熱可塑性樹脂組成物を得るには困難を伴うことが示されている。

[0005] 本発明は、上記に鑑みてなされたものであり、植物性材料を４０～９５質量%と多く含みながら射出成形可能であり且つ耐衝撃性に優れた熱可塑性樹脂組成物及びその製造方法並びにこの熱可塑性樹脂組成物からなる成形体を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0006] 即ち、本発明は以下に示す通りである。

（１）植物性材料（Ａ）と、熱可塑性樹脂（Ｂ）と、下記熱可塑性重合体成分（$Ｃ_1$）及び下記熱可塑性重合体成分（$Ｃ_2$）のうちの少なくとも一方の熱可塑性重合体成分（Ｃ）と、を含有し、

上記植物性材料（Ａ）、上記熱可塑性樹脂（Ｂ）及び上記熱可塑性重合体成分（Ｃ）の合計を１００質量%とした場合に、該植物性材料が４０～９５質量%であることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物。

（$Ｃ_1$）；スチレン系熱可塑性エラストマー及び酸変性熱可塑性樹脂

（$Ｃ_2$）；酸変性スチレン系熱可塑性エラストマー

（２）上記熱可塑性重合体成分（Ｃ）は１～３０質量%である上記（１）に記載の熱可塑性樹脂組成物。

（３）上記熱可塑性重合体成分（$Ｃ_1$）のスチレン系熱可塑性エラストマーは、水素添加型スチレン系熱可塑性エラストマーである上記（１）又は（２）に記載の熱可塑性樹脂組成物。

（４）上記熱可塑性樹脂（Ｂ）は、ポリプロピレン及び／又はエチレン・プロピレン共重合体である上記（３）に記載の熱可塑性樹脂組成物。

（５）上記酸変性熱可塑性樹脂は、酸価が５以上であり且つ重量平均分子量が１０，０００～２００，０００である酸変性ポリプロピレンである上記（４）に記載の熱可塑性樹脂組成物。

（６）上記熱可塑性重合体成分（$Ｃ_2$）の酸変性スチレン系熱可塑性エラストマーは、酸変性された水素添加型スチレン系熱可塑性エラストマーである

上記（１）又は（２）のうちのいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。

（７）上記（１）乃至（６）のうちのいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物の製造方法であって、

混合溶融装置を用いて、上記熱可塑性樹脂（Ｂ）及び上記熱可塑性重合体成分（Ｃ）を溶融させながら上記植物性材料（Ａ）と混合する混合工程と、

上記混合工程で得られた混合物を、押し固めてペレットを得るペレット化工程と、を備えることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物の製造方法。

（８）上記混合溶融装置は、上記混合を行う混合室及び該混合室内に配置された混合羽根を備え、

上記混合工程は、上記混合室中で上記混合羽根の回転により溶融された上記熱可塑性樹脂（Ｂ）及び上記熱可塑性重合体成分（Ｃ）と上記植物性材料（Ａ）とを混合する上記（７）に記載の熱可塑性樹脂組成物の製造方法。

（９）上記（１）乃至（６）のうちのいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物が射出成形されてなることを特徴とする成形体。

発明の効果

[0007] 本発明の熱可塑性樹脂組成物によれば、植物性材料を４０～９５質量%と多く含みながら射出成形可能であり且つ耐衝撃性に優れる。従って、この熱可塑性樹脂組成物を用いて得られる成形体では優れた耐衝撃性を発揮させることができる。更に優れた柔軟性を発揮させることができる。

熱可塑性重合体成分（Ｃ）が１～３０質量%である場合は、特に優れた耐衝撃性を発揮させることができる。

熱可塑性重合体成分（$Ｃ_1$）のスチレン系熱可塑性エラストマーが水素添加型スチレン系熱可塑性エラストマーである場合は、特に優れた耐衝撃性を発揮させることができる。

熱可塑性樹脂（Ｂ）がポリプロピレン及び／又はエチレン・プロピレン共重合体である場合は、特に優れた耐衝撃性を発揮させることができる。

酸変性熱可塑性樹脂の酸価が５以上であり且つ重量平均分子量が１０，０００～２００，０００である酸変性ポリプロピレンである場合は、植物性材

料（Ａ）及び熱可塑性樹脂（Ｂ）との相互の相溶性に優れ、得られる熱可塑性樹脂組成物全体に含まれた各成分の分散性と密着性に優れ、特に優れた耐衝撃性を発揮させることができる。

熱可塑性重合体成分（C_2）の酸変性スチレン系熱可塑性エラストマーが酸変性された水素添加型スチレン系熱可塑性エラストマーである場合は、植物性材料（Ａ）及び熱可塑性樹脂（Ｂ）との相互の相溶性に優れ、得られる熱可塑性樹脂組成物全体に含まれた各成分の分散性と密着性に優れ、特に優れた耐衝撃性を発揮させることができる。

本発明の熱可塑性樹脂組成物の製造方法によれば、植物性材料を４０～９５質量%と多く含みながら射出成形可能であり且つ耐衝撃性に優れた熱可塑性樹脂組成物を得ることができる。

混合溶融装置が混合を行う混合室及び混合室内に配置された混合羽根を備え、混合工程が混合室中で混合羽根の回転により溶融された熱可塑性樹脂（Ｂ）及び熱可塑性重合体成分（Ｃ）と植物性材料とを混合する工程である場合は、とりわけ効率よく熱可塑性樹脂（Ｂ）と熱可塑性重合体成分（Ｃ）に植物性材料（Ａ）を多く含有させながら射出成形できる熱可塑性樹脂組成物を得ることができる。

本発明の成形体によれば、植物性材料が４０～９５質量%と多く含有されながら優れた耐衝撃性を発揮できる。加えて優れた柔軟性を発揮できる。

図面の簡単な説明

[0008] [図1]スチレン系熱可塑性エラストマーの含有量と撓み量及び曲げ弾性率との相関を示すグラフである。

[図2]酸変性熱可塑性樹脂の含有量と撓み量及び曲げ弾性率との相関を示すグラフである。

[図3]本発明の熱可塑性樹脂組成物の製造方法を説明する模式的な説明図である。

[図4]混合溶融装置の一例を示す模式的な断面図である。

[図5]混合溶融装置に配設された混合羽根の一例を示す模式的な側面図である

。

[図6]ローラーディスクダイ式成形機の要部の一例を示す模式的な斜視図である。

符号の説明

[0009] １；混合溶融装置、３；混合室、５；回転軸、１０及び１０ａ～１０ｆ；混合羽根、１２；らせん状羽根、１３；材料供給室、５００；ローラーディスクダイ式成形機（ペレット化装置）、５０；ローラーディスクダイ式成形部（ペレット化部）、５１；ディスクダイ、５１１；貫通孔、５１２；主回転軸挿通孔、５２；プレスローラ、５２１；凹凸部、５３；主回転軸、５４；プレスローラ固定軸、５５；切断用ブレード。

発明を実施するための最良の形態

[0010] 以下、本発明について詳細に説明する。

［１］熱可塑性樹脂組成物

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、植物性材料（Ａ）と、熱可塑性樹脂（Ｂ）と、下記熱可塑性重合体成分（C_1）及び下記熱可塑性重合体成分（C_2）のうちの少なくとも一方の熱可塑性重合体成分（Ｃ）と、を含有し、

上記植物性材料（Ａ）、上記熱可塑性樹脂（Ｂ）及び上記熱可塑性重合体成分（Ｃ）の合計を１００質量%とした場合に、該植物性材料が４０～９５質量%であることを特徴とする。

（C_1）；スチレン系熱可塑性エラストマー及び酸変性熱可塑性樹脂

（C_2）；酸変性スチレン系熱可塑性エラストマー

[0011] 〈１〉植物性材料（Ａ）

上記「植物性材料（Ａ）」は、植物に由来する材料である。この植物性材料としては、ケナフ、ジュート麻、マニラ麻、サイザル麻、雁皮、三椏、楮、バナナ、パイナップル、ココヤシ、トウモロコシ、サトウキビ、バガス、ヤシ、パピルス、葦、エスパルト、サバイグラス、麦、稲、竹、各種針葉樹（スギ及びヒノキ等）、広葉樹及び綿花などの各種植物体から得られた植物性材料が挙げられる。この植物性材料は１種のみを用いてもよく２種以上を

併用してもよい。これらのなかではケナフが好ましい。ケナフは成長が極めて早い一年草であり、優れた二酸化炭素吸収性を有するため、大気中の二酸化炭素量の削減、森林資源の有効利用等に貢献できるからである。

[0012] また、上記植物性材料として用いる植物体の部位は特に限定されず、非木質部、木質部、葉部、茎部及び根部等の植物体を構成するいずれの部位であってもよい。更に、特定部位のみを用いてもよく２ヶ所以上の異なる部位を併用してもよい。

更に、本発明の熱可塑性樹脂組成物内に含まれる植物性材料（混合前の植物性材料）の形状は特に限定されず、繊維状であってもよく、非繊維状（粉末状、破砕物状、チップ状及び不定形状等が含まれる）であってもよい。

[0013] 尚、本発明におけるケナフとは、木質茎を有する早育性の一年草であり、アオイ科に分類される植物である。学名におけるｈｉｂｉｓｃｕｓ ｃａｎｎａｂｉｎｕｓ及びｈｉｂｉｓｃｕｓ ｓａｂｄａｒｉｆｆａ等が含まれ、更に、通称名における紅麻、キューバケナフ、洋麻、タイケナフ、メスタ、ビムリ、アンバリ麻及びボンベイ麻等が含まれる。

また、本発明におけるジュートとは、ジュート麻から得られる繊維である。このジュート麻には、黄麻（コウマ、Ｃｏｒｃｈｏｒｕｓ ｃａｐｓｕｌａｒｉｓ Ｌ．）、及び、綱麻（ツナソ）、シマツナソ並びにモロヘイヤ、を含む麻及びシナノキ科の植物を含むものとする。

[0014] 〈２〉熱可塑性樹脂（Ｂ）

上記「熱可塑性樹脂（Ｂ）」は、熱可塑性を有する樹脂であるが、後述する熱可塑性重合体成分（C_1）の酸変性熱可塑性樹脂と異なり、酸変性されてない熱可塑性樹脂である。この熱可塑性樹脂（Ｂ）としては、特に限定されず種々のものを用いることができる。熱可塑性樹脂（Ｂ）としては、ポリオレフィン（ポリプロピレン、ポリエチレン等）、ポリエステル樹脂｛（ポリ乳酸、ポリカプロラクトン、ポリブチレンサクシネート等の脂肪族ポリエステル樹脂）、（ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート及びポリトリメチレンテレフタレート等の芳香族ポリエステル樹脂）｝、ポ

リスチレン、アクリル樹脂（メタクリレート及び／又はアクリレート等を用いて得られた樹脂）、ポリアミド樹脂（ナイロン等）、ポリカーボネート樹脂、ポリアセタール樹脂、ＡＢＳ樹脂等が挙げられる。これらは１種のみを用いてもよく２種以上を併用してもよい。

[0015] 更に、上記ポリエステル樹脂のなかでは、生分解性を有するポリエステル樹脂（以下、単に「生分解性樹脂」ともいう）が好ましい。生分解性樹脂としては、（１）乳酸、リンゴ酸、グルコース酸及び３－ヒドロキシ酪酸等のヒドロキシカルボン酸の単独重合体、並びに、これらのヒドロキシカルボン酸のうちの少なくとも１種を用いた共重合体、などのヒドロキシカルボン酸系脂肪族ポリエステル、（２）ポリカプロラクトン、及び、上記ヒドロキシカルボン酸のうちの少なくとも１種とカプロラクトンとの共重合体、などのカプロラクトン系脂肪族ポリエステル、（３）ポリブチレンサクシネート、ポリエチレンサクシネート及びポリブチレンアジペート、などの二塩基酸ポリエステル、等が挙げられる。

