(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
2023年10月26日(26.10.2023)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2023/204205 A1

(51) 国際特許分類:
C08F 283/02 (2006.01) *C08L 51/08* (2006.01)
C08L 25/04 (2006.01) *C08L 67/00* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2023/015445

(22) 国際出願日： 2023年4月18日(18.04.2023)

(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 2022-069121 2022年4月19日(19.04.2022) JP

(71) 出願人: 三菱ケミカル株式会社(**MITSUBISHI CHEMICAL CORPORATION**) [JP/JP]; 〒1008251 東京都千代田区丸の内一丁目１番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 青木 豊(**AOKI, Yutaka**); 〒1008251 東京都千代田区丸の内一丁目１番１号 三菱ケミカル株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人 ＨＡＲＡＫＥＮＺＯ ＷＯＲＬＤ ＰＡＴＥＮＴ ＆ ＴＲＡＤＥＭＡＲＫ (**HARAKENZO WORLD PATENT & TRADEMARK**); 〒5300041 大阪府大阪市北区天神橋２丁目北２番６号 大和南森町ビル Osaka (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)）

(54) **Title:** POLYMER, RESIN ADDITIVE, RESIN COMPOSITION, AND MOLDED BODY

(54) 発明の名称： 重合体、樹脂添加剤、樹脂組成物、及び成形体

(57) **Abstract:** The purpose of the present invention is to provide a polymer with which compatibility is improved when a polyester resin such as a poly(butylene terephthalate) resin is compounded with another resin and with which the tensile elongation of a molded body can be improved. This polymer has a first polymer portion and a second polymer portion. The first polymer portion is a polyester-based polymer. The second polymer portion has a constituent unit that is different from a constituent unit that constitutes the first polymer portion. The proportion of the first polymer is more than 20 parts by mass and not more than 90 parts by mass relative to a total of 100 parts by mass of the first polymer portion and the second polymer portion. The second polymer portion has a constituent unit derived from a (meth)acrylate monomer.

(57) 要約：本発明は、ポリブチレンテレフタレート樹脂に代表されるポリエステル樹脂とそのほかの樹脂を複合化させた際の相溶性を改善し、成形体の引張のびを向上できる重合体を提供することを目的とする。第１の重合体部分と、第２の重合体部分とを有する重合体であって、第１の重合体部分がポリエステル系重合体であり、第２の重合体部分が第１の重合体部分を構成する構成単位とは異なる構成単位を有し、第１の重合体部分と第２の重合体部分との合計１００質量部における、第１の重合体の割合が、２０質量部を超え９０質量部以下であり、前記第２の重合体部分が、（メタ）アクリレート単量体由来の構成単位を有している。

WO 2023/204205 A1

明　細　書

発明の名称 ： 重合体、樹脂添加剤、樹脂組成物、及び成形体

技術分野

[0001]　本発明は、重合体、樹脂添加剤、樹脂組成物、及び成形体に関する。

背景技術

[0002]　従来、複数の樹脂を混合し、単一樹脂では得られない機能の発現または性能の向上を図る試みは行われている。しかしながら、多くの樹脂種の組み合わせは非相溶を示すため、複合化させることでの性能または機能は、単一樹脂時のそれらより低下することもしばしばである。そこで、複数樹脂種の相溶性を改善するために、相容化剤を添加することが行われている。

[0003]　特許文献１にはポリブチレンテレフタレート樹脂、ポリスチレン樹脂および炭素繊維が、相容化剤としてポリカーボネートを用いることで良好な低反り性および機械特性を有することが開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：日本国特開２０２０－１７６１５９号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005]　しかしながら、本発明者等の検討によると、特許文献１に記載されている相容化剤は、ポリブチレンテレフタレート樹脂およびポリスチレン樹脂の相溶性の改善の程度が十分でない場合があることが判明した。そこで、本発明の一態様は、ポリブチレンテレフタレート樹脂に代表されるポリエステル樹脂とそのほかの樹脂とを複合化させた際の相溶性を改善でき、さらに成形体の引張のびも優れた重合体等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]　本発明の一態様は、第１の重合体部分と、第２の重合体部分とを有する重合体であって、前記第１の重合体部分がポリエステル系重合体であり、前記

第２の重合体部分が前記第１の重合体部分を構成する構成単位とは異なる構成単位を有し、前記第１の重合体部分と前記第２の重合体部分との合計１００質量部における、前記第１の重合体の割合が、２０質量部を超え９０質量部以下であり、前記第２の重合体部分が、（メタ）アクリレート単量体由来の構成単位を有している。

発明の効果

[0007] 本発明の一態様により、２種以上の樹脂の混合時に、樹脂の相溶性を改善し相分離を低減でき、成形体の引張のびも優れる重合体等を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0008] [図1]実施例１の成形体を透過型電子顕微鏡で観察した断面写真である。

[図2]比較例１の成形体を透過型電子顕微鏡で観察した断面写真である。

発明を実施するための形態

[0009] 以下、本実施形態について詳細を説明する。なお、以下に説明するのは本発明の一実施形態であり、本発明は下記の構成に限定されるものではない。本実施形態に係る重合体は、ポリエステル系重合体である第１の重合体部分と、前記第１の重合体部分を構成する構成単位とは異なる構成単位を有する第２の重合体部分と、を有する重合体（以下、重合体Ａと称す場合がある）である。当該重合体Ａを、ポリエステル樹脂を含む２種以上のマトリクス樹脂の樹脂添加剤として使用することにより、第１マトリクス樹脂および第２マトリクス樹脂との相溶性を向上させることができる。したがって、第１マトリクス樹脂と第２マトリクス樹脂との相分離を低減することができる。

[0010] ＜１．重合体Ａ＞

本実施形態に係る重合体Ａは、第１の重合体部分と、第２の重合体部分とを有する重合体であって、第１の重合体部分がポリエステル系重合体であり、第２の重合体部分が前記第１の重合体部分を構成する構成単位とは異なる構成単位を有し、第１の重合体部分と第２の重合体部分との合計１００質量部における、第１の重合体の割合が、２０質量部を超え９０質量部以下であ

り、第２の重合体部分が、（メタ）アクリレート単量体由来の構成単位を有している。なお、本発明の一態様において、第１の重合体部分と、第２の重合体部分と、を有する重合体とは、第１の重合体部分と第２の重合体部分とが共有結合している重合体であってもよい。また、本発明の一態様は、第１の重合体部分と第２の重合体部分とが共有結合していない場合でも、第１の重合体が第２の重合体によって内包または外包されている重合体も含むものとする。

[0011] 第１の重合体部分と、第２の重合体部分とが共有結合された重合体としては、例えば、第１の重合体部分と第２の重合体部分とを有するブロック共重合体が挙げられる。また、第１の重合体が第２の重合体によって内包または外包されている重合体としては、コア部分が第１の重合体部分及び第２の重合体部分の一方の重合体部分を含み、シェル部分が第１の重合体部分及び第２の重合体部分の他方の重合体部分を含んで構成されるコアシェル構造を有する重合体が挙げられる。なお、コアシェル構造とは、コアと呼ばれる部分が、シェルと呼ばれる部分に内包される構造である。

