(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12月30日(30.12.2020)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2020/262344 A1

(51) 国際特許分類:
C08K 5/12 (2006.01) *C08L 101/00* (2006.01)
C08K 7/02 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2020/024516

(22) 国際出願日： 2020年6月23日(23.06.2020)

(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 2019-120698 2019年6月28日(28.06.2019) JP

(71) 出願人: 大王製紙株式会社 (**DAIO PAPER CORPORATION**) [JP/JP]; 〒7990492 愛媛県四国中央市三島紙屋町２番６０号 Ehime (JP).

(72) 発明者: 落合 優(**OCHIAI, Yu**); 〒7990492 愛媛県四国中央市三島紙屋町５番１号 大王製紙株式会社内 Ehime (JP). 松末 一紘(**MATSUSUE, Ikko**); 〒7990492 愛媛県四国中央市三島紙屋町５番１号 大王製紙株式会社内 Ehime (JP). 大川 淳也(**OKAWA, Junya**); 〒7990492 愛媛県四国中央市三島紙屋町５番１号 大王製紙株式会社内 Ehime (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人永井国際特許事務所 (**NAGAI INTERNATIONAL PATENT BUREAU**); 〒1030027 東京都中央区日本橋二丁目２番６号 日本橋通り二丁目ビル５階 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, 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, 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:** CELLULOSE FIBER COMPOSITE RECYCLED RESIN AND PRODUCTION METHOD THEREFOR

(54) 発明の名称： セルロース繊維複合再生樹脂及びその製造方法

(57) **Abstract:** [Problem] To provide a cellulose fiber composite recycled resin having excellent strength and a production method therefor. [Solution] A cellulose fiber composite recycled resin is configured so as to include: a mixture of fibrous cellulose, at least one of a resin powder and resin pellets, and at least one substance selected from phthalic acid, phthalate salts, phthalic acid derivatives, and phthalate salt derivatives; and a recycled resin. Furthermore, in producing the composite resin, at least one of the resin powder and the resin pellets is mixed into a slurry of cellulose fibers to create a first mixture, the recycled resin is mixed into the first mixture to create a second mixture, the second mixture is made into a substance to be kneaded, and microfibers are used as some or all of the cellulose fibers.

(57) 要約：【課題】強度に優れるセルロース繊維複合再生樹脂及びその製造方法を提供する。【解決手段】セルロース繊維複合再生樹脂を、繊維セルロースと、樹脂粉末と樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方と、フタル酸、フタル酸塩類、フタル酸の誘導体、及びフタル酸塩類の誘導体の中から選択された少なくともいずれか１種以上の物質と、の混合物と、再生樹脂とを含むものとする。また、この複合樹脂を製造するにあたっては、セルロース繊維のスラリーに、樹脂粉末と樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方を混合して第１混合物とし、この第１混合物に再生樹脂を混合して第２混合物とし、この第２混合物を混錬するものとし、前記セルロース繊維の一部又は全部として微細繊維を使用する。

WO 2020/262344 A1

明　細　書

発明の名称 ： セルロース繊維複合再生樹脂及びその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、セルロース繊維複合再生樹脂及びその製造方法に関するものである。

背景技術

[0002] セルロースナノファイバーは、通常、分散液（スラリー）の状態で得られるが、分散液の状態で輸送するとコストが嵩む。そこで、事業化するにあたっては、セルロースナノファイバーの分散液を乾燥し、乾燥物として輸送するのが合理的である。しかしながら、分散液を乾燥させると、セルロースナノファイバー同士が結合して強く凝集する。したがって、セルロースナノファイバーを再び水に分散させるのが難しく、乾燥前のようには分散しなくなる。

[0003] このような背景のもと、本発明者等は、セルロースナノファイバーの再分散性を向上させることを目的として、ヒドロキシ酸類の使用を提案し（特許文献１参照）、また、グリセリン又はグリセリン誘導体の使用を提案した（特許文献２参照）。これらの提案によれば、セルロースナノファイバーの再分散性は十分に向上する。

[0004] 一方、セルロースナノファイバー、マイクロ繊維セルロース等の微細繊維は、樹脂の補強材としての使用が脚光を浴びている。

また、近年の環境問題に対する意識の高まりから、樹脂をリサイクルして資源の有効利用を図ることが求められている。しかしながら、リサイクルされた樹脂（再生樹脂）は、紫外線や経年劣化によって強度等の品質が低下することから、十分に有効利用できているとは言い難い状況である。そこで、本発明者等は、上記提案に従って乾燥物とした微細繊維について、再生樹脂の補強材としての性能を調べるために各種試験を行った。しかるに、この試験の過程において、上記提案による乾燥物を使用した場合、得られるセルロ

ース繊維複合再生樹脂は、強度の点で改善の余地があることが分かった。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開２０１７－２１３８号公報

特許文献2：特開２０１７－１０１１８４号公報

特許文献3：特開２００２－５９４２５号公報

特許文献4：特許４４０９９２３号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 本発明が解決しようとする主たる課題は、強度に優れるセルロース繊維複合再生樹脂及びその製造方法を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明者等は各種試験を行うなかで、特許文献１，２の乾燥物は水に対する再分散性に優れるが、樹脂に対する分散性には劣ることを知見した。このことが樹脂に乾燥物（セルロースナノファイバー、マイクロ繊維セルロース等）を混合しても当該樹脂の強度が期待するほど向上しない一因になっていたのである。この点、乾燥物をいったん水に分散させ、分散液の状態で樹脂と混合することもできるが、樹脂との混合に伴ってセルロースナノファイバー等の水分を蒸発させるというのは非常に熱効率が悪い。このような背景のもと想到するに至ったのが下記に示す態様である。

[0008] （第１の態様）

セルロース繊維のスラリーに、樹脂粉末と樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方を混合して第１混合物とし、

この第１混合物を再生樹脂と混練するものとし、

前記セルロース繊維の一部又は全部として微細繊維を使用する、

ことを特徴とするセルロース繊維複合再生樹脂の製造方法。

[0009] 従来再生樹脂の強度を高める目的で、微細繊維を同再生樹脂と混錬してセ

ルロース繊維複合再生樹脂を製造したが、このセルロース繊維複合再生樹脂は十分な強度にならなかった。本発明者等は、微細繊維が十分な強度にならなかった理由として、次記のように推測する。

[0010] セルロース繊維は、それ自体が三次元ネットワーク構造を構築しており、外力に対する応力（弾性力）を発揮する。セルロース繊維が十分に分散されて再生樹脂全体と混合されていないと、単純にセルロース繊維を再生樹脂と混錬しても、再生樹脂とセルロース繊維とが十分に混合された部分と、十分に混合されていない部分、すなわち、ムラが生じる。ムラが生じる理由は定かでは無いが、セルロース繊維を再生樹脂と混合した際にセルロース繊維が凝集し、再生樹脂中にセルロース繊維が均一に分散していないためと考えられる。再生樹脂とセルロース繊維が十分に混合されていない部分では、再生樹脂相互におけるセルロース繊維の三次元ネットワーク構造の介在が不十分であり、セルロース繊維複合再生樹脂の強度が高いものとはならない。

[0011] そこで、セルロース繊維の分散性を向上させるため、セルロース繊維のスラリーに、樹脂粉末と樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方を混合させた。この混合操作により、同樹脂の大部分にセルロース繊維が付着し、セルロース繊維の分散性が向上する。この混合物を再生樹脂と混錬して製造されたものは、再生樹脂相互において、適度に分散されたセルロース繊維による三次元ネットワーク構造が無数に介在されるので、強度が向上する、と発明者等は推測する。

[0012] なお、再生樹脂の強度を向上させる手法に、使用済み樹脂に未使用の樹脂を混ぜてリサイクル樹脂を成形することで、強度低下を抑制する手法（特許文献３）や、使用済み樹脂にゴム質重合体や無機充填材を添加させてリサイクル樹脂を成形することで、強度低下を抑制する手法（特許文献４）がある。これらの手法は、セルロース繊維を使用していない点で本発明と異なる。

[0013] （第２の態様）

前記第１混合物に前記再生樹脂を混合して第２混合物とし、

この第２混合物を混錬するものとし、

前記セルロース繊維の一部又は全部として微細繊維を使用する、

ことを特徴とするセルロース繊維複合再生樹脂の製造方法。

[0014] （第３の態様）

第１の態様又は第２の態様に加え、

前記再生樹脂５０質量部に対して、

前記樹脂粉末と前記樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方が０質量部を超え、１００質量部以下とする、

