

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6615194号
(P6615194)

(45) 発行日 令和1年12月4日 (2019. 12. 4)

(24) 登録日 令和1年11月15日 (2019. 11. 15)

(51) Int. Cl.	F I
CO8L 101/00 (2006.01)	CO8L 101/00
CO8L 1/02 (2006.01)	CO8L 1/02
CO8J 3/20 (2006.01)	CO8J 3/20 C E P B

請求項の数 15 (全 15 頁)

(21) 出願番号	特願2017-519805 (P2017-519805)	(73) 特許権者	508171804
(86) (22) 出願日	平成27年6月23日 (2015. 6. 23)		サビック グローバル テクノロジーズ
(65) 公表番号	特表2017-519894 (P2017-519894A)		ベスローテン フェンノートシャップ
(43) 公表日	平成29年7月20日 (2017. 7. 20)		オランダ国4612 ビーエックス・ベル
(86) 国際出願番号	PCT/EP2015/064082		ゲン・オブ・ゾーム, プラスティクスラー
(87) 国際公開番号	W02016/001012		ン 1
(87) 国際公開日	平成28年1月7日 (2016. 1. 7)	(74) 代理人	100139723
審査請求日	平成30年4月23日 (2018. 4. 23)		弁理士 樋口 洋
(31) 優先権主張番号	14174995.2	(74) 代理人	100073184
(32) 優先日	平成26年6月30日 (2014. 6. 30)		弁理士 柳田 征史
(33) 優先権主張国・地域又は機関	欧州特許庁 (EP)	(74) 代理人	100090468
			弁理士 佐久間 剛

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 強化熱可塑性高分子組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

熱可塑性組成物を製造する方法であって、

a) 第1の熱可塑性高分子と、セルロース繊維および第2の熱可塑性高分子の混合物を含む紙製品とを熔融混合する工程、
を有してなり、前記紙製品がコーヒーパッドまたはティーバッグの紙である、方法。

【請求項 2】

前記コーヒーパッドまたはティーバッグの紙が、コーヒーパッドまたはティーバッグの製造からの産業廃棄物である、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

前記紙製品が前記セルロース繊維の多孔質構造を有し、前記第2の熱可塑性高分子が該セルロース繊維を部分的または全体的に覆っている、請求項 1 または 2 に記載の方法。

【請求項 4】

前記紙製品が、i) 前記セルロース繊維と前記第2の熱可塑性高分子の熔融物との混合物を提供する工程、および ii) 該混合物を、前記第2の熱可塑性高分子の融点より低い温度に冷却する工程を有してなる方法により得られる、請求項 1 から 3 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 5】

前記工程 i) が、前記セルロース繊維および前記第2の熱可塑性高分子を乾式混合し、さらに、任意選択で混合しながら、前記第2の熱可塑性高分子を熔融させることを含む、

10

20

請求項 4 に記載の方法。

【請求項 6】

前記セルロース繊維と共に乾式混合される前記第 2 の熱可塑性高分子が繊維の形態にある、請求項 5 に記載の方法。

【請求項 7】

前記紙製品が、前記セルロース繊維および前記第 2 の熱可塑性高分子の繊維の多孔質構造を有する、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 8】

前記第 1 の熱可塑性高分子がポリオレフィンであり、かつ前記第 2 の熱可塑性高分子がポリオレフィンである、請求項 1 から 7 のいずれか 1 項に記載の方法。

10

【請求項 9】

前記熱可塑性組成物中の前記セルロース繊維の量が、全組成物の 1 ~ 50 質量%である、請求項 1 から 8 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 10】

前記紙製品が、該紙製品の合計に対して、50 ~ 99 質量%の前記セルロース繊維、および 1 ~ 50 質量%の前記第 2 の熱可塑性高分子を含む、請求項 1 から 9 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 11】

前記工程 a) が、前記第 1 の熱可塑性高分子を押出機内で溶融し、該溶融された第 1 の熱可塑性高分子に前記紙製品を紙の形態で供給することを含む、請求項 1 から 10 のいずれか 1 項に記載の方法。

20

【請求項 12】

第 1 の熱可塑性高分子を含む熱可塑性組成物を強化するための、セルロース繊維および第 2 の熱可塑性高分子の混合物を含む紙製品の使用であって、前記紙製品がコーヒーパッドまたはティーバッグの紙である、使用。

【請求項 13】

前記コーヒーパッドまたはティーバッグの紙が、コーヒーパッドまたはティーバッグの製造からの産業廃棄物である、請求項 12 に記載の使用。

【請求項 14】

第 1 の熱可塑性高分子と、セルロース繊維および第 2 の熱可塑性高分子の混合物を含む紙製品とを含む成形用組成物であって、前記紙製品がコーヒーパッドまたはティーバッグの紙である、成形用組成物。

30

【請求項 15】

前記コーヒーパッドまたはティーバッグの紙が、コーヒーパッドまたはティーバッグの製造からの産業廃棄物である、請求項 14 に記載の成形用組成物。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、熱可塑性高分子およびセルロース繊維を含む熱可塑性高分子組成物に関する。

40

【背景技術】

【0002】

古紙は、固形廃棄物の主要な供給源である。これらの廃棄物の多くはまだ埋め立てられている。古紙を、新たな紙や他の物品を製造するための資源として使用することが研究されてきた。

【0003】

この資源の公知の使用法の 1 つに、熱可塑性組成物における強化用充填材としての使用がある。非特許文献 1 には、ポリプロピレン - 古新聞複合材料が記載されている。この文献において、42%の古新聞繊維が充填された PP 複合材料の性質が、無充填の PP 複合材料のものと比べられた。その古新聞繊維は、約 15 ~ 0 mm の薄片にハンマーミリング