[0012] なかでも、重合体Ａは、コアシェル構造を有し、第１の重合体部分がコアシェル構造のシェル部分を構成している重合体であることが好ましい。すなわち、重合体Ａは、ポリエステル系重合体である第１の重合体部分がコアシェル構造のシェル部分を構成しており、第１の重合体部分を構成する構成単位とは異なる構成単位を有する第２の重合体部分がコア部分を構成している重合体であることが好ましい。以下は、代表例として、当該コアシェル構造を有する重合体Ａの好ましい形態について詳細に説明する。

[0013] ＜１－１．第１の重合体部分＞

上述の通り、第１の重合体部分は、ポリエステル系重合体により構成される。なお、本発明の一態様においてポリエステル系重合体とは、繰り返し単位として、エステル結合を含む構成単位から構成される重合体を意味し、ポリエステルはジカルボン酸成分とジオール成分との重縮合反応により合成される。第１の重合体部分がポリエステル系重合体により構成されることで、

ポリエステル樹脂である第１のマトリクス樹脂との親和性が向上し、その結果、第１のマトリクス樹脂と第２のマトリクス樹脂との相溶化が向上することになる。

[0014] ジカルボン酸としては、特段の制限はなく、芳香族ジカルボン酸、脂肪族ジカルボン酸、脂環族ジカルボン酸等が挙げられ、かかる芳香族ジカルボン酸としては、テレフタル酸、イソフタル酸、フタル酸、２，５－ノルボナンジカルボン酸、１，４－ナフタル酸、１，５－ナフタル酸、４，４－オキシ安息香酸、フマル酸、無水マレイン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、セバシン酸、ドデカンジカルボン酸、テトラヒドロ無水フタル酸、テトラヒドロテレフタル酸、５－ナトリウムスルホイソフタル酸、５－リチウムスルホイソフタル酸、（無水）トリメリト酸、（無水）ピメリト酸等が挙げられる。

[0015] ジオール成分としては、特段の制限はなく、エチレングリコール、プロピレングリコール、１，３－ブチレングリコール、１，４－ブタンジオール、１，６－ヘキサンジオール、ネオペンチルグリコール、トリエチレングリコール、ジプロピレングリコール、２，２，４－トリメチル－１，３－ペンタンジオール、シクロヘキサンジメタノール、ビスフェノールＡのエチレンオキサイド付加物、ビスフェノールＡのプロピレンオキサイド付加物、ビスフェニールＡのエチレンオキサイドおよびプロピレンオキサイド付加物、水素化ビスフェノールＡのエチレンオキサイド付加物およびプロピレンオキサイド付加物、ポリテトラメチレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコールおよびそれらの変性物、ナトリウムスルホブタンジオール等が挙げられる。

[0016] なお、ジカルボン酸成分は２種以上用いてもよく、同様にジオール成分も２種以上用いることができる。

[0017] なお、第１の重合体部分は複数の異なる構成単位を有して構成される複数の重合体から構成されていてもよい。この場合の構成単位は、第１の重合体の構成単位として例示したものを用いることができる。

[0018] 第１の重合体部分の質量平均分子量は特段の制限はないが、粉体の取り扱い性のために３０００以上であることが好ましく、５０００以上であることがさらに好ましく、７０００以上であることが特に好ましい。一方、マトリクス樹脂添加時の粘度向上抑制のために、該質量平均分子量は２００００以下であることが好ましく、１００００以下であることがさらに好ましく、５００００以下であることが特に好ましい。なお、該質量平均分子量はゲルパーミエーションクロマトグラフィ（ＧＰＣ）により測定することができる。

[0019] 第１の重合体部分のガラス転移温度は特段の制限はないが、粉体回収性を担保させるために４０℃以上であることが好ましく、４５℃以上であることがさらに好ましく、５０℃以上であることが特に好ましい。一方、粉体の微粉化を避けるために、該ガラス転移温度は１５０℃以下であることが好ましく、１３０℃以下であることがさらに好ましく、１００℃以下であることが特に好ましい。

[0020] ＜１－２．第２の重合体部分＞

第２の重合体部分は第１の重合体部分を構成する構成単位とは異なる構成単位を有する。第２の重合体部分は、（メタ）アクリレート単量体由来の構成単位を有している。（メタ）アクリレート単量体由来の構成単位を有することで、成形体の引張のびが向上する。また、第２の重合体部分は、（メタ）アクリレート単量体由来の構成単位以外の構成単位を有していることが好ましく、このような構成単位は第２のマトリクス樹脂との親和性に優れる成分であることが好ましい。具体的には、第２の重合体部分の少なくとも一部の構成単位と前記第２のマトリクス樹脂を構成する構成単位の少なくとも一部の構成単位とが同一であることが好ましい。

[0021] 第２の重合体部分を構成する（メタ）アクリレート単量体由来の構成単位について、（メタ）アクリレート単量体としては、例として、メチルメタクリレート、エチルメタクリレート、メチルアクリレート、エチルアクリレート、ブチルアクリレート、ブチルメタクリレート、プロピルアクリレート、

２－エチルヘキシルアクリレート、グリシジルアクリレート、プロピルメタクリレート、２－エチルヘキシルメタクリレート、グリシジルメタクリレート、フェニルアクリレート、フェニルメタクリレート、ヒドロキシエチルアクリレート、４－ヒドロキシブチルアクリレート、ベンジルアクリレート、ベンジルメタクリレート、ポリアルキレングリコールモノアクリレートまたはポリアルキレングリコールモノメタクリレートが挙げられる。なかでも、成形体の引張のびの観点からメチルメタクリレート、ブチルアクリレート、グリシジルメタクリレートまたはポリアルキレングリコールモノメタクリレートであることが好ましい。

[0022] 第２の重合体部分を構成する全構成単位における、（メタ）アクリレート単量体由来の構成単位の割合は特段の制限はないが、第１のマトリクス樹脂と第２のマトリクス樹脂との相溶性をより向上するため、また成形体の引張のびをより向上するために、５質量部以上であることが好ましく、一方、８０質量部以下である。さらに好ましくは８質量部以上であり、６０質量部以下である。

[0023] （メタ）アクリレート単量体由来の構成単位以外の、第２の重合体部分を構成する構成単位としては、使用する第２のマトリクス樹脂の構造に合わせて設定することが好ましいが、例えば、芳香族ビニル単量体由来の構成単位が挙げられる。第２の重合体部分を構成する構成単位が芳香族単量体ビニル由来の構成単位を含んでいる場合、第２のマトリクス樹脂として例えば、ポリスチレン含有樹脂を用いた際に、第２の重合体部分と該ポリスチレン含有樹脂との親和性が良好となり、その結果、第１のマトリクス樹脂と第２のマトリクス樹脂との相溶性がより良好になることが期待できる。なかでも、第２の重合体部分を構成する構成単位としては、６員環の単環構造を有する芳香族ビニル単量体由来の構成単位であることがより好ましく、置換基を有していてもよいスチレン由来の構成単位であることがさらに好ましい。置換基を有していてもよいスチレン由来の構成単位としては、スチレン由来の構成単位又はα－メチルスチレン由来の構成単位が挙げられ、なかでも、スチレ

ン由来の構成単位であることが特に好ましい。

[0024] 第２の重合体部分の全構成単位における芳香族ビニル単量体由来の構成単位の割合は特段の制限はないが、第１のマトリクス樹脂と第２のマトリクス樹脂との相溶性をより向上するために、３０質量部以上であることが好ましく、５０質量部以上であることがより好ましく、６０質量部以上であることがさらに好ましく、７０質量部以上であることが特に好ましく、一方、９５質量部以下であることが好ましく、１００質量部未満である。

