

(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
2021年8月26日(26.08.2021)



(10) 国際公開番号

WO 2021/166914 A1

(51) 国際特許分類:

B29K 101/12 (2006.01) C08L 67/02 (2006.01)
B29K 105/12 (2006.01) C08L 93/00 (2006.01)
C08K 5/07 (2006.01) C08L 101/00 (2006.01)
C08K 5/1545 (2006.01) B29C 70/12 (2006.01)
C08L 1/02 (2006.01) B29C 70/28 (2006.01)
C08L 23/00 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2021/005741

(22) 国際出願日: 2021年2月16日(16.02.2021)

(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 2020-024327 2020年2月17日(17.02.2020) JP

(71) 出願人: 古河電気工業株式会社(FURUKAWA ELECTRIC CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1008322 東京都千代田区大手町二丁目6番4号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 原 英和(HARA, Hidekazu); 〒1008322 東京都千代田区大手町二丁目6番4号 古河電気工業株式会社内 Tokyo (JP). 金 宰慶(KIM, Jae Kyung); 〒1008322 東京都千代田区大手町二丁目6番4号 古河電気工業株式会社内 Tokyo (JP). 坂戸 二郎(SAKATO, Jiro); 〒1008322 東京都千代田区大手町二丁目6番4号 古河電気工業株式会社内 Tokyo (JP). 廣石 治郎(HIROISHI, Jirou); 〒1008322 東京都千代田区大手町二丁目6番4号 古河電気工業株式会社内 Tokyo (JP). 鈴木 俊宏(SUZUKI, Toshihiro); 〒1008322 東京都千代田区大手町二丁目6番4号 古河電気工業株式会社内 Tokyo (JP). 太附 雅巳(TAZUKE, Masami); 〒1008322 東京都千代田区大手町二丁目6番4号 古河電気工業株式会社内 Tokyo (JP). 池内 正人(IKEUCHI, Masato); 〒1008322 東京都千代田区大手町二丁目6番4号 古河電気工業株式会社内 Tokyo (JP). 山▲崎▼ 京介(YAMAZAKI, Kyosuke); 〒1008322 東京都千代田区大手町二丁目6番4号 古河電気工業株式会社内 Tokyo (JP). 藪中 健太郎(YABUNAKA, Kentaro); 〒1008322

東京都千代田区大手町二丁目6番4号 古河電気工業株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人イイダアンドパートナーズ, 外(IIDA & PARTNERS et al.); 〒1050004 東京都港区新橋3丁目1番10号 石井ビル3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, IT, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

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

添付公開書類:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: RESIN COMPOSITE MATERIAL AND RESIN MOLDED BODY

(54) 発明の名称: 樹脂複合材及び樹脂成形体

(57) Abstract: Provided are a resin composite material and a resin molded body using the same, the resin composite material containing: a thermoplastic resin; a powder which is dispersed in the thermoplastic resin and contains polysaccharides; and monosaccharides.

(57) 要約: 熱可塑性樹脂と、前記熱可塑性樹脂中に分散された、多糖類を含む粉末と、単糖類とを含有する樹脂複合材、それを用いた樹脂成形体。

WO 2021/166914 A1

明 細 書

発明の名称：樹脂複合材及び樹脂成形体

技術分野

[0001] 本発明は、樹脂複合材及び樹脂成形体に関する。

背景技術

[0002] 熱可塑性樹脂は成形性に優れ、また熱可塑性樹脂を用いた成形体は機械的物性、電気的特性、耐薬品性等に優れることから、熱可塑性樹脂は樹脂成形体の材料として広く用いられている。

[0003] 熱可塑性樹脂成形体は、バージン材を用いて成形されるほか、再生樹脂を用いた熱可塑性樹脂成形体が知られている。また、ラミネート紙、飲料パック等のポリオレフィンを含む使用済材料を用いて熱可塑性樹脂複合材を得る技術も報告されている。紙を含む材料を用いた場合、得られる複合材において紙由来のセルロース繊維が樹脂の強化繊維として作用し、この複合材を用いて得られる熱可塑性樹脂成形体の機械的物性を所望のレベルに高めることができる。とされる。