これらのなかでは、ポリ乳酸、乳酸と乳酸を除く他の上記ヒドロキシカルボン酸との共重合体、ポリカプロラクトン、及び上記ヒドロキシカルボン酸のうちの少なくとも１種とカプロラクトンとの共重合体が好ましく、特にポリ乳酸が好ましい。これらの生分解性樹脂は１種のみを用いてもよく、２種以上を併用してもよい。尚、上記乳酸にはＬ－乳酸及びＤ－乳酸を含むものとし、これらの乳酸は単独で用いてもよく、併用してもよい。

[0016] 上記各種の熱可塑性樹脂（Ｂ）のなかでは、ポリオレフィン、ポリエステル樹脂及びポリエステル樹脂のうちのポリ乳酸を含む他の樹脂との混合樹脂｛ポリ乳酸アロイ（ポリスチレン、ＡＢＳ、ナイロン、ポリカーボネート、ポリプロピレン及びポリブチレンサクシネートのうちの少なくとも１種とポリ乳酸との混合樹脂等）｝のうちの少なくとも１種であることが好ましい。更にこのなかでもポリオレフィンが好ましく、特にポリプロピレン（単独重合体）、ポリプロピレンを含むポリオレフィンの混合樹脂、及びプロピレンに由来する構成単位を含むオレフィン共重合樹脂のうちの少なくともいずれ

かの樹脂が好ましい。このうちポリプロピレンを含むポリオレフィンの混合樹脂としては、ポリプロピレンとポリエチレンとの混合樹脂が挙げられる。更に、プロピレンに由来する構成単位を含むオレフィン共重合樹脂としては、エチレン・プロピレン共重合体（ランダム共重合体及びブロック共重合体を含む）が挙げられる。これらのポリオレフィンは１種のみを用いてもよく２種以上を併用してもよい。これらのなかでは、ポリプロピレン（単独重合体）及び／又はエチレン・プロピレン共重合体が特に好ましい。

[0017] 〈３〉熱可塑性重合体成分（Ｃ）

熱可塑性重合体成分（Ｃ）は、熱可塑性重合体成分（C_1）及び熱可塑性重合体成分（C_2）を含む成分であり、これらの熱可塑性重合体成分（C_1）と熱可塑性重合体成分（C_2）はいずれか一方のみが含有されてもよく、両方が含まれてもよい。

このうち熱可塑性重合体成分（C_1）は、スチレン系熱可塑性エラストマー及び酸変性熱可塑性樹脂であり、熱可塑性重合体成分（C_2）は、酸変性スチレン系熱可塑性エラストマーである。

[0018] 〈４〉熱可塑性重合体成分（C_1）

上記「スチレン系熱可塑性エラストマー」は、芳香族ビニル化合物（スチレン等）に由来する構成単位を含む共重合体であり、通常、この芳香族ビニル化合物に由来する構成単位は、芳香族ビニル重合体ブロック（ポリスチレンブロック）として含有され、スチレン系熱可塑性エラストマー内においてハードセグメントとして機能される。また、このスチレン系熱可塑性エラストマーは水素添加されていてもよく、水素添加されていなくてもよいが、特に熱可塑性樹脂（Ｂ）としてオレフィン系熱可塑性樹脂を用いる場合には、水素添加された水素添加型スチレン系熱可塑性エラストマーを用いることが好ましい。尚、スチレン系熱可塑性エラストマーは、後述する酸変性スチレン系熱可塑性エラストマーと異なり、酸変性されてないスチレン系熱可塑性エラストマーである。

[0019] このスチレン系熱可塑性エラストマーを構成する芳香族ビニル化合物とし

ては、スチレン、アルキル置換スチレン（α－メチルスチレン、ｏ－メチルスチレン、ｍ－メチルスチレン、ｐ－メチルスチレン、１，３－ジメチルスチレン等）、ビニルナフタレン、ビニルアントラセンなどが挙げられる。これらは１種のみを用いてもよく２種以上を併用してもよい。これらのなかではスチレンが特に好ましい。

尚、スチレン系熱可塑性エラストマーは、通常、その全構成単位を１００モル%とした場合に芳香族ビニル化合物に由来する構成単位を５モル%を越えて（通常８０モル%以下）含有する。

[0020] また、上記芳香族ビニル重合体ブロック以外のスチレン系熱可塑性エラストマーを構成する重合体部分は、エラストマー性が得られる限りどのようなモノマーを用いて形成されていてもよいが、通常、共役ジエンを用いて形成される。この共役ジエンとしては、ブタジエン、イソプレン、１，３－ペンタジエン、２，３－ジメチル－１，３－ブタジエン等が挙げられる。これらは１種のみを用いてもよく２種以上を併用してもよい。

[0021] このようなスチレン系熱可塑性エラストマーとしては、水素添加型スチレン系熱可塑性エラストマー及び水素添加されてないスチレン系熱可塑性エラストマー（以下、単に「非水素添加型スチレン系熱可塑性エラストマー」ともいう）とが挙げられる。これらは１種のみを用いてもよく２種以上を併用してもよい。

このうち水素添加型スチレン系熱可塑性エラストマーとしては、水素添加型スチレン・ブタジエン共重合体、及び、水素添加型スチレン・イソプレン共重合体等が挙げられる。このうち水素添加型スチレン・ブタジエン共重合体としては、水素添加型スチレン・ブタジエンランダム共重合体（ＨＳＢＲ）、及び、スチレン・エチレン・ブチレン・スチレンブロック共重合体（ＳＥＢＳ，水素添加型スチレン・ブタジエンブロック共重合体）が挙げられる。一方、水素添加型スチレン・イソプレン共重合体としては、スチレン・エチレン・プロピレン・スチレンブロック共重合体（ＳＥＰＳ，水素添加型スチレン・イソプレンブロック共重合体）等が挙げられる。

[0022] また、上記非水素添加型スチレン系熱可塑性エラストマーとしては、スチレン・ブタジエン共重合体（非水素添加型）、及び、スチレン・イソプレン共重合体（非水素添加型）等が挙げられる。このうちスチレン・ブタジエン共重合体としては、スチレン・ブタジエンブロック共重合体が挙げられ、より具体的には、スチレン・ブタジエン・スチレンブロック共重合体（ＳＢＳ）が挙げられる。

一方、スチレン・イソプレン共重合体としては、スチレン・イソプレンブロック共重合体が挙げられ、より具体的には、スチレン・イソプレン・スチレンブロック共重合体（ＳＩＳ）等が挙げられる。

[0023] 上記各種スチレン系熱可塑性エラストマーとしては、具体的には、タフテック（旭化成株式会社製、タフテックＨシリーズ及びタフテックＰシリーズ）、セプトン（株式会社クラレ製）、クレイトンＧ（クレイトンポリマー・ジャパン製）、ダイナロン（ＪＳＲ株式会社製）、ハイブラー（株式会社クラレ製）、エスポレックスＳＢ（住友化学株式会社製）、タフプレン（旭化成株式会社製）、アサプレン（旭化成株式会社製）、ソルプレン（旭化成株式会社製）、ラバロン（三菱化学株式会社製）、ＪＳＲ－ＴＲ（ＪＳＲ株式会社製）、ＪＳＲ－ＳＩＳ（ＪＳＲ株式会社製）、電化ＳＴＲ（電気化学株式会社製）、クインタック（日本ゼオン株式会社製）、レオストマー（リケンテクノス株式会社製）等の製品が挙げられる。これらは１種のみを用いてもよく２種以上を併用してもよい。

[0024] また、スチレン系熱可塑性エラストマーのショアＡ硬度は特に限定されないが、２５～９０であることが好ましい。この範囲では特に後述の混合溶融装置（図４～５に示す）を用いた場合の混合性がよく、植物性材料（Ａ）、熱可塑性樹脂（Ｂ）及び熱可塑性重合体成分（Ｃ）を各々より分散性よく混合できる。このショアＡ硬度は３０～８０がより好ましく、３５～７５が特に好ましい。尚、上記ショアＡ硬度はＪＩＳ　Ｋ６２５３のデュロメータ（タイプＡデュロメータ）硬さ試験による。

[0025] 上記各種スチレン系熱可塑性エラストマーのなかでも、本発明では、スチ

レン・ブタジエン共重合体（水素添加型及び非水素添加型のいずれであってもよく、これらの混合物であってもよい）が好ましい。このスチレン・ブタジエン共重合体におけるスチレン含有量M_S｛スチレン・ブタジエン共重合体全体に対するスチレンに由来する構成単位の質量割合｝は、５質量%≦M_S＜５０質量%であることが好ましい。この範囲では柔軟性が高く、耐衝撃性を向上させることができる。この割合は５質量%≦M_S≦４０質量%がより好ましく、１０質量%≦M_S≦３０質量%が更に好ましい。

[0026] 更に、スチレン・ブタジエン共重合体のなかでも、水素添加型スチレン・ブタジエン共重合体がより好ましい。この水素添加型スチレン・ブタジエン共重合体におけるスチレン含有量M_S｛水素添加型スチレン・ブタジエン共重合体全体に対するスチレンに由来する構成単位の質量割合｝は、５質量%≦M_S＜５０質量%であることが好ましい。この範囲では柔軟性が高く、耐衝撃性を向上させることができる。この割合は５質量%≦M_S≦４０質量%がより好ましく、５質量%≦M_S≦３０質量%が更に好ましく、５質量%≦M_S≦２０質量%がより更に好ましい。

[0027] 上記「酸変性熱可塑性樹脂」は、酸基を有する熱可塑性樹脂である。この酸変性熱可塑性樹脂としては、熱可塑性樹脂に酸基を導入したものが挙げられる（尚、以下では酸基が導入されていない状態の重合体を「ベースポリマー」ともいう）。

本発明の熱可塑性樹脂組成物では、スチレン系熱可塑性エラストマーと酸変性熱可塑性樹脂とを併用することによって、スチレン系熱可塑性エラストマーによる耐衝撃性向上効果を発揮させることができる。これにより、植物性材料を多く含有しながら優れた耐衝撃性を発揮できる熱可塑性樹脂組成物を得ることができる。この作用は、酸変性熱可塑性樹脂を配合することで植物性材料とスチレン系熱可塑性エラストマーとの相溶性が向上されることで得られるものと考えられる。

[0028] 酸変性熱可塑性樹脂を形成する上記ベースポリマーとしては、前記熱可塑性樹脂（Ｂ）として挙げた各種熱可塑性樹脂のうちの１種又は２種以上を用

いることができる。これらのなかでは、ポリオレフィンが好ましく、更にポリプロピレン（単独重合体）、ポリプロピレンを含むポリオレフィンの混合樹脂、及びプロピレンに由来する構成単位を含むオレフィン共重合樹脂が挙げられる。このうちポリプロピレンを含むポリオレフィンの混合樹脂としては、ポリプロピレンとポリエチレンとの混合樹脂が挙げられる。更に、プロピレンに由来する構成単位を含むオレフィン共重合樹脂としては、エチレン・プロピレン共重合体（ランダム共重合体及びブロック共重合体を含む）が挙げられる。これらのポリオレフィンは１種のみを用いてもよく２種以上を併用してもよい。これらのなかでは、ポリプロピレン（単独重合体）が特に好ましい。