[0025] 第２の重合体部分は、さらにその他の構成単位をさらに有していてもよい。第２の重合体部分の全構成単位におけるその他の構成単位の割合は特段の制限はないが、第１のマトリクス樹脂と第２のマトリクス樹脂との相溶性をより向上するために５０質量部以下であることが好ましく、３０質量部以下であることがさらに好ましく、２０質量部以下であることが特に好ましく、一方、０質量部以上である。

[0026] なお、第２の重合体部分は複数の異なる構成単位を有して構成される複数の重合体から構成されていてもよい。この場合の構成単位は、第２の重合体の構成単位として例示したものを用いることができる。

[0027] 第１の重合体部分と第２の重合体部分との合計１００質量部における、第１の重合体の割合は、重合体Ａを樹脂添加剤として第１のマトリクス樹脂と第２のマトリクス樹脂とに添加した際に、第１のマトリクス樹脂と第２のマトリクス樹脂との相溶性をより向上するために、２０質量部を超え９０質量部以下であることが好ましい。より好ましくは２０質量部を超え８０質量部以下であり、さらに好ましくは２０質量部を超え７０質量部以下であり、さらに好ましくは２０質量部を超え６０質量部以下であり、さらに好ましくは２０質量部を超え５０質量部以下であり、さらに好ましくは２０質量部を超え４５質量部以下であり、特に好ましくは２０質量部を超え４０質量部以下である。

[0028] ＜１－３．重合体Ａの製造方法＞

コアシェル構造を有する場合の重合体Ａの製造方法は特段の制限はなく、

懸濁重合、溶液重合または乳化重合等の公知の方法で製造することができる。なかでも、製造の容易さの観点より、乳化重合で製造することが好ましい。すなわち、重合体Ａは、最終的に得られる第１の重合体部分を構成する重合体の存在下で、第２の重合体部分を構成する単量体成分を乳化重合することにより得られる重合体であることが好ましい。なお、乳化重合を行う際には、該単量体成分を一括で添加して重合させる一括重合で行ってもよいし、段階的に添加していく滴下重合で行ってもよい。

[0029] より具体的には、第１の重合体部分を構成することになる重合体を任意の溶媒に分散させた溶液に、第２の重合体を構成する単量体成分を添加し、各種ミキサーを用いて乳化させ、重合開始剤を加えて、重合することができる。

[0030] 第１の重合体を任意の溶媒に分散させた溶液は、例えば第１の重合体部分を構成する重合体を水、イソプロピルアルコール、エタノール、メタノール等の各種アルコール、アセトン、メチルエチルケトン、ジエチルエーテル等の１種以上の溶媒に加え、せん断を加えながら、撹拌することで得ることができる。分散溶液中の第１の重合体の割合は分散性に優れることから１０質量％以上が好ましく、分散溶液の粘度を考慮した取扱い性の観点から５０質量％以下が好ましい。

[0031] 第１の重合体部分を構成する重合体を任意の溶媒に分散させた溶液に、第２の重合体部分を構成する単量体成分を添加する際は、界面活性剤をさらに添加してもよい。界面活性剤としては、アニオン性界面活性剤、カチオン性界面活性剤、又は中性界面活性剤が挙げられる。これらは１種以上を用いても良い。

[0032] 重合開始剤は一般的にラジカル重合に使用されるものが使用可能であり、その具体例としては、過硫酸カリウム、過硫酸ナトリウム、過硫酸アンモニウム等の過硫酸塩類、アゾビスイソブチロニトリル、２，２’－アゾビス（２－メチルブチロニトリル）、２，２’－アゾビス（２，４－ジメチルバレロニトリル）、２，２’－アゾビス（４－メトキシ－２，４－ジメチルバレ

ロニトリル）、２－フェニルアゾ－４－メトキシ－２，４－ジメチルバレロニトリル等の油溶性アゾ化合物類、２，２’－アゾビス｛２－メチル－Ｎ－［１，１－ビス（ヒドロキシメチル）－２－ヒドロキシエチル］プロピオンアミド｝、２，２’－アゾビス｛２－メチル－Ｎ－［２－（１－ヒドロキシエチル）］プロピオンアミド｝、２，２’－アゾビス｛２－メチル－Ｎ－［２－（１－ヒドロキシブチル）］プロピオンアミド｝２，２’－アゾビス［２－（５－メチル－２－イミダゾリン－２－イル）プロパン］及びその塩類、２，２’－アゾビス［２－（２－イミダゾリン－２－イル）プロパン］及びその塩類、２，２’－アゾビス｛２－［１－（２－ヒドロキシエチル）－２－イミダゾリン－２－イル］プロパン｝及びその塩類、２，２’－アゾビス（２－メチルプロピンアミジン）及びその塩類、２，２’－アゾビス［Ｎ－（２－カルボキシエチル）－２－メチルプロピオンアミジン］等の水溶性アゾ化合物、過酸化ベンゾイル、クメンハイドロパーオキサイド、ｔ－ブチルハイドロパーオキサイド、ｔ－ブチルパーオキシ－２－エチルヘキサノエート、ｔ－ブチルパーオキシイソブチレート等の有機過酸化物類等が挙げられる。前記重合開始剤は１種を単独で用いてもよいし、２種類以上を組み合わせて用いてもよい。

[0033] 本発明の一態様における好ましいラジカル重合方法としては、例えば、水溶性の重合開始剤により重合を行わせる方法、有機過酸化物と硫酸第一鉄またはイソアスコルビン酸等の還元剤とを用いたレドックス反応により重合を行わせる方法が挙げられる。

[0034] 重合開始剤の使用量は、第２の重合体を構成する単量体の合計１００質量部に対して０．０５～１．０質量部が好ましく、下限は０．１質量部以上、上限は０．３質量部以下がより好ましい。なお過酸化物系重合開始剤を用いる場合、還元剤と組み合わせてレドックス系重合開始剤として用いることができる。還元剤の使用量は、第２の重合体を構成する単量体の合計１００質量部に対して０．０００１～１質量部が好ましい。

[0035] また、分子量調整剤として、ｎ－ドデシルメルカプタン、ｔ－ドデシルメ

ルカプタン、α－メチルスチレンダイマー等の公知の連鎖移動剤を用いて単量体を重合してもよい。

[0036] 反応温度は特段の制限はないが、通常、４５℃以上８０℃以下である。また、反応時間も特段の制限はないが、通常、３０分以上３００分以下である。

[0037] 乳化重合によって得られた重合体Ａのラテックスは、噴霧乾燥法または凍結乾燥法により乾燥する、または凝析を行うことにより、重合体の粉体として回収することができる。これらの中では、噴霧乾燥法による乾燥または凝析を行うことが好ましい。

[0038] 噴霧乾燥法による乾燥を行う場合、重合体Ａのラテックスを微小液滴上に噴霧し、それに熱風を当てて乾燥させることが好ましい。液滴を発生させる装置として、回転円盤形式、圧力ノズル式、二流体ノズル式等のいずれの装置を用いてもよい。

[0039] 重合体Ａのラテックスに熱風に当てて乾燥する場合、該熱風温度は１００℃以上２００℃以下であることが好ましい。熱風温度が１００℃以上であるとラテックスの乾燥を十分に行うことができ、２００℃以下であると得られる粉体の熱分解を抑制することができる。