態様を挙げることができる。

[0015] （第４の態様）

第１の態様又は第２の態様に加え、

前記樹脂粉末の平均粒子径が１～１５００μｍである、

態様を挙げることができる。

[0016] （第５の態様）

第１の態様又は第２の態様に加え、

前記樹脂ペレットの平均粒子径が１～１０ｍｍである、

態様を挙げることができる。

[0017] （第６の態様）

第１の態様又は第２の態様に加え、

前記樹脂粉末と前記樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方の成分と、

前記再生樹脂の成分とが同一である、

態様を挙げることができる。

[0018] （第７の態様）

第１の態様又は第２の態様に加え、

さらに、

多塩基酸、多塩基酸塩類、多塩基酸の誘導体、及び多塩基酸塩類の誘導体の中から選択された少なくともいずれか１種以上の物質を前記スラリーに混合する、

態様を挙げることができる。

[0019] （第８の態様）

第１の態様又は第２の態様に加え、

さらに、

フタル酸、フタル酸塩類、フタル酸の誘導体、及びフタル酸塩類の誘導体の中から選択された少なくともいずれか１種以上の物質を前記スラリーに混合する、

態様を挙げることができる。

[0020] （第９の態様）

第１の態様に加え、

前記第１混合物を乾燥及び粉砕して粉状物としてから前記再生樹脂と混錬するものとする、

態様を挙げることができる。

[0021] （第１０の態様）

平均繊維長０．０２～３ｍｍであるマイクロ繊維セルロースと、

樹脂粉末と樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方と、

フタル酸、フタル酸塩類、フタル酸の誘導体、及びフタル酸塩類の誘導体の中から選択された少なくともいずれか１種以上の物質と、の混合物と、

再生樹脂とを含む、

ことを特徴とするセルロース繊維複合再生樹脂。

発明の効果

[0022] 本発明によると、強度に優れるセルロース繊維複合再生樹脂となり、及び強度に優れるセルロース繊維複合再生樹脂の製造方法となる。

発明を実施するための形態

[0023] 次に、発明を実施するための形態を説明する。なお、本実施の形態は本発明の一例である。本発明の範囲は、本実施の形態の範囲に限定されない。

[0024] 本形態のセルロース繊維複合再生樹脂は、セルロース繊維及び樹脂粉末の混合物と、再生樹脂とを含む。セルロース繊維は、例えば、セルロースナノファイバー（ＣＮＦ）やマイクロ繊維セルロース（ＭＦＣ）等の微細繊維が

混合されてなる。

[0025] 樹脂粉末としては、バージン樹脂（リサイクルされていない樹脂や原料樹脂、未使用の樹脂）の粉末を使用することができる。樹脂粉末の平均粒子径は１～１５００μｍ、より好ましくは１００～１０００μｍとするとよい。樹脂粉末の平均粒子径がこの範囲であれば、製造物が好適な強度になる。この範囲より小さいと、セルロース繊維に対して樹脂粉末が小さ過ぎ、また微細繊維の分散化が十分になされないと推測される。

[0026] 樹脂ペレットとしては、バージン樹脂のペレットを使用することができる。樹脂ペレットの平均粒子径は１～１０ｍｍ、より好ましくは１～５ｍｍとするとよい。樹脂ペレットの平均粒子径がこの範囲であれば、製造物が所望の強度になる。この範囲より大きいと、微細繊維の分散化が十分になされないと推測される。

[0027] 再生樹脂は、使用済みの樹脂を原料として製造された樹脂をいう。再生樹脂としては、廃棄された樹脂材料を再生処理して得られた樹脂を使用することができる。再生処理された回数は特に限定されず、１回でもよいし複数回でもよい。一般的に再生樹脂はバージン樹脂よりも機械的性質に劣る。これは繰り返し粉砕、成形されることによる熱履歴、物理的衝撃、紫外線反応、加水分解反応等を受け、樹脂の分子量が小さくなり強度が低下することによるものであると言われている。本技術ではポリプロピレンの他にポリエチレン、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル、ポリエステル等が混在している再生樹脂であっても強度物性を向上させることができ、好ましくは単一の樹脂に選別された再生樹脂がよく、より好ましくはポリプロピレンの再生樹脂がよい。

[0028] セルロース繊維複合再生樹脂は、例えば、セルロース繊維のスラリーに樹脂粉末を混合して混合物とし、この混合物を再生樹脂と混練することで得ることができる。再生樹脂と混錬するに先立って、この混合物を乾燥及び粉砕して粉状物としてもよい。以下、詳細に説明する。

[0029] （セルロースナノファイバー）

本形態のセルロース繊維は、その一部又は全部として微細繊維を含む。微細繊維としては、セルロースナノファイバー及びマイクロ繊維セルロースの少なくともいずれか一方を、好ましくは、マイクロ繊維セルロースを含む。

[0030] セルロースナノファイバーは、再生樹脂の強度を大幅に向上する役割を有する。セルロースナノファイバーは、原料パルプを解繊（微細化）することで得ることができる。

[0031] セルロースナノファイバーの原料パルプとしては、例えば、広葉樹、針葉樹等を原料とする木材パルプ、ワラ・バガス・綿・麻・じん皮繊維等を原料とする非木材パルプ、回収古紙、損紙等を原料とする古紙パルプ（ＤＩＰ）等の中から１種又は２種以上を選択して使用することができる。なお、以上の各種原料は、例えば、セルロース系パウダーなどと言われる粉砕物（粉状物）の状態等であってもよい。

[0032] ただし、不純物の混入を可及的に避けるために、セルロースナノファイバーの原料パルプとしては、木材パルプを使用するのが好ましい。木材パルプとしては、例えば、広葉樹クラフトパルプ（ＬＫＰ）、針葉樹クラフトパルプ（ＮＫＰ）等の化学パルプ、機械パルプ（ＴＭＰ）等の中から１種又は２種以上を選択して使用することができる。

[0033] 広葉樹クラフトパルプは、広葉樹晒クラフトパルプであっても、広葉樹未晒クラフトパルプであっても、広葉樹半晒クラフトパルプであってもよい。同様に、針葉樹クラフトパルプは、針葉樹晒クラフトパルプであっても、針葉樹未晒クラフトパルプであっても、針葉樹半晒クラフトパルプであってもよい。

[0034] 機械パルプとしては、例えば、ストーングランドパルプ（ＳＧＰ）、加圧ストーングランドパルプ（ＰＧＷ）、リファイナーグランドパルプ（ＲＧＰ）、ケミグランドパルプ（ＣＧＰ）、サーモグランドパルプ（ＴＧＰ）、グランドパルプ（ＧＰ）、サーモメカニカルパルプ（ＴＭＰ）、ケミサーモメカニカルパルプ（ＣＴＭＰ）、リファイナーメカニカルパルプ（ＲＭＰ）、漂白サーモメカニカルパルプ（ＢＴＭＰ）等の中から１種又は２種以上を選

択して使用することができる。

[0035] 原料パルプは、解繊するに先立って化学的手法によって前処理することもできる。化学的手法による前処理としては、例えば、酸による多糖の加水分解（酸処理）、酵素による多糖の加水分解（酵素処理）、アルカリによる多糖の膨潤（アルカリ処理）、酸化剤による多糖の酸化（酸化処理）、還元剤による多糖の還元（還元処理）等を例示することができる。

[0036] 解繊に先立ってアルカリ処理すると、パルプが持つヘミセルロースやセルロースの水酸基が一部解離し、分子がアニオン化することで分子内及び分子間水素結合が弱まり、解繊におけるセルロース繊維の分散が促進される。

[0037] アルカリ処理に使用するアルカリとしては、例えば、水酸化ナトリウム、水酸化リチウム、水酸化カリウム、アンモニア水溶液、水酸化テトラメチルアンモニウム、水酸化テトラエチルアンモニウム、水酸化テトラブチルアンモニウム、水酸化ベンジルトリメチルアンモニウム等の有機アルカリ等を使用することができる。ただし、製造コストの観点からは、水酸化ナトリウムを使用するのが好ましい。

[0038] 解繊に先立って酵素処理や酸処理、酸化処理を施すと、セルロースナノファイバーの保水度を低く、結晶化度を高くすることができ、かつ均質性を高くすることができる。この点、セルロースナノファイバーの保水度が低いと脱水し易くなり、セルロース繊維スラリーの脱水性が向上する。

[0039] 原料パルプを酵素処理や酸処理、酸化処理すると、パルプが持つヘミセルロースやセルロースの非晶領域が分解される。結果、微細化処理のエネルギーを低減することができ、セルロース繊維の均一性や分散性を向上することができる。ただし、前処理は、セルロースナノファイバーのアスペクト比を低下させるため、再生樹脂の強度を高めるという点では、過度の前処理を避けるのが好ましい。

[0040] 原料パルプの解繊は、例えば、ビーター、高圧ホモジナイザー、高圧均質化装置等のホモジナイザー、グラインダー、摩砕機等の石臼式摩擦機、単軸混練機、多軸混練機、ニーダーリファイナー、ジェットミル等を使用して原