[0029] また、酸変性熱可塑性樹脂を用いる場合、上記ベースポリマーは、熱可塑性樹脂（Ｂ）と同質であることが好ましい。この「同質」とは、［ｉ］同じ種類の熱可塑性樹脂であって、構成単位（単量体単位）が同じであること、［ｉｉ］同じ種類の熱可塑性樹脂であって、構成単位が異なること、又は、［ｉｉｉ］同じ又は異なる種類の熱可塑性樹脂であって、同じ構成単位を少なくとも１種有し且つ互いに相溶性を有する熱可塑性樹脂であること、を意味する。尚、「同じ種類の熱可塑性樹脂」とは、ポリオレフィン、ポリエステル樹脂、アクリル樹脂、ポリアミド樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリアセタール樹脂等の分類において共通することを意味する。

[0030] 上記［ｉ］としては、同一の単独重合体又は共重合体であって、分子量、粘度等の化学的性質又は物理的性質が異なる場合が挙げられる。このうち共重合体である例としては、共通する２以上の構成単位を有し、その割合が異なる場合が挙げられる。上記［ｉｉ］としては、一方がポリエチレンであり、他方がポリプロピレンである場合等が挙げられる。上記［ｉｉｉ］の例としては、一方がポリエチレンであり、他方がエチレン・プロピレン共重合体である場合等が挙げられる。上記［ｉｉ］及び［ｉｉｉ］において、熱可塑性樹脂（Ｂ）及びベースポリマーの各々の構成単位全体の５０モル%以上を占める主構成単位は同じであることが好ましい。

[0031] また、酸変性熱可塑性樹脂を形成する酸基の種類は特に限定されないが、通常、無水カルボン酸残基（－ＣＯ－Ｏ－ＯＣ－）及び／又はカルボン酸残基（－ＣＯＯＨ）である。この酸基は共重合段階で導入されたものであってもよく、グラフト導入されたものであってもよい。また、酸基はどのような化合物により導入されたものであってもよく、その化合物としては、無水マレイン酸、無水イタコン酸、無水コハク酸、無水グルタル酸、無水アジピン酸、マレイン酸、イタコン酸、フマル酸、アクリル酸、及びメタクリル酸等が挙げられる。これらは１種のみを用いてもよく、２種以上を併用してもよい。これらのなかでは、無水マレイン酸及び無水イタコン酸が好ましく、無水マレイン酸が特に好ましい。

[0032] 酸変性熱可塑性樹脂に導入される酸基の量は特に限定されないものの、酸価において５以上であることが好ましい。このような酸変性熱可塑性樹脂を用いることにより、酸変性熱可塑性樹脂の添加量を抑制しつつ高い添加効果を得ることができるからである。この酸価は、１０～８０がより好ましく、１５～７０が更に好ましく、２０～６０が特に好ましい。尚、この酸価はＪＩＳ　Ｋ００７０によるものである。

[0033] 更に、酸変性熱可塑性樹脂の分子量は特に限定されないが、重量平均分子量において１０，０００～２００，０００であることが好ましい。即ち、比較的分子量の小さい酸変性熱可塑性樹脂であることが好ましい。このような酸変性熱可塑性樹脂を用いることにより、酸変性熱可塑性樹脂の添加による熱可塑性樹脂組成物全体への性状変化を抑制しつつ、高い添加効果を得ることができる。更に、この範囲の酸変性熱可塑性樹脂を用いることにより、更に優れた耐衝撃性を発揮させることができる。この重量平均分子量は、１５，０００～１５０，０００がより好ましく、２５，０００～１２０，０００が更に好ましく、３５，０００～１００，０００が特に好ましい。尚、この重量平均分子量はＧＰＣ法によるものである。

[0034] 上記スチレン系熱可塑性エラストマーとして、上記のように水素添加型スチレン系熱可塑性エラストマーを用いる場合には、上記酸変性熱可塑性樹脂

を構成するベースポリマーはポリオレフィンであることが好ましく、更には、ポリオレフィンのなかでも、ポリプロピレン、ポリエチレン、エチレン・プロピレン共重合体、及びポリプロピレンとポリエチレンとの混合樹脂（アロイ）が好ましく、とりわけポリプロピレンが好ましい。従って、この酸変性熱可塑性樹脂としては、無水マレイン酸変性ポリプロピレンが特に好ましい。

[0035] 〈５〉熱可塑性重合体成分（C_2）

上記「酸変性スチレン系熱可塑性エラストマー」は、酸基を有するスチレン系熱可塑性エラストマーである。この酸変性スチレン系熱可塑性エラストマーは、スチレン系熱可塑性エラストマーを酸変性したり、芳香族ビニル化合物と共役ジエンと酸基を有する化合物とを共重合したりするなどして得ることができる。このうち、芳香族ビニル化合物及び共役ジエンについては前記スチレン系熱可塑性エラストマーにおける各々の記載をそのまま適用できる。また、酸基を有する化合物としては、前記酸変性熱可塑性樹脂におけるこの化合物に関する記載をそのまま適用できる。

[0036] 酸変性スチレン系熱可塑性エラストマーは、そのエラストマー単独で、前記熱可塑性重合体成分（C_1）と同じ作用を発揮することができる。この酸変性スチレン系熱可塑性エラストマーを用いることより、植物性材料を多く含有しながら優れた耐衝撃性を発揮できる熱可塑性樹脂組成物を得ることができる。この作用は、スチレン系熱可塑性エラストマーが酸変性されていることで植物性材料と酸変性スチレン系熱可塑性エラストマーとの相溶性が向上されることで得られるものと考えられる。この酸変性スチレン系熱可塑性エラストマーとしては、タフテック｛旭化成株式会社製、タフテックＭシリーズ（Ｍ１９１１、Ｍ１９１３、Ｍ１９４３及びＭ１９５３等）｝等が挙げられる。

[0037] また、酸変性スチレン系熱可塑性エラストマーを形成している酸基を除いた骨格となる共重合体としては、前記各種スチレン系熱可塑性エラストマーを用いることができ、なかでもスチレン・ブタジエン共重合体（水素添加型

及び非水素添加型のいずれであってもよく、これらの混合物であってもよい）が好ましい。このスチレン・ブタジエン共重合体におけるスチレン含有量M_S及びその好ましい範囲は前述の通りである。また、スチレン・ブタジエン共重合体のなかでも、水素添加型スチレン・ブタジエン共重合体がより好ましい。即ち、酸変性スチレン系熱可塑性エラストマーとしては、酸変性された水素添加型スチレン・ブタジエン共重合体がより好ましい。この酸変性された水素添加型スチレン・ブタジエン共重合体におけるスチレン含有量M_S｛酸変性された水素添加型スチレン・ブタジエン共重合体全体に対するスチレンに由来する構成単位の質量割合｝は、５質量%≦M_S＜５０質量%であることが好ましい。この範囲では柔軟性が高く、耐衝撃性を向上させることができる。この割合は５質量%≦M_S≦４０質量%がより好ましく、７質量%≦M_S≦３５質量%が更に好ましく、１０質量%≦M_S≦３０質量%がより更に好ましく、１５質量%≦M_S≦２５質量%が特に好ましい。

[0038] 酸変性スチレン系熱可塑性エラストマーを形成する酸基の種類は特に限定されず、前記酸変性熱可塑性樹脂における酸基において述べたと同様に、無水カルボン酸残基（－ＣＯ－Ｏ－ＯＣ－）及び／又はカルボン酸残基（－ＣＯＯＨ）が挙げられる。更に、この酸基は前記酸変性熱可塑性樹脂におけると同様に、無水マレイン酸により導入されることが特に好ましい。

酸変性スチレン系熱可塑性エラストマーに導入される酸基の量は特に限定されないものの、酸価において２以上であることが好ましく、２～１５がより好ましく、４～１３が更に好ましく、８～１３が特に好ましい。尚、この酸価はＪＩＳ　Ｋ００７０によるものである。

[0039] また、酸変性スチレン系熱可塑性エラストマーのショアＡ硬度は特に限定されないが、２５～９０であることが好ましい。この範囲では特に後述の混合溶融装置（図４～５に示す）を用いた場合の混合性がよく、植物性材料（Ａ）、熱可塑性樹脂（Ｂ）及び熱可塑性重合体成分（Ｃ）を各々より分散性よく混合できる。このショアＡ硬度は３０～８０がより好ましく、３５～７５が特に好ましい。尚、上記ショアＡ硬度はＪＩＳ　Ｋ６２５３のデュロメ

ータ（タイプＡデュロメータ）硬さ試験による。

[0040] 〈６〉各成分の含有割合

本発明の熱可塑性樹脂組成物に含まれる各成分の含有量は、植物性材料（Ａ）と熱可塑性樹脂（Ｂ）と熱可塑性重合体成分（Ｃ）との合計を１００質量%とした場合に、植物性材料（Ａ）が４０～９５質量%である。この含有量は４０～９０質量%が好ましく、４０～８０質量%がより好ましく、４０～７０質量%が更に好ましい。この含有量は、通常、製造時に配合する植物性材料（Ａ）の配合量と同じである。

また、熱可塑性樹脂（Ｂ）は４～５９質量%とすることが好ましい。この範囲では優れた流動性と機械的強度を得ることができる。この含有量は、１０～５５質量%がより好ましく、１５～５５質量%が更に好ましく、２０～５０質量%が特に好ましい。

更に、熱可塑性重合体成分（Ｃ）は１～３０質量%とすることが好ましい。この範囲では耐衝撃性を向上させることができる。この含有量は、２～２７質量%がより好ましく、３～２５質量%が更に好ましく、４～２２質量%が特に好ましい。

[0041] 熱可塑性重合体成分（Ｃ）として、熱可塑性重合体成分（C_1）を用いる場合には、酸変性熱可塑性樹脂とスチレン系熱可塑性エラストマーとの合計を１００質量%とした場合に、酸変性熱可塑性樹脂は５～５０質量%とすることが好ましい。この範囲では植物性材料と熱可塑性樹脂とスチレン系熱可塑性エラストマーとの相互間の相溶性を特に良好にすることができ、各成分の高い分散性を得ることができる。この含有量は、６～５０質量%がより好ましく、７～５０質量%が更に好ましく、８～５０質量%が特に好ましい。

更に、この熱可塑性重合体成分（C_1）を使用する場合において、本発明の熱可塑性樹脂組成物に含まれる植物性材料（Ａ）と熱可塑性樹脂（Ｂ）とスチレン系熱可塑性エラストマーと酸変性熱可塑性樹脂との合計を１００質量%とした場合に、酸変性熱可塑性樹脂の割合は１～２０質量%とすることが好ましい。この範囲では、熱可塑性樹脂組成物内から酸変性熱可塑性樹脂が

ブリードすることを防止しつつ、高い相溶化効果を得ることができる。この含有量は、１～１５質量%がより好ましく、１．５～１２質量%が更に好ましい。

尚、これらの各成分の含有量は、通常、製造時に配合する各成分の配合量と同じである。

[0042] 本発明の熱可塑性樹脂組成物には、植物性材料（Ａ）、熱可塑性樹脂（Ｂ）、及び熱可塑性重合体成分（Ｃ）以外にも他の成分を配合できる。他の成分としては、各種帯電防止剤、難燃剤、抗菌剤、着色剤等も配合できる。これらは１種のみを用いてもよく２種以上を併用してもよい。但し、これらの他の成分が含有される場合には、熱可塑性樹脂組成物全体（１００質量%）に対して合計で１０質量%以下である。