[0004] このような使用済材料の樹脂複合材へのリサイクル技術の一環として、コーヒー残渣（屑）の使用が検討されている。コーヒー残渣は、コーヒー粉末からコーヒーを抽出した後の残渣である。例えば特許文献1には、コーヒー残渣を利用した樹脂複合材やその製法が提案されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開2010-173169号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 近年、粉末化されたコーヒーをプラスチックカプセルに収納したポーションカプセル式のコーヒーが販売され、新鮮な風味を簡単に楽しめることなどが人気となり、その市場は拡大している。このようなポーションカプセル式

コーヒーの抽出後のコーヒー残渣は依然としてカプセル内に閉じ込められているため、コーヒー残渣のリサイクルは難しいものとなっている。加えて、コーヒー以外にも紅茶、抹茶等を用いたポーションカプセル式の飲料も販売されており、これらの抽出残渣についても、同様にリサイクルが難しくなっている。

[0007] 上記のコーヒー、紅茶、抹茶等の抽出残渣である粉末（抽出前のコーヒー、紅茶、抹茶等の粉末についても同様）はその成分に多糖類を含むために、熱可塑性樹脂と混合して樹脂複合材を調製した場合、多糖類による樹脂の繊維強化作用が期待される。

しかし、上記のような多糖類を含む粉末を用いた樹脂複合材について本発明者らが検討したところ、これらの粉末の含有が樹脂複合材の成形性や耐衝撃特性に不利に働く場合があり、改善の必要があることが分かってきた。

本発明は、熱可塑性樹脂中に多糖類を含む粉末を含みながらも成形性に優れ、耐衝撃特性等の機械的物性にも優れる樹脂複合材及びこれを用いた樹脂成形体を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明の上記課題は下記的手段により解決された。

[0009]〔1〕

熱可塑性樹脂と、

前記熱可塑性樹脂中に分散された、多糖類を含む粉末と、

単糖類と

を含有する樹脂複合材。

〔2〕

前記多糖類を含む粉末が、有機性残渣を含む、〔1〕に記載の樹脂複合材

。

〔3〕

前記多糖類を含む粉末が、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末を含む、

〔1〕に記載の樹脂複合材。

〔4〕

前記熱可塑性樹脂がポリオレフィン樹脂を含む、〔1〕～〔3〕のいずれか1項に記載の樹脂複合材。

〔5〕

前記ポリオレフィン樹脂が酸変性ポリオレフィン樹脂を含む、〔4〕に記載の樹脂複合材

〔6〕

前記樹脂複合材が、前記ポリオレフィン樹脂とは異なる樹脂を含む樹脂粒子を含み、前記ポリオレフィン樹脂とは異なる樹脂の融点が前記ポリオレフィン樹脂の融点より10℃以上高く、前記樹脂粒子の最大直径が10μm以上である、〔4〕又は〔5〕に記載の樹脂複合材。

〔7〕

前記樹脂粒子が、ポリエチレンテレフタレートを含む、〔6〕に記載の樹脂複合材。

〔8〕

繊維長0.3mm以上のセルロース繊維を含む、〔1〕～〔7〕のいずれか1項に記載の樹脂複合材。

〔9〕

土木用、建材用、家具用もしくは自動車用の材料又は構成部材として用いる、〔1〕～〔8〕のいずれか1項に記載の樹脂複合材。

〔10〕

〔1〕～〔8〕のいずれか1項に記載の樹脂複合材を用いた樹脂成形体。

〔11〕

土木用、建材用、家具用もしくは自動車用の材料又は構成部材として用いる、〔10〕に記載の樹脂成形体。

発明の効果

[0010] 本発明の樹脂複合材は、熱可塑性樹脂中に多糖類を含む粉末を含有しながらも成形性に優れ、耐衝撃性等の機械的物性にも優れる。また本発明の成形

体は、熱可塑性樹脂中に多糖類を含む粉末を含有しながらもその製造における成形性に優れ、耐衝撃性等の機械的物性にも優れる。

本発明の上記及び他の特徴及び利点は、下記の記載からより明らかになるであろう。

発明を実施するための形態

[0011] 本発明の好ましい実施の形態について説明する。

[0012] [樹脂複合材]

