(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2023年12月28日(28.12.2023)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2023/248879 A1

(51) 国際特許分類:
C08L 67/02 (2006.01) *C08K 5/29* (2006.01)
C08K 3/013 (2018.01) *C08K 9/04* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2023/022008

(22) 国際出願日： 2023年6月14日(14.06.2023)

(25) 国際出願の言語： 日本語

(26) 国際公開の言語： 日本語

(30) 優先権データ：
特願 2022-101226 2022年6月23日(23.06.2022) JP

(71) 出願人: ポリプラスチックス株式会社 (**POLYPLASTICS CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒1088280 東京都港区港南二丁目１８番１号 Tokyo (JP).

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

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

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

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

添付公開書類：
一 国際調査報告（条約第21条(3)）

WO 2023/248879 A1

(54) **Title:** POLYALKYLENE TEREPHTHALATE RESIN COMPOSITION AND RESIN MOLDED ARTICLE

(54) 発明の名称： ポリアルキレンテレフタレート樹脂組成物及び樹脂成形品

(57) **Abstract:** A polyalkylene terephthalate resin composition containing a polyalkylene terephthalate resin (A), a carbodiimide compound (B), and an inorganic filler (C) that has been surface treated by a sizing agent containing an epoxy resin and a polymer that contains a structural unit derived from a carboxylic acid and/or a carboxylic anhydride, in which the polyalkylene terephthalate resin composition contains 0.4-10 mass parts of the carbodiimide compound (B) per 100 mass parts of the polyalkylene terephthalate resin (A).

(57) 要約：ポリアルキレンテレフタレート樹脂（Ａ）、カルボジイミド化合物（Ｂ）、及びカルボン酸及び／又はカルボン酸無水物を由来とする構成単位を含む重合物とエポキシ樹脂とを含有する集束剤で表面処理された無機充填材（Ｃ）を含み、ポリアルキレンテレフタレート樹脂（Ａ）１００質量部に対し、カルボジイミド化合物（Ｂ）を０．４～１０質量部含有する、ポリアルキレンテレフタレート樹脂組成物である。

明　細　書

発明の名称 ：

ポリアルキレンテレフタレート樹脂組成物及び樹脂成形品

技術分野

[0001] 本発明は、ポリアルキレンテレフタレート樹脂組成物及び樹脂成形品に関する。

背景技術

[0002] ポリエステル樹脂（ポリアルキレンテレフタレート樹脂）は、機械特性、電気特性、耐熱性、成形性に優れている。特にガラス繊維などの無機充填材を加えることで機械特性や耐熱性が向上することから、自動車用部品、電気電子機器用部品、精密機器用部品等、様々な分野に幅広く使用されている。一方、ポリエステル樹脂は分子中にエステル基を有しているため、高温多湿な環境下では加水分解が起こりやすく、環境変化の大きい自動車用部品においては、常に耐加水分解性の向上が望まれている。

[0003] ポリエステル樹脂自体の耐加水分解性を向上させるに当たり、末端カルボキシル基量を低減するためにエポキシ樹脂又はカルボジイミド化合物を添加することが一般的に知られている（特許文献１～２参照）。

[0004] 特許文献１には、末端カルボキシル基量が３０ｍｅｑ／ｋｇ以下であるポリブチレンテレフタレート樹脂とカルボジイミド化合物、繊維状充填剤、エラストマーからなる樹脂組成物についてポリブチレンテレフタレート樹脂の末端カルボキシル基量を１とした場合、カルボジイミド官能基量が０．３～１．５当量を配合することで耐ヒートショック性及び耐加水分解性が改善されることが示されている。

[0005] 特許文献２には、末端カルボキシル基濃度が０．１μｅｑ／ｇ以上６μｅｑ／ｇ未満、固有粘度が０．７５～１ｄＬ／ｇのポリブチレンテレフタレートにエポキシ化合物を配合することで耐加水分解性が改善されることが示されている。

[0006] 一方、ガラス繊維自体も集束剤にエポキシ樹脂を用いることで耐加水分解性を改善できることが知られている（特許文献３～４参照）。特許文献３には、不飽和カルボン酸及び／又は不飽和カルボン酸の無水物と不飽和単量体との共重合物及びエポキシ樹脂を必須成分とする集束剤で表面処理されたガラス繊維を用いることが示されている。また特許文献４には、ノボラック型エポキシ樹脂を含有する表面処理ガラス繊維が長期耐熱性に優れることが示されている。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：国際公開第２００９／１５０８３１号

特許文献2：特開２００４－２７７７１８号公報

特許文献3：特開２００３－２０１６７１号公報

特許文献4：特開２０１５－１２９０７３号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] 上記の通り、ポリエステル樹脂の耐加水分解性を改善するための提案がなされているものの、未だ十分ではなく更なる向上が期待されている。

[0009] 本発明は、上記従来の問題点に鑑みなされたものであり、その課題は、耐加水分解性が従来よりも大幅に向上した、無機充填材で強化されたポリアルキレンテレフタレート樹脂組成物及び樹脂成形品を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0010] 本発明者は、前記課題を解決するために鋭意検討した結果、カルボン酸等を由来とする構成単位を含む重合物とエポキシ樹脂とを含有する集束剤により表面処理されたガラス繊維を含むポリアルキレンテレフタレート樹脂にカルボジイミド化合物を添加したものを用いることで従来に比べ、耐加水分解性が大幅に向上されることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0011] 前記課題を解決する本発明の一態様は以下の通りである。

