

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公表特許公報(A)

(11)公表番号
特表2025-517455
(P2025-517455A)

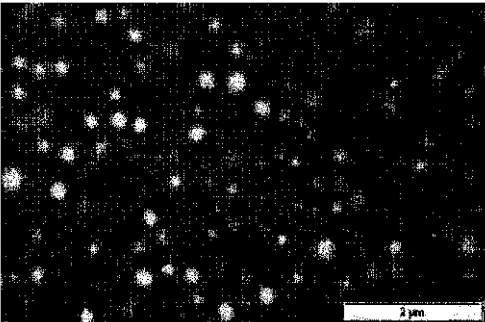
(43)公表日 令和7年6月5日(2025.6.5)

(51)国際特許分類		F I	テーマコード (参考)	
C 0 8 L	67/00 (2006.01)	C 0 8 L	67/00	Z B P 4 F 0 7 1
C 0 8 L	67/02 (2006.01)	C 0 8 L	67/02	4 J 0 0 2
C 0 8 L	67/04 (2006.01)	C 0 8 L	67/04	4 J 1 0 0
C 0 8 L	33/14 (2006.01)	C 0 8 L	33/14	4 J 2 0 0
C 0 8 L	101/16 (2006.01)	C 0 8 L	101/16	
		審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全30頁)	最終頁に続く	
(21)出願番号	特願2024-569025(P2024-569025)	(71)出願人	500239823	
(86)(22)出願日	令和5年4月12日(2023.4.12)		エルジー・ケム・リミテッド	
(85)翻訳文提出日	令和6年11月20日(2024.11.20)		大韓民国 0 7 3 3 6 ソウル, ヨンドゥ	
(86)国際出願番号	PCT/KR2023/004948		ンボ - グ, ヨイ - デロ 1 2 8	
(87)国際公開番号	WO2023/229219	(74)代理人	110000040	
(87)国際公開日	令和5年11月30日(2023.11.30)		弁理士法人池内アンドパートナーズ	
(31)優先権主張番号	10-2022-0064184	(72)発明者	パク、ソン - ウン	
(32)優先日	令和4年5月25日(2022.5.25)		大韓民国、テジョン、ユソン - グ、ムン	
(33)優先権主張国・地域又は機関	韓国(KR)		ジ - ロ、1 8 8、エルジー・ケム・リサ	
(81)指定国・地域	AP(BW,CV,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV	(72)発明者	ユ、キ - ヒョン	
	最終頁に続く		大韓民国、テジョン、ユソン - グ、ムン	
		(72)発明者	チャン、セ - ヨン	
			最終頁に続く	

(54)【発明の名称】 樹脂組成物および成形品

(57)【要約】

本発明は、生分解性樹脂組成物に関し、異種の生分解性樹脂間の相溶性を向上させるための化学的相溶化剤を適用することで相溶性が改善し、機械的物性に優れた生分解性樹脂組成物およびこれにより成形された生分解性成形品に関する。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

第 1 生分解性樹脂および第 2 生分解性樹脂と、アクリル系共重合体および前記アクリル系共重合体から形成された相溶化部のうち少なくとも一つ以上を含み、

前記アクリル系共重合体は、メチル（メタ）アクリレート単量体単位、エポキシ基を含む（メタ）アクリレート単量体単位および炭素数 2 ～ 10 のアルキル（メタ）アクリレート系単量体単位を含み、エポキシ基を含む（メタ）アクリレート単量体単位を 15 重量%以上 60 重量%以下含む、樹脂組成物。

【請求項 2】

前記第 1 生分解性樹脂は、脂肪族ポリエステル単位および芳香族ポリエステル単位を含む、請求項 1 に記載の樹脂組成物。 10

【請求項 3】

前記第 1 生分解性樹脂は、ポリブチレンアジペートテレフタレートを含む、請求項 1 に記載の樹脂組成物。

【請求項 4】

前記第 2 生分解性樹脂は、ポリ乳酸を含む、請求項 1 に記載の樹脂組成物。

【請求項 5】

前記樹脂組成物は、前記第 1 生分解性樹脂 100 重量部に対して、前記第 2 生分解性樹脂を 1 重量部以上 50 重量部以下の含有量で含む、請求項 1 に記載の樹脂組成物。

【請求項 6】

前記樹脂組成物は、前記第 1 生分解性樹脂 100 重量部に対して、前記アクリル系共重合体および前記アクリル系共重合体から形成された相溶化部のうち少なくとも一つ以上を 0.01 重量部以上 10 重量部以下の含有量で含む、請求項 1 に記載の樹脂組成物。 20

【請求項 7】

前記アクリル系共重合体は、メチル（メタ）アクリレート単量体単位 25 重量%以上 65 重量%以下、エポキシ基を含む（メタ）アクリレート単量体単位 15 重量%以上 60 重量%以下、および炭素数 2 ～ 10 のアルキル（メタ）アクリレート系単量体単位 5 重量%以上 30 重量%以下を含む、請求項 1 に記載の樹脂組成物。

【請求項 8】

前記アクリル系共重合体は、エポキシ当量（E . E . W）が 200 g / eq 以上 800 g / eq 以下である、請求項 1 に記載の樹脂組成物。 30

【請求項 9】

前記アクリル系共重合体は、重量平均分子量が 10,000 以上 100,000 以下である、請求項 1 に記載の樹脂組成物。

【請求項 10】

前記アクリル系共重合体は、ガラス転移温度が 45 以上 85 以下である、請求項 1 に記載の樹脂組成物。

【請求項 11】

前記樹脂組成物は、樹脂組成物全体の重量平均分子量が 100,000 以上 200,000 以下である、請求項 1 に記載の樹脂組成物。 40

【請求項 12】

前記樹脂組成物は、ASTM D1238 に準じて、190 で 5 kg の荷重で測定したメルトインデックスが 3 g / 10 min 以上 13.5 g / 10 min 以下である、請求項 1 に記載の樹脂組成物。

【請求項 13】

前記樹脂組成物は、ASTM D638 に準じて測定した引張強度が 245 kgf / cm² 以上 500 kgf / cm² 以下である、請求項 1 に記載の樹脂組成物。

【請求項 14】

前記樹脂組成物は、ASTM D638 に準じて測定した伸び率が 400 % 以上である、請求項 1 に記載の樹脂組成物。 50

【請求項 15】

前記樹脂組成物は、試験片に対して、透過電子顕微鏡を用いて、25,000倍率で拡大したときに観察されるドメインの長径を基準としたドメインの平均直径が1 μm以下である、請求項1に記載の樹脂組成物。

【請求項 16】

請求項1から請求項15のいずれか一項に記載の樹脂組成物から成形された成形品。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本出願は、2022年5月25日付けの韓国特許出願第10-2022-0064184号に基づく優先権の利益を主張し、当該韓国特許出願の文献に開示されている全ての内容は、本明細書の一部として組み込まれる。

【0002】

本発明は、樹脂組成物およびこれにより成形された生分解性成形品に関する。

【背景技術】

【0003】

熱可塑性樹脂は、機械的特性および化学的特性に優れ、飲用水容器、医療用、食品包装紙、食品容器、自動車成形品、農業用ビニルなど、様々な分野において用いられている。

【0004】

中でも、ポリエチレンフィルムなどは、機械的物性に優れ、人体に無害であり、且つ熱を加えると、持続的に変形が可能であることから、食品包装用のホットシーリングバッグや、農業用マルチングフィルムなどとして主に用いられている。

【0005】

食品包装用ホットシーリングバッグは、食品などを真空包装するのに多く用いられているが、低いシーリング温度でも優れた接合強度を達成することができるポリエチレンフィルムが主に用いられている。

【0006】

農業用マルチングフィルムは、マルチング農法に主に用いられている。マルチングとは、農作物を栽培するときに、土壌の表面を覆う資材である。各種の資材で土壌の上面を覆うと、雑草の生育を遮断することができ、病虫害を予防することができ、これにより、農薬の使用を節減することができる。また、土壌の温度を容易に調節することができ、土壌内の有益なバクテリアを増殖させることもでき、土壌の浸食を防止し、土壌の水分を維持することができる。このようなマルチング資材としては、ワラ、牧草など作物の葉や、ポリオレフィン系のフィルムなどを使用することができ、一般的には、ポリエチレンフィルムなどの合成樹脂が主に用いられている。

【0007】

しかし、ポリエチレンフィルムは、自然環境で分解されず、再使用も限界がある。特に、最近、廃棄されたポリエチレンフィルムなどのプラスチックが海に流入し、海で還流および太陽光によって非常に小さいサイズの微細プラスチックに破碎される現象が問題になっている。このような微細プラスチックは、数十億～数百億以上の数え切れない量が海に浮遊していると知られており、これは、海生物の体内に流入し、生態系内に蓄積して、食物連鎖の全体に影響を及ぼす。

【0008】

そのため、最近、生分解性プラスチックに関する関心度が高まっている。中でも、ポリブチレンアジペートテレフタレート (polybutylene adipate terephthalate、以下、PBATとする) およびポリ乳酸 (polylactic acid、以下、PLAとする) が、生分解性プラスチックとして関心を受けており、これらを同時に含む生分解性樹脂組成物に対して、PBATおよびPLAの相溶性を向上させるための努力が継続して行われている。

【0009】

10

20

30

40

50

P B A TおよびP L Aを含む生分解性樹脂組成物の相溶化剤は、作動原理に応じて、物理的相溶化剤と化学的相溶化剤とに分けられる。物理的相溶化剤は、P B A TまたはP L Aを含む共重合体を使用するものが代表的である。しかし、このような物理的相溶化剤を使用する場合、物理的相溶化剤が、可塑剤と類似する役割を果たすことから機械的物性が低下する問題がある。

【 0 0 1 0 】

一方、韓国登録特許公報第 1 0 - 2 0 4 5 8 6 3 号（特許文献 1）は、エポキシ基を含有し、スチレン、アクリル酸エステルおよび／またはメタクリル酸エステルを基材とする共重合体を含む生分解性ポリエステルフィルムを開示している。前記特許文献 1 で開示する共重合体を P B A TおよびP L Aの相溶化剤として使用する場合、特定の含有量以上使用するとき、P B A TおよびP L Aの界面で P B A T - g - P L Aを形成するだけでなく、各樹脂で P B A T - g - P B A Tおよび／またはP L A - g - P L Aを多量形成するようになり、樹脂組成物の粘度を急激に上昇させる問題が発生する。このような急激な粘度の上昇は、樹脂組成物の加工時に統制が難しいため、樹脂組成物の用途を拡大するのに制限的である。したがって、異種の生分解性樹脂を含む生分解性樹脂組成物において化学的相溶化剤として性能は維持し、且つ粘度の上昇を適正範囲で調節して、加工性を確保することができる相溶化剤を確保することが重要である。

10

【先行技術文献】

【特許文献】

【 0 0 1 1 】

20

【特許文献 1】K R 1 0 - 2 0 4 5 8 6 3 B 1

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【 0 0 1 2 】

本発明は、上記従来技術の問題を解決するために導き出されたものであり、異種の生分解性樹脂を含む生分解性樹脂組成物において、異種の生分解性樹脂間の相溶性を向上させるための化学的相溶化剤を適用して相溶性を改善し、機械的物性を向上させる。

