

(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  
2017年6月29日(29.06.2017)



(10) 国際公開番号

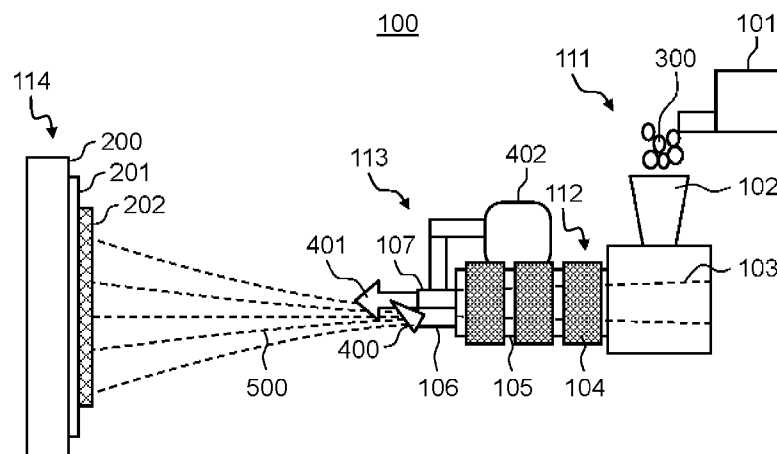
WO 2017/110057 A1

- (51) 国際特許分類:  
D04H 3/14 (2012.01) G10K 11/16 (2006.01)  
D01F 6/04 (2006.01) G10K 11/162 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/005117
- (22) 国際出願日: 2016年12月13日(13.12.2016)
- (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 2015-248749 2015年12月21日(21.12.2015) JP  
特願 2016-187206 2016年9月26日(26.09.2016) JP
- (71) 出願人: パナソニックIPマネジメント株式会社 (PANASONIC INTELLECTUAL PROPERTY MANAGEMENT CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5406207 大阪府大阪市中央区城見2丁目1番61号 Osaka (JP).
- (72) 発明者: 畑中 基 (HATANAKA, Motoi). 名木野俊文 (NAGINO, Toshifumi). 宮武 和史 (MIYATAKE, Kazufumi). 中平 航太 (NAKAHIRA, Kota). 梶田 昇 (MASUDA, Noboru).
- (74) 代理人: 鎌田 健司, 外 (KAMATA, Kenji et al.); 〒5406207 大阪府大阪市中央区城見2丁目1番6
- 1号パナソニックIPマネジメント株式会社内 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, 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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, 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:  
— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: FIBER ASSEMBLY

(54) 発明の名称: 繊維集合体

[図1]



(57) Abstract: A fiber assembly obtained by melt-spinning a thermoplastic resin, wherein the fiber diameter of the fiber assembly has a median diameter of 1  $\mu\text{m}$  or less, and the melt viscosity of the fiber assembly is 100-1000 mPa·s.

(57) 要約: 熱可塑性樹脂を溶融紡糸することによって得られる繊維集合体であって、繊維集合体の繊維径が1  $\mu\text{m}$ 以下のメジアン径を有しており、かつ、繊維集合体の溶融粘度が100 mPa·s以上1000 mPa·s以下である。

WO 2017/110057 A1

## 明 細 書

発明の名称： 繊維集合体

技術分野

[0001] 本開示は、繊維集合体に関する。

背景技術

[0002] 従来、固形の熱可塑性樹脂を熔融し、熔融した熱可塑性樹脂（以下、熔融樹脂という）を熱風により細繊維化して捕集することで、繊維集合体を生成する熔融紡糸法が知られている。この方法では、例えば、熔融樹脂を吐出する手段と、その熔融樹脂に対して熱風を吹き出す手段とを備える繊維生成装置が用いられる。熔融樹脂は熱風により粉碎されて細繊維化し、極細の繊維が生成される。そして、極細の繊維が集積して極細の繊維集合体が生成される。

[0003] このような繊維生成装置では、繊維を効率的に細繊維化するために種々の工夫が施されている。例えば、特許文献1には、熔融樹脂を吐出するノズル孔の両側に熱風を吹き出すための一対のスリットを具備する装置が開示されている。この装置では、各スリットから吹き出された熱風がノズル孔の先端で合流するように構成されており、熔融樹脂の効率的な細繊維化を実現している。

[0004] しかしながら、特許文献1の技術では、ノズル孔から吐出された繊維状の熔融樹脂に対して直接熱風を吹きつけるため、繊維長が短くなりやすいという問題がある。

[0005] 繊維長が短くなるという問題は、例えば特許文献2、3に開示されている方法により解決することが考えられる。特許文献2には、熱風の平行流に熔融樹脂を載せて延伸させることで、長繊維を得る方法が開示されている。また、特許文献3には、1つの平行な熱風により熔融樹脂を長繊維化する方法が開示されている。

[0006] また、熔融樹脂の細繊維化には、熱可塑性樹脂の熔融粘度をでき得る限り

小さくすることが必要である。この点で、例えば特許文献4、5には、熱可塑性樹脂の熔融粘度を小さくして熔融樹脂を細繊維化する方法が開示されている。

## 先行技術文献

### 特許文献

[0007] 特許文献1：特開2014-88639号公報

特許文献2：特開2011-241509号公報

特許文献3：特許第5378960号公報

特許文献4：特開2013-134427号公報

特許文献5：特許第4574262号公報

### 発明の概要

[0008] しかしながら、特許文献2の技術では、熱風の吹き出し口近傍にて乱流が発生することで、熱風の平行流と反する方向の流れが発生し、紡糸が不安定となるため、繊維集合体の品質に問題が残る。

[0009] また、特許文献3の技術では、溢れ出た熔融樹脂がノズル近傍に付着し固化することで、空気の流れが阻害され、乱流が発生し、紡糸が不安定となるため、繊維集合体の品質に問題が残る。

[0010] また、特許文献4、5の技術では、ポリエステル系繊維の使用により強度の高い繊維集合体を得られるものの、平均繊維径が $1\mu\text{m}$ 以上と大きく、繊維集合体の品質に問題が残る。

[0011] 本開示の目的は、上記問題を解決し、極細かつ強度が高い繊維集合体を提供することである。

[0012] 本開示の一態様に係る繊維集合体は、熱可塑性樹脂を熔融紡糸することによって得られる繊維集合体であって、前記繊維集合体の繊維径が $1\mu\text{m}$ 以下のメジアン径を有し、前記繊維集合体の熔融粘度が $100\text{mPa}\cdot\text{s}$ 以上 $1000\text{mPa}\cdot\text{s}$ 以下である。

[0013] 本開示によれば、極細かつ強度が高い繊維集合体を提供できる。

## 図面の簡単な説明

- [0014] [図1]実施の形態に係る繊維集合体の繊維生成装置の一例を示す図である。
- [図2]実施の形態に係る繊維集合体の繊維生成過程を示す図である。
- [図3]実施の形態に係る繊維集合体の熔融粘度特性を示す図である。
- [図4]実施の形態に係る繊維集合体の熔融粘度特性を示す図である。
- [図5]実施の形態に係る繊維集合体の熔融粘度特性を示す図である。
- [図6]実施の形態に係る繊維集合体の熔融粘度特性を示す図である。
- [図7]実施の形態に係る繊維集合体の熔融粘度特性を示す図である。
- [図8]実施の形態に係る繊維集合体の熔融粘度特性を示す図である。
- [図9]実施例および比較例に係る繊維集合体の特性を示す図である。

## 発明を実施するための形態

- [0015] 以下、本開示の実施の形態について、図面を参照しながら説明する。

- [0016] (材料)

まず、本実施の形態の繊維集合体の生成に用いる材料について説明する。

- [0017] 本実施の形態では、繊維集合体の生成に用いる材料として、パウダー状またはペレット状に最適に加工された熱可塑性樹脂を用いる。なお、ペレットサイズが大きすぎると、例えばスクリーポンプ（スクリー押出機）などを用いてペレットを供給する際に、ペレットがスクリーの溝に噛み込むおそれがある。そのため、ペレット状の熱可塑性樹脂を用いる場合、ペレットサイズを5 mm以下にすることが好ましい。

- [0018] 熱可塑性樹脂であれば繊維化は可能であるため、本実施の形態では、熱可塑性樹脂として、例えば、ポリオレフィン樹脂、ポリエステル樹脂、ポリエーテル樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリビニル樹脂、ポリアミド樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリ乳酸樹脂、エンジニアリングプラスチックなどを用いることができる。

- [0019] 本実施の形態で生成される繊維集合体の熔融粘度を十分に小さくするためには、例えば、ポリオレフィン系樹脂を用いることが好ましい。具体的には、ポリエチレン、低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、ポリプロピレ

ン、エチレン共重合体、プロピレン共重合体、熱可塑性エラストマーなどを、単一または複数種類を混合したものを用いることが好ましい。

[0020] ポリオレフィン系樹脂の中でも、特にポリプロピレン樹脂は、溶融粘度を下げやすく、価格も安く入手しやすいため、好ましい。また、ポリプロピレン樹脂は製造過程で分子量を制御しやすいことから、多種の分子量を持つポリプロピレンが流通している。一般的に、分子量が小さいものほど、価格が高価になることから、例えば、重量平均分子量が10万以上の樹脂と、重量平均分子量が10万未満の樹脂とを混ぜ合わせることで、低分子量の樹脂成分の量を減らしながら、有効的に溶融粘度を調整することができる。

[0021] ポリプロピレン樹脂としては、例えば、ホモポリマー、ブロックコポリマー、ランダムコポリマーなどが挙げられ、それらのどれを用いても繊維集合体を生成することができるが、最も耐熱性に優れたホモポリマーを用いることが好ましい。また、結晶性熱可塑性樹脂の立体規則性は、アイソタクチック、シンジオタクチック、アタクチックのいずれであってもよいが、一般的でかつ立体規則性が高いアイソタクチックは、結晶化しやすいことから成形収縮が小さく、また、耐熱性も良好である。よって、アイソタクチックが好ましい。