（１）ポリアルキレンテレフタレート樹脂（Ａ）、

カルボジイミド化合物（Ｂ）、及び

カルボン酸及び／又はカルボン酸無水物を由来とする構成単位を含む重合物とエポキシ樹脂とを含有する集束剤で表面処理された無機充填材（Ｃ）を含み、

前記ポリアルキレンテレフタレート樹脂（Ａ）１００質量部に対し、前記カルボジイミド化合物（Ｂ）を０．４～１０質量部含有する、ポリアルキレンテレフタレート樹脂組成物。

[0012] （２）前記カルボジイミド化合物（Ｂ）が芳香族カルボジイミドである、前記（１）に記載のポリアルキレンテレフタレート樹脂組成物。

[0013] （３）前記無機充填材（Ｃ）が繊維状であり、平均繊維径が３～５０μｍであり、前記無機充填材（Ｃ）１００質量部に対する前記集束剤の含有量が０．４～３．０質量部である、前記（１）又は（２）に記載のポリアルキレンテレフタレート樹脂組成物。

[0014] （４）前記（１）又は（２）に記載のポリアルキレンテレフタレート樹脂組成物を成形してなる樹脂成形品。

発明の効果

[0015] 本発明によれば、耐加水分解性が従来よりも大幅に向上した、無機充填材で強化されたポリアルキレンテレフタレート樹脂組成物及び樹脂成形品を提供することができる。

発明を実施するための形態

[0016] ＜ポリアルキレンテレフタレート樹脂組成物＞

本実施形態のポリアルキレンテレフタレート樹脂組成物は、ポリアルキレンテレフタレート樹脂（以下、「ＰＡＴ樹脂」とも呼ぶ。）（Ａ）、カルボジイミド化合物（Ｂ）、及びカルボン酸及び／又はカルボン酸無水物を由来とする構成単位を含む重合物とエポキシ樹脂とを含有する集束剤で表面処理された無機充填材（Ｃ）を含み、更に、ポリアルキレンテレフタレート樹脂（Ａ）１００質量部に対し、カルボジイミド化合物（Ｂ）を０．４～１０質

量部含有する。

[0017] 本実施形態のＰＡＴ樹脂組成物は、カルボジイミド化合物（Ｂ）と、カルボン酸及び／又はカルボン酸無水物を由来とする構成単位を含む重合物とエポキシ樹脂とを含有する集束剤で表面処理された無機充填材（Ｃ）とにより、耐加水分解性が従来よりも大幅に向上する。すなわち、カルボジイミド化合物（Ｂ）と、無機充填材（Ｃ）とが相まって、耐加水分解性の向上に寄与する。

以下に、本実施形態のポリアルキレンテレフタレート樹脂組成物の各成分について説明する。

[0018] ［ポリアルキレンテレフタレート樹脂（Ａ）］

ＰＡＴ樹脂（Ａ）は、ジカルボン酸化合物及び／又はそのエステル形成性誘導体を主成分とするジカルボン酸成分と、ジオール化合物及び／又はそのエステル形成性誘導体を主成分とするジオール成分との反応により得られる熱可塑性ポリエステル樹脂のうち、ジカルボン酸成分としてテレフタル酸及び／又はそのエステル形成性誘導体を主成分とし、ジオール成分としてアルキレングリコール及び／又はそのエステル形成性誘導体を主成分とするものである。

ＰＡＴ樹脂としては、主成分以外のジカルボン酸成分やジオール成分、更に他の共重合可能なモノマーとして、オキシカルボン酸成分、ラクトン成分等（以下、共重合性モノマーという場合がある）を組み合わせたコポリエステルも使用することができる。

[0019] 主成分以外のジカルボン酸成分としては、例えば、脂肪族ジカルボン酸（例えば、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ウンデカンジカルボン酸、ドテカンジカルボン酸、ヘキサデカンジカルボン酸、ダイマー酸などのＣ４－４０程度のジカルボン酸、好ましくはＣ４－１４程度のジカルボン酸）、脂環族ジカルボン酸（例えば、ヘキサヒドロフタル酸、ヘキサヒドロイソフタル酸、ヘキサヒドロテレフタル酸、ハイミック酸などのＣ４－４０程度のジカルボン酸、好まし

くはＣ８－１２程度のジカルボン酸）、テレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸（例えば、フタル酸、イソフタル酸、メチルイソフタル酸、メチルテレフタル酸、２，６－ナフタレンジカルボン酸などのナフタレンジカルボン酸、４，４’－ビフェニルジカルボン酸、４，４’－ジフェノキシエーテルジカルボン酸、４，４’－ジオキシ安息香酸、４，４’－ジフェニルメタンジカルボン酸、４，４’－ジフェニルケトンジカルボン酸などのＣ８－１６程度のジカルボン酸）、又はこれらの誘導体（例えば、低級アルキルエステル、アリールエステル、酸無水物などのエステル形成可能な誘導体）などが挙げられる。テレフタル酸と組み合わせて用いるのに好ましいジカルボン酸成分としては、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸などが挙げられ、これらを二種以上組み合わせて用いることもできる。

ただし、共重合性モノマーとしてのジカルボン酸成分全体の好ましくは５０モル％以上、更に好ましくは８０モル％以上、特に好ましくは９０モル％以上が芳香族ジカルボン酸化合物であるとよい。更に必要に応じて、トリメリット酸、ピロメリット酸などの多価カルボン酸又はそのエステル形成性誘導体（アルコールエステル等）等を併用してもよい。このような多官能性化合物を併用すると、分岐状のＰＡＴ樹脂を得ることもできる。