料パルプを叩解することによって行うことができる。ただし、リファイナーやジェットミルを使用して行うのが好ましい。

[0041] 原料パルプの解繊は、得られるセルロースナノファイバーの平均繊維径、平均繊維長、保水度、結晶化度、擬似粒度分布のピーク値、パルプ粘度、分散液のＢ型粘度が、以下に示すような所望の値又は評価となるように行うのが好ましい。

[0042] セルロースナノファイバーの平均繊維径（平均繊維幅。単繊維の直径平均。）は、好ましくは３～１００ｎｍ、より好ましくは１０～８０ｎｍ、特に好ましくは２０～６０ｎｍである。セルロースナノファイバーの平均繊維径が３ｎｍを下回ると、繊維構造を保つことができなくなり、樹脂の補強効果が十分得られなくなるおそれがある。また、セルロースナノファイバーを分散剤と混合する形態においては、分散剤がセルロースナノファイバーを十分に覆わなくなり（纏わりつかなくなり）、樹脂中での再分散性の向上効果が不十分になるおそれがある。他方、セルロースナノファイバーの平均繊維径が１００ｎｍを上回ると、セルロースナノファイバー１本当たりに含まれるセルロース単結晶の個数が増えるため、補強効果が低くなるおそれがある。

[0043] セルロースナノファイバーの平均繊維径は、例えば、原料パルプの選定、前処理、解繊等によって調整することができる。

[0044] セルロースナノファイバーの平均繊維径の測定方法は、次のとおりである。

まず、固形分濃度０．０１～０．１質量％のセルロースナノファイバーの水分散液１００ｍｌをテフロン（登録商標）製メンブレンフィルターでろ過し、エタノール１００ｍｌで１回、ｔ－ブタノール２０ｍｌで３回溶媒置換する。次に、凍結乾燥し、オスミウムコーティングして試料とする。この試料について、構成する繊維の幅に応じて３，０００倍～３０，０００倍のいずれかの倍率で電子顕微鏡ＳＥＭ画像による観察を行う。具体的には、観察画像に二本の対角線を引き、対角線の交点を通過する直線を任意に三本引く。さらに、この三本の直線と交錯する合計１００本の繊維の幅を目視で計測

する。そして、計測値の中位径を平均繊維径とする。

[0045] セルロースナノファイバーの平均繊維長（単繊維の長さ）は、好ましくは０．１～１，０００μｍ、より好ましくは０．５～５００μｍ、特に好ましくは１～１００μｍである。セルロースナノファイバーの平均繊維長が０．１μｍを下回ると、セルロースナノファイバー同士の三次元ネットワークを構築できず、補強効果が低下するおそれがある。他方、セルロースナノファイバーの平均繊維長が１，０００μｍを上回ると、繊維同士が絡み易くなり、再分散性が十分に向上しないおそれがある。

[0046] セルロースナノファイバーの平均繊維長は、例えば、原料パルプの選定、前処理、解繊等によって調整することができる。

[0047] セルロースナノファイバーの平均繊維長の測定方法は、平均繊維径の場合と同様にして、各繊維の長さを目視で計測する。計測値の中位長を平均繊維長とする。

[0048] セルロースナノファイバーの保水度は、好ましくは２５０～５００％、より好ましくは２８０～４９０％、特に好ましくは３００～４８０％である。セルロースナノファイバーの保水度が２５０％を下回ると、セルロースナノファイバーの分散性が悪化し、他の繊維、例えばパルプと均一に混合することができなくなるおそれがある。他方、セルロースナノファイバーの保水度が５００％を上回ると、セルロースナノファイバー自体の保水力が高くなり、セルロース繊維スラリーの脱水性が悪化するおそれがある。

[0049] セルロースナノファイバーの保水度は、例えば、原料パルプの選定、前処理、解繊等によって調整することができる。

[0050] セルロースナノファイバーの保水度は、ＪＡＰＡＮ　ＴＡＰＰＩ　Ｎｏ．２６（２０００）に準拠して測定した値である。

[0051] セルロースナノファイバー結晶化度は、好ましくは９５～５０％、より好ましくは９０～６０％、特に好ましくは８５～７０％である。セルロースナノファイバーの結晶化度が以上の範囲内であれば、再生樹脂の強度を確実に向上することができる。

[0052] 結晶化度は、例えば、原料パルプの選定、前処理、解繊等で任意に調整することができる。

[0053] セルロースナノファイバーの結晶化度は、ＪＩＳ Ｋ ０１３１（１９９６）に準拠して測定した値である。

[0054] セルロースナノファイバーの擬似粒度分布曲線におけるピーク値は、１つのピークであるのが好ましい。１つのピークである場合、セルロースナノファイバーは、繊維長及び繊維径の均一性が高く、セルロース繊維スラリーの脱水性に優れる。

[0055] セルロースナノファイバーのピーク値は、例えば０．１～１００μｍ、好ましくは１～５０μｍ、より好ましくは５～２５μｍである。

[0056] セルロースナノファイバーのピーク値は、例えば、原料パルプの選定、前処理、解繊等によって調整することができる。

[0057] セルロースナノファイバーのピーク値は、ＩＳＯ－１３３２０（２００９）に準拠して測定した値である。より詳細には、まず、粒度分布測定装置を使用してセルロースナノファイバーの水分散液の体積基準粒度分布を調べる。次に、この分布からセルロースナノファイバーの中位径を測定する。この中位径をピーク値とする。

[0058] セルロースナノファイバーのパルプ粘度は、好ましくは１０．０～１．０ｃｐｓ、より好ましくは８．０～１．５ｃｐｓ、特に好ましくは５．０～２．０ｃｐｓである。パルプ粘度は、セルロースを銅エチレンジアミン液に溶解させた後の溶解液の粘度であり、パルプ粘度が大きいほどセルロースの重合度が大きいことを示している。パルプ粘度が以上の範囲内であれば、スラリーに脱水性を付与しつつ、再生樹脂と混練する際にセルロースナノファイバーの分解を抑えられ、十分な補強効果を得ることができる。

[0059] セルロースナノファイバーのパルプ粘度は、ＴＡＰＰＩ Ｔ ２３０に準拠して測定した値である。

[0060] 解繊して得られたセルロースナノファイバーは、必要により、他のセルロース繊維と混合するに先立って水系媒体中に分散して分散液としておくこと

ができる。水系媒体は、全量が水であるのが特に好ましい（水溶液）。ただし、水系媒体は、一部が水と相溶性を有する他の液体であってもよい。他の液体としては、例えば、炭素数３以下の低級アルコール類等を使用することができる。

[0061] セルロースナノファイバーの分散液（濃度１％）のＢ型粘度は、好ましくは２，０００～１０ｃｐｓ、より好ましくは１，５００～３０ｃｐｓ、特に好ましくは１，３００～５０ｃｐｓである。分散液のＢ型粘度を以上の範囲内にすると、他のセルロース繊維との混合が容易になり、また、セルロース繊維スラリーの脱水性が向上する。

[0062] セルロースナノファイバーの分散液のＢ型粘度（固形分濃度１％）は、ＪＩＳ－Ｚ８８０３（２０１１）の「液体の粘度測定方法」に準拠して測定した値である。Ｂ型粘度は分散液を攪拌したときの抵抗トルクであり、高いほど攪拌に必要なエネルギーが多くなることを意味する。

[0063] セルロース繊維中におけるセルロースナノファイバーの含有率は、好ましくは５０質量％未満、より好ましくは３０質量％未満、特に好ましくは０質量％である。他方、セルロースナノファイバーの含有率が５０質量％を超えると、セルロースナノファイバー同士の凝集が強く、再生樹脂中で分散できず、補強効果が十分とならないおそれがある。

[0064]（マイクロ繊維セルロース）

本形態においては、微細繊維として、セルロースナノファイバーに換えて、セルロースナノファイバーと共にマイクロ繊維セルロースを使用したり、好ましくはマイクロ繊維セルロースのみを使用したりしてもよい。

[0065] マイクロ繊維セルロースは、セルロースナノファイバーに比べサイズが大きいため再生樹脂中で分散し易く三次元ネットワークを構築し易いが、セルロースナノファイバーの方がマイクロ繊維セルロースに比べ単結晶体に近いため、強度物性が高く再生樹脂への補強効果が期待することができる。双方使用する場合は上記の割合で混合することが望ましい