[0022] また、熱可塑性樹脂に可塑剤や滑剤などの添加剤を加えることにより、より溶融粘度を低下させることが可能である。添加剤としては、例えば、ポリエチレンワックス、ポリプロピレンワックス、炭化水素系、シリコーン系、高級アルコール系、高級脂肪酸系などの低分子量成分や、フタル酸エステル系やリン酸エステル系、脂肪酸エステル系、ポリエステル系、エポキシ系、スルホン酸アミド系などが挙げられる。特に、ワックス系であるポリプロピレンワックスを用いることが好ましい。例えば、ポリプロピレン樹脂にポリプロピレンワックスを適量混ぜ合わせることで、溶融粘度を低下させることができる。また、ポリプロピレン樹脂とポリプロピレンワックスは同類の樹脂であるため、相溶性が良い。

[0023] また、熱可塑性樹脂に紫外線吸収剤や酸化防止剤といった添加剤を含有さ

せることにより、繊維集合体の耐熱劣化や経時劣化を抑制することが期待できる。紫外線吸収剤としては、例えば、ベンゾトリアゾール系やヒンダードアミン系、ヒドロキシフェニルトリアジン系などが挙げられる。また、酸化防止剤としては、例えば、フェノール系、亜リン酸エステル系、ホスファイト系、チオエーテル系、アミン系などが挙げられる。

[0024] 酸化防止剤の添加量は、適量でよいが、好ましくは0.2以上5重量%以下、より好ましくは、0.5以上1重量%以下である。酸化防止剤の添加量が上記範囲より少ないと、酸化抑制効果が得られにくくなる。その一方、酸化防止剤の添加量が上記範囲より多いと、繊維表面から酸化防止剤が析出するブリードアウトを引き起こす。

[0025] 酸化防止剤を添加することで、高い耐酸化効果が得られることから、樹脂の着色や、酸化分解による分子量の低下を抑制し、樹脂の強度を維持することができる。また、酸化防止剤を複数種混合してもよい。例えば、フェノール系とホスファイト系とチオエーテル系を混合することで、相乗効果を期待できる。

[0026] また、熱可塑性樹脂材料の重量平均分子量 $M_w$ は、5,000以上300,000以下であることが好ましく、さらには、10,000以上100,000以下であることがより好ましい。重量平均分子量が10,000未満になると、分子同士の相互作用が著しく低下するため、紡糸温度範囲、吐出量、風量などを精密に制御しないと繊維化しない。さらに、重量平均分子量が5,000未満になると、もはや繊維化せず、球状粒子が大半を占める集合体となってしまう。また、重量平均分子量が100,000より多くなると、熱可塑性樹脂をかなり高温にまで昇温させて分解させなければ、極細繊維にならない。さらに、重量平均分子量が300,000より多くなると、口金から押し出すこと自体が困難になる。

[0027] (繊維集合体の生成方法)

次に、上述した熱可塑性樹脂を用いて繊維集合体を生成する方法について説明する。

[0028] 本実施の形態の繊維集合体の生成方法は、例えばメルトブローン法のような、熱可塑性樹脂を溶融させ、高温エアーを吹き付けることによって熱可塑性樹脂を延伸させ、極細繊維を生成する溶融紡糸法である。

[0029] 図1は、実施の形態に係る繊維集合体202の繊維生成装置100の一例を示す図である。

[0030] 本実施の形態の繊維集合体の生成方法は、図1に示す繊維生成装置100により実現される。

[0031] 図1に示すように、繊維生成装置100は、供給部111、加熱部112、延伸部113、捕集部114を備える。供給部111は、定量供給機101、ホッパー102、スクリーポンプ103、シリンダー105を有する。加熱部112は、ヒーター104を有する。延伸部113は、樹脂吐出ノズル106、気流ノズル107、高温気流生成装置402を有する。捕集部114は、捕集体200、不織布201を有する。

[0032] まず、定量供給機101は、パウダー状またはペレット状に加工された固形の熱可塑性樹脂300をホッパー102へ一定量ずつ継続供給する。定量供給機101を用いることにより、熱可塑性樹脂300の逆流を抑制でき、樹脂吐出ノズル106からの溶融樹脂400（加熱により溶融した熱可塑性樹脂300）の吐出量を安定させることができ、スクリーポンプ103の回転数に関わらず溶融樹脂400の吐出量を制御できる。また、ホッパー102内での熱可塑性樹脂300がブリッジすることによる供給不安定性を抑制することもできる。

[0033] なお、定量供給機101を用いずに、熱可塑性樹脂300をホッパー102へ投入してもよいが、その場合、加熱部112からの熱がホッパー102に伝わって、ホッパー102内の熱可塑性樹脂300を溶融し、熱可塑性樹脂300が逆流してしまうおそれがある。よって、ホッパー102内の熱可塑性樹脂300の溶融を防ぐため、ホッパー102の下方を十分に冷却しておく必要がある。

[0034] 次に、スクリーポンプ103は、ホッパー102内の熱可塑性樹脂300

0を加熱部112へ供給する。スクリーump103としては、例えば、単軸フルフライトスクリーまたは二軸スクリーが挙げられるが、これらに限定されない。

[0035] 熱可塑性樹脂300が複数種類の材料で構成されている場合、二軸スクリーを用いることで、異なる材料を混練しながら、加熱部112において溶融した樹脂を樹脂吐出ノズル106の先端まで搬送することが可能である。

[0036] 一方、熱可塑性樹脂300が単一種の材料で構成されている場合、または、熱可塑性樹脂300が複数種類の材料で構成されていても、溶融粘度が低く、混練する際に大きなせん断力を必要としない場合、シンプルな構造である単軸フルフライトスクリーが適している。

[0037] さらに、溶融樹脂の吐出精度を高める必要や、溶融粘度の高い溶融樹脂を押し出す必要がある場合は、スクリーの先端にギアumpを別途設置してもよい。

[0038] スクリーump103の周囲には、シリンダー105が配置されている。シリンダー105の径は、要求される溶融樹脂400の吐出量に応じて適宜選択されるが、一般的には、例えば、内径は20mm～60mm、スクリー長は10～100mmである。シリンダー105の内径を大きくすることで、溶融樹脂400の吐出能力を大きくすることが可能である。

[0039] ただし、シリンダー105の内径を大きくしすぎると、図1に示すようにシリンダー105の回りにヒーター104を巻き付けてシリンダー105全体を加熱する場合、ヒーター104に接するシリンダー105の表面において熱可塑性樹脂300が溶融しやすく、スクリーump103に向かうほど熱可塑性樹脂300が溶融しづらくなる。すなわち、シリンダー105の表面に存在する熱可塑性樹脂300には必要以上に熱が供給され、熱可塑性樹脂300の分子量の低下が発生しやすくなるので、注意が必要である。ペレット状の熱可塑性樹脂300のサイズを大きくとも5mm角以下にすることで、スクリーump103で搬送する際に噛み込みが発生しにくくなる。

- [0040] ヒーター１０４は、シリンダー１０５の周囲に巻き付けられており、搬送される熱可塑性樹脂３００を加熱する。これにより、固形の熱可塑性樹脂３００は熔融し、熔融樹脂４００が生成される。
- [0041] ヒーター１０４の加熱温度は、熱可塑性樹脂３００の融点（以下、単に「融点」という）以上に設定されることが必須であるが、融点より１０℃以上高く設定されることが好ましい。その理由は、ヒーター１０４の加熱温度が融点より１０℃以上高くない場合、熱可塑性樹脂３００は完全に熔融しきらず、溶け残りが発生しやすくなるためである。
- [0042] また、ヒーター１０４の加熱温度は、熱可塑性樹脂３００の熱分解温度（以下、単に「熱分解温度」という）以下に設定されることが好ましい。その理由は、ヒーター１０４の加熱温度が熱分解温度より高いと、熱可塑性樹脂３００が気化して、気泡を多く含んだ熔融樹脂４００が生成され、熔融樹脂４００の吐出が間欠的となってしまう、短繊維になり易いためであり、また、繊維の収集率が低下するためである。
- [0043] また、ヒーター１０４の加熱温度は、熱可塑性樹脂３００の酸化反応が活性となる温度（以下、酸化反応活性温度という）以下に設定されることが好ましい。その理由は、ヒーター１０４の加熱温度が酸化反応活性温度より高いと、熱可塑性樹脂３００を加熱する過程で酸化による分子量低下が起こり、熔融粘度の低下につながるためである。熔融粘度が加熱部１１２で低下すると、所望の熔融粘度に制御することが困難となり、熔融樹脂４００の吐出量のバラツキや、極細繊維５００の繊維径のバラツキを引き起こしてしまうため、加熱部１１２における分子量の低下は、回避することが好ましい。
- [0044] ヒーター１０４の加熱温度は、原料として用いる熱可塑性樹脂の種類によって異なる。例えば、ポリプロピレン樹脂を使用する場合、ヒーター１０４の加熱温度は、１５０度以上かつ４００度以下に設定される。具体的には、ヒーター１０４の加熱温度は、融点＋１０℃以上３００℃以下に設定されることが好ましく、２００℃以上３００℃以下に設定されることがより好ましい。