[0040] 凝析を行う場合、凝析剤を溶解した熱水中に重合体Ａのラテックスを投入し、重合体Ａを塩析して分離、精製し凝固して湿潤状としたものを脱水および乾燥する。凝析剤としては、例えば、塩化アルミニウム、硫酸アルミニウム、硫酸ナトリウム、硫酸マグネシウム、硝酸ナトリウム、酢酸カルシウム等の無機塩、または硫酸等の酸が挙げられ、酢酸カルシウムが特に好ましい。これらの凝析剤は１種を単独で又は２種以上を併用してもよいが、併用する場合は水に不溶性の塩を形成しない組み合わせを選択することが好ましい。例えば、酢酸カルシウムと、硫酸もしくはそのナトリウム塩とを併用すると、水に不溶性のカルシウム塩を形成するので好ましくない。

[0041] なお、重合体Ａはその製造方法によって、第１の重合体部分と第２の重合体部分との重合態様が変化することは技術常識であるが、どのような重合態

様となっているか特定することは困難である。例えば、第１の重合体部分を構成する重合体の存在下で、第２の重合体部分を構成する単量体成分を乳化重合させて得られる重合体Ａは、他の方法により得られる重合体Ａとは重合態様が変化し、構造または特性に差異が生じると考えられる。しかしながら、このような差異が明確となるように構造または特性を特定することは、技術的に不可能であるか、またはおよそ実際的ではない。

[0042] ［樹脂添加剤］

重合体Ａは相容化剤等の樹脂添加剤として使用することができる。なお、樹脂添加剤は、重合体Ａをそのまま使用してもよく、また任意の助剤を配合してもよい。助剤としては、公知のものが挙げられ、例えば、難燃剤、滴下防止剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤、離型剤、滑剤、摺動剤、着色剤、蛍光増白剤、蓄光顔料、蛍光染料、帯電防止剤等が挙げられる。

[0043] ＜２．樹脂組成物＞

本実施形態に係る樹脂組成物は、重合体Ａと、第１のマトリクス樹脂と、を含む。また、該樹脂組成物は、第１のマトリクス樹脂とは異なる樹脂である第２のマトリクス樹脂をさらに含んでいてもよい。第１のマトリクス樹脂および第２のマトリクス樹脂の合計１００質量部に対する重合体Ａの割合は、特段の制限はないが、０．１～３０質量部が好ましく、５～２０質量部がより好ましい。樹脂添加剤の割合が０．１質量部以上であれば、第１のマトリクス樹脂および第２のマトリクス樹脂の相溶性がより向上し、３０質量部以下であれば樹脂組成物製造時の加工性に優れる。

[0044] 本実施形態に係る樹脂組成物は、さらに他の成分を含んでいてもよい。例えば、機能付与または特性改善のため、必要に応じて公知の助剤を配合してもよい。かかる助剤としては、例えば、難燃剤、滴下防止剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤、離型剤、滑剤、摺動剤、着色剤、蛍光増白剤、蓄光顔料、蛍光染料、帯電防止剤等が挙げられる。

[0045] ＜２－１．第１のマトリクス樹脂＞

第１のマトリクス樹脂は、特段の制限はないが、好ましくは、ポリエステ

ル樹脂であり、例えば、ポリブチレンテレフタレート（ＰＢＴ）、ポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）、ポリトリメチレンテレフタレート（ＰＴＴ）、ポリエチレンナフタレート（ＰＥＮ）、ポリブチレンナフタレート（ＰＢＮ）、ポリブチレンサクシネート（ＰＢＳ）、ポリヒドロキシアルカン酸（ＰＨＡ）およびポリ乳酸（ＰＬＡ）からなる群の少なくとも１種からなる樹脂であってよい。またこれらはリサイクル材を用いても良い。

[0046] ＜２－２．第２のマトリクス樹脂＞

第２のマトリクス樹脂は、第１のマトリクス樹脂とは異なる樹脂であれば特段の制限はないが、例えば、ポリスチレン含有樹脂であり、ポリスチレン、耐衝撃性ポリスチレン（High Impact Polystyrene：ＨＩＰＳ）およびアクリロニトリル－ブタジエン－スチレン共重合体（ＡＢＳ）等のポリスチレン含有樹脂を使用することができる。またこれらはリサイクル材を用いても良い。第２のマトリクス樹脂を構成する構成単位の少なくとも一部の構成単位は、重合体Ａにおける第２の重合体部分の少なくとも一部の構成単位と同一であることが、相溶性向上の観点から好ましい。

[0047] 第１のマトリクス樹脂および第２のマトリクス樹脂の合計１００質量部における第１のマトリクス樹脂の割合は特段の制限はないが、５質量部以上であることが好ましく、１０質量部以上であることがより好ましく、２０質量部以上であることがさらに好ましく、２５質量部以上であることが特に好ましい。一方、第１のマトリクス樹脂の該割合は９５質量部以下であることが好ましく、９０質量部以下であることがより好ましく、８０質量部以下であることがさらに好ましく、７５質量部以下であることが特に好ましい。

[0048] ＜２－３．樹脂組成物の製造方法＞

樹脂組成物の製造方法は特段の制限はないが、重合体Ａ、第１のマトリクス樹脂および第２のマトリクス樹脂を粉体の形で混合、または溶融混練することで製造することができる。混合または溶融混錬には、例えば、ヘンシェルミキサー、バンバリーミキサー、単軸スクリュー押出機、二軸スクリュー押出機、２本ロール、ニーダー、ブラベンダー等が使用される。

[0049] ＜３．成形体＞

本実施形態に係る樹脂組成物は、成形加工して成形体とすることができる。また、本実施形態に係る樹脂組成物を他の材料と混合した後に成形加工して成形体としてもよい。すなわち、成形体は樹脂組成物を含有していてもよい。なお、成形方法としては、公知の方法を使用することができ、例えば、圧縮成形、トランスファー成形、射出成形、ブロー成形、真空成形、押出成形、積層成形、カレンダー成形が挙げられる。

[0050] ＜４．まとめ＞

以上に示す通り、本発明は、下記の態様を有する。

[0051] ［１］第１の重合体部分と、第２の重合体部分とを有する重合体であって、前記第１の重合体部分がポリエステル系重合体であり、前記第２の重合体部分が前記第１の重合体部分を構成する構成単位とは異なる構成単位を有し、前記第１の重合体部分と前記第２の重合体部分との合計１００質量部における、前記第１の重合体の割合が、２０質量部を超え９０質量部以下であり、前記第２の重合体部分が、（メタ）アクリレート単量体由来の構成単位を有している、重合体。

[0052] ［２］前記第２の重合体部分を構成する全構成単位における、前記（メタ）アクリレート単量体由来の構成単位の割合が５質量部以上である、［１］に記載の重合体。

[0053] ［３］前記第２の重合体部分がさらに芳香族ビニル単量体由来の構成単位を有する、請求項［１］または［２］に記載の重合体。

[0054] ［４］前記第２の重合体部分を構成する全構成単位における、前記芳香族ビニル単量体由来の構成単位の割合が３０質量部以上９５質量部以下である、［３］に記載の重合体。