【 0 0 1 3 】

すなわち、本発明は、異種の生分解性樹脂を含む生分解性樹脂組成物において、化学的相溶化剤から相溶性が改善し、機械的物性が向上した樹脂組成物を提供することを目的とする。

30

【 0 0 1 4 】

また、本発明は、異種の生分解性樹脂に対する相溶化剤であるアクリル系共重合体の構造を調節することにより、相溶化剤を前記特許文献 1 で開示する共重合体と同じ含有量で使用しても、急激な粘度の上昇を抑制し、且つ相溶性を向上させ、様々な処方および用途に拡大することができる樹脂組成物を提供することを目的とする。

【 0 0 1 5 】

また、本発明は、前記樹脂組成物から成形され、生分解性を示す成形品を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

40

【 0 0 1 6 】

上記課題を解決するために、本発明は、樹脂組成物および成形品を提供する。

【 0 0 1 7 】

（ 1 ）本発明は、第 1 生分解性樹脂および第 2 生分解性樹脂と、アクリル系共重合体および前記アクリル系共重合体から形成された相溶化部のうち少なくとも一つ以上を含み、前記アクリル系共重合体は、メチル（メタ）アクリレート単量体単位、エポキシ基を含む（メタ）アクリレート単量体単位および炭素数 2 ～ 1 0 のアルキル（メタ）アクリレート系単量体単位を含み、エポキシ基を含む（メタ）アクリレート単量体単位を 1 5 重量%以上 6 0 重量%以下含む樹脂組成物を提供する。

【 0 0 1 8 】

50

(2) 本発明は、前記(1)において、第1生分解性樹脂は、脂肪族ポリエステル単位および芳香族ポリエステル単位を含む樹脂組成物を提供する。

【0019】

(3) 本発明は、前記(1)または(2)において、第1生分解性樹脂は、ポリブチレンアジペートテレフタレートを含む樹脂組成物を提供する。

【0020】

(4) 本発明は、前記(1)～(3)のいずれか一つにおいて、第2生分解性樹脂は、ポリ乳酸を含む樹脂組成物を提供する。

【0021】

(5) 本発明は、前記(1)～(4)のいずれか一つにおいて、前記樹脂組成物は、前記第1生分解性樹脂100重量部に対して、前記第2生分解性樹脂を1重量部以上50重量部以下の含有量で含む樹脂組成物を提供する。 10

【0022】

(6) 本発明は、前記(1)～(5)のいずれか一つにおいて、前記樹脂組成物は、前記第1生分解性樹脂100重量部に対して、前記アクリル系共重合体および前記アクリル系共重合体から形成された相溶化部のうち少なくとも一つ以上を0.01重量部以上10重量部以下の含有量で含む樹脂組成物を提供する。

【0023】

(7) 本発明は、前記(1)～(6)のいずれか一つにおいて、前記アクリル系共重合体は、メチル(メタ)アクリレート単量体単位25重量%以上65重量%以下、エポキシ基を含む(メタ)アクリレート単量体単位15重量%以上60重量%以下、および炭素数2～10のアルキル(メタ)アクリレート系単量体単位5重量%以上30重量%以下を含む樹脂組成物を提供する。 20

【0024】

(8) 本発明は、前記(1)～(7)のいずれか一つにおいて、前記アクリル系共重合体は、エポキシ当量(E.E.W)が200g/eq以上800g/eq以下である樹脂組成物を提供する。

【0025】

(9) 本発明は、前記(1)～(8)のいずれか一つにおいて、前記アクリル系共重合体は、重量平均分子量が10,000以上100,000以下である樹脂組成物を提供する。 30

【0026】

(10) 本発明は、前記(1)～(9)のいずれか一つにおいて、前記アクリル系共重合体は、ガラス転移温度が45以上85以下である樹脂組成物を提供する。

【0027】

(11) 本発明は、前記(1)～(10)のいずれか一つにおいて、前記樹脂組成物は、樹脂組成物全体の重量平均分子量が100,000以上200,000以下である樹脂組成物を提供する。

【0028】

(12) 本発明は、前記(1)～(11)のいずれか一つにおいて、前記樹脂組成物は、ASTM D1238に準じて、190で5kgの荷重で測定したメルトインデックスが3g/10min以上13.5g/10min以下である樹脂組成物を提供する。 40

【0029】

(13) 本発明は、前記(1)～(12)のいずれか一つにおいて、前記樹脂組成物は、ASTM D638に準じて測定した引張強度が245kgf/cm²以上500kgf/cm²以下である樹脂組成物を提供する。

【0030】

(14) 本発明は、前記(1)～(13)のいずれか一つにおいて、前記樹脂組成物は、ASTM D638に準じて測定した伸び率が400%以上である樹脂組成物を提供する。 50

【0031】

(15) 本発明は、前記(1)～(14)のいずれか一つにおいて、前記樹脂組成物は、試験片に対して、透過電子顕微鏡を用いて、25,000倍率で拡大したときに観察されるドメインの長径を基準としたドメインの平均直径が1 μ m以下である樹脂組成物を提供する。

【0032】

(16) 本発明は、前記(1)～(15)のいずれか一つによる樹脂組成物から成形された成形品を提供する。

【発明の効果】

【0033】

本発明の樹脂組成物は、異種の生分解性樹脂を含む生分解性樹脂組成物であり、異種の生分解性樹脂間の相溶性を向上させるための化学的相溶化剤を適用することで相溶性が改善し、機械的物性に優れる。

【0034】

また、本発明の樹脂組成物は、異種の生分解性樹脂に対する相溶化剤であるアクリル系共重合体の構造を調節することにより、相溶化剤を前記特許文献1で開示する共重合体と同じ含有量で使用しても、急激な粘度の上昇を抑制するとともに相溶性を向上させ、様々な処方および用途に拡大することができる。

【0035】

また、本発明の前記樹脂組成物から成形された成形品は、機械的物性に優れ、生分解性を示す。

【図面の簡単な説明】

【0036】

【図1】本発明の実施例3で製造された樹脂組成物の試験片の表面を透過電子顕微鏡を用いて、25,000倍率で拡大して撮影したイメージである。

【図2】本発明の比較例1で製造された樹脂組成物の試験片の表面を透過電子顕微鏡を用いて、25,000倍率で拡大して撮影したイメージである。

【発明を実施するための形態】

【0037】

以下、本発明に関する理解を容易にするために、本発明をより詳細に説明する。

【0038】

本発明の説明および特許請求の範囲にて使用されている用語や単語は、通常的小しくは辞書的な意味に限定して解釈してはならず、発明者らは、自分の発明を最善の方法で説明するために用語の概念を適宜定義することができるという原則に則って、本発明の技術的思想に合致する意味と概念に解釈すべきである。

【0039】

本発明において、用語「単量体単位」は、単量体から起因した成分、構造またはその物質自体を示すことができ、具体的な例として、重合体の重合時に、投入される単量体が重合反応に参加して重合体内でなす繰り返し単位を意味し得る。

【0040】

本発明で使用する用語「組成物」は、当該組成物の材料から形成された反応生成物および分解生成物だけでなく、当該組成物を含む材料の混合物を含む。

【0041】

本発明は、樹脂組成物を提供する。

【0042】

前記樹脂組成物は、異種の生分解性樹脂を含む生分解性樹脂組成物であることができる。具体的な例として、前記樹脂組成物は、第1生分解性樹脂および第2生分解性樹脂と、アクリル系共重合体および前記アクリル系共重合体から形成された相溶化部のうち少なくとも一つ以上を含み、前記アクリル系共重合体は、メチル(メタ)アクリレート単量体単位、エポキシ基を含む(メタ)アクリレート単量体単位および炭素数2～10のアルキル

10

20

30

40

50

(メタ)アクリレート系単量体単位を含み、エポキシ基を含む(メタ)アクリレート単量体単位を15重量%以上60重量%以下含むことができる。

【0043】

前記第1生分解性樹脂および第2生分解性樹脂は、互いに種類が異なる生分解性樹脂であって、生分解性樹脂として知られている樹脂であれば、いずれも使用可能であるが、具体的な例として、前記第1生分解性樹脂は、脂肪族ポリエステル単位および芳香族ポリエステル単位を含むポリエステル系樹脂であることができる。さらに具体的な例として、前記第1生分解性樹脂は、ポリブチレンアジペートテレフタレート(PBAT)を含むことができる。PBATは、アジピン酸、1,4-ブタンジオールおよびテレフタル酸のランダム共重合体であり、低密度ポリエチレンに対する生分解性樹脂の代案として提示されている。特に、前記PBATは、アジピン酸と1,4-ブタンジオールにより形成された脂肪族ポリエステル単位から生分解性を確保し、且つテレフタル酸と1,4-ブタンジオールにより形成された芳香族ポリエステル単位から機械的物性を確保することができる。

10

【0044】

前記第2生分解性樹脂は、第1生分解性樹脂と相違する生分解性樹脂であれば、いずれも使用可能であるが、具体的な例として、第2生分解性樹脂は、ポリ乳酸(PLA)を含むことができる。PLAは、バイオ原料で生産されて微生物による作用によって数ヶ月内に水と二酸化炭素などに自然分解する環境に優しい生分解性樹脂に該当する。

【0045】

前記樹脂組成物は、前記第1生分解性樹脂100重量部に対して、前記第2生分解性樹脂を1重量部以上50重量部以下の含有量で含むことができる。具体的な例として、前記樹脂組成物は、前記第1生分解性樹脂100重量部に対して、前記第2生分解性樹脂を1重量部以上、5重量部以上、10重量部以上、15重量部以上、20重量部以上、または25重量部以上の含有量で含むことができ、また、50重量部以下、49重量部以下、48重量部以下、47重量部以下、46重量部以下、45重量部以下、44重量部以下、または43重量部以下の含有量で含むことができ、この範囲内で、機械的物性および加工性がさらに優れることができる。

20

【0046】

前記樹脂組成物は、前記第1生分解性樹脂100重量部に対して、前記アクリル系共重合体および前記アクリル系共重合体から形成された相溶化部のうち少なくとも一つ以上を0.01重量部以上10重量部以下の含有量で含むことができる。具体的な例として、前記樹脂組成物は、前記第1生分解性樹脂100重量部に対して、前記アクリル系共重合体および前記アクリル系共重合体から形成された相溶化部のうち少なくとも一つ以上を、0.01重量部以上、0.05重量部以上、0.10重量部以上、0.11重量部以上、0.12重量部以上、または0.125重量部以上の含有量で含むことができ、また、10重量部以下、9重量部以下、8重量部以下、7重量部以下、6重量部以下、5重量部以下、4重量部以下、3重量部以下、2重量部以下、1重量部以下、0.5重量部以下、0.4重量部以下、0.3重量部以下、または0.2重量部以下の含有量で含むことができる。

30

【0047】

前記アクリル系共重合体は、エポキシ基のような反応性官能基を含む共重合体であり、前記樹脂組成物内で異種の生分解性樹脂の相溶性を向上させるための化学的相溶化剤として含まれることができる。前記アクリル系共重合体は、樹脂組成物内でそれ自体として存在してもよく、反応性官能基が異種の生分解性樹脂と反応して化学的結合による相溶化部の形態として存在してもよく、二つの形態が共存してもよい。

