

(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  
2020年7月23日(23.07.2020)



(10) 国際公開番号

**WO 2020/149232 A1**

(51) 国際特許分類:

*C08F 287/00* (2006.01) *C09D 123/00* (2006.01)  
*C09D 5/00* (2006.01) *C09D 139/04* (2006.01)  
*C08L 39/04* (2006.01) *C09D 151/06* (2006.01)  
*C08L 51/00* (2006.01) *C09D 153/00* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2020/000675

(22) 国際出願日: 2020年1月10日(10.01.2020)

(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 2019-004296 2019年1月15日(15.01.2019) JP  
特願 2019-237076 2019年12月26日(26.12.2019) JP

(71) 出願人:株式会社日本触媒(**NIPPON SHOKUBAI CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒5410043 大阪府大阪市中央区高麗橋4丁目1番1号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 藤原 誠 (**FUJIWARA, Makoto**); 〒5640034 大阪府吹田市西御旅町5番8号 株式会社日本触媒内 Osaka (JP). 岡本 功一 (**OKAMOTO, Koichi**); 〒5640034 大阪府吹田市西御旅町5番8号 株式会社日本触媒内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人アスフィ国際特許事務所 (**USFI PATENT ATTORNEYS INTERNATIONAL OFFICE**); 〒5300003 大阪府大阪市北区堂島2丁目1番16号 フジタ東洋紡ビル9階 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, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO,

DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, 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.

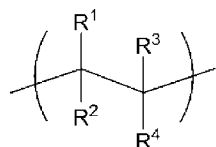
(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, 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:** COPOLYMER AND RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称: 共重合体および樹脂組成物



(57) **Abstract:** Provided are a copolymer (P) that shows high adhesiveness even to relatively low-polarity substrates and a resin composition (Q) containing the same. A copolymer (P) (1) having a polymer chain (A) having a unit represented by formula (1) and a polymer chain (B) having a unit derived from an oxazoline group-containing monomer. In formula (1), R<sup>1</sup>-R<sup>4</sup> each independently represent a hydrogen atom or a C1-20 alkyl group.

(57) 要約: 比較的極性が低い基材に対しても高い密着性を示す共重合体(P)と、これを含む樹脂組成物(Q)を提供する。式(1)で表される単位を有するポリマー鎖(A)と、オキサゾリン基含有単量体由来の単位を有するポリマー鎖(B)とを有する共重合体(P)。式(1)中、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>はそれぞれ独立して、水素原子または炭素数1~20のアルキル基を表す。



**WO 2020/149232 A1**

## 明 細 書

発明の名称： 共重合体および樹脂組成物

### 技術分野

[0001] 本発明は、共重合体とそれを含有する樹脂組成物に関する。

### 背景技術

[0002] 従来、オキサゾリン基を含有する重合体が知られている（例えば、特許文献 1、2）。特許文献 1、2 に開示されるオキサゾリン基含有重合体は、2-イソプロペニル-2-オキサゾリンとスチレンあるいはさらにアクリロニトリルとを共重合させたものであり、オキサゾリン基特有の極性効果によって、各種樹脂の相溶化剤として用いたり、基材との密着性を改善するためのプライマーに用いることができる。

### 先行技術文献

#### 特許文献

[0003] 特許文献1：特開平4-81458号公報

特許文献2：特開平10-46010号公報

### 発明の概要

#### 発明が解決しようとする課題

[0004] 本発明者らが、特許文献 1、2 に開示されるオキサゾリン基含有重合体について、様々な基材との密着性を検討したところ、比較的極性が低いポリオレフィン等から構成された基材に対しては、十分な密着性を示さないことが明らかになった。本発明は前記事情に鑑みてなされたものであり、その目的は、比較的極性が低い基材（樹脂基材など）に対しても高い密着性を示す共重合体（P）と、これを含む樹脂組成物（Q）を提供することにある。

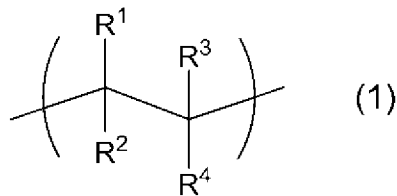
#### 課題を解決するための手段

[0005] 本発明は、以下の発明を含む。

[1] 下記式（1）で表される単位を有するポリマー鎖（A）と、オキサゾリン基含有単量体由来の単位を有するポリマー鎖（B）とを有することを特

徴とする共重合体（P）。

[化1]



[式（1）中、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^4$ はそれぞれ独立して、水素原子または炭素数1～20のアルキル基を表す。]

[2] ポリマー鎖（B）がポリマー鎖（A）にグラフトしている[1]に記載の共重合体（P）。

[3] 前記ポリマー鎖（A）中、前記式（1）で表される単位の含有割合が50質量%以上である[1]または[2]に記載の共重合体（P）。

[4] 前記ポリマー鎖（B）中、オキサゾリン基含有単量体由来の単位の含有割合が1質量%以上50質量%以下である[1]～[3]のいずれかに記載の共重合体（P）。

[5] 前記ポリマー鎖（A）が、前記式（1）で表される単位を有する重合体ブロック（a1）と芳香族ビニル単量体由来の単位を有する重合体ブロック（a2）を有する[1]～[4]のいずれかに記載の共重合体（P）。

[6] 前記ポリマー鎖（B）がさらに芳香族ビニル単量体由来の単位および／または不飽和カルボン酸エステル由来の単位を有し、

前記ポリマー鎖（B）中、オキサゾリン基含有単量体由来の単位と、芳香族ビニル単量体由来の単位および／または不飽和カルボン酸エステル由来の単位との合計含有割合が80質量%以上である[1]～[5]のいずれかに記載の共重合体（P）。

[7] [1]～[6]のいずれかに記載の共重合体（P）を含有することを特徴とする樹脂組成物（Q）。

[8] [1]～[6]のいずれかに記載の共重合体（P）とオキサゾリン基含有重合体とを含有することを特徴とする樹脂組成物（Q）。

〔 9 〕 前記共重合体（ P ）と前記オキサゾリン基含有重合体と前記式（ 1 ）で表される単位を有する重合体の合計 100 質量部に対して、前記ポリマー鎖（ A ）の含有割合が 5 質量部以上 80 質量部以下である〔 8 〕に記載の樹脂組成物（ Q ）。

〔 10 〕 前記共重合体（ P ）と前記オキサゾリン基含有重合体と前記式（ 1 ）で表される単位を有する重合体の合計 100 質量部に対して、前記式（ 1 ）で表される単位の含有割合が 3 質量部以上 80 質量部以下である〔 8 〕または〔 9 〕に記載の樹脂組成物（ Q ）。

〔 11 〕 前記共重合体（ P ）と前記オキサゾリン基含有重合体と前記式（ 1 ）で表される単位を有する重合体の合計 100 質量部に対して、前記オキサゾリン基含有単量体由来の単位の含有割合が 0.5 質量部以上 49 質量部以下である〔 8 〕～〔 10 〕のいずれかに記載の樹脂組成物（ Q ）。

〔 12 〕 〔 1 〕～〔 6 〕のいずれかに記載の共重合体（ P ）または〔 7 〕～〔 11 〕のいずれかに記載の樹脂組成物（ Q ）を含有することを特徴とするプライマー。

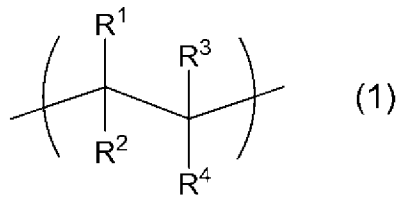
〔 13 〕 〔 1 〕～〔 6 〕のいずれかに記載の共重合体（ P ）または〔 7 〕～〔 11 〕のいずれかに記載の樹脂組成物（ Q ）を含有する層が樹脂基材の表面に形成されている樹脂成形体。

〔 14 〕 前記樹脂基材が、炭化水素系樹脂、あるいはヘテロ原子含有基またはヘテロ原子含有結合を有する樹脂である〔 13 〕に記載の樹脂成形体。

〔 15 〕 〔 1 〕～〔 6 〕のいずれかに記載の共重合体（ P ）または〔 7 〕～〔 11 〕のいずれかに記載の樹脂組成物（ Q ）を含有することを特徴とする相溶化剤。

〔 16 〕 下記式（ 1 ）で表される単位を有する重合体の存在下、オキサゾリン基含有単量体を含む単量体成分を重合する工程を有することを特徴とする、下記式（ 1 ）で表される単位を有するポリマー鎖（ A ）と、オキサゾリン基含有単量体由来の単位を有するポリマー鎖（ B ）とを有する共重合体（ P ）の製造方法。

[化2]



[式（１）中、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^4$ はそれぞれ独立して、水素原子または炭素数１～２０のアルキル基を表す。]

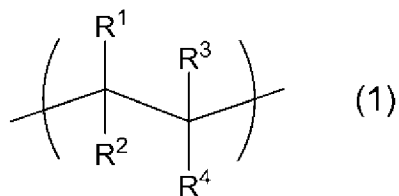
### 発明の効果

[0006] 本発明の共重合体（Ｐ）および樹脂組成物（Ｑ）は、式（１）で表される単位を有するポリマー鎖（Ａ）と、オキサゾリン基含有単量体由来の単位を有するポリマー鎖（Ｂ）とを有するため、ポリオレフィンを含む各種基材との密着性に優れるものとなる。

### 発明を実施するための形態

[0007] 本発明の共重合体（Ｐ）は、下記式（１）で表される単位を有するポリマー鎖（Ａ）と、オキサゾリン基含有単量体由来の単位を有するポリマー鎖（Ｂ）とを有するものである。下記式（１）において、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^4$ はそれぞれ独立して、水素原子または炭素数１～２０のアルキル基を表す。本発明の共重合体（Ｐ）は、ポリマー鎖（Ａ）とポリマー鎖（Ｂ）を有するため、各種基材への密着性や各種樹脂との親和性に優れるものとなる。

[0008] [化3]



[0009] ポリマー鎖（Ａ）に含まれる上記式（１）で表される単位（以下、「式（１）の単位」と称する）は、極性が低い基材への密着性や極性が低い樹脂との親和性を高めるように作用する。式（１）の単位は、極性が低い基材や極性が低い樹脂のポリマー構成単位と同じかもしくは類似しているために、極

性が低い基材や極性が低い樹脂との間に分子間力等の相互作用が生じ、密着性や親和性が高まるものと考えられる。

[0010] 上記式(1)の $R^1 \sim R^4$ のアルキル基としては、メチル基、エチル基、 $n$ -プロピル基、イソプロピル基、 $n$ -ブチル基、イソブチル基、 $t$ -ブチル基、 $n$ -ペンチル基、イソペンチル基、 $n$ -ヘキシル基、イソヘキシル基、 $n$ -ヘプチル基、イソヘプチル基、 $n$ -オクチル基、2-エチルヘキシル基等の直鎖状または分岐鎖状のアルキル基や、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロノニル基、シクロデシル基、ジシクロペンタニル基、アダマンチル基等の環状のアルキル基等が挙げられる。これらの中でも、 $R^1 \sim R^4$ のアルキル基としては、直鎖または分岐鎖状のアルキル基が好ましい。 $R^1 \sim R^4$ のアルキル基の炭素数は、1~12が好ましく、1~8がより好ましく、1~6がさらに好ましい。

[0011] 式(1)の単位は、オレフィンや共役ジエンを(共)重合することにより形成できる。そのような(共)重合体を形成することが容易な点から、式(1)の $R^1$ と $R^2$ はそれぞれ独立して、水素原子または炭素数1~6の直鎖または分岐鎖状のアルキル基であることが好ましく、 $R^3$ と $R^4$ は水素原子であることが好ましい。なお、共役ジエンを(共)重合させた際に、二重結合を有する基が主鎖や側鎖に残る場合は、当該二重結合を水素化して式(1)の単位を形成することが好ましい。また、共役ジエン以外のジエン化合物を(共)重合させ、得られた(共)重合体に含まれる二重結合を水素化することにより、式(1)の単位を形成してもよい。

[0012] 式(1)の単位を形成するオレフィンとしては、例えば、エチレン、プロピレン、1-ブテン、イソブテン、2-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ブテン、1-テトラデセン、1-オクタデセン等が挙げられる。当該オレフィンの炭素数は、2以上が好ましく、3以上がより好ましく、また20以下が好ましく、12以下がより好ましく、6以下がさらに好ましい。共役ジエンとしては、1,3-ブタジエン、2-メチル-1,3-ブタジエン、1,3-ペンタジエン等が挙げられる。当該共役ジエンの炭素数は、4以上

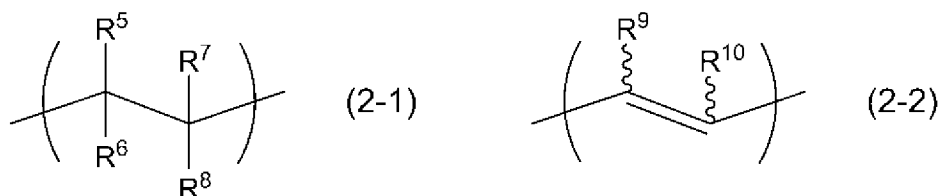
が好ましく、5以上がより好ましく、また20以下が好ましく、10以下がより好ましく、8以下がさらに好ましい。