[0055] ［５］コアシェル構造を有し、前記第１の重合体部分が前記コアシェル構造のシェル部分を構成し、前記第２の重合体部分が前記コアシェル構造のコア部分を構成する、［１］から［４］のいずれか１つに記載の重合体。

[0056] ［６］前記第１の重合体部分を構成する重合体の存在下で、前記第２の重

合体部分を構成する単量体成分を乳化重合させることにより得られる、［１］から［５］のいずれか１つに記載の重合体。

[0057] ［７］［１］から［６］のいずれか１つに記載の重合体を含む、樹脂添加剤。

[0058] ［８］［１］から［６］のいずれか１つに記載の重合体と、第１のマトリクス樹脂としてポリエステル樹脂と、を含む樹脂組成物。

[0059] ［９］第２のマトリクス樹脂をさらに含み、前記第２のマトリクス樹脂が前記第１のマトリクス樹脂とは異なる樹脂である、［８］に記載の樹脂組成物。

[0060] ［１０］前記第２のマトリクス樹脂が、ポリスチレン含有樹脂である、［９］に記載の樹脂組成物。

[0061] ［１１］［１］、［５］または［６］に記載の重合体と、第１のマトリクス樹脂としてポリエステル樹脂と、前記第１のマトリクス樹脂とは異なる樹脂である第２のマトリクス樹脂と、を含む樹脂組成物であって、前記第２の重合体部分の少なくとも一部の構成単位と、前記第２のマトリクス樹脂を構成する構成単位の少なくとも一部の構成単位とが同一である、樹脂組成物。

[0062] ［１２］［８］から［１１］のいずれか１つに記載の樹脂組成物を含む成形体。

実施例

[0063] 以下に本発明の一態様を実施例により説明する。実施例において、「部」は「質量部」を示す。

[0064] ＜引張弾性率、引張のび＞

テンシロン万能試験機（機種名「ＲＴＣ－１２５０Ａ－ＰＬ」、（株）オリエンテック製）を用い、ＪＩＳ　Ｋ７１３９に従って引張試験を行い、成形体の引張弾性率および引張のびを測定した。

[0065] ＜相サイズ＞

透過電子顕微鏡（ＴＥＭ）（機種名「Ｈ－７６００」、日立社製）を用い、一部の成形体について、相サイズの観察を行った。試験片は四酸化オスミ

ウムで１２時間染色した後、四酸化ルテニウムで５時間染色し、観察切片を作製した。ＴＥＭ写真中の任意の３０個の分散相の長径部分の平均径を求め、相サイズとした。

[0066] （製造例１）

第１の重合体部分を構成する重合体の水分散溶液としてニチゴーポリエスターＷＲ－９０５（三菱ケミカル（株）製：固形分２０％）を２４０部、ラジカル重合性単量体として、スチレン（Ｓｔ）９０部、グリシジルメタクリレート（ＧＭＡ）１０部を入れ、ホモミキサーで乳化させ、ラジカル重合性単量体のプレエマルション液を得た。

[0067] 撹拌機、還流冷却管、温度制御装置を備えたフラスコに、プレエマルション液および脱イオン水を２２２部添加し、流量毎分２００ｍｌ条件で窒素バブリングを行いながら、５０℃に昇温し、１時間保持した。重合開始剤としてパークミルＰ（日油社製）０．７部、還元剤として、硫酸第一鉄：０．００２部、エチレンジアミン四酢酸ナトリウム（ＥＤＴＡ）：０．００６部、ナトリウムホルムアルデヒドスルホキシレート：０．３部、脱イオン水：１０部を添加し、窒素フローに切り替え、重合を開始した。１時間後６０℃に昇温し、２時間保持し、冷却し本発明の一態様に係る重合体Ａ１のラテックスを得た。得られた重合体Ａ１ラテックスを酢酸カルシウム５質量部が入った脱イオン水４６０部に添加して凝析し、水洗、脱水、乾燥することで、粉体の形で重合体Ａ１を得た。

[0068] （製造例２～９）

第１の重合体部分の使用量、ラジカル重合性単量体の種類および共重合量を下記表１の通りに変更した以外は、製造例１と同様の製法で、本発明の一態様に係る重合体Ａ２～Ａ６および比較例に係る重合体Ｂ１～Ｂ３を得た。ラジカル重合性単量体としては、１種類または２種類の（メタ）アクリレートを用いた。表１では、２種類の（メタ）アクリレートをそれぞれ、「ａ１」および「ａ２」と表記している。製造例２～７において、ラジカル重合性単量体として、グリシジルメタクリレート（ＧＭＡ）、ブチルアクリレート

（ＢＡ）、メチルメタクリレート（ＭＭＡ）およびポリプロピレングリコールモノメタクリレート（日油社製ブレンマーＰＰ－８００）の少なくとも何れかを用いた。

[0069] ＜重合安定性＞

各重合体の重合安定性として、重合過程を通し、ラジカル重合性単量体が第一の重合体によって乳化状態を保っていれば「適」、分離すれば「不適」として評価を行った。

[0070] （実施例１）

第１のマトリクス樹脂としてポリブチレンテレフタレート（ＰＢＴ、三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社製：ノバデュラン５０１０Ｒ）７０部、第２のマトリクス樹脂としてポリスチレン（ＰＳ、東洋スチレン株式会社製：トーヨースチロールＧＰ２００）を３０部、製造例１で製造した重合体Ａ１を１０部、ポリエチレン製の袋に入れた。該ポリエチレン製の袋を手でよく振ってハンドブレンドした後、二軸押出機（東芝機械社製、商品名：ＴＥＭ３５Ｂ）を用いて２５０℃で溶融混練し、押出されたストランドをカットし、ペレットを得た。得られたペレットを、射出成形機（東芝機械社製、商品名：ＩＳ１００ＥＮ）を用いて成形温度２５０℃および金型温度６０℃で成形してＪＩＳ　Ｋ７１３９に準拠したダンベル型の成形体を製造し、実施例１に係る成形体を得た。成形体について、透過電子顕微鏡（ＴＥＭ）による断面観察および引張試験を行った。成形体の断面のＴＥＭ写真を図１に示す。ＴＥＭ写真中の任意の３０個の分散相の長径部分の平均径は０．５８μｍであった。また、引張試験による成形体の引張弾性率は２．２ＧＰａ、引張のびは３．１％であった。

[0071] （実施例２～８）

第２のマトリクス樹脂を耐衝撃性ポリスチレン（ＨＩＰＳ、東洋スチレン製：トーヨースチロールＨ３５０）に変更した、または、第１のマトリクス樹脂および第２のマトリクス樹脂の割合、用いる重合体の種類ならびに添加量を下記表２の通りに変更した以外は、実施例１と同様に成形体を得て、評

価を行った。

[0072] （比較例１）

製造例１により得られた重合体Ａ１を添加しなかったことを除き、実施例１と同じ方法により、樹脂組成物および成形体を製造し、比較例１に係る成形体を得た。成形体について、ＴＥＭによる断面観察および引張試験を行った。成形体の断面のＴＥＭ写真を図２に示す。ＴＥＭ写真中の任意の３０個の分散相の長径部分の平均径は１．０１μｍであった。また、引張試験による成形体の引張弾性率は２．１ＧＰａ、引張伸びは２．９％であった。