40

【0048】

前記アクリル系共重合体は、メチル(メタ)アクリレート単量体、エポキシ基を含む(メタ)アクリレート単量体および炭素数2~10のアルキル(メタ)アクリレート系単量体を含んで共重合されたアクリル系共重合体であることができる。具体的な例として、前記アクリル系共重合体は、メチル(メタ)アクリレート単量体、エポキシ基を含む(メタ)

50

）アクリレート単量体および炭素数 2 ～ 10 のアルキル（メタ）アクリレート系単量体を含んで共重合されたランダム共重合体であることができ、直鎖状のランダム共重合体であることができる。ここで、「（メタ）アクリレート」は、アクリレートおよびメタクリレートを両方とも含む意味である。

【0049】

前記アクリル系共重合体は、メチル（メタ）アクリレート単量体から形成されたメチル（メタ）アクリレート単量体単位を 25 重量%以上 65 重量%以下の含有量で含むことができる。具体的な例として、前記アクリル系共重合体は、メチル（メタ）アクリレート単量体から形成されたメチル（メタ）アクリレート単量体単位を、25 重量%以上、30 重量%以上、35 重量%以上、または 40 重量%以上の含有量で含むことができ、また、65 重量%以下、60 重量%以下、55 重量%以下、または 50 重量%以下の含有量で含むことができ、この範囲内で、PLA との混用性に優れ、PBAT とも相対的に親和性に優れ、PBAT と PLA の相溶性をさらに向上させることができる。

10

【0050】

前記アクリル系共重合体は、エポキシ基を含む（メタ）アクリレート単量体から形成されたエポキシ基を含む（メタ）アクリレート単量体単位を 15 重量%以上 60 重量%以下の含有量で含むことができる。具体的な例として、前記アクリル系共重合体は、エポキシ基を含む（メタ）アクリレート単量体から形成されたエポキシ基を含む（メタ）アクリレート単量体単位を、15 重量%以上、20 重量%以上、25 重量%以上、30 重量%以上、35 重量%以上、または 40 重量%以上の含有量で含むことができ、また、60 重量%以下、55 重量%以下、50 重量%以下、または 45 重量%以下の含有量で含むことができ、この範囲内で、高分子鎖の柔軟性を増加させることができ、異種の生分解性樹脂間の相溶性をさらに向上させることができ、特に、樹脂組成物からフィルムを製造したときに、フィルム界面間の鎖の拡散および絡み合いを増加させることができる。

20

【0051】

前記エポキシ基を含む（メタ）アクリレート単量体は、グリシジル基を含む（メタ）アクリレート単量体であることができ、具体的な例として、グリシジル（メタ）アクリレート単量体であることができる。前記エポキシ基を含む（メタ）アクリレート単量体は、単量体内に含まれたエポキシ基が、PBAT または PLA に含まれたヒドロキシ基（-OH）、またはカルボン酸基（-COOH）と反応して、化学的相溶化剤としての機能を付与することができる。また、前記反応が PBAT と PLA の界面で行われる場合、PBAT と PLA の相溶性および界面接着力をさらに向上させることができる。

30

【0052】

前記アクリル系共重合体は、炭素数 2 ～ 10 のアルキル（メタ）アクリレート系単量体から形成された炭素数 2 ～ 10 のアルキル（メタ）アクリレート系単量体単位を 5 重量%以上 30 重量%以下の含有量で含むことができる。具体的な例として、前記アクリル系共重合体は、炭素数 2 ～ 10 のアルキル（メタ）アクリレート系単量体から形成された炭素数 2 ～ 10 のアルキル（メタ）アクリレート系単量体単位を、5 重量%以上、10 重量%以上、または 15 重量%以上の含有量で含むことができ、また、30 重量%以下、25 重量%以下、または 20 重量%以下の含有量で含むことができ、この範囲内で、高分子鎖の柔軟性を増加させることができ、異種の生分解性樹脂間の相溶性をさらに向上させることができ、特に、樹脂組成物からフィルムを製造したときに、フィルム界面間の鎖の拡散および絡み合いを増加させることができる。

40

【0053】

前記炭素数 2 ～ 10 のアルキル（メタ）アクリレート系単量体は、エチル（メタ）アクリレート、n-プロピル（メタ）アクリレート、iso-プロピル（メタ）アクリレート、n-ブチル（メタ）アクリレート、iso-ブチル（メタ）アクリレート、t-ブチル（メタ）アクリレート、ペンチル（メタ）アクリレート、ヘキシル（メタ）アクリレート、ヘプチル（メタ）アクリレート、オクチル（メタ）アクリレート、iso-オクチル（メタ）アクリレート、2-エチルヘキシル（メタ）アクリレート、デシル（メタ）アクリ

50

レート、i s o - デシル (メタ) アクリレート、ドデシル (メタ) アクリレート、i s o - ボニル (メタ) アクリレートおよびラウリル (メタ) アクリレートからなる群から選択される 1 種以上であることができる。具体的な例として、前記炭素数 2 ~ 1 0 のアルキル (メタ) アクリレート系単量体は、炭素数 3 ~ 9 または 4 ~ 8 のアルキル (メタ) アクリレート系単量体であることができ、さらに具体的な例として、ブチル (メタ) アクリレートおよび 2 - エチルヘキシル (メタ) アクリレートからなる群から選択される 1 種以上であることができる。

【 0 0 5 4 】

前記アクリル系共重合体は、前記メチル (メタ) アクリレート単量体、エポキシ基を含む (メタ) アクリレート単量体および炭素数 2 ~ 1 0 のアルキル (メタ) アクリレート単量体を含む単量体混合物と、重合開始剤および乳化剤などを含む重合用組成物を、乳化重合して製造されることができる。

10

【 0 0 5 5 】

前記アクリル系共重合体の重合時に、重合温度および重合時間は、必要に応じて実施されることができ、具体的な例として、5 0 以上 2 0 0 以下の重合温度範囲内で、0 . 5 時間以上 2 0 時間以下の重合時間で実施されることができ。

【 0 0 5 6 】

前記重合開始剤は、無機または有機過酸化物であることができ、具体的な例として、カリウムパーサルフェート、ナトリウムパーサルフェート、アンモニウムパーサルフェートなどを含む水溶性重合開始剤と、クメンヒドロパーオキシド、ベンゾイルパーオキシドなどを含む油溶性重合開始剤であることができる。

20

【 0 0 5 7 】

前記重合開始剤とともに過酸化物の反応開始を促進させるために、活性化剤とともに使用することができ、このような活性化剤としては、ナトリウムホルムアルデヒドスルホキシレート、ナトリウムエチレンジアミンテトラアセテート、硫酸第一鉄、およびデキストロースからなる群から選択される 1 種以上が用いられることができる。

【 0 0 5 8 】

重合開始剤は、乾燥重量基準に、単量体混合物 1 0 0 重量部に対して、0 . 1 重量部 ~ 1 0 重量部投入されることができ、具体的な例として、0 . 1 重量部 ~ 5 重量部投入されることができ。

30

【 0 0 5 9 】

前記重合は重合反応の効率を増大させるための観点から、連鎖移動剤 (または、鎖移動剤) をさらに含んで実施されることができ。前記連鎖移動剤は、重合過程で、1 種の単量体のみで構成された重合体であるホモポリマーをミセル内に投入する役割を果たすことができる。前記連鎖移動剤は、炭素数 5 ~ 2 0 の直鎖または分岐鎖アルキルチオール化合物であることができ、具体的な例として、ヘキサチオール、シクロヘキサチオール、アダマンチオール、ヘプタチオール、オクタチオール、ノナチオール、デカチオール、ウンデカチオール、ドデカチオール、ヘキサデカチオール、オクタデカチオールなどであることができる。また、前記連鎖移動剤は、乾燥重量基準に、単量体混合物 1 0 0 重量部に対して、0 . 1 重量部 ~ 1 0 重量部投入されることができ、具体的な例として、0 . 1 重量部 ~ 5 重量部投入されることができ。

40

【 0 0 6 0 】

前記乳化重合は、下記 (S 1 0) ステップ ~ (S 3 0) ステップを含んで実施されることができ。

【 0 0 6 1 】

(S 1 0) ステップ : 乳化剤を溶媒に分散して乳化液を製造するステップ

(S 2 0) ステップ : 各単量体成分を含む単量体混合物および乳化剤などを混合してプレエマルジョンを製造するステップ

(S 3 0) ステップ : 重合開始剤の存在下で、前記 (S 1 0) ステップで製造された乳化液および前記 (S 2 0) ステップで製造されたプレエマルジョンを混合し、乳化重合を

50

実施するステップ

【0062】

前記アクリル系共重合体を重合するための乳化重合は、前記（S10）ステップ～（S30）ステップによって実施されることができる。

【0063】

先ず、（S10）ステップとして、乳化剤を含む乳化液を製造する。これは、下記プレエマルション（pre-emulsion）の製造過程とは別である。乳化剤は、アニオン性乳化剤を単独で使用するか、あるいはアニオン性乳化剤、カチオン性乳化剤、および非イオン性乳化剤をともに使用することができる。このような乳化剤成分および水などの溶媒を混合して、乳化液を製造することができる。前記乳化液の製造過程で、数ナノメートルサイズのミセル初期粒子（micelle）が安定的に形成されることができる。また、（S20）ステップとして、前記単量体混合物を含む、プレエマルションを製造する過程により、上述の各単量体、乳化剤などを水に混合してプレエマルションを製造する。この際、やはり、乳化剤としては、アニオン性乳化剤を単独で使用するか、あるいはアニオン性乳化剤および上述の非イオン性乳化剤をともに使用することができる。この過程で、前記プレエマルション内には、ナノサイズのラテックス粒子が形成されることができる。すなわち、上述の乳化剤は、乳化液の製造ステップ、およびプレエマルションの製造ステップのいずれか一つのステップ以上で用いられることができる。また、（S30）ステップとして、前記製造された前記乳化液に重合開始剤を投入した後、前記プレエマルションおよび重合開始剤を均等な比率で所定の時間連続投入する。

10

20

【0064】

前記乳化液に投入される重合開始剤の含有量は、単量体混合物100重量部に対して0重量部超～1重量部であることができ、前記プレエマルションとともに投入される重合開始剤の含有量は、単量体混合物100重量部に対して0.1重量部～2重量部であることができ、前記連続投入する時間は、約3時間～約7時間であることができる。この過程により、プレエマルション内の浮遊単量体または重合体が、前記乳化液で生成された初期粒子内に流入することができる。このような反応の結果物は、以降、追加重合開始剤の存在下で、加温重合する過程を経ることもでき、これにより、残りの単量体の重合が行われる。ここで、重合開始剤は、単量体混合物100重量部に対して0.1重量部～10重量部がさらに投入されることができ、前記加温重合は、約75～約85の温度で、約40分～約80分間行われることができる。このような乳化重合方法は、乳化液の製造過程とプレエマルションの製造過程に二元化されており、以降、乳化液にプレエマルションを混合する単純な方法により行われることができ、従来の方法に比べて、工程安定性および生産性を向上させることができる。