[0066] マイクロ繊維セルロースは、セルロースナノファイバーよりも平均繊維径

の太い繊維を意味する。具体的には、例えば０．１～１５μｍ、好ましくは０．５～１０μｍ、より好ましくは１～５μｍである。

[0067] マイクロ繊維セルロースの平均繊維径が０．１μｍを下回ると、セルロースナノファイバーであるのと変わらなくなり、再生樹脂の強度（特に曲げ弾性率）向上効果が十分に得られなくなる。また、解繊時間が長くなり、大きなエネルギーが必要になる。さらに、セルロース繊維スラリーの脱水性が悪化する。脱水性が悪化すると、分散剤と混合した後に乾燥する場合において、当該乾燥に大きなエネルギーが必要になり、乾燥に大きなエネルギーをかけるとマイクロ繊維セルロースが熱劣化して、強度が低下するおそれがある。他方、マイクロ繊維セルロースの平均繊維径が１５μｍを上回ると、パルプであるのと変わらなくなり、補強効果が十分でなくなるおそれがある。

[0068] マイクロ繊維セルロースは、原料パルプを解繊（微細化）することで得ることができる。原料パルプとしては、セルロースナノファイバーと同じものを使用することができ、セルロースナノファイバーと同じものを使用するのが好ましい。

[0069] マイクロ繊維セルロースの原料パルプは、セルロースナノファイバーの場合と同様の方法で前処理や解繊をすることができる。ただし、解繊の程度は異なり、例えば、平均繊維径が０．１μｍ以上に留まる範囲で行う必要がある。以下、セルロースナノファイバーの場合と異なる点を中心に説明する。

[0070] マイクロ繊維セルロースの平均繊維長（単繊維の長さの平均）は、好ましくは０．０２～３．０ｍｍ、より好ましくは０．０５～２．０ｍｍ、特に好ましくは０．１～１．５ｍｍである。平均繊維長が０．０２ｍｍ未満であると、繊維同士の三次元ネットワークを形成できず、再生樹脂の補強効果が低下するおそれがある。

[0071] 平均繊維長は、例えば、原料パルプの選定、前処理、解繊等で任意に調整可能である。

[0072] マイクロ繊維セルロースの繊維長は、０．２ｍｍ以下の割合が６０％以上であるのが好ましく、７０％以上であるのがより好ましく、７５％以上であ

るのが特に好ましい。当該割合が６０％未満であると、再生樹脂の補強効果が十分に得られない可能性がある。他方、マイクロ繊維セルロースの繊維長は、０．２ｍｍ以下の割合の上限がなく、全て０．２ｍｍ以下であっても良い。

[0073] マイクロ繊維セルロースのアスペクト比は、好ましくは２～５，０００、より好ましくは１００～１，０００である。アスペクト比とは、平均繊維長を平均繊維幅で除した値である。アスペクト比が大きいほど再生樹脂中において引っかかりが生じる箇所が多くなるため補強効果が上がるが、他方で引っかかりが多い分再生樹脂の延性が低下するものと考えられる。なお、無機フィラーを再生樹脂に混練した場合、フィラーのアスペクト比が大きいほど曲げ強度が向上するが、伸びは著しく低下するとの知見が存在する。

[0074] マイクロ繊維セルロースのフィブリル化率は、好ましくは１．０～３０．０％、より好ましくは１．５～２０．０％、特に好ましくは２．０～１５．０％である。フィブリル化率が３０．０％を超えると、水との接触面積が広くなり過ぎるため、たとえ平均繊維幅が０．１μｍ以上に留まる範囲で解繊できたとしても、脱水が困難になる可能性がある。他方、フィブリル化率が１．０％未満では、フィブリル同士の水素結合が少なく、強硬な三次元ネットワークを形成することができなくなるおそれがある。

[0075] マイクロ繊維セルロースの結晶化度は、５０％以上であるのが好ましく、６０％以上であるのがより好ましい。結晶化度が５０％未満であると、パルプやセルロースナノファイバーとの混合性は向上するものの、繊維自体の強度が低下するため、強度を担保することができなくなるおそれがある。

[0076] 他方、マイクロ繊維セルロースの結晶化度は、９０％以下であるのが好ましく、８８％以下であるのがより好ましく、８６％以下であるのが特に好ましい。結晶化度が９０％を超えると、分子内の強固な水素結合割合が多くなり繊維自体が剛直となり、再分散性が劣るようになる。

[0077] マイクロ繊維セルロースの結晶化度は、例えば、原料パルプの選定、前処理、微細化処理で任意に調整可能である。

[0078] マイクロ繊維セルロースのパルプ粘度は、２ｃｐｓ以上であるのが好ましく、４ｃｐｓ以上であるのがより好ましい。パルプ粘度が２ｃｐｓ未満であると、マイクロ繊維セルロースの凝集を十分に抑制することができないおそれがある。

[0079] マイクロ繊維セルロースのフリーネスは、５００ｃｃ以下が好ましく、３００ｃｃ以下がより好ましく、１００ｃｃ以下が特に好ましい。マイクロ繊維セルロースのフリーネスが５００ｃｃを超えるとマイクロ繊維セルロースの平均繊維径が１０μｍを超え、強度に関する効果が十分に得られないおそれがある。

[0080] マイクロ繊維セルロースの保水度は、例えば、原料パルプの選定、前処理、解繊等で任意に調整可能である。

[0081] セルロース繊維中におけるマイクロ繊維セルロースの含有率は、好ましくは５０質量％以上、より好ましくは７０質量％以上、特に好ましくは１００質量％である。マイクロ繊維セルロースの含有率が５０質量％を下回ると、相対的にセルロースナノファイバーの含有率が増えることになり、マイクロ繊維セルロースを含有することによる効果が得られないおそれがある。

[0082] マイクロ繊維セルロースの各種物性の測定方法は、特にこれに反する記載のない限り、セルロースナノファイバーの場合と同様である。

[0083] （スラリー）

微細繊維を含むセルロース繊維は、必要により、水系媒体中に分散して分散液（スラリー）にする。水系媒体は、全量が水であるのが特に好ましいが、一部が水と相溶性を有する他の液体である水系媒体も使用することができる。他の液体としては、炭素数３以下の低級アルコール類等を使用することができる。

[0084] スラリーの固形分濃度は、０．５～５．０質量％であるのが好ましく、１．０～３．０質量％であるのがより好ましい。固形分濃度が０．５質量％を下回ると、脱水と乾燥する際に過大なエネルギーが必要となるおそれがある。他方、固形分濃度が５．０質量％を上回ると、スラリー自体の流動性が低

下してしまい分散剤を均一に混合できなくなるおそれがある。

[0085]（分散剤）

セルロース繊維のスラリーには、分散剤を混合することもできる。分散剤としては、多塩基酸、多塩基酸の誘導体、多塩基酸塩類、及び多塩基酸塩類の誘導体の中から選択された少なくともいずれか１種以上の添加剤を添加することができる。この多塩基酸等の添加剤としては、例えば、シュウ酸類、フタル酸類、マロン酸類、コハク酸類、グルタル酸類、アジピン酸類、酒石酸類、グルタミン酸類、セバシン酸類、ヘキサフルオロケイ酸類、マレイン酸類、イタコン酸類、シトラコン酸類、クエン酸類等の中から１種又は２種以上を選択して使用することができる。だだし、フタル酸、フタル酸塩類及びこれら（フタル酸類）の誘導体の少なくともいずれか１種以上であるのが好ましい。フタル酸類（誘導体）としては、フタル酸、フタル酸水素カリウム、フタル酸水素ナトリウム、フタル酸ナトリウム、フタル酸アンモニウム、フタル酸ジメチル、フタル酸ジエチル、フタル酸ジアリル、フタル酸ジイソブチル、フタル酸ジノルマルヘキシル、フタル酸ジオクチル、フタル酸ジイソノニル、フタル酸ジイソデシル、フタル酸ジトリイソデシル等が挙げられる。好適にはフタル酸、より好適にはフタル酸塩類を使用するのが好ましい。特に上記の多塩基酸塩類は得られる樹脂組成物の着色が抑えられ、高温での発泡も抑えられる。また、多塩基酸塩類はセルロースと再生樹脂の両方と馴染み易く、再生樹脂の補強効果をさらに向上できるしたがって、微細繊維及び再生樹脂の混練に際して微細繊維が再生樹脂中において確実に分散（再分散）するようになる。加えて、以上の分散剤は、微細繊維及び再生樹脂の相溶性を向上させる役割も有する。この点でも、微細繊維の再生樹脂中における分散性が向上する。したがって、分散剤は、相溶剤ということもできる。

[0086]（変性処理）

セルロース繊維は変性することも可能である。例えば、酸化、エーテル化、亜リン酸化、エステル化、シランカップリング、フッ素化、カチオン化、

カルバメート化等が挙げられる。特にカルバメート化処理は、樹脂との分散、親和性に優れ、好適である。

なお、セルロース繊維及び再生樹脂の混練に際して、別途、相溶剤（薬剤）を添加することも考えられるが、この段階で薬剤を添加するよりも、予めセルロース繊維と分散剤（薬剤）を混合している本形態の方が、セルロース繊維に対する薬剤の纏わりつきが均一になり、再生樹脂との相溶性向上効果が高くなる。