[0013] ポリマー鎖(A)は、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブチレン、ポリイソブチレン、エチレン-プロピレン共重合体、エチレン-1-ブテン共重合体等のオレフィン(共)重合体鎖を主鎖の構造中に部分的または全体として含むことが好ましい。オレフィン(共)重合体としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブチレン、エチレン-1-ブテン共重合体がより好ましい。

[0014] ポリマー鎖(A)は、さらに下記式(2-1)で表される単位および／または下記式(2-2)で表される単位を有していてもよい。以下、下記式(2-1)で表される単位と下記式(2-2)で表される単位をまとめて、「式(2)の単位」と称する場合がある。

[0015] 下記式(2-1)において、 $R^5$ は、炭素数2～20のアルケニル基を表し、 $R^6 \sim R^8$ はそれぞれ独立して、水素原子、炭素数1～20のアルキル基、または炭素数2～20のアルケニル基を表す。下記式(2-2)において、 $R^9$ と $R^{10}$ はそれぞれ独立して、水素原子または炭素数1～20のアルキル基を表し、 $R^9$ と $R^{10}$ は互いには*c i s*位の関係にあってもよく*t r a n s*位の関係にあってもよい。下記式(2-1)で表される単位と下記式(2-2)で表される単位も極性が低い基材や極性が低い樹脂のポリマー構成単位と類似しているため、これらの基材や樹脂との間に相互作用が生じ、密着性や親和性が高まると考えられる。そのため、式(1)の単位と式(2)の単位を含むポリマー鎖(A)を有する共重合体(P)も、各種基材への密着性や各種樹脂との親和性に優れるものとなる。

[0016] [化4]



- [0017] 式(2-1)と式(2-2)の $R^6 \sim R^{10}$ の炭素数1~20のアルキル基については、上記の $R^1 \sim R^4$ のアルキル基の説明が参照される。式(2-1)の $R^5 \sim R^8$ の炭素数2~20のアルケニル基としては、 $R^1 \sim R^4$ のアルキル基に含まれるC-C結合の1つがC=C結合に置き換わった基が挙げられ、直鎖または分岐鎖状のアルケニル基が好ましい。 $R^5 \sim R^8$ のアルケニル基の炭素数は、2~12が好ましく、2~8がより好ましく、2~6がさらに好ましい。 $R^5 \sim R^8$ のアルケニル基としては、ビニル基が特に好ましい。
- [0018] 式(2-1)で表される単位を形成することが容易な点から、式(2-1)の $R^5$ は炭素数2~6の直鎖または分岐鎖状のアルケニル基であることが好ましく、 $R^6$ は水素原子または炭素数1~6の直鎖または分岐鎖状のアルキル基であることが好ましく、 $R^7$ と $R^8$ は水素原子であることが好ましい。また、式(2-2)の $R^9$ と $R^{10}$ は水素原子または炭素数1~6の直鎖または分岐鎖状のアルキル基であることが好ましく、水素原子またはメチル基がより好ましく、水素原子がさらに好ましい。このような式(2)の単位は、ジエンをオレフィンと共重合させたり、共役ジエンを単独または共重合させることにより、ポリマー鎖(A)に導入することができる。式(2)の単位を形成するジエンとしては、1,3-ブタジエン(別名:ブタジエン)、2-メチルー1,3-ブタジエン(別名:イソプレン)、1,3-ペンタジエン、1,4-ペンタジエン、1,5-ヘキサジエン、2,5-ジメチルー1,5-ヘキサジエン(別名:ジイソブテン)等のアルカジエンが好ましく、中でも1,3-ブタジエン、2-メチルー1,3-ブタジエン、1,3-ペンタジエン等の共役ジエンがより好ましい。当該ジエンの炭素数は、4以上が好ましく、5以上がより好ましく、また20以下が好ましく、10以下がより好ましく、8以下がさらに好ましい。
- [0019] 式(1)の単位と式(2)の単位を有するポリマー鎖(A)は、例えば、エチレン-イソプレン共重合体、ブテン-ブタジエン共重合体、イソブテン-イソプレン共重合体等のオレフィンとジエンの共重合体鎖を主鎖の構造中に部分的または全体として含むことが好ましい。オレフィンとジエンの共重

合体は、ランダム共重合体であることが好ましい。

[0020] ポリマー鎖（A）は、さらに他の不飽和単量体由来の単位を有していてもよい。他の不飽和単量体は、重合性二重結合を有する化合物であれば特に限定されず、例えば、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル等のビニルエステル；（メタ）アクリル酸、無水マレイン酸、（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸エチル等の不飽和カルボン酸とそのエステル；スチレン、ビニルトルエン、メトキシスチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、2-ビニルピリジン等の芳香族ビニル化合物；ビニルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -（メタ）アクリロイルオキシプロピルメトキシシラン等のビニルシラン等が挙げられる。ポリマー鎖（A）は、これら他の不飽和単量体とオレフィンとの共重合体、または、これら他の不飽和単量体とオレフィンとジエンとの共重合体であってもよい。

[0021] ポリマー鎖（A）は上記式（1）の単位を主成分として含むことが好ましく、ポリマー鎖（A）中、式（1）の単位の含有割合が50質量%以上であることが好ましく、55質量%以上がより好ましく、60質量%以上がさらに好ましい。これにより、共重合体（P）の各種基材への密着性を高めやすく、また各種樹脂との親和性を高めやすくなる。ポリマー鎖（A）中の式（1）の単位の含有割合の上限は特に限定されず、ポリマー鎖（A）は式（1）の単位のみから構成されていてもよく、ポリマー鎖（A）中の式（1）の単位の含有割合が98質量%以下、95質量%以下、または90質量%以下であってもよい。

[0022] ポリマー鎖（A）は、式（1）の単位と式（2）の単位の合計含有割合が50質量%以上、55質量%以上、または60質量%以上であってもよい。また、ポリマー鎖（A）が式（1）の単位と式（2）の単位のみから構成されていてもよく、ポリマー鎖（A）中の式（1）の単位と式（2）の単位の合計含有割合が98質量%以下、95質量%以下、または90質量%以下であってもよい。

[0023] ポリマー鎖（A）が他の不飽和単量体由来の単位を有する場合、ポリマー

鎖（A）は、式（1）の単位（あるいはさらに式（2）の単位）と他の不飽和単量体由来の単位を含むランダム共重合体であってもよく、ブロック共重合体であってもよい。ポリマー鎖（A）がブロック共重合体である場合は、ポリマー鎖（A）は、式（1）の単位を有する重合体ブロック（a 1）と他の不飽和単量体由来の単位を有する重合体ブロック（a 2）とを有することが好ましい。

[0024] ポリマー鎖（A）が重合体ブロック（a 1）と重合体ブロック（a 2）とを有する場合、重合体ブロック（a 1）は、式（1）の単位に加え、式（2）の単位やさらに他の不飽和単量体由来の単位を有していてもよい。この場合の他の不飽和単量体としては、例えば、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル等のビニルエステル；（メタ）アクリル酸、無水マレイン酸、（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸エチル等の不飽和カルボン酸とそのエステル；スチレン、ビニルトルエン、メトキシスチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、2-ビニルピリジン等の芳香族ビニル化合物；ビニルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -(メタ)アクリロイルオキシプロピルメトキシシラン等のビニルシラン等が挙げられる。なお、重合体ブロック（a 1）は式（1）の単位をより多く含むことが好ましく、重合体ブロック（a 1）中、式（1）の単位の含有割合が70質量%以上であることが好ましく、80質量%以上がより好ましく、90質量%以上がさらに好ましい。重合体ブロック（a 1）は、実質的に式（1）の単位のみから構成されていてもよく、例えば式（1）の単位が99質量%以上であってもよい。あるいは、重合体ブロック（a 1）中、式（1）の単位と式（2）の単位の合計含有割合が70質量%以上であることが好ましく、80質量%以上がより好ましく、90質量%以上がさらに好ましい。重合体ブロック（a 1）は、実質的に式（1）の単位と式（2）の単位のみから構成されていてもよく、例えば式（1）の単位と式（2）の単位が99質量%以上であってもよい。

[0025] ポリマー鎖（A）が他の不飽和単量体由来の単位を有する重合体ブロック（a 2）を有するものである場合、重合体ブロック（a 2）は芳香族ビニル

単量体由来の単位から構成されることが好ましい。この場合、重合体ブロック（a 1）をソフト成分として機能させ、重合体ブロック（a 2）をハード成分として機能させることができ、共重合体（P）および共重合体（P）を含む樹脂組成物（Q）に弾力性を付与することができる。芳香族ビニル単量体は、芳香環にビニル基が結合した化合物であれば特に限定されず、例えば、スチレン、ビニルトルエン、メトキシスチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、 $\alpha$ -ヒドロキシメチルスチレン、 $\alpha$ -ヒドロキシエチルスチレン等のスチレン系単量体；2-ビニルナフタレン等の多環芳香族炭化水素環ビニル単量体；N-ビニルカルバゾール、2-ビニルピリジン、ビニルイミダゾール、ビニルチオフェン等の芳香族複素環ビニル単量体等が挙げられる。これらの中でも、スチレン系単量体が好ましい。スチレン系単量体には、スチレンのみならず、スチレンのビニル基やベンゼン環に任意の置換基が結合したスチレン誘導体も含まれ、当該置換基としては、アルキル基、アルコキシ基、ヒドロキシル基、ハロゲン基、アミノ基、ニトロ基、スルホ基等が挙げられる。スチレンに結合したアルキル基とアルコキシ基は、炭素数1～4が好ましく、炭素数1～2がより好ましく、スチレンに結合したアルキル基とアルコキシ基は、水素原子の少なくとも一部がヒドロキシル基またはハロゲン基で置換されていてもよい。なお、スチレン系単量体は、スチレンのビニル基とベンゼン環に置換基が結合していない無置換のスチレンであることが好ましい。

[0026] 重合体ブロック（a 2）は、芳香族ビニル単量体由来の単位に加え、さらに他の不飽和単量体由来の単位を有していてもよい。この場合の他の不飽和単量体としては、例えば、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル等のビニルエステル；（メタ）アクリル酸、無水マレイン酸、（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸エチル等の不飽和カルボン酸とそのエステル；ビニルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -（メタ）アクリロイルオキシプロピルメトキシシラン等のビニルシラン等が挙げられる。なお、重合体ブロック（a 2）は芳香族ビニル単量体由来の単位をより多く含むことが好ましく、重合体ブロック（a 2）中、芳香族ビニル単量体由来の単位の含有割合が70質量%以上で

あることが好ましく、80質量%以上がより好ましく、90質量%以上がさらに好ましい。重合体ブロック(a2)は、実質的に芳香族ビニル単量体由来の単位のみから構成されていてもよく、例えば芳香族ビニル単量体由来の単位が99質量%以上であってもよい。

[0027] 式(1)の単位を有する重合体ブロック(a1)と、芳香族ビニル単量体由来の単位を有する重合体ブロック(a2)とを有するポリマー鎖(A)、あるいは式(1)の単位と式(2)の単位を有する重合体ブロック(a1)と、芳香族ビニル単量体由来の単位を有する重合体ブロック(a2)とを有するポリマー鎖(A)としては、例えば、スチレンーブタジエーンスチレンブロック共重合体の水添物(例えば、スチレンーエチレン／ブチレンースチレンブロック共重合体)、スチレンーイソプレンースチレンブロック共重合体の水添物(例えば、スチレンーエチレン／プロピレンースチレンブロック共重合体)、スチレンーイソプレンブロック共重合体の水添物等が挙げられる。これらの水添物はブタジエンやイソプレンといったジエン由来の単位の一部または全部が水素化されており、全部水素化されたものは、重合体ブロック(a1)は式(1)の単位を有するものとなり、一部水素化されたものは、重合体ブロック(a1)は式(1)の単位と式(2)の単位を有するものとなる。なお、前記表記において、各ブロックは「-」で区分され、各ブロック中の「/」の表記は、当該ブロック中を構成する単量体単位を表す。

[0028] ブロック共重合体からなるポリマー鎖(A)としては、重合体ブロック(a1)の両側に重合体ブロック(a2)が結合したものであることが好ましく、トリブロック共重合体であることがより好ましい。このようなトリブロック共重合体としては、スチレンーブタジエーンスチレンブロック共重合体の水添物、スチレンーイソプレンースチレンブロック共重合体の水添物等が挙げられる。共重合体(P)がこのようなポリマー鎖(A)を有していれば、例えば共重合体(P)を含む樹脂塗膜を形成した場合に、塗膜の柔軟性を高めて塗膜の硬脆さを低減することができる。

[0029] ポリマー鎖(A)が重合体ブロック(a1)と重合体ブロック(a2)を

有する場合、ポリマー鎖（A）中の重合体ブロック（a 1）の含有割合は50質量%以上であることが好ましく、55質量%以上がより好ましく、60質量%以上がさらに好ましく、また95質量%以下が好ましく、93質量%以下がより好ましく、91質量%以下がさらに好ましい。

[0030] なお、ポリマー鎖（A）は、重合体ブロック（a 1）を有し、重合体ブロック（a 2）を有しないことが好ましい。またポリマー鎖（A）は、式（1）の単位から構成されるか、式（1）の単位と式（2）の単位から構成されることが好ましく、式（1）の単位のみから構成されることがより好ましい。