[0043] ［２］熱可塑性樹脂組成物の製造方法

前記本発明の熱可塑性樹脂組成物を得る方法は特に限定されず、前記熱可塑性樹脂組成物を得ることができればよく、その混合順序等は特に限定されないが、例えば、下記（１）及び（２）の方法が挙げられる。

[0044] （１）前記熱可塑性樹脂組成物の製造方法であって、混合溶融装置を用いて、上記熱可塑性樹脂（Ｂ）及び上記熱可塑性重合体成分（Ｃ）を溶融させながら上記植物性材料（Ａ）と混合する混合工程と、

上記混合工程で得られた混合物を、押し固めてペレットを得るペレット化工程と、を備えることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物の製造方法（以下、単に「第１の方法」ともいう）。

[0045] （２）混合溶融装置を用いて、上記熱可塑性樹脂（Ｂ）を溶融させながら上記植物性材料（Ａ）と混合する混合工程と、

上記混合工程で得られた混合物を、押し固めてペレットを得るペレット化工程と、

上記ペレットと上記熱可塑性重合体成分（Ｃ）とを混合してペレット混合物を得るペレット混合工程と、

上記ペレット混合物を射出成形して熱可塑性樹脂組成物（熱可塑性樹脂組

成物からなる成形体として得られる）を得る射出成形工程と、を備えることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物の製造方法（以下、単に「第２の方法」ともいう）。

[0046] 上記第１の方法及び上記第２の方法で用いる、植物性材料（Ａ）、熱可塑性樹脂（Ｂ）及び熱可塑性重合体成分（Ｃ）については前述した各々を用いることができる。また、その配合割合も前述の含有量の通りとすることが好ましい。尚、上記のうちの熱可塑性樹脂（Ｂ）及び熱可塑性重合体成分（Ｃ）は、ペレットで配合してもよくコンパウンドで配合してもよいが、上記混合溶融装置を用いた場合により良好な混合を行うことができることからペレットが好ましい。

[0047] また、上記植物性材料（Ａ）｛混合前の植物性材料｝の形状は特に限定されず、繊維状及び非繊維状の形態が挙げられる。このうち非繊維状としては、粉末状（粒状及び球状等を含む）、チップ状（板状及び薄片状等を含む）及び不定形状（粉砕物状等を含む）などの形態が含まれる。これらは１種のみを用いてもよく２種以上を併用してもよい。

上記のうち繊維状の植物性材料（以下、単に「植物性繊維」ともいう）は、植物体から取り出された繊維であり、且つ長さ（繊維長）Ｌに対する径（繊維径）ｔの割合Ｌ／ｔが５．０～２０，０００であるものをいう。この植物性繊維において、上記繊維長Ｌは、通常、０．５～３００ｍｍであり、上記繊維径ｔは、通常、０．０１～１ｍｍである。この繊維長は、ＪＩＳ Ｌ１０１５における直接法と同様に、１本の植物性繊維を伸張させずにまっすぐに伸ばし、置尺上で測定した値（Ｌ）である。一方、繊維径は、繊維長を測定した当該植物性繊維について、繊維の長さ方向の中央における繊維径を光学顕微鏡を用いて測定した値（ｔ）である。

[0048] 更に、この植物性繊維の平均繊維長及び平均繊維径等は特に限定されないが、平均繊維長は、２０ｍｍ以下が好ましい。平均繊維長が２０ｍｍ以下の植物性繊維を用いることで、植物性繊維を用いることによる前記効果をよりよく得ることができる。この平均繊維長は１～１５ｍｍがより好ましく、１

．５～１０ｍｍが更に好ましく、２～７ｍｍが特に好ましい。この平均繊維長は、ＪＩＳ　Ｌ１０１５に準拠して、直接法にて無作為に単繊維を１本ずつ取り出し、伸張させずにまっすぐに伸ばし、置尺上で繊維長を測定し、合計２００本について測定した平均値である。

一方、上記平均繊維径は、０．２ｍｍ以下が好ましい。平均繊維径が０．２ｍｍ以下の植物性繊維を用いることで、植物性繊維を用いることによる前記効果をよりよく得ることができる。この平均繊維径は０．０１～０．１５ｍｍがより好ましく、０．０１～０．１ｍｍが特に好ましい。この平均繊維径は、無作為に単繊維を１本ずつ取り出し、繊維の長さ方向の中央における繊維径を光学顕微鏡を用いて実測し、合計２００本について測定した平均値である。

[0049] また、上記のうち、非繊維状の植物性材料（以下、単に「非繊維状植物性材料」ともいう）は、植物体から取り出された上記繊維状には含まれない形態の植物性材料である。その大きさは特に限定されないが、例えば、最大長さ（粒状の場合は最大粒径）は２０ｍｍ以下（通常０．１ｍｍ以上、更には０．３～２０ｍｍ、より更には０．３～１５ｍｍ、特に０．５～１０ｍｍ）とすることが好ましい。

更に、その形状が粉末状である場合には、平均粒径は５．０ｍｍ以下（通常０．１ｍｍ以上、更には０．２～５．０ｍｍ、より更には０．３～４．０ｍｍ、特に０．３～３ｍｍ、とりわけ０．５～２ｍｍ）とすることが好ましい。尚、平均粒径とは、粒度分布測定装置によって測定された粒度分布におけるＤ５０の値である。

尚、本方法により得られる熱可塑性樹脂組成物では、上記混合前の植物性材料の形状及び大きさは、熱可塑性樹脂組成物内でそのまま維持されてもよく、維持されなくてもよい。維持されない場合としては、混合時に更に細かく粉砕されて熱可塑性樹脂組成物内に含まれる場合が挙げられる。

[0050] また、植物性材料としてケナフを用いる場合、上記植物性繊維としてはケナフ繊維が挙げられ、上記非繊維状植物性材料としてはケナフコア粉末が挙

げられる。本発明の熱可塑性樹脂組成物の製造方法では上記のように非繊維状植物性材料を用いることができる。即ち、ケナフにおいてはケナフコア粉末を用いることができることとなる。

このケナフは靭皮と称される外層部分とコアと称される芯材部分とからなるが、このうち靭皮は、強靭な繊維を有するために利用価値が高いのに対して、コアはケナフ全体の６０体積%程をも占めるにも関わらず、植物性繊維にすることができない。更に、見掛け比重が小さく嵩高いために取扱い性が悪く、樹脂等との混練が難しく、コアは廃棄又は燃料化されることが多い。しかし、本方法によれば、ケナフコアを植物性材料として利用しつつも機械的特性に優れ且つ射出成形が可能な高い流動性を有する熱可塑性樹脂組成物を選ることができる。

[0051] 上記「混合溶融装置」は、第１の方法では、植物性材料（Ａ）と熱可塑性樹脂（Ｂ）と熱可塑性重合体成分（Ｃ）とを混合溶融する装置であり、第２の方法では、植物性材料（Ａ）と熱可塑性樹脂（Ｂ）とを混合溶融する装置であって、押出タイプのものを除いた装置である。この混合溶融装置の種類などは特に限定されないが特に下記混合溶融装置が好ましい。この混合溶融装置を用いた場合には、植物性材料（Ａ）と熱可塑性樹脂（Ｂ）とを特に良好に混合することができる。

[0052] この混合溶融装置｛以下、図３、図４（図４は、特許庁の特許電子図書館から取得した国際公開０４／０７６０４４号パンフレット図１を引用）及び図５（図５は、特許庁の特許電子図書館から取得した国際公開０４／０７６０４４号パンフレット図２を引用）参照｝としては、国際公開０４／０７６０４４号パンフレットに記載の混合溶融装置１が好ましい。即ち、混合溶融装置１は、材料供給室１３と、該材料供給室１３に連接された混合室３と、該材料供給室１３と該混合室３とを貫通して回転自在に設けられた回転軸５と、該材料供給室１３内の該回転軸５に配設され且つ該材料供給室１３に供給された混合材料（植物性材料等）を該混合室３へ搬送するらせん状羽根１２と、該混合室３内の該回転軸５に配設され且つ該混合材料を混合する混合

羽根１０ａ～１０ｆと、を備える混合溶融装置が好ましい。

[0053] 上記混合溶融装置を用い、混合材料を混合溶融装置１（材料供給室１３）へ投入し、混合溶融装置１の混合羽根１０ａ～１０ｆを回転させることで、植物性材料及び熱可塑性樹脂｛第１の方法においては、更に熱可塑性重合体成分（Ｃ）｝が共に、混合室３の内壁へ向かって押し付けるように打撃し且つ押し進められ、材料同士の衝突するエネルギー（熱量）により短時間で熱可塑性樹脂｛第１の方法においては、更に熱可塑性重合体成分（Ｃ）｝が軟化され、更には溶融され、植物性材料と混合され、更には混練される。また、得られる混合物（ペレット化前の熱可塑性樹脂組成物）には射出成形が可能な優れた流動性が発現される。

[0054] 上記混合羽根１０ａ～１０ｆは、上記回転軸５の円周方向の一定角度間隔の部位における軸方向において対向すると共に、回転方向において互いの対向間隔が狭まるような取付け角で該回転軸５に配設された少なくとも２枚の混合羽根（１０ａ～１０ｆ）によって構成され、該混合羽根１０ａ～１０ｆの該回転軸５に対する取付け角は、該回転軸５に取り付けられる該混合羽根１０ａ～１０ｆの根元部から半径方向外方の先端部まで同一であることが好ましく、更には、上記混合羽根１０ａ～１０ｆが矩形板状をなすことが好ましい。

また、上記混合室は、該混合室を構成する壁に冷却媒体を循環させることができる混合室冷却手段を備えることがより更に好ましい。この構成により、混合室内の過度な温度上昇を抑制でき、熱可塑性樹脂｛第１の方法においては、更に熱可塑性重合体成分（Ｃ）｝の分解及び熱劣化を抑制（更には防止）できる。

[0055] 上記「混合」における各種条件は特に限定されないが、例えば、混合時の温度は特に限定されないが、混合室外壁の温度を２００℃以下（より好ましくは１５０℃以下、更に好ましくは１２０℃以下）に制御することが好ましく、更には、５０℃以上（より好ましくは６０℃以上、更に好ましくは８０℃以上）に制御することが好ましい。また、この温度は１０分以内（より好

ましくは５分以内）に到達させることが好ましい。短時間で高温にすることで急激に水分を蒸散させると共に上記混合を行うことができ、熱可塑性エラストマーの劣化をより効果的に抑制できる。更に、上記温度範囲とするのも１５分以内（より好ましくは１０分以内）とすることが好ましい。

また、上記温度の制御は、混合溶融装置の混合羽根の回転速度を制御することによって行うことが好ましい。より具体的には、混合羽根の先端の回転速度を５ｍ／秒～５０ｍ／秒となるように制御することが好ましい。この範囲に制御することで、効率よく熱可塑性樹脂〔第１の方法においては、更に熱可塑性重合体成分（Ｃ）〕を軟化・溶融させつつ、植物性材料とより強力に（より均一に）混合することができる。