[0087] また、例えば、ポリプロピレンは融点が１６０℃であり、したがってセルロース繊維及び再生樹脂の混練は、１８０℃程度で行うとよい。しかるに、この状態で分散剤（液）を添加すると、一瞬で乾燥してしまう。そこで、融点の低い再生樹脂を使用してマスターバッチ（ＣＮＦ等の濃度の濃い複合樹脂）を作製し、その後に通常の再生樹脂で濃度を下げる方法が一例に存在する。しかしながら、融点の低い再生樹脂は一般的に強度が低い。したがって、当該方法によると、複合樹脂の強度が下がるおそれがある。

[0088] 分散剤の混合量は、セルロース繊維１００質量部に対して、好ましくは０．１～１，０００質量部、より好ましくは１～５００質量部、特に好ましくは１０～２００質量部である。多塩基酸塩類の配合割合が０．１質量部を下回ると、十分な補強効果を得ることができない。他方、多塩基酸塩類の配合割合が１，０００質量部を上回ると、補強効果は頭打ちになる。

[0089] なお、セルロース繊維の分散性を向上させるという点に着目すれば、分散剤の混合はセルロース繊維による再生樹脂の補強効果を向上させるものである。しかしながら、分散剤は、セルロース繊維の存在故に親水性（親水基を有する）でなくてはならず、この点で再生樹脂の強度を落とす側面も有している。また、分散剤は、時間の経過とともに表面に表出してくる可能性がある。したがって、分散剤の混合量を減らせるというのは、大きな利点である。

[0090] （製造方法）

製造に用いられる繊維セルロースは原料繊維（パルプ繊維）を叩解（解繊

）処理して得られる。原料繊維は、植物由来の繊維、動物由来の繊維、微生物由来の繊維等の中から１種又は２種以上を選択して使用することができる。特に、安価、サーマルリサイクルの観点から植物由来のパルプ繊維を原料繊維に使用するのが好ましい。

[0091] 続く混錬工程としては、得られたセルロース繊維に、樹脂粉末と樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方を混合して混合物（請求項の第１混合物）とする。この第１混合物とする手法には、セルロース繊維に、樹脂粉末と樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方を混練して混合物とする手法も含まれる。そして、この混合物を再生樹脂と混練する混錬手法を挙げることができる。他の混錬手法としては、セルロース繊維のスラリーに、樹脂粉末と樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方を混合して第１混合物（請求項の第１混合物）とし、この第１混合物に再生樹脂を混合して第２混合物（請求項の第２混合物）とし、この第２混合物を混錬する混錬手法を挙げることができる。

[0092] 樹脂粉末と樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方と、再生樹脂との配合割合は次記のようにするとよい。再生樹脂５０質量部に対して、樹脂粉末と樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方を配合する下限は、０質量部超、好ましくは１０質量部以上、さらに好ましくは３０質量部以上とするとよい。また配合する上限は、１００質量部以下、好ましくは９０質量部以下、より好ましくは５０質量部以下とするとよい。樹脂粉末と樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方の配合割合が０だと、バージン樹脂が本来有する強度が最終的に得られるセルロース繊維複合再生樹脂に備わらず、所望の強度にならない。また配合割合の上限が１００質量部を超えると、最終的に得られるセルロース繊維複合再生樹脂に占める再生樹脂の割合が少なくなり過ぎ、再生樹脂をリサイクルするメリットに乏しい。

[0093] なお、樹脂粉末と樹脂ペレットとの配合割合は特に限定されず、次記のとおりとしてよい。

樹脂粉末量：樹脂ペレット量＝ａ：１００－ａ

ただし、ａは０以上１００以下の数とする。

一例に、樹脂粉末量：樹脂ペレット量＝０：１００、１０：９０、５０：５０、９０：１０、１００：０とすることができる。

[0094] 樹脂粉末と樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方と、再生樹脂とは、同一の種類からなる樹脂であってもよいし同一でなくてもよい。同一の種類でない場合の例として、樹脂粉末にポリエチレン、樹脂ペレットにフェノール樹脂、再生樹脂にヒドロキシカルボン酸重合体を用いることができる。また、同一の種類である場合の例として、樹脂粉末、樹脂ペレット、及び再生樹脂それぞれにポリカーボネート樹脂を用いることができる。樹脂粉末、樹脂ペレット、及び再生樹脂の全てを同一の種類とすると、化学的物性（融点、分子組成など）がほぼ同一となり製造工程を簡素化でき好ましい。なお、ここでいう「種類」とは、樹脂の種類をいい、例えば、後述する熱可塑性樹脂や熱硬化性樹脂に分類される樹脂の中から選ばれる樹脂をいう。

[0095] 樹脂粉末と樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方と、セルロース繊維との混合物は、再生樹脂と混練するに先立って乾燥及び粉砕して粉状物にするのが好ましい。この形態によると、再生樹脂との混練に際してセルロース繊維を乾燥させる必要がなく、熱効率が良い。また、混合物に分散剤が混合されているため、当該混合物を乾燥したとしても、微細繊維が再分散しなくなるおそれが低い。

[0096] セルロース繊維と樹脂粉末を混合する際、薬品を混合してセルロース繊維を疎水化学変性させることができる。疎水化学変性の手法として、例えば、エステル化、エーテル化、アミド化、スルフィド化等を挙げることができる。特に、エステル化による疎水化学変性が好ましい。疎水化学変性により、最終成形物の強度が増す。

[0097] セルロース繊維をエステル化するには、公知の薬品を適宜使用できるが、例えば、多塩基酸、多塩基酸塩類、多塩基酸の誘導体、及び多塩基酸塩類の誘導体、並びにこれらの物質の無水物の中から選択された少なくともいずれか１種以上の物質を用いるとよい。例えば、フタル酸、フタル酸塩類、フタ

ル酸の誘導体、及びフタル酸塩類の誘導体、並びにこれらの無水物の中から選択された少なくともいずれか１種以上の物質などを挙げることができる。無水多塩基酸を例とすると、無水マレイン酸、無水フタル酸、無水イタコン酸、無水シトラコン酸、無水クエン酸を挙げることができ、これらの中から１種又は２種以上を選択して使用するとよい。好ましくは無水マレイン酸、より好ましくは無水フタル酸を使用できる。

[0098] なお、セルロース繊維と再生樹脂又はパルプ繊維の溶解パラメータ（ｃａｌ／ｃｍ^3）１／２（すなわちＳＰ値）の差は、次式で表すことができる。

（ＳＰ値の差）＝（セルロース繊維のＳＰＭＦＣ値）－（再生樹脂のＳＰＰＯＬ値）

[0099] 混合物は、必要により、乾燥するに先立って脱水して脱水物にする。この脱水は、例えば、ベルトプレス、スクリュープレス、フィルタープレス、ツインロール、ツインワイヤーフォーマ、バルブレスフィルタ、センターディスクフィルタ、膜処理、遠心分離機等の脱水装置の中から１種又は２種以上を選択使用して行うことができる。

[0100] 混合物の乾燥は、例えば、ロータリーキルン乾燥、円板式乾燥、気流式乾燥、媒体流動乾燥、スプレー乾燥、ドラム乾燥、スクリューコンベア乾燥、パドル式乾燥、一軸混練乾燥、多軸混練乾燥、真空乾燥、攪拌乾燥等の中から１種又は２種以上を選択使用して行うことができる。

[0101] 乾燥した混合物（乾燥物）は、粉砕して粉状物にする。乾燥物の粉砕は、例えば、ビーズミル、ニーダー、ディスパー、ツイストミル、カットミル、ハンマーミル等の中から１種又は２種以上を選択使用して行うことができる。

[0102] 粉状物の平均粒子径は、１，０００μｍ以下であるのが好ましく、８００μｍ以下であるのがより好ましく、６００μｍ以下であるのが特に好ましい。粉状物の平均粒子径が１，０００μｍを超えると、再生樹脂との混練性に劣るものになるおそれがある。ただし、粉状物の平均粒子径を１μｍ未満にするには大きなエネルギーが必要になるため、経済的でない。なお、粉状物の

平均粒子径の制御は、粉砕の程度を制御することのほか、フィルター、サイクロン等の分級装置を使用した分級によることができる。

[0103] 混合物（粉状物）の嵩比重は、０．０３～１．０であるのが好ましく、０．１～０．８であるのがより好ましい。嵩比重が１．０を超えるということはセルロース繊維相互の結合がより強固であり、再生樹脂中で分散させることは容易ではない。他方、嵩比重を０．０３未満にするのは、移送コストの面から不利である。