[0031] ポリマー鎖（A）の重量平均分子量は、0.5万以上が好ましく、1万以上がより好ましく、2万以上がさらに好ましく、3万以上がさらに好ましく、また30万以下が好ましく、25万以下がより好ましく、20万以下がさらに好ましく、15万以下がさらに好ましい。ポリマー鎖（A）の重量平均分子量をこのような範囲とすることで、共重合体（P）の取り扱い性を高めやすくなる。

[0032] 共重合体（P）に含まれるポリマー鎖（B）について説明する。ポリマー鎖（B）は、オキサゾリン基含有単量体由来の単位を有するものである。オキサゾリン基含有単量体由来の単位は、共重合体（P）と極性が高い基材や極性が高い樹脂との密着性や親和性を高めるように作用する。オキサゾリン基含有単量体としては、オキサゾリン基と重合性二重結合を有する化合物であれば特に限定されず、2-ビニル-2-オキサゾリン、5-メチル-2-ビニル-2-オキサゾリン、4,4-ジメチル-2-ビニル-2-オキサゾリン、2-イソプロペニル-2-オキサゾリン、4,4-ジメチル-2-イソプロペニル-2-オキサゾリン等のビニルオキサゾリンが好ましく挙げられる。これらの中でも、2-イソプロペニル-2-オキサゾリンが、入手容易性と反応性の点から好ましく用いられる。

[0033] ポリマー鎖（B）は、さらに他の不飽和単量体由来の単位を有していてもよい。他の不飽和単量体は、重合性二重結合を有する化合物であれば特に限

定されず、例えば、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル等のビニルエステル；アクリロニトリル等のシアン化ビニル化合物；（メタ）アクリル酸、無水マレイン酸、（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸エチル等の不飽和カルボン酸とそのエステル；スチレン、ビニルトルエン、メトキシスチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、2-ビニルピリジン等の芳香族ビニル化合物；ビニルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -（メタ）アクリロイルオキシプロピルメトキシシラン等のビニルシラン等が挙げられる。これらの中でも、ポリマー鎖（B）は、シアン化ビニル単量体由来の単位、芳香族ビニル単量体由来の単位および／または不飽和カルボン酸エステル由来の単位を有することが好ましく、芳香族ビニル単量体由来の単位および／または不飽和カルボン酸エステル由来の単位を有することがより好ましく、芳香族ビニル単量体由来の単位を有することがさらに好ましい。前記芳香族ビニル単量体由来の単位としてはスチレン系単量体由来の単位が好ましく、前記不飽和カルボン酸エステル由来の単位としては（メタ）アクリル酸エステル由来の単位好ましい。芳香族ビニル単量体およびスチレン系単量体の説明は、上記の重合体ブロック（a 2）の芳香族ビニル単量体およびスチレン系単量体に関する説明が参照される。ポリマー鎖（B）が芳香族ビニル単量体由来の単位を有していれば、共重合体（P）の耐熱性を向上させることができ、またポリマー鎖（B）を重合形成する際にオキサゾリン基含有単量体の反応を促進することができる。また、製造コストの面からも有利になる。

[0034] 前記不飽和カルボン酸エステル（好ましくは、（メタ）アクリル酸エステル）としては、具体的には、（メタ）アクリル酸のエステル結合の酸素原子に、直鎖状、分岐鎖状または環状の脂肪族炭化水素基や芳香族炭化水素基が結合した（メタ）アクリル酸エステルが挙げられる。

[0035] 直鎖状または分岐鎖状の脂肪族炭化水素基を有する（メタ）アクリル酸エステルとしては、（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸エチル、（メタ）アクリル酸n-プロピル、（メタ）アクリル酸イソプロピル、（メタ）アクリル酸n-ブチル、（メタ）アクリル酸イソブチル、（メタ）アク

リル酸 *sec*-ブチル、(メタ)アクリル酸 *tert*-ブチル、(メタ)アクリル酸ペンチル、(メタ)アクリル酸 *n*-ヘキシル、(メタ)アクリル酸2-エチルヘキシル等の(メタ)アクリル酸アルキルが挙げられる。(メタ)アクリル酸アルキルのアルキル基の炭素数は、1以上が好ましく、また18以下が好ましく、12以下がより好ましく、6以下がさらに好ましい。

[0036] 環状の脂肪族炭化水素基を有する(メタ)アクリル酸エステルとしては、(メタ)アクリル酸シクロプロピル、(メタ)アクリル酸シクロブチル、(メタ)アクリル酸シクロペンチル、(メタ)アクリル酸シクロヘキシル等の(メタ)アクリル酸シクロアルキル；(メタ)アクリル酸イソボルニル等の架橋環式(メタ)アクリレート等が挙げられる。(メタ)アクリル酸シクロアルキルのシクロアルキル基の炭素数は、3以上が好ましく、4以上がより好ましく、5以上がさらに好ましく、また20以下が好ましく、12以下がより好ましく、10以下がさらに好ましい。

[0037] 芳香族炭化水素基を有する(メタ)アクリル酸エステルとしては、(メタ)アクリル酸フェニル、(メタ)アクリル酸トリル、(メタ)アクリル酸キシリル、(メタ)アクリル酸ナフチル、(メタ)アクリル酸ビナフチル、(メタ)アクリル酸アントリル等の(メタ)アクリル酸アリール；(メタ)アクリル酸ベンジル等の(メタ)アクリル酸アラルキル；(メタ)アクリル酸フェノキシエチル等の(メタ)アクリル酸アリールオキシアルキル等が挙げられる。(メタ)アクリル酸アリールのアリール基の炭素数は、6以上が好ましく、また20以下が好ましく、14以下がより好ましい。(メタ)アクリル酸アラルキルのアラルキル基の炭素数は、7以上が好ましく、また14以下が好ましく、12以下がより好ましい。(メタ)アクリル酸アリールオキシアルキルのアリールオキシアルキル基の炭素数は、7以上が好ましく、また14以下が好ましく、12以下がより好ましい。

[0038] ポリマー鎖(B)が不飽和カルボン酸エステル由来の単位を有していれば、共重合体(P)の各種樹脂(特に、極性が高い樹脂)との親和性をさらに向上させることができる。

- [0039] ポリマー鎖（B）が他の不飽和単量体由来の単位を有する場合、ポリマー鎖（B）は、オキサゾリン基含有単量体と他の不飽和単量体とのランダム共重合体であってもよく、ブロック共重合体であってもよいが、ポリマー鎖（B）の製造容易性の点から、ランダム共重合体であることが好ましい。
- [0040] ポリマー鎖（B）中のオキサゾリン基含有単量体由来の単位の含有割合は1質量%以上であることが好ましく、2質量%以上がより好ましく、また50質量%以下が好ましく、40質量%以下がより好ましい。これにより、共重合体（P）の密着性向上効果や親和性向上効果を高めやすくなるとともに、ポリマー鎖（B）の形成が容易になる。
- [0041] ポリマー鎖（B）は、他の不飽和単量体由来の単位として芳香族ビニル単量体由来の単位を有する場合には、オキサゾリン基含有単量体由来の単位と芳香族ビニル単量体由来の単位の合計含有割合が70質量%以上であることが好ましく、80質量%以上であることがより好ましく、90質量%以上がさらに好ましく、95質量%以上がさらにより好ましく、98質量%以上が特に好ましい。
- [0042] ポリマー鎖（B）はポリマー鎖（A）にグラフトしていることが好ましい。従って、共重合体（P）はポリマー鎖（B）をグラフト鎖として有するグラフト共重合体であることが好ましい。なお、国際純正応用化学連合（IUPAC）高分子命名法委員会による高分子科学の基本的術語の用語集によると、グラフト高分子とは、「ある高分子中に側鎖として主鎖に結合した1種または数種のブロックがあり、しかもこれらの側鎖が主鎖とは異なる構成（化学構造）上または配置上の特徴をもつ場合、この高分子をグラフト高分子という。」と説明されている。グラフト共重合体は、連鎖移動反応法、高分子開始剤法、カップリング法、マクロモノマー法、表面グラフト法等の公知の製造方法により得ることができ、これらの方法から1つのみを採用してもよく、複数を組み合わせて用いてもよい。これらの方法の詳細は、日本化学会編、化学便覧（応用化学編）第6版を参考にできる。
- [0043] 共重合体（P）は、ポリマー鎖（A）に、ポリマー鎖（B）を形成する単

量体成分を付加重合することにより製造することが簡便である。従って、共重合体（P）は、式（1）の単位を有する重合体（以下、「原料重合体（P 1）」と称する）の存在下で、オキサゾリン基含有単量体を含む単量体成分を重合することによって得られるものが好ましい。原料重合体（P 1）の詳細は上記のポリマー鎖（A）の説明が参照され、原料重合体（P 1）は、さらに式（2）の単位を有していたり、式（1）の単位を有する重合体ブロック（a 1）と他の不飽和単量体由来の単位を有する重合体ブロック（a 2）を有するものであってもよい。

[0044] ポリマー鎖（B）は、例えば、ポリマー鎖（A）の式（1）の単位にグラフトしていることが好ましい。ポリマー鎖（A）が式（2）の単位を有する場合は、ポリマー鎖（B）は式（2）の単位にグラフトしていてもよい。ポリマー鎖（B）は式（1）の単位または式（2）の単位の主鎖の炭素原子に結合していてもよく、当該主鎖に置換基（側鎖）として結合した炭化水素基の炭素原子に結合していてもよい。また、任意の連結基（例えば、エステル結合、アミド結合、ウレタン結合等）を介して、ポリマー鎖（B）がポリマー鎖（A）に結合していてもよい。

[0045] 共重合体（P）の重量平均分子量は、1万以上が好ましく、2万以上がより好ましく、3万以上がさらに好ましく、5万以上がさらに好ましく、7万以上が特に好ましく、また70万以下が好ましく、50万以下がより好ましく、30万以下がさらに好ましく、20万以下がさらに好ましい。共重合体（P）の重量平均分子量をこのような範囲とすることで、共重合体（P）の取り扱い性を高めやすくなる。

[0046] 共重合体（P）の重量平均分子量は、ポリマー鎖（A）の重量平均分子量の1.1倍以上が好ましく、1.2倍以上がより好ましく、1.3倍以上がさらに好ましく、また20倍以下が好ましく、12倍以下がより好ましく、10倍以下がさらに好ましく、7倍以下がさらに好ましく、5倍以下が特に好ましい。これにより、共重合体（P）の密着性や親和性を高めやすくなる。

- [0047] 共重合体（P）は、原料重合体（P 1）の存在下で、オキサゾリン基含有単量体を含む単量体成分を重合する工程（重合工程）を含む製造方法により得ることができる。重合工程でオキサゾリン基含有単量体を含む単量体成分が重合することによりポリマー鎖（B）が形成され、原料重合体（P 1）がポリマー鎖（A）を与え、これにより、ポリマー鎖（B）がポリマー鎖（A）に結合した共重合体（P）が得られる。
- [0048] 重合工程においてポリマー鎖（B）が原料重合体（P 1）の式（1）の単位（式（2）の単位も存在する場合は式（1）の単位または式（2）の単位）に結合するようにする点から、重合工程では、当該単位の炭化水素基から水素が引き抜かれるようにすることが好ましい。これにより当該箇所ラジカルが生成し、ポリマー鎖（B）を形成する単量体成分を付加重合させることができる。
- [0049] 重合工程において、原料重合体（P 1）は、1種のみを用いてもよく、2種以上を併用してもよい。後者の場合、共重合体（P）の重量平均分子量や物性を調整することが容易となる。
- [0050] ポリマー鎖（B）の形成に用いられる単量体成分としては、オキサゾリン基含有単量体に加え、他の不飽和単量体を用いることもできる。他の不飽和単量体としては、シアン化ビニル単量体、芳香族ビニル単量体および／または不飽和カルボン酸エステルを用いることが好ましい。これらの単量体成分の詳細は、上記のポリマー鎖（B）を形成するオキサゾリン基含有単量体、ポリマー鎖（B）を形成する他の不飽和単量体の説明が参照される。
- [0051] 単量体成分の重合は、塊状重合法、溶液重合法、乳化重合法、懸濁重合法等の公知の重合法を用いて行うことができるが、溶液重合法を用いることが好ましい。重合形式としては、例えば、バッチ重合法、連続重合法のいずれも用いることができる。
- [0052] 重合の際の原料重合体（P 1）の使用量は、原料重合体（P 1）と単量体成分の合計100質量部に対して、5質量部以上が好ましく、10質量部以上がより好ましく、15質量部以上がさらに好ましく、また80質量部以下

が好ましく、70質量部以下がより好ましく、60質量部以下がさらに好ましく、50質量部以下がさらにより好ましい。単量体成分の使用量は、原料重合体(P1)と単量体成分の合計100質量部に対して、20質量部以上が好ましく、30質量部以上がより好ましく、40質量部以上がさらに好ましく、50質量部以上がさらにより好ましく、また95質量部以下が好ましく、90質量部以下がより好ましく、85質量部以下がさらに好ましい。

[0053] 重合の際に用いる溶媒は、単量体成分の組成に応じて適宜選択でき、通常のラジカル重合反応で使用される有機溶媒を用いることができる。具体的には、トルエン、キシレン、エチルベンゼン等の芳香族炭化水素類；ヘキサン、シクロヘキサン等の脂肪族炭化水素類；アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン類；テトラヒドロフラン、ジオキサン、エチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールジメチルエーテル、アニソール等のエーテル類；酢酸エチル、酢酸ブチル、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、3-メトキシブチルアセテート等のエステル類；メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、ブチルセロソルブ等のセロソルブ類；メタノール、エタノール、イソプロパノール、n-ブタノール等のアルコール類；アセトニトリル、プロピオニトリル、ブチロニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル類；クロロホルム；ジメチルスルホキシド等が挙げられる。これらの溶媒は、1種のみを用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