本発明の樹脂複合材（以下、単に「本発明の複合材」とも称す。）は、熱可塑性樹脂と、前記熱可塑性樹脂中に分散された、多糖類を含む粉末と、単糖類とを含有する。すなわち、熱可塑性樹脂中に多糖類を含む粉末を分散してなり、さらに単糖類を含有する。

本発明において、樹脂複合材とは、複合材を構成する各成分が略均一にまじりあって一体化された材料を意味する。なお、樹脂複合材を構成する成分の一部は凝集物を形成していてもよい。これらの凝集物は複合材全体としてみれば、マトリックス樹脂中にほぼ均一に分散された状態にある。

[0013] 多糖類を含む粉末は、その成分として多糖類を含むものであれば制限なく用いることができる。具体的には、コーヒー豆、茶葉、豆類、穀類（コメ、小麦、トウモロコシ、そば等を含む）等の粉末、これらから飲料等を抽出した後の有機性残渣（コーヒー残渣、茶がしら等）があげられる。本発明では上記粉末と有機性残渣との両方を含む意味で「植物性粉末」という用語を用いる。すなわち、特に断りのない限り、「植物性粉末」は抽出等する前（使用前）の上記粉末、及び／又は、抽出後（使用后）の上記有機性残渣である。なお、「植物性」とは、植物由来の成分を含むこと（好ましくは主成分が植物由来成分であること、より好ましくは植物由来成分を50質量%以上含む、さらに好ましくは植物由来成分を80質量%以上含むこと）を意味する。「有機性」とは、有機物を含むこと（好ましくは主成分が有機物であること、より好ましくは有機物を50質量%以上含む、さらに好ましくは有機物を80質量%以上含むこと）を意味する。上記粉末の形態として、粉状、織

維状、板状等があげられる。

多糖類としては、アラビノガラクトン、ガラクトマンナン、セルロース等があげられる。上記粉末は少なくとも1種の多糖類を含んでいればよい。これらの多糖類は、上記コーヒー豆等の成分として含まれている。

多糖類を含む粉末は、上記有機性残渣であることが好ましく、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末であることがより好ましい。

[0014] 本発明の好ましい実施形態として、多糖類を含む粉末としてコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末を用いる場合を例にとって説明する。以下に記載する説明（コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の最大直径、複合材中の含有量、併用する単糖類、併用する熱可塑性樹脂、別途セルロース繊維及び／又は樹脂粒子をさらに併用してもよいこと、複合材の製造方法及び製造条件など）は、特段の言及がない限り、「コーヒー粉末及びコーヒー残渣」以外の粉末及び／又は有機性残渣を用いる場合にも適用される。

コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末としては、コーヒー粉末からコーヒーを抽出した後の残渣を特に制限なく用いることができる他、未使用（未抽出）のコーヒー粉末の廃棄物等を用いたり、含めることができる。コーヒー粉末としては、コーヒー豆の粉砕物で、具体的に焙煎コーヒー豆の粉砕物があげられる。資源の有効利用の点からは、多糖類を含む粉末がコーヒー残渣を含むことが好ましく、さらには多糖類を含む粉末がコーヒー残渣であることが好ましい。コーヒー豆は、アラビノガラクトン、ガラクトマンナン、セルロース等の多糖類を含む。

[0015] コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末を使用する場合、使用するコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の最大直径は特に限定されないが、例えば0.1 μm ~ 1 mmのものがあげられる。コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の大きさが上記範囲内であると、成形性及び外観品質に優れた複合材とすることができ好ましい。この点からコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の最大直径の下限は、好ましくは1 μm 以上、さらに好ましくは5 μm 以上である。また、同様の観点からコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の最大直径

の上限は好ましくは、 $900\mu\text{m}$ 以下である。さらに好ましくは、 $800\mu\text{m}$ 以下である。

コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の最大直径は、複合材の断面を顕微鏡で観察し、観測されるコーヒー粉の最大直径の平均をとることにより得られる。より具体的には、最大直径は、後述する、樹脂微粒子の最大直径と同様にして求めることができる。