- [0045] ヒーター１０４の加熱温度を融点＋１０℃以上に設定した場合、熱可塑性樹脂が加熱部１１２に滞留する時間を制御することで、ペレットを完全に溶融させることが可能である。また、ヒーター１０４の加熱温度を２００℃以上に設定した場合、より短時間で溶融させることが可能になる。
- [0046] また、ヒーター１０４の加熱温度を４００℃より高い値に設定した場合、熱可塑性樹脂が窒素や密閉空間内においても、容易に熱分解が発生してしまう。また、ヒーター１０４の加熱温度を３００℃より高い値に設定した場合、熱可塑性樹脂が存在する雰囲気や加熱部１１２に滞留する時間によっては、酸化分解が発生する可能性がある。熱可塑性樹脂が加熱部１１２に滞留する時間は、加熱部１１２の温度プロファイルによっても左右されるが、概ね、１～２０分程度で設定すると、固形の熱可塑性樹脂３００を完全に溶融させ、かつ、熱可塑性樹脂３００の分解を最小限に抑制することができる。
- [0047] ヒーター１０４の加熱により生成された溶融樹脂４００は、樹脂吐出ノズル１０６に供給され、樹脂吐出ノズル１０６から水平方向に吐出される。
- [0048] 樹脂吐出ノズル１０６の形状に制限はないが、例えば形状を円形とした場合、樹脂吐出ノズル１０６の直径は、０．１ｍｍ以上３ｍｍ以下に設定されることが好ましく、さらには、０．２ｍｍ以上１ｍｍ以下に設定されることが好ましい。直径が小さすぎると、スクリー内の圧力が高くなりすぎるため、樹脂吐出ノズル１０６のつなぎ目から溶融樹脂４００が漏れやすくなる一方で、直径が大きすぎると、細線化しづらい。
- [0049] 樹脂吐出ノズル１０６からの溶融樹脂４００の吐出と同時に、または、樹脂吐出ノズル１０６からの溶融樹脂４００の吐出前において、気流ノズル１０７からは、高温気流４０１が水平方向に吹き出す。
- [0050] 高温気流４０１は、高温気流生成装置４０２において生成され、気流ノズル１０７へ供給される。高温気流４０１の生成に用いられる気体は、例えば、空気や窒素などである。高温気流生成装置４０２は、まず、空気や窒素を０．１～０．５ＭＰａ程度に圧縮して気流ノズル１０７を通過させ、高速気流を得る。次に、高温気流生成装置４０２は、気流ノズル１０７の内部に設

けられたトーチヒーターにより、配管内を通過する高速気流を加熱する。これにより、高温気流401が生成される。なお、上記説明では、トーチヒーターを用いる場合を例に挙げたが、気流ノズル107の外部（周囲）にヒーターを巻き付け、そのヒーターにより高速気流を加熱してもよい。

[0051] 気流ノズル107の内径は、高温気流401を効率良く生成するために、0.1mm以上5mm以下に設定されることが好ましい。熔融樹脂400が気流ノズル107内に進入して固化することによる詰まりを発生させることなく、安定的に高温気流401を生成することが可能となる。

[0052] 図2は、実施の形態に係る繊維集合体202の繊維生成過程を示す図である。

[0053] 図2に示すように、高温気流401を吹き出す気流ノズル107と熔融樹脂400を吐出する樹脂吐出ノズル106とは、一定距離を隔てて設置されている。一定距離は、例えば、0.5mm以上5mm以下である。距離が近すぎると、熔融樹脂400を粉砕する力が働いて短繊維化しやすく、距離が遠すぎると、熔融樹脂400が高温気流401に引き込まれにくくなる。また、図2に示すように、気流ノズル107と樹脂吐出ノズル106はともに水平方向を向いており、高温気流401の吹き出す方向と熔融樹脂400が吐出する方向とが互いに平行である。

[0054] そして、図2に示すように、樹脂吐出ノズル106から吐出された熔融樹脂400は、気流ノズル107から吹き出した高温気流401に緩やかに引き込まれ、水平方向に延伸されて繊維化する。これにより、図1に示すように、繊維長の長い極細繊維500が生成される。

[0055] このようにして、本実施の形態では、熔融粘度の低い樹脂を用いても、垂れることなく安定的に長繊維を生成することができる。なお、例えば、極めて小さい熔融粘度の樹脂を鉛直下向きのノズルから吐出する場合、重力により垂れやすくなるので、熔融樹脂の吐出量制御が困難になる。

[0056] 延伸部113にて生成された極細繊維500は、気流に載って運ばれ、捕集体200により捕集され、極細の繊維集合体202となる。捕集体200

は一定速度で動いており、気流により搬送される極細繊維500を均一な厚み、重量にて捕集し、シート状の均一な繊維集合体202を形成する。捕集体200は、例えば、ロールであっても、コンベアであってもよい。

[0057] また、捕集体200の表面には不織布201が設置されている。この不織布201により、繊維集合体202を、回収しやすく、かつ、ハンドリングしやすくなる。

[0058] 繊維集合体202の厚みおよび単位面積当たりの重量は、樹脂吐出ノズル106の先端から捕集体200までの距離と、捕集体200の移動速度とにより決まる。樹脂吐出ノズル106の先端から捕集体200までの距離は、1000mm以上5000mm以下が好ましい。距離が短すぎると、熔融樹脂400の繊維化に必要な延伸が足りず、極細繊維500が形成されにくくなり、また、高温気流401の圧力により、繊維集合体202がつぶれて高密度化しやすい。逆に、距離が長すぎると、極細繊維500が捕集体200まで届かず、捕集が困難になる。このような理由により、樹脂吐出ノズル106の先端から捕集体200までの距離は、密度との関係に合わせて、適切に設定するとよい。

[0059] (繊維集合体)

次に、上述した生成方法により生成された繊維集合体について説明する。

[0060] 繊維集合体の熔融粘度は、熱可塑性樹脂のパウダーまたはペレットを熔融し、紡糸する際の重要な因子である。この熔融粘度は、紡糸された極細繊維から成る繊維集合体を再度加熱して熔融することで検証することができる。ここでいう極細繊維とは、繊維径の分布を有し、繊維集合体の繊維径がメジアン径で1 $\mu$ m以下であることを意味している。ただし、メジアン径で1 $\mu$ m以下の繊維集合体とは、必ずしも、1 $\mu$ mより大きな繊維径の繊維を含まないということではない。

[0061] このように、本実施の形態の繊維集合体は、繊維径が1 $\mu$ m以下のメジアン径を有することで、表面積が格段に大きくなるため、通気抵抗の減少、吸着特性の向上、断熱性能の向上、吸音特性の向上など、様々な特性が発現す

る。

[0062] 図3から図8は、実施の形態に係る繊維集合体の溶融粘度特性を示す図である。

[0063] 図3から図8において、横軸は溶融温度を示し、縦軸は溶融粘度を示している。そして、斜線で示す領域は、極細繊維から成る繊維集合体を得るために好ましい条件範囲（図3から図8において、極細繊維生成領域と表記する）を示している。

[0064] 本実施の形態において、繊維集合体の溶融粘度は、図3に示すように、 $100\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以上 $1000\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以下であることが好ましい。その範囲よりも溶融粘度が小さいと、樹脂の重量平均分子量 $M_w$ が小さくなりすぎるため、分子同士のからみ合う作用が弱くなり、繊維としての形が形成されにくい。すなわち、上述した生成方法（紡糸方法）をもってしても溶融樹脂を延伸する際に切れが生じ易いため、繊維に成りにくく、代わりに球状粒子を多く含む集合体になってしまい、繊維集合体の強度が著しく低下する。また、上述した範囲よりも溶融粘度が大きいと、繊維集合体の繊維径が $1\text{ }\mu\text{m}$ 以上になり、極細繊維が得られない。

[0065] また、本実施の形態において、繊維集合体の溶融粘度は、図4に示すように、 $400^\circ\text{C}$ を溶融温度の上限として、 $100\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以上 $1000\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以下であることがより好ましい。その範囲よりも溶融温度が高くなると、たとえ樹脂が酸素と遮断された状況（例えば、窒素雰囲気や密閉状態など）にあるとしても、熱分解が急速に進み、樹脂の重量平均分子量 $M_w$ の低下が紡糸段階で起こる。よって、上記同様の理由により、繊維に成りにくく、また、生成された繊維集合体の強度も低下する。

[0066] また、本実施の形態において、繊維集合体の溶融粘度は、図5に示すように、熱可塑性樹脂の融点より $10^\circ\text{C}$ 高い温度を溶融温度の下限として、 $100\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以上 $1000\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以下であることがより好ましい。その範囲よりも溶融温度が低くなると、加熱部112での樹脂の滞留時間を十分に確保したとしても、樹脂吐出ノズル106にて樹脂の溶け残りが生じやす

くなるため、紡糸の不安定性を引き起こす。

[0067] また、本実施の形態において、繊維集合体の熔融粘度は、図6に示すように、 $10^{11} T^{-3.6} \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以上 $10^{12} T^{-3.6} \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以下の関係式を満たす熔融粘度範囲にあることがより好ましい。なお、図6に示す関係式において、 $T$ は、繊維集合体の熔融温度を示し、 $Y$ は、繊維集合体の熔融粘度を示す（以下、図7および図8において同じ）。この関係式より熔融粘度が低い領域では、極細繊維は生成されるものの、球状粒子も一定量含み、繊維集合体の強度が低下する。この関係式より熔融粘度が高い領域では、極細繊維になりにくい。

[0068] また、本実施の形態において、繊維集合体の熔融粘度は、図7に示すように、 $200 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以上 $600 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以下であり、かつ、 $2 \times 10^{11} T^{-3.6} \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以上かつ $10^{12} T^{-3.6} \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以下の関係式を満たす熔融粘度範囲にあることがより好ましい。この関係式より熔融粘度が低い領域では、球状粒子はほぼ含まないものの、繊維長の短い極細繊維が生成されやすく、繊維集合体の重量を増やしても強度が得られにくい。また、この関係式より熔融粘度が高い領域では、繊維径が $0.7 \mu\text{m}$ 以下となり、極細繊維としての特性が向上する。