30

【0065】

前記乳化重合に用いられる乳化剤は、アニオン性乳化剤、カチオン性乳化剤、および非イオン性乳化剤からなる群から選択される1種以上を含むことができる。前記乳化剤は、親水性（hydrophilic）基と疎水性（hydrophobic）基を同時に有している物質であり、乳化重合過程で、ミセル（micelle）構造を形成し、ミセル構造の内部で各単量体の重合が行われるようにする。乳化重合に一般的に用いられる乳化剤は、アニオン性乳化剤、カチオン性乳化剤、および非イオン性乳化剤などに分けられ、乳化重合での重合安定性の面で、2種以上を互いに混合して使用することもできる。具体的な例として、前記非イオン性乳化剤は、ポリエチレンオキシドアルキルアリアルエーテル、ポリエチレンオキシドアルキルアミン、およびポリエチレンオキシドアルキルエステルからなる群から選択される1種以上を含むことができる。また、前記アニオン性乳化剤は、ナトリウムアルキルジフェニルエーテルジスルホネート、ナトリウムポリオキシエチレンアルキルエーテルサルフェート、ナトリウムポリオキシエチレンアリアルエーテルサルフェート、ナトリウムアルキルサルフェート、ナトリウムアルキルベンゼンスルホネート、およびジアルキルナトリウムスルホサクシネートからなる群から選択される1種以上を含むことができる。これらは、単独あるいは2種以上混合して使用することができ、ア

40

50

ニオン乳化剤と非イオン乳化剤を混合して使用する場合、より効果的であることができる。また、前記乳化剤は、前記ラテックス粒子の製造に用いられる単量体成分の総 100 重量部に対して、約 0.1 重量部～約 10 重量部、または、約 1 重量部～約 5 重量部が用いられることができる。

【0066】

前記重合用組成物は、前記乳化剤または単量体成分の他に、水などの水性溶媒をさらにも含んでもよい。ここで、前記水性溶媒は、ラテックス粒子の安定性および粘度の調節の面で、前記ラテックス粒子 100 重量部に対して、約 10～約 1,000 重量部が用いられることができ、組成物の総量を基準としたときに、全固形分含有量 (total solid content、TSC) が約 10 重量%～約 60 重量%に調節されるように用いられることができる。 10

【0067】

前記アクリル系共重合体は、エポキシ当量 (E.E.W) が 200 g/eq 以上 800 g/eq 以下であることができる。具体的な例として、前記アクリル系共重合体は、エポキシ当量 (E.E.W) が、200 g/eq 以上、210 g/eq 以上、220 g/eq 以上、230 g/eq 以上、240 g/eq 以上、250 g/eq 以上、260 g/eq 以上、270 g/eq 以上、280 g/eq 以上、290 g/eq 以上、300 g/eq 以上、310 g/eq 以上、320 g/eq 以上、330 g/eq 以上、340 g/eq 以上、または 350 g/eq 以上であることができ、800 g/eq 以下、700 g/eq 以下、600 g/eq 以下、500 g/eq 以下、490 g/eq 以下、480 g/eq 以下、470 g/eq 以下、460 g/eq 以下、450 g/eq 以下、440 g/eq 以下、430 g/eq 以下、420 g/eq 以下、410 g/eq 以下、400 g/eq 以下、390 g/eq 以下、380 g/eq 以下、370 g/eq 以下、または 360 g/eq 以下であることができ、この範囲内で、異種の生分解性樹脂間の相溶性をさらに向上させることができる。特に、生分解性樹脂がポリエステル系樹脂である場合、ポリエステル系樹脂のヒドロキシ基またはカルボン酸基と効果的に反応し、化学的相溶化剤としての性能をさらに向上させることができる。 20

【0068】

前記アクリル系共重合体は、重量平均分子量が 10,000 以上 100,000 以下であることができる。具体的な例として、前記アクリル系共重合体は、重量平均分子量が 10,000 以上、15,000 以上、20,000 以上、25,000 以上、または 30,000 以上であることができ、また、100,000 以下、90,000 以下、80,000 以下、70,000 以下、60,000 以下、50,000 以下、または 40,000 以下であることができ、この範囲内で、異種の生分解性樹脂、特に、ポリエステル系樹脂の固有の特性を阻害しないとともに、化学的相溶化剤としての作用がさらに優秀であることができる。前記重量平均分子量は、単位なしに表示されることができるが、モル質量に応じて、g/mol の単位で表示されることができる。 30

【0069】

前記アクリル系共重合体は、ガラス転移温度が 45℃ 以上 85℃ 以下であることができる。具体的な例として、前記アクリル系共重合体は、ガラス転移温度が 45℃ 以上、46℃ 以上、47℃ 以上、48℃ 以上、49℃ 以上、50℃ 以上、51℃ 以上、52℃ 以上、53℃ 以上、54℃ 以上、55℃ 以上、56℃ 以上、57℃ 以上、58℃ 以上、または 59℃ 以上であることができ、また、85℃ 以下、84℃ 以下、83℃ 以下、82℃ 以下、81℃ 以下、80℃ 以下、79℃ 以下、78℃ 以下、77℃ 以下、76℃ 以下、75℃ 以下、74℃ 以下、73℃ 以下、72℃ 以下、71℃ 以下、または 70℃ 以下であることができ、この範囲内で、異種の生分解性樹脂を含む樹脂組成物に対する相溶化剤への加工がさらに容易であることができる。 40

【0070】

前記樹脂組成物は、樹脂組成物全体の重量平均分子量が 100,000 以上 200,000 以下であることができる。具体的な例として、前記樹脂組成物は、樹脂組成物全体の 50

重量平均分子量が100,000以上、105,000以上、110,000以上、115,000以上、120,000以上、125,000以上、または130,000以上であることができ、また、200,000以下、195,000以下、190,000以下、185,000以下、180,000以下、175,000以下、170,000以下、165,000以下、160,000以下、または155,000以下であることができ、この範囲内で、樹脂組成物の引張特性をさらに向上させることができる。

【0071】

前記樹脂組成物は、ASTM D1238に準じて、190で5kgの荷重で測定したメルトインデックスが、3g/10min以上13.5g/10min以下であることができる。具体的な例として、前記樹脂組成物は、ASTM D1238に準じて、190で5kgの荷重で測定したメルトインデックスが、3g/10min以上、4g/10min以上、5g/10min以上、6g/10min以上、または6.5g/10min以上であることができ、また、13.5g/10min以下、13g/10min以下、12.5g/10min以下、12g/10min以下、11.5g/10min以下、11g/10min以下、10.5g/10min以下、10g/10min以下、9.5g/10min以下、9g/10min以下であることができ、この範囲内で、樹脂組成物の引張強度に優れ、粘度を適正水準に維持して、加工性をさらに向上させることができる。

10

【0072】

前記樹脂組成物は、ASTM D638に準じて測定した引張強度が、245kgf/cm²以上500kgf/cm²以下であることができる。具体的な例として、前記樹脂組成物は、ASTM D638に準じて測定した引張強度が、245kgf/cm²以上、250kgf/cm²以上、260kgf/cm²以上、270kgf/cm²以上、280kgf/cm²以上、または290kgf/cm²以上であることができ、また、500kgf/cm²以下、490kgf/cm²以下、480kgf/cm²以下、470kgf/cm²以下、460kgf/cm²以下、450kgf/cm²以下、440kgf/cm²以下、430kgf/cm²以下、420kgf/cm²以下、410kgf/cm²以下、400kgf/cm²以下、390kgf/cm²以下、または380kgf/cm²以下であることができる。

20

【0073】

前記樹脂組成物は、ASTM D638に準じて測定した伸び率が400%以上であることができる。具体的な例として、前記樹脂組成物は、ASTM D638に準じて測定した伸び率が、400%以上、410%以上、420%以上、430%以上、440%以上、450%以上、460%以上、470%以上、480%以上、490%以上、500%以上、510%以上、520%以上、530%以上、540%以上、550%以上、560%以上、570%以上、580%以上、590%以上、または600%以上であることができ、また、700%以下、690%以下、680%以下、670%以下、660%以下、または650%以下であることができる。

30

【0074】

前記樹脂組成物は、試験片に対して、透過電子顕微鏡を用いて、25,000倍率で拡大したときに観察されるドメインの長径を基準としたドメインの平均直径が1μm以下であることができる。具体的な例として、前記樹脂組成物は、試験片に対して、透過電子顕微鏡を用いて、25,000倍率で拡大したときに観察されるドメインの長径を基準としたドメインの平均直径が、1μm以下、0.9μm以下、0.8μm以下、0.7μm以下、0.6μm以下、または0.5μm以下であることができ、また、0.01μm以上、0.05μm以上、0.1μm以上、または0.2μm以上であることができる。

40

【0075】

本発明は、成形品を提供する。

【0076】

前記成形品は、前記樹脂組成物、すなわち、生分解性樹脂組成物から成形された生分解

50

性成形品であることができる。ここで、成形品は、射出などにより形成された射出成形品は言うまでもなく、フィルム形成により形成されたフィルム成形品をいずれも含む。

【 0 0 7 7 】

前記成形品は、生分解性フィルムであることができ、具体的な例として、農業用マルチングフィルムや、食品包装材などに用いるためのフィルムであることができる。

【 0 0 7 8 】

以下、本発明が属する技術分野において通常の知識を有する者が容易に実施することができるように、本発明の実施例について詳細に説明する。しかし、本発明は、様々な相違する形態に実現されてもよく、ここで説明する実施例に限定されない。

【 0 0 7 9 】

(製造例および比較製造例：アクリル系共重合体の製造)

(製造例 1)

温度計、攪拌機、滴下漏斗、窒素導入管および還流冷却器を備えた 3 L 容量のガラス反応器に、単量体のメチルメタクリレート、グリシジルメタクリレート、ブチルアクリレートおよび 2 - エチルヘキシルアクリレートの総 1 0 0 重量部に対して、2 0 0 重量部の蒸留水と乳化剤としてナトリウムジオクチルスルホサクシネート (ナトリウムビス (2 - エチルヘキシル) スルホサクシネート) 0 . 5 重量部を入れて攪拌した。攪拌中に、反応器の内部を窒素ガスで置換した後、ガラス反応器を 7 0 に昇温し、カリウムパーサルフェート 0 . 2 重量部を添加し、3 0 分間維持した。

【 0 0 8 0 】

別に、ビーカーに単量体のメチルメタクリレート 4 5 重量部、グリシジルメタクリレート 4 0 重量部およびブチルアクリレート 1 5 重量部を投入し、3 0 分間十分に混合した。これに、連鎖移動剤として 1 - オクタンチオールを前記単量体の総 1 0 0 重量部に対して 0 . 5 重量部投入し、攪拌機で十分に混合した後、この混合物を前記ガラス反応器に 4 時間均等に連続投入した。

【 0 0 8 1 】

その後、重合反応時間が 4 時間経過した時点から、ガラス反応器の内部の温度を 7 0 で 3 0 分間維持した後、常温に冷却した。得られた乳化重合の結果物をカルシウムアセテート水溶液を用いて凝固し、8 5 まで昇温熱処理してから脱水し、6 0 で 1 6 時間乾燥し、アクリル系共重合体を取得した。

【 0 0 8 2 】

(製造例 2)

前記製造例 1 で、ブチルアクリレート 1 5 重量部の代わりに 2 - エチルヘキシルアクリレートを 1 5 重量部投入した以外は、前記製造例 1 と同じ方法で実施して、アクリル系共重合体を取得した。

【 0 0 8 3 】

(製造例 3)