[0054] 原料重合体(P1)と単量体成分との重合反応は、重合開始剤の存在下で行うことが好ましい。重合開始剤としては、例えば、2,2'-アゾビスイソブチロニトリル、2,2'-アゾビス(2-アミジノプロパン)・二塩酸塩、ジメチル-2,2'-アゾビス(2-メチルプロピオネート)、4,4'-アゾビス(4-シアノペンタン酸)等のアゾ化合物；過硫酸カリウム等の過硫酸塩類；クメンハイドロパーオキシド、ジイソプロピルベンゼンハイドロパーオキシド、ジ-tert-ブチルパーオキシド、ラウロイルパーオキシド、ベンゾイルパーオキシド、tert-ブチルパーオキシイソプロピル

カーボネート、*t*-アミルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、*t*-アミルパーオキシオクトエート、*t*-アミルパーオキシイソノナノエート、*t*-アミルパーオキシイソプロピルカーボネート、*t*-アミルパーオキシ-2-エチルヘキシルカーボネート等の有機過酸化物等を用いることができる。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。これらの中でも、水素引き抜き力が強い有機過酸化物を用いることが好ましく、特にパーオキシカーボネート系の過酸化物を用いることが好ましい。重合開始剤の使用量は、例えば、単量体成分100質量部に対して0.05～3質量部とすることが好ましい。

[0055] 反応液中の原料重合体（P1）と単量体成分の合計濃度は、3質量%以上が好ましく、5質量%以上がより好ましく、10質量%以上がさらに好ましく、また80質量%以下が好ましく、70質量%以下がより好ましい。重合反応中に、原料重合体（P1）、単量体成分、重合触媒、溶媒等を適宜追加することも可能である。

[0056] 重合反応は、窒素ガス等の不活性ガスの雰囲気または気流下で行うのが好ましい。反応温度は、50℃～200℃が好ましい。反応時間は、共重合反応の進行度合を見ながら適宜調整すればよく、例えば1時間～20時間行うことが好ましい。

[0057] 重合の際、単量体成分は一括で仕込んでよく、分割添加してもよい。なお、ポリマー鎖（A）にオキサゾリン基含有単量体をグラフト重合させてポリマー鎖（B）を形成することが容易な点から、単量体成分は一括で仕込むことが好ましい。

[0058] 本発明は、上記に説明したポリマー鎖（A）とポリマー鎖（B）とを有する共重合体（P）を含有する樹脂組成物（Q）も提供する。本発明の樹脂組成物（Q）は、各種基材への密着性や各種樹脂との親和性に優れるものとなる。

[0059] 樹脂組成物（Q）は、共重合体（P）を樹脂成分として含んでいてもよく、他の重合体を樹脂成分として含むものでもよい。樹脂組成物（Q）が他の

重合体を含む場合、他の重合体としてはオキサゾリン基含有重合体、および／または式（１）の単位を有する重合体が好ましく、オキサゾリン基含有重合体がより好ましく用いられ、これら他の重合体を含むことにより樹脂組成物（Ｑ）の均質性が高まる。

[0060] 樹脂組成物（Ｑ）に他の重合体として含むオキサゾリン基含有重合体は、上記のポリマー鎖（Ｂ）で説明したオキサゾリン基含有単量体由来の単位を有するものであればよく、上記のポリマー鎖（Ｂ）で説明した他の不飽和単量体由来の単位を有していてもよい。オキサゾリン基含有重合体は、共重合体（Ｐ）との相溶性を高める観点から、ポリマー鎖（Ｂ）が有する単量体由来の単位と同じ単量体由来の単位を有することがより好ましい。

[0061] 樹脂組成物（Ｑ）に他の重合体として含む式（１）の単位を有する重合体は、上記ポリマー鎖（Ａ）で説明した式（１）の単位を有するものであればよく、上記のポリマー鎖（Ａ）で説明した式（２）の単位を有する重合体や他の不飽和単量体由来の単位を有していてもよい。式（１）の単位を有する重合体は、共重合体（Ｐ）との相溶性を高める観点から、ポリマー鎖（Ａ）が有する単量体由来の単位と同じ単量体由来の単位を有することがより好ましい。

[0062] 樹脂組成物（Ｑ）は、共重合体（Ｐ）とオキサゾリン基含有重合体と式（１）の単位を有する重合体の合計１００質量部に対して、共重合体（Ｐ）の含有割合が１０質量部以上が好ましく、１２質量部以上がより好ましく、１５質量部以上がさらに好ましい。樹脂組成物（Ｑ）中の共重合体（Ｐ）の含有割合の上限は特に限定されず、樹脂組成物（Ｑ）は共重合体（Ｐ）のみから構成されていてもよく、共重合体（Ｐ）とオキサゾリン基含有重合体と式（１）の単位を有する重合体の合計１００質量部に対して、共重合体（Ｐ）の含有割合が９０質量部以下であってもよく、８０質量部以下、７０質量部以下、または６０質量部以下であってもよい。

[0063] 樹脂組成物（Ｑ）は、共重合体（Ｐ）とオキサゾリン基含有重合体と式（１）の単位を有する重合体の合計１００質量部に対して、ポリマー鎖（Ａ）

の含有割合が5質量部以上であることが好ましく、8質量部以上がより好ましく、12質量部以上がさらに好ましく、また80質量部以下が好ましく、70質量部以下がより好ましく、60質量部以下がさらに好ましく、50質量部以下がさらにより好ましい。これにより、樹脂組成物（Q）の各種基材への密着性を高めやすくなる。なお、樹脂組成物（Q）中のポリマー鎖（A）の含有割合は、共重合体（P）に含まれるポリマー鎖（A）と式（1）の単位を有する重合体に含まれるポリマー鎖（A）の合計の含有割合を意味する。

[0064] 樹脂組成物（Q）は、共重合体（P）とオキサゾリン基含有重合体と式（1）の単位を有する重合体の合計100質量部に対して、式（1）の単位の含有割合が3質量部以上であることが好ましく、5質量部以上がより好ましく、10質量部以上がさらに好ましく、また80質量部以下が好ましく、70質量部以下がより好ましく、60質量部以下がさらに好ましく、50質量部以下がさらにより好ましい。これにより、樹脂組成物（Q）の各種基材への密着性を高めやすくなる。あるいは、樹脂組成物（Q）は、共重合体（P）とオキサゾリン基含有重合体と式（1）の単位を有する重合体の合計100質量部に対して、式（1）の単位と式（2）の単位の合計含有割合が3質量部以上、5質量部以上、または10質量部以上であってもよく、また80質量部以下、70質量部以下、60質量部以下、または50質量部以下であってもよい。なお、樹脂組成物（Q）中の式（1）の単位の含有割合は、共重合体（P）に含まれる式（1）の単位と式（1）の単位を有する重合体に含まれる式（1）の単位の合計の含有割合を意味し、樹脂組成物（Q）中の式（2）の単位の含有割合は、共重合体（P）に含まれる式（2）の単位と式（1）の単位を有する重合体に含まれる式（2）の単位の合計の含有割合を意味する。また、式（2）の単位の含有割合は、式（2-1）で表される単位と式（2-2）で表される単位の合計含有割合を意味する。

[0065] 樹脂組成物（Q）は、共重合体（P）とオキサゾリン基含有重合体と式（1）の単位を有する重合体の合計100質量部に対して、オキサゾリン基含

有単量体由来の単位の含有割合が0.5質量部以上であることが好ましく、1.0質量部以上がより好ましく、1.5質量部以上がさらに好ましく、また4.9質量部以下が好ましく、4.0質量部以下がより好ましく、3.0質量部以下がさらに好ましい。これにより、樹脂組成物（Q）の各種基材への密着性を高めやすくなる。なお、樹脂組成物（Q）中のオキサゾリン基含有単量体由来の単位の含有割合は、共重合体（P）に含まれるオキサゾリン基含有単量体由来の単位とオキサゾリン基含有重合体に含まれるオキサゾリン基含有単量体由来の単位の合計の含有割合を意味する。

[0066] 樹脂組成物（Q）は、共重合体（P）とオキサゾリン基含有重合体と式（1）の単位を有する重合体の合計100質量部に対して、式（1）の単位とオキサゾリン基含有単量体由来の単位の合計含有割合が5質量部以上であることが好ましく、10質量部以上がより好ましく、15質量部以上がさらに好ましく、20質量部以上がさらに好ましい。これにより、樹脂組成物（Q）の各種基材への密着性を高めやすくなる。樹脂組成物（Q）中の式（1）の単位とオキサゾリン基含有単量体由来の単位の含有割合の上限は特に限定されず、樹脂組成物（Q）は実質的に式（1）の単位とオキサゾリン基含有単量体由来の単位のみから構成されていてもよく、共重合体（P）とオキサゾリン基含有重合体と式（1）の単位を有する重合体の合計100質量部に対して、式（1）の単位とオキサゾリン基含有単量体由来の単位の合計含有割合が90質量部以下、80質量部以下、70質量部以下、60質量部以下、または50質量部以下であってもよい。あるいは、樹脂組成物（Q）は、共重合体（P）とオキサゾリン基含有重合体と式（1）の単位を有する重合体の合計100質量部に対して、式（1）の単位と式（2）の単位とオキサゾリン基含有単量体由来の単位の合計含有割合が5質量部以上、10質量部以上、15質量部以上、20質量部以上、または22質量部以上であってもよく、また90質量部以下、80質量部以下、70質量部以下、60質量部以下、または50質量部以下であってもよい。

[0067] 樹脂組成物（Q）は、共重合体（P）とオキサゾリン基含有重合体と式（

1) の単位を有する重合体の合計 100 質量部に対して、式 (1) の単位の含有割合が 10 質量部以上であり、かつ式 (1) の単位とオキサゾリン基含有単量体由来の単位の合計含有割合が 20 質量部以上であることが特に好ましい。あるいは、樹脂組成物 (Q) は、共重合体 (P) とオキサゾリン基含有重合体と式 (1) の単位を有する重合体の合計 100 質量部に対して、式 (1) の単位と式 (2) の単位の合計含有割合が 10 質量部以上であり、かつ式 (1) の単位と式 (2) の単位とオキサゾリン基含有単量体由来の単位の合計含有割合が 20 質量部以上であることが特に好ましい。

[0068] 樹脂組成物 (Q) は、式 (1) の単位とオキサゾリン基含有単量体由来の単位の合計 100 質量部に対して、式 (1) の単位の含有割合が 10 質量部以上であることが好ましく、20 質量部以上がより好ましく、30 質量部以上がさらに好ましく、また 98 質量部以下が好ましく、95 質量部以下がより好ましく、93 質量部以下がさらに好ましい。これにより、樹脂組成物 (Q) の各種基材への密着性を高めやすくなる。あるいは、樹脂組成物 (Q) は、式 (1) の単位と式 (2) の単位とオキサゾリン基含有単量体由来の単位の合計 100 質量部に対して、式 (1) の単位と式 (2) の単位の合計含有割合が 10 質量部以上、20 質量部以上、または 30 質量部以上であってもよく、また 98 質量部以下、95 質量部以下、または 93 質量部以下であってもよい。

[0069] 樹脂組成物 (Q) 中の式 (1) の単位の含有割合や式 (2) の単位の含有割合やオキサゾリン基含有単量体由来の単位の含有割合は、共重合体 (P) やオキサゾリン基含有重合体を重合形成する際の各単量体の使用量および単量体残存率 (反応せず残存している単量体が、得られた反応液中に含有している割合) から、共重合体 (P) やオキサゾリン基含有重合体に取り込まれた各単位の量を算出することにより求めることができる。後述するように、原料重合体 (P1) の存在下でオキサゾリン基含有単量体を含む単量体成分を重合することにより樹脂組成物 (Q) を得る場合は、原料重合体 (P1) に含まれる式 (1) の単位や式 (2) の単位の量も考慮して、樹脂組成物 (

Q) 中の式 (1) の単位の含有割合や式 (2) の単位の含有割合やオキサゾリン基含有単量体由来の単位の含有割合を算出する。この際、原料重合体 (P 1) は全て単量体成分と反応し、その残存率は 0 % であるとみなす。なお、含有割合の算出にあたり原料重合体 (P 1) の残存率を 0 % とみなすのみであり、樹脂組成物 (Q) 中には原料重合体 (P 1) を含有していてもよい。

[0070] 樹脂組成物 (Q) の固形分 100 質量部中、共重合体 (P) とオキサゾリン基含有重合体の合計含有割合は、50 質量部以上が好ましく、70 質量部以上がより好ましく、80 質量部以上がさらに好ましく、90 質量部以上がさらにより好ましい。樹脂組成物 (Q) 中の共重合体 (P) とオキサゾリン基含有重合体の含有割合の上限は特に限定されず、樹脂組成物 (Q) は実質的に共重合体 (P) とオキサゾリン基含有重合体のみから構成されていてもよく、例えば樹脂組成物 (Q) の固形分 100 質量部中、共重合体 (P) とオキサゾリン基含有重合体の合計含有割合が 99 質量部以上であってもよい。樹脂組成物 (Q) の固形分とは、樹脂組成物 (Q) が溶媒を含む場合は、溶媒を除く樹脂組成物 (Q) の量を意味する。

