

(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7月3日(03.07.2025)



(10) 国際公開番号

WO 2025/142173 A1

(51) 国際特許分類:

C08L 67/02 (2006.01) *C08L 23/00* (2006.01)
C08K 7/14 (2006.01) *C08L 51/04* (2006.01)
C08K 9/04 (2006.01) *C08L 63/00* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2024/040325

(22) 国際出願日: 2024年11月13日(13.11.2024)

(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 2023-219541 2023年12月26日(26.12.2023) JP

(71) 出願人: ポリプラスチック株式会社 (POLYPLASTICS CO., LTD.) [JP/JP];
〒1088280 東京都港区港南二丁目1
8番1号 (JP).

(72) 発明者: 斎藤 樹(SAITO Itsuki); 〒4168533 静岡県富士市宮島973番地 ポリプラスチック株式会社内 (JP). 五島 一也(GOSHIMA Kazuya); 〒4168533 静岡県富士市宮島973番地 ポリプラスチック株式会社内 (JP). 深津 博樹(FUKATSU Hiroki); 〒4168533 静岡県富士市宮島973番地 ポリプラスチック株式会社内 (JP).

(74) 代理人: 三好 秀和, 外(MIYOSHI Hidekazu et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門一丁目2番8号 虎ノ門琴平タワー (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, 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))

(54) Title: POLYBUTYLENE TEREPHTHALATE RESIN COMPOSITION AND INSERT MOLDED ARTICLE

(54) 発明の名称: ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物及びインサート成形品

(57) Abstract: Disclosed is a polybutylene terephthalate resin composition comprising: a polybutylene terephthalate resin (A); glass fibers (B) which have been surface-treated with a sizing agent containing an epoxy resin and a polymer that includes a structural unit derived from a carboxylic acid anhydride and/or a carboxylic acid; an elastomer (C); and an epoxidized natural oil (D), wherein the content of the epoxidized natural oil is 2.0-8.0 parts by mass with respect to 100 parts by mass of the polybutylene terephthalate resin (A).

(57) 要約: ポリブチレンテレフタレート樹脂 (A) と、カルボン酸及び／又はカルボン酸無水物を由来とする構成単位を含む重合体とエポキシ樹脂とを含有する集束剤で表面処理されたガラス繊維 (B) と、エラストマー (C) と、エポキシ化天然油 (D) とを含み、エポキシ化天然油の含有量がポリブチレンテレフタレート樹脂 (A) 100質量部に対し、2.0～8.0質量部である、ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物が開示される。

WO 2025/142173 A1

明 細 書

発明の名称：

ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物及びインサート成形品

技術分野

[0001] 本発明の実施形態は、ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物及びインサート成形品に関する。

背景技術

[0002] ポリブチレンテレフタレート樹脂（以下、「P B T樹脂」とも呼ぶ。）は、機械特性、電気特性、耐熱性、成形性に優れている。特に、ガラス繊維を加えることで機械特性や耐熱性が向上することから、自動車用部品、電気電子機器用部品、精密機器用部品等、様々な分野に幅広く使用されている。そのような部品は射出成形により生産されることが多く、押出機で熔融したP B T樹脂、チョップドストランド状のガラス繊維及び各種添加剤を混練し、ペレット状に加工したガラス繊維強化P B T樹脂組成物が使用される。

[0003] 一方、P B T樹脂は、分子中にエステル基を有しているため、高温多湿な環境下では加水分解が起こりやすく、環境変化の大きい自動車用部品においては、常に耐加水分解性の向上が望まれている。例えば、自動車用部品では安全性や自動運転などを制御するセンサーやE C U等の筐体にガラス繊維等で強化されたP B T樹脂が使用されており、端子やカラー等の金属部品と複合されるためヒートショックによる割れを生じる場合がある。特に湿熱環境下ではP B T樹脂が加水分解されることで、割れが促進される。

[0004] P B T樹脂自体の耐加水分解性を向上させるに当たり、末端カルボキシル基量を低減するためにエポキシ樹脂又はカルボジイミド化合物を添加することが一般的に知られている（特許文献1～2参照）。

[0005] 特許文献1には、末端カルボキシル基量が 30 meq/kg 以下であるP B T樹脂とカルボジイミド化合物、繊維状充填剤、エラストマーからなる樹脂組成物についてP B T樹脂の末端カルボキシル基量を1とした場合、カル

ボジイミド官能基量が0.3～1.5当量を配合することで耐ヒートショック性及び耐加水分解性が改善されることが示されている。

[0006] 特許文献2には、末端カルボキシル基濃度が0.1 $\mu\text{eq/g}$ 以上6 $\mu\text{eq/g}$ 未満、固有粘度が0.75～1 dL/gのPBT樹脂にエポキシ化合物を配合することで耐加水分解性が改善されることが示されている。

[0007] また、ガラス繊維自体も集束剤にエポキシ樹脂を用いることで耐加水分解性を改善できることが知られている（特許文献3～4参照）。特許文献3には、不飽和カルボン酸及び／又は不飽和カルボン酸の無水物と不飽和単量体との共重合体及びエポキシ樹脂を必須成分とする集束剤で表面処理されたガラス繊維を用いることが示されている。また特許文献4には、ノボラック型エポキシ樹脂を含有する表面処理ガラス繊維が長期耐熱性に優れることが示されている。

[0008] さらに、特許文献5には、熱可塑性ポリエステル樹脂にエポキシ化天然油と非創生樹脂非晶性樹脂と繊維状強化材を配合することで、耐加水分解性に優れ、湿熱環境下での溶出を抑制できることが示されている。

先行技術文献

特許文献

[0009] 特許文献1：国際公開第2009/150831号

特許文献2：特開2004-277718号公報

特許文献3：特開2003-201671号公報

特許文献4：特開2015-129073号公報

特許文献5：特開2019-116613号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0010] 上記の通り、PBT樹脂の耐加水分解性及び耐ヒートショック性を改善するための提案がなされているものの、未だ十分ではなく更なる向上が期待されている。