[0020] 主成分以外のジオール成分としては、脂肪族アルカンジオール（例えば、エチレングリコール、トリメチレングリコール、プロピレングリコール、１，４－ブタンジオール、１，３－ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、ヘキサンジオール、オクタンジオール、デカンジオールなどのＣ２－１２程度の脂肪族ジオール、好ましくはＣ２－１０程度の脂肪族ジオールのうち、主成分として使用するもの以外の脂肪族アルカンジオール）、ポリオキシアルキレングリコール（Ｃ２－４程度のオキシアルキレン単位を複数有するグリコール、例えば、ジエチレングリコール、ジプロピレングリコール、ジテトラメチレングリコール、トリエチレングリコール、トリプロピレングリコール、ポリテトラメチレングリコールなど）、脂環族ジオール（例えば、１，４－シクロヘキサンジオール、１，４－シクロヘキサンジメタノール、

水素化ビスフェノールＡなど）などが挙げられる。また、ハイドロキノン、レゾルシノール、ビスフェノール、２，２－ビス（４－ヒドロキシフェニル）プロパン、２，２－ビス－（４－（２－ヒドロキシエトキシ）フェニル）プロパン、キシリレングリコールなどの芳香族ジオールを併用してもよい。ただし、共重合性モノマーとしてのジオール成分全体の好ましくは５０モル％以上、更に好ましくは８０モル％以上、特に好ましくは９０モル％以上がアルキレングリコールであるとよい。更に必要に応じて、グリセリン、トリメチロールプロパン、トリメチロールエタン、ペンタエリスリトールなどのポリオール又はそのエステル形成性誘導体を併用してもよい。このような多官能性化合物を併用すると、分岐状の熱可塑性ＰＡＴ樹脂を得ることもできる。

[0021] オキシカルボン酸（又はオキシカルボン酸成分又はオキシカルボン酸類）には、例えば、オキシ安息香酸、オキシナフトエ酸、ヒドロキシフェニル酢酸、グリコール酸、オキシカプロン酸等のオキシカルボン酸又はこれらの誘導体等が含まれる。ラクトンには、プロピオラクトン、ブチロラクトン、バレロラクトン、カプロラクトン（例えば、ε－カプロラクトン等）等のＣ３－１２ラクトン等が含まれる。

[0022] なお、コポリエステルにおいて、共重合性モノマーの割合は、例えば、０．０１モル％以上３０モル％以下の範囲から選択でき、通常、１モル％以上２５モル％以下、好ましくは３モル％以上２０モル％以下、更に好ましくは５モル％以上１５モル％以下である。また、ホモポリエステルとコポリエステルとを組み合わせて使用する場合、ホモポリエステルとコポリエステルとの割合は、共重合性モノマーの割合が、全単量体に対して０．０１モル％以上３０モル％以下（好ましくは１モル％以上２５モル％以下、更に好ましくは３モル％以上２０モル％以下、特に好ましくは５モル％以上１５モル％以下）となる範囲であり、通常、前者／後者＝９９／１～１／９９（質量比）、好ましくは９５／５～５／９５（質量比）、更に好ましくは９０／１０～１０／９０（質量比）の範囲から選択できる。

[0023] 好ましいＰＡＴ樹脂には、アルキレンテレフタレート単位を主成分（例えば、５０～１００モル％、好ましくは７５～１００モル％）とするホモポリエステル又はコポリエステルが挙げられる。例えば、ポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）、ポリトリメチレンテレフタレート（ＰＴＴ）、ポリブチレンテレフタレート（ＰＢＴ）などのポリＣ２－４アルキレンテレフタレートなどのホモポリエステル；アルキレンテレフタレート単位を主成分として共重合成分にアルキレンイソフタレート単位を含有するコポリエステル；アルキレンテレフタレート単位を主成分として共重合成分にアルキレンナフタレート単位を含有するコポリエステル；等が含まれ、これらを１種単独で又は２種以上組み合わせて使用できる。

[0024] ＰＡＴ樹脂の末端カルボキシル基量は、本実施形態のＰＡＴ樹脂組成物の効果を阻害しない限り特に限定されない。ＰＡＴ樹脂の末端カルボキシル基量は、３０ｍｅｑ／ｋｇ以下が好ましく、２５ｍｅｑ／ｋｇ以下がより好ましい。ＰＡＴ樹脂の末端カルボキシル基量が多過ぎると、耐加水分解性を損なう可能性がある。また、集束剤で表面処理された無機充填材との密着性を確保するため、ＰＡＴ樹脂の末端カルボキシル基量は３ｍｅｑ／ｋｇ以上が好ましく、５ｍｅｑ／ｋｇ以上がより好ましい。

[0025] ＰＡＴ樹脂の固有粘度（ＩＶ）は本実施形態のＰＡＴ樹脂組成物の効果を阻害しない範囲で特に制限されない。ＰＡＴ樹脂の固有粘度は、成形性の観点から０．６～１．３ｄＬ／ｇであるのが好ましく、０．７～１．２ｄＬ／ｇであるのがより好ましい。ＰＡＴ樹脂の固有粘度が０．７～１．０ｄＬ／ｇである場合には、得られるＰＡＴ樹脂組成物が特に成形性に優れたものとなる。また、異なる固有粘度を有するＰＡＴ樹脂をブレンドして、固有粘度を調整することもできる。例えば、固有粘度０．６９ｄＬ／ｇのＰＡＴ樹脂と固有粘度０．８８ｄＬ／ｇのＰＡＴ樹脂とをブレンドすることにより、固有粘度０．７８ｄＬ／ｇのＰＡＴ樹脂を調製することができる。ＰＡＴ樹脂の固有粘度（ＩＶ）は、ｏ－クロロフェノール中で温度３５℃の条件で測定した値とする。

[0026] なお、ＰＡＴ樹脂は、市販品を使用してもよく、ジカルボン酸成分又はその反応性誘導体と、ジオール成分又はその反応性誘導体と、必要により共重合可能なモノマーとを、慣用の方法、例えばエステル交換、直接エステル化法等により共重合（重縮合）することにより製造したものを使用してもよい。