[0071] 樹脂組成物 (Q) は、オキサゾリン基含有重合体および式 (1) の単位を有する重合体以外の重合体を含有していてもよく、そのような重合体としては、例えば、塩化ビニル、塩素化ビニル樹脂等の含ハロゲン系重合体；ポリメタクリル酸メチル等のアクリル系重合体；ポリスチレン、スチレンーメタクリル酸メチル共重合体、スチレンーアクリロニトリル共重合体、アクリロニトリルーブタジエンスチレン共重合体等のスチレン系重合体；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、ポリエチレンナフタレート等のポリエステル；ナイロン 6、ナイロン 66、ナイロン 610 等のポリアミド；ポリアセタール；ポリカーボネート；ポリフェニレンオキシド；ポリフェニレンスルフィド；ポリエーテルエーテルケトン；ポリサルホン；ポリエーテルサルホン；ポリオキシペンジレン；ポリアミドイミド；ポリブタジエン系ゴム、(メタ)アクリル系ゴムを配合した ABS 樹脂や ASA 樹

脂等のゴム質重合体が挙げられる。

[0072] 樹脂組成物（Q）は溶媒を含有していてもよい。溶媒としては、トルエン、キシレン、エチルベンゼン等の芳香族炭化水素類；ヘキサン、シクロヘキサン等の脂肪族炭化水素類；アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン類；テトラヒドロフラン、ジオキサン、エチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールジメチルエーテル、アニソール等のエーテル類；酢酸エチル、酢酸ブチル、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、3-メトキシブチルアセテート等のエステル類；メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、ブチルセロソルブ等のセロソルブ類；メタノール、エタノール、イソプロパノール、n-ブタノール等のアルコール類；アセトニトリル、プロピオニトリル、ブチロニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル類；クロロホルム；ジメチルスルホキシド等が挙げられる。これらの溶媒は、1種のみが含まれていてもよく、2種以上が含まれていてもよい。

[0073] 樹脂組成物（Q）は、種々の添加剤を含んでいてもよい。添加剤としては、例えば、ヒンダードフェノール系、リン系、イオウ系等の酸化防止剤；耐光安定剤、耐候安定剤、熱安定剤等の安定剤；ガラス繊維、炭素繊維等の補強材；紫外線吸収剤；近赤外線吸収剤；トリス（ジブロモプロピル）ホスフェート、トリアリルホスフェート、酸化アンチモン等の難燃剤；アニオン系、カチオン系、ノニオン系の界面活性剤を含む帯電防止剤；無機顔料、有機顔料、染料等の着色剤；有機フィラーや無機フィラー；樹脂改質剤；有機充填剤や無機充填剤；等が挙げられる。樹脂組成物（Q）における各添加剤の含有割合は、樹脂組成物（Q）の固形分100質量部中、好ましくは0～5質量部、より好ましくは0～2質量部の範囲内である。

[0074] 樹脂組成物（Q）の重量平均分子量は、1万以上が好ましく、2万以上がより好ましく、3万以上がさらに好ましく、5万以上がさらにより好ましく、7万以上が特に好ましく、また70万以下が好ましく、50万以下がより好ましく、30万以下がさらに好ましく、20万以下がさらにより好ましい

。樹脂組成物（Q）の重量平均分子量は、樹脂組成物（Q）をゲルパーミエーションクロマトグラフィーにより測定したポリスチレン換算の値を意味し、樹脂組成物（Q）が共重合体（P）とオキサゾリン基含有重合体と式（1）の単位を有する重合体を含有する場合は、樹脂組成物（Q）の重量平均分子量は、これら複数種類の重合体の全体の重量平均分子量となる。

[0075] 樹脂組成物（Q）の重量平均分子量は、共重合体（P）のポリマー鎖（A）の重量平均分子量の1.1倍以上が好ましく、1.2倍以上がより好ましく、1.3倍以上がさらに好ましく、また20倍以下が好ましく、12倍以下がより好ましく、10倍以下がさらに好ましく、7倍以下がさらに好ましく、5倍以下が特に好ましい。これにより、樹脂組成物（Q）の各種基材への密着性を高めやすくなる。

[0076] 樹脂組成物（Q）の製造方法は特に限定されないが、前記原料重合体（P1）とオキサゾリン基含有単量体を含む単量体成分を重合することにより、共重合体（P）を重合生成する際に、オキサゾリン基含有重合体も一緒に重合生成することが簡便である。上記に説明した共重合体（P）の製造方法では、共重合体（P）とともに、共重合体（P）のポリマー鎖（B）に対応したオキサゾリン基含有重合体も同時に生成するが、この際、共重合体（P）とオキサゾリン基含有重合体と未反応の原料重合体（P1）として存在する式（1）の単位を有する重合体とを分離しないことにより、共重合体（P）とオキサゾリン基含有重合体と式（1）の単位を有する重合体を含む樹脂組成物（Q）を得ることができる。この場合の樹脂組成物（Q）の製造方法は、共重合体（P）の製造方法で説明した重合工程により、共重合体（P）とオキサゾリン基含有重合体と式（1）の単位を有する重合体を得られるものとなる。

[0077] 樹脂組成物（Q）の製造方法は、上記の方法に限定されず、共重合体（P）を単離して、別の重合体と混合して樹脂組成物（Q）としてもよい。また、上記の共重合体（P）の製造方法において、原料重合体（P1）へのグラフト共重合反応終了後に、さらに別の単量体を追加して重合反応を行い樹脂

組成物（Q）を得てもよい。あるいは、上記の共重合体（P）の製造方法で得られた共重合体（P）とオキサゾリン基含有重合体と式（1）の単位を有する重合体の混合物に対して、さらに別の重合体（例えば、別のオキサゾリン基含有重合体）を加えて樹脂組成物（Q）としてもよい。他の重合体を加えて混合する場合は、熔融混練してもよく、この場合、例えばニーダーや多軸押出機などの一般的な装置を使用することができる。

[0078] 共重合体（P）および樹脂組成物（Q）は、式（1）の単位を有するポリマー鎖（A）と、オキサゾリン基含有単量体由来の単位を有するポリマー鎖（B）とを含むことにより、高極性から低極性（非極性）の各種基材への密着性や各種樹脂との親和性に優れるものとなる。そのため、基材上に樹脂層を形成する際の密着性を改善するプライマー（下地調整剤、下塗り剤、シーラーとも称される）として好適に用いることができる。例えば、比較的極性が高い樹脂基材であるポリメチルメタクリレート基材やポリカーボネート基材上にアクリルポリマーやウレタンポリマー等が主成分のコーティング層を形成する場合や、比較的極性が低い樹脂基材であるポリオレフィン基材上にアクリルポリマーやウレタンポリマー等が主成分のコーティング層を形成する場合において、共重合体（P）や樹脂組成物（Q）をプライマーとして用いることにより、基材とコーティング層との密着性を高めることができる。

[0079] 本発明は、上記に説明した共重合体（P）または樹脂組成物（Q）を含有する層を樹脂基材の表面に形成した樹脂成形体も提供する。本発明の樹脂成形体に形成された共重合体（P）または樹脂組成物（Q）を含有する層は、種々の樹脂基材との密着性に優れるため、樹脂基材から層が剥離するなどの不具合が起こり難い。また、共重合体（P）または樹脂組成物（Q）を含有する層は、高極性から低極性（非極性）の各種樹脂との親和性が高いため、該層上にさらに別の樹脂層（コーティング層）を積層形成した際には、コーティング層と樹脂成形体との密着性が高く、コーティング層の剥離などの不具合が起こり難い。

[0080] 樹脂成形体を構成する樹脂基材としては、炭化水素系樹脂、あるいはヘテ

口原子含有基またはヘテロ原子含有結合を有する樹脂であることが好ましい。前記炭化水素系樹脂としては、脂肪族炭化水素樹脂、脂環族炭化水素樹脂、および芳香族炭化水素樹脂のいずれであってもよいが、脂肪族炭化水素樹脂が好ましく、ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン樹脂がより好ましい。前記ヘテロ原子としては、酸素原子、窒素原子、硫黄原子などが挙げられる。前記ヘテロ原子含有基としては、例えば、ヒドロキシ基、カルボキシ基、スルホ基、カルバモイル基などが挙げられ、前記ヘテロ原子含有結合としては、例えば、エーテル結合、エステル結合、炭酸エステル結合、アミド結合、チオエーテル結合などが挙げられる。ヘテロ原子含有基またはヘテロ原子含有結合を有する樹脂としては、カルボキシ基、エステル結合および炭酸エステル結合から選ばれる少なくとも1つを有する樹脂が好ましい。

[0081] 共重合体（P）および樹脂組成物（Q）は、各種樹脂の相溶化剤としても有用であり、例えば、極性が低いポリオレフィン樹脂やポリエステル樹脂との混和性を改善したり、複数の樹脂混合物の一液安定性を高めることができる。共重合体（P）または樹脂組成物（Q）を各種樹脂の相溶化剤として使用する場合の配合量は、相溶化させる樹脂の合計100質量部に対して、例えば1質量部であり、5質量部以上が好ましく、10質量部以上がより好ましく、例えば60質量部以下であり、55質量部以下が好ましく、50質量部以下がより好ましい。また、樹脂を溶融混練する際の添加剤、樹脂と副資材（例えば、繊維、フィラー、顔料等）を含有する組成物を溶融混練する際の分散剤、樹脂やホットメルトやアスファルトの改質剤として用いることもできる。さらに、共重合体（P）や樹脂組成物（Q）を樹脂に添加することにより、相溶性の向上、流動性の改善、耐熱性の向上、耐衝撃性の向上、耐擦傷性の向上、成形品表面の塗装性向上およびブロッキング防止等の効果も期待できる。例えば、共重合体（P）や樹脂組成物（Q）は、極性が低いポリオレフィン樹脂の改質剤や、酸性プロトンを含有する種々の熱可塑性樹脂の改質剤として用いることができる。なお、ポリオレフィン樹脂の改質剤と

しては具体的には、ポリオレフィン樹脂の硬さ、引張強さ、耐衝撃強さ、耐熱性、耐候性、加工性、密着性、相溶性といった特性を改質することができる。また、酸性プロトン含有熱可塑性樹脂の改質剤としては具体的には、酸性プロトン含有熱可塑性樹脂の各種特性（耐熱性、硬さ、引張強さなど）の低下を抑制または防止しつつ、硬さ、引張強さ、耐衝撃強さ、耐熱性、耐候性、加工性、密着性、相溶性といった特性を改質することができる。前記酸性プロトン含有熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリアミドなどが挙げられる。

[0082] 本願は、2019年1月15日に出願された日本国特許出願第2019-004296号、および2019年12月26日に出願された日本国特許出願第2019-237076号に基づく優先権の利益を主張するものである。2019年1月15日に出願された日本国特許出願第2019-004296号、および2019年12月26日に出願された日本国特許出願第2019-237076号の明細書の全内容が、本願に参考のため援用される。

## 実施例

[0083] 以下、本発明を実施例および比較例を示してより具体的に説明するが、本発明はこれらによって限定されるものではない。

[0084] (1) 樹脂組成物の調製

### (1-1) 調製例1

攪拌装置、温度センサー、冷却管、窒素導入管を備えた2Lの反応器に、SEBSブロック共重合体として、タフテック（登録商標）P1083（旭化成社製、スチレン単位含有量20質量%）40gとトルエン200gを仕込み、攪拌しながら80℃に加温してSEBSブロック共重合体を溶解させた。そこにイソプロピルオキサゾリン（IPO）48gとスチレン（St）112gを加え、窒素を通じつつ油浴温度を120℃まで昇温した。トルエン1.6gにtert-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート（化薬アクゾ社製、カヤカルボン（登録商標）BIC-75）0.64gを溶解させた開始剤溶液をそこに加え、15分間攪拌しながら還流下で反応を行っ

た。その後、トルエン20gにtert-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート0.96gを溶解させた開始剤溶液を5時間一定速度で滴下供給し、105℃～120℃に保持しながら溶液重合を行った。開始剤の供給終了後、引き続き還流下で3時間熟成させた。得られた反応液中のスチレン残存率は4.2質量%、イソプロペニルオキサゾリン残存率は0.0質量%であった。その後、得られた反応溶液を冷却して、固形分40質量%となるようにトルエンを加え希釈した後、大量のn-ヘキサン中に攪拌しながらゆっくり加えた。沈殿した白色の固体を取り出し、90℃で約3日乾燥し溶媒を除去することで、イソプロペニルオキサゾリンとスチレンから重合形成された共重合体と、当該共重合体鎖がSEBSブロック共重合体鎖のエチレン・ブチレンブロックに結合したグラフト共重合体とを含む樹脂組成物1を得た。樹脂組成物1の重量平均分子量は16.2万、数平均分子量は3.5万であり、外観は白濁したラテックス状であった。重量平均分子量および数平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）を用い、ポリスチレン換算により求めた（以下の調製例における重量平均分子量と数平均分子量も同様にして求めた）。

[0085] なお、原料として用いたSEBSブロック共重合体のタフテック（登録商標）P1083は、スチレン-ブタジエンスチレンブロック共重合体の水添物であり、ヨウ素滴定法により求めた重合性二重結合当量は2.65mmol/gであった。これは、ブタジエンブロック中の式（1）の単位の割合が82質量%であることに相当し、タフテック（登録商標）P1083中のスチレン単位含有量は20質量%であることから、原料SEBSブロック共重合体の中の式（1）の単位の含有割合は66質量%であった。