50

された古新聞からのものであった。その古新聞薄片は、ポリプロピレンが加えられる前に、ミキサ内でマレイン酸化ポリプロピレンと混合された。引張係数および引張強さの増加が観察された。しかしながら、古新聞繊維を添加すると、ノッチなし衝撃エネルギーが劇的に低下した。機械的性質がより良好な熱可塑性高分子組成物が望ましい。

【先行技術文献】

【非特許文献】

【0004】

【非特許文献1】 Society of Plastics Engineers; 1992: 602-604. Vol. 1 “Effects of Composition and Polypropylene Melt Flow on Polypropylene -Waste Newspaper Composites”

10

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

本発明の課題は、上述した問題および/または他の問題が解決される、セルロース繊維により強化された熱可塑性高分子組成物を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0006】

したがって、本発明は、熱可塑性組成物を製造する方法であって、

a) 第1の熱可塑性高分子と、セルロース繊維および第2の熱可塑性高分子の混合物を含む紙製品とを熔融混合する工程、
を有してなる方法を提供する。

20

【0007】

本発明は、意外なことに、コーヒーパッドの紙やティーバッグの紙などの飲料用のパッドや袋の紙に、他の種類の(古)紙よりも高い強化効果があるという発見に基づく。理論により束縛する意図はないが、本出願の発明者等は、コーヒーパッドの紙やティーバッグの紙の中の熱可塑性高分子の存在が、強化すべき熱可塑性物質中に繊維を良好に分散させ、これが転じて、良好な機械的性質をもたらすと考えている。コーヒーパッドの紙やティーバッグの紙中の熱可塑性高分子は、熔融混合中に熔融し、紙中のセルロース繊維を弛め、紙を崩壊させる。弛んだセルロース繊維は、強化すべき熱可塑性高分子中に容易に分散する。

30

【0008】

「セルロース繊維および第2の熱可塑性高分子の混合物」という用語は、ここでは、第2の熱可塑性高分子が紙製品中においてセルロース繊維間に分布している、すなわち、第2の熱可塑性高分子が紙製品の全体に存在することと理解される。第2の熱可塑性高分子は、紙製品の表面で繊維間に存在してもよい。コーティングとして紙製品の表面に設けられた熱可塑性高分子は、「セルロース繊維および第2の熱可塑性高分子の混合物」の一部として考えられないことを理解すべきである。

【0009】

紙は、一般に、担体上にシート状に広げられて乾燥したセルロース繊維のパルプから形成される。セルロース繊維は、乾燥中に、互にくっついて、セルロース繊維間に細孔を持つ開放構造を有する紙を形成する。したがって、本発明に使用される紙製品は、第2の熱可塑性高分子がセルロース繊維を部分的または全体的に覆っている、セルロース繊維の多孔質構造を有するであろう。この場合、第2の熱可塑性高分子は、典型的に、未定義形状を有する。

40

【0010】

その紙製品は、i) セルロース繊維および第2の熱可塑性高分子の熔融物の混合物を提供する工程、および ii) その混合物を、第2の熱可塑性高分子の融点より低い温度に冷却する工程を有してなる過程により得ることが好ましい。これにより、セルロース繊維と第2の熱可塑性高分子の間の比率、および所望であれば、選択すべき第2の熱可塑性高分子の多い量を容易に制御することができる。飲料用のパッドや袋の紙は、そのような過程

50

により製造される。

【 0 0 1 1 】

Felix J M et al, "The nature of adhesion in composites of modified cellulose fibers and polypropylene", Journal of applied polymer science, vol.42, no.3, p. 609-620において、セルロース繊維は、ポリプロピレン - 無水マレイン酸共重合体で表面修飾された。修飾された繊維にポリプロピレンが配合され、射出成形により複合材料が製造された。セルロース繊維の表面修飾は、高温トルエン中のポリプロピレン - 無水マレイン酸共重合体の溶液中にセルロース繊維を浸すことによって行われた。溶液中の共重合体の濃度は、5 質量%の繊維であった。繊維は、トルエンでソックスレー抽出され、乾燥された。この文献において、表面修飾セルロース繊維は、ポリプロピレン - 無水マレイン酸共重合体を溶融することにより得られなかった。

10

【 0 0 1 2 】

工程 i) は、第 2 の熱可塑性高分子を溶融し、その後、セルロース繊維を、溶融した第 2 の熱可塑性高分子と混合する過程を含んでもよい。しかしながら、工程 i) が、セルロース繊維および第 2 の熱可塑性高分子を乾式混合し、必要に応じて混合しながら、第 2 の熱可塑性高分子を溶融する過程を含むことが好ましい。これにより、より均一な混合物が得られる。

【 0 0 1 3 】

セルロース繊維と乾式混合すべき第 2 の熱可塑性高分子が、繊維の形態にあることが好ましい。混合すべき成分の密度と形状に違いがあると、異なる成分が不均一に分布する傾向にある。第 2 の熱可塑性高分子も繊維の形態を有する場合、セルロース繊維および第 2 の熱可塑性高分子の均一な混合物が得られる。

20

【 0 0 1 4 】

あるいは、第 2 の熱可塑性高分子は繊維形状を有してよく、本発明に使用される紙製品は、セルロース繊維および第 2 の熱可塑性高分子の繊維の多孔質構造を有してよい。

【 0 0 1 5 】

そのような紙製品の生産はよく知られており、そのような紙製品の一例は、ヒートシール可能な濾紙と呼ばれる。

【 0 0 1 6 】

したがって、好ましい実施の形態において、

30

前記紙製品は、i) セルロース繊維および第 2 の熱可塑性高分子の溶融物の混合物を提供する工程、および ii) その混合物を、第 2 の熱可塑性高分子の融点より低い温度に冷却する工程を有してなる過程により得られる、もしくは