[0069] また、本実施の形態において、繊維集合体の熔融粘度は、図8に示すように、熱可塑性樹脂の融点より $10^\circ\text{C}$ 高くかつ $350^\circ\text{C}$ 以下の温度領域において、 $200 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以上 $600 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以下、かつ、 $2 \times 10^{11} T^{-3.6} \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以上かつ $10^{12} T^{-3.6} \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以下の関係式を満たす熔融粘度範囲にあることがより好ましい。この関係式より熔融粘度が低い領域では、球状粒子はほぼ含まないものの、繊維長の短い極細繊維が生成されやすく、繊維集合体の重量を増やしても強度が得られにくい。また、この関係式より熔融粘度が高い領域では、熔融樹脂が酸化劣化している可能性がある。

[0070] また、本実施の形態において、繊維集合体の密度は、 $0.01 \text{ g/cm}^3$ 以上かつ $0.040 \text{ g/cm}^3$ 以下であることがより好ましい。より高品質な繊維集合体を実現できる。

[0071] また、本実施の形態において、繊維集合体の厚さは、10mmより厚く大きくかつ100mmよりも薄いことがより好ましい。1 $\mu$ m以下の極細繊維からなる繊維集合体は、強度が低いと10mmを超える厚さを維持することが難しいが、本実施の形態のように繊維強度を高めることにより、繊維集合体の厚さを維持することができる。1 $\mu$ m以下の極細繊維からなり、かつ、10mmを超える厚さを持つ繊維集合体は、吸音材など、幅広い用途への適用が可能となる。なお、繊維集合体は、厚さが10mmより厚くかつ30mmよりも薄いことが更に好ましい。

[0072] 以上説明したように、本実施の形態の繊維集合体は、繊維径分布から得られるメジアン径が1 $\mu$ m以下の極細繊維でありながら、強度が高いものとなる。例えば、本実施の形態では、繊維一本の直径が500nm~1000nmであり、かつ、1N以上の強度を有する繊維集合体を得ることができる（後述の実施例参照）。

[0073] （実施例）

次に、本開示の実施例について、説明する。なお、本実施例は、上述した本開示の実施の形態を限定するものではない。まず、本実施例について評価する際に用いた項目および評価方法について説明する。

[0074] （1）溶融紡糸温度

日本アビオニクス社製 ThermoGEAR G120EXを用いて、紡糸時の溶融樹脂の温度を測定した。

[0075] （2）溶融粘度

アントンパール社製 回転式粘度計 MCR302を用いて、繊維集合体の溶融粘度の測定を行った。測定条件として、昇温速度を10℃/分とし、温度領域を180~400℃とし、せん断速度10（1/s）をとし、測定環境を窒素雰囲気中とした。この溶融粘度の測定結果を基に、上記（1）の溶融紡糸温度での溶融粘度を算出した。

[0076] （3）繊維径（メジアン径）

PHENOM-WORLD社製 走査型電子顕微鏡 Phenom G2

proを用いて、10,000倍に拡大した繊維集合体の二次元画像から、繊維200本をランダムに選出し、繊維直径をそれぞれ計測した。試料には、チャージ防止のために、予めAuをスパッタ蒸着した。この繊維径の測定結果を基に、メジアン径を算出した。

[0077] (4) 繊維強度

Stable Micro Systems社製 テクスチャーアナライザー TA.XT.plusを用いて、繊維集合体の引張強度を測定した。サンプルサイズは100×15mm、繊維重量（後述する図9において、wと表記する）は、0.3g、0.5g、0.7gの3種類とした。引張試験では、サンプルの長辺方向を各20mm分把持し、下端を固定した状態で上端を長辺方向に1mm/秒の速度で引き上げ、繊維集合体が切れる際の最大強度を測定し、その測定結果を繊維強度とした。

[0078] (5) 重量平均分子量Mw

Waters製 高温ゲル透過クロマトグラフィー GPC/V2000を用いて、重量平均分子量Mwを測定した。測定条件として、溶離液をオージクロロベンゼンとし、温度を145℃とし、試料濃度を1.0g/Lとし、流速を1.0mL/分とした。また、検出器として示差屈折計を用いた。

[0079] (6) 融点

セイコーインスツル製 示差熱量分析装置 DSC6220を用いて、熱可塑性樹脂の融点を測定した。測定条件として、試料重量を10mgとし、昇温速度を5℃/分とした。また、窒素雰囲気中にて50～220℃までの温度領域の測定を実施した。DSC測定結果から、吸熱反応がピークとなる温度を分析し、融点とした。

[0080] 次に、本実施例における極細繊維の生成条件のうち、共通の条件について、図1を参照しながら説明する。

[0081] 材料供給については、定量供給機101を用いず、ホッパー102内に材料のパウダーまたはペレットを直接投入した。スクリーポンプ103として単軸フルフライトスクリーポンプを用い、材料を加熱部112まで搬送

した。シリンダー105は、内径が20mm、長さが100mmであるものを用いた。スクリーンプンプ103の回転速度は、5rpmとした。溶融樹脂の加熱部112での滞留時間は、概ね10分程度とした。加熱部112にはバンドヒーターを計5個設置し、後述する各実施例の溶融樹脂温度に到達するように設定した。樹脂吐出ノズル106の径は、0.5mmとした。高温気流生成装置402において圧縮空気を0.3MPaに設定し、トーチヒーターを用いて、後述する各実施例の温度となるように、高速気流を加熱した。エアーノズルの内径は1mmとした。捕集体200としてロールを用い、繊維集合体を捕集した。ロールの外径は50cm、ロールの回転速度は1rpmとした。ロールの表面には、ポリプロピレン製で、目付20g/m<sup>2</sup>の不織布201を設置した。

[0082] (実施例1)

材料として、ポリプロピレンペレット (M<sub>w</sub>=87, 200、融点168℃、ホモポリマー) を用いた。溶融 (紡糸) 温度390℃、溶融樹脂吐出量3.0g/分で溶融樹脂を押し出し、風速50m/秒、風温400℃にて紡糸し、不織布上にて繊維を捕集することで、繊維集合体を作製した。上記溶融 (紡糸) 温度で測定した溶融樹脂粘度は200mPa・sであった。作製された繊維集合体の繊維径は0.70μm、厚み28mm、密度0.016g/cm<sup>3</sup>であり、繊維強度はそれぞれ1.0N、2.1N、3.2Nと良好であった。

[0083] (実施例2)

材料として、ポリプロピレンワックス (M<sub>w</sub>=48, 700、融点154℃、ホモポリマー) を用いた。溶融 (紡糸) 温度247℃、溶融樹脂吐出量2.6g/分で溶融樹脂を押し出し、風速50m/秒、風温300℃にて紡糸し、不織布上に繊維を捕集することで、繊維集合体を作製した。上記溶融 (紡糸) 温度で測定した溶融樹脂粘度は571mPa・sであった。作製された繊維集合体の繊維径は0.71μm、厚み22mm、密度0.021g/cm<sup>3</sup>であり、繊維強度はそれぞれ1.0N、1.6N、2.3Nと良好で

あった。

[0084] (実施例3)

材料として、ポリプロピレンワックス ( $M_w = 34,600$ 、融点  $154^\circ\text{C}$ 、ホモポリマー) を用いた。溶融 (紡糸) 温度  $201^\circ\text{C}$ 、溶融樹脂吐出量  $2.6\text{ g/分}$  で溶融樹脂を押し出し、風速  $50\text{ m/秒}$ 、風温  $250^\circ\text{C}$  にて紡糸し、不織布上に繊維を捕集することで、繊維集合体を作製した。上記溶融 (紡糸) 温度で測定した溶融樹脂粘度は  $514\text{ mPa}\cdot\text{s}$  であった。作製された繊維集合体の繊維径は  $0.58\text{ }\mu\text{m}$ 、厚み  $14\text{ mm}$ 、密度  $0.034\text{ g/cm}^3$  であり、繊維強度はどの繊維重量でも  $0.7\text{ N}$  と弱い値であった。

[0085] (比較例1)

材料として、ポリプロピレンペレット ( $M_w = 87,200$ 、融点  $168^\circ\text{C}$ 、ホモポリマー) を用いた。溶融 (紡糸) 温度  $300^\circ\text{C}$ 、溶融樹脂吐出量  $3.0\text{ g/分}$  で溶融樹脂を押し出し、風速  $50\text{ m/秒}$ 、風温  $300^\circ\text{C}$  にて紡糸し、不織布上に繊維を捕集することで、繊維集合体を作製した。上記溶融 (紡糸) 温度で測定した溶融樹脂粘度は  $2000\text{ mPa}\cdot\text{s}$  であった。作製された繊維集合体の繊維強度はそれぞれ  $4.5\text{ N}$ 、 $7.0\text{ N}$ 、 $10.0\text{ N}$  と大きい値が得られるものの、得られる繊維径は  $1.32\text{ }\mu\text{m}$  と細線化には至らない。なお、この繊維集合体の厚みは  $16\text{ mm}$ 、密度は  $0.029\text{ g/cm}^3$  であった。

[0086] (比較例2)

材料として、ポリプロピレンワックス ( $M_w = 10,300$ 、融点  $148^\circ\text{C}$ 、ホモポリマー) を用いた。溶融 (紡糸) 温度  $200^\circ\text{C}$ 、溶融樹脂吐出量  $2.6\text{ g/分}$  で溶融樹脂を押し出し、風速  $50\text{ m/秒}$ 、風温  $200^\circ\text{C}$  にて紡糸し、不織布上に繊維を捕集することで、繊維集合体を作製した。上記溶融 (紡糸) 温度で測定した溶融樹脂粘度は、 $35\text{ mPa}\cdot\text{s}$  であった。本比較例では、球状粒子を非常に多く含んだ集合体が形成された。