前記製造例 1 で、メチルメタクリレートを 4 5 重量部の代わりに 5 5 重量部投入し、グリシジルメタクリレートを 4 0 重量部の代わりに 3 0 重量部投入した以外は、前記製造例 1 と同じ方法で実施し、アクリル系共重合体を取得した。

【 0 0 8 4 】

(製造例 4)

前記製造例 1 で、メチルメタクリレートを 4 5 重量部の代わりに 3 0 重量部投入し、グリシジルメタクリレートを 4 0 重量部の代わりに 5 5 重量部投入した以外は、前記製造例 1 と同じ方法で実施して、アクリル系共重合体を取得した。

【 0 0 8 5 】

(製造例 5)

前記製造例 1 で、メチルメタクリレートを 4 5 重量部の代わりに 3 0 重量部投入し、グリシジルメタクリレートを 4 0 重量部の代わりに 5 5 重量部投入し、ブチルアクリレート 1 5 重量部の代わりに 2 - エチルヘキシルアクリレートを 1 5 重量部投入した以外は、前

10

20

30

40

50

記製造例 1 と同じ方法で実施して、アクリル系共重合体を取得した。

【 0 0 8 6 】

(製造例 6)

前記製造例 1 で、メチルメタクリレート を 4 5 重量部の代わりに 5 5 重量部投入し、グリシジルメタクリレート を 4 0 重量部の代わりに 2 0 重量部投入し、ブチルアクリレート 1 5 重量部の代わりに 2 - エチルヘキシルアクリレート を 2 5 重量部投入した以外は、前記製造例 1 と同じ方法で実施して、アクリル系共重合体を取得した。

【 0 0 8 7 】

(比較製造例 1)

特許文献 1 に記載のマスターバッチ A の製造に用いられ、商業的に入手可能な共重合体 (メチルメタクリレート、ブチルアクリレート、グリシジルメタクリレートおよびスチレンの共重合体) を用いた。

【 0 0 8 8 】

(比較製造例 2)

前記製造例 1 で、メチルメタクリレート を 4 5 重量部の代わりに 6 4 重量部投入し、グリシジルメタクリレート を 4 0 重量部の代わりに 2 . 1 重量部投入し、ブチルアクリレートを 1 5 重量部の代わりに 3 3 . 9 重量部投入した以外は、前記製造例 1 と同じ方法で実施して、アクリル系共重合体を取得した。

【 0 0 8 9 】

(比較製造例 3)

前記製造例 1 で、メチルメタクリレート を 4 5 重量部の代わりに 6 2 . 3 重量部投入し、グリシジルメタクリレート を 4 0 重量部の代わりに 5 . 2 重量部投入し、ブチルアクリレート 1 5 重量部の代わりに 2 - エチルヘキシルアクリレートを 3 2 . 5 重量部投入した以外は、前記製造例 1 と同じ方法で実施して、アクリル系共重合体を取得した。

【 0 0 9 0 】

(比較製造例 4)

前記製造例 1 で、メチルメタクリレート を 4 5 重量部の代わりに 6 0 重量部投入し、グリシジルメタクリレート を 4 0 重量部の代わりに 1 0 重量部投入し、ブチルアクリレートを 1 5 重量部の代わりに 3 0 重量部投入した以外は、前記製造例 1 と同じ方法で実施して、アクリル系共重合体を取得した。

【 0 0 9 1 】

(比較製造例 5)

前記製造例 1 で、メチルメタクリレート を 4 5 重量部の代わりに 1 0 重量部投入し、グリシジルメタクリレート を 4 0 重量部の代わりに 6 4 . 8 重量部投入し、ブチルアクリレートを 1 5 重量部の代わりに 2 5 . 2 重量部投入した以外は、前記製造例 1 と同じ方法で実施して、アクリル系共重合体を取得した。

【 0 0 9 2 】

(比較製造例 6)

前記製造例 1 で、メチルメタクリレート を 4 5 重量部の代わりに 1 0 重量部投入し、グリシジルメタクリレート を 4 0 重量部の代わりに 7 5 重量部投入し、ブチルアクリレート 1 5 重量部の代わりに 2 - エチルヘキシルアクリレートを 1 5 重量部投入した以外は、前記製造例 1 と同じ方法で実施して、アクリル系共重合体を取得した。

【 0 0 9 3 】

(比較製造例 7)

< アクリル系コアラテックスの製造 >

温度計、攪拌機、滴下漏斗、窒素導入管および還流冷却器を備えた 3 L 容量のガラス反応器に、コアおよびシェルの製造時に投入される単量体のメチルメタクリレート、グリシジルメタクリレートおよびブチルアクリレートの総 1 0 0 重量部に対して、蒸留水 8 0 重量部、炭酸水素ナトリウム (NaHCO_3) 0 . 2 重量部、硫酸第一鉄 0 . 0 0 1 重量部、ジナトリウムエチレンジアミンテトラアセテート 0 . 1 8 重量部を投入し、攪拌した。

10

20

30

40

50

攪拌中に、反応器の内部を窒素ガスで置換した後、ガラス反応器の内部温度を 50 に昇温して維持した。

【0094】

これとは別に、単量体ブレエマルションを製造するために、蒸留水 50 重量部、ラウリルスルホン酸ナトリウム 0.6 重量部、ブチルアクリレート 85 重量部を投入して、単量体ブレエマルションを製造した。

【0095】

前記反応器の内部温度が 50 に維持される状態で、前記製造した単量体ブレエマルションを 5 時間連続して投入し、開始剤の t-ブチルヒドロパーオキシド 0.2 重量部およびナトリウムホルムアルデヒドスルホキシレート 0.2 重量部を同時に投入して反応を開始した。単量体ブレエマルションの投入が完了してから 30 分後、t-ブチルヒドロパーオキシド 0.01 重量部およびナトリウムホルムアルデヒドスルホキシレート 0.02 重量部をさらに投入し、1 時間熟成して、アクリル系コア重合体を含むアクリル系コアラテックスを製造した。ここで、重合転化率は 99% であり、全固形分の含有量は 40 重量%であった。

10

【0096】

<グラフト共重合体ラテックスの製造>

反応器温度を 70 に維持しながら、コアおよびシェルの製造時に投入される単量体のメチルメタクリレート、グリシジルメタクリレートおよびブチルアクリレートの総 100 重量部に対して、蒸留水 10 重量部、ラウリルスルホン酸ナトリウム 0.1 重量部を反応器に投入し、攪拌した。攪拌中に、反応器の内部は、窒素ガスで置換した。

20

【0097】

これとは別に、ビーカーに、メチルメタクリレート 13 重量部、グリシジルメタクリレート 2 重量部および連鎖移動剤として 1-オクタンジオール 0.2 重量部を投入し、攪拌機で十分に攪拌して、グラフト単量体混合物を製造した。

【0098】

前記反応器に前記製造したグラフト単量体混合物を 1 時間連続して投入し、グラフト重合を実施してコア-シェル形態のグラフト共重合体を含むグラフト共重合体ラテックスを製造した。ここで、重合転化率は 99% であり、全固形分の含有量は 42 重量%であった。

30

【0099】

(比較製造例 8)

前記比較製造例 7 で、アクリル系コアラテックスの製造時に、ブチルアクリレート 85 重量部の代わりに 2-エチルヘキシルアクリレートを 80 重量部投入し、グラフト共重合体ラテックスの製造時に、メチルメタクリレートを 13 重量部の代わりに 18 重量部投入した以外は、前記比較製造例 7 と同じ方法で実施し、コア-シェル形態のグラフト共重合体を取得した。

【0100】

(比較製造例 9)

前記比較製造例 7 で、アクリル系コアラテックスの製造時に、ブチルアクリレートを 85 重量部の代わりに 80 重量部投入し、グラフト共重合体ラテックスの製造時に、メチルメタクリレートを 13 重量部の代わりに 15 重量部投入し、グリシジルメタクリレートを 2 重量部の代わりに 5 重量部投入した以外は、前記比較製造例 7 と同じ方法で実施して、コア-シェル形態のグラフト共重合体を取得した。

40

【0101】

(比較製造例 10)

前記比較製造例 7 で、アクリル系コアラテックスの製造時に、ブチルアクリレート 85 重量部の代わりに 2-エチルヘキシルアクリレートを 80 重量部投入し、グラフト共重合体ラテックスの製造時に、メチルメタクリレートを 13 重量部の代わりに 15 重量部投入し、グリシジルメタクリレートを 2 重量部の代わりに 5 重量部投入した以外は、前記比較

50

製造例 7 と同じ方法で実施し、コア - シェル形態のグラフト共重合体を取得した。

【 0 1 0 2 】

(実施例および比較例：樹脂組成物の製造)

(実施例 1)

ポリブチレンアジペートテレフタレート (製造社：X i n j i a n g B l u e r i d g e T u n h e C h e m i c a l I n d u s t r y 社、製品名：T H 8 0 1 T) およびポリ乳酸 (製造社：N a t u r e w o r k s 社、製品名：I n g e o B i o p o l y m e r 2 0 0 3 D) をそれぞれオープンを用いて、6 0 で 2 4 時間乾燥した。

【 0 1 0 3 】

次いで、ポリブチレンアジペートテレフタレート 8 0 重量部、ポリ乳酸 2 0 重量部および前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体 0 . 1 重量部を混合し、T h e r m o E l e c t r o n K a r l s r u h e G m b H 社製の H a a k e R h e o m i x O S L a b m i x e r を用いて、1 8 0 で 6 0 r p m の条件で 8 分間ブレンディングした。次いで、これを粉碎して、樹脂組成物を取得した。 10

【 0 1 0 4 】

(実施例 2)

前記実施例 1 で、前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体を 0 . 1 重量部の代わりに 0 . 3 重量部投入した以外は、前記実施例 1 と同じ方法で実施して樹脂組成物を取得した。

【 0 1 0 5 】

(実施例 3)

前記実施例 1 で、前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体を 0 . 1 重量部の代わりに 1 重量部投入した以外は、前記実施例 1 と同じ方法で実施して樹脂組成物を取得した。 20

【 0 1 0 6 】

(実施例 4)

前記実施例 1 で、前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体 0 . 1 重量部の代わりに前記製造例 2 で取得したアクリル系共重合体を 1 重量部投入した以外は、前記実施例 1 と同じ方法で実施して樹脂組成物を取得した。

【 0 1 0 7 】

(実施例 5)

前記実施例 1 で、前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体 0 . 1 重量部の代わりに前記製造例 3 で取得したアクリル系共重合体を 1 重量部投入した以外は、前記実施例 1 と同じ方法で実施して樹脂組成物を取得した。 30

【 0 1 0 8 】

(実施例 6)

前記実施例 1 で、前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体 0 . 1 重量部の代わりに前記製造例 4 で取得したアクリル系共重合体を 1 重量部投入した以外は、前記実施例 1 と同じ方法で実施して樹脂組成物を取得した。

【 0 1 0 9 】

(実施例 7)

前記実施例 1 で、前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体 0 . 1 重量部の代わりに前記製造例 5 で取得したアクリル系共重合体を 1 重量部投入した以外は、前記実施例 1 と同じ方法で実施して樹脂組成物を取得した。 40

【 0 1 1 0 】

(実施例 8)