[0011] 本発明の実施形態は、耐加水分解性及び耐ヒートショック性が従来よりも向上した、ガラス繊維で強化されたPBT樹脂組成物及びインサート成形品を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

[0012] 本発明者らは、前記課題を解決するために鋭意検討した結果、PBT樹脂と、カルボン酸等を由来とする構成単位を含む重合体とエポキシ樹脂とを含有する集束剤により表面処理されたガラス繊維と、エラストマーと、エポキシ化天然油とを配合することで従来に比べ、耐加水分解性及び耐ヒートショック性が大幅に向上することを見出し、本発明を完成するに至った。

[0013] 本発明の実施形態は、ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）と、カルボン酸及び／又はカルボン酸無水物を由来とする構成単位を含む重合体とエポキシ樹脂とを含有する集束剤で表面処理されたガラス繊維（B）と、エラストマー（C）と、エポキシ化天然油（D）と、を含み、前記エポキシ化天然油の含有量が前記ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）100質量部に対し、2.0～8.0質量部である、ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物に関する。

[0014] 本発明の他の実施形態は、前記ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物とインサート部材とを有する、インサート成形品に関する。

発明の効果

[0015] 本発明の実施形態によれば、耐加水分解性と耐ヒートショック性が従来よりも向上したガラス繊維強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物及びインサート成形品を提供することができる。

発明を実施するための形態

[0016] ＜PBT樹脂組成物＞

本実施形態のPBT樹脂組成物は、PBT樹脂（A）と、カルボン酸及び／又はカルボン酸無水物を由来とする構成単位を含む重合体とエポキシ樹脂とを含有する集束剤で表面処理されたガラス繊維（B）と、エラストマー（C）と、エポキシ化天然油（D）とを含む。そして、エポキシ化天然油の含

有量がポリブチレンテレフタレート樹脂（A）100質量部に対し、2.0～8.0質量部である。

[0017] 本実施形態のPBT樹脂組成物においては、PBT樹脂（A）と、カルボン酸等を由来とする構成単位を含む重合体と、エポキシ樹脂とを含有する集束剤により表面処理されたガラス繊維（B）と、エラストマー（C）と、エポキシ化天然油（D）とを含有し、それらの成分が相まって、耐加水分解性及び耐ヒートショック性を大幅に向上させることができる。

[0018] 以下に、本実施形態のPBT樹脂組成物の各成分について説明する。

[0019] [ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）]

PBT樹脂（A）は、少なくともテレフタル酸又はそのエステル形成性誘導体（C1-6のアルキルエステルや酸ハロゲン化物等）を含むジカルボン酸成分と、少なくとも炭素原子数4のアルキレングリコール（1,4-ブタンジオール）又はそのエステル形成性誘導体（アセチル化物等）を含むグリコール成分とを重縮合して得られるPBT系樹脂である。PBT樹脂（A）はホモポリブチレンテレフタレート樹脂に限らず、ブチレンテレフタレート単位を60モル%以上（特に75モル%以上95モル%以下）含有する共重合体であってもよい。

[0020] また、本実施形態において、PBT樹脂の原料である1,4-ブタンジオールブタンジオール及びテレフタル酸又はテレフタル酸アルキルエステルは化石資源由来又はバイオマス資源由来のいずれでもよい。

[0021] PBT樹脂（A）のカルボン酸末端基量は、 5 meq/kg 以上 30 meq/kg 以下が好ましく、 5 meq/kg 以上 20 meq/kg 以下がより好ましい。かかる範囲の末端カルボキシル基量のPBT樹脂を用いることで、得られるPBT樹脂組成物が湿熱環境下での加水分解による強度低下を受けにくくなる。

[0022] PBT樹脂（A）の固有粘度（IV）は 0.70 dL/g 以上 1.10 dL/g 以下であることが好ましく、より好ましくは 0.80 dL/g 以上 1.00 dL/g 以下であり、さらに好ましくは 0.83 dL/g 以上 0.9

0 dL / g 以下である。かかる範囲の固有粘度のPBT樹脂を用いる場合には、得られるPBT樹脂組成物の耐加水分解性と成形性に優れたものとなる。また、異なる固有粘度を有するPBT樹脂をブレンドして、固有粘度を調整することもできる。例えば、固有粘度1.0 dL / gのPBT樹脂と固有粘度0.8 dL / gのPBT樹脂とをブレンドすることにより、固有粘度0.85 dL / gのPBT樹脂を調製することができる。PBT樹脂(A)の固有粘度(IV)は、例えば、o-クロロフェノール中で温度35℃の条件で測定することができる。

[0023] PBT樹脂(A)において、テレフタル酸及びそのエステル形成性誘導体以外のジカルボン酸成分(モノマー成分)としては、例えば、イソフタル酸、フタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、4,4'-ジカルボキシジフェニルエーテル等のC8-14の芳香族ジカルボン酸；コハク酸、アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸等のC4-16のアルカンジカルボン酸；シクロヘキサンジカルボン酸等のC5-10のシクロアルカンジカルボン酸；これらのジカルボン酸成分のエステル形成性誘導体(C1-6のアルキルエステル誘導体や酸ハロゲン化物等)が挙げられる。これらのジカルボン酸成分は、単独で又は2種以上を組み合わせ使用できる。

[0024] これらのジカルボン酸成分の中では、イソフタル酸等のC8-12の芳香族ジカルボン酸、及び、アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸等のC6-12のアルカンジカルボン酸がより好ましい。

[0025] PBT樹脂(A)において、1,4-ブタンジオール以外のグリコール成分(モノマー成分)としては、例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、トリメチレングリコール、1,3-ブチレングリコール、ヘキサメチレングリコール、ネオペンチルグリコール、1,3-オクタンジオール等のC2-10のアルキレングリコール；ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ジプロピレングリコール等のポリオキシアルキレングリコール；シクロヘキサンジメタノール、水素化ビスフェノールA等の脂環式ジオール；ビスフェノールA、4,4'-ジヒドロキシビフェニル等の芳香