[0086] （1-2）調製例2

調製例1において、イソプロペニルオキサゾリン（IPO）の使用量を48gから16gに変更し、スチレン（St）の使用量を112gから144gに変更した以外は、調製例1と同様の操作を行うことで、イソプロペニルオキサゾリンとスチレンから重合形成された共重合体と、当該共重合体鎖が

S E B S ブロック共重合体鎖のエチレン・ブチレンブロックに結合したグラフト共重合体とを含む樹脂組成物 2 を得た。得られた反応液中のスチレン残存率は 6.5 質量%、イソプロペニルオキサゾリン残存率は 0.0 質量%であった。樹脂組成物 2 の重量平均分子量は 15.5 万、数平均分子量は 3.8 万であり、外観は白濁したラテックス状であった。

[0087] (1-3) 調製例 3

攪拌装置、温度センサー、冷却管、窒素導入管を備えた 2 L の反応器に、S E B S ブロック共重合体として、タフテック（登録商標）P 1 0 8 3（旭化成社製）80 g とトルエン 240 g を仕込み、攪拌しながら 80℃ に加温して S E B S ブロック共重合体を溶解させた。そこにイソプロペニルオキサゾリン（I P O）4.8 g とスチレン（S t）155.2 g を加え、窒素を通じつつ油浴温度を 120℃ まで昇温した。トルエン 0.64 g に t e r t -ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート（化薬アクゾ社製、カヤカルボン（登録商標）B I C - 7 5）0.64 g を溶解させた開始剤溶液をそこに加え、15 分間攪拌しながら還流下で反応を行った。その後、トルエン 20 g に t e r t -ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート 0.96 g を溶解させた開始剤溶液を 5 時間一定速度で滴下供給し、105℃～120℃ に保持しながら溶液重合を行った。開始剤の供給終了後、引き続き還流下で 3 時間熟成させた。得られた反応液中のスチレン残存率は 10.1 質量%、イソプロペニルオキサゾリン残存率は 0.0 質量%であった。その後、得られた反応溶液を冷却して、固形分 40 質量%となるようにトルエンを加え希釈した後、大量の n -ヘキサン中に攪拌しながらゆっくり加えた。沈殿した白色の固体を取り出し、90℃ で約 3 日乾燥し溶媒を除去することで、イソプロペニルオキサゾリンとスチレンから重合形成された共重合体と、当該共重合体鎖が S E B S ブロック共重合体鎖のエチレン・ブチレンブロックに結合したグラフト共重合体とを含む樹脂組成物 3 を得た。樹脂組成物 3 の重量平均分子量は 17.5 万、数平均分子量は 6.3 万であり、外観は白濁したラテックス状であった。

## [0088] (1-4) 調製例4

攪拌装置、温度センサー、冷却管、窒素導入管を備えた2 Lの反応器に、SEBSブロック共重合体として、タフテック（登録商標）P1083（旭化成社製）40 gとトルエン120 gを仕込み、攪拌しながら80℃に加熱してSEBSブロック共重合体を溶解させた。そこにイソプロペニルオキサゾリン（IPO）2.4 gとスチレン（St）77.6 gを加え、窒素を通じつつ油浴温度を120℃に昇温した。トルエン1.6 gにtert-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート（化薬アクゾ社製、カヤカルボン（登録商標）BIC-75）0.32 gを溶解させた開始剤溶液をそこに加え、15分間攪拌しながら還流下で反応を行った。その後、トルエン50 gにイソプロペニルオキサゾリン（IPO）2.4 gとスチレン（St）77.6 gを溶解させた単量体成分の溶液を3時間一定速度で滴下供給し、トルエン20 gにtert-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート1.28 gを溶解させた開始剤溶液を5時間一定速度で滴下供給し、105℃～120℃に保持しながら溶液重合を行った。開始剤の供給終了後、引き続き還流下で3時間熟成させた。得られた反応液中のスチレン残存率は8.3質量%、イソプロペニルオキサゾリン残存率は0.0質量%であった。その後、得られた反応溶液を冷却して、固形分40質量%となるようにトルエンを加え希釈した後、大量のn-ヘキサン中に攪拌しながらゆっくり添加した。沈殿した白色の固体を取り出し、90℃で約3日乾燥し溶媒を除去することで、イソプロペニルオキサゾリンとスチレンから重合形成された共重合体と、当該共重合体鎖がSEBSブロック共重合体鎖のエチレン・ブチレンブロックに結合したグラフト共重合体とを含む樹脂組成物4を得た。樹脂組成物4の重量平均分子量は17.2万、数平均分子量は5.1万であり、外観は白濁したラテックス状であった。

## [0089] (1-5) 調製例5

攪拌装置、温度センサー、冷却管、窒素導入管を備えた2 Lの反応器に、トルエン306 g、イソプロペニルオキサゾリン（IPO）9.45 g、ス

チレン (St) 305.55 g を仕込み、窒素を通じつつ油浴温度を 120℃ まで昇温した。トルエン 9.0 g に *tert*-アミルパーオキシ 3, 5, 5-トリメチルヘキサノエート (化薬アクゾ社製、カヤエステル (登録商標) AN) 1.37 g を溶解させた開始剤溶液をそこに加え、15 分間攪拌しながら還流下で反応を行った。その後、トルエン 558 g にイソプロペニルオキサゾリン (IPO) 17.55 g とスチレン (St) 567.45 g を溶解させた液を 3 時間一定速度で滴下供給した後、トルエン 27 g に *tert*-アミルパーオキシ 3, 5, 5-トリメチルヘキサノエート 39.13 g を溶解させた開始剤溶液を 5 時間一定速度で滴下供給し、105℃~120℃ に保持しながら溶液重合を行った。開始剤の供給終了後、引き続き還流下 3 時間熟成させた。その後、得られた反応溶液を冷却して、大量の *n*-ヘキサン中に攪拌しながらゆっくり添加した。沈殿した白色の固体を取り出し、90℃ で約 3 日乾燥し溶媒を除去することで、イソプロペニルオキサゾリンとスチレンから重合形成された共重合体 (オキサゾリン基含有重合体) を含む樹脂組成物 5 を得た。樹脂組成物 5 の重量平均分子量は 20.0 万、数平均分子量は 10.0 万であり、外観は無色透明であった。

[0090] (1-6) 調製例 6

SEBS ブロック共重合体であるタフテック (登録商標) P1083 (旭化成社製) を樹脂組成物 6 として使用した。

[0091] (1-7) 調製例 7

4.8 g の樹脂組成物 5 と 1.2 g の樹脂組成物 6 を混合し (質量比 8 : 2 で配合)、樹脂組成物 7 とした。

[0092] (1-8) 調製例 8

攪拌装置、温度センサー、冷却管、窒素導入管を備えた 2 L の反応器に、SEBS ブロック共重合体として、タフテック (登録商標) P1083 (旭化成社製、スチレン単位含有量 20 質量%) 40 g とトルエン 350 g を仕込み、攪拌しながら 80℃ に加温して SEBS ブロック共重合体を溶解させた。そこにイソプロペニルオキサゾリン (IPO) 16 g とアクリロニトリ

ル (AN) 32 g とスチレン (St) 112 g を加え、窒素を通じつつ油浴温度を 120℃ まで昇温した。トルエン 1.6 g に *tert*-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート (化薬アクゾ社製、カヤカルボン (登録商標) BIC-75) 0.64 g を溶解させた開始剤溶液をそこに加え、15 分間攪拌しながら還流下で反応を行った。その後、トルエン 20 g に *tert*-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート 3.0 g を溶解させた開始剤溶液を 5 時間一定速度で滴下供給し、105℃～120℃ に保持しながら溶液重合を行った。開始剤の供給終了後、引き続き還流下で 3 時間熟成させた。得られた反応液中のスチレン残存率は 2.3 質量%、アクリロニトリル残存率は 0.2 %、イソプロペニルオキサゾリン残存率は 0.3 質量%であった。その後、得られた反応溶液を冷却して、大量の *n*-ヘキサン中に攪拌しながらゆっくり加えた。沈殿した白色の固体を取り出し、90℃ で約 3 日乾燥し溶媒を除去することで、イソプロペニルオキサゾリンとアクリロニトリルとスチレンから重合形成された共重合体と、当該共重合体鎖が SEBS ブロック共重合体鎖のエチレン・ブチレンブロックに結合したグラフト共重合体とを含む樹脂組成物 8 を得た。樹脂組成物 8 の重量平均分子量は 23.6 万、数平均分子量は 3.2 万であり、外観は白濁したラテックス状であった。

[0093] (1-9) 調製例 9

調製例 8 において、単量体成分であるイソプロペニルオキサゾリン (IPO) 16 g とアクリロニトリル (AN) 32 g とスチレン (St) 112 g を、イソプロペニルオキサゾリン (IPO) 16 g とメチルメタクリレート (MMA) 144 g に変更した以外は、調整例 8 と同様の操作を行うことで、イソプロペニルオキサゾリンとメチルメタクリレートから重合形成された共重合体と、当該共重合体鎖が SEBS ブロック共重合体鎖のエチレン・ブチレンブロックに結合したグラフト共重合体とを含む樹脂組成物 9 を得た。得られた反応液中のメチルメタクリレート残存率は 1.2 質量%、イソプロペニルオキサゾリン残存率は 0.1 質量%であった。樹脂組成物 9 の重量平

均分子量は28.2万、数平均分子量は3.0万であり、外観は無色透明であった。

[0094] (2) 溶解性実験

樹脂組成物1～4、7～9を、それぞれ濃度20質量%となるようにテトラヒドロフラン（THF）に加え、ペイントシェーカーで30分間混合した。混合後の樹脂THF溶液を観察したところ、樹脂組成物1～4、8は乳白色半透明の均一な液、樹脂組成物9は無色透明の均一な液となったのに対し、樹脂組成物7は2層に分離した。オキサゾリン基含有重合体鎖をSEBSブロック共重合体鎖にグラフトした共重合体を含む樹脂組成物1～4、8、9は、オキサゾリン基含有重合体とSEBSブロック共重合体をブレンドした樹脂組成物7とは異なり、均一性に優れるものとなった。

[0095] (3) 塗膜密着性試験

(3-1) 塗膜密着性試験1

容量50mLの蓋付きガラス容器（マルエム社製、スクリー管瓶）に樹脂組成物6gとTHF24gを入れて蓋を閉め、ペイントシェーカーで振とう攪拌して20質量%濃度の樹脂溶液を調製した。試験板に#60のバーコーターを使用して樹脂溶液を塗布し、80℃で30分間乾燥し、膜厚20μm程度の塗膜を形成した。塗膜に対して垂直にカッターナイフ（エヌティー社製、A-300）の刃を当てて切り込みを入れ、縦列、横列にそれぞれ1mm間隔で11本のクロスカット線を設けることによって1mm<sup>2</sup>の四角を100マス作製した。カットした100マスの塗膜に対し、試験板上の剥がれが生じなかった塗膜の数（塗膜の残存数）を計測し、次式により塗膜の残存率を求めた：塗膜の残存率（%）＝塗膜の残存数／100×100。塗膜の残存率が80%以上の場合を「A」と評価し、塗膜の残存率が20%以上80%未満の場合を「B」と評価し、塗膜の残存率が20%未満の場合を「C」と評価した。試験板としては、PP（ポリプロピレン）板（日本テストパネル社製、標準試験板PP、2.0mm×70mm×150mm）を用いた。

[0096] 樹脂組成物 1 ～ 5、8、9 について P P 板への密着性を調べた。樹脂組成物 1 ～ 5 の原料仕込み量の比、樹脂組成物の組成と平均分子量、密着性試験の結果を表 1 に、樹脂組成物 8、9 の原料仕込み量の比、樹脂組成物の組成と平均分子量、密着性試験の結果を表 2 に示す。樹脂組成物の組成は、重合体の量を基準とした各単位の含有割合を示しており、原料仕込み量と単量体残存率から算出した。樹脂組成物 1 ～ 4、8、9 は、S E B S 由来のポリマー鎖 (A) とオキサゾリン基含有単量体由来の単位を有するポリマー鎖 (B) とを有する共重合体を含有し、ポリマー鎖 (A) には式 (1) の単位としてエチレン単位 ( $-CH_2-CH_2-$ ) とブチレン単位 ( $-CH(CH_2-CH_3)-CH_2-$ ) が含まれていた。樹脂組成物 5 はポリマー鎖 (B) のみから構成された共重合体を含有するものであった。P P 板への密着性は、樹脂組成物 1 ～ 3、8 が A 評価となり、樹脂組成物 4、9 が B 評価となったのに対し、樹脂組成物 5 は C 評価となった。樹脂組成物 1 ～ 4、8、9 は P P 板への密着性に優れるものとなった。