[0056] 更に、この混合における終点は特に限定されないが、上記回転軸に負荷されるトルクの変化により決定できる。即ち、上記回転軸に負荷されるトルクを測定し、そのトルクが最大値となった後に混合を停止することが好ましい。これにより、混合材料を相互に分散性よく混合できる。更に上記トルクの最大値となった後にトルクが低下し始めてから混合を停止させることがより好ましい。特に最大トルクに対して４０％以上（とりわけ好ましくは５０～８０％）のトルク範囲で混合を停止することが特に好ましい。これにより、混合材料を相互により分散性よく混合できると共に、混合室内部から混合物（ペレット化前の熱可塑性樹脂組成物）を１６０℃以上の温度で取り出すことができ、混合室内に熱可塑性樹脂組成物が付着して残存されることをより確実に防止できる。

[0057] 上記ペレット化工程は、上記混合工程で得られた混合物を、押し固めてペレットを得る工程である（図３参照）。

ペレット化は、どのように行ってもよい。即ち、例えば、上記混合溶融装置と、得られた熱可塑性樹脂組成物が除熱される前にペレット化（細分化）できるペレット化装置と、が一体的に設けられた装置を用いる場合には、混合とペレット化とを連続的に行ってペレットを得ることができる。また、上記のようなペレット化装置が併設されていない装置を用いる場合は、混合溶

融装置からは、通常、塊状の混合物が得られるため、この塊状の混合物をペレット化することでペレットを得ることができる。尚、塊状の混合物は、通常、ペレット化前に破砕を行う。破砕方法は特に限定されないが、従来公知の破砕機を用いて行うことができる。

[0058] 上記のうち混合溶融装置から塊状の混合物を得る場合においては、混合工程の後に、混合工程で得られた混合物を加熱せず押し固めてペレットを得るペレット化工程を備えることが好ましい（図３参照）。このように加熱せず押し固めてペレット化することで、例えば、混合工程で得られた混合物を再度溶融させて二軸押出し機等の一般的な方法を用いてペレット化を行う場合に比べて、混合物への熱履歴を低減できるために得られる成形体の機械的特性をより高く維持できる。

[0059] この加熱せず押し固めてペレット化するペレット化工程では、どのような装置及び手段を用いてもよいが、特に各種圧縮成形方法を用いることが好ましい。この圧縮成形方法としては、例えば、ローラー式成形方法及びエクストルーダ式成形方法などが挙げられる。ローラー式成形方法は、ローラー式成形機を用いる方法であり、ダイに接して回転されるローラーにより混合物がダイ内に圧入された後、ダイから押し出されて成形される。ローラー式成形機には、ダイの形状が異なるディスクダイ式（ローラーディスクダイ式成形機）とリングダイ式（ローラーリングダイ式成形機）が挙げられる。一方、エクストルーダ式成形方法は、エクストルーダ式成形機を用いる方法であり、スクリューオーガの回転により混合物がダイ内に圧入された後、ダイから押し出されて成形される。これらの圧縮成形方法のなかでは、特にローラーディスクダイ式成形方法を用いる方法が好ましい。この圧縮成形方法で用いられるローラーディスクダイ式成形機は圧縮効率が高く特に好適である。

[0060] 更に、本方法では下記特定のローラーディスクダイ式成形機５００（図３及び主要部を図６に例示）を用いてペレット化することが特に好ましい。即ち、複数の貫通孔５１１が穿設されたディスクダイ５１と、該ディスクダイ５１上で転動されて該貫通孔５１１内に非圧縮物（混合物）を押し込むプレ

スローラ５２と、該プレスローラ５２を駆動する主回転軸５３と、を備え、上記ディスクダイ５１は、上記貫通孔５１１と同方向に貫通された主回転軸挿通孔５１２を有し、上記主回転軸５３は、上記主回転軸挿通孔５１２に挿通され且つ該主回転軸５３に垂直に設けられたプレスローラ固定軸５４を有し、上記プレスローラ５２は、上記プレスローラ固定軸５４に回転可能に軸支されて上記主回転軸５３の回転に伴って上記ディスクダイ５１表面で転動されるローラーディスクダイ式成形部５０を有するローラーディスクダイ式成形機（ペレット化装置）５００である。

このローラーディスクダイ式成形機５００では、上記構成に加えて更に、上記プレスローラ５２は表面に凹凸５２１を備えるものであることが好ましい。また、主回転軸５３の回転に伴って回転される切断用ブレード５５を備えることが好ましい。

[0061] 上記ローラーディスクダイ式成形機５００では、例えば、図６においては、主回転軸５３の上方から投入された混合物をプレスローラ５２が備える表面凹凸５２１が捉えて貫通孔５１１内に押し込み、ディスクダイ５１の裏面側から押し出される。押し出された紐状の混合物は、切断用ブレード５５により適宜の長さに切断されてペレット化され、下方に落下されて回収される。

得られるペレットの形状及び大きさは特に限定されないが、柱状（その他の形状であってもよいが、円柱状が好ましい）であることが好ましい。また、その最大長さは１ｍｍ以上（通常２０ｍｍ以下）とすることが好ましく、１～１０ｍｍがより好ましく、２～７ｍｍが特に好ましい。

[0062] また、前述の第１の方法では、このペレット化工程を行うことで、本発明の熱可塑性樹脂組成物を得ることができるが、前記第２の方法では、ペレット化工程後に、得られたペレットと熱可塑性重合体成分（Ｃ）とを混合（ドライブレンド混合）するペレット混合工程と、その後に得られたペレット混合物を溶融混合する工程（第２の方法では射出成形することで溶融混合される）とを要する。

[0063] 上記ペレット混合工程では、ペレット化工程で得られたペレット（第１ペレット）と熱可塑性重合体成分（Ｃ）とをドライブレンド（即ち、各成分を溶融させることなく混合、更に換言すれば、通常各々の混合前の形状を維持して行う混合）することができればよく、どのような装置及び手段を用いてもよい。このペレット混合工程で用いるペレット混合装置（ペレットブレンダー）としては、ジャータンブラー、プラウシャーミキサー、パドルブレンダー、リボンブレンダー、ロータリーブレンダー、高速ロータリーブレンダー、Ｖ型ブレンダー、ヘンシェルミキサー及びスーパーミキサー等が挙げられる。これらは１種のみを用いてもよく２種以上を併用してもよい。

[0064] 上記射出成形工程は、第１の方法ではペレット化工程で得られたペレットを射出成形して熱可塑性組成物成形体を得る工程であり、第２の方法ではペレット混合物を射出成形して熱可塑性組成物（熱可塑性樹脂組成物からなる成形体）を得る工程である。

この射出成形における各種成形条件及び使用する装置等は特に限定されず、目的とする成形体及び性状、使用されている熱可塑性樹脂の種類等により適宜のものとすることが好ましい。

[0065] また、本方法では上記各工程以外に他の工程を備えることができる。他の工程としては、混合工程前に、用いる植物性材料を押し固めて原料ペレットを調製する工程（原料ペレット作製工程）が挙げられる。この原料ペレット作製工程を備えることで、植物性材料（Ａ）と他の成分｛熱可塑性樹脂（Ｂ）及び熱可塑性重合体成分（Ｃ）｝との間の比重差を小さくでき、作業性が向上され、混合の際の材料の偏在も抑制でき、各成分が相互に均一に分散された熱可塑性樹脂組成物を得ることができる。更に、得られる成形体は高い機械的強度を有する。

[0066] ［３］成形体

本発明の成形体は、前記第１の方法により得られた熱可塑性樹脂組成物（ペレット化された熱可塑性樹脂組成物）を射出成形してなる。射出成形については前述の通りである。本発明の成形体によれば、植物性材料を４０～９

５質量%と多く含みながら射出成形可能であり且つ耐衝撃性に優れる。特に大きな撓み量と適度な大きさの曲げ弾性率を備える。

また、本発明の熱可塑性樹脂組成物は植物性材料を４０～９５質量%と多く含みつつも、優れた流動性を有するため、成形時の計量時間（射出成形機における計量時間等）、及び射出時間などを短縮できる結果、成形サイクルが短縮されて、成形効率を向上させることができる。従って、優れた耐衝撃性を備える成形体を安価に効率よく製造することができる。

[0067] 本発明の成形体の形状、大きさ及び厚さ等は特に限定されない。また、その用途も特に限定されない。この成形体は、例えば、自動車、鉄道車両、船舶及び飛行機等の内装材、外装材及び構造材等として用いられる。このうち自動車用品としては、自動車用内装材、自動車用インストルメントパネル、自動車用外装材等が挙げられる。具体的には、ドア基材、パッケージトレー、ピラーガーニッシュ、スイッチベース、クオーターパネル、アームレストの芯材、自動車用ドアトリム、シート構造材、シートバックボード、天井材、コンソールボックス、自動車用ダッシュボード、各種インストルメントパネル、デッキトリム、バンパー、スポイラー及びカウリング等が挙げられる。更に、例えば、建築物及び家具等の内装材、外装材及び構造材が挙げられる。即ち、ドア表装材、ドア構造材、各種家具（机、椅子、棚、箪笥など）の表装材、構造材等が挙げられる。その他、包装体、収容体（トレイ等）、保護用部材及びパーティション部材等が挙げられる。

実施例

[0068] 以下、実施例を用いて本発明を具体的に説明する。

［１］熱可塑性樹脂組成物の製造

（１）実験例１～１７（実施例１～５、９～１２及び１４～１７）

下記に示す各植物性材料（Ａ）、熱可塑性樹脂（Ｂ）、熱可塑性重合体成分（Ｃ）を、表１及び表２に示す組合せ及び配合量で用い、混合溶融装置１（株式会社エムアンドエフ・テクノロジー製、ＷＯ２００４－０７６０４４号に示された器機）の材料供給室（図４の１３）に投入［各植物性材料（Ａ

）と熱可塑性樹脂（Ｂ）と熱可塑性重合体成分（Ｃ）とで合計７００ｇ｝した後、混合室（容量５Ｌ、図４の３）内で混合した。この混合に際して混合羽根（図３の１０及び図５の１０ａ～１０ｆ）は回転速度２０００ｒｐｍで回転させた。そして、混合羽根にかかる負荷（トルク）が上昇し、最大値に達して（１００％を超えて）６秒後を終点として混合を停止して、得られた混合物（ペレット化前の熱可塑性樹脂組成物）を混合溶融装置から排出した。

[0069] その後、得られた混合物を破砕機（株式会社ホーライ製、形式「Ｚ１０－４２０」）を用いて５．０ｍｍ程度に破砕した後、ローラーディスクダイ式成形機５００｛株式会社菊川鉄工所製、形式「ＫＰ２８０」、貫通孔径（図６の５１１）４．２ｍｍ｝に、フィダー周波数２０Ｈｚで投入し、各混合物を直径約４ｍｍ且つ長さ約５ｍｍの円柱状のペレットにした。その後、得られたペレットをオーブンにて１００℃で２４時間乾燥させて、実験例１～１７の熱可塑性樹脂組成物を得た。尚、実験例２と実験例１０、実験例８と実験例１３は、それぞれ同じ熱可塑性樹脂組成物である。

[0070]

[表1]

表　1

実験例 (＊は比較例)	1	2	3	4	5	＊6	＊7	＊8
ケナフコア (質量%)	40	50	60	－	60	60	－	50
ケナフ繊維 (質量%)	－	－	－	60	－	－	60	－
ＰＰ (質量%)	47.5	37.5	27.5	27.5	30	40	40	40
酸変性ＰＰ (質量%)	2.5	2.5	2.5	2.5	－	＊－	＊－	＊－
ＴＰＳ (質量%)	10	10	10	10	－	＊－	＊－	10
酸変性ＴＰＳ (質量%)	－	－	－	－	10	＊－	＊－	－
撓み量 (mm)	20	13	10	18	8	2.5	3	3.5
曲げ弾性率 (MPa)	2000	2400	2800	3200	2900	4500	5000	2300