族ジオール；ビスフェノールAのエチレンオキサイド2モル付加体、ビスフェノールAのプロピレンオキサイド3モル付加体等の、ビスフェノールAのC2-4のアルキレンオキサイド付加体；又はこれらのグリコールのエステル形成性誘導体（アセチル化物等）が挙げられる。これらのグリコール成分は、単独で又は2種以上を組み合わせ使用できる。

[0026] これらのグリコール成分の中では、エチレングリコール、トリメチレングリコール等のC2-6のアルキレングリコール、ジエチレングリコール等のポリオキシアルキレングリコール、又は、シクロヘキサジメタノール等の脂環式ジオール等がより好ましい。ジカルボン酸成分及びグリコール成分の他に使用できるモノマー成分としては、例えば、4-ヒドロキシ安息香酸、3-ヒドロキシ安息香酸、6-ヒドロキシ-2-ナフトエ酸、4-カルボキシ-4'-ヒドロキシビフェニル等の芳香族ヒドロキシカルボン酸；グリコール酸、ヒドロキシカプロン酸等の脂肪族ヒドロキシカルボン酸；プロピオラクトン、ブチロラクトン、バレロラクトン、カプロラクトン（ε-カプロラクトン等）等のC3-12ラクトン；これらのモノマー成分のエステル形成性誘導体（C1-6のアルキルエステル誘導体、酸ハロゲン化物、アセチル化物等）が挙げられる。

[0027] 以上説明したモノマー成分を共重合したポリブチレンテレフタレート共重合体は、いずれもPBT樹脂（A）として好適に使用できる。また、PBT樹脂（A）として、ホモポリブチレンテレフタレート重合体とポリブチレンテレフタレート共重合体とを組み合わせ使用してもよい。

[0028] PBT樹脂（A）は市場回収品を使用することができる（マテリアルリサイクル）。また、PBT樹脂廃棄物から1,4-ブタンジオールやテレフタル酸などをモノマーレベルまで分解し（ケミカルリサイクル）、得られた原料を重縮合して製造されたPBT樹脂も使用することができる。

[0029] [ガラス繊維（B）]

本実施形態のPBT樹脂組成物においては、ガラス繊維（B）は、カルボン酸及び／又はカルボン酸無水物を由来とする構成単位を含む重合体とエポ

キシ樹脂とを含有する集束剤で表面処理されている。ガラス繊維（B）を含有することにより、成形品の機械強度の向上の効果が得られ、更に、所定の集束剤による表面処理により耐加水分解性に優れる。

[0030] ガラス繊維（B）の原料となるガラスの種類は特に限定されないが、品質上、Eガラスや、組成中にジルコニウム元素を含む耐腐食ガラスが好ましく用いられる。

[0031] ガラス繊維（B）の平均繊維径は、機械特性と射出成形時のゲート詰まり防止等の観点から、 $3\sim 50\mu\text{m}$ であることが好ましく、 $6\sim 15\mu\text{m}$ であることがより好ましい。ガラス繊維（B）の平均繊維長は特に制限されず、例えば $0.1\sim 20\text{mm}$ とすることができる。なお、ガラス繊維（B）の平均繊維径及び平均繊維長とは、樹脂組成物に配合後のガラス繊維について、CCDカメラで撮影した画像を解析し、加重平均により算出した値である。例えば、株式会社セイシン企業製、動的画像解析法／粒子（状態）分析計PITA-3等を用いて算出することができる。配合後のガラス繊維（B）は例えば恒温槽 600°C で $2\sim 3$ 時間程度処理することで得ることができる。

[0032] ガラス繊維（B）としては、円形断面を有するもの及び非円形断面を有するもののいずれも用いることができる。非円形断面としては、長円形、楕円形、繭形等が挙げられる。非円形断面の異形比（長軸径：短軸径）は、特に限定されないが、 $1.5:1\sim 6:1$ であることが好ましく、 $2:1\sim 5:1$ であることがより好ましく、 $2.5:1\sim 4:1$ であることが更に好ましい。異形比が $1.5:1\sim 6:1$ の範囲であると、断面を扁平にしたことによる寸法安定性、反り低減等の効果が得られ易く、また、扁平になり過ぎ割れやすくなることによる強度の低下も抑制し易い。

[0033] ガラス繊維（B）は1種を単独で用いてもよいし、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0034] また、ガラス繊維（B）と非繊維状無機充填材とを組み合わせ用いてもよい。ガラス繊維（B）と非繊維状無機充填材とを組み合わせ用いることにより、低反り性と、引張り強度等の機械的特性とを両立させることができ

る。ガラス繊維（B）と非繊維状無機充填材との比率は特に限定されるものではないが、ガラス繊維（B）／非繊維状無機充填材（質量比）＝80／20～45／55であることが好ましく、75／25～55／45であることがより好ましく、70／30～60／40であることが更に好ましい。非繊維状無機充填材の含有量がガラス繊維の20質量％以上であるとより優れた低反り性が得られ易く、55質量％以下であるとより優れた引張り強度が得られ易い。ガラス繊維（B）と非繊維状無機充填材の組み合わせとしては、特に限定されるものではないが、ガラス繊維（B）と、ガラスフレーク、マイカ、タルク等の非繊維状無機充填材との組み合わせが挙げられる。

[0035] 次いで、ガラス繊維（B）において、表面処理に用いられる集束剤に含まれる、カルボン酸及び／又はカルボン酸無水物を由来とする構成単位を有する重合体及びエポキシ樹脂について以下に説明する。

[0036] （カルボン酸及び／又はカルボン酸無水物を由来とする構成単位を有する重合体）

カルボン酸及び／又はカルボン酸無水物を由来とする構成単位を有する重合体（以下、単に「重合体」とも呼ぶ。）において、カルボン酸としては、アクリル酸、メタクリル酸、フマル酸、マレイン酸、コハク酸、ケイ皮酸、イタコン酸、メサコン酸、シトラコン酸、等の不飽和カルボン酸等が挙げられる。これらは置換基を有してもよい。中でも、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、が好ましい。また、カルボン酸無水物としては、無水マレイン酸、無水イタコン酸、無水コハク酸、無水フタル酸、無水グルタル酸、無水ドデセニルコハク酸、無水クロレンジック酸等の不飽和カルボン酸の無水物が挙げられる。