[0016] 複合材中のコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の含有量は、特に限定されないが、複合材中、 $1\sim 80$ 質量%であることが好ましく、 $5\sim 70$ 質量%であることがより好ましい。（ここで、「コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の含有量」とは、複合材中にコーヒー残渣及びコーヒー粉末が含まれている場合にはこれらの合計含有量を意味し、複合材中にコーヒー残渣又はコーヒー粉末のいずれかが含まれている場合には、そのいずれかの含有量を意味する。）複合材中のコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の含有量が上記範囲内であれば、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末を樹脂と複合化するためのコストを抑制しつつ、成形性、機械的物性、外観品質等により優れた複合材とすることができる。複合材中のコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の含有量は、例えばコーヒー残渣に由来せず、かつコーヒー粉末にも由来しないセルロース繊維（コーヒー残渣及びコーヒー粉末に由来しないセルロース繊維とも称す）を別途配合しない形態では、後述するセルロース繊維の測定により把握することができる。

複合材中のコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の含有量の下限は、好ましくは 10 質量%以上、より好ましくは 20 質量%以上、さらに好ましくは 25 質量%以上である。複合材中のコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の含有量の上限は、好ましくは 70 質量%以下、より好ましくは 65 質量%以下、さらに好ましくは 55 質量%以下である。

[0017] 本発明の複合材は単糖類を含有する。単糖類を含有することにより、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末を含有するにもかかわらず成形性を高めることができる。

本発明において、「単糖類を含有する」とは、後述する実施例に記載の[単糖類の判定]方法において、単糖類が検出されることをいう。

単糖類としては例えば、マンノース、グルコース、ガラクトース等があげられる。また、単糖類は、積極的にコーヒー残渣の成分を分解させて生じさせたものであっても、別途添加したものであってもよい。また、例えば、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末と熱可塑性樹脂とを混練する際に、水の存在下で混練して、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末に含まれる多糖類成分の加水分解を促進することにより、複合材中に単糖類を多く含むようにすることができる。

単糖類の含有量は、特に限定されないが、複合材中、0.001～5質量%であることが好ましく、0.002～4質量%であることがより好ましく、0.003～3質量%であることがさらに好ましい。単糖類の含有量が上記範囲内であれば、複合材の機械的物性を維持しつつ、成形性をさらに向上させることができる。複合材中の単糖類の含有量は、例えば粉碎した複合材を水で抽出し、水中の成分を、高速液体クロマトグラフィー（HPLC）／示差屈折率検出器等を用いて測定することで把握できる。

[0018] 本発明の複合材において、熱可塑性樹脂は、複合材のマトリックスとなる樹脂である。熱可塑性樹脂としては、ポリオレフィン樹脂を含むことが好ましい。熱可塑性樹脂がポリオレフィン樹脂を含む場合、熱可塑性樹脂に占めるポリオレフィン樹脂の割合は50質量%以上が好ましく、70質量%以上とすることも好ましく、80質量%以上とすることも好ましく、90質量%以上とすることも好ましい。また、熱可塑性樹脂がポリオレフィン樹脂からなる形態も好ましい。また、熱可塑性樹脂としてポリオレフィン樹脂に代えて、又はポリオレフィン樹脂に加えて、ポリ塩化ビニル樹脂、アクリロニトリル-ブタジエンスチレン共重合体樹脂（ABS樹脂）、アクリロニトリル-スチレン共重合体樹脂（AS樹脂）、ポリアミド樹脂（ナイロン）、ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリブチレンテレフタレート樹脂、ポリスチレン樹脂等の熱可塑性樹脂、3-ヒドロキシブチレート-co-3-ヒド

ロキシヘキサノエート重合体樹脂（PHBH）、ポリブチレンサクシネート樹脂、ポリ乳酸樹脂等の熱可塑性の生分解性の樹脂等を用いることも好ましい。本発明の複合材を構成する熱可塑性樹脂には、これらの樹脂の1種又は2種以上を用いることができる。なかでもポリオレフィン樹脂を含むことが好ましい。

以下の説明においては、マトリックス樹脂としてポリオレフィン樹脂を使用する場合を中心に説明をする。以下に記載するポリオレフィン樹脂に関する説明は、特段の言及がない限り、「ポリオレフィン樹脂」以外の熱可塑性樹脂を用いる場合にも適用される。