[0027] ［カルボジイミド化合物（Ｂ）］

本実施形態のＰＡＴ樹脂組成物において、カルボジイミド化合物（Ｂ）は、耐加水分解性の向上の役割を果たす。

カルボジイミド化合物は、分子中にカルボジイミド基（－Ｎ＝Ｃ＝Ｎ－）を有する化合物である。カルボジイミド化合物としては、主鎖が脂肪族の脂肪族カルボジイミド化合物、主鎖が脂環族の脂環族カルボジイミド化合物、主鎖が芳香族の芳香族カルボジイミド化合物を挙げることができ、これらから選択される１以上を用いることができる。中でも、カルボジイミド化合物の耐熱性や耐湿熱性の点で、芳香族カルボジイミド化合物を含有することが好ましい。

[0028] 脂肪族カルボジイミド化合物としては、ジイソプロピルカルボジイミド、ジオクチルデシルカルボジイミド等を挙げることができる。脂環族カルボジイミド化合物としては、ジシクロヘキシルカルボジイミド等を挙げることができる。これらは２種以上を併用することもできる。

[0029] 芳香族カルボジイミド化合物としては、ジフェニルカルボジイミド、ジ－２，６－ジメチルフェニルカルボジイミド、Ｎ－トリイル－Ｎ’－フェニルカルボジイミド、ジ－ｐ－ニトロフェニルカルボジイミド、ジ－ｐ－アミノフェニルカルボジイミド、ジ－ｐ－ヒドロキシフェニルカルボジイミド、ジ－ｐ－クロルフェニルカルボジイミド、ジ－ｐ－メトキシフェニルカルボジイミド、ジ－３，４－ジクロルフェニルカルボジイミド、ジ－２，５－ジクロルフェニルカルボジイミド、ジ－ｏ－クロルフェニルカルボジイミド、ｐ－フェニレン－ビス－ジ－ｏ－トリイルカルボジイミド、ｐ－フェニレン－ビス－ジシクロヘキシルカルボジイミド、ｐ－フェニレン－ビス－ジ－ｐ－

クロルフェニルカルボジイミド、エチレンービスージフェニルカルボジイミド等のモノ又はジカルボジイミド化合物；及びポリ（４，４’－ジフェニルメタンカルボジイミド）、ポリ（３，５’－ジメチル－４，４’－ビフェニルメタンカルボジイミド）、ポリ（ｐ－フェニレンカルボジイミド）、ポリ（ｍ－フェニレンカルボジイミド）、ポリ（３，５’－ジメチル－４，４’－ジフェニルメタンカルボジイミド）、ポリ（ナフチレンカルボジイミド）、ポリ（１，３－ジイソプロピルフェニレンカルボジイミド）、ポリ（１－メチル－３，５－ジイソプロピルフェニレンカルボジイミド）、ポリ（１，３，５－トリエチルフェニレンカルボジイミド）およびポリ（トリイソプロピルフェニレンカルボジイミド）等のポリカルボジイミド化合物：を挙げることができる。これらは２種以上を併用することもできる。

[0030] カルボジイミド化合物（Ｂ）の数平均分子量は、３０００以上であることが好ましい。数平均分子量を上記範囲にすることで、熱可塑性樹脂の溶融混練時や成形時に滞留時間が長い場合において、ガスや臭気が発生することを防ぐことができる。

[0031] カルボジイミド化合物（Ｂ）の含有量は、ＰＡＴ樹脂（Ａ）１００質量部に対して、０．４～１０質量部含有する。当該含有量が０．４質量部未満であると、耐加水分解性の向上を図ることができず、１０質量部を超えると、流動性の低下やコンパウンド時（樹脂組成物の製造時）や成形加工時にゲル成分や炭化物の生成が発生しやすくなる。当該カルボジイミド化合物（Ｂ）の含有量は、０．５～７質量部が好ましく、０．５～３質量部がより好ましい。

[0032] ［無機充填材（Ｃ）］

本実施形態のＰＡＴ樹脂組成物においては、無機充填材（Ｃ）は、カルボン酸及び／又はカルボン酸無水物を由来とする構成単位を含む重合物とエポキシ樹脂とを含有する集束剤で表面処理されている。

無機充填材（Ｃ）を含有することにより、成形品の機械強度の向上の効果が得られ、更に、所定の集束剤による表面処理により耐加水分解性に優れる

。

[0033] 無機充填材（Ｃ）の形状は特に限定されず、繊維状無機充填材及び非繊維状無機充填材のいずれも用いることができる。

[0034] （繊維状無機充填材）

繊維状無機充填材としては、ガラス繊維、炭素繊維、シリカ繊維、シリカ・アルミナ繊維、ジルコニア繊維、窒化硼素繊維、窒化珪素繊維、硼素繊維、チタン酸カリウム繊維、金属繊維（例えば、ステンレス、アルミニウム、チタン、銅、真鍮等）等が挙げられる。

代表的な繊維状無機充填材としては、ガラス繊維およびカーボン繊維が挙げられ、入手の容易性やコスト面からガラス繊維が好ましく用いられる。ガラス繊維の原料となるガラスの種類は特に限定されないが、品質上、Ｅガラスや、組成中にジルコニウム元素を含む耐腐食ガラスが好ましく用いられる。

[0035] 繊維状無機充填材の平均繊維径は特に制限されず、例えば３～５０μｍであることが好ましく、６～１５μｍであることがより好ましい。繊維状無機充填材の平均繊維長は特に制限されず、例えば０．１～２０ｍｍとすることができる。なお、繊維状無機充填剤材の平均繊維径及び平均繊維長とは、樹脂組成物に配合される前の繊維状無機充填材について、ＣＣＤカメラで撮影した画像を解析し、加重平均により算出した値である。例えば、株式会社セイシン企業製、動的画像解析法／粒子（状態）分析計ＰＩＴＡ－３等を用いて算出することができる。