前記紙製品は、セルロース繊維および第 2 の熱可塑性高分子の繊維の多孔質構造を有する。

【 0 0 1 7 】

米国特許第 5 1 7 3 1 5 4 号明細書には、第 2 の熱可塑性高分子がセルロース繊維を部分的または全体的に覆っている、セルロース繊維の多孔質構造を有する紙製品の一例が記載されている。米国特許第 5 1 7 3 1 5 4 号明細書には、天然繊維の第 1 の相に、紙の両面がヒートシール可能であるような様式で、合成繊維の第 2 の相が浸透している、ヒートシール可能なティーバッグの紙が開示されている。その製造工程において、互いに浸透している相は、乾燥され、それによって、合成繊維が溶融し、固化する際に天然繊維を包み込み、よって、これらの繊維が少なくとも部分的に被包されるまたは覆われるような様式で加熱される。適切な合成繊維として、ポリエチレン、ポリプロピレン、または塩化ビニルと酢酸ビニルの共重合体が挙げられている。

40

【 0 0 1 8 】

本発明による方法に使用される紙製品が、濾紙、例えば、コーヒーパッドの紙やティーバッグの袋であることが好ましい。「コーヒーパッド」は、「コーヒーポッド」、「コーヒーパウチ」、または「コーヒーバッグ」と呼ばれることもある。それらは、同じ製品を意味すると理解され、挽かれたコーヒー豆を収容する濾紙の（通常は、使い捨ての）パッ

50

ケージである。これらの種類の紙製品はセルロース繊維の多孔質構造を有し、第2の熱可塑性高分子はセルロース繊維を部分的または全体的に覆って、その多孔質構造を形成する。

【0019】

カナダ国特許発明第802720号明細書には、セルロース繊維および熱可塑性高分子から作られた繊維の多孔質構造を有する紙製品の一例が記載されている。

【0020】

本発明に使用される紙製品が、コーヒーパッドやティーバッグなどの飲料用のパッドや袋を製造する過程からの産業廃棄物であることが好ましい。飲料用のパッドや袋を製造する過程において、コーヒーパッドやティーバッグは、典型的に、セルロース繊維および熱可塑性高分子の混合物から作られた紙製品のシートから所定の形状に切り抜かれる。紙製品の残りは、一般に、廃棄される。本発明によれば、紙製品の使用に適さない残りを、本発明による高分子組成物を製造するための原料物質として都合よく使用できる。

【0021】

本発明に使用される紙製品は、紙製品の片面または両面に熱可塑性高分子のコーティングをさらに備えてもよい。そのコーティングは、紙製品がコーヒーパッドの紙やティーバッグの紙などの濾紙である場合、濾過能力が維持されるような様式で提供されることが認識されよう。

【0022】

本発明に使用される紙製品は、紙製品と、プラスチック枠などのさらに別の要素との組立体の一部として設けてもよい。そのような組立体の一例は、プラスチック枠と、本出願に記載されているような紙製品とを備えた飲料パッドである。そのような組立体の一例が、例えば、欧州特許第1398279号明細書に記載されている。

【0023】

第1の熱可塑性高分子の融点が、第2の熱可塑性高分子の融点以上であることが好ましい。これにより、第1の熱可塑性高分子を溶融すると、第2の熱可塑性高分子も溶融されることが確実になる。その結果、本発明による方法における溶融混合工程の温度を、強化すべき高分子である、第1の熱可塑性高分子の溶融混合にとつての標準温度にしたがって選択することができる。

【0024】

第1の熱可塑性高分子が、紙製品または任意のプラスチック枠の任意のコーティング中の熱可塑性高分子などの、溶融混合物中の熱可塑性高分子の中で最高の融点を有することが好ましい。

【0025】

第1の熱可塑性高分子は、原則として、強化が望ましいどのような熱可塑性高分子であってもよい。第1の熱可塑性高分子の例としては、下記のブレンドおよび共重合体を含む、ポリアミド、例えば、ポリアミド6、ポリアミド66、またはポリアミド46など；ポリオレフィン、例えば、ポリプロピレンおよびポリエチレンなど；ポリエステル、例えば、ポリエチレンテレフタレートおよびポリブチレンテレフタレートなど；ポリカーボネート；ポリフェニレンスルフィド；ポリウレタンが挙げられる。第1の熱可塑性高分子がポリオレフィンであることが好ましい。適切なポリオレフィンの例に、ポリプロピレン；ポリエチレン（例えば、高密度ポリエチレン（HDPE）、低密度ポリエチレン（LDPE）、直鎖状低密度ポリエチレン（LLDPE）、メタロセン触媒ポリエチレン、超低密度ポリエチレン（VLDPE）、超高分子量ポリエチレン（UHMWPE）、高性能ポリエチレン（HPPE））；エチレンとプロピレンの共重合体；エチレンまたはプロピレンと、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸n-ブチル、メタクリル酸メチル、アクリル酸、メタクリル酸および一酸化炭素から選択される少なくとも1つの単量体とに由来する共重合体；並びにオレフィンのジオレフィンとの共重合体、例えば、エチレンの、またはプロピレンの、もしくはエチレンおよび他のオレフィンの、少なくとも6の炭素原子の直鎖脂肪族非共役ジエン（例えば、1,4-ヘキサジエン）および共役しているか

10

20

30

40

50

またはしていない、他のジエン、例えば、ノルボルナジエン、ジシクロペンタジエン、エチリデンノルボルネン、ブタジエンなどとの共重合体がある。第1の熱可塑性高分子は、上述した熱可塑性高分子の2種類以上の組合せであってもよい。