[0104] 嵩比重は、ＪＩＳ　Ｋ７３６５に準じて測定した値である。

[0105] 混合物（粉状物）の水分率は、５０％以下が好ましく、３０％以下がより好ましく、１０％以下が特に好ましい。水分率が５０％を超えると、再生樹脂と混練する際のエネルギーが膨大になり、経済的でない。

[0106] 繊維の水分率は、定温乾燥機を用いて、試料を１０５℃で６時間以上保持し質量の変動が認められなくなった時点の質量を乾燥後質量とし、下記式にて算出した値である。

繊維水分率（％）＝［（乾燥前質量－乾燥後質量）÷乾燥前質量］×１００

[0107] 以上のようにして得た粉状物は、再生樹脂と混練し、セルロース繊維複合再生樹脂が得られる。この混練は、例えば、ペレット状の再生樹脂と粉状物とを混ぜ合わす方法によることのほか、再生樹脂をまず溶融し、この溶融物の中に粉状物を添加するという方法によることもできる。

[0108] 樹脂粉末、再生樹脂、及びバージン樹脂のそれぞれに使用される樹脂としては、熱可塑性樹脂であってもよいし、熱硬化性樹脂であってもよい。

[0109] 熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリプロピレン（ＰＰ）、ポリエチレン（ＰＥ）等のポリオレフィン、脂肪族ポリエステル樹脂や芳香族ポリエステル樹脂等のポリエステル樹脂、ポリスチレン、メタアクリレート、アクリレート等のポリアクリル樹脂、ポリアミド樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリアセタール樹脂等の中から１種又は２種以上を選択して使用することができる。

[0110] ただし、ポリオレフィン及びポリエステル樹脂の少なくともいずれか一方を使用するのが好ましい。また、ポリオレフィンとしては、ポリプロピレンを使用するのが好ましい。さらに、ポリエステル樹脂としては、脂肪族ポリエステル樹脂として、例えば、ポリ乳酸、ポリカプロラクトン等を例示することができ、芳香族ポリエステル樹脂として、例えば、ポリエチレンテレフタレート等を例示することができるが、生分解性を有するポリエステル樹脂（単に「生分解性樹脂」ともいう。）を使用するのが好ましい。

[0111] 生分解性樹脂としては、例えば、ヒドロキシカルボン酸系脂肪族ポリエステル、カプロラクトン系脂肪族ポリエステル、二塩基酸ポリエステル等の中から１種又は２種以上を選択して使用することができる。

[0112] ヒドロキシカルボン酸系脂肪族ポリエステルとしては、例えば、乳酸、リンゴ酸、グルコース酸、３－ヒドロキシ酪酸等のヒドロキシカルボン酸の単独重合体や、これらのヒドロキシカルボン酸のうちの少なくとも１種を用いた共重合体等の中から１種又は２種以上を選択して使用することができる。ただし、ポリ乳酸、乳酸と乳酸を除く上記ヒドロキシカルボン酸との共重合体、ポリカプロラクトン、上記ヒドロキシカルボン酸のうちの少なくとも１種とカプロラクトンとの共重合体を使用するのが好ましく、ポリ乳酸を使用するのが特に好ましい。

[0113] この乳酸としては、例えば、Ｌ－乳酸やＤ－乳酸等を使用することができ、これらの乳酸を単独で使用しても、２種以上を選択して使用してもよい。

[0114] カプロラクトン系脂肪族ポリエステルとしては、例えば、ポリカプロラクトンの単独重合体や、ポリカプロラクトン等と上記ヒドロキシカルボン酸との共重合体等の中から１種又は２種以上を選択して使用することができる。

[0115] 二塩基酸ポリエステルとしては、例えば、ポリブチレンサクシネート、ポリエチレンサクシネート、ポリブチレンアジペート等の中から１種又は２種以上を選択して使用することができる。

[0116] 生分解性樹脂は、１種を単独で使用しても、２種以上を併用してもよい。

[0117] 熱硬化性樹脂としては、例えば、フェノール樹脂、尿素樹脂、メラミン樹

脂、フラン樹脂、不飽和ポリエステル、ジアリルフタレート樹脂、ビニルエステル樹脂、エポキシ樹脂、ウレタン系樹脂、シリコーン樹脂、熱硬化性ポリイミド系樹脂等を使用することができる。これらの樹脂は、単独で又は二種以上組み合わせて使用することができる。

[0118] 樹脂粉末、再生樹脂、及びバージン樹脂には、無機充填剤が、好ましくはサーマルリサイクルに支障が出ない割合で含有されていてもよい。

[0119] 無機充填剤としては、例えば、Ｆｅ、Ｎａ、Ｋ、Ｃｕ、Ｍｇ、Ｃａ、Ｚｎ、Ｂａ、ＡｌＩ、Ｔｉ、ケイ素元素等の周期律表第Ｉ族～第ＶＩＩＩ族中の金属元素の単体、酸化物、水酸化物、炭素塩、硫酸塩、ケイ酸塩、亜硫酸塩、これらの化合物よりなる各種粘土鉱物等を例示することができる。

[0120] 具体的には、例えば、硫酸バリウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、硫酸ナトリウム、亜硫酸カルシウム、酸化亜鉛、シリカ、重質炭酸カルシウム、軽質炭酸カルシウム、ほう酸アルミニウム、アルミナ、酸化鉄、チタン酸カルシウム、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、水酸化カルシウム、水酸化ナトリウム、炭酸マグネシウム、ケイ酸カルシウム、クレーワラストナイト、ガラスビーズ、ガラスパウダー、珪砂、硅石、石英粉、珪藻土、ホワイトカーボン、ガラスファイバー等を例示することができる。これらの無機充填剤は、複数が含有されていてもよい。また、古紙パルプに含まれるものであってもよい。

[0121] セルロース繊維及び再生樹脂の配合割合は、セルロース繊維が１質量部以上、再生樹脂が８０質量部以下であるのが好ましく、セルロース繊維が２質量部以上、再生樹脂が７５質量部以下であるのがより好ましく、セルロース繊維が３質量部以上、再生樹脂が７０質量部以下であるのが特に好ましい。

[0122] また、セルロース繊維が１０質量部以下、再生樹脂が３０質量部以上であるのが好ましく、セルロース繊維が９質量部以下、再生樹脂が４０質量部以上であるのがより好ましく、セルロース繊維が８質量部以下、再生樹脂が５０質量部以上であるのが特に好ましい。ただし、セルロース繊維の配合割合が５～１０質量部であると、セルロース繊維複合再生樹脂の強度、特に曲げ

強度及び引張り弾性率の強度を著しく向上させることができる。

[0123] なお、最終的に得られる複合再生樹脂の組成物に含まれるセルロース繊維及び再生樹脂の含有割合は、通常、セルロース繊維及び再生樹脂の上記配合割合と同じとなる。

[0124] （その他の組成物）

複合再生樹脂の組成物には、以上の微細繊維やパルプ等のほか、ケナフ、ジュート麻、マニラ麻、サイザル麻、雁皮、三椏、楮、バナナ、パイナップル、ココヤシ、トウモロコシ、サトウキビ、バガス、ヤシ、パピルス、葦、エスパルト、サバイグラス、麦、稲、竹、各種針葉樹（スギ及びヒノキ等）、広葉樹及び綿花などの各種植物体から得られた植物材料に由来する繊維を含ませることもでき、含まれていてもよい。

[0125] 複合再生樹脂の組成物には、例えば、帯電防止剤、難燃剤、抗菌剤、着色剤、ラジカル捕捉剤、発泡剤等の中から１種又は２種以上を選択して、本発明の効果を阻害しない範囲で添加することができる。これらの原料は、セルロース繊維の分散液に添加しても、混合物及び再生樹脂の混練の際に添加しても、これらの混練物に添加しても、その他の方法で添加してもよい。ただし、製造効率の面からは、混合物及び再生樹脂の混練の際に添加するのが好ましい。

[0126] （成形処理）

混合物及び再生樹脂の混練物は、必要により再度混練する等した後、所望の形状に成形することができる。この成形の大きさや厚さ、形状等は、特に限定されず、例えば、シート状、ペレット状、粉末状、繊維状等とすることができる。

[0127] 成形処理の際の温度は、再生樹脂のガラス転移点以上であり、再生樹脂の種類によって異なるが、例えば１００～３００℃、好ましくは１６０～２００℃である。

[0128] 混練物の成形は、例えば、金型成形、射出成形、押出成形、中空成形、発泡成形等によることができる。また、混練物を紡糸して繊維状にし、前述し

た植物材料等と混繊してマット形状、ボード形状とすることもできる。混繊は、例えば、エアーレイにより同時堆積させる方法等によることができる。

[0129] 混練物を成形する装置としては、例えば、射出成形機、吹込成形機、中空成形機、ブロー成形機、圧縮成形機、押出成形機、真空成形機、圧空成形機等の中から１種又は２種以上を選択して使用することができる。