[0036] 繊維状無機充填材としては、円形断面を有するもの及び非円形断面を有するもののいずれも用いることができる。非円形断面としては、長円形、楕円形、繭形等が挙げられる。

非円形断面の異形比（長軸径：短軸径）は、特に限定されないが、１．５：１～６：１であることが好ましく、２：１～５：１であることがより好ましく、２．５：１～４：１であることが更に好ましい。異形比が１．５：１～６：１の範囲であると、断面を扁平にしたことによる寸法安定性、反り低

減等の効果が得られ易く、また、扁平になり過ぎ割れやすくなることによる強度の低下も抑制し易い。

[0037]（非繊維状無機充填材）

非繊維状無機充填材の形状は特に限定されず、粒状、楕円体状、紡錘体状、板状、鱗片状、不定形状等が挙げられる。非繊維状無機充填材としては、具体的には、マイカ、タルク、石英、珪酸カルシウム、珪酸アルミニウム、カオリン、クレー、珪藻土、ベントナイト等のケイ酸塩類；カーボンブラック、黒鉛等の炭素系材料；炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム等の金属の炭酸塩；硫酸亜鉛、硫酸カルシウム、硫酸バリウムの如き金属の硫酸塩；酸化亜鉛、酸化鉄、酸化チタン、三酸化アンチモン、アルミナの如き金属の酸化物；ガラスフレーク、ガラスビーズ、ミルドガラスファイバー、ガラスバルーン、ガラス粉等；その他、水酸化マグネシウム、ベーマイト、球状シリカ、フェライト、炭化珪素、窒化珪素、窒化硼素、各種金属粉末等が挙げられるがこれらに限定されない。低反り性向上の観点から、マイカ、ガラスフレーク、タルク等の板状、鱗片状の無機充填材を含むことが好ましく、少なくともマイカ、タルク等の板状の無機充填材を含有することがより好ましい。

[0038] 無機充填材（Ｃ）は１種を単独で用いてもよいし、２種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0039] また、繊維状無機充填材と非繊維状無機充填材とを組み合わせて用いてもよい。繊維状無機充填材と非繊維状無機充填材とを組み合わせて用いることにより、低反り性と、引張り強度等の機械的特性とを両立させることができる。繊維状無機充填材と非繊維状無機充填材との比率は特に限定されるものではないが、繊維状無機充填材／非繊維状無機充填材（質量比）＝８０／２０～４５／５５であることが好ましく、７５／２５～５５／４５であることがより好ましく、７０／３０～６０／４０であることが更に好ましい。非繊維状無機充填材の含有量が無機充填材の２０質量％以上であるとより優れた低反り性が得られ易く、５５質量％以下であるとより優れた引張り強度が得られ易い。繊維状無機充填材と非繊維状無機充填材の組み合わせとしては、

特に限定されるものではないが、ガラス繊維、炭素繊維等の繊維状無機充填材と、ガラスフレーク、マイカ、タルク等の非繊維状無機充填材との組み合わせが挙げられ、ガラス繊維とマイカを少なくとも含むことが好ましい。

[0040] 次いで、無機充填材（Ｃ）において、表面処理に用いられる集束剤に含まれる、カルボン酸及び／又はカルボン酸無水物を由来とする構成単位を有する重合物及びエポキシ樹脂について以下に説明する。

[0041] （カルボン酸及び／又はカルボン酸無水物を由来とする構成単位を有する重合物）

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

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

[0042] 本実施形態において、以上の重合物の重量平均分子量は特に限定しないが、１０，０００～１，０００，０００が特に好ましい。当該重量平均分子量が１０，０００～１，０００，０００の範囲内であると、十分な加水分解性が得られるとともに、無機充填材の表面への付着が十分となる。

[0043] （エポキシ樹脂）

エポキシ樹脂としては、例えば、グリシジルエーテル型エポキシ樹脂、グリシジルエステル型エポキシ樹脂（ジグリシジルフタレート、ジグリシジルテトラヒドロフタレート、ジグリシジルヘキサヒドロフタレート、ジメチル

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

[0044] グリシジルエーテル型エポキシ樹脂には、ポリヒドロキシ化合物のグリシジルエーテル［ビスフェノール型エポキシ樹脂（例えば、ビスフェノールＡ型、ビスフェノールＡＤ型、又はビスフェノールＦ型エポキシ樹脂など）、レゾルシン型エポキシ樹脂などの芳香族ポリヒドロキシ化合物のグリシジルエーテル；脂肪族エポキシ樹脂（アルキレングリコールやポリオキシアルキレングリコールのグリシジルエーテルなど）など］、ノボラック型エポキシ樹脂（フェノールノボラック型、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂など）などが含まれる。

[0045] エポキシ樹脂のうち、芳香族エポキシ樹脂（ビスフェノール型エポキシ樹脂、レゾルシン型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂など）、環式脂肪族エポキシ樹脂が好ましい。中でも、グリシジルエーテル型芳香族エポキシ樹脂、例えば、ビスフェノール型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂などが好ましい。

[0046] エポキシ樹脂のエポキシ当量は、例えば、１００～１６００ｇ／ｅｑ、好ましくは１００～８００ｇ／ｅｑ、更に好ましくは１５０～５００ｇ／ｅｑ

であってもよい。

[0047] エポキシ樹脂の数平均分子量は、例えば、２００～５０，０００、好ましくは３００～１０，０００、更に好ましくは４００～６，０００であってもよい。

[0048] 本実施形態において、集束剤中の重合物（Ｘ）とエポキシ樹脂（Ｙ）との質量比率（Ｘ／Ｙ）は、特に限定しないが、０．００１～１．５００が好ましい。

[0049] 集束剤は、無機充填材（Ｃ）１００質量部に対して０．１～５．０質量部含有していることが好ましく、０．３～４．０質量部含有していることがより好ましい。当該表面処理剤の含有量が０．４～３．０質量部であることで、耐加水分解性の向上を図ることができる。