【0026】

適切な第2の熱可塑性高分子の例は、適切な第1の熱可塑性高分子の例と同じである。

【0027】

第1の熱可塑性高分子および第2の熱可塑性高分子は、同じ種類のものであっても、異なる種類のものであってもよい。第1の熱可塑性高分子および第2の熱可塑性高分子は、互いに相溶性であるように選択される。相溶性である高分子の適切な組合せが当業者に公知であり、その例としては、ポリオレフィン - ポリオレフィンおよびポリオレフィン - ポリエステルが挙げられる。

10

【0028】

いくつかの好ましい実施の形態において、第1の熱可塑性高分子はポリオレフィンであり、第2の熱可塑性高分子もポリオレフィンである。

【0029】

いくつかの好ましい実施の形態において、第1の熱可塑性高分子はポリプロピレンであり、第2の熱可塑性高分子もポリプロピレンである。

【0030】

いくつかの好ましい実施の形態において、第1の熱可塑性高分子はポリプロピレンであり、第2の熱可塑性高分子はポリエチレンである。

20

【0031】

いくつかの好ましい実施の形態において、第1の熱可塑性高分子はポリプロピレンであり、第2の熱可塑性高分子はHDPEとLLDPEの混合物である。

【0032】

いくつかの好ましい実施の形態において、第1の熱可塑性高分子はポリプロピレンであり、第2の熱可塑性高分子はHDPEとLDPEの混合物である。

【0033】

セルロース繊維が、製紙業に通常使用されているような天然セルロース繊維であることが好ましい。

【0034】

30

第1の熱可塑性高分子および紙製品に、従来の添加剤、例えば、カップリング剤；紫外線安定剤；酸化防止剤；熱安定剤；顔料および染料のような着色剤；清澄剤；表面張力変更剤；臭い低下剤；滑剤；表面改質剤；難燃剤；離型剤；流動性向上剤；可塑剤；帯電防止剤；発泡剤；外部弾性衝撃改質剤、例えば、エチレン - オクテン共重合体（Engage（登録商標）として市販されている）など、エラストマーおよび軟化剤を添加してもよい。カップリング剤は、例えば、マレイン酸化ポリプロピレンであってよい。当業者は、過度な実験を行わずに、添加剤および添加剤の量の任意の適切な組合せを容易に選択できる。添加剤の量は、その種類と機能によって決まり、典型的に、0から約30質量%である。添加剤の量は、例えば、全組成に基づいて、約1から約20質量%、約2から約10質量%、または約3から約5質量%であってよい。

40

【0035】

追加の充填剤も、第1の熱可塑性高分子および紙製品に加えてもよい。適切な充填剤としては、タルク、炭酸カルシウム、硫酸バリウム、粘土、ナノクレイ、カーボンブラック、様々な形態のシリカ（通常の砂を含む、沈降または水和、フュームドまたは焼成、ガラス、熔融またはコロイド）、ガラス、金属、無機酸化物が挙げられる。充填剤は、どのような形態、例えば、球状、板状、針状、フレーク状、繊維状またはウイスキー状のものであってもよい。適切な繊維状充填剤としては、ガラス繊維、例えば、SABIC Stamaxポリプロピレングレードに使用されるガラス短繊維およびガラス長繊維、玄武岩繊維、アラミド繊維、炭素繊維、カーボンナノファイバ、カーボンナノチューブ、カーボンバッキーボール、超高分子量ポリエチレン繊維、メラミン繊維、ポリアミド繊維、金属繊維

50

、天然繊維、チタン酸カリウムウイスキー、およびホウ酸アルミニウムウイスキーなどが挙げられる。

【 0 0 3 6 】

紙製品は、紙製品と、プラスチック枠などのさらに別の要素との組立体の一部として本発明の方法に使用してもよい。

【 0 0 3 7 】

第 1 の熱可塑性高分子および紙製品の合計が、熔融混合物の合計の 9 0 ~ 1 0 0 質量%であることが好ましい。

【 0 0 3 8 】

第 1 の熱可塑性高分子と混合される紙製品の量は、最終的な熱可塑性組成物中のセルロース繊維の所望の量にしたがって選択してよい。熱可塑性組成物中のセルロース繊維の量が、全組成物の、好ましくは 1 ~ 5 0 質量%、より好ましくは 5 ~ 4 0 質量%、より好ましくは 1 0 ~ 3 0 質量%である。

10

【 0 0 3 9 】

工程 a) において混合すべき第 1 の熱可塑性高分子および紙製品の間の質量比は、例えば、9 8 : 2 から 3 0 : 7 0、9 0 : 1 0 から 4 0 : 6 0、または 8 0 : 2 0 から 5 0 : 5 0 であってよい。

【 0 0 4 0 】

紙製品は、例えば、充填剤および/またはインクなどの他の物質を 0 ~ 2 0 質量%または 1 ~ 1 0 質量%含んでもよい。

20

【 0 0 4 1 】

紙製品は、紙製品の片面または両面に主に存在するさらに別の熱可塑性高分子を含んでもよい。

【 0 0 4 2 】

セルロース繊維および第 2 の熱可塑性高分子の合計が、紙製品の合計の 9 0 ~ 1 0 0 質量%であることが好ましい。

【 0 0 4 3 】

紙製品が、5 0 ~ 9 9 %のセルロース繊維および 1 ~ 5 0 %の第 2 の熱可塑性高分子を含むことが好ましい。紙製品が、6 0 ~ 9 5 %のセルロース繊維および 5 ~ 4 0 %の第 2 の熱可塑性高分子を含むことがより好ましい。紙製品が、6 0 ~ 9 0 %のセルロース繊維および 1 0 ~ 4 0 %の第 2 の熱可塑性高分子を含むことがより好ましい。紙製品が、5 0 ~ 9 9 %のセルロース繊維および 1 ~ 5 0 %の第 2 の熱可塑性高分子を含み、セルロース繊維および第 2 の熱可塑性高分子の合計が、紙製品の合計の 9 0 ~ 1 0 0 質量%であることが好ましい。