[0130] 以上の成形は、混練に続いて行うことも、混練物をいったん冷却し、破砕機等を使用してチップ化した後、このチップを押出成形機や射出成形機等の成形機に投入して行うこともできる。もちろん、成形は、本発明の必須の要件ではない。

実施例

[0131] 次に、本発明の実施例の操作手順について、説明する。後述のポリプロピレンペレットは、リサイクルされていないポリプロピレンを主成分とする樹脂である。ポリプロピレン粉末は、このポリプロピレンを粉末状にしたものである。

[0132] （実施例１）

（１）固形分濃度２．６質量％のマイクロ繊維セルロース水分散液３８４ｇに、フタル酸水素カリウム１１ｇ、平均粒子径１３６μｍのポリプロピレン粉末７６ｇを添加し、１０５℃で加熱乾燥し、微細セルロース繊維混合物を得た。この微細セルロース繊維混合物の含水率は１０％未満であった。この時使用したマイクロ繊維セルロースは、平均繊維長０．１７ｍｍ、であった。

（２）この微細セルロース繊維混合物に無水マレイン酸変性ポリプロピレン（ＭＡＰＰ）３ｇを混合後、二軸混錬機を用いて１８０℃、２００ｒｐｍの条件で混錬し、マイクロ繊維セルロース複合樹脂を得た。

（３）このマイクロ繊維セルロース複合樹脂をペレッターで切断し、円柱状（径２ｍｍ、高さ２ｍｍ）のマイクロ繊維セルロース複合樹脂ペレットを得た。

（４）マイクロ繊維セルロース複合樹脂ペレットと再生樹脂とを、マイク

ロ繊維セルロース複合樹脂ペレット：再生樹脂＝１：１の比率で二軸混錬機を用いて１８０℃、２００ｒｐｍの条件で混錬して混錬物を得た。

（５）この混錬物をペレッターで切断し、円柱状（径２ｍｍ、高さ２ｍｍ）としたものを１８０℃にして直方体試験片（長さ５９ｍｍ、幅９．６ｍｍ、厚さ３．８ｍｍ）に射出成型した。

[0133] （実施例２）

（１）固形分濃度２．６質量％のマイクロ繊維セルロース水分散液１９２ｇに、フタル酸水素カリウム５．５ｇ、平均粒子径１３６μｍのポリプロピレン粉末３８ｇ、再生樹脂５０ｇを添加し、１０５℃で加熱乾燥し、微細セルロース繊維混合物を得た。この微細セルロース繊維混合物の含水率は１０％未満であった。

（２）この微細セルロース繊維混合物に無水マレイン酸変性ポリプロピレン１．５ｇを混合後、二軸混錬機を用いて１８０℃、２００ｒｐｍの条件で混錬し、マイクロ繊維セルロース複合樹脂を得た。

（３）このマイクロ繊維セルロース複合樹脂をペレッターで切断し、円柱状（径２ｍｍ、高さ２ｍｍ）としたものを、１８０℃にして直方体試験片（長さ５９ｍｍ、幅９．６ｍｍ、厚さ３．８ｍｍ）に射出成型した。

[0134] （実施例３）

（１）固形分濃度２．６質量％のマイクロ繊維セルロース水分散液１９２ｇに、フタル酸水素カリウム５．５ｇ、平均粒子径１３６μｍのポリプロピレン粉末２８ｇ、再生樹脂５０ｇ、平均粒子径３ｍｍのポリプロピレンペレット１０ｇを添加し、１０５℃で加熱乾燥し、微細セルロース繊維混合物を得た。この微細セルロース繊維混合物の含水率は１０％未満であった。

（２）この微細セルロース繊維混合物に無水マレイン酸変性ポリプロピレン１．５ｇを混合後、二軸混錬機を用いて１８０℃、２００ｒｐｍの条件で混錬し、マイクロ繊維セルロース複合樹脂を得た。

（３）このマイクロ繊維セルロース複合樹脂をペレッターで切断し、円柱状（径２ｍｍ、高さ２ｍｍ）としたものを、１８０℃にして直方体試験片（

長さ５９ｍｍ、幅９．６ｍｍ、厚さ３．８ｍｍ）に射出成型した。

[0135] （実施例４）

（１）固形分濃度２．６質量％のマイクロ繊維セルロース水分散液１９２ｇに、フタル酸水素カリウム５．５ｇ、ポリプロピレン粉末１８ｇ、再生樹脂５０ｇ、ポリプロピレンペレット２０ｇを添加し、１０５℃で加熱乾燥し、微細セルロース繊維混合物を得た。この微細セルロース繊維混合物の含水率は１０％未満であった。

（２）この微細セルロース繊維混合物に無水マレイン酸変性ポリプロピレン１．５ｇを混合後、二軸混錬機を用いて１８０℃、２００ｒｐｍの条件で混錬し、マイクロ繊維セルロース複合樹脂を得た。

（３）このマイクロ繊維セルロース複合樹脂をペレッターで切断し、円柱状（径２ｍｍ、高さ２ｍｍ）としたものを、１８０℃にして直方体試験片（長さ５９ｍｍ、幅９．６ｍｍ、厚さ３．８ｍｍ）に射出成型した。

[0136] （実施例５）

（１）固形分濃度２．６質量％のマイクロ繊維セルロース水分散液１９２ｇに、フタル酸水素カリウム５．５ｇ、ポリプロピレン粉末８ｇ、再生樹脂５０ｇ、ポリプロピレンペレット３０ｇを添加し、１０５℃で加熱乾燥し、微細セルロース繊維混合物を得た。この微細セルロース繊維混合物の含水率は１０％未満であった。

（２）この微細セルロース繊維混合物に無水マレイン酸変性ポリプロピレン１．５ｇを混合後、二軸混錬機を用いて１８０℃、２００ｒｐｍの条件で混錬し、マイクロ繊維セルロース複合樹脂を得た。

（３）このマイクロ繊維セルロース複合樹脂をペレッターで切断し、円柱状（径２ｍｍ、高さ２ｍｍ）としたものを、１８０℃にして直方体試験片（長さ５９ｍｍ、幅９．６ｍｍ、厚さ３．８ｍｍ）に射出成型した。

[0137] （実施例６）

（１）固形分濃度２．６質量％のマイクロ繊維セルロース水分散液１９２ｇに、フタル酸水素カリウム５．５ｇ、再生樹脂５０ｇ、ポリプロピレンペ

レット３８ｇを添加し、１０５℃で加熱乾燥し、微細セルロース繊維混合物を得た。この微細セルロース繊維混合物の含水率は１０％未満であった。

（２）この微細セルロース繊維混合物に無水マレイン酸変性ポリプロピレン１．５ｇを混合後、二軸混錬機を用いて１８０℃、２００ｒｐｍの条件で混錬し、マイクロ繊維セルロース複合樹脂を得た。

（３）このマイクロ繊維セルロース複合樹脂をペレッターで切断し、円柱状（径２ｍｍ、高さ２ｍｍ）としたものを、１８０℃にして直方体試験片（長さ５９ｍｍ、幅９．６ｍｍ、厚さ３．８ｍｍ）に射出成型した。

[0138] （比較例１）

（１）再生樹脂５０ｇ、ポリプロピレンペレット５０ｇの混合物を二軸混錬機を用いて１８０℃、２００ｒｐｍの条件で混錬し、再生樹脂とポリプロピレンからなる複合樹脂を得た。

（２）この複合樹脂をペレッターで切断し、円柱状（径２ｍｍ、高さ２ｍｍ）としたものを、１８０℃にして直方体試験片（長さ５９ｍｍ、幅９．６ｍｍ、厚さ３．８ｍｍ）に射出成型した。

[0139] 各複合樹脂について、曲げ弾性率を調べ、曲げ試験評価を行った。結果を表１に示した。

[0140] （曲げ弾性率）

各セルロースナノファイバー複合樹脂を曲げ試験片に成形し、この成形物について曲げ弾性率を調べた。曲げ弾性率は、ＪＩＳ　Ｋ７１７１：２００８に準拠して測定した。

[0141] （曲げ試験評価）

再生樹脂の曲げ弾性率を１とした場合の、セルロース繊維複合再生樹脂の曲げ弾性率（倍率）が１．４倍以上であれば、曲げ試験評価を「〇」と評価した。

再生樹脂の曲げ弾性率を１とした場合の、セルロース繊維複合再生樹脂の曲げ弾性率（倍率）が１．２倍以上、１．４倍未満であれば、曲げ試験評価を「△」と評価した。

再生樹脂の曲げ弾性率を１とした場合の、セルロース繊維複合再生樹脂の曲げ弾性率（倍率）が１．２倍未満であれば、曲げ試験評価を「×」と評価した。

[0142] 実施例の結果を表１に示す。

[表1]