[0050] また、集束剤中には、上記成分以外に、ウレタン樹脂、シランカップリング剤、潤滑剤、ノニオン系の界面活性剤、帯電防止剤等の各成分を含むことができ、それぞれの成分の配合比は、必要に応じて決定すればよい。ウレタン樹脂はガラス繊維の結束性や分散性に寄与し、ポリイソシアネートとポリオールなどより得られる。シランカップリング剤は、ガラス繊維と集束剤との間の界面密着性向上のために用いられる。シランカップリング剤としては、アミノシラン、エポキシシラン、クロルシラン、メルカプトシラン、ビニルシラン、アクリルシランなどが使用できる。潤滑剤は、ガラス繊維同士の摩擦による摩耗を抑制するために用いられるものである。潤滑剤としては、脂肪酸アミド、第４級アンモニウム塩などが使用できる。また、ノニオン系の界面活性剤としては、合成アルコール系、天然アルコール系、脂肪酸エステル系などが使用できる。

[0051] 本実施形態のＰＡＴ樹脂組成物において、無機充填材（Ｃ）は、ＰＡＴ樹脂１００質量部に対して、１０～１００質量部含有することが好ましく、２０～８０質量部含有することがより好ましい。

[0052] ［他の成分］

本実施形態のＰＡＴ樹脂組成物は、必要に応じて、その他の成分を含有する

ことができる。その他の成分としては、例えば、無機充填材（Ｃ）以外の無機充填材、酸化防止剤、耐候安定剤、分子量調整剤、紫外線吸収剤、帯電防止剤、染料、顔料、滑剤、結晶化促進剤、結晶核剤、近赤外線吸収剤、難燃剤、難燃助剤、有機充填剤、着色剤等が挙げられるがこれらに限定されない。

[0053] ＜樹脂成形品＞

本実施形態の樹脂成形品は、以上説明した本実施形態のＰＡＴ樹脂組成物を成形してなる。従って、本実施形態のＰＡＴ樹脂組成物と同様に、耐加水分解性が従来よりも大幅に向上するという効果を奏する。

[0054] 本実施形態のＰＡＴ樹脂組成物を用いて樹脂成形品を作製する方法としては特に限定はなく、公知の方法を採用することができる。例えば、本実施形態のＰＡＴ樹脂組成物を押出機に投入して溶融混練してペレット化し、このペレットを所定の金型を装備した射出成形機に投入し、射出成形することで作製することができる。

[0055] 本実施形態の樹脂成形品としては、自動車や電車、航空産業用用途などの高温高湿環境に長期間曝される成形品用の樹脂組成物として好適に用いることができる。この樹脂組成物からなる成形品では、十分な高温高湿環境下で長期間使用した場合でも、加水分解による劣化が生じることを防ぐことができるためコネクタなどに用いることができる。

実施例

[0056] 以下に、実施例により本実施形態を更に具体的に説明するが、本実施形態は以下の実施例に限定されるものではない。

[0057] ［実施例１～６、比較例１～１０］

各実施例・比較例・参考例において（Ａ）～（Ｆ）成分を表２～３に示す比率（質量部）で、３０ｍｍφの２軸押出機（（株）日本製鋼所製、ＴＥＸ３０α）を用い、原料供給部とダイ先端部をシリンダー温度２６０℃、その間を２２０～２６０℃とし、吐出量１５ｋｇ／ｈ、スクリュ回転数１３０ｒｐｍで溶融混練して押出し、ＰＢＴ樹脂組成物からなるペレットを得た。表２

～３に示す各成分の詳細を以下に示す。

（１）ＰＡＴ樹脂（Ａ）；

・ＰＢＴ樹脂（Ａ１）：ポリプラスチックス（株）製、ポリブチレンテレフタレート樹脂　ジュラネックスＰＢＴ　３００ＦＰ

・ＰＢＴ樹脂（Ａ２）：ポリプラスチックス（株）製、ポリブチレンテレフタレート樹脂　ジュラネックスＰＢＴ　５００ＦＰ

（２）カルボジイミド化合物（Ｂ）：ランクセス社製、芳香族ポリカルボジイミド　Ｓｔａｂａｘｏｌ　Ｐ－１００

（３）無機充填材（Ｃ）；

・ガラス繊維（Ｃ１）：Ｅガラス製ガラス繊維、平均繊維径１３μｍ（表面処理剤：フェノールノボラック樹脂０．５質量％、無水マレイン酸とメタクリル酸メチルとアクリル酸メチルの共重合物０．２質量％）

・ガラス繊維（Ｃ２）：Ｅガラス製ガラス繊維、平均繊維径１３μｍ（表面処理剤：フェノールノボラック樹脂０．５質量％、メタクリル酸の重合物０．２質量％）

・ガラス繊維（Ｃ３）：Ｅガラス製ガラス繊維　平均繊維径１３μｍ（表面処理剤：フェノールノボラック樹脂０．５質量％）

・ガラス繊維（Ｃ４）：Ｅガラス製ガラス繊維　平均繊維径１３μｍ（表面処理剤：無水マレイン酸とメタクリル酸メチルとアクリル酸メチルの共重合物０．２質量％）

・ガラス繊維（Ｃ５）：Ｅガラス製ガラス繊維　平均繊維径１３μｍ（表面処理剤：フェノールノボラック樹脂０．５５質量％、無水マレイン酸とメタクリル酸メチルとアクリル酸メチルの共重合物０．４６質量％）