30

【 0 0 4 4 】

特に好ましい実施の形態において、紙製品は、6 0 ~ 9 5 %のセルロース繊維および 5 ~ 4 0 %の第 2 の熱可塑性高分子を含み、熱可塑性組成物中のセルロース繊維の量は、全組成物の 5 ~ 1 5 質量%である。

【 0 0 4 5 】

特に好ましい実施の形態において、紙製品は、6 0 ~ 9 5 %のセルロース繊維および 5 ~ 4 0 %のポリプロピレンを含み、熱可塑性組成物中のセルロース繊維の量は、全組成物の 5 ~ 1 5 質量%である。

40

【 0 0 4 6 】

特に好ましい実施の形態において、紙製品は、6 0 ~ 9 0 %のセルロース繊維および 1 0 ~ 4 0 %の第 2 の熱可塑性高分子を含み、熱可塑性組成物中のセルロース繊維の量は、全組成物の 5 ~ 1 5 質量%である。

【 0 0 4 7 】

特に好ましい実施の形態において、紙製品は、6 0 ~ 9 0 %のセルロース繊維および 1 0 ~ 4 0 %のポリプロピレンを含み、熱可塑性組成物中のセルロース繊維の量は、全組成物の 5 ~ 1 5 質量%である。

50

【 0 0 4 8 】

前記熱可塑性高分子組成物は、第 1 の熱可塑性高分子および紙製品を熔融混合することによって、本発明の方法にしたがって得てもよい。熔融混合は、押出機内で行われることが好ましいが、押出機能を持たないミキサ内で行ってもよい。熔融混合が押出機内で行われる場合、熔融混合物は押出機から押し出される。熔融混合が、押出機能を持たないミキサ内で行われる場合、熔融混合物は、所望の形状を有する固体組成物を得るために、所望の形状を有する成形型に移される（例えば、その中に注がれる）。

【 0 0 4 9 】

熔融混合が押出機内で行われる場合、本発明の熱可塑性組成物が、ペレットまたは粒状形態のような、その後の工程において成形物品に容易に加工できる形態で製造されることが好ましい。得られるペレットは、さらに熔融され、所望の形状の物品に成形されるであろう。あるいは、押出機からの押し出しが、得られた熔融混合物を、所望の形状を有する成形物品に直接成形する工程を含んでもよい。したがって、本発明の方法の好ましい実施の形態において、工程 a) は押出機内で行われ、本発明の方法は、熔融混合物を押出機から押し出し、熔融混合物を成形して、成形物品を得る工程 b) をさらに有する。

10

【 0 0 5 0 】

成形過程の適切な例としては、射出成形、圧縮成形、押出成形、押出圧縮成形、異形押出、熱成形、注型およびブロー成形が挙げられる。バンパーのような自動車の外装部品、計器パネルのような自動車の内装部品、またはボンネット下の自動車部品などの物品を製造するために、射出成形が広く使用されている。ロッド、シートおよびパイプなどの物品を製造するために、押出成形が広く使用されている。

20

【 0 0 5 1 】

成形後、その物品は成形型内で冷却され、成形型から取り出され、必要に応じて仕上げられる。物品の仕上げは、例えば、切断、破断、研削またはがら研磨により、成形物品にくっ付いた過剰の材料を除去することにより行うことができる。

【 0 0 5 2 】

工程 a) は、第 1 と第 2 の熱可塑性高分子の融点より高い温度で行われる。その温度は、紙製品中のセルロース繊維を分解しない温度に選択される。第 1 の熱可塑性高分子がプロピレン単独または共重合体である場合、工程 a) が 1 5 0 ~ 2 5 0 で行われることが好ましい。

30

【 0 0 5 3 】

第 1 の熱可塑性高分子および紙製品の熔融混合は、よく使われる押出機内で行うことができる。多くの種類の押出機がよく知られている。押出機は、例えば、一軸または二軸スクリュウ押出機であってよい。

【 0 0 5 4 】

第 1 の熱可塑性高分子は、どの公知の形態で、最も典型的にはペレットの形態で、押出機に加えてよい。

【 0 0 5 5 】

紙製品は、紙製品を粉碎し、圧縮することにより製造されるペレットなどのいかなる公知の形態で押出機に加えてもよい。紙製品のペレットへの転換は、いかなる公知の様式で行っても差し支えない。例えば、紙製品は、水や他の添加剤を使用せずに、ペレット化してよい。あるいは、紙製品は、水および/またはペレット化のための他の従来の添加剤を使用してペレット化してもよい。圧縮比、すなわち、ダイの開口の長さとの比率は、例えば、1 ~ 1 0 であってよい。圧縮比が、好ましくは 1 . 5 ~ 8 、より好ましくは 2 ~ 6 、より好ましくは 3 ~ 5 、より好ましくは 3 . 5 ~ 4 . 5 である。これにより、第 1 の熱可塑性高分子との熔融混合を良好にしながら、適切にサイズが減少したペレットが得られる。ペレットを使用すると、本発明の方法に、紙の形態でサイドフィードにより直接供給するのに適していないかもしれない厚い紙製品を使用することができる。紙製品を、圧縮せずに粉碎した後に加えることも可能である。

40

【 0 0 5 6 】

50

紙製品は、非ペレット化形態にある紙の形態で押出機に加えてもよい。紙の形態での紙製品の添加は、本発明の方法において紙製品を押出機に供給するために、紙製品の前処理が必要ないという点で極めて都合よい。紙製品は、例えば、サイドフィーダから、押出機に供給される紙のロールであってよい。本発明による方法の最中に、押出機内のスクリーが、制御された量の紙を押出機中に自動的に引き込む。