[0087] (比較例3)

材料として、ポリプロピレンワックス ( $M_w = 10,300$ 、融点  $148^\circ\text{C}$

℃、ホモポリマー）を用いた。溶融（紡糸）温度 180℃、溶融樹脂吐出量 2.6 g／分で溶融樹脂を押し出し、風速 50 m／秒、風温 200℃にて紡糸し、不織布上に繊維を捕集することで、繊維集合体を作製した。上記溶融（紡糸）温度で測定した溶融樹脂粘度は、46 mPa・s であった。作製された繊維集合体の繊維強度は、どの繊維重量でも 0.2 N と非常に小さく、かつ、球状粒子を多く含む繊維集合体となった。繊維径は 0.7 μm であった。なお、この繊維集合体の厚みは 10 mm、密度は 0.044 g／cm<sup>3</sup> であった。

[0088] 図 9 は、実施の形態に係る実施例および比較例の繊維集合体 202 の特性を示す図である。図 9 には、上述した実施例 1～3 および比較例 1～3 をまとめて示す。

[0089] ここで、図 9 に示す評価の欄において、「○」は「非常に良い」を意味し、繊維径が 1 μm 以下で、かつ、繊維強度が 1.0 N 以上の繊維集合体を得られた条件を示している。また、「△」は「良い」を意味し、繊維径が 1 μm 以下の繊維集合体を得られた条件を示している。また、「×」は「悪い」を意味し、繊維径が 1 μm 以上の繊維集合体を得られた条件を示している。

[0090] 図 9 に示すように、実施例 1～3 によれば、比較例 1～3 と比較して、繊維径が 1 μm 以下の極細繊維でありながら、繊維強度が強い繊維集合体を得られることが分かる。さらに、実施例 1 および 2 によれば、繊維強度が 1.0 N 以上の繊維集合体を得ることができ、より好ましい。

### 産業上の利用可能性

[0091] 本開示の繊維集合体は、例えば、吸音材、断熱材、吸着材、フィルターなど、幅広い産業用途に適用できる。

### 符号の説明

- [0092] 100 繊維生成装置  
101 定量供給機  
102 ホッパー  
103 スクリューポンプ

- 1 0 4 ヒーター
- 1 0 5 シリンダー
- 1 0 6 樹脂吐出ノズル
- 1 0 7 気流ノズル
- 1 1 1 供給部
- 1 1 2 加熱部
- 1 1 3 延伸部
- 1 1 4 捕集部
- 2 0 0 捕集体
- 2 0 1 不織布
- 2 0 2 繊維集合体
- 3 0 0 熱可塑性樹脂
- 4 0 0 溶融樹脂
- 4 0 1 高温気流
- 4 0 2 高温気流生成装置
- 5 0 0 極細繊維

## 請求の範囲

- [請求項1] 熱可塑性樹脂を溶融紡糸することによって得られる繊維集合体であって、  
前記繊維集合体の繊維径が $1\ \mu\text{m}$ 以下のメジアン径を有し、  
前記繊維集合体の溶融粘度が $100\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以上 $1000\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以下である、  
繊維集合体。
- [請求項2]  $400^{\circ}\text{C}$ 以下の温度領域において、前記繊維集合体の溶融粘度が、  
 $100\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以上 $1000\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以下である、  
請求項1に記載の繊維集合体。
- [請求項3] 前記熱可塑性樹脂の融点より $10^{\circ}\text{C}$ 以上高い温度領域において、前記繊維集合体の溶融粘度が、 $100\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以上 $1000\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以下である、  
請求項1または2に記載の繊維集合体。
- [請求項4]  $T$ を前記繊維集合体の溶融温度とした場合、  
前記繊維集合体の溶融粘度が、 $10^{11}T^{-3.6}\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以上 $10^{12}T^{-3.6}\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以下である、  
請求項1から3のいずれか1項に記載の繊維集合体。
- [請求項5]  $T$ を前記繊維集合体の溶融温度とした場合、  
前記熱可塑性樹脂の融点より $10^{\circ}\text{C}$ 以上高く $400^{\circ}\text{C}$ 以下である温度領域において、前記繊維集合体の溶融粘度が、 $200\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以上 $600\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以下であり、かつ、 $2\times 10^{11}T^{-3.6}\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以上 $10^{12}T^{-3.6}\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以下である、  
請求項1から4のいずれか1項に記載の繊維集合体。
- [請求項6]  $T$ を前記繊維集合体の溶融温度とした場合、  
前記熱可塑性樹脂の融点より $10^{\circ}\text{C}$ 以上高く $350^{\circ}\text{C}$ 以下である温度領域において、前記繊維集合体の溶融粘度が、 $200\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以上 $600\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以下であり、かつ、 $2\times 10^{11}T^{-3.6}\text{ mPa}\cdot\text{s}$