前記実施例 1 で、前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体 0 . 1 重量部の代わりに前記製造例 6 で取得したアクリル系共重合体を 1 重量部投入した以外は、前記実施例 1 と同じ方法で実施して樹脂組成物を取得した。

【 0 1 1 1 】

(比較例 1)

前記実施例 1 で、前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体を投入しない以外は、前記実施例 1 と同じ方法で実施して樹脂組成物を取得した。

【 0 1 1 2 】

(比較例 2)

前記実施例 1 で、前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体 0 . 1 重量部の代わりに比較製造例 1 の共重合体を 1 重量部投入した以外は、前記実施例 1 と同じ方法で実施して樹脂組成物を取得した。

【 0 1 1 3 】

(比較例 3)

前記実施例 1 で、前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体 0 . 1 重量部の代わりに前記比較製造例 2 で取得したアクリル系共重合体を 1 重量部投入した以外は、前記実施例 1 と同じ方法で実施して樹脂組成物を取得した。 10

【 0 1 1 4 】

(比較例 4)

前記実施例 1 で、前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体 0 . 1 重量部の代わりに前記比較製造例 3 で取得したアクリル系共重合体を 1 重量部投入した以外は、前記実施例 1 と同じ方法で実施して樹脂組成物を取得した。

【 0 1 1 5 】

(比較例 5)

前記実施例 1 で、前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体 0 . 1 重量部の代わりに前記比較製造例 4 で取得したアクリル系共重合体を 1 重量部投入した以外は、前記実施例 1 と同じ方法で実施して樹脂組成物を取得した。 20

【 0 1 1 6 】

(比較例 6)

前記実施例 1 で、前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体 0 . 1 重量部の代わりに前記比較製造例 5 で取得したアクリル系共重合体を 1 重量部投入した以外は、前記実施例 1 と同じ方法で実施して樹脂組成物を取得した。

【 0 1 1 7 】

(比較例 7)

前記実施例 1 で、前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体 0 . 1 重量部の代わりに前記比較製造例 6 で取得したアクリル系共重合体を 1 重量部投入した以外は、前記実施例 1 と同じ方法で実施して樹脂組成物を取得した。 30

【 0 1 1 8 】

(比較例 8)

前記実施例 1 で、前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体 0 . 1 重量部の代わりに前記比較製造例 7 で取得したアクリル系共重合体を 1 重量部投入した以外は、前記実施例 1 と同じ方法で実施して樹脂組成物を取得した。

【 0 1 1 9 】

(比較例 9)

前記実施例 1 で、前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体 0 . 1 重量部の代わりに前記比較製造例 8 で取得したアクリル系共重合体を 1 重量部投入した以外は、前記実施例 1 と同じ方法で実施して樹脂組成物を取得した。 40

【 0 1 2 0 】

(比較例 1 0)

前記実施例 1 で、前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体 0 . 1 重量部の代わりに前記比較製造例 9 で取得したアクリル系共重合体を 1 重量部投入した以外は、前記実施例 1 と同じ方法で実施して樹脂組成物を取得した。

【 0 1 2 1 】

(比較例 1 1)

前記実施例 1 で、前記製造例 1 で取得したアクリル系共重合体 0 . 1 重量部の代わりに 50

前記比較製造例 10 で取得したアクリル系共重合体を 1 重量部投入した以外は、前記実施例 1 と同じ方法で実施して樹脂組成物を取得した。

【0122】

(実験例)

(実験例 1)

前記製造例 1 ~ 6 および比較製造例 2 ~ 10 で製造されたアクリル系共重合体に対して、以下のような方法により、ガラス転移温度、分子量およびエポキシ当量を測定し、共重合体の構造および単量体の組成とともに下記表 1 に示した。

【0123】

また、比較製造例 1 の共重合体に対して、ガラス転移温度、分子量およびエポキシ当量を測定し、下記表 1 に示した。 10

【0124】

* ガラス転移温度 () : 示差走査熱量計 (製造社 : T A I n s t r u m e n t s 、モデル名 : D S C 2 5 0) を用いて、前記製造例および比較製造例で製造されたそれぞれのアクリル系共重合体の試料 8 m g (誤差範囲 1 m g) を投入し、窒素気流下で、300 まで 10 / m i n の昇温速度で一次加熱した後、10 / m i n の降温速度で 0 まで冷却し、300 まで 10 / m i n の昇温速度で二次加熱し、ガラス転移温度を測定した。

【0125】

* 重量平均分子量および数平均分子量 : 前記取得したアクリル系共重合体試料に対して 20
、ゲル浸透クロマトグラフィー (G P C : g e l p e r m e a t i o n c h r o m a t o g r a p h y 、 P L G P C 2 2 0 、 A g i l e n t T e c h n o l o g i e s 社製) を用いて、下記の条件で重量平均分子量および数平均分子量を測定した。ここで、試料は、溶媒のテトラヒドロフラン (T e t r a h y d r o f u r a n 、 S t a b i l i z e d w i t h B H T) に 2 m g / m l の濃度で溶かした溶液を一部取って使用した。

【0126】

- カラム : P L M i n i M i x e d B X 2
- 溶媒 : T e t r a h y d r o f u r a n (S t a b i l i z e d w i t h B H T)
- 流速 : 0 . 3 m l / m i n
- 試料濃度 : 2 . 0 m g / m l 30
- カラム温度 : 4 0
- 検出機 : W a t e r s 2 4 1 4 R e f r a c t i v e I n d e x D e t e c t o r
- D a t a p r o c e s s i n g : E m p o w e r
- 検定曲線 : ポリスチレン標準品 (分子量 : 2 , 0 0 0 / 1 0 , 0 0 0 / 3 0 , 0 0 0 / 7 0 , 0 0 0 / 2 0 0 , 0 0 0 / 7 0 0 , 0 0 0 / 2 , 0 0 0 , 0 0 0 / 4 , 0 0 0 , 0 0 0 / 1 0 , 0 0 0 , 0 0 0 の 9 種) 使用

【0127】

* エポキシ当量 (g / e q) : B r u k e r 社製の 7 0 0 M H z N M R s p e c t r o m e t e r を用いて、核磁気共鳴分光法にしたがってグリシジルメタクリレートの含有量比 (モル比) を測定し、これにより、エポキシ基の当量数 (e q / m o l) を求め、前記で測定した数平均分子量 (M n) 値を用いてエポキシ当量 (g / e q) を算出した。 40

【0128】

【表 1】

区分	共 重 合 体 の 構 造	単量体の組成				ガ ラ ス 転 移 温 度	重 量 平 均 分 子 量	エ ポ キ シ 当 量 ⁹⁾
		MMA ¹⁾	GMA ²⁾	BA ³⁾	2- EHA ⁴⁾			
		(重量%)				(℃)	(g/mol)	(g/eq)
製造例1	直鎖状	45.0	40.0	15.0	－	65	33,000	355
製造例2	直鎖状	45.0	40.0	－	15.0	57	33,000	355
製造例3	直鎖状	55.0	30.0	15.0	－	68	33,000	471
製造例4	直鎖状	30.0	55.0	15.0	－	57	33,000	258
製造例5	直鎖状	30.0	55.0	－	15.0	52	33,000	259
製造例6	直鎖状	55.0	20.0	－	25.0	47	30,000	708
比較製造例1	直鎖状	－				54	6,800	285
比較製造例2	直鎖状	64.0	2.1	33.9	－	35	30,000	6,796
比較製造例3	直鎖状	62.3	5.2	－	32.5	34	30,000	2,712
比較製造例4	直鎖状	60.0	10.0	30.0	－	39	28,000	1,414
比較製造例5	直鎖状	10.0	64.8	25.2	－	35	38,000	219
比較製造例6	直鎖状	10.0	75.0	－	15.0	63	40,000	190
比較製造例7 ⁵⁾	コア-シ ェル	13.0	2.0	85.0	－	－ 55/95	10,000	－
比較製造例8 ⁶⁾	コア-シ ェル	18.0	2.0	－	80.0	－ 70/98	13,000	－
比較製造例9 ⁷⁾	コア-シ ェル	15.0	5.0	80.0	－	－ 55/93	13,000	－
比較製造例 10 ⁸⁾	コア-シ ェル	15.0	5.0	－	80.0	－ 70/93	13,000	－
1) MMA：メチルメタクリレート 2) GMA：グリシジルメタクリレート 3) BA：ブチルアクリレート 4) 2-EHA：2-エチルヘキシルアクリレート 5) 比較製造例6：コア（BA）ガラス転移温度-55℃/シェル（MMA、GMA）ガラス転移温度95℃/Mw=シェルのMw 6) 比較製造例7：コア（2-EHA）ガラス転移温度-70℃/シェル（MMA、GMA）ガラス転移温度98℃/Mw=シェルのMw 7) 比較製造例8：コア（BA）ガラス転移温度-55℃/シェル（MMA、GMA）ガラス転移温度93℃/Mw=シェルのMw 8) 比較製造例9：コア（2-EHA）ガラス転移温度-70℃/シェル（MMA、GMA）ガラス転移温度93℃/Mw=シェルのMw 9) コア-シェルアクリル系共重合体の全体エポキシ当量の測定不可								

【0129】

（実験例2）

前記実施例1および比較例1で製造された樹脂組成物をそれぞれ130mm×130mm×2mmサイズのモールドに入れ、180℃で約5分間予熱した後、20MPaの圧縮荷重の条件下で、3分間プレス加工した後、常温でクエンチングして試験片を製造した。次いで、試験片の断面をマイクロトミングし、透過電子顕微鏡を用いて、25,000倍率で拡大し、それぞれ、図1（実施例3）および図2（比較例1）に示した。

【0130】

図1に図示したように、実施例3の場合、ポリブチレンアジベートテレフタレート（暗

10

20

30

40

50

い部分)内にポリ乳酸(明るい部分)のドメインが別に存在するが、最大のドメインの場合でもドメインの長径を基準としたドメインのサイズが約 $0.5\mu\text{m}$ 未満であり、ポリ乳酸のドメインが非常に小さく形成されていることを明確に確認することができた。

【0131】

一方、図2に図示したように、別の相溶化剤を投入していない比較例1の場合、ポリブチレンアジペートテレフタレート(暗い部分)内にポリ乳酸(明るい部分)のドメインが別に存在し、ドメインの長径を基準としたドメインのサイズが小さくは約 $0.5\mu\text{m}$ から大きくは約 $1.5\mu\text{m}$ に至る水準であり、ポリ乳酸のドメインが大きく形成されていることを確認することができた。

【0132】

前記図1および図2に対して、ImageJソフトウェアのAnalyzeツールを用いて、ドメインの長径を基準とした平均直径を分析した結果、実施例3の場合、ドメインの長径を基準としたポリ乳酸ドメインの平均直径が約 $0.3\mu\text{m}$ であることが確認され、比較例1の場合、ドメインの長径を基準としたポリ乳酸ドメインの平均直径が約 $1.2\mu\text{m}$ であることが確認された。

【0133】

このような結果から、本発明の実施例で製造された樹脂組成物は、アクリル系共重合体によりポリ乳酸とポリブチレンアジペートテレフタレートの相溶性が向上し、ポリ乳酸が小さく、均一に分散していることを確認することができた。

【0134】

(実験例3)

前記実施例1～8および比較例1～11で製造された樹脂組成物に対して、以下のような方法で分子量および分子量分布、引張強度、伸び率およびメルトインデックスを測定し、下記表2に示した。