【0057】

したがって、いくつかの好ましい実施の形態において、工程a)は、押出機内で第1の熱可塑性高分子を熔融し、熔融した第1の熱可塑性高分子に、押出機のサイドフィーダから紙製品を供給する工程を含む。

【0058】

組成物および物品

本発明は、本発明による方法によって得られる熱可塑性高分子組成物をさらに提供する。

【0059】

本発明は、85～95質量%のポリプロピレン、および5～15質量%のセルロース繊維を含む熱可塑性高分子組成物であって、 $925 \sim 975 \text{ kg/m}^3$ の密度と、23でISO 527/1Aにより決定して、少なくとも 2500 N/mm^2 の引張係数および23でISO 527/1Aにより決定して、少なくとも 42 N/mm^2 、より好ましくは少なくとも 45 N/mm^2 の引張強さの少なくとも一方とを有する熱可塑性高分子組成物をさらに提供する。

【0060】

本発明による熱可塑性高分子組成物は、ペレットの形態にあってもよい。この熱可塑性高分子組成物は、熔融混合物をダイに通して押し出してストランドを形成し、このストランドを冷却し、冷却したストランドをペレットに切断することによって、ペレットの形態で得てもよい。

【0061】

本発明は、本発明による熱可塑性組成物から作られた成形物品をさらに提供する。

【0062】

本発明は、本発明による方法により得られる高分子組成物から製造された物品をさらに提供する。そのような物品は、計器パネルの担体、バンパーフェイス、ドアパネル、ボンネット下の用途、車体パネル、中央コンソール、支柱、トリムなどの自動車用物品であってよい。

【0063】

しかしながら、そのような物品は、電気掃除機、コーヒーメーカー、洗濯機、洗濯乾燥機などの家庭用電気器具(の部品)であってよい。さらに別の範疇の用途において、その物品は、カトラリー、平皿、カップ、まな板などの台所用の器具であってよい。

【0064】

本発明は、第1の熱可塑性高分子を含む熱可塑性組成物を強化するための、セルロース繊維および第2の熱可塑性高分子の混合物を含む紙製品の使用をさらに提供する。

【0065】

本発明は、第1の熱可塑性高分子と、セルロース繊維および第2の熱可塑性高分子の混合物を含む紙製品とを含む成形用組成物をさらに提供する。「成形用組成物」という用語は、ここでは、本発明の方法により熔融混合され、所望の形状に成形されるべき組成物と理解される。

【0066】

第1の熱可塑性高分子は、粉末またはペレットなどの粒状形態にあってもよい。紙製品は、ペレットまたはフレークの形態にあってもよい。成形用組成物は、第1の熱可塑性高分子および紙製品の乾燥混合物であってよい。成形用組成物は、第1の容器内の第1の熱可塑性高分子および第1の容器とは異なる第2の容器内の紙製品として提供してもよい。

10

20

30

40

50

【0067】

成形用組成物は、溶融混合物をダイに通して押し出してストランドを形成し、そのストランドを冷却し、冷却したストランドをペレットに切断することによって、ペレットに製造してもよい。

【0068】

本発明を説明目的で詳しく記載してきたが、そのような詳細はその目的のためだけであり、請求項に定義されたような本発明の精神および範囲から逸脱せずに、当業者によりそれに変更を行えることが理解されよう。

【0069】

本発明は、ここに記載された特徴の全ての可能な組合せに関し、特に、請求項に含まれる特徴の組合せが好ましいことにさらに留意のこと。

10

【0070】

「含む」という用語は、他の要素の存在を排除するものではないことにさらに留意のこと。しかしながら、特定の構成要素を含む製品についての記載は、これらの構成要素からなる製品も開示していることも理解されよう。同様に、特定の工程を含む方法は、これらの工程からなる方法も開示していることも理解されよう。

【0071】

ここで、本発明を以下の実施例により説明するが、それらには制限されない。

【実施例】

【0072】

20

実施例 1

押出機内で、ポリプロピレン (Saudi Basic Industries Corporation からの PP579S)、紙製品のロール、2 質量%のカップリング剤 (無水マレイン酸変性ポリプロピレン)、および 0.3%の Irganox B225 (加工用長期熱安定剤) を溶融混合して、ポリプロピレン組成物を得た。紙製品のロールは、押出機のサイドフィーダから供給した。この組成物を押出機から押し出し、ペレットに形成した。

【0073】

この紙製品は、示差走査熱量測定法 (DSC) により決定して、70 ~ 75 質量%のセルロース繊維および 25 ~ 30 質量%のポリプロピレン単独重合体を含むコーヒーパッドの紙であった。

30

【0074】

最終的な組成物中のセルロース繊維の量は、DSC により決定した。冷却のために窒素を使用して、5 ~ 10 g (約 500 粒) のペレットを粉末に低温粉碎し、粉末の一部を DSC に使用した (Perkin Elmer 10 / 分で 0 から 200)。ペレット中のセルロース繊維の平均含有量を決定するために、これを行った。

【0075】

押出機は、48 の長さ / 直径比を有し、2 つのサイドフィーダを備えた Berstorff ZE25 二軸スクリュウ押出機であった。

【0076】

40

実施例 2

使用した押出機が、36 の長さ / 直径比を有し、1 つのサイドフィーダを備えた Berstorff ZE25 二軸スクリュウ押出機であったことを除いて、実施例 1 を繰り返した。