s 以上  $10^{12} \text{ T}^{-3} \cdot 6 \text{ mPa} \cdot \text{s}$  以下である、

請求項 1 から 5 のいずれか 1 項に記載の繊維集合体。

[請求項7] 前記繊維集合体は、密度が  $0.01 \text{ g/cm}^3$  以上かつ  $0.040 \text{ g/cm}^3$  以下である、

請求項 1 から 6 のいずれか 1 項に記載の繊維集合体。

[請求項8] 前記繊維集合体は、厚さが  $10 \text{ mm}$  より厚くかつ  $100 \text{ mm}$  よりも薄い、

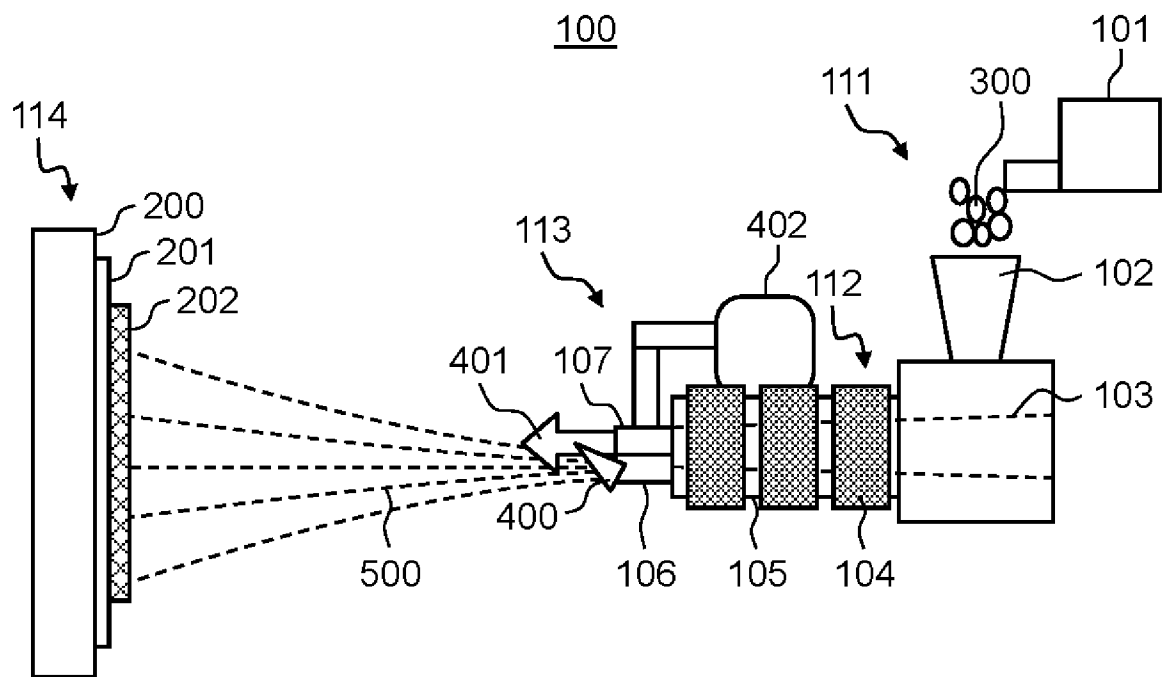
請求項 1 から 7 のいずれか 1 項に記載の繊維集合体。

[請求項9] 前記繊維集合体は、厚さが  $10 \text{ mm}$  より厚くかつ  $30 \text{ mm}$  よりも薄い、

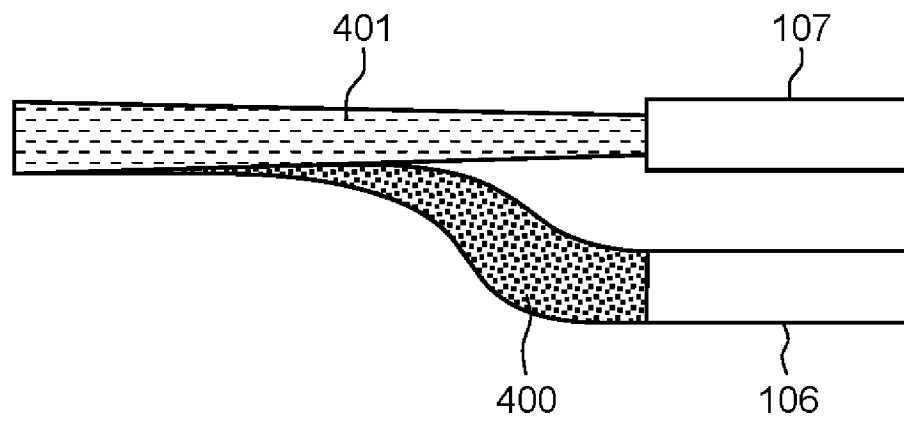
請求項 1 から 7 のいずれか 1 項に記載の繊維集合体。

[請求項10] 前記熱可塑性樹脂は、ポリオレフィン系樹脂である、  
請求項 1 から 9 のいずれか 1 項に記載の繊維集合体。

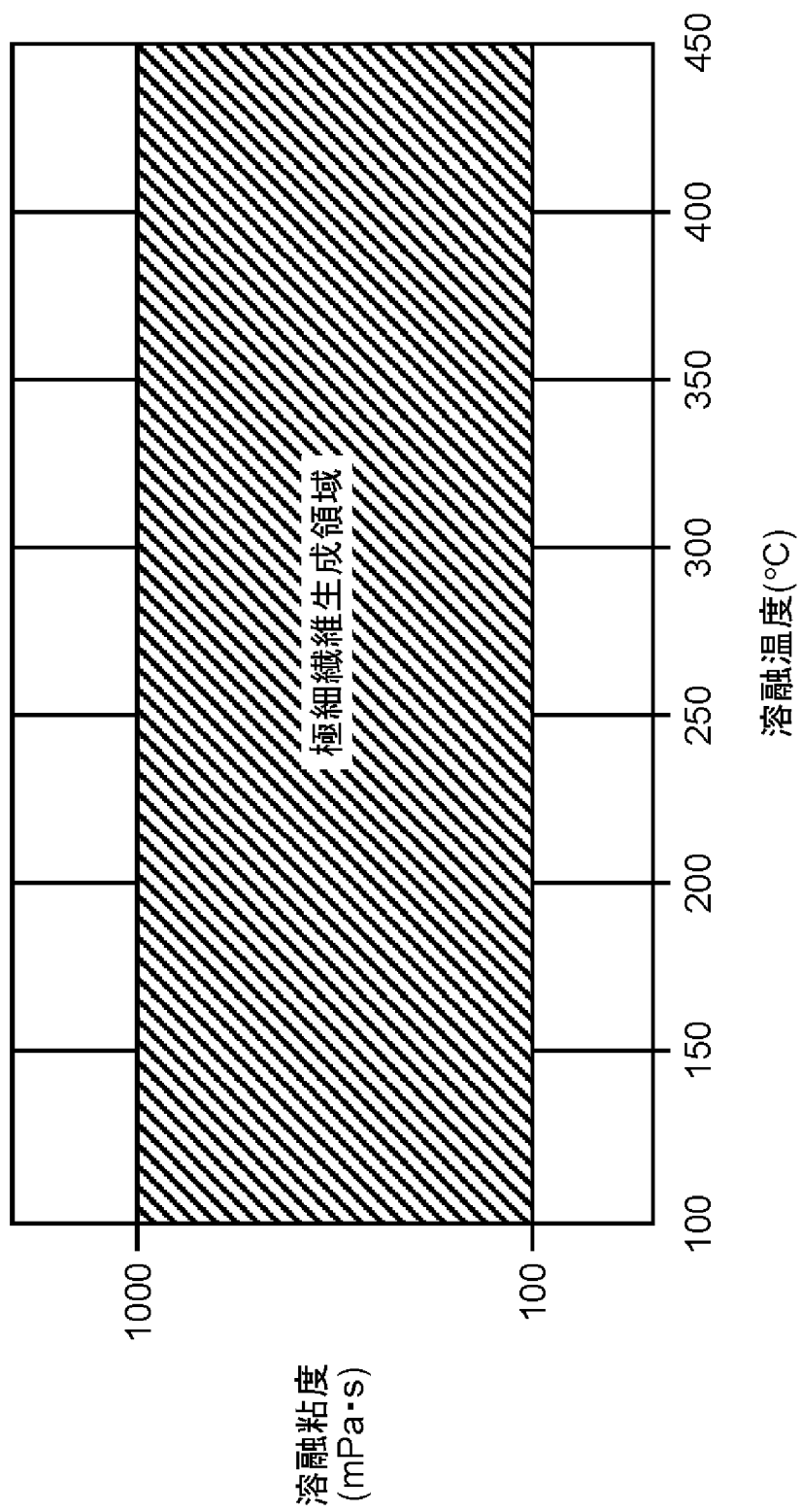
[図1]



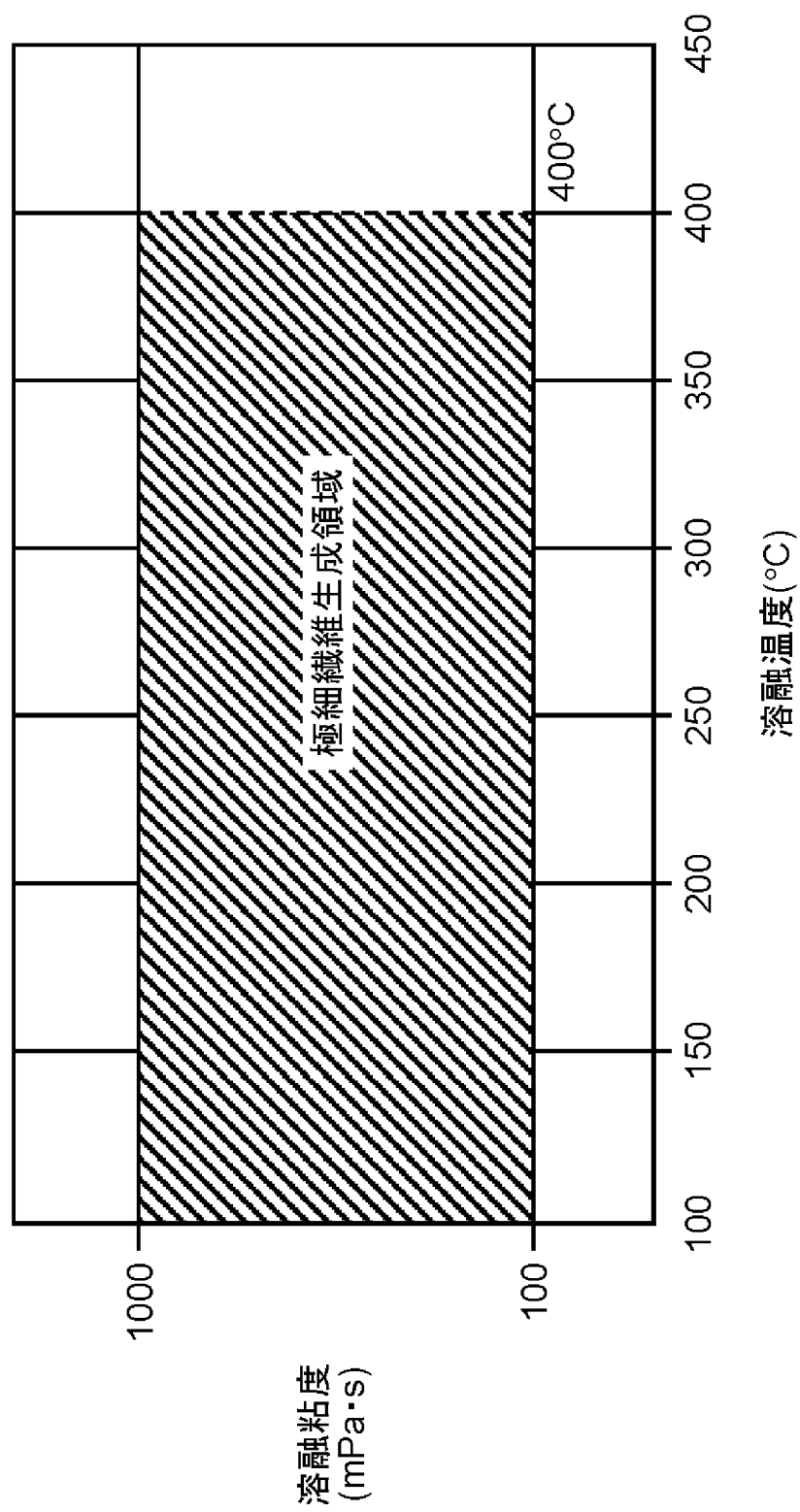
[図2]