[0071]

[表2]

表　2

実験例 (＊ は比較例)	9	10	11	12	＊13	14	15	16	17
ケナフコア (質量%)	50				50				
ＰＰ (質量%)	42.5	37.5	32.5	27.5	40.0	39.0	35.0	32.5	30.0
酸変性ＰＰ (質量%)	2.5	2.5	2.5	2.5	＊ －	1.0	5.0	7.5	10
ＴＰＳ (質量%)	5	10	15	20	10	10	10	10	10
撓み量 (mm)	11	13	16	20	3.5	12	13	14	14
曲げ弾性率 (MPa)	2700	2400	2200	2050	2300	2300	2400	2450	2400

[0072] ［植物性材料（Ａ）］

「ケナフコア」；粒径１．０ｍｍ以下のケナフコアの破砕物（ケナフコアを破砕後、目開き１．０ｍｍ円孔板篩の篩下として選別）。

「ケナフ繊維」；平均繊維長３ｍｍのケナフ繊維（ケナフ繊維の裁断物を篩選別後、ＪＩＳ　Ｌ１０１５に準拠して、直接法にて無作為に単繊維を１本ずつ取り出し、伸張させずにまっすぐに伸ばし、置尺上で繊維長を測定し、合計２００本についての平均値）。

[0073] ［熱可塑性樹脂（Ｂ）］

「ＰＰ」　　；ポリプロピレン樹脂（日本ポリプロ株式会社製、品名「ノバティックＮＢＸ０３ＨＲＳ」）

[0074] ［熱可塑性重合体成分（$Ｃ_1$）］

「ＴＰＳ」　　；水素添加型スチレン・ブタジエン共重合体（スチレン系熱可塑性エラストマー、旭化成株式会社製、品名「タフテック　Ｈ１２２１」、ショアＡ硬度４２、スチレン含有量１２質量%）

「酸変性ＰＰ」；無水マレイン酸変性ポリプロピレン（酸変性熱可塑性樹脂、三洋化成工業株式会社製、品名「ユーメックス　＃１００１」、ベースポリマーがポリプロピレン、重量平均分子量が４０，０００、溶融粘度が１６，０００ｍＰａ・ｓ、酸価が２６）。

[0075] ［熱可塑性重合体成分（C_2）］

「酸変性ＴＰＳ」；酸変性水素添加型スチレン・ブタジエン共重合体（酸変性スチレン系熱可塑性エラストマー、旭化成株式会社製、品名「タフテック　Ｈ１９４３」、ショアＡ硬度６７、酸価１０、スチレン含有量２０質量％）

[0076] ［２］成形体の製造

上記［１］で得られた実験例１～１７の各熱可塑性樹脂組成物を射出成形機（住友重機械工業株式会社製、形式「ＳＥ１００ＤＵ」）に各々投入し、シリンダー温度１９０℃、型温度４０℃の条件で、各種試験片（長さ８０ｍｍ×幅１０ｍｍ×厚さ４ｍｍ）を成形した。

[0077] ［３］成形体の評価

上記［２］で得られた実験例１～１７の成形体の曲げ弾性率及び撓み量を測定した。このうち曲げ弾性率については、各試験片を支点間距離（Ｌ）６４ｍｍとした２つの支点（曲率半径５ｍｍ）で支持しつつ、支点間中心に配置した作用点（曲率半径５ｍｍ）から速度２ｍｍ／分にて荷重の負荷を行い測定した（ＪＩＳ　Ｋ７１７１に準拠）。また、撓み量については、曲げ試験における破断点までの作用点のストローク量を計測することで測定を行った。この結果は上記表１及び上記表２に併記した。更に、実験例９～１２より、スチレン系熱可塑性エラストマーの含有量と撓み量及び曲げ弾性率との相関を図１に、実験例１３～１７より、酸変性熱可塑性樹脂の含有量と撓み量及び曲げ弾性率との相関を図２に、各々グラフとして示した。

[0078] ［４］実施例の効果

表１より、実験例６（比較例）は、熱可塑性重合体成分（Ｃ）を含まない例であり、その撓み量は２．５ｍｍであり、曲げ弾性率は４５００ＭＰａで

ある。

これに対して、実験例８（比較例）は、実験例６（比較例）におけるケナフコアの一部に換えてスチレン系熱可塑性エラストマー（ＴＰＳ）を含有させた例であり、その撓み量は３．５ｍｍであり、曲げ弾性率は２３００ＭＰａである。即ち、植物性材料の一部に換えてＴＰＳを含有させることで曲げ弾性率は大きく低下（－４９％）させることができたものの、撓み量は１．４倍となるにとどまることが分かる。

上記実験例８（比較例）に対して、実験例２（実施例）は、実験例８におけるＰＰの一部に換えて酸変性ＰＰを含有させた例であり、その撓み量は１３ｍｍであり、曲げ弾性率は２４００ＭＰａである。即ち、ＰＰの一部を酸変性ＰＰに換えることで曲げ弾性率をほぼ変化させずに、撓み量は３．７倍（実験例６に対しては５．２倍）もの大きさに飛躍的に向上されていることが分かる。このことから、ＴＰＳだけでなく、酸変性ＰＰを併用することで飛躍的な耐衝撃性の向上が得られることが分かる。

[0079] また、実験例６（比較例）に対して、実験例６の熱可塑性樹脂（Ｂ）の一部を、熱可塑性重合体成分（C_1）で置換した組成に相当する実験例３（実施例）では、撓み量が１０ｍｍであり、曲げ弾性率が２８００ＭＰａである。即ち、熱可塑性重合体成分（C_1）の配合により、撓み量は４倍と飛躍的に向上され、曲げ弾性率は６２％まで低下させることができた。

同様に、実験例６（比較例）の熱可塑性樹脂（Ｂ）の一部を、熱可塑性重合体成分（C_2）で置換した組成に相当する実験例５（実施例）では、撓み量が８ｍｍであり、曲げ弾性率が２９００ＭＰａである。即ち、熱可塑性重合体成分（C_2）の配合により、撓み量は３．２倍と飛躍的に向上され、曲げ弾性率は６４％まで低下させることができた。

また、実験例７（比較例）は、撓み量が３ｍｍであり、曲げ弾性率が５０００ＭＰａである。これに対して、実験例７の熱可塑性樹脂（Ｂ）の一部を、熱可塑性重合体成分（C_1）で置換した組成に相当する実験例４（実施例）では、撓み量が１８ｍｍであり、曲げ弾性率が３２００ＭＰａである。即ち

、熱可塑性重合体成分（C_1）の配合により、撓み量は６倍と飛躍的に向上され、曲げ弾性率は６４％まで低下させることができた。

[0080] 更に、表２及び図１より、酸変性ＰＰの配合量を固定したままで、ＴＰＳの配合量を大きくすると、図１に示すように、撓み量は大きくなると共に、曲げ弾性率は低下させることができる。

また、表２及び図２より、ＴＰＳの配合量を固定したままで、酸変性ＰＰの配合量を大きくすると、撓み量を飛躍的に大きくできることが分かる。従って、ＴＰＳと酸変性ＰＰとの両方の配合により、撓み量を大きくしつつも、曲げ弾性率を適度な大きさにコントロールできることが分かる。この結果、ＰＰと植物性材料とのみを混合した成形体に比べて、飛躍的に大きな撓みを発揮させることができると共に、割れるときには過度な応力を蓄積することなく割れるという実用性に優れた熱可塑性樹脂組成物及び成形体が得られることが分かる。

産業上の利用可能性

[0081] 本発明の熱可塑性組成物及びその製造方法並びに成形体は、自動車関連分野及び建築関連分野などにおいて広く利用される。特に自動車、鉄道車両、船舶及び飛行機等の内装材、外装材及び構造材等に好適であり、なかでも自動車用品としては、自動車用内装材、自動車用インストルメントパネル、自動車用外装材等に好適である。具体的には、ドア基材、パッケージトレー、ピラーガーニッシュ、スイッチベース、クオーターパネル、アームレストの芯材、自動車用ドアトリム、シート構造材、シートバックボード、天井材、コンソールボックス、自動車用ダッシュボード、各種インストルメントパネル、デッキトリム、バンパー、スポイラー及びカウリング等が挙げられる。更に、例えば、建築物及び家具等の内装材、外装材及び構造材にも好適である。具体的には、ドア表装材、ドア構造材、各種家具（机、椅子、棚、箪笥など）の表装材、構造材等が挙げられる。その他、包装体、収容体（トレイ等）、保護用部材及びパーティション部材等としても好適である。

請求の範囲

[請求項1] 植物性材料（Ａ）と、熱可塑性樹脂（Ｂ）と、下記熱可塑性重合体成分（$Ｃ_1$）及び下記熱可塑性重合体成分（$Ｃ_2$）のうちの少なくとも一方の熱可塑性重合体成分（Ｃ）と、を含有し、

上記植物性材料（Ａ）、上記熱可塑性樹脂（Ｂ）及び上記熱可塑性重合体成分（Ｃ）の合計を１００質量%とした場合に、該植物性材料が４０～９５質量%であることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物。

（$Ｃ_1$）；スチレン系熱可塑性エラストマー及び酸変性熱可塑性樹脂

（$Ｃ_2$）；酸変性スチレン系熱可塑性エラストマー

[請求項2] 上記熱可塑性重合体成分（Ｃ）は１～３０質量%である請求項１に記載の熱可塑性樹脂組成物。

[請求項3] 上記熱可塑性重合体成分（$Ｃ_1$）のスチレン系熱可塑性エラストマーは、水素添加型スチレン系熱可塑性エラストマーである請求項１又は２に記載の熱可塑性樹脂組成物。

[請求項4] 上記熱可塑性樹脂（Ｂ）は、ポリプロピレン及び／又はエチレン・プロピレン共重合体である請求項３に記載の熱可塑性樹脂組成物。

[請求項5] 上記酸変性熱可塑性樹脂は、酸価が５以上であり且つ重量平均分子量が１０，０００～２００，０００である酸変性ポリプロピレンである請求項４に記載の熱可塑性樹脂組成物。

[請求項6] 上記熱可塑性重合体成分（$Ｃ_2$）の酸変性スチレン系熱可塑性エラストマーは、酸変性された水素添加型スチレン系熱可塑性エラストマーである請求項１又は２に記載の熱可塑性樹脂組成物。

[請求項7] 請求項１乃至６のうちのいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物の製造方法であって、