・ガラス繊維（Ｃ６）：Ｅガラス製ガラス繊維　平均繊維径１３μｍ（表面処理剤：フェノールノボラック樹脂１．５質量％、無水マレイン酸とメタクリル酸メチルとアクリル酸メチルの共重合物０．６質量％）

（４）酸化防止剤（Ｄ）：ＢＡＳＦジャパン製　Ｉｒｇａｎｏｘ　１０１０

（５）滑剤（Ｅ）：理研ビタミン（株）製、リケマール　Ｂ－７４

（６）エポキシ化合物（Ｆ）：三菱ケミカル（株）製、エピコート１００４

[0058] 一方、ガラス繊維（Ｃ１）～（Ｃ６）の表面処理に用いた集束剤の成分を表１に示す。表１における数値は、それぞれのガラス繊維全体に対する各成分の含有量（質量％）である。なお、ガラス繊維（Ｃ１）、（Ｃ２）において、集束剤は、ガラス繊維（Ｃ１）、（Ｃ２）１００質量部に対して０．７質量部含有している。同様に、ガラス繊維（Ｃ５）、（Ｃ６）において、集束剤は、ガラス繊維（Ｃ５）、（Ｃ６）１００質量部に対して、それぞれ、１．０２質量部、２．１５質量部含有している。

[0059] [表1]

	フェノールノボラック型エポキシ樹脂［質量%］	無水マレイン酸、メタクリル酸メチル、及びアクリル酸メチルの共重合物［質量%］	ポリメタクリル酸の重合物［質量%］
ガラス繊維（Ｃ１）	0.5	0.2	－
ガラス繊維（Ｃ２）	0.5	－	0.2
ガラス繊維（Ｃ３）	0.5	－	－
ガラス繊維（Ｃ４）	－	0.2	－
ガラス繊維（Ｃ５）	0.55	0.46	－
ガラス繊維（Ｃ６）	1.5	0.6	－

[0060] ［評価］

各実施例・比較例・参考例で得られたペレットを用い、以下の評価試験を実施した。

《耐加水分解性》

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

[0061] [表2]

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6
ＰＡＴ樹脂(A)	ＰＢＴ樹脂（Ａ１）	—	—	100	100	100	100
	ＰＢＴ樹脂（Ａ２）	100	100	—	—	—	—
カルボジイミド化合物(B)	芳香族 ポリカルボジイミド	0.7	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
無機充填材(C)	ガラス繊維（Ｃ１）	43.4	43.7	43.7	—	—	—
	ガラス繊維（Ｃ２）	—	—	—	43.7	—	—
	ガラス繊維（Ｃ３）	—	—	—	—	—	—
	ガラス繊維（Ｃ４）	—	—	—	—	—	—
	ガラス繊維（Ｃ５）	—	—	—	—	43.7	—
	ガラス繊維（Ｃ６）	—	—	—	—	—	43.7
酸化防止剤(D)		0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
滑剤(E)		0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
エポキシ化合物(F)		—	—	—	—	—	—
引張強さ(MPa)		140	140	142	141	142	140
耐加水分解性 引張強さ保持率（%）	50時間	92	92	91	89	90	91
	100時間	84	87	84	82	87	88
	150時間	77	82	74	70	77	80

[0062] [表3]

		比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7	比較例8	比較例9	比較例10
ＰＡＴ樹脂(A)	ＰＢＴ樹脂（Ａ１）	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
カルボジイミド化合物(B)	芳香族ポリカルボジイミド	—	—	0.7	1.5	—	—	1.5	—	0.3	—
無機充填材(C)	ガラス繊維（Ｃ１）	—	—	—	—	—	—	—	43.1	43.2	44.4
	ガラス繊維（Ｃ２）	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	ガラス繊維（Ｃ３）	43.1	43.7	43.4	43.7	—	—	—	—	—	—
	ガラス繊維（Ｃ４）	—	—	—	—	43.1	43.7	43.7	—	—	—
	ガラス繊維（Ｃ５）	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	ガラス繊維（Ｃ６）										
酸化防止剤(D)		0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
滑剤(E)		0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
エポキシ化合物(F)		—	1.5	—	—	—	1.4	—	—	—	3.0
引張強さ(MPa)		144	145	142	138	141	150	140	153	147	148
耐加水分解性 引張強さ保持率（%）	50時間	75	83	92	78	33	66	53	76	80	78
	100時間	30	40	57	54	24	29	48	33	48	44
	150時間	0	0	36	48	0	0	36	0	20	14

[0063] 表２、３より、実施例１～６においては、耐加水分解性について良好な評価結果が得られたことが分かる。

一方、カルボジイミド化合物（Ｂ）を使用しなかったことのみが実施例３と異なる比較例８は耐加水分解性に劣っていた。

また、フェノールノボラック樹脂のみを含む集束剤で表面処理したガラス繊維（Ｃ３）を用いたことのみが実施例３と異なる比較例４は、耐加水分解性に劣っていた。

更に、無水マレイン酸とメタクリル酸メチルとアクリル酸メチルの共重合物の共重合物のみを含む集束剤で表面処理したガラス繊維（Ｃ４）を用いたことのみが実施例３と異なる比較例７は耐加水分解性に劣っていた。