[0037] 以上の重合体は、それぞれのカルボン酸又はカルボン酸無水物が単独で重合した単独重合体でもよいし、2以上のカルボン酸又はカルボン酸無水物が共重合した共重合体でもよい。

[0038] 本実施形態において、以上の重合体の重量平均分子量は特に限定はないが、10,000～1,000,000が特に好ましい。当該重量平均分子量

が10,000～1,000,000の範囲内であると、十分な耐加水分解性が得られるとともに、ガラス繊維の表面への付着が十分となる。

[0039] (エポキシ樹脂)

エポキシ樹脂としては、例えば、グリシジルエーテル型エポキシ樹脂、グリシジルエステル型エポキシ樹脂（ジグリシジルフタレート、ジグリシジルトetraヒドロフタレート、ジグリシジルヘキサヒドロフタレート、ジメチルグリシジルフタレート、ジメチルグリシジルヘキサヒドロフタレート、ダイマー酸グリシジルエステル、アロマトミックジグリシジルエステル、シクロアリファティックジグリシジルエステルなど）、グリシジリアルミン型エポキシ樹脂（テトラグリシジルジアミノジフェニルメタン、トリグリシジルーパラアミノフェノール、トリグリシジルーメタアミノフェノール、ジグリシジルトリイジン、テトラグリシジルメタキシリレンジアミン、ジグリシジルトリブロムアニリン、テトラグリシジルビスアミノメチルシクロヘキサンなど）、複素環式エポキシ樹脂（トリグリシジルのイソシアヌレート（TGIC）、ヒダントイン型エポキシ樹脂など）、環式脂肪族エポキシ樹脂（ビニルシクロヘキセンジオキシド、ジシクロペンタジエンオキシド、アリサイクリックジエポキシアセタール、アリサイクリックジエポキシアジペート、アリサイクリックジエポキシカルボキシレートなど）、エポキシ化ポリブタジエンなどが挙げられる。

[0040] グリシジルエーテル型エポキシ樹脂には、ポリヒドロキシ化合物のグリシジルエーテル〔ビスフェノール型エポキシ樹脂（例えば、ビスフェノールA型、ビスフェノールAD型、又はビスフェノールF型エポキシ樹脂など）、レゾルシン型エポキシ樹脂などの芳香族ポリヒドロキシ化合物のグリシジルエーテル；脂肪族エポキシ樹脂（アルキレングリコールやポリオキシアルキレングリコールのグリシジルエーテルなど）など〕、ノボラック型エポキシ樹脂（フェノールノボラック型、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂など）などが含まれる。

[0041] エポキシ樹脂のうち、芳香族エポキシ樹脂（ビスフェノール型エポキシ樹脂

脂、レゾルシン型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂など）、環式脂肪族エポキシ樹脂が好ましい。中でも、グリシジルエーテル型芳香族エポキシ樹脂、例えば、ビスフェノール型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂などが好ましい。

[0042] エポキシ樹脂のエポキシ当量は、例えば、 $100 \sim 1600 \text{ g/eq}$ 、好ましくは $100 \sim 800 \text{ g/eq}$ 、更に好ましくは $150 \sim 500 \text{ g/eq}$ 程度であってもよい。

[0043] エポキシ樹脂の数平均分子量は、例えば、 $200 \sim 50,000$ 、好ましくは $300 \sim 10,000$ 、更に好ましくは $400 \sim 6,000$ 程度であってもよい。

[0044] 本実施形態において、集束剤中の重合物（X）とエポキシ樹脂（Y）との質量比率（X/Y）は、成形品の機械強度の向上の観点から、 $0.001 \sim 1.500$ とすることが好ましい。

[0045] 集束剤の含有量は、ガラス繊維（B） 100 質量部に対して $0.1 \sim 3.0$ 質量部であることが好ましく、 $0.3 \sim 2.5$ 質量部であることがより好ましい。当該集束剤の含有量がガラス繊維（B） 100 質量部に対して $0.1 \sim 3.0$ 質量部であることで、耐加水分解性及び耐ヒートショック性の向上を図ることができる。

[0046] また、集束剤中には、上記成分以外に、ウレタン樹脂、シランカップリング剤、潤滑剤、ノニオン系の界面活性剤、帯電防止剤等の各成分を含むことができ、それぞれの成分の配合比は、必要に応じて決定すればよい。ウレタン樹脂はガラス繊維の結束性や分散性に寄与し、ポリイソシアネートとポリオールなどより得られる。シランカップリング剤としては、アミノシラン、エポキシシラン、クロルシラン、メルカプトシラン、ビニルシラン、アクリルシランなどが使用できる。潤滑剤としては、脂肪酸アミド、第4級アンモニウム塩などが使用できる。また、ノニオン系の界面活性剤としては、合成アルコール系、天然アルコール系、脂肪酸エステル系などが使用できる。

[0047] 本実施形態のPBT樹脂組成物において、ガラス繊維（B）の含有量は、

PBT樹脂（A）100質量部に対して、10～100質量部であることが好ましく、20～80質量部であることがより好ましい。

[0048] [エラストマー（C）]

本実施形態に使用するエラストマー（C）は、PBT樹脂組成物を用いてなる成形品が、加熱冷却が繰り返される環境で使用される場合において要求される、耐ヒートショック性を向上させるために添加される。

[0049] エラストマー（C）はPBT樹脂組成物に靱性を付与することで、成形品に発生する歪を吸収でき、成形時や熱処理時の収縮率及び／又は線膨張係数が小さいのみならず、PBT樹脂（A）との相溶性の良い樹脂を好ましく用いることができる。このようなエラストマー（C）の例としては、オレフィン系エラストマー、ジエン系エラストマー、コアシエル系エラストマー、スチレン系エラストマー、シリコン系エラストマー及びこれらの組み合わせを挙げることができる。中でも、オレフィン系エラストマー、コアシエル系エラストマーは優れた耐ヒートショック性が得られるため好ましい。なお、これらのエラストマー（C）とPBT樹脂（A）との親和性を向上させるために、公知の相溶化剤を併用してもよい。