混合溶融装置を用いて、上記熱可塑性樹脂（Ｂ）及び上記熱可塑性重合体成分（Ｃ）を溶融させながら上記植物性材料（Ａ）と混合する混合工程と、

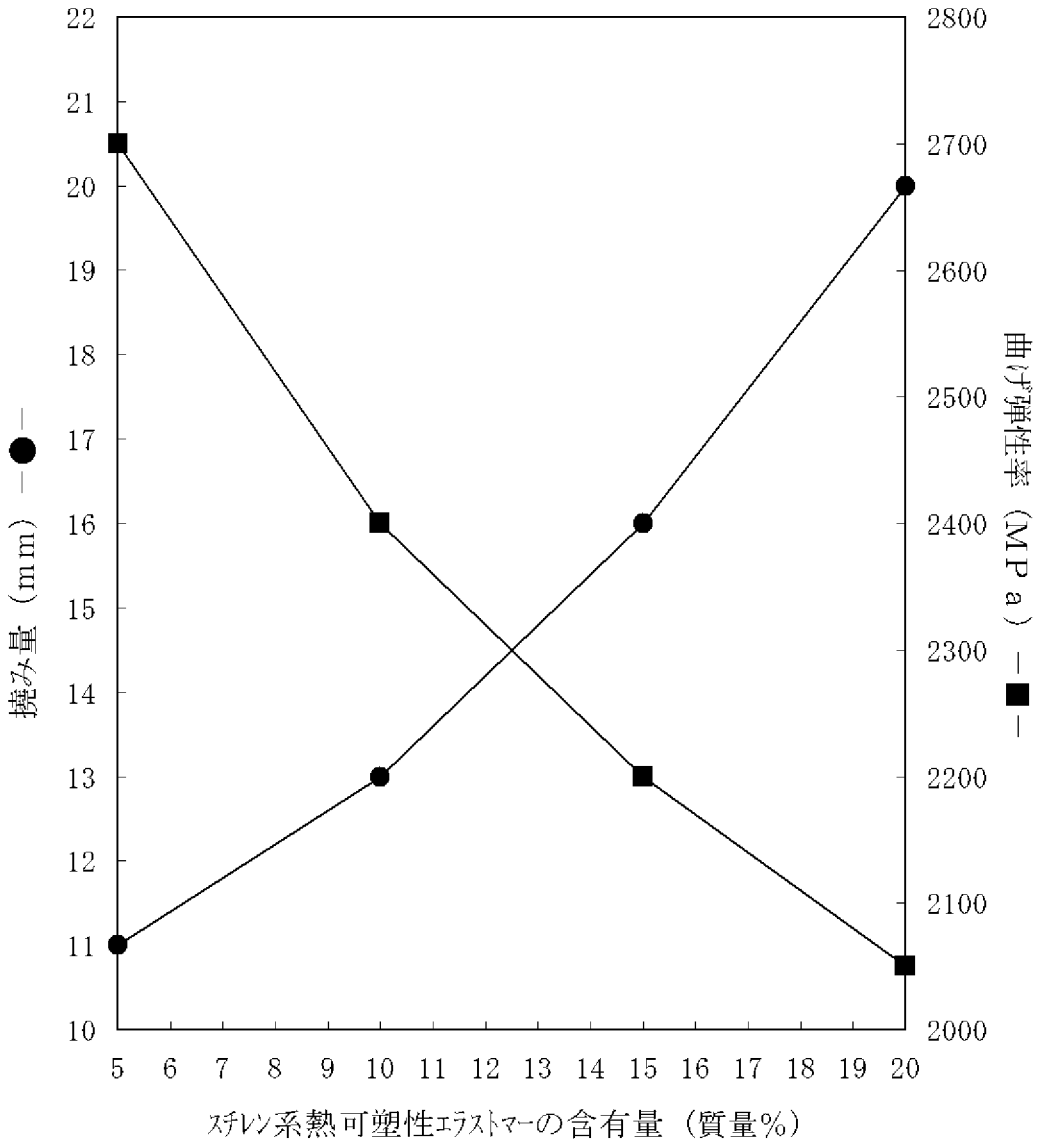
上記混合工程で得られた混合物を、押し固めてペレットを得るペレット化工程と、を備えることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物の製造方法。

[請求項8] 上記混合溶融装置は、上記混合を行う混合室及び該混合室内に配置された混合羽根を備え、

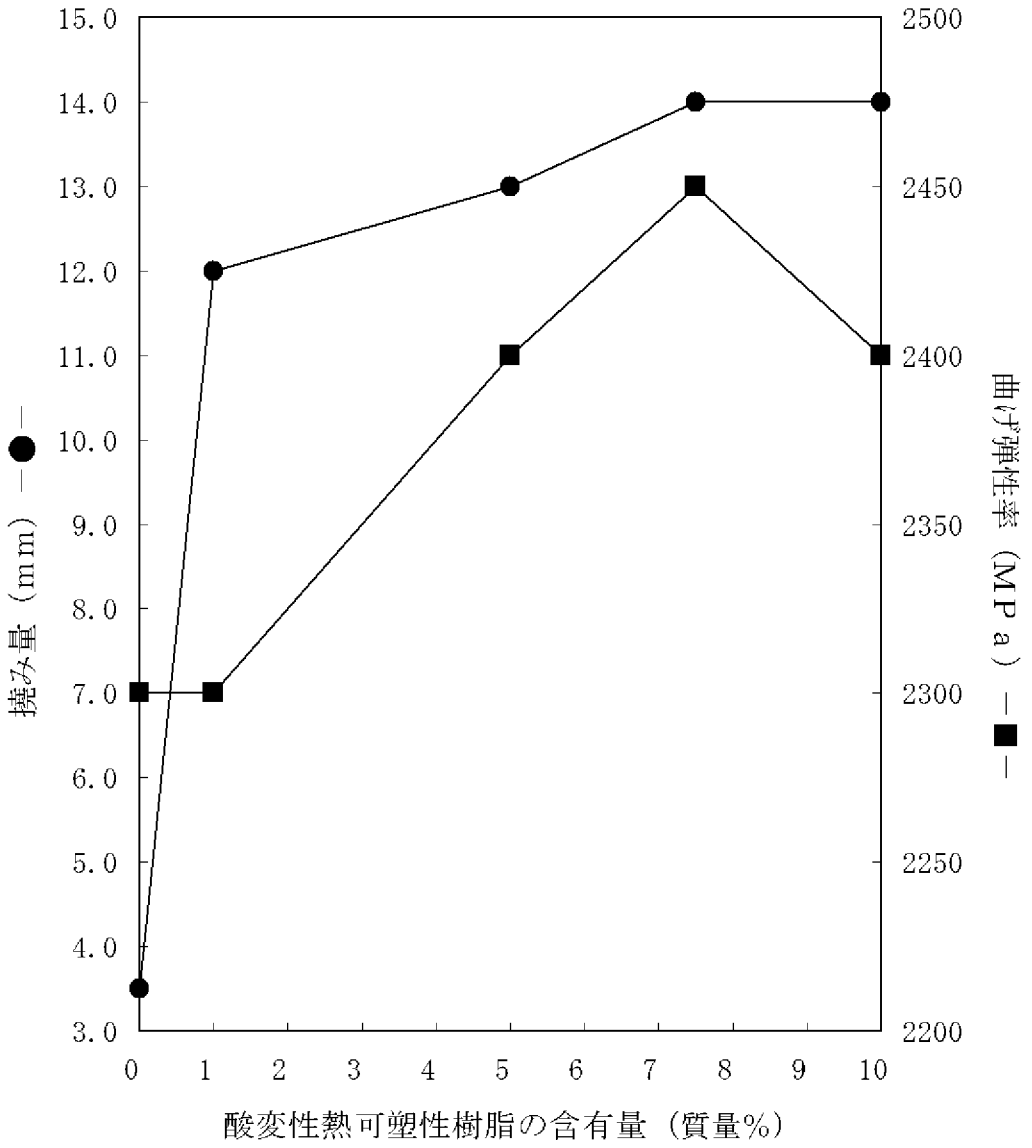
上記混合工程は、上記混合室中で上記混合羽根の回転により溶融された上記熱可塑性樹脂（Ｂ）及び上記熱可塑性重合体成分（Ｃ）と上記植物性材料（Ａ）とを混合する請求項７に記載の熱可塑性樹脂組成物の製造方法。

[請求項9] 請求項１乃至６のうちのいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物が射出成形されてなることを特徴とする成形体。

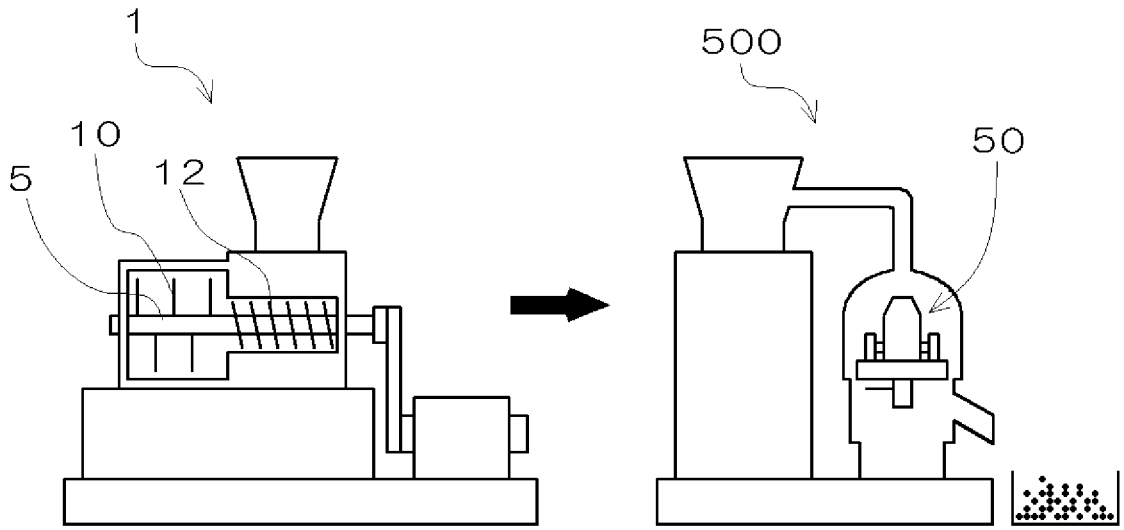
[図1]


撓み量（mm）
曲げ弾性率（MPa）
スチレン系熱可塑性エラストマーの含有量（質量%）
22
21
20
19
18
17
16
15
14
13
12
11
10
2800
2700
2600
2500
2400
2300
2200
2100
2000
5 6 7 8 9 10 11 12 13 14 15 16 17 18 19 20

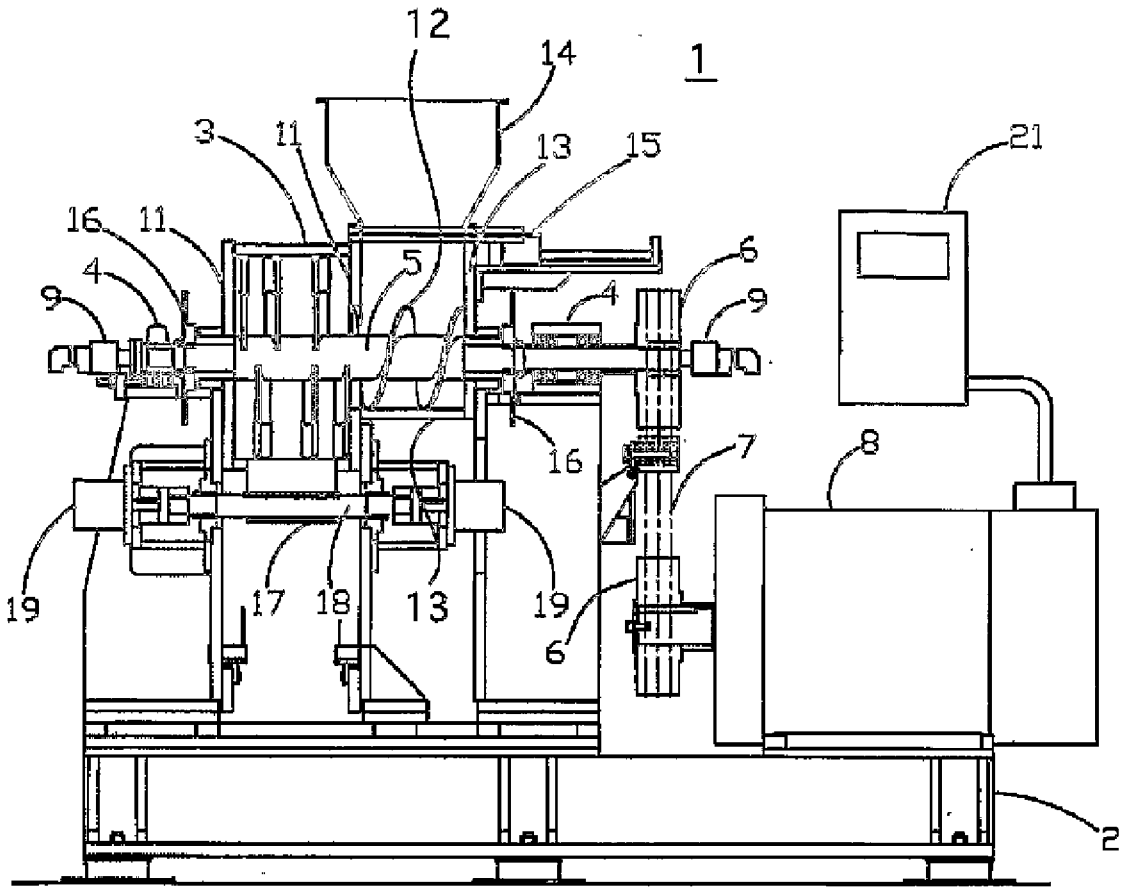
[図2]