[0097] [表1]

| 樹脂組成物 No.   |                |               | 1     | 2     | 3     | 4     | 5    |
|-------------|----------------|---------------|-------|-------|-------|-------|------|
| 仕<br>込<br>み | IPO/St 比       | 質量比           | 30/70 | 10/90 | 3/97  | 3/97  | 3/97 |
|             | SEBS/(IPO+St)比 | 質量比           | 20/80 | 20/80 | 33/67 | 20/80 | —    |
| 組<br>成      | 式(1)単位含有割合     | 質量%           | 13    | 14    | 23    | 14    | 0    |
|             | 式(2)単位含有割合     | 質量%           | 3     | 3     | 5     | 3     | 0    |
|             | IPO 単位含有割合     | 質量%           | 25    | 8     | 2     | 3     | 3    |
| Mw          |                | $\times 10^4$ | 16.2  | 15.5  | 17.5  | 17.2  | 20.0 |
| Mn          |                | $\times 10^4$ | 3.5   | 3.8   | 6.3   | 5.1   | 10.0 |
| 密着性 (PP 板)  |                | —             | A     | A     | A     | B     | C    |

[0098]

[表2]

|             | 樹脂組成物No.       |               | 8                      | 9                 |
|-------------|----------------|---------------|------------------------|-------------------|
| 仕<br>込<br>み | 単量体成分比         | 質量比           | St/AN/IPO<br>=70/20/10 | MMA/IPO<br>=90/10 |
|             | SEBS/(全単量体成分)比 | 質量比           | 20/80                  | 20/80             |
| 組<br>成      | 式(1)単位含有割合     | 質量%           | 14                     | 14                |
|             | 式(2)単位含有割合     | 質量%           | 3                      | 3                 |
|             | IPO単位含有割合      | 質量%           | 8                      | 8                 |
| Mw          |                | $\times 10^4$ | 23.6                   | 28.2              |
| Mn          |                | $\times 10^4$ | 3.2                    | 3.0               |
| 密着性(PP板)    |                | —             | A                      | B                 |

## [0099] (3-2) 塗膜密着性試験2

容量50mLの蓋付きガラス容器（マルエム社製、スクリー管瓶）に樹脂組成物6gとTHF（テトラヒドロフラン）24gを入れて蓋を閉め、ペイントシェーカーで振とう攪拌して20質量%濃度の樹脂溶液を調製した。試験板に#60のバーコーターを使用して樹脂溶液を塗布し、80℃で30分間乾燥し、膜厚20μm程度の塗膜を形成した。塗膜に対して垂直にカッターナイフ（エヌティー社製、A-300）の刃を当てて切り込みを入れ、縦列、横列にそれぞれ1mm間隔で11本のクロスカット線を設けることによって1mm<sup>2</sup>の四角を100マス作製した。カットした100マスの塗膜表面に、セロハン粘着テープ（ニチバン社製、セロテープ（登録商標）、幅15mm）を空気が入らないように貼り付け、しっかりと指でテープをこすりつけた。10秒放置した後、テープの端を持って塗膜面に直角に保ち、テープを瞬間的に引き剥がし、剥がれが生じなかった塗膜のマス目の数を計測し、次式により塗膜の残存率を求めた：塗膜の残存率（%）＝塗膜の残存数／100×100。塗膜の残存率が80%以上の場合を「A」と評価し、塗膜の残存率が20%以上80%未満の場合を「B」と評価し、塗膜の残存率が20%未満の場合を「C」と評価した。試験板としては、PBT（ポリブチレンテレフタレート）板（エンジニアリングテストサービス社製、PBT3

300、2.0mm×70mm×150mm)、PC(ポリカーボネート)板(日本テストパネル社製、標準試験板PC、2.0mm×70mm×150mm)、PMMA(ポリメチルメタクリレート)板(エンジニアリングテストサービス社製、PMMA、2.0mm×60mm×120mm)を用いた。

[0100] 樹脂組成物2～6、8、9についてPBT板、PC板、PMMA板への密着性を調べた。結果を表3および4に示す。樹脂組成物2～4、8、9はいずれの試験板に対してもA評価となったのに対し、樹脂組成物5、6はそれよりも密着性が劣り、樹脂組成物6ではいずれの試験板に対してもC評価となった。樹脂組成物2～4、8、9は、PBT板、PC板、PMMA板への密着性にも優れるものとなった。なお、樹脂組成物4よりもさらにSEBS由来のポリマー鎖(A)の含有割合が少ない共重合体を含む樹脂組成物、すなわちSEBS/(IPO+St)比におけるSEBSの数値が20未満の樹脂組成物であり、SEBS/(IPO+St)比が例えば15/85や10/90などの樹脂組成物でも、樹脂組成物6よりもPBT板、PC板、PMMA板に対する密着性の向上効果が得られた。また、樹脂組成物5よりもPBT板に対する密着性の向上効果が得られた。

[0101] [表3]

| 樹脂組成物 No.   |                |                  | 2     | 3     | 4     | 6     |
|-------------|----------------|------------------|-------|-------|-------|-------|
| 仕<br>込<br>み | IPO/St 比       | 質量比              | 10/90 | 3/97  | 3/97  | —     |
|             | SEBS/(IPO+St)比 | 質量比              | 20/80 | 33/67 | 20/80 | 100/0 |
| 組<br>成      | 式(1)単位含有割合     | 質量%              | 14    | 23    | 14    | 66    |
|             | 式(2)単位含有割合     | 質量%              | 3     | 5     | 3     | 14    |
|             | IPO 単位含有割合     | 質量%              | 8     | 2     | 3     | 0     |
| Mw          |                | ×10 <sup>4</sup> | 15.5  | 17.5  | 17.2  |       |
| Mn          |                | ×10 <sup>4</sup> | 3.8   | 6.3   | 5.1   |       |
| 密<br>着<br>性 | PBT 板          | —                | A     | A     | A     | C     |
|             | PC 板           | —                | A     | A     | A     | C     |
|             | PMMA 板         | —                | A     | A     | A     | C     |

[0102] [表4]

|             | 樹脂組成物No.       |               | 8                      | 9                 |
|-------------|----------------|---------------|------------------------|-------------------|
| 仕<br>込<br>み | 単量体成分比         | 質量比           | St/AN/IPO<br>=70/20/10 | MMA/IPO<br>=90/10 |
|             | SEBS/(全単量体成分)比 | 質量比           | 20/80                  | 20/80             |
| 組<br>成      | 式(1)単位含有割合     | 質量%           | 14                     | 14                |
|             | 式(2)単位含有割合     | 質量%           | 3                      | 3                 |
|             | IPO単位含有割合      | 質量%           | 8                      | 8                 |
| Mw          |                | $\times 10^4$ | 23.6                   | 28.2              |
| Mn          |                | $\times 10^4$ | 3.2                    | 3.0               |
| 密<br>着<br>性 | PBT板           | —             | A                      | A                 |
|             | PC板            | —             | A                      | A                 |
|             | PMMA板          | —             | A                      | A                 |

## [0103] (4) 相溶化性試験

ポリスチレン系樹脂（エポクロス（登録商標）RPS-1005；日本触媒社製）を濃度20質量%となるようにテトラヒドロフラン（THF）に加えた樹脂溶液Xと、オレフィン成分含有樹脂（タフテック（登録商標）P1083；旭化成社製）を濃度20質量%となるようにテトラヒドロフラン（THF）に加えた樹脂溶液Yとをそれぞれ5gずつ20mLのガラス製容器（スクリー管）に入れ、蓋で密封してシェーカー機（振とう機）で1分間混合し樹脂混合溶液（X+Y）を得た。該樹脂混合溶液（X+Y）は、攪拌混合後10分間放置したところ、2層に分離した。次に、樹脂混合溶液（X+Y）に前記樹脂組成物3を濃度20質量%となるようにテトラヒドロフラン（THF）に加えた樹脂溶液3を5g加えて、蓋で密封してシェーカー機（振とう機）で1分間混合した。該樹脂組成物3を加えた樹脂混合溶液（X+Y）は、攪拌混合後10分間放置しても2層に分離せず均一な溶液であった。つまり、オキサゾリン基含有重合体鎖をSEBSブロック共重合体鎖にグラフトした共重合体を含む樹脂組成物3が、前記ポリスチレン系樹脂と前記ポリスチレン系樹脂との混和性を改善し、相溶化剤として作用したといえる。

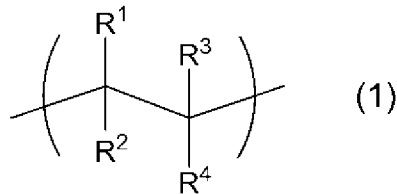
## 産業上の利用可能性

[0104] 本発明の共重合体（P）および樹脂組成物（Q）は、金属やプラスチック等の各種基材と樹脂コーティング層との密着性を高めるプライマーや接着剤、各種樹脂の相溶化剤、添加剤、改質剤として用いることができる。具体的には、光学フィルム、プリント配線板、タイヤコードなどのゴム補強用樹脂、各種エンジニアリングプラスチックとしてバンパー、インパネ、電装部品などの自動車・輸送機器関連内外装部品、家電、家具、雑貨などの日用品関連製品、建築・土木、文具・事務用品などの産業資材に使用される。

## 請求の範囲

〔請求項1〕 下記式（1）で表される単位を有するポリマー鎖（A）と、オキサゾリン基含有単量体由来の単位を有するポリマー鎖（B）とを有することを特徴とする共重合体（P）。

〔化1〕



〔式（1）中、 $R^1 \sim R^4$ はそれぞれ独立して、水素原子または炭素数1～20のアルキル基を表す。〕

〔請求項2〕 ポリマー鎖（B）がポリマー鎖（A）にグラフトしている請求項1に記載の共重合体（P）。

〔請求項3〕 前記ポリマー鎖（A）中、前記式（1）で表される単位の含有割合が50質量%以上である請求項1または2に記載の共重合体（P）。

〔請求項4〕 前記ポリマー鎖（B）中、オキサゾリン基含有単量体由来の単位の含有割合が1質量%以上50質量%以下である請求項1～3のいずれかに記載の共重合体（P）。

〔請求項5〕 前記ポリマー鎖（A）が、前記式（1）で表される単位を有する重合体ブロック（a1）と芳香族ビニル単量体由来の単位を有する重合体ブロック（a2）を有する請求項1～4のいずれかに記載の共重合体（P）。

〔請求項6〕 前記ポリマー鎖（B）がさらに芳香族ビニル単量体由来の単位および／または不飽和カルボン酸エステル由来の単位を有し、

前記ポリマー鎖（B）中、オキサゾリン基含有単量体由来の単位と、芳香族ビニル単量体由来の単位および／または不飽和カルボン酸エステル由来の単位との合計含有割合が80質量%以上である請求項1～5のいずれかに記載の共重合体（P）。

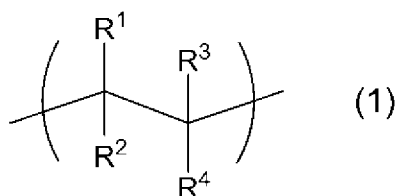
- [請求項7] 請求項1～6のいずれかに記載の共重合体（P）を含有することを特徴とする樹脂組成物（Q）。
- [請求項8] 請求項1～6のいずれかに記載の共重合体（P）とオキサゾリン基含有重合体とを含有することを特徴とする樹脂組成物（Q）。
- [請求項9] 前記共重合体（P）と前記オキサゾリン基含有重合体と前記式（1）で表される単位を有する重合体の合計100質量部に対して、前記ポリマー鎖（A）の含有割合が5質量部以上80質量部以下である請求項8に記載の樹脂組成物（Q）。
- [請求項10] 前記共重合体（P）と前記オキサゾリン基含有重合体と前記式（1）で表される単位を有する重合体の合計100質量部に対して、前記式（1）で表される単位の含有割合が3質量部以上80質量部以下である請求項8または9に記載の樹脂組成物（Q）。
- [請求項11] 前記共重合体（P）と前記オキサゾリン基含有重合体と前記式（1）で表される単位を有する重合体の合計100質量部に対して、前記オキサゾリン基含有単量体由来の単位の含有割合が0.5質量部以上49質量部以下である請求項8～10のいずれかに記載の樹脂組成物（Q）。
- [請求項12] 請求項1～6のいずれかに記載の共重合体（P）または請求項7～11のいずれかに記載の樹脂組成物（Q）を含有することを特徴とするプライマー。
- [請求項13] 請求項1～6のいずれかに記載の共重合体（P）または請求項7～11のいずれかに記載の樹脂組成物（Q）を含有する層が樹脂基材の表面に形成されている樹脂成形体。
- [請求項14] 前記樹脂基材が、炭化水素系樹脂、あるいはヘテロ原子含有基またはヘテロ原子含有結合を有する樹脂である請求項13に記載の樹脂成形体。
- [請求項15] 請求項1～6のいずれかに記載の共重合体（P）または請求項7～11のいずれかに記載の樹脂組成物（Q）を含有することを特徴とす

る相溶化剤。

[請求項16]

下記式（１）で表される単位を有する重合体の存在下、オキサゾリン基含有単量体を含む単量体成分を重合する工程を有することを特徴とする、下記式（１）で表される単位を有するポリマー鎖（Ａ）と、オキサゾリン基含有単量体由来の単位を有するポリマー鎖（Ｂ）とを有する共重合体（Ｐ）の製造方法。

[化2]



[式（１）中、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^4$ はそれぞれ独立して、水素原子または炭素数１～２０のアルキル基を表す。]

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/000675

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl. C08F287/00(2006.01)i, C09D5/00(2006.01)i, C08L39/04(2006.01)i, C08L51/00(2006.01)i, G09D123/00(2006.01)i, C09D139/04(2006.01)i, C09D151/06(2006.01)i, C09D153/00(2006.01)i  
FI: C08F287/00, C08L51/00, C08L39/04, C09D5/00 D, C09D123/00, C09D139/04, C09D151/06, C09D153/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl. C08F287/00, C08F255/00-255/10, C09D5/00, C08L39/04, C08L51/00, G09D123/00, C09D139/04, C09D151/06, C09D153/00