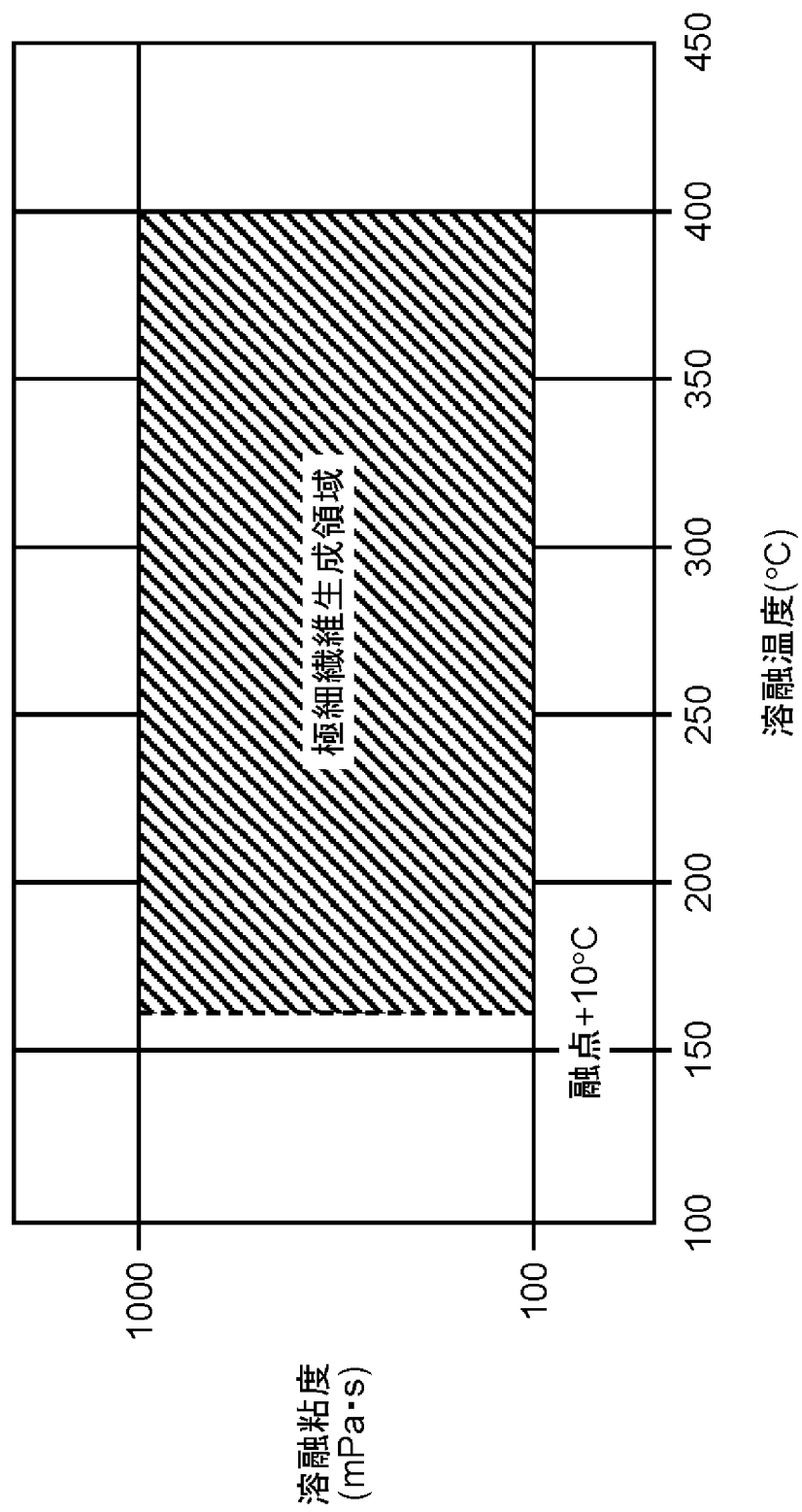
[図3]



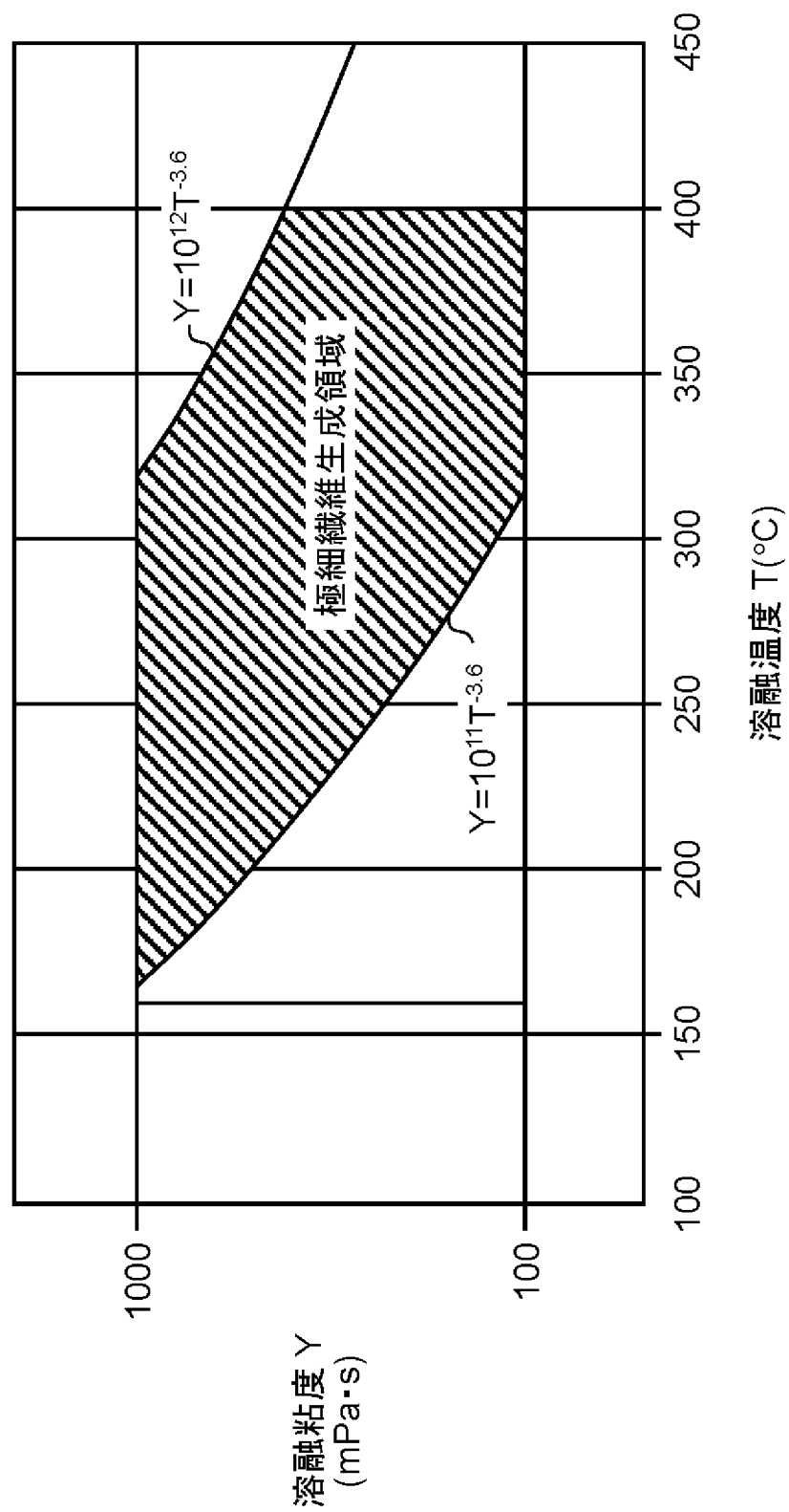
[図4]



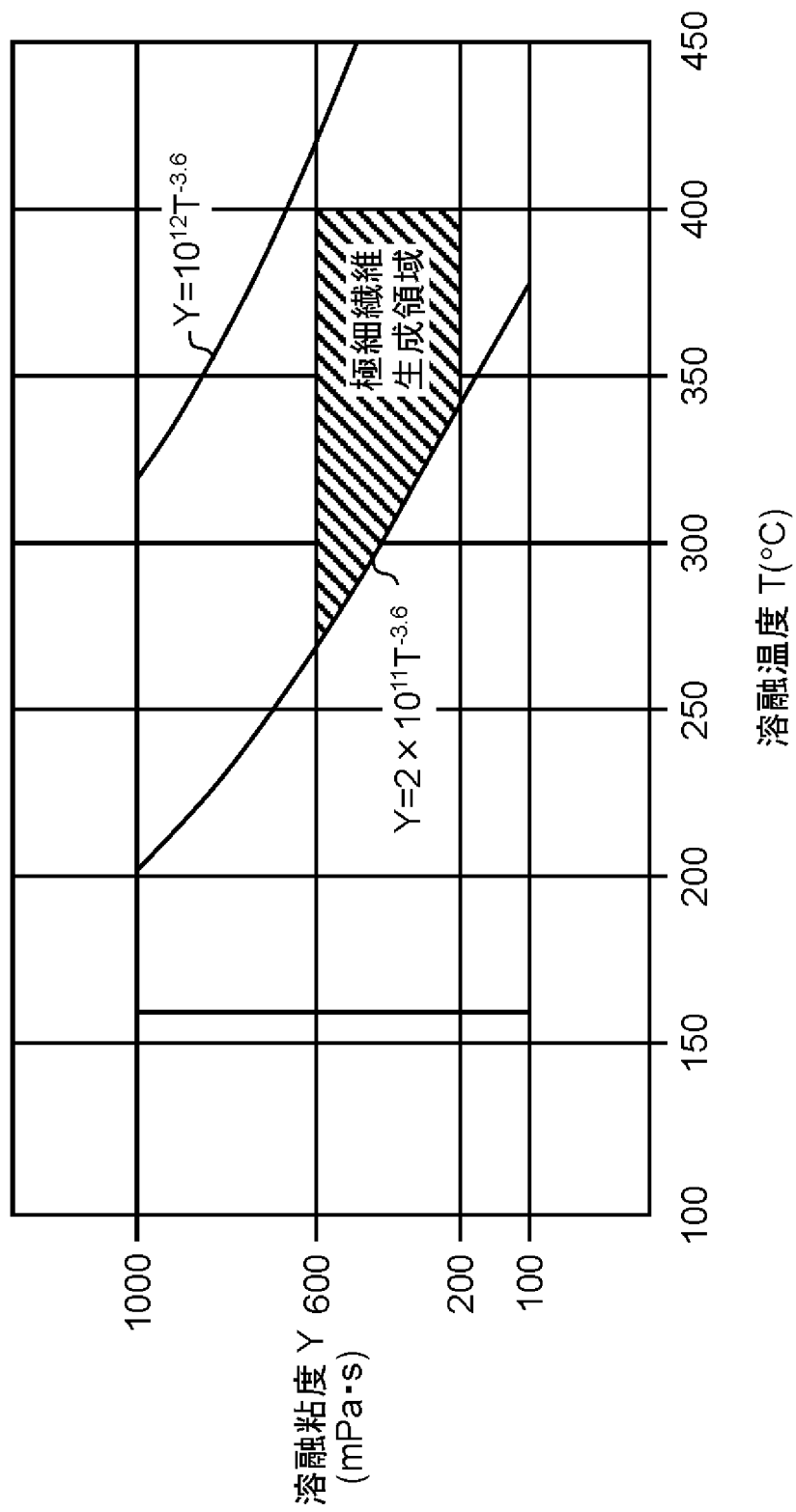
[図5]