[0019] ポリオレフィン樹脂としては、ポリエチレン樹脂やポリプロピレン樹脂が好ましく、あるいはポリエチレン樹脂とポリプロピレン樹脂との混合物（ブレンド樹脂）も好ましい。また、エチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-エチルアクリレート共重合体、エチレン-メチルメタクリレート共重合体、エチレン-アクリル酸共重合体、エチレン-メタクリル酸共重合体、エチレン-グリシジルメタクリレート共重合体、エチレン-プロピレン共重合体等のエチレン系共重合体（エチレンを構成成分として含む共重合体）や、ポリブテン等の樹脂も、複合材に用いるポリオレフィン樹脂として好ましい。ポリオレフィン樹脂は1種を単独で用いても2種以上を併用してもよい。複合材を構成するポリオレフィン樹脂はポリエチレン樹脂及び／又はポリプロピレン樹脂であることが好ましく、ポリプロピレン樹脂であることがより好ましい。

上記ポリエチレンとしては、低密度ポリエチレン（LDPE）、高密度ポリエチレン（HDPE）が挙げられる。

本発明において、上記低密度ポリエチレンは、密度が 880 kg/m^3 以上 940 kg/m^3 未満のポリエチレンを意味する。上記高密度ポリエチレンは、上記低密度ポリエチレンの密度より密度が大きいポリエチレンを意味する。

低密度ポリエチレンは、長鎖分岐を有する、いわゆる「低密度ポリエチレ

ン」及び「超低密度ポリエチレン」といわれるものでもよく、エチレンと少量の α -オレフィンモノマーを共重合させた直鎖状低密度ポリエチレン（LLDPE）でもよく、さらには上記密度範囲に含まれる「エチレン- α -オレフィン共重合体エラストマー」であってもよい。

上記ポリオレフィン樹脂は、通常用いられる不飽和カルボン酸又はその誘導体等で酸変性されていてもよい。

ポリオレフィン樹脂は、酸変性されていないポリオレフィン樹脂と酸変性ポリオレフィン樹脂とを併用してもよい。シラン変性ポリオレフィン樹脂を含んでもよい。特に、ポリプロピレンを用いる場合には、酸変性ポリプロピレン樹脂と併用することが好ましい。酸変性ポリプロピレン樹脂としては、マレイン酸変性ポリプロピレン樹脂が特に好ましくあげられる。

本発明の複合材を構成するポリオレフィン樹脂は、微量のカルボニル基を含有してもよい。カルボニル基（C=O）は、例えば赤外吸収スペクトルで1700/cm付近の吸収ピークとして観察される。カルボニル基の存在は、複合材の接着性を高めるとみられる。このようなカルボニル基の存在は、例えば、ポリオレフィン樹脂自体の酸化や、原料に由来することができ、カルボニル基はポリオレフィン薄膜層及びアルミニウム薄膜層を有するポリエチレンラミネート紙のポリオレフィン樹脂成分に含まれるものであってもよい。

[0020] ポリオレフィン樹脂は溶融軟化温度が低いため、ポリオレフィン樹脂を用いると、複合材が含有するコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末を高温に暴露せずに溶融混練でき、また成形することが可能となる。それゆえ、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の高温による劣化や、著しい分解や、炭化を防ぎ、あるいは低減することが可能となる。

[0021] また、上記ポリオレフィン樹脂は溶融軟化温度が低いため、ポリオレフィン樹脂を用いると、後述のように複合材がセルロース繊維を含有する場合は、含有するセルロース繊維を高温に暴露せずに溶融混練でき、また成形することが可能となる。それゆえ、セルロース繊維の高温による劣化を防ぎ、あ

るいは低減することが可能となる。

また、後述のように複合材が樹脂粒子を含有する場合、ポリオレフィン樹脂を用いると、樹脂粒子の高温への暴露も回避でき、樹脂粒子の本来の機械的物性を十分に発現させることが可能となる。例えば、樹脂粒子がポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート等のポリエステル系の樹脂等の場合は、これら樹脂が軟化溶融するような高温に暴露すると、事前の乾燥が不十分であった場合にはこれら樹脂の加水分解による劣化が促進されるおそれがある。しかし、高温に暴露せずに複合材を混練・成形できれば上記劣化を抑えることができる。結果、溶融混練前の材料についての水分管理の負担が軽減される。