[0050] オレフィン系エラストマーとしては、例えば、エチレンープロピレン共重合体（EP共重合体）、エチレンーブテン共重合体、エチレンーオクテン共重合体、エチレンープロピレンージエン共重合体（EPD共重合体）、エチレンープロピレンーブテン共重合体、エチレンー酢酸ビニル共重合体、EP共重合体及びEPD共重合体から選択された少なくとも一種の単位を含む共重合体、オレフィンと（メタ）アクリル系単量体との共重合体（エチレンーエチルアクリレート共重合体、エチレンーグリシジルメタクリレート共重合体等）などが含まれる。好ましいオレフィン系エラストマーには、EP共重合体、EPD共重合体、オレフィンと（メタ）アクリル系単量体との共重合体が含まれ、特にエチレンエチルアクリレートが好ましい。これらのオレフィン系エラストマーは単独で又は二種以上組み合わせて使用することができる。

- [0051] コアシエル系エラストマーは、コア層がゴム成分（軟質成分）、シェル層が硬質成分で構成されるポリマーであり、コア層のゴム成分としてはアクリル系ゴム等を用いるものである。コア層に用いるゴム成分は、ガラス転移温度（ T_g ）が 0°C 未満（例えば -10°C 以下）であるのが好ましく、 -20°C 以下（例えば -180°C 以上 -25°C 以下）であるのがより好ましく、 -30°C 以下（例えば -150°C 以上 -40°C 以下）であるのが特に好ましい。
- [0052] ゴム成分としてアクリル系ゴムを用いる場合、アルキルアクリレート等のアクリル系モノマーを主成分として重合して得られる重合体が好ましい。アクリル系ゴムのモノマーとして用いるアルキルアクリレートは、ブチルアクリレート等のアクリル酸のC1～C12のアルキルエステルが好ましく、アクリル酸のC2～C6のアルキルエステルがより好ましい。
- [0053] アクリル系ゴムは、アクリル系モノマーの単独重合体でもよく、共重合体でもよい。アクリル系ゴムがアクリル系モノマーの共重合体である場合、アクリル系モノマー同士の共重合体でも、アクリル系モノマーと他の不飽和結合含有モノマーとの共重合体であってもよい。アクリル系ゴムが共重合体である場合、アクリル系ゴムは架橋性モノマーを共重合したものであってもよい。
- [0054] シェル層には、ビニル系重合体が好ましく用いられる。ビニル系重合体は、例えば、芳香族ビニル単量体、シアン化ビニル単量体、メタクリル酸エステル系単量体、及びアクリル酸エステル単量体の中から選ばれた少なくとも一種の単量体を重合あるいは共重合させて得られる。かかるコアシエル系エラストマーのコア層とシェル層は、グラフト共重合によって結合されていてもよい。このグラフト共重合化は、必要な場合には、コア層の重合時にシェル層と反応するグラフト交差剤を添加し、コア層に反応基を与えた後、シェル層を形成させることによって得られる。グラフト交差剤として、シリコーン系ゴムを使用する場合は、ビニル結合を有したオルガノシロキサンあるいはチオールを有したオルガノシロキサンが用いられ、好ましくはアクロキシ

シロキサン、メタクリロキシシロキサン、ビニルシロキサンが使用される。

[0055] [エポキシ化天然油 (D)]

本実施形態における、エポキシ化天然油 (D) の原料である天然油 (不飽和脂肪酸エステル) の分子量は、好ましくは 500~1500、より好ましくは 600~1100 程度である。例えば亜麻仁油又は大豆油は、脂肪酸トリグリセリドの混合物であり、その際、C18-カルボン酸分が多く存在する。

[0056] 天然油は、炭素原子 10~40 個、好ましくは 16~22 個を有する飽和若しくは不飽和脂肪族カルボン酸と、炭素原子 2~40 個、好ましくは 2~6 個を有する脂肪族飽和アルコールとのエステルなどが挙げられる。

[0057] これら天然油にエポキシ化剤、例えば過酢酸といった過酸と反応させることでエポキシ基を導入してエポキシ化天然油を製造することができる。

[0058] 本実施形態において、エポキシ化天然油 (D) としては、オリーブ油、扁桃油、落花生油、椰子油、椿油、コーン油、綿実油、ゴマ油、カラシ油、菜種油、亜麻仁油、大豆油、桐油、芥子油、紫蘇油、胡桃油、荏油、紅花油、向日葵油、タラ肝油、イワシ油、ニシン油、牛脂、羊脂、バターなどの不飽和脂肪酸エステルの不飽和結合をエポキシ化した化合物である。エポキシ化天然油 (D) としては、具体的には、エポキシ化ゴマ油、エポキシ化カラシ油、エポキシ化菜種油、エポキシ化亜麻仁油、エポキシ化大豆油、エポキシ化桐油、エポキシ化芥子油、エポキシ化紫蘇油、エポキシ化胡桃油、エポキシ化荏油、エポキシ化タラ肝油、エポキシ化イワシ油、エポキシ化ニシン油などが挙げられる。

[0059] 本実施形態におけるエポキシ化天然油は、DIN EN ISO 3001 (1999-11) に準拠した、100~400 g/eq、好ましくは 125~375 g/eq、より好ましくは 150~250 g/eq のエポキシ当量を有するエポキシ化天然油が好ましい。また、そのエポキシ基が末端で結合されていない (いわゆる “内部で” 炭化水素鎖中に存在するエポキシ基) エポキシ化された化合物が好ましい。

[0060] エポキシ基の含有率は、好ましくは、天然油を基準として1～20質量%、より好ましくは4～15質量%、更に好ましくは6～12質量%である。エポキシ基の含有率が多い（1質量%以上）ほど耐加水分解性への効果が高く、エポキシ基の含有率が少ない（20質量%以下）とPBT樹脂組成物の増粘が低く、射出成形時の流動性が良好となる。

[0061] これらエポキシ化天然油（D）の中でも入手性と、高い耐加水分解性と耐ヒートショック性とを高いレベルで両立できることからエポキシ化亜麻仁油、エポキシ化大豆油が好ましい。