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 1971-2020  
Registered utility model specifications of Japan 1996-2020  
Published registered utility model applications of Japan 1994-2020

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

CAPLUS/REGISTRY (STN)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                                                                                                                                                                                                                           | Relevant to claim No.              |
|-----------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------|
| X<br>A    | WO 2007/066749 A1 (MITSUI CHEMICALS, INC.) 14 June 2007, claims, paragraphs [0107], [0112], [0115]                                                                                                                                                                                                                                                           | 1-4, 6-14, 16<br>5, 15             |
| X<br>A    | JP 3-220215 A (NIPPON PETROCHEMICALS CO., LTD.) 27 September 1991, claims, page 3, upper right column, line 12 to lower left column, line 12, page 6, upper left column, line 5 to lower left column, line 15, page 8, lower left column, line 1 to line 5, page 9, lower left column, line 14 to page 10, upper right column, line 4, examples 7, 8, 10, 11 | 1-4, 6-11, 13-16<br>5, 12          |
| X<br>A    | JP 2017-36354 A (FUJIMORI KOGYO CO., LTD.) 16 February 2017, claims, paragraphs [0067], [0078], examples 3, 7                                                                                                                                                                                                                                                | 1-4, 6-11, 13, 14<br>5, 12, 15, 16 |



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  
12.03.2020

Date of mailing of the international search report  
24.03.2020

Name and mailing address of the ISA/  
Japan Patent Office  
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,  
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/000675

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                                                                                              | Relevant to claim No.                |
|-----------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------|
| X<br>A    | JP 64-75548 A (TONEN SEKIYUKAGAKU KK, TOYOTA MOTOR CORP.) 22 March 1989, claims, page 4, upper left column, line 8 to lower left column, line 12, page 5, upper right column, line 4 to lower left column, line 1, examples 1-5 | 1-3, 7-11, 13, 14, 16<br>4-6, 12, 15 |
| X<br>A    | JP 3-505344 A (THE LUBRIZOL CORPORATION) 21 November 1991, claims 1, 2, 4, 6                                                                                                                                                    | 1-11, 16<br>12-15                    |
| A         | JP 2002-317076 A (JSR CORP.) 31 October 2002                                                                                                                                                                                    | 1-16                                 |

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2020/000675

| Patent Documents referred to in<br>the Report | Publication Date | Patent Family                                                                                                                                                                                                  | Publication Date |
|-----------------------------------------------|------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------|
| WO 2007/066749 A1                             | 14.06.2007       | US 2009/0280318 A1<br>claims, paragraphs<br>[0112], [0132], table<br>1<br>EP 1964865 A1<br>CN 101326209 A<br>KR 10-2008-0080622 A<br>TW 200734360 A                                                            |                  |
| JP 3-220215 A                                 | 27.09.1991       | JP 3-220214 A<br>EP 412832 A2<br>claims, page 3, line 9<br>to line 23, page 5,<br>line 14 to line 46,<br>page 7, line 17 to<br>line 19, page 8, line<br>4 to line 37, examples<br>8-11<br>KR 10-1991-0004689 A |                  |
| JP 2017-36354 A                               | 16.02.2017       | US 2019/0001634 A1<br>claims, paragraphs<br>[0108], [0124],<br>examples 3, 7<br>WO 2017/037525 A1<br>EP 3333234 A1                                                                                             |                  |
| JP 64-75548 A                                 | 22.03.1989       | US 5021504 A<br>claims, column 10,<br>line 22 to column 11,<br>line 11, column 15,<br>line 41 to line 55<br>EP 308179 A2<br>EP 545902 A2                                                                       |                  |
| JP 3-505344 A                                 | 21.11.1991       | US 5298565 A<br>claims 1, 2, 4, 6<br>WO 1990/012046 A1<br>AU 5187090 A<br>AU 624227 B<br>CA 2029902 A<br>CA 2029902 A1                                                                                         |                  |
| JP 2002-317076 A                              | 31.10.2002       | (Family: none)                                                                                                                                                                                                 |                  |

| <p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））</p> <p>C08F 287/00(2006.01)i; C09D 5/00(2006.01)i; C08L 39/04(2006.01)i; C08L 51/00(2006.01)i;<br/>C09D 123/00(2006.01)i; C09D 139/04(2006.01)i; C09D 151/06(2006.01)i; C09D 153/00(2006.01)i<br/>FI: C08F287/00; C08L51/00; C08L39/04; C09D5/00 D; C09D123/00; C09D139/04; C09D151/06; C09D153/00</p>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           |                                                                                                                                                             |                                                                       |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------|-----------------|-----------------------------------------------------------------|---------------------------------|-------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------|-------------------|---------------------------|---|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------|---|--|-------|---|----------------------------------------------------------------------------------|-------------------|---|--|---------------|
| <p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））</p> <p>C08F287/00; C08F255/00-255/10; C09D5/00; C08L39/04; C08L51/00; C09D123/00; C09D139/04; C09D151/06;<br/>C09D153/00</p> <p>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</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2020年</td> </tr> </table> <p>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）</p> <p>CAplus/REGISTRY (STN)</p>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              |                                                                                                                                                             |                                                                       | 日本国実用新案公報       | 1922-1996年                                                      | 日本国公開実用新案公報                     | 1971-2020年                                      | 日本国実用新案登録公報                                                                       | 1996-2020年                                                          | 日本国登録実用新案公報                                                   | 1994-2020年        |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| 日本国実用新案公報                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       | 1922-1996年                                                                                                                                                  |                                                                       |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| 日本国公開実用新案公報                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     | 1971-2020年                                                                                                                                                  |                                                                       |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| 日本国実用新案登録公報                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     | 1996-2020年                                                                                                                                                  |                                                                       |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| 日本国登録実用新案公報                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     | 1994-2020年                                                                                                                                                  |                                                                       |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| <p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の<br/>カテゴリー*</th> <th>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</th> <th>関連する<br/>請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>WO 2007/066749 A1（三井化学株式会社）14.06.2007（2007-06-14）<br/>特許請求の範囲，[0107]，[0112]，[0115]</td> <td>1-4, 6-14, 16</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td></td> <td>5, 15</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>JP 3-220215 A（日本石油化学株式会社）27.09.1991（1991-09-27）<br/>特許請求の範囲，第3頁右上欄第12行－左下欄第12行，第6頁左上欄第5行－左下<br/>欄第15行，第8頁左下欄第1行－第5行，第9頁左下欄第14行－第10頁右上欄第4<br/>行，実施例7, 8, 10, 11</td> <td>1-4, 6-11, 13-16</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td></td> <td>5, 12</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>JP 2017-36354 A（藤森工業株式会社）16.02.2017（2017-02-16）<br/>特許請求の範囲，[0067]，[0078]，実施例3, 7</td> <td>1-4, 6-11, 13, 14</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td></td> <td>5, 12, 15, 16</td> </tr> </tbody> </table> |                                                                                                                                                             |                                                                       | 引用文献の<br>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<br>請求項の番号                  | X                                               | WO 2007/066749 A1（三井化学株式会社）14.06.2007（2007-06-14）<br>特許請求の範囲，[0107]，[0112]，[0115] | 1-4, 6-14, 16                                                       | A                                                             |                   | 5, 15                     | X | JP 3-220215 A（日本石油化学株式会社）27.09.1991（1991-09-27）<br>特許請求の範囲，第3頁右上欄第12行－左下欄第12行，第6頁左上欄第5行－左下<br>欄第15行，第8頁左下欄第1行－第5行，第9頁左下欄第14行－第10頁右上欄第4<br>行，実施例7, 8, 10, 11 | 1-4, 6-11, 13-16 | A |  | 5, 12 | X | JP 2017-36354 A（藤森工業株式会社）16.02.2017（2017-02-16）<br>特許請求の範囲，[0067]，[0078]，実施例3, 7 | 1-4, 6-11, 13, 14 | A |  | 5, 12, 15, 16 |
| 引用文献の<br>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<br>請求項の番号                                                        |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| X                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                               | WO 2007/066749 A1（三井化学株式会社）14.06.2007（2007-06-14）<br>特許請求の範囲，[0107]，[0112]，[0115]                                                                           | 1-4, 6-14, 16                                                         |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                               |                                                                                                                                                             | 5, 15                                                                 |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| X                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                               | JP 3-220215 A（日本石油化学株式会社）27.09.1991（1991-09-27）<br>特許請求の範囲，第3頁右上欄第12行－左下欄第12行，第6頁左上欄第5行－左下<br>欄第15行，第8頁左下欄第1行－第5行，第9頁左下欄第14行－第10頁右上欄第4<br>行，実施例7, 8, 10, 11 | 1-4, 6-11, 13-16                                                      |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                               |                                                                                                                                                             | 5, 12                                                                 |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| X                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                               | JP 2017-36354 A（藤森工業株式会社）16.02.2017（2017-02-16）<br>特許請求の範囲，[0067]，[0078]，実施例3, 7                                                                            | 1-4, 6-11, 13, 14                                                     |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                               |                                                                                                                                                             | 5, 12, 15, 16                                                         |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| <p><input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    |                                                                                                                                                             |                                                                       |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| <table border="0"> <tr> <td>* 引用文献のカテゴリー</td> <td>"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</td> </tr> <tr> <td>"A" 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの</td> <td>"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</td> </tr> <tr> <td>"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</td> <td>"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</td> </tr> <tr> <td>"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）</td> <td>"&amp;" 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>"O" 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td></td> </tr> <tr> <td>"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</td> <td></td> </tr> </table>                                                                                                                                                                                                                      |                                                                                                                                                             |                                                                       | * 引用文献のカテゴリー    | "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 | "A" 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの | "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 | "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                                            | "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 | "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） | "&" 同一パテントファミリー文献 | "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                                                                                                                    |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| * 引用文献のカテゴリー                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    | "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                                                                                             |                                                                       |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| "A" 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                 | "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                                                                                                             |                                                                       |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| "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                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          | "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                                                                                         |                                                                       |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| "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）                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   | "&" 同一パテントファミリー文献                                                                                                                                           |                                                                       |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| "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                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                        |                                                                                                                                                             |                                                                       |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| 国際調査を完了した日                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                      |                                                                                                                                                             | 国際調査報告の発送日                                                            |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| 12.03.2020                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                      |                                                                                                                                                             | 24.03.2020                                                            |                 |                                                                 |                                 |                                                 |                                                                                   |                                                                     |                                                               |                   |                           |   |                                                                                                                                                             |                  |   |  |       |   |                                                                                  |                   |   |  |               |
| 名称及びあて先<br>日本国特許庁(ISA/JP)<br>〒100-8915<br>日本国<br>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）<br><br>内田 靖恵 4J 9553<br><br>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<br>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<br>請求項の番号        |
| X               | JP 64-75548 A (東燃石油化学株式会社, トヨタ自動車株式会社) 22.03.1989<br>(1989 - 03 - 22)<br>特許請求の範囲, 第4頁左上欄第8行ー左下欄第12行, 第5頁右上欄第4行ー左下欄<br>第1行、実施例1-5 | 1-3, 7-11, 13, 14, 16 |
| A               |                                                                                                                                  | 4-6, 12, 15           |
| X               | JP 3-505344 A (ザ ルブリゾル コーポレイション) 21.11.1991 (1991 - 11 - 21)<br>請求項1, 2, 4, 6                                                    | 1-11, 16              |
| A               |                                                                                                                                  | 12-15                 |
| A               | JP 2002-317076 A (ジェイエスアール株式会社) 31.10.2002 (2002 - 10 - 31)                                                                      | 1-16                  |

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/JP2020/000675

| 引用文献 |             |    | 公表日        | パテントファミリー文献                                                                                                                                    | 公表日 |
|------|-------------|----|------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| WO   | 2007/066749 | A1 | 14.06.2007 | US 2009/0280318 A1<br>特許請求の範囲, [0112],<br>[0132], TABLE 1<br>EP 1964865 A1<br>CN 101326209 A<br>KR 10-2008-0080622 A<br>TW 200734360 A         |     |
| JP   | 3-220215    | A  | 27.09.1991 | JP 3-220214 A<br>EP 412832 A2<br>特許請求の範囲, 第3頁第9<br>行-第23行, 第5頁第14行-<br>第46行, 第7頁第17行-第19<br>行, 第8頁第4行-第37行,<br>実施例8-11<br>KR 10-1991-0004689 A |     |
| JP   | 2017-36354  | A  | 16.02.2017 | US 2019/0001634 A1<br>特許請求の範囲, [0108],<br>[0124], 実施例3, 7<br>WO 2017/037525 A1<br>EP 3333234 A1                                                |     |
| JP   | 64-75548    | A  | 22.03.1989 | US 5021504 A<br>特許請求の範囲, 第10欄第<br>22行-第11欄第11行, 第15<br>欄第41行-第55行<br>EP 308179 A2<br>EP 545902 A2                                              |     |
| JP   | 3-505344    | A  | 21.11.1991 | US 5298565 A<br>請求項1, 2, 4, 6<br>WO 1990/012046 A1<br>AU 5187090 A<br>AU 624227 B<br>CA 2029902 A<br>CA 2029902 A1                             |     |
| JP   | 2002-317076 | A  | 31.10.2002 | (ファミリーなし)                                                                                                                                      |     |