	配合割合					曲げ試験評価
	マイクロ繊維セルロース	フタル酸水素カリウム	MAPP	ポリプロピレン粉末	再生樹脂	ポリプロピレンペレット	
実施例1	5	5.5	1.5	38	50	0	○
実施例2	5	5.5	1.5	38	50	0	△
実施例3	5	5.5	1.5	28	50	10	△
実施例4	5	5.5	1.5	18	50	20	△
実施例5	5	5.5	1.5	8	50	30	△
実施例6	5	5.5	1.5	0	50	38	△
比較例1	0	0	0	0	50	50	×

表１中、薬品はフタル酸水素カリウムと無水マレイン酸変性ポリプロピレンを表す。数値は配合割合を表す。

[0143] （その他）

・繊維分析について、数平均繊維径と繊維長０．２ｍｍ以下の割合は、バルメット社製の繊維分析計「ＦＳ５」により測定した。

・結晶化度について、セルロース繊維は、非晶質部分と結晶質部分とを有し、結晶化度は、セルロース繊維全体（非晶質部分と結晶質部分の合計）に占める晶質部分の割合を意味する。

・マイクロ繊維セルロースのパルプ粘度は、ＪＩＳ　Ｐ　８２１５（１９９８）に準拠して測定した。パルプ粘度が高いほどマイクロ繊維セルロースの重合度が高いということができる。

・フリーネスは、ＪＩＳ　Ｐ　８１２１－２：２０１２に準拠して測定した。

・平均粒子径は、ＪＩＳ　Ｚ８８２５：２０１３に準拠して測定することができる。

産業上の利用可能性

[0144] 本発明は、セルロース繊維複合再生樹脂及びその製造方法として利用可能である。

請求の範囲

[請求項1] セルロース繊維のスラリーに、樹脂粉末と樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方を混合して第１混合物とし、

この第１混合物を再生樹脂と混練するものとし、

前記セルロース繊維の一部又は全部として微細繊維を使用する、

ことを特徴とするセルロース繊維複合再生樹脂の製造方法。

[請求項2] 前記第１混合物に前記再生樹脂を混合して第２混合物とし、

この第２混合物を混錬するものとし、

前記セルロース繊維の一部又は全部として微細繊維を使用する、

ことを特徴とするセルロース繊維複合再生樹脂の製造方法。

[請求項3] 前記再生樹脂５０質量部に対して、

前記樹脂粉末と前記樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方が０質量部を超え、１００質量部以下とする、

請求項１又は請求項２に記載のセルロース繊維複合再生樹脂の製造方法。

[請求項4] 前記樹脂粉末の平均粒子径が１～１５００μｍである、

請求項１又は請求項２に記載のセルロース繊維複合再生樹脂の製造方法。

[請求項5] 前記樹脂ペレットの平均粒子径が１～１０ｍｍである、

請求項１又は請求項２に記載のセルロース繊維複合再生樹脂の製造方法。

[請求項6] 前記樹脂粉末と前記樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方の成分と、

前記再生樹脂の成分とが同一である、

請求項１又は請求項２に記載のセルロース繊維複合再生樹脂の製造方法。

[請求項7] さらに、

多塩基酸、多塩基酸塩類、多塩基酸の誘導体、及び多塩基酸塩類の

誘導体の中から選択された少なくともいずれか１種以上の物質を前記スラリーに混合する、

請求項１又は請求項２に記載のセルロース繊維複合再生樹脂の製造方法。

[請求項8] さらに、

フタル酸、フタル酸塩類、フタル酸の誘導体、及びフタル酸塩類の誘導体の中から選択された少なくともいずれか１種以上の物質を前記スラリーに混合する、

請求項１又は請求項２に記載のセルロース繊維複合再生樹脂の製造方法。

[請求項9] 前記第１混合物を乾燥及び粉砕して粉状物としてから前記再生樹脂と混錬するものとする、

請求項１に記載のセルロース繊維複合再生樹脂の製造方法。

[請求項10] 平均繊維長０．０２～３ｍｍであるマイクロ繊維セルロースと、

樹脂粉末と樹脂ペレットとの少なくともいずれか一方と、

フタル酸、フタル酸塩類、フタル酸の誘導体、及びフタル酸塩類の誘導体の中から選択された少なくともいずれか１種以上の物質と、の混合物と、

再生樹脂とを含む、

ことを特徴とするセルロース繊維複合再生樹脂。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2020/024516

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08K 5/12(2006.01)i; C08K 7/02(2006.01)i; C08L 101/00(2006.01)i
FI: C08L101/00; C08K7/02; C08K5/12
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)
C08K5/12; C08K7/02; C08L101/00

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)
JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2016-094538 A (NATIONAL INSTITUTE OF ADVANCED INDUSTRIAL SCIENCE AND TECHNOLOGY) 26.05.2016 (2016-05-26) claims, paragraphs [0008], [0044], [0045], [0092], example 1	1-7, 9
A	entire text, all drawings	8, 10
Y	JP 2019-052307 A (WEYERHAEUSER NR COMPANY) 04.04.2019 (2019-04-04) paragraphs [0021]-[0024]	1-7, 9
A	entire text, all drawings	8, 10
Y	WO 2019/039570 A1 (FURUKAWA ELECTRIC CO., LTD.) 28.02.2019 (2019-02-28) paragraph [0037]	1-7, 9
A	entire text, all drawings	8, 10
Y	JP 2017-105983 A (KYOTO UNIVERSITY) 15.06.2017 (2017-06-15) claims, paragraphs [0095]-[0098], [0333]-[0336], table 19	7
P, A	WO 2019/221029 A1 (SEIKO PMC CORPORATION) 21.11.2019 (2019-11-21) entire text, all drawings	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	Date of mailing of the international search report
13 August 2020 (13.08.2020)	25 August 2020 (25.08.2020)

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2020/024516

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2016-094538 A	26 May 2016	(Family: none)	
JP 2019-052307 A	04 Apr. 2019	WO 2013/122653 A1 page 5, line 3 to page 6, line 4 EP 3483316 A1 CN 110172207 A	
WO 2019/039570 A1	28 Feb. 2019	(Family: none)	
JP 2017-105983 A	15 Jun. 2017	US 2018/0362405 A1 claims, paragraphs [0134]-[0138], [0412]-[0415], table 19 WO 2017/094812 A1 CN 108368347 A	
WO 2019/221029 A1	21 Nov. 2019	(Family: none)	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2020/024516

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08K 5/12(2006.01)i; C08K 7/02(2006.01)i; C08L 101/00(2006.01)i
FI: C08L101/00; C08K7/02; C08K5/12

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））

C08K5/12; C08K7/02; C08L101/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０２０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

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）

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)

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 2016-094538 A (国立研究開発法人産業技術総合研究所) 26.05.2016 (2016-05-26) 特許請求の範囲、[0008]、[0044]、[0045]、[0092]、実施例1	1-7, 9
A	全文、全図	8, 10
Y	JP 2019-052307 A (ウェヤーハウザー・エヌアール・カンパニー) 04.04.2019 (2019-04-04) [0021]-[0024]	1-7, 9
A	全文、全図	8, 10
Y	WO 2019/039570 A1 (古河電気工業株式会社) 28.02.2019 (2019-02-28) [0037]	1-7, 9
A	全文、全図	8, 10
Y	JP 2017-105983 A (国立大学法人京都大学) 15.06.2017 (2017-06-15) 特許請求の範囲、[0095]-[0098]、[0333]-[0336]、[表19]	7
P, A	WO 2019/221029 A1 (星光PMC株式会社) 21.11.2019 (2019-11-21) 全文、全図	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
13.08.2020	25.08.2020

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）
藤代　亮 4J 3850
電話番号 03-3581-1101 内線 3452

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/JP2020/024516

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2016-094538 A	26.05.2016	（ファミリーなし）	
JP 2019-052307 A	04.04.2019	WO 2013/122653 A1 第5頁第3行-第6頁第4行 EP 3483316 A1 CN 110172207 A	
WO 2019/039570 A1	28.02.2019	（ファミリーなし）	
JP 2017-105983 A	15.06.2017	US 2018/0362405 A1 claims, [0134]-[0138], [0412]-[0415], TABLE 19 WO 2017/094812 A1 CN 108368347 A	
WO 2019/221029 A1	21.11.2019	（ファミリーなし）	