更に、カルボジイミド化合物（Ｂ）の含有量が過少であった比較例９は耐加水分解性に劣っていた。

更に、比較例８の組成に対してエポキシ化合物（Ｆ）を添加した比較例１０も耐加水分解性に劣っていた。

請求の範囲

[請求項1] ポリアルキレンテレフタレート樹脂（Ａ）、

カルボジイミド化合物（Ｂ）、及び

カルボン酸及び／又はカルボン酸無水物を由来とする構成単位を含む重合物とエポキシ樹脂とを含有する集束剤で表面処理された無機充填材（Ｃ）を含み、

前記ポリアルキレンテレフタレート樹脂（Ａ）１００質量部に対し、前記カルボジイミド化合物（Ｂ）を０．４～１０質量部含有する、ポリアルキレンテレフタレート樹脂組成物。

[請求項2] 前記カルボジイミド化合物（Ｂ）が芳香族カルボジイミドである、請求項１に記載のポリアルキレンテレフタレート樹脂組成物。

[請求項3] 前記無機充填材（Ｃ）が繊維状であり、平均繊維径が３～５０μｍであり、前記無機充填材（Ｃ）１００質量部に対する前記集束剤の含有量が０．４～３．０質量部である、請求項１又は２に記載のポリアルキレンテレフタレート樹脂組成物。

[請求項4] 請求項１又は２に記載のポリアルキレンテレフタレート樹脂組成物を成形してなる樹脂成形品。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2023/022008

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L 67/02(2006.01)i; ***C08K 3/013***(2018.01)i; ***C08K 5/29***(2006.01)i; ***C08K 9/04***(2006.01)i
FI: C08L67/02; C08K3/013; C08K5/29; C08K9/04

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C08L67/02; C08K3/013; C08K5/29; C08K9/04

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2023
Registered utility model specifications of Japan 1996-2023
Published registered utility model applications of Japan 1994-2023

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2015-108133 A (MITSUBISHI ENGINEERING PLASTICS CORP.) 11 June 2015 (2015-06-11) claims, paragraphs [0076]-[0079], examples	1-4
Y	JP 2016-56314 A (MITSUBISHI ENGINEERING PLASTICS CORP.) 21 April 2016 (2016-04-21) claims, examples	1-4
Y	JP 2017-197676 A (TOYOBO CO., LTD.) 02 November 2017 (2017-11-02) claims, paragraphs [0048]-[0051], examples	1-4
Y	CN 102516725 A (SHENZHEN CHINA POLYNEW MATERIALS CO., LTD.) 27 June 2012 (2012-06-27) claims, paragraph [0022], examples	1-4
Y	JP 2015-518060 A (DSM IP ASSETS B.V.) 25 June 2015 (2015-06-25) claims, paragraphs [0016], [0028], [0029], [0032], examples	1-4
Y	JP 2003-201671 A (NIPPON ELECTRIC GLASS CO., LTD.) 18 July 2003 (2003-07-18) claims, paragraph [0009], examples	1-4

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

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

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
21 July 2023	**01 August 2023**
Name and mailing address of the ISA/JP **Japan Patent Office (ISA/JP)** **3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915** **Japan**	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2023/022008

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2015-108133 A	11 June 2015	(Family: none)	
JP 2016-56314 A	21 April 2016	(Family: none)	
JP 2017-197676 A	02 November 2017	(Family: none)	
CN 102516725 A	27 June 2012	(Family: none)	
JP 2015-518060 A	25 June 2015	US 2015/0045476 A1 claims, paragraphs [0067]-[0072], examples US 2015/0051313 A1 WO 2013/139732 A2 WO 2013/139708 A2 EP 2828312 A2 EP 2828313 A2 TW 201343815 A CN 104204023 A CN 104302687 A RU 2014138185 A IN 7375DEN2014 A	
JP 2003-201671 A	18 July 2003	(Family: none)	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2023/022008

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08L 67/02(2006.01)i; C08K 3/013(2018.01)i; C08K 5/29(2006.01)i; C08K 9/04(2006.01)i
FI: C08L67/02; C08K3/013; C08K5/29; C08K9/04

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08L67/02; C08K3/013; C08K5/29; C08K9/04

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０２３年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２３年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２３年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
Y	JP 2015-108133 A (三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社) 11.06.2015 (2015-06-11) 特許請求の範囲, [0076]-[0079], 実施例	1-4
Y	JP 2016-56314 A (三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社) 21.04.2016 (2016-04-21) 特許請求の範囲, 実施例	1-4
Y	JP 2017-197676 A (東洋紡株式会社) 02.11.2017 (2017-11-02) 特許請求の範囲, [0048]-[0051], 実施例	1-4
Y	CN 102516725 A (SHENZHEN CHINA POLYNEW MATERIALS CO. LTD.) 27.06.2012 (2012-06-27) 特許請求の範囲, [0022], 実施例	1-4
Y	JP 2015-518060 A (ディーエスエム アイピー アセッツ ビー. ブイ.) 25.06.2015 (2015-06-25) 特許請求の範囲, [0016][0028][0029][0032], 実施例	1-4
Y	JP 2003-201671 A (日本電気硝子株式会社) 18.07.2003 (2003-07-18) 特許請求の範囲, [0009], 実施例	1-4

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
“&” 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
21.07.2023	01.08.2023

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）
久保　道弘 4J 4514

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2023/022008

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2015-108133 A	11.06.2015	（ファミリーなし）	
JP 2016-56314 A	21.04.2016	（ファミリーなし）	
JP 2017-197676 A	02.11.2017	（ファミリーなし）	
CN 102516725 A	27.06.2012	（ファミリーなし）	
JP 2015-518060 A	25.06.2015	US 2015/0045476 A1 特許請求の範囲，[0067]-[0072]，実施例 US 2015/0051313 A1 WO 2013/139732 A2 WO 2013/139708 A2 EP 2828312 A2 EP 2828313 A2 TW 201343815 A CN 104204023 A CN 104302687 A RU 2014138185 A IN 7375DEN2014 A	
JP 2003-201671 A	18.07.2003	（ファミリーなし）	