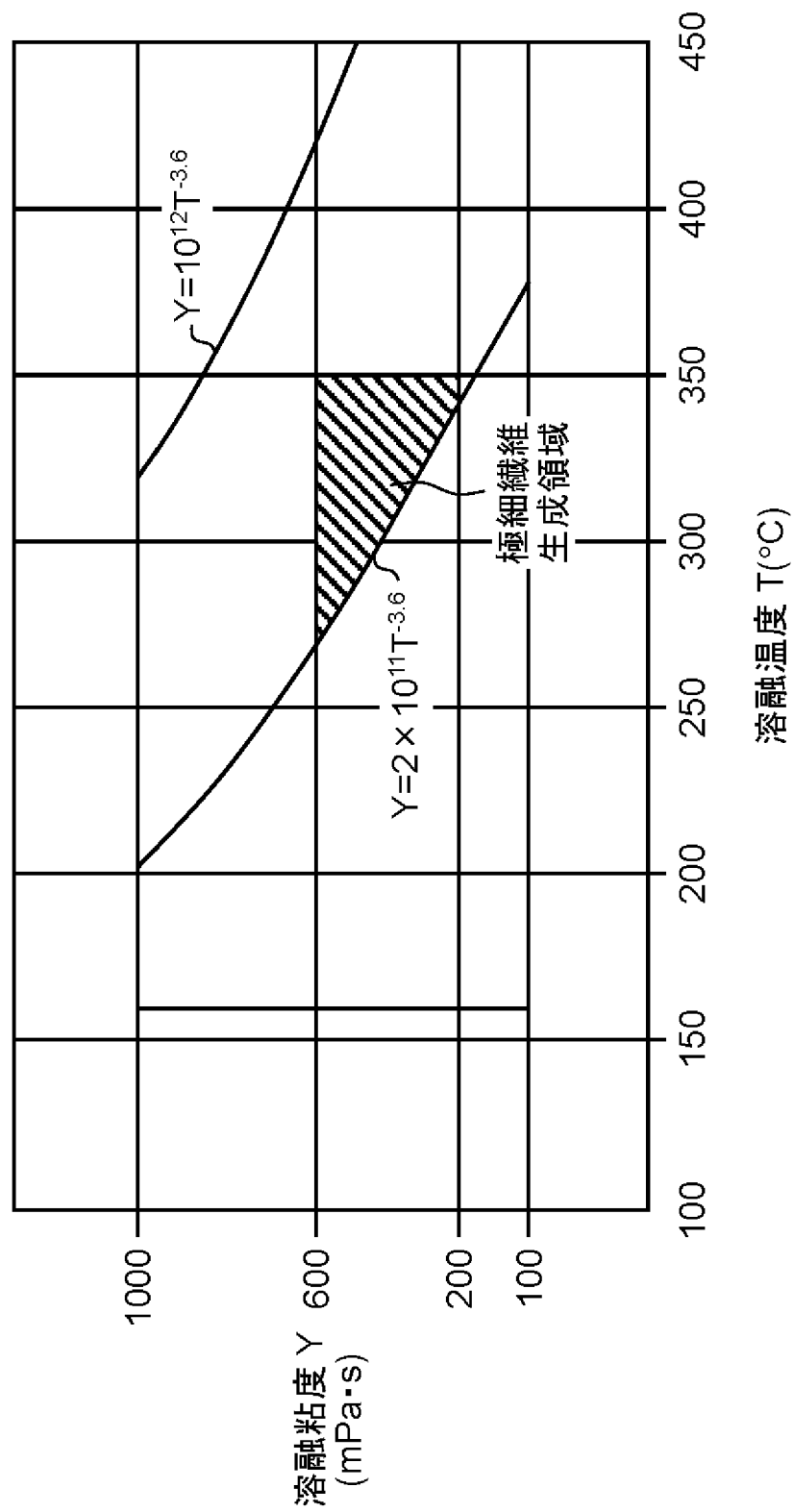
[図6]



[図7]



[図8]



[図9]

|                      | 実施例<br>1 | 実施例<br>2 | 実施例<br>3 | 比較例<br>1 | 比較例<br>2 | 比較例<br>3 |
|----------------------|----------|----------|----------|----------|----------|----------|
| 溶解(紡糸)温度:°C          | 390      | 247      | 201      | 300      | 200      | 180      |
| 溶解(紡糸)粘度:mPa・s       | 200      | 571      | 514      | 2000     | 35       | 46       |
| 繊維径:μm               | 0.7      | 0.71     | 0.58     | 1.32     | —        | 0.7      |
| 厚み:mm                | 28       | 22       | 14       | 16       | —        | 10       |
| 密度:g/cm <sup>3</sup> | 0.016    | 0.021    | 0.034    | 0.029    | —        | 0.044    |
| 繊維強度:N               | w=0.3g   | 1        | 0.7      | 4.5      | 0.1      | 0.2      |
|                      | w=0.5g   | 2.1      | 0.7      | 7        | 0.1      | 0.2      |
|                      | w=0.7g   | 3.2      | 0.7      | 10       | 0.1      | 0.2      |
| 評価                   | ○        | ○        | △        | ×        | ×        | ×        |

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/005117

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

D04H3/14(2012.01)i, D01F6/04(2006.01)i, G10K11/16(2006.01)i, G10K11/162(2006.01)i

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)

D04H3/14, D01F6/04, G10K11/16, G10K11/162

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

|                           |           |                            |           |
|---------------------------|-----------|----------------------------|-----------|
| Jitsuyo Shinan Koho       | 1922-1996 | Jitsuyo Shinan Toroku Koho | 1996-2017 |
| Kokai Jitsuyo Shinan Koho | 1971-2017 | Toroku Jitsuyo Shinan Koho | 1994-2017 |

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

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                                                    | Relevant to claim No. |
|-----------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| X         | JP 2009-062630 A (National University Corporation University of Fukui),<br>26 March 2009 (26.03.2009),<br>claims; paragraphs [0024], [0075], [0080];<br>examples<br>(Family: none)    | 1-10                  |
| Y         | JP 55-132708 A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.),<br>15 October 1980 (15.10.1980),<br>claims; page 1, lower right column; page 5,<br>lower right column; examples<br>(Family: none) | 1-10                  |

☒ 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  
24 February 2017 (24.02.17)

Date of mailing of the international search report  
07 March 2017 (07.03.17)

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/JP2016/005117

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                                                                      | Relevant to claim No. |
|-----------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| Y         | JP 03-249207 A (Toyobo Co., Ltd.),<br>07 November 1991 (07.11.1991),<br>page 3, upper right column<br>(Family: none)                                                                                    | 1-10                  |
| A         | JP 63-006107 A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.),<br>12 January 1988 (12.01.1988),<br>entire text<br>(Family: none)                                                                                   | 1-10                  |
| A         | JP 03-279450 A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.),<br>10 December 1991 (10.12.1991),<br>entire text<br>(Family: none)                                                                                  | 1-10                  |
| A         | JP 2007-239114 A (National University Corporation University of Fukui),<br>20 September 2007 (20.09.2007),<br>entire text<br>& WO 2007/105479 A1                                                        | 1-10                  |
| A         | JP 2011-501790 A (PPG Industries Ohio, Inc.),<br>13 January 2011 (13.01.2011),<br>entire text<br>& US 2009/0102100 A1 & WO 2009/055413 A1<br>& EP 2209933 A1 & KR 10-2010-0088141 A<br>& CN 101883882 A | 1-10                  |

## A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. D04H3/14(2012.01)i, D01F6/04(2006.01)i, G10K11/16(2006.01)i, G10K11/162(2006.01)i

## 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））

Int.Cl. D04H3/14, D01F6/04, G10K11/16, G10K11/162

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 | 1971-2017年 |
| 日本国実用新案登録公報 | 1996-2017年 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1994-2017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<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 2009-062630 A（国立大学法人福井大学）2009.03.26,<br>特許請求の範囲、[0024]、[0075]、[0080]、実施例<br>（ファミリーなし） | 1-10           |
| Y               | JP 55-132708 A（旭化成工業株式会社）1980.10.15,<br>特許請求の範囲、第1頁右下欄、第5頁右下欄、実施例<br>（ファミリーなし）           | 1-10           |

☒ 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矛盾するものではなく、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

24.02.2017

国際調査報告の発送日

07.03.2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

阿川 寛樹

4S

4437

電話番号 03-3581-1101 内線 3474

| C (続き) . 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 |
| Y                     | JP 03-249207 A (東洋紡績株式会社) 1991. 11. 07,<br>第3頁右上欄<br>(ファミリーなし)                                                                                                                    | 1-10           |
| A                     | JP 63-006107 A (旭化成工業株式会社) 1988. 01. 12,<br>全文<br>(ファミリーなし)                                                                                                                       | 1-10           |
| A                     | JP 03-279450 A (旭化成工業株式会社) 1991. 12. 10,<br>全文<br>(ファミリーなし)                                                                                                                       | 1-10           |
| A                     | JP 2007-239114 A (国立大学法人福井大学) 2007. 09. 20,<br>全文<br>& WO 2007/105479 A1                                                                                                          | 1-10           |
| A                     | JP 2011-501790 A (ピーピージー インダストリーズ オハイオ,<br>インコーポレイテッド) 2011. 01. 13,<br>全文<br>& US 2009/0102100 A1 & WO 2009/055413 A1 & EP 2209933 A1<br>& KR 10-2010-0088141 A & CN 101883882 A | 1-10           |