[0073] （比較例２～７）

第２のマトリクス樹脂を耐衝撃性ポリスチレン（ＨＩＰＳ、東洋スチレン製：トーヨースチロールＨ３５０）に変更した、または、重合体の添加の有無、用いる重合体の種類および添加量を下記表２の通りに変更した以外は、実施例１と同様に成形体を得て、評価を行った。

[0074]

[表1]

[表1]

第1の重合体部分	第2の重合体部分						第1の重合体部分の割合(質量部)	名称	重合安定性
ポリエステル系重合体	a1	a1の割合(質量部)	a2	a2の割合(質量部)	芳香族ビニル	芳香族ビニルの割合(質量部)			
製造例1	WR-905	GMA	10	-	-	St	90	38	重合体A1	適
製造例2	WR-905	GMA	10	-	-	St	90	26	重合体A2	適
製造例3	WR-905	BA	10	-	-	St	90	38	重合体A3	適
製造例4	WR-905	BA	5	MMA	45	St	50	26	重合体A4	適
製造例5	WR-905	BA	5	MMA	45	St	50	38	重合体A5	適
製造例6	WR-905	ブレンマーPP-800	10	MMA	40	St	50	38	重合体A6	適
製造例7	WR-905	BA	5	MMA	45	St	50	19	重合体B1	適
製造例8	WR-905	GMA	10	-	-	St	90	19	重合体B2	適
製造例9	WR-905	-	-	-	-	St	100	38	重合体B3	不適

[0075]

[表2]

[表2]

	第1のマトリクス樹脂		第2のマトリクス樹脂		樹脂添加剤		引張弾性率(GPa)	引張のび(%)	相サイズ(μm)
	種類	配合量(質量部)	種類	配合量(質量部)	種類	配合量(質量部)			
実施例1	PBT	70	PS	30	重合体A1	10	2.2	3.1	0.58
実施例2	PBT	70	PS	30	重合体A1	5	2.1	3	0.66
実施例3	PBT	90	PS	10	重合体A1	5	1.8	11.9	1.22
実施例4	PBT	70	PS	30	重合体A2	5	2.1	3.1	0.6
実施例5	PBT	70	PS	30	重合体A3	5	2.2	3.6	0.5
実施例6	PBT	70	PS	30	重合体A4	5	2.1	4.1	0.44
実施例7	PBT	70	PS	30	重合体A5	5	2.3	4.9	0.37
実施例8	PBT	70	HIPS	30	重合体A6	5	1.8	12	2.11
比較例1	PBT	70	PS	30	-	-	2.1	2.9	1.01
比較例2	PBT	90	PS	10	-	-	1.7	9.2	3.62
比較例3	PBT	70	HIPS	30	-	-	1.8	10.5	3.31
比較例4	PBT	70	PS	30	重合体B1	5	2.2	2.8	測定せず
比較例5	PBT	70	PS	30	重合体B2	5	2.1	2.9	0.91
比較例6	PBT	70	PS	30	重合体B3	5	1.9	2.5	6.53
比較例7	PBT	70	PS	30	WR-905	5	1.9	2.8	測定せず

[0076] 以上の結果から、第１のマトリクス樹脂と第２のマトリクス樹脂との割合が、７０／３０（第１のマトリクス樹脂／第２のマトリクス樹脂）において、本発明の一態様に係る重合体を使用していない比較例１に対して、本発明の一態様に係る重合体を使用した場合の実施例１では、分散相の平均径が大幅に小さくなり、また成形体の引張のびが比較例１を１００％とした時に７％向上していることが分かる。また、比較例１に対して、本発明の一態様に係る重合体を使用した場合の実施例４、６についても同様に分散相の平均径と成形体の引張のびが向上していることがわかる。以上の結果から本発明の一態様に係る重合体を樹脂添加剤として使用することにより第１のマトリクス樹脂と第２のマトリクス樹脂との相溶性及び成形体の引張のびが向上することが分かる。引張のびが向上することで、成形体の靭性が良好となるため工業的利用価値が高い。

[0077] また、第１の重合体部分の割合が少ない重合体を使用した比較例５に対し

、第１の重合体部分の割合が十分である実施例２は、分散相の平均径が小さくなり、また成形体の引張伸びも比較例５を１００％とした時に３％向上することが確認できた。第１の重合体部分の割合が少ない重合体を使用した比較例４と、第１の重合体部分の割合が十分である実施例７においても同様に、分散相の平均径と成形体の引張のびが向上していることがわかる。以上の結果から本発明の一態様に係る重合体を樹脂添加剤として使用することにより、第１のマトリクス樹脂と第２のマトリクス樹脂との相溶性及び成形体の引張のびが向上することが分かる。引張のびが向上することで、成形体の靭性が良好となるため工業的利用価値が高い。

[0078] さらに、第２の重合体部分に（メタ）アクリレート単量体を含まない重合体を使用した比較例６に対し、第２の重合体部分に（メタ）アクリレート単量体を含有する実施例２、５、及び７は、分散相の平均径が小さく、また成形体の引張のびが向上することが確認できた。実施例２、５、及び７は、比較例６の引張のびを１００％としたとき、引張のびがそれぞれ、２０％、４４％、９６％向上することが確認できた。以上の結果から本発明の一態様に係る重合体を樹脂添加剤として使用することにより、第１のマトリクス樹脂と第２のマトリクス樹脂との相溶性及び成形体の引張のびが向上することがわかる。引張のびが向上することで、成形体の靭性が上がるため工業的利用価値が高い。

[0079] 第１のマトリクス樹脂と第２のマトリクス樹脂との割合が、９０／１０（第１のマトリクス樹脂／第２のマトリクス樹脂）の実施例３は、本発明の一態様に係る重合体を使用していない比較例２に対し、分散相の平均径が大幅に小さくなり、また成形体の引張のびが比較例２を１００％としたときに２９％向上していることがわかる。以上の結果から本発明の一態様に係る重合体を樹脂添加剤として使用することにより第１のマトリクス樹脂と第２のマトリクス樹脂との相溶性及び成形体の引張のびが向上することが分かる。引張のびが向上することで、成形体の靭性が上がるため工業的利用価値が高い。

[0080] 第２のマトリクス樹脂にＨＩＰＳを使用した実施例８は、本発明の一態様に係る重合体を使用していない比較例３に対し、分散相の平均径が大幅に小さくなり、また成形体の引張のびが比較例３を１００％としたときに１４％向上していることがわかる。以上の結果から本発明の一態様に係る重合体を樹脂添加剤として使用することにより、第１のマトリクス樹脂と第２のマトリクス樹脂との相溶性及び成形体の引張のびが向上することが分かる。引張のびが向上することで、成形体の靭性が上がるため工業的利用価値が高い。

[0081] 第２の重合体部分を有していない重合体を使用した比較例７では、重合体の重合性安定性が悪く、また成形体の引張のびが重合体を有していない比較例１よりも劣るため、工業的利用価値に劣る。

産業上の利用可能性

[0082] 本発明の一態様に係る重合体は、２種類以上の樹脂の混合時に、樹脂の相分離を低減でき、また重合体を含む樹脂組成物を成形体にした際に引張のびに優れる相容化剤として好適に利用することができる。