[0062] エポキシ化天然油（D）は、一種を単独で使用することもできるし、二種以上を組み合わせ使用することもできる。特に好ましいエポキシ化天然油（D）は、株式会社ADEKAからアデカサイザー（登録商標）O-130P、アデカサイザー（登録商標）O-180A、日油株式会社からニューサイザー（登録商標）510R、新日本理化株式会社からサンソサイザー E-9000H、サンソサイザー E-2000Hという商品名で入手できる。

[0063] エポキシ化天然油（D）の配合量は、PBT樹脂（A）100質量部に対し、2.0～8.0質量部である。エポキシ化天然油（D）の配合量が2.0質量部未満の場合、耐加水分解性が低下する。当該配合量は、好ましくは3.0質量部以上であり、より好ましくは3.5質量部以上である。一方、エポキシ化天然油（D）の配合量が8.0質量部を超えると、未反応のエポキシ化天然油が染み出し、成形品が汚染される。当該配合量は、好ましくは7.0質量部以下であり、より好ましくは6.0質量部以下である。

[0064] [他の成分]

本実施形態のPBT樹脂組成物は、必要に応じて、その他の成分を含有することができる。その他の成分としては、例えば、ガラス繊維（B）以外の無機充填材、酸化防止剤、耐候安定剤、分子量調整剤、紫外線吸収剤、帯電防止剤、染料、顔料、滑剤、結晶化促進剤、結晶核剤、近赤外線吸収剤、難燃剤、難燃助剤、有機充填剤、着色剤等が挙げられるがこれらに限定されない。

[0065] ＜ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物の製造方法＞

本実施形態のPBT樹脂組成物の製造方法は特に限定されるものではなく、一般に樹脂組成物の調製法として公知の設備と方法を用いることができる。例えば、必要な成分を混合し、1軸又は2軸の押出機又はその他の熔融混練装置を使用して混練し、成形用ペレットとして調製することができる。

[0066] ＜インサート成形品＞

本実施形態のインサート成形品は、以上説明した本実施形態のPBT樹脂組成物とインサート部材とを有する。従って、本実施形態のPBT樹脂組成物と同様に、耐加水分解性と耐ヒートショック性が従来よりも大幅に向上するという効果を奏する。

[0067] 本実施形態のインサート成形品とは、成形用金型に金属等のインサート部材をあらかじめ装着し、その外側に上記PBT樹脂組成物を充填して複合成品としたものである。樹脂を金型に充填するための成形法としては射出成形法が一般的である。また、PBT樹脂組成物にインサートするインサート部材は、その特性を生かし且つ樹脂の欠点を補う目的で使用されるため、成形時にPBT樹脂組成物と接触したとき、形が変化したり、熔融したりしないものが使用される。このため、主としてアルミニウム、マグネシウム、銅、鉄、真鍮及びそれらの合金などの金属類やガラス、セラミックスのような無機固体類であらかじめ棒、ピン、ネジ等に成形されているものが使用できる。

[0068] 本実施形態のPBT樹脂組成物を用いてインサート成形品を作製する方法としては特に限定はなく、公知の方法を採用することができる。例えば、本実施形態のPBT樹脂組成物を押出機に投入して熔融混練してペレット化し、このペレットとインサート部材を所定の金型を装備した射出成形機に投入し、射出成形することで作製することができる。

[0069] 本実施形態のインサート成形品としては、自動車や電車、航空産業用用途などの高温高湿環境に長期間曝される成形品として好適に用いることができる。このインサート成形品では、十分な高温高湿環境下で長期間使用した場

合でも、加水分解による劣化が生じることを防ぐことができ、また、耐ヒートショック性が向上するため車載のエンジンやモーター、電池周辺に設置される電装部品ECUや筐体、センサー等に使用することができる。

[0070] 本発明の実施形態の例を以下に挙げる。本発明の実施形態は以下の例に限定されない。

[0071] (1) ポリブチレンテレフタレート樹脂 (A) と、

カルボン酸及び／又はカルボン酸無水物を由来とする構成単位を含む重合物とエポキシ樹脂とを含有する集束剤で表面処理されたガラス繊維 (B) と、

エラストマー (C) と、

エポキシ化天然油 (D) と、を含み、

前記エポキシ化天然油の含有量が前記ポリブチレンテレフタレート樹脂 (A) 100質量部に対し、2.0～8.0質量部である、ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。

[0072] (2) 前記ガラス繊維 (B) の平均繊維径が3～50 μm であり、前記ガラス繊維 (B) 100質量部に対する前記集束剤の含有量が0.1～3.0質量部である、前記 (1) に記載のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。

[0073] (3) 前記エポキシ化天然油 (D) が、エポキシ化亜麻仁油又はエポキシ化大豆油である、前記 (1) 又は (2) に記載のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。

[0074] (4) 前記エラストマー (C) がオレフィン系エラストマー又はコアシエル系エラストマーである、前記 (1) ～ (3) のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。

[0075] (5) 前記 (1) ～ (4) のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物とインサート部材とを有する、インサート成形品。

[0076] 本願の開示は、2023年12月26日に出願された特願2023-219541号に記載の主題と関連しており、その全ての開示内容は引用によりここに援用される。

実施例

[0077] 以下に、実施例により本実施形態をさらに具体的に説明するが、本実施形態は以下の実施例に限定されるものではない。

[0078] [実施例 1 ～ 3、比較例 1 ～ 5]

各実施例・比較例において、(A) ～ (D) 成分及び酸化防止剤を表 2 に示す比率(質量部)で、30mmφの2軸押出機((株)日本製鋼所製、TEX30C)を用い、原料供給部とダイ先端部をシリンダー温度260℃、その間を220～260℃とし、吐出量15kg/h、スクリー回転数130rpmで熔融混練して押出し、PBT樹脂組成物からなるペレットを得た。表 2 に示す各成分の詳細を以下に示す。