[0022] 複合材中のポリオレフィン樹脂の含有量は、複合体が一体となる含有量であれば特に限定されない。例えば、複合材中の、10～80質量%がポリオレフィン樹脂であることが好ましく、15～70質量%がポリオレフィン樹脂であることがより好ましい。さらに好ましくは、20～60質量%である。

[0023] 本発明の複合材の形態は、ポリオレフィン樹脂がポリプロピレン樹脂を含む（ポリオレフィン樹脂の好ましくは50質量%以上、より好ましくは60質量%以上、さらに好ましくは70質量%以上、さらに好ましくは80質量%以上がポリプロピレン樹脂である）ことが好ましい。

本発明の複合材の別の形態は、ポリオレフィン樹脂が低密度ポリエチレンを含む（ポリオレフィン樹脂の好ましくは50質量%以上、より好ましくは60質量%以上、さらに好ましくは70質量%以上、さらに好ましくは80質量%以上が低密度ポリエチレンである）ことが好ましい。本発明の複合材の別の形態は、ポリオレフィン樹脂が、低密度ポリエチレン樹脂を、ポリオレフィン樹脂の好ましくは40質量%以下、より好ましくは30質量%以下、さらに好ましくは20質量%以下含む形態である。本発明の複合材のさらに別の形態は、ポリオレフィン樹脂が、変性ポリエチレン樹脂を、ポリオレフィン樹脂の好ましくは30質量%以下、より好ましくは20質量%以下含

む形態である。

また、ポリオレフィン樹脂が低密度ポリエチレンを含み、かつ、後述する樹脂粒子を含み、この樹脂粒子がポリエチレンテレフタレートを含む（樹脂粒子の好ましくは50質量%以上、より好ましくは60質量%以上、さらに好ましくは70質量%以上、さらに好ましくは80質量%以上がポリエチレンテレフタレートである）ことも、本発明の複合材の形態として好ましい。

[0024] 複合材中のポリオレフィン樹脂が、マトリックス樹脂としてポリエチレンとポリプロピレンを含む場合、それらの複合材中の含有量は、複合材の熱キシレン溶解質量比に基づき決定することができる。

—熱キシレン溶解質量比—

本発明において、熱キシレン溶解質量比は次のように決定される。自動車電線用規格JASOD618の架橋度測定に準拠し、複合材の成形シートから0.1～1gを切だし試料とし、この試料を400メッシュのステンレスメッシュで包み、所定温度のキシレン100mlに24時間浸漬する。次いで試料を引き上げ、その後試料を80℃の真空中で24時間乾燥させる。試験前後の試料の質量から、次式より熱キシレン溶解質量比G(%)が算出される。

$$G = \{ (W_0 - W) / W_0 \} \times 100$$

W₀ : 熱キシレン中に浸漬する前の複合材の質量

W : 熱キシレンに浸漬後、キシレンを乾燥除去した後の複合材の質量
複合材の、138℃の熱キシレンへの溶解質量比をG_a(%)、105℃の熱キシレンへの溶解質量比をG_b(%)としたとき、G_aがポリオレフィンの質量比(%)に、G_a - G_bがポリプロピレンの質量比(%)に、G_bがポリエチレンの質量比(%)に相応する。

ここで、

$$G_a = \{ (W_0 - W_a) / W_0 \} \times 100$$

$$G_b = \{ (W_0 - W_b) / W_0 \} \times 100$$

W₀ : 熱キシレン中に浸漬する前の複合材の質量

Wa : 138℃の熱キシレンに浸漬後、キシレンを乾燥除去した後の複合材の質量

Wb : 105℃の熱キシレンに浸漬後、キシレンを乾燥除去した後の複合材の質量

である。

また、138℃の熱キシレン不溶解質量比をGc (%) とすると、Gcは複合材からポリオレフィン樹脂を除いたものの合計量となる。複合材がセルロース繊維を含有し、アルミニウム等のその他のメッシュを通過しない無機材を含まない場合は、この量Gcとセルロース繊維量の差より樹脂粒子の量を算出することもできる。

$$Gc = \{Wa / W0\} \times 100$$

[0025] マトリックス樹脂は、ポリオレフィン樹脂以外にも、本発明の効果を損なわない範囲で、例えば、ポリオレフィン樹脂と相溶性の樹脂を含んでもよい。このような樹脂としては、ポリオレフィン樹脂と融点や軟化温度が近いものが好ましい。例えばポリスチレン樹脂又はポリスチレン系共重合体（スチレン成分を含む共重合体）が挙げられる。