【0077】

比較実験 A

充填剤を添加しなかったことを除いて、実施例 2 を繰り返した。

【0078】

比較実験 B

紙製品が、灰分の測定により決定して 1 質量%未満の充填剤および検出できない量の高

50

分子しか含まないトイレットペーパーであったことを除いて、実施例 1 を繰り返した。

【 0 0 7 9 】

比較実験 C ~ E

紙製品の代わりに、充填剤としてタルク（市販のタルク H M 4 ）を加えたことを除いて、実施例 2 を繰り返した。最終組成物中のタルクの量は、灰分により決定した。

【 0 0 8 0 】

得られたプロピレン組成物の様々な機械的性質を以下のように決定した：

ポリプロピレン組成物の密度は、23 で I S O 1 1 8 3 にしたがって決定した。

【 0 0 8 1 】

引張係数は、23 で I S O 5 2 7 / 1 A にしたがって決定した。

10

【 0 0 8 2 】

引張強さは、23 で I S O 5 2 7 / 1 A にしたがって決定した。

【 0 0 8 3 】

曲げ弾性率は、試験片を製造するための組成物の流れに対して平行配向および垂直配向において 23 で A S T M D 7 9 0 にしたがって決定した。

【 0 0 8 4 】

曲げ強度は、試験片を製造するための組成物の流れに対して平行配向および垂直配向において 23 で A S T M D 7 9 0 にしたがって決定した。

【 0 0 8 5 】

シャルピー衝撃強度は、試験片を製造するための組成物の流れに対して平行配向において 23 で、I S O 1 7 9 / 1 e U（ノッチなし）および I S O 1 7 9 / 1 e A（ノッチ付き）にしたがって決定した。

20

【 0 0 8 6 】

衝撃強度は、試験片を製造するための組成物の流れに対して平行配向および垂直配向において 23 で I S O 1 8 0 4 A にしたがってアイゾッド衝撃強度を測定することによって決定した。

【 0 0 8 7 】

それらの結果が、表 1 および 2 に纏められている。それぞれの測定において、I I は平行を表し、L は垂直を表す。

【 0 0 8 8 】

30

【表 1】

表 1

		比較 A (無充填剤)	比較 B (トイレットペーパー)	実施例 1 (高充填剤)	実施例 2 (低充填剤)
繊維含有量	質量%	0	10.9	10.9	9.45
密度	kg/m ³	907.1	956	960.1	947
引張係数	N/mm ²	1657.1	2283.7	2714.2	2558
引張強さ	N/mm ²	36.7	41.8	49.1	45
曲げ弾性率 II	N/mm ²	1826	2456	2622	2449
曲げ強度 II	N/mm ²	57.9	67.4	72.3	67.5
曲げ弾性率 L	N/mm ²	1846	2306	2390	2241
曲げ強度	N/mm ²	58.2	63.9	67.5	62.7
シャルピーノッチなし 23°C II	kJ/m ²	75.77	27.6	28	27.63
シャルピーノッチ付き 23°C II	kJ/m ²	2.58	2.9	3.2	3.62
アイゾットノッチ付き 23°C II	kJ/m ²	1.68	1.94	2.16	1.96
アイゾットノッチ付き 23°C L	kJ/m ²	1.65	1.92	2.17	1.88

10

20

【0089】

【表 2】

表 2

		比較 C (低タルク)	比較 D (中タルク)	比較 E (高タルク)
繊維含有量	質量%	9.92	19.67	29.8
密度	kg/m ³	972.1	1023.2	1134
引張係数	N/mm ²	2219.8	2662.8	3366.6
引張強さ	N/mm ²	35.2	33.7	32.6
曲げ弾性率 (II)	N/mm ²	2380	2933	3418
曲げ強度 (II)	N/mm ²	61.5	63.4	62
曲げ弾性率 (L)	N/mm ²	2383	2795	3305
曲げ強度 (L)	N/mm ²	61.7	61.8	60.7
シャルピーノッチなし 23°C II	kJ/m ²	46.63	34.38	24.83
シャルピーノッチ付き 23°C II	kJ/m ²	2.61	2.17	2.19
アイゾットノッチ付き 23°C II	kJ/m ²	1.74	1.74	1.61
アイゾットノッチ付き 23°C L	kJ/m ²	1.79	1.84	1.38

30

40

【0090】

この密度比較により、本発明による実施例の密度が、充填剤としてタルクが使用されている比較実験 C ~ E と比べて低いことが示される。

【0091】

同程度の量の充填剤について、引張係数の比較により、本発明による実施例の引張係数

50

は、熱可塑性高分子を含まない紙製品を含む比較実験 B、および充填剤としてタルクが使用されている比較実験 C ~ E と比べて著しく高いことが示される。紙製品の含有量がより多いと、引張係数がより高くなる。

【 0 0 9 2 】

同程度の量の充填剤について、引張係数の比較により、本発明による実施例の引張強さは、熱可塑性高分子を含まない紙製品を含む比較実験 B、および充填剤としてタルクが使用されている比較実験 C ~ E と比べて著しく高いことが示される。紙製品の含有量がより多いと、引張強さがより高くなるのに対し、タルクの含有量がより多いと、引張強さがより低くなる。

【 0 0 9 3 】

同程度の量の充填剤について、実施例と比較実験との間で、曲げ弾性率は同程度である。

【 0 0 9 4 】

同程度の量の充填剤について、曲げ強度の比較により、本発明による実施例の曲げ強度は、熱可塑性高分子を含まない紙製品を含む比較実験 B、および充填剤としてタルクが使用されている比較実験 C ~ E と比べて高いことが示される。紙製品の含有量がより多いと、曲げ強度がより高くなる。

【 0 0 9 5 】

同程度の量の充填剤について、シャルピー衝撃強度（ノッチなし）の比較により、本発明による実施例のシャルピー衝撃強度は、熱可塑性高分子を含まない紙製品を含む比較実験 B と比べて同程度であることが示される。シャルピー衝撃強度（ノッチ付き）は、比較実験と比べて、本発明による実施例のほうが高い。