[0079] (1) ポリブチレンテレフタレート樹脂；

PBT樹脂(A)：ポリプラスチック(株)製、ポリブチレンテレフタレート樹脂、固有粘度：0.86dL/g、カルボン酸末端基量：12meq/kg

[0080] (2) ガラス繊維(B)；

・ガラス繊維(B-1)：Eガラス製ガラス繊維、平均繊維径13μm(集束剤：フェノールノボラック樹脂0.5質量%、無水マレイン酸とメタクリル酸メチルとアクリル酸メチルの共重合物(0.2質量%))

・ガラス繊維(B-2)：Eガラス製ガラス繊維 平均繊維径13μm(集束剤：フェノールノボラック樹脂0.5質量%)

・ガラス繊維(B-3)：Eガラス製ガラス繊維 平均繊維径13μm(集束剤：無水マレイン酸とメタクリル酸メチルとアクリル酸メチルの共重合物(0.2質量%))

[0081] 一方、ガラス繊維(B-1)～(B-3)の表面処理に用いた集束剤の成分を表 1 に示す。表 1 における数値は、それぞれのガラス繊維全体に対する各成分の含有量(質量%)である。なお、ガラス繊維100質量部に対する集束剤の含有量は、ガラス繊維(B-1)においては0.7質量部であり、ガラス繊維(B-2)においては0.5質量部であり、ガラス繊維(B-3)

においては0.2質量部である。

[0082] [表1]

	フェノールノボラック型 エポキシ樹脂	無水マレイン酸、メタクリル酸 及びアクリル酸メチルの共重合物
ガラス繊維 (B-1)	0.5	0.2
ガラス繊維 (B-2)	0.5	—
ガラス繊維 (B-3)	—	0.2

[0083] (3) エラストマー (C) ・ エラストマー (C-1) : (株) ENEOS NUC製、エチレンエチルアクリレート共重合物 NUC-6570 ・ エラストマー (C-2) : ダウケミカル製、コアシェル系エラストマー、パラロイド EXL-2314

[0084] (4) エポキシ化合物 ・ エポキシ化天然油 (D-1) : 株式会社 ADEKA 製、アデカサイザー O-180A、エポキシ当量 188 g / eq ・ エポキシ樹脂 (D-2) : 三菱ケミカル (株) 製、エピコート 1004、エポキシ当量 875 ~ 975 g / eq

[0085] (5) 酸化防止剤 ・ BASF ジャパン株式会社製、「Irganox 1010」

[0086] [評価]

各実施例 ・ 比較例で得られたペレットを用い、以下の評価試験を実施した。

[0087] (1) 耐加水分解性

表2の組成で得られた各実施例及び比較例のPBT樹脂組成物ペレットを140℃で3時間乾燥した後、シリンダー温度260℃、金型温度80℃で射出成形して、ISO3167に準拠した1Aタイプの引張試験片を作製した。得られた試験片について、ISO527-1, 2に準拠し、引張強さの測定をした。測定結果を表2に示す。次に、PCT処理装置（高加速寿命試験装置）を用い、試験片を121℃、100%RH下に曝露し、湿熱試験後（50時間後、100時間後、150時間後）の引張強さを測定し湿熱処理前後での強度保持率を算出した。算出結果を表2に示す。

[0088] (2) 耐ヒートショック性

表2の組成で得られた各実施例及び比較例のPBT樹脂組成物ペレットを140℃で3時間乾燥した後、樹脂温度260℃、金型温度65℃、射出時間25秒、冷却時間10秒で、試験片成形用金型（縦22mm、横22mm、高さ51mmの角柱内部に縦18mm、横18mm、高さ30mmの鉄芯をインサートする金型）に、一部の樹脂部の最小肉厚が1mmとなるようにインサート射出成形し、インサート成形品を製造した。得られたインサート成形品について、冷熱衝撃試験機を用いて140℃にて1時間30分加熱後、-40℃に降温して1時間30分冷却後、さらに140℃に昇温する過程を1サイクルとする耐ヒートショック試験を行い、成形品にクラックが入るまでのサイクル数を測定し、耐ヒートショック性を評価した。サイクル数の測定結果を表2に示す。

[0089]

[表2]

		実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5
P B T樹脂 (A)	A	100	100	100	100	100	100	100	100
	B-1	52.0	52.9	52.9	—	—	45.0	52.9	51.1
	B-2	—	—	—	52.9	—	—	—	—
	B-3	—	—	—	—	52.9	—	—	—
エラストマー (C)	C-1	17.3	17.6	—	17.6	17.6	—	17.6	17.0
	C-2	—	—	17.6	—	—	—	—	—
エポキシ化天然油 (D)	D-1	3.5	5.3	5.3	5.3	5.3	4.5	—	1.7
	D-2	—	—	—	—	—	—	5.3	—
酸化防止剤		0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.4	0.5	0.5
引張強さ [MPa]		105	103	104	104	101	132	108	107
耐加水分解性 (引張強さ保持率 [%])	50hr	95	96	99	83	69	95	92	94
	100hr	90	94	99	70	61	95	73	94
	150hr	83	94	79	55	58	94	62	62
耐ヒートショック性		500<	500<	500<	500<	500<	350	245	390

[0090] 表2より、実施例1～3においては、耐加水分解性及び耐ヒートショック

性のいずれも良好な評価結果が得られたことが分かる。

一方、フェノールノボラック樹脂の集束剤で表面処理したガラス繊維（B－2）と、無水マレイン酸とメタクリル酸メチルとアクリル酸メチルの共重合物の共重合物のみを含む集束剤で表面処理したガラス繊維（B－3）を用いたことのみが実施例2と異なる比較例1、2は耐加水分解性に劣っていた。

また、エポキシ化天然油の添加量が実施例1、2に比べて少ない比較例5は耐加水分解性及び耐ヒートショック性に劣っていた。また、エポキシ化天然油の代わりにエポキシ樹脂を用いたことのみが実施例2と異なる比較例4も耐加水分解性及び耐ヒートショック性に劣っていた。さらに、エラストマー（C－1）を含まないことが実施例2と異なる比較例3は、耐ヒートショック性に劣っていた。