【0135】

*重量平均分子量、数平均分子量、分子量分布および分子量の増加率：前記取得した樹脂組成物の試料に対して、ゲル浸透クロマトグラフィー(GPC: gel permeation chromatography、PL GPC 220、Agilent Technologies社製)を用いて、下記の条件で重量平均分子量および数平均分子量を測定した。ここで、試料は、溶媒のクロロホルム(Chloroform)に $1\text{mg}/\text{ml}$ の濃度で溶かした溶液を一部取り、使用した。

【0136】

- カラム: PL MiniMixed B X 2
- 溶媒: Chloroform
- 流速: $1.0\text{mL}/\text{min}$
- 試料濃度: $1.0\text{mg}/\text{ml}$
- カラム温度: 40
- 検出機: Waters 2414 Refractive Index Detector
- Data processing: Empower
- 検定曲線: ポリスチレン標準品(分子量: $2,000/10,000/30,000/70,000/200,000/700,000/2,000,000/4,000,000/10,000,000$ の9種)使用

【0137】

また、アクリル系共重合体を投入していない比較例1の樹脂組成物に対して測定された重量平均分子量を基準に、実施例1～8および比較例2～11の樹脂組成物に対して測定された重量平均分子量の増加率を下記数学式1にしたがって計算して示した。

【0138】

[数学式1]

分子量の増加率 = (実施例1～8および比較例2～11の樹脂組成物に対して測定され

10

20

30

40

50

た重量平均分子量 / 比較例 1 の樹脂組成物に対して測定された重量平均分子量) $\times 100$
【0139】

* 引張強度および伸び率：前記取得した樹脂組成物をそれぞれ $130\text{ mm} \times 130\text{ mm} \times 2\text{ mm}$ サイズのモールドに入れ、 180°C で約 5 分間予熱した後、 20 MPa の圧縮荷重の条件下で 3 分間プレス加工した後、常温でクエンチして試験片を製造した。製造された試験片を ASTM D638、Type 4 基準に準じて試験試験片として準備し、Instron 社製の万能物性試験機 (Instron 3365) を用いて、 50 mm/min の条件で ASTM D638 基準に準じて、伸び率および引張強度を測定した。

【0140】

* メルトインデックス ($\text{g}/10\text{ min}$)：Gottfert 社製の MI-4 を用いて、ASTM D1238 (190°C 、 5 kg) に準じて、前記取得した樹脂組成物試料のメルトインデックスを測定した。

10

【0141】

【表 2】

区分	重量平均分子量	分子量の増加率	メルトインデックス	引張強度	伸び率
	(g/mol)	(Index)	($\text{g}/10\text{ min}$)	(kgf/cm^2)	(%)
実施例1	135,000	100	13.0	295	675
実施例2	141,000	104	11.3	334	675
実施例3	150,000	111	6.9	392	670
実施例4	152,000	113	6.7	385	670
実施例5	145,000	107	7.6	360	670
実施例6	159,000	118	5.0	400	665
実施例7	159,000	118	4.8	410	665
実施例8	141,000	104	10.6	300	665
比較例1	135,000	100	14.3	230	670
比較例2	175,000	130	0.0	393	590
比較例3	135,000	100	14.3	233	670
比較例4	135,000	100	14.3	233	670
比較例5	138,000	102	14.0	243	670
比較例6	162,000	120	2.0	420	560
比較例7	175,000	128	1.0	439	500
比較例8	135,000	100	14.7	197	590
比較例9	135,000	100	14.5	195	640
比較例10	135,000	100	13.9	200	645
比較例11	138,000	102	13.8	210	645

20

30

40

【0142】

前記表 2 に示したように、特許文献 1 で開示する共重合体を相溶化剤として含む比較例 2 の樹脂組成物は、相溶化剤を含んでいない比較例 1 で製造された樹脂組成物に比べて重量平均分子量が著しく増加して引張強度は増加したものと示されるが、粘度が急激に上昇してメルトインデックスが示されないほど非常に低く、伸び率もむしろ低下したことを確認することができた。

50

【 0 1 4 3 】

一方、本発明の実施例 1 ～ 8 で製造された樹脂組成物は、相溶化剤として本発明で限定するアクリル系共重合体を含むことにより、相溶化剤を含んでいない比較例 1 で製造された樹脂組成物に比べて、伸び率を同等またはそれ以上の水準に維持しながら引張強度が増加したことを確認することができ、特に、相溶化剤を同じ含有量で含む比較例 2 の樹脂組成物に比べてメルトインデックスが高く、加工性に優れることを確認することができた。

【 0 1 4 4 】

一方、比較製造例 2 ～ 4 で製造されたエポキシ基を含む（メタ）アクリレート単量体単位の含有量が低く、メチル（メタ）アクリレート単量体単位および炭素数 2 ～ 10 のアルキル（メタ）アクリレート系単量体単位を過量で含むアクリル系共重合体を相溶化剤として適用した比較例 3 ～ 5 で製造された樹脂組成物は、相溶化剤をさらに投入したにもかかわらず、メルトインデックスによる加工性と、引張特性の変化が極めて微小であることを確認することができた。

【 0 1 4 5 】

また、比較製造例 5 および 6 で製造されたエポキシ基を含む（メタ）アクリレート単量体単位の含有量が高く、メチル（メタ）アクリレート単量体単位を微量で含むアクリル系共重合体を相溶化剤として適用した比較例 6 および 7 で製造された樹脂組成物は、エポキシ基を含む（メタ）アクリレート単量体単位の含有量の増加によってアクリル系共重合体内のエポキシ当量が急激に増加し、PLA と PBAT との界面接着力が過剰に高くなることによって、伸び率が著しく低下したことを確認することができた。

【 0 1 4 6 】

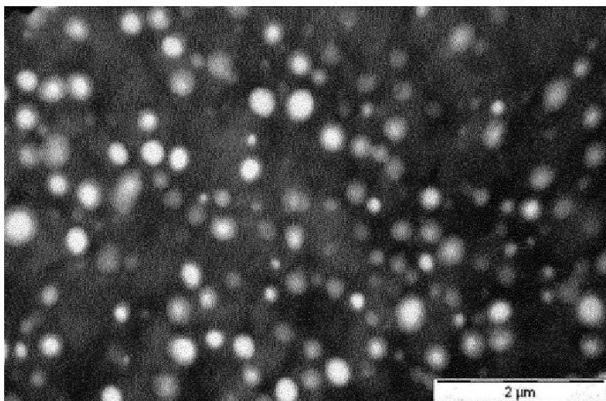
また、比較製造例 7 ～ 10 で製造されたコア - シェル形態のアクリル系共重合体を相溶化剤として適用した比較例 8 ～ 11 で製造された樹脂組成物は、むしろ PLA と PBAT との相溶性を阻害し、引張特性が低下したことを確認することができた。

【 0 1 4 7 】

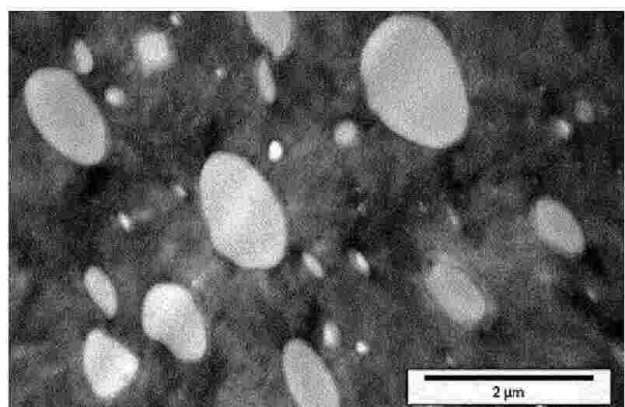
このような結果から、本発明の樹脂組成物は、異種の生分解性樹脂間の相溶性を向上させるための化学的相溶化剤を適用して相溶性が改善し、機械的物性に優れることを確認することができた。

【 図 面 】

【 図 1 】



【 図 2 】



10

20

30

40

50

【 手 続 補 正 書 】

【 提 出 日 】 令 和 6 年 1 1 月 2 6 日 (2 0 2 4 . 1 1 . 2 6)

【 手 続 補 正 1 】

【 補 正 対 象 書 類 名 】 明 細 書

【 補 正 対 象 項 目 名 】 0 1 2 8

【 補 正 方 法 】 変 更

【 補 正 の 内 容 】

【 0 1 2 8 】

【 表 1 】

区分	共 重 合 体 の 構 造	単量体の組成				ガ ラ ス 転 移 温 度	重 量 平 均 分 子 量	エ ポ キ シ 当 量 9)
		MMA ¹⁾	GMA ²⁾	BA ³⁾	2- EHA ⁴⁾			
		(重量%)				(℃)	(g/mol)	(g/eq)
製造例1	直鎖状	45.0	40.0	15.0	—	65	33,000	355
製造例2	直鎖状	45.0	40.0	—	15.0	57	33,000	355
製造例3	直鎖状	55.0	30.0	15.0	—	68	33,000	471
製造例4	直鎖状	30.0	55.0	15.0	—	57	33,000	258
製造例5	直鎖状	30.0	55.0	—	15.0	52	33,000	259
製造例6	直鎖状	55.0	20.0	—	25.0	47	30,000	708
比較製造例1	直鎖状	—				54	6,800	285
比較製造例2	直鎖状	64.0	2.1	33.9	—	35	30,000	6,796
比較製造例3	直鎖状	62.3	5.2	—	32.5	34	30,000	2,712
比較製造例4	直鎖状	60.0	10.0	30.0	—	39	28,000	1,414
比較製造例5	直鎖状	10.0	64.8	25.2	—	35	38,000	219
比較製造例6	直鎖状	10.0	75.0	—	15.0	63	40,000	190
比較製造例7 ⁵⁾	コア-シ ェル	13.0	2.0	85.0	—	— 55/95	10,000	—
比較製造例8 ⁶⁾	コア-シ ェル	18.0	2.0	—	80.0	— 70/98	13,000	—
比較製造例9 ⁷⁾	コア-シ ェル	15.0	5.0	80.0	—	— 55/93	13,000	—
比較製造例 10 ⁸⁾	コア-シ ェル	15.0	5.0	—	80.0	— 70/93	13,000	—
1) MMA : メチルメタクリレート 2) GMA : グリシジルメタクリレート 3) BA : ブチルアクリレート 4) 2-EHA : 2-エチルヘキシルアクリレート 5) 比較製造例 7 : コア (BA) ガラス転移温度-5 5℃/シェル (MMA、GMA) ガラス転 移温度 9 5℃/Mw=シェルのMw 6) 比較製造例 8 : コア (2-EHA) ガラス転移温度-7 0℃/シェル (MMA、GMA) ガラ ス転移温度 9 8℃/Mw=シェルのMw 7) 比較製造例 9 : コア (BA) ガラス転移温度-5 5℃/シェル (MMA、GMA) ガラス転 移温度 9 3℃/Mw=シェルのMw 8) 比較製造例 10 : コア (2-EHA) ガラス転移温度-7 0℃/シェル (MMA、GMA) ガ ラス転移温度 9 3℃/Mw=シェルのMw 9) コア-シェルアクリル系共重合体の全体エポキシ当量の測定不可								