請求の範囲

[請求項1] 第１の重合体部分と、第２の重合体部分とを有する重合体であって、

前記第１の重合体部分がポリエステル系重合体であり、前記第２の重合体部分が前記第１の重合体部分を構成する構成単位とは異なる構成単位を有し、

前記第１の重合体部分と前記第２の重合体部分との合計１００質量部における、前記第１の重合体部分の割合が、２０質量部を超え９０質量部以下であり、

前記第２の重合体部分が、（メタ）アクリレート単量体由来の構成単位を有している、重合体。

[請求項2] 前記第２の重合体部分を構成する全構成単位における、前記（メタ）アクリレート単量体由来の構成単位の割合が５質量部以上である、請求項１に記載の重合体。

[請求項3] 前記第２の重合体部分がさらに芳香族ビニル単量体由来の構成単位を有する、請求項１に記載の重合体。

[請求項4] 前記第２の重合体部分を構成する全構成単位における、前記芳香族ビニル単量体由来の構成単位の割合が３０質量部以上９５質量部以下である、請求項３に記載の重合体。

[請求項5] コアシェル構造を有し、

前記第１の重合体部分が前記コアシェル構造のシェル部分を構成し、

前記第２の重合体部分が前記コアシェル構造のコア部分を構成する、請求項１に記載の重合体。

[請求項6] 前記第１の重合体部分を構成する重合体の存在下で、前記第２の重合体部分を構成する単量体成分を乳化重合させることにより得られる、請求項１に記載の重合体。

[請求項7] 請求項１～６のいずれか１項に記載の重合体を含む、樹脂添加剤。

[請求項8] 請求項１に記載の重合体と、第１のマトリクス樹脂としてポリエステル樹脂と、を含む樹脂組成物。

[請求項9] 第２のマトリクス樹脂をさらに含み、前記第２のマトリクス樹脂が前記第１のマトリクス樹脂とは異なる樹脂である、請求項８に記載の樹脂組成物。

[請求項10] 前記第２のマトリクス樹脂が、ポリスチレン含有樹脂である、請求項９に記載の樹脂組成物。

[請求項11] 請求項１に記載の重合体と、

第１のマトリクス樹脂としてポリエステル樹脂と、

前記第１のマトリクス樹脂とは異なる樹脂である第２のマトリクス樹脂と、を含む樹脂組成物であって、

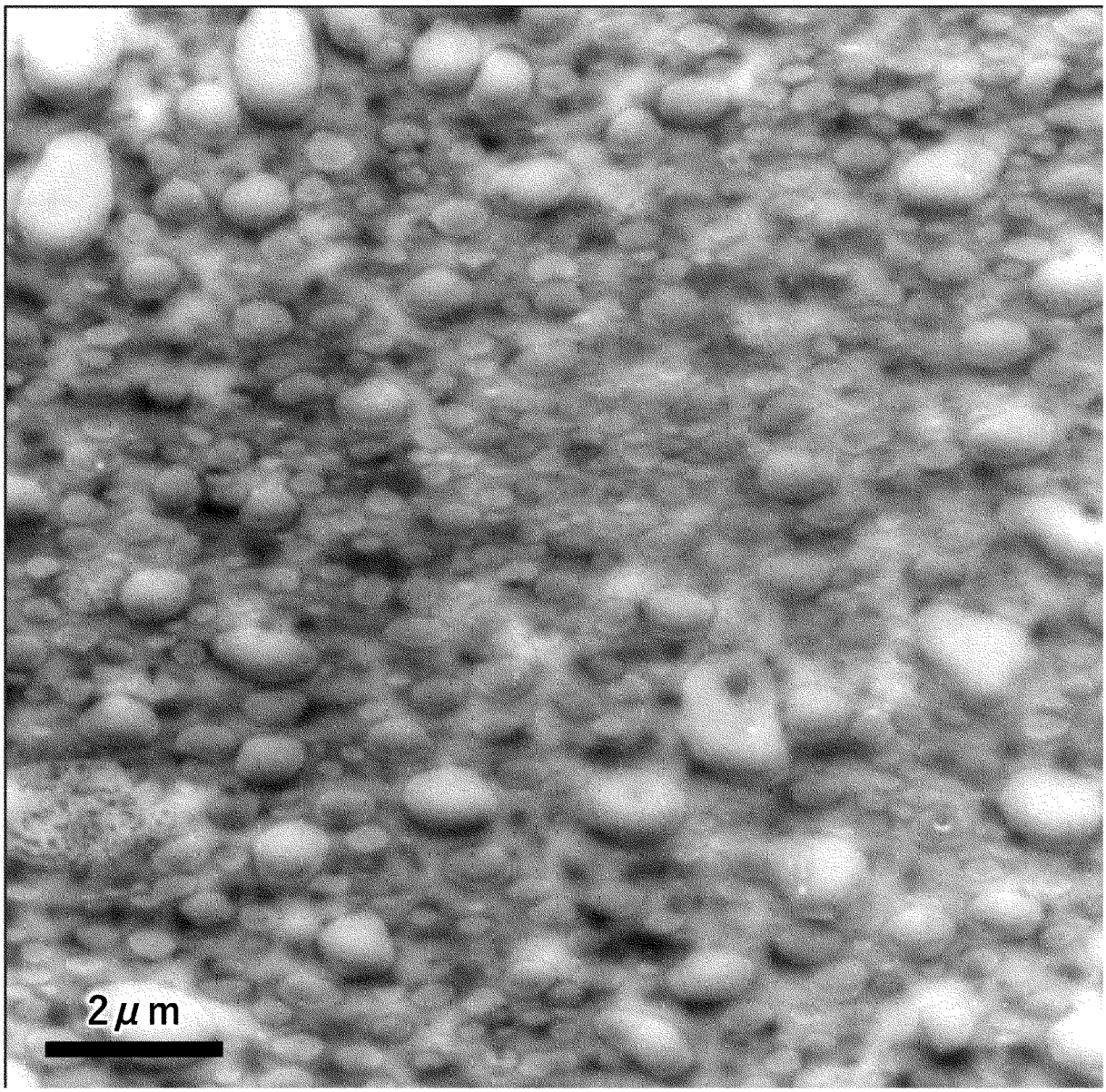
前記第２の重合体部分の少なくとも一部の構成単位と、前記第２のマトリクス樹脂を構成する構成単位の少なくとも一部の構成単位とが同一である、樹脂組成物。