請求の範囲

- [請求項1] ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）と、
 カルボン酸及び／又はカルボン酸無水物を由来とする構成単位を含む重合体とエポキシ樹脂とを含有する集束剤で表面処理されたガラス繊維（B）と、
 エラストマー（C）と、
 エポキシ化天然油（D）と、を含み、
 前記エポキシ化天然油の含有量が前記ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）100質量部に対し、2.0～8.0質量部である、ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。
- [請求項2] 前記ガラス繊維（B）の平均繊維径が3～50 μ mであり、前記ガラス繊維（B）100質量部に対する前記集束剤の含有量が0.1～3.0質量部である、請求項1に記載のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。
- [請求項3] 前記エポキシ化天然油（D）が、エポキシ化亜麻仁油又はエポキシ化大豆油である、請求項1又は2に記載のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。
- [請求項4] 前記エラストマー（C）がオレフィン系エラストマー又はコアシエル系エラストマーである、請求項1～3のいずれか1項に記載のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。
- [請求項5] 請求項1～4のいずれか1項に記載のポリブチレンテレフタレート樹脂組成物とインサート部材とを有する、インサート成形品。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/040325

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L 67/02(2006.01)i; *C08K 7/14*(2006.01)i; *C08K 9/04*(2006.01)i; *C08L 23/00*(2006.01)i; *C08L 51/04*(2006.01)i;
C08L 63/00(2006.01)i

FI: C08L67/02; C08K7/14; C08K9/04; C08L23/00; C08L51/04; C08L63/00 Z

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)

C08L67/02; C08K7/14; C08K9/04; C08L23/00; C08L51/04; C08L63/00

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.
Y	JP 2019-526679 A (LANXESS DEUTSCHLAND GMBH) 19 September 2019 (2019-09-19) claims, paragraphs [0013], [0107]-[0124], [0145], [0150]-[0164], examples 2-3	1-5
Y	JP 2003-201671 A (NIPPON ELECTRIC GLASS CO., LTD.) 18 July 2003 (2003-07-18) claims, paragraph [0005], examples 1-5, comparative examples 6-7	1-5
Y	WO 2011/058992 A1 (WINTech POLYMER LTD.) 19 May 2011 (2011-05-19) paragraphs [0050]-[0051]	1-5
Y	JP 2018-012209 A (TOYOBO CO., LTD.) 25 January 2018 (2018-01-25) paragraphs [0040]-[0041]	1-5
Y	JP 2005-290176 A (MITSUBISHI ENGINEERING-PLASTICS CORPORATION) 20 October 2005 (2005-10-20) paragraph [0035]	1-5



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 January 2025

Date of mailing of the international search report

21 January 2025

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

International application No.

PCT/JP2024/040325

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2021-014478 A (TORAY INDUSTRIES, INC.) 12 February 2021 (2021-02-12) paragraphs [0008], [0123], [0143], comparative example 16	1-5

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/040325

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	2019-526679	A	19 September 2019	US 2019/0233639 A1 claims, paragraphs [0013], [0152]-[0174], [0202]-[0208], [0217]-[0260], examples 2-3 WO 2018/046244 A1 EP 3290476 A1 EP 3510102 A1 CN 109661432 A KR 10-2019-0050780 A HR P20210216 T HU E052912 T ES 2847898 T PL 3510102 T	
JP	2003-201671	A	18 July 2003	(Family: none)	
WO	2011/058992	A1	19 May 2011	US 2012/0232200 A1 paragraphs [0054]-[0055] JP 11-58992 A1 CN 102612540 A TW 201124443 A	
JP	2018-012209	A	25 January 2018	(Family: none)	
JP	2005-290176	A	20 October 2005	(Family: none)	
JP	2021-014478	A	12 February 2021	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

C08L 67/02(2006.01)i; C08K 7/14(2006.01)i; C08K 9/04(2006.01)i; C08L 23/00(2006.01)i;
C08L 51/04(2006.01)i; C08L 63/00(2006.01)i
FI: C08L67/02; C08K7/14; C08K9/04; C08L23/00; C08L51/04; C08L63/00 Z

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））

C08L67/02; C08K7/14; C08K9/04; C08L23/00; C08L51/04; C08L63/00

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
Y	JP 2019-526679 A（ランクセス・ドイツランド・ゲーエムベーハー）19.09.2019 （2019-09-19） 特許請求の範囲、段落0013, 0107-0124, 0145, 0150-0164、実施例2-3	1-5
Y	JP 2003-201671 A（日本電気硝子株式会社）18.07.2003（2003-07-18） 特許請求の範囲、段落0005、実施例1-5、比較例6-7	1-5
Y	WO 2011/058992 A1（ウィンテックポリマー株式会社）19.05.2011（2011-05-19） 段落0050-0051	1-5
Y	JP 2018-012209 A（東洋紡株式会社）25.01.2018（2018-01-25） 段落0040-0041	1-5
Y	JP 2005-290176 A（三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社）20.10.2005 （2005-10-20） 段落0035	1-5

☒ 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
07.01.2025

国際調査報告の発送日
21.01.2025

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）

久保 道弘 4W 2365

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

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
Y	JP 2021-014478 A (東レ株式会社) 12.02.2021 (2021 - 02 - 12) 段落0008, 0123, 0143、比較例16	1-5

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/JP2024/040325

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2019-526679	A	19.09.2019	US 2019/0233639 A1 特許請求の範囲、段落0013, 0152-0174, 0202-0208, 0217-0260、実施例2-3 WO 2018/046244 A1 EP 3290476 A1 EP 3510102 A1 CN 109661432 A KR 10-2019-0050780 A HR P20210216 T HU E052912 T ES 2847898 T PL 3510102 T	
JP	2003-201671	A	18.07.2003	(ファミリーなし)	
WO	2011/058992	A1	19.05.2011	US 2012/0232200 A1 段落0054-0055 JP 11-58992 A1 CN 102612540 A TW 201124443 A	
JP	2018-012209	A	25.01.2018	(ファミリーなし)	
JP	2005-290176	A	20.10.2005	(ファミリーなし)	
JP	2021-014478	A	12.02.2021	(ファミリーなし)	