【 0 0 9 6 】

アイゾッドノッチ付き衝撃強度の比較により、実験の間にほとんど差がないことが示される。

【 0 0 9 7 】

したがって、本発明による実施例は、比較実験よりも低い密度で、より良好な機械的性質を示すと結論付けることができる。特に、セルロース繊維および熱可塑性高分子の混合物を含む紙製品の充填剤は、熱可塑性高分子を含まない紙製品の充填剤と比べて、より良好な機械的性質を示すことが分かった。本発明による実施例が、低密度で、高い引張係数または高い引張強さを示すことが特に注目になる。

他の実施形態

1 . 熱可塑性組成物を製造する方法であって、

a) 第 1 の熱可塑性高分子と、セルロース繊維および第 2 の熱可塑性高分子の混合物を含む紙製品とを熔融混合する工程、を有してなる方法。

2 . 前記紙製品が前記セルロース繊維の多孔質構造を有し、前記第 2 の熱可塑性高分子が該セルロース繊維を部分的または全体的に覆っている、実施形態 1 記載の方法。

3 . 前記紙製品が、 i) 前記セルロース繊維および前記第 2 の熱可塑性高分子の熔融物の混合物を提供する工程、および i i) 前記混合物を、前記第 2 の熱可塑性高分子の融点より低い温度に冷却する工程を有してなる過程により得られる、実施形態 1 または 2 記載の方法。

4 . 工程 i) が、前記セルロース繊維および前記第 2 の熱可塑性高分子を乾式混合し、必要に応じて混合しながら、該第 2 の熱可塑性高分子を溶融する過程を含む、実施形態 3 記載の方法。

5 . 前記セルロース繊維と乾式混合すべき前記第 2 の熱可塑性高分子が、繊維の形態にある、実施形態 4 記載の方法。

6 . 前記紙製品が、前記セルロース繊維および前記第 2 の熱可塑性高分子の繊維の多孔質構造を有する、実施形態 1 記載の方法。

7 . 前記紙製品が、コーヒーパッドまたはティーバッグを製造する過程からの産業廃棄物

10

20

30

40

50

である、実施形態 1 から 6 いずれかに記載の方法。

8 . 前記第 1 の熱可塑性高分子がポリオレフィンであり、前記第 2 の熱可塑性高分子がポリオレフィンである、実施形態 1 から 7 いずれかに記載の方法。

9 . 前記熱可塑性組成物中の前記セルロース繊維の量が、全組成物の 1 ~ 50 質量%、好ましくは 5 ~ 40 質量%、より好ましくは 10 ~ 30 質量%であり、前記紙製品が、該紙製品の合計に対して、前記セルロース繊維を 50 ~ 99 質量%、前記第 2 の熱可塑性高分子を 1 ~ 50 質量%含むことが好ましい、実施形態 1 から 8 いずれかに記載の方法。

10 . 工程 a) が、前記第 1 の熱可塑性高分子を押出機内で熔融し、前記紙製品を紙の形態で、熔融した該第 1 の熱可塑性高分子に、好ましくは押出機のサイドフィードに供給する工程を含む、実施形態 1 から 9 いずれかに記載の方法。

11 . 実施形態 1 から 10 いずれかに記載の方法により得られる熱可塑性高分子組成物。

12 . 85 ~ 95 質量%のポリプロピレン、および 5 ~ 15 質量%のセルロース繊維を含む熱可塑性高分子組成物であって、 $925 \sim 975 \text{ kg/m}^3$ の密度と、 $23 \sim 527 / 1 \text{ A}$ により決定して、少なくとも 2500 N/mm^2 の引張係数および $23 \sim 527 / 1 \text{ A}$ により決定して、少なくとも 42 N/mm^2 、好ましくは少なくとも 45 N/mm^2 の引張強さの少なくとも一方とを有する熱可塑性高分子組成物。

13 . 実施形態 10 または 11 記載の熱可塑性高分子組成物から作られた成形物品。

14 . 第 1 の熱可塑性高分子を含む熱可塑性組成物を強化するための、セルロース繊維および第 2 の熱可塑性高分子の混合物を含む紙製品の使用。

15 . 第 1 の熱可塑性高分子と、セルロース繊維および第 2 の熱可塑性高分子の混合物を含む紙製品とを含む成形組成物。

10

20

フロントページの続き

(72)発明者 ソリマン, マリア

オランダ王国 NL - 6 1 6 0 ヘーアー ヘレーン ピーオー ボックス 3 0 0 8 ケアオブ
サビック インテレクチャル プロパティール グループ

(72)発明者 シッパー, ロナルド ユリアヌス ピーター

オランダ王国 NL - 6 1 6 0 ヘーアー ヘレーン ピーオー ボックス 3 0 0 8 ケアオブ
サビック インテレクチャル プロパティール グループ

(72)発明者 ジョーア, レオナルドゥス

オランダ王国 NL - 6 1 6 0 ヘーアー ヘレーン ピーオー ボックス 3 0 0 8 ケアオブ
サビック インテレクチャル プロパティール グループ

(72)発明者 タライヤ, エイジェイ クマール

オランダ王国 NL - 6 1 6 0 ヘーアー ヘレーン ピーオー ボックス 3 0 0 8 ケアオブ
サビック インテレクチャル プロパティール グループ

審査官 加賀 直人

(56)参考文献 特開平05 - 2 6 9 7 3 6 (J P , A)

特開2000 - 0 4 3 0 3 7 (J P , A)

特開平06 - 0 8 0 8 3 2 (J P , A)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

C 0 8 L 1 0 1 / 0 0

C 0 8 J 3 / 2 0

C 0 8 L 1 / 0 2