[請求項12] 請求項８～１１のいずれか１項に記載の樹脂組成物を含む成形体。

WO 2023/204205 PCT/JP2023/015445

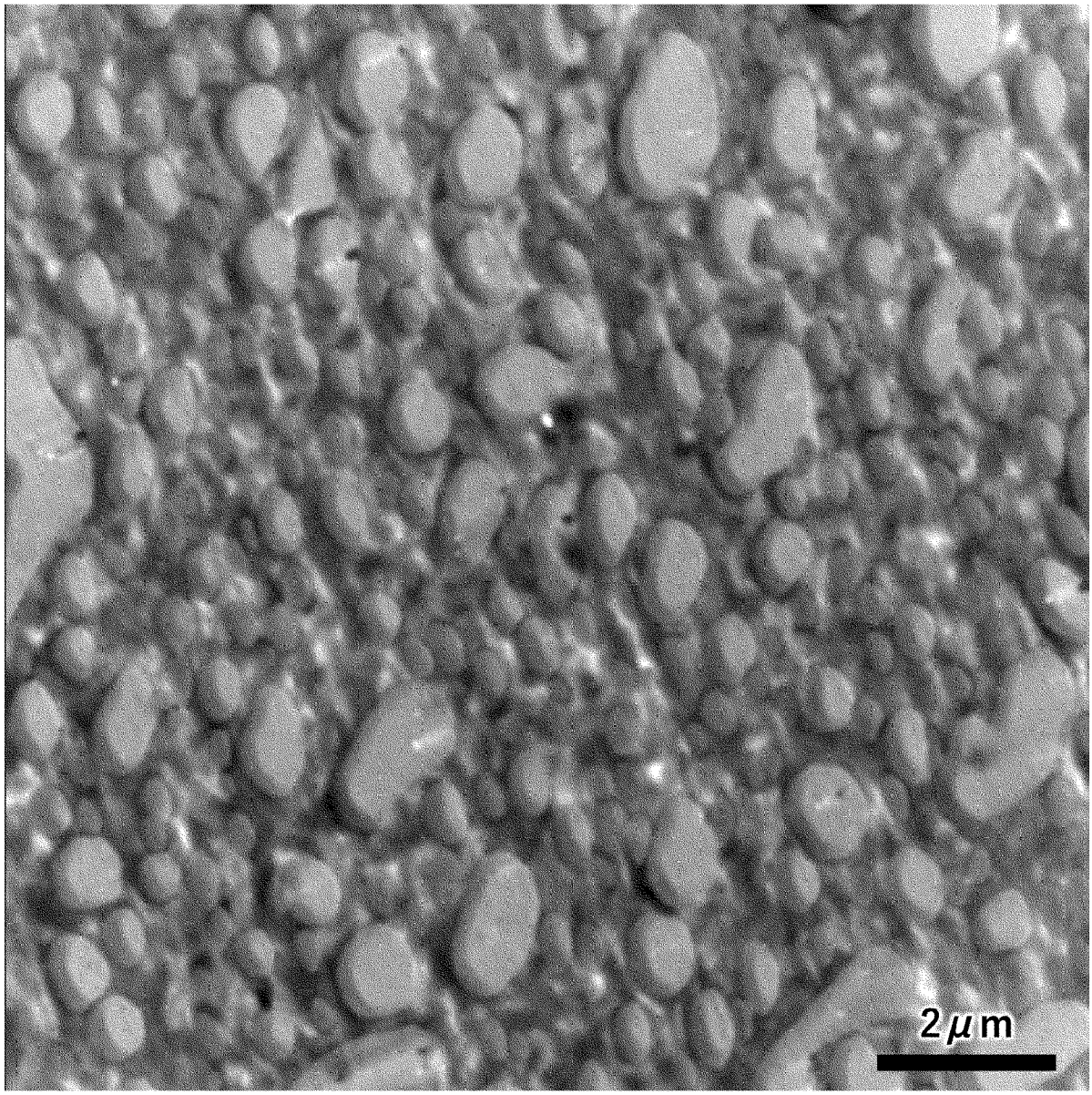
[図1]

図 1



[図2]

図 2



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2023/015445

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08F 283/02(2006.01)i; ***C08L 25/04***(2006.01)i; ***C08L 51/08***(2006.01)i; ***C08L 67/00***(2006.01)i
FI: C08F283/02; C08L25/04; C08L67/00; C08L51/08

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)

C08F283/02; C08L1/00-101/16; C08F293/00

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 1971-2023
Registered utility model specifications of Japan 1996-2023
Published registered utility model applications of Japan 1994-2023

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	JP 2016-135858 A (XEROX CORP) 28 July 2016 (2016-07-28) claims, paragraphs [0062]-[0073]	1-5, 7
A		6, 8-12
X	JP 2017-088868 A (XEROX CORP) 25 May 2017 (2017-05-25) claims, paragraphs [0047]-[0057], [0075], [0109]-[0120]	1-4, 6-7
A		5, 8-12
X	JP 2016-161782 A (KONICA MINOLTA INC) 05 September 2016 (2016-09-05) claims, paragraphs [0042], [0120]-[0124], [0151]-[0156], [0245]-[0341]	1-5, 7
A		6, 8-12
X	JP 2019-219643 A (CANON KK) 26 December 2019 (2019-12-26) claims, paragraphs [0061]-[0091]	1-4, 7
A		5-6, 8-12

☑ 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
04 July 2023	**18 July 2023**
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/JP2023/015445

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2015/0225562 A1 (ESCOBAR BARRIOS, Vladimir Alonso et al.) 13 August 2015 (2015-08-13) claims	1-4, 7-12
A		5-6

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2023/015445

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2016-135858 A	28 July 2016	US 2016/0215104 A1 claims, paragraphs [0068]-[0078] US 2017/0233535 A1	
JP 2017-088868 A	25 May 2017	US 2017/0130044 A1 claims, paragraphs [0047]-[0057], [0080], [0121]-[0132] DE 102016221244 A1	
JP 2016-161782 A	05 September 2016	US 2016/0259258 A1 claims, paragraphs [0044], [0121]-[0125], [0152]-[0157], [0245]-[0338]	
JP 2019-219643 A	26 December 2019	US 2019/0384195 A1 claims, paragraphs [0203]-[0265] EP 3582014 A1 CN 110597029 A	
US 2015/0225562 A1	13 August 2015	MX 2014001702 A	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2023/015445

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08F 283/02(2006.01)i; C08L 25/04(2006.01)i; C08L 51/08(2006.01)i; C08L 67/00(2006.01)i
FI: C08F283/02; C08L25/04; C08L67/00; C08L51/08

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））

C08F283/02; C08L1/00-101/16; C08F293/00

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	１９７１－２０２３年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２３年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２３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	JP 2016-135858 A (ゼロックス コーポレイション) 28.07.2016 (2016-07-28) 特許請求の範囲，段落0062-0073	1-5,7
A		6,8-12
X	JP 2017-088868 A (ゼロックス コーポレイション) 25.05.2017 (2017-05-25) 特許請求の範囲，段落0047-0057,0075,0109-0120	1-4,6-7
A		5,8-12
X	JP 2016-161782 A (コニカミノルタ株式会社) 05.09.2016 (2016-09-05) 特許請求の範囲，段落0042,0120-0124,0151-0156,0245-0341	1-5,7
A		6,8-12
X	JP 2019-219643 A (キヤノン株式会社) 26.12.2019 (2019-12-26) 特許請求の範囲，段落0061-0091	1-4,7
A		5-6,8-12

☑ 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	国際調査報告の発送日
04.07.2023	18.07.2023

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）
内田　靖恵 4J 9553

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
X	US 2015/0225562 A1 (ESCOBAR BARRIOS Vladimir alonso et al.) 13.08.2015 (2015-08-13) 特許請求の範囲	1-4,7-12
A		5-6

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/JP2023/015445

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2016-135858 A	28.07.2016	US 2016/0215104 A1 特許請求の範囲，段落 0068-0078 US 2017/0233535 A1	
JP 2017-088868 A	25.05.2017	US 2017/0130044 A1 特許請求の範囲，段落 0047-0057,0080,0121-0132 DE 102016221244 A1	
JP 2016-161782 A	05.09.2016	US 2016/0259258 A1 特許請求の範囲，段落 0044,0121-0125,0152-0157,0245-0338	
JP 2019-219643 A	26.12.2019	US 2019/0384195 A1 特許請求の範囲，段落 0203-0265 EP 3582014 A1 CN 110597029 A	
US 2015/0225562 A1	13.08.2015	MX 2014001702 A	