[0026] 本発明の複合材は、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末を含みながらも成形性に優れ、耐衝撃特性等の機械的物性にも優れる。その理由は定かではないが、単糖類が、加工時には潤滑成分として働く一方、冷却された複合材においてはコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の結着成分として働くことが一因と考えられる。

[0027] 本発明の樹脂複合材の一形態は、ポリオレフィン樹脂中にコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末に加えてさらに樹脂粒子を分散してなる形態であってもよい。この「樹脂粒子」はマトリックスを構成する樹脂（マトリックス樹脂）（例えば、ポリオレフィン樹脂）とは異なる種類の樹脂である。また、前記ポリオレフィン樹脂の融点より10℃以上高い融点を有する樹脂（ポリオレフィン樹脂とは異なる種類の樹脂）であることが好ましい。また、樹脂粒子の最大直径は10μm以上であることが好ましい。すなわち、本発明の

樹脂複合材の一形態は、ポリオレフィン樹脂中に、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末と、上記樹脂粒子とを分散してなり、さらに単糖類を含有する樹脂複合材であってもよい。

本発明において樹脂粒子は、種々の形状の粒状の塊であり得る。マトリックス樹脂と樹脂粒子が互いに「異なる種類の樹脂」から構成されていることは、後述するように、光学顕微鏡等による観察で樹脂粒子の輪郭を視認することにより知ることができる。本発明において、当該樹脂粒子の最大直径は $10\mu\text{m}$ 以上である。

樹脂粒子の融点は、マトリックス樹脂の融点より、 15°C 以上高いことが好ましく、 20°C 以上高いことがさらに好ましい。当該「マトリックス樹脂の融点」は、マトリックス樹脂が2種以上の樹脂のブレンドである場合、最も融点の低い樹脂の当該融点である。

[0028] 本発明の複合材は、上記樹脂粒子を分散してなる形態をとすることが好ましい。このように、複合材を樹脂粒子を含む形態とすることにより、複合材の成形性をより高めることができ、所望の機械的物性もより高めることができる。

[0029] 上記樹脂粒子は、例えば、鱗片状や小さなシート状、あるいは粒状となって複合材中に分散した状態とすることができ、また、樹脂粒子が鱗片状や小さなシート状のものである場合は折曲がったり湾曲したり曲がりくねったりした状態（これらをまとめて「折曲がり構造」と称す。）で分散していてもよい。

[0030] 樹脂粒子を構成する樹脂は、マトリックス樹脂（例えば、ポリオレフィン樹脂）とは非相溶性の樹脂であることが好ましい。「非相溶性」とは、種類の異なる樹脂（ポリマー）が、単なる溶融混練等では分子レベルで均一に混合されないことをいう。一般に、相互に非相溶性の複数の樹脂を含む組成物や成形体では、相分離が認められ、海島構造が形成されることもある。

[0031] 本発明の複合材に含有される、上記樹脂粒子は、上述の通り、最大直径が $10\mu\text{m}$ 以上であることが好ましい。最大直径が $10\mu\text{m}$ 以上であることに

より、機械的物性、特に耐衝撃特性をより高めることができる。機械的物性をより高める観点から、上記樹脂粒子の最大直径が $20\ \mu\text{m}$ 以上であることが好ましく、 $50\ \mu\text{m}$ 以上であることがより好ましく、 $100\ \mu\text{m}$ 以上であることがより好ましく、 $200\ \mu\text{m}$ 以上であることがさらに好ましい。また、上記最大直径は $400\ \mu\text{m}$ 以上とすることも好ましく、 $600\ \mu\text{m}$ 以上とすることも好ましい。上記樹脂粒子は、成形性の観点から最大直径が $4\ \text{mm}$ 未満であることが好ましい。

同様の観点から、上記樹脂粒子はアスペクト比（最小直径に対する最大直径の比の値 [最大直径/最小直径]）が5以上であることが好ましく、10以上であることがより好ましく、20以上であることがさらに好ましく、30以上であることがさらに好ましい。