15.0
14.0
13.0
12.0
11.0
10.0
9.0
8.0
7.0
6.0
5.0
4.0
3.0
2500
2450
2400
2350
2300
2250
2200
0
1
2
3
4
5
6
7
8
9
10
撓み量（mm）
曲げ弾性率（MPa）
酸変性熱可塑性樹脂の含有量（質量%）

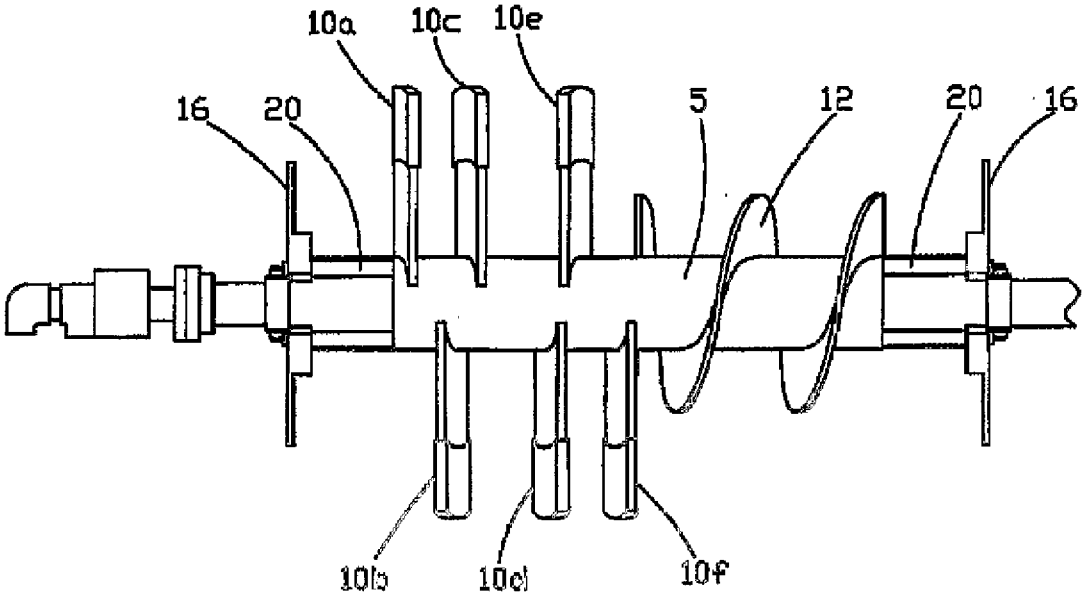
[図3]


1
10
12
5
500
50
混合工程
ペレット化工程

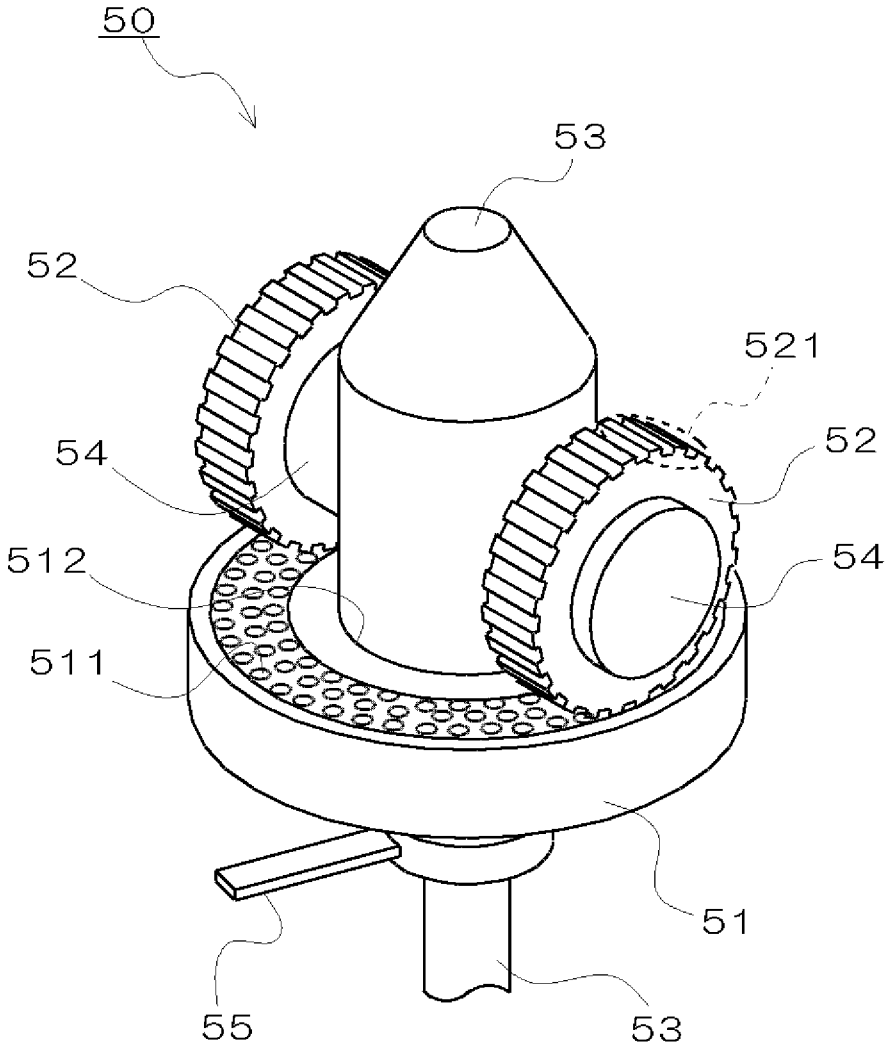
[図4]


12
14
1
3
11
13
15
21
16
11
5
6
4
9
4
9
16
7
8
19
17
18
13
19
6
2

[図5]


10a
10c
10e
16
20
5
12
20
16
10b
10d
10f

[図6]


50
53
52
521
54
52
512
54
511
51
55
53

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2009/059461

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08L97/02(2006.01)i, *C08L23/10*(2006.01)i, *C08L23/16*(2006.01)i, *C08L23/26*(2006.01)i, *C08L53/02*(2006.01)i, *C08L101/00*(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)
C08L97/02, C08L23/10, C08L23/16, C08L23/26, C08L53/02, C08L101/00

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 1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2009 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2009

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.
X Y	JP 10-265614 A (Techno Polymer Co., Ltd.), 06 October, 1998 (06.10.98), Claims; Par. Nos. [0025] to [0026]; examples (Family: none)	1-3,5,9 7,8
X Y	WO 2003/070824 A1 (Asahi Kasei Corp.), 28 August, 2003 (28.08.03), Claims; page 5, lines 3 to 8; examples & US 2005/0154094 A1 & EP 1477524 A1 & HK 1080102 A & TW 257403 B & CN 1636033 A	1,2,4,9 7,8

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

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

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
25 June, 2009 (25.06.09)	07 July, 2009 (07.07.09)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2009/059461

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2004/076044 A1 (M & F Technology Co., Ltd.), 10 September, 2004 (10.09.04), Claims & JP 2006-263727 A & US 2007/0003654 A1 & EP 1604732 A1 & HK 1071092 A & CN 1756592 A	7,8
A	JP 2004-155955 A (Ube Industries, Ltd.), 03 June, 2004 (03.06.04), Claims; full text (Family: none)	1-9
A	JP 2004-155956 A (Ube Industries, Ltd.), 03 June, 2004 (03.06.04), Claims; full text (Family: none)	1-9
A	JP 09-157486 A (Japan Synthetic Rubber Co., Ltd.), 17 June, 1997 (17.06.97), Claims; full text (Family: none)	1-9
A	JP 09-040877 A (Japan Synthetic Rubber Co., Ltd.), 10 February, 1997 (10.02.97), Claims; full text (Family: none)	1-9
A	JP 2002-003693 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 09 January, 2002 (09.01.02), Claims; full text (Family: none)	1-9

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２００９／０５９４６１

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08L97/02(2006.01)i, C08L23/10(2006.01)i, C08L23/16(2006.01)i, C08L23/26(2006.01)i, C08L53/02(2006.01)i, C08L101/00(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.　C08L97/02, C08L23/10, C08L23/16, C08L23/26, C08L53/02, C08L101/00

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	１９７１－２００９年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２００９年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２００９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
X Y	JP 10-265614 A (テクノポリマー株式会社) 1998.10.06, 特許請求の範囲、【0025】-【0026】、実施例（ファミリーなし）	1-3,5,9 7,8
X Y	WO 2003/070824 A1 (旭化成株式会社) 2003.08.28, 特許請求の範囲、第５頁第３－８行、実施例 & US 2005/0154094 A1 & EP 1477524 A1 & HK 1080102 A & TW 257403 B & CN 1636033 A	1,2,4,9 7,8

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

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と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

国際調査を完了した日 ２５．０６．２００９	国際調査報告の発送日 ０７．０７．２００９
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 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）　４Ｊ　９２８６ 阪野　誠司 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４５７

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
Y	WO 2004/076044 A1 (株式会社エムアンドエフ・テクノロジー) 2004.09.10, 特許請求の範囲 & JP 2006-263727 A & US 2007/0003654 A1 & EP 1604732 A1 & HK 1071092 A & CN 1756592 A	7,8
A	JP 2004-155955 A (宇部興産株式会社) 2004.06.03, 特許請求の範囲、全文（ファミリーなし）	1-9
A	JP 2004-155956 A (宇部興産株式会社) 2004.06.03, 特許請求の範囲、全文（ファミリーなし）	1-9
A	JP 09-157486 A (日本合成ゴム株式会社) 1997.06.17, 特許請求の範囲、全文（ファミリーなし）	1-9
A	JP 09-040877 A (日本合成ゴム株式会社) 1997.02.10, 特許請求の範囲、全文（ファミリーなし）	1-9
A	JP 2002-003693 A (三井化学株式会社) 2002.01.09, 特許請求の範囲、全文（ファミリーなし）	1-9