【 手 続 補 正 2 】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 1 2 9

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 1 2 9】

(実験例 2)

前記実施例 3 および比較例 1 で製造された樹脂組成物をそれぞれ 1 3 0 m m × 1 3 0 m m × 2 m m サイズのモールドに入れ、1 8 0 で約 5 分間予熱した後、2 0 M P a の圧縮荷重の条件下で、3 分間プレス加工した後、常温でクエンチングして試験片を製造した。次いで、試験片の断面をマイクロトミングし、透過電子顕微鏡を用いて、2 5 , 0 0 0 倍率で拡大し、それぞれ、図 1 (実施例 3) および図 2 (比較例 1) に示した。

20

30

40

50

【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2023/004948

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C08L 67/02(2006.01); C08L 67/04(2006.01); C08L 33/12(2006.01); C08L 33/06(2006.01) 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) C08L 67/02(2006.01); B29B 11/08(2006.01); C08J 5/18(2006.01); C08K 13/02(2006.01); C08L 101/00(2006.01); C08L 101/16(2006.01); C08L 67/04(2006.01) Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Korean utility models and applications for utility models: IPC as above Japanese utility models and applications for utility models: IPC as above Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) eKOMPASS (KIPO internal) & keywords: 생분해성(biodegradable), 폴리부틸렌 아디페이트 테레프탈레이트(polybutylene adipate terephthalate), 폴리젯산(polylactic acid), 상용화제(compatibilizer), 아크릴계 공중합체(acrylic copolymer), 에폭시기(epoxy group)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	KR 10-2006-0120214 A (EASTMAN CHEMICAL COMPANY) 24 November 2006 (2006-11-24) See claims 1-84; paragraph [0014]; and table 1.	1-16
Y	ZHANG, Y. et al. Epoxy 기능화된 Acrylate 입자가 가소화된 PLA Blown Films의 물성에 미치는 영향. Polymer (Korea). 2016, vol. 40, no. 3, pp. 429-438 (The Influence of Epoxy Functionalized Acrylate Particles on the Properties of Plasticized PLA Blown Films.) See abstract; pages 433-436; and tables 2-4.	1-16
A	CN 112552655 A (ZHONGGUANG NUCLEAR JUNER (ZHEJIANG) NEW MATERIALS CO., LTD. et al.) 26 March 2021 (2021-03-26) See entire document.	1-16
DA	KR 10-2045863 B1 (BASF SE) 18 November 2019 (2019-11-18) See entire document.	1-16
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> 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 "D" document cited by the applicant in the international application "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 17 July 2023		Date of mailing of the international search report 17 July 2023
Name and mailing address of the ISA/KR Korean Intellectual Property Office Government Complex-Daejeon Building 4, 189 Cheongsaro, Seo-gu, Daejeon 35208 Facsimile No. +82-42-481-8578		Authorized officer Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 2022)

International application No.

PCT/KR2023/004948

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	KR 10-2012-0108798 A (HYUNDAI MOTOR COMPANY) 05 October 2012 (2012-10-05) See entire document.	1-16

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/KR2023/004948

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)
KR	10-2006-0120214	A	24 November 2006	CN	1898326	A	17 January 2007
				CN	1898326	B	16 May 2012
				EP	1699872	A1	13 September 2006
				EP	1699872	B1	28 June 2017
				EP	2562216	A2	27 February 2013
				EP	2562216	A3	21 May 2014
				EP	2562216	B1	21 June 2017
				JP	2007-515544	A	14 June 2007
				JP	4976138	B2	18 July 2012
				KR	10-1151941	B1	01 June 2012
				US	2005-0154114	A1	14 July 2005
				US	7368503	B2	06 May 2008
				WO	2005-063886	A1	14 July 2005
CN	112552655	A	26 March 2021	CN	112552655	B	06 December 2022
KR	10-2045863	B1	18 November 2019	CN	103687902	A	26 March 2014
				CN	103687902	B	13 July 2016
				EP	2522695	A1	14 November 2012
				EP	2707427	A1	19 March 2014
				EP	2707427	B1	08 July 2015
				EP	2707427	B2	27 June 2018
				JP	2014-517103	A	17 July 2014
				JP	5988278	B2	07 September 2016
				KR	10-2014-0033079	A	17 March 2014
				WO	2012-152820	A1	15 November 2012
KR	10-2012-0108798	A	05 October 2012	KR	10-1734561	B1	11 May 2017
				US	2012-0245292	A1	27 September 2012
				US	8378027	B2	19 February 2013

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (July 2022)

10

20

30

40

50

국제조사보고서

국제출원번호

PCT/KR2023/004948

A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC)) C08L 67/02(2006.01)i; C08L 67/04(2006.01)i; C08L 33/12(2006.01)i; C08L 33/06(2006.01)i		
B. 조사된 분야 조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재) C08L 67/02(2006.01); B29B 11/08(2006.01); C08J 5/18(2006.01); C08K 13/02(2006.01); C08L 101/00(2006.01); C08L 101/16(2006.01); C08L 67/04(2006.01) 조사된 기술분야에 속하는 최소문헌 이외의 문헌 한국등록실용신안공보 및 한국공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC 일본등록실용신안공보 및 일본공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC 국제조사에 이용된 전산 데이터베이스(데이터베이스의 명칭 및 검색어(해당하는 경우)) eKOMPASS(특허청 내부 검색시스템) & 키워드: 생분해성(biodegradable), 폴리부틸렌 아디페이트 테레프탈레이트(polybutylene adipate terephthalate), 폴리젖산(poly(lactic acid), 상용화제(compatibilizer), 아크릴계 공중합체(acrylic copolymer), 에폭시기(epoxy group)		
C. 관련 문헌		
카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
Y	KR 10-2006-0120214 A (이스트만 케미칼 컴파니) 2006.11.24 청구항 1-84; 단락 [0014]; 표 1	1-16
Y	ZHANG, Y. 등, "Epoxy 기능화된 Acrylate 임자가 가소화된 PLA Blown Films 의 물성에 미치는 영향", Polymer (Korea), 2016, 제40권, 제3호, 페이지 429-438 초록; 페이지 433-436; 표 2-4	1-16
A	CN 112552655 A (ZHONGGUANG NUCLEAR JUNER (ZHEJIANG) NEW MATERIALS CO.,LTD. 등) 2021.03.26 전문	1-16
DA	KR 10-2045863 B1 (바스프 에스이) 2019.11.18 전문	1-16
A	KR 10-2012-0108798 A (현대자동차주식회사) 2012.10.05 전문	1-16
<input type="checkbox"/> 추가 문헌이 C(계속)에 기재되어 있습니다. <input checked="" type="checkbox"/> 대응특허에 관한 별지를 참조하십시오.		
* 인용된 문헌의 특별 카테고리: "A" 특별히 관련이 없는 것으로 보이는 일반적인 기술수준을 정의한 문헌 "D" 본 국제출원에서 출원인이 인용한 문헌 "E" 국제출원일보다 빠른 출원일 또는 우선일을 가지나 국제출원일 이후에 공개된 선출원 또는 특허 문헌 "L" 우선권 주장에 의문을 제기하는 문헌 또는 다른 인용문헌의 공개일 또는 다른 특별한 이유(이유를 명시)를 밝히기 위하여 인용된 문헌 "O" 구두 개시, 사용, 전시 또는 기타 수단을 언급하고 있는 문헌 "P" 우선일 이후에 공개되었으나 국제출원일 이전에 공개된 문헌 "T" 국제출원일 또는 우선일 후에 공개된 문헌으로, 출원과 상충하지 않으며 발명의 기초가 되는 원리나 이론을 이해하기 위해 인용된 문헌 "X" 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌 하나만으로 청구된 발명의 신규성 또는 진보성이 없는 것으로 본다. "Y" 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌이 하나 이상의 다른 문헌과 조합하는 경우로 그 조합이 당업자에게 자명한 경우 청구된 발명은 진보성이 없는 것으로 본다. "&" 동일한 대응특허문헌에 속하는 문헌		
국제조사의 실제 완료일 2023년07월17일(17.07.2023)		국제조사보고서 발송일 2023년07월17일(17.07.2023)
ISA/KR의 명칭 및 우편주소 대한민국 특허청 (35208) 대전광역시 서구 청사로 189, 4동 (둔산동, 정부대전청사) 팩스 번호 +82-42-481-8578		심사관 허주형 전화번호 +82-42-481-5373

서식 PCT/ISA/210 (두 번째 용지) (2022년 7월)

10

20

30

40

50

국제조사보고서
대응특허에 관한 정보

국제출원번호

PCT/KR2023/004948

국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
KR 10-2006-0120214 A	2006/11/24	CN 1898326 A	2007/01/17
		CN 1898326 B	2012/05/16
		EP 1699872 A1	2006/09/13
		EP 1699872 B1	2017/06/28
		EP 2562216 A2	2013/02/27
		EP 2562216 A3	2014/05/21
		EP 2562216 B1	2017/06/21
		JP 2007-515544 A	2007/06/14
		JP 4976138 B2	2012/07/18
		KR 10-1151941 B1	2012/06/01
		US 2005-0154114 A1	2005/07/14
		US 7368503 B2	2008/05/06
		WO 2005-063886 A1	2005/07/14
CN 112552655 A	2021/03/26	CN 112552655 B	2022/12/06
KR 10-2045863 B1	2019/11/18	CN 103687902 A	2014/03/26
		CN 103687902 B	2016/07/13
		EP 2522695 A1	2012/11/14
		EP 2707427 A1	2014/03/19
		EP 2707427 B1	2015/07/08
		EP 2707427 B2	2018/06/27
		JP 2014-517103 A	2014/07/17
		JP 5988278 B2	2016/09/07
		KR 10-2014-0033079 A	2014/03/17
		WO 2012-152820 A1	2012/11/15
KR 10-2012-0108798 A	2012/10/05	KR 10-1734561 B1	2017/05/11
		US 2012-0245292 A1	2012/09/27
		US 8378027 B2	2013/02/19

서식 PCT/ISA/210 (대응특허 추가용지) (2022년 7월)

10

20

30

40

50

フロントページの続き

(51)国際特許分類	F I	テーマコード (参考)
C 0 8 F 220/32 (2006.01)	C 0 8 F 220/32	
C 0 8 J 5/18 (2006.01)	C 0 8 J 5/18	C E Y
	C 0 8 J 5/18	C F D

,MC,ME,MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,NE,SN,TD,TG),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,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

大韓民国、テジョン、ユソン - グ、ムンジ - ロ、 1 8 8、エルジー・ケム・リサーチ・パーク

(72)発明者 キム、ヨン - キュン

大韓民国、テジョン、ユソン - グ、ムンジ - ロ、 1 8 8、エルジー・ケム・リサーチ・パーク

F ターム (参考)	4F071	AA33 AA42 AA42X AA43 AA44 AA45X AA81 AA86 AA88 AF15Y
		AF21 AH01 AH04 BA01 BB05 BB06 BC01
	4J002	BG053 BG073 CD193 CF041 CF051 CF182 FD203 GA01 GG02
	4J100	AL03P AL03R AL04R AL10Q CA05 DA01 DA25 DA28 JA58 JA59
		JA67
	4J200	AA04 BA09 BA10 BA14 CA01 DA01 DA02 DA17 DA18 EA04
		EA10 EA11 EA21