[0032] 本発明の複合材に含まれる、上記樹脂粒子は、機械的物性をより高める観点から、折曲がり構造（通常は不規則な折曲がり構造）を有することが好ましい。折曲がり構造による異方性やアンカー効果により機械的物性をより高めることができる。

[0033] 本発明において、樹脂粒子の最大直径が $X\ \mu\text{m}$ 以上であるとは、次のことを意味する。すなわち、複合材又はそのプレスシートの断面を観察面として光学顕微鏡等により観察し、当該観察面において（すなわち当該観察面からの平面視において）、目視観察にて面積が大きいと認められる順に樹脂粒子を10個選択し、10個の個々の樹脂粒子の最大直径を測定して当該10個の樹脂粒子の最大直径の平均値を求める。観察面を変えて、当該観察面において同様にして10個の樹脂粒子の最大直径の平均値を求める。これを繰り返し、互いに異なる観察面3つの各々について、10個の樹脂粒子の最大直径の平均値を得る。得られた3つの平均値をさらに平均した値が $X\ \mu\text{m}$ 以上の場合、樹脂粒子の最大直径が $X\ \mu\text{m}$ 以上であると判断する。

一つの観察面では樹脂粒子の個数が10個を満たさない場合は、個数が10個を満たすまで観察面を1つずつ増やして観察する。この場合、観察した複数の観察面をまとめて、上記10個の樹脂粒子の最大直径の平均値を求め

るための1つの観察面と位置付ける。

本発明において、樹脂粒子のアスペクト比が Y 以上であるとは、次のことを意味する。すなわち、複合材又はそのプレスシートの断面を観察面として光学顕微鏡等により観察し、当該観察面において、目視観察にて面積が大きいと認められる順に樹脂粒子を10個選択し、10個の個々の樹脂粒子のアスペクト比（個々の樹脂粒子の、最大直径／最小直径）を測定して当該10個の樹脂粒子のアスペクト比の平均値を求める。観察面を変えて、当該観察面において同様に10個の樹脂粒子のアスペクト比の平均値を求める。同様に、互いに異なる観察面3つの各々について、10個の樹脂粒子のアスペクト比の平均値を得る。得られた3つの平均値をさらに平均した値が Y 以上の場合、樹脂粒子のアスペクト比が Y 以上であると判断する。

一つの観察面では樹脂粒子の個数が10個を満たさない場合は、個数が10個を満たすまで観察面を1つずつ増やして観察する。この場合、観察した複数の観察面をまとめて、上記10個の樹脂粒子のアスペクト比の平均値を求めるための1つの観察面と位置付ける。

本発明において、樹脂粒子の最大直径が $Z \mu\text{m}$ 未満であるとは、次のことを意味する。すなわち、複合材又はそのプレスシートの断面を観察面として光学顕微鏡等により観察し、当該観察面において、目視観察にて面積が大きいと認められる順に樹脂粒子を10個選択し、10個の個々の樹脂粒子の最大直径を測定して当該10個の樹脂粒子の最大直径の平均値を求める。観察面を変えて、当該観察面において同様に10個の樹脂粒子の最大直径の平均値を求める。同様に、互いに異なる観察面3つの各々について、10個の樹脂粒子の最大直径の平均値を得る。得られた3つの平均値をさらに平均した値が $Z \mu\text{m}$ 未満の場合、樹脂粒子の最大直径が $Z \mu\text{m}$ 未満であると判断する。

一つの観察面では樹脂粒子の個数が10個を満たさない場合は、個数が10個を満たすまで観察面を1つずつ増やして観察する。この場合、観察した複数の観察面をまとめて、上記10個の樹脂粒子の最大直径の平均値を求め

るための1つの観察面と位置付ける。

[0034] 上記の個々の樹脂粒子の「最大直径」とは、上記観察面からの平面視において、樹脂粒子を内接する最小の円の直径を意味する。即ち、内部に樹脂粒子を包含すると同時に、当該円に樹脂粒子が内接される最小直径の円の当該直径を意味する。換言すれば、「樹脂粒子を内接する最小の円」とは、観察面から樹脂粒子を平面視したときの当該樹脂粒子の外周（輪郭）上の、少なくとも2点を通る円であって、当該樹脂粒子の外周を内包する円のうち最小の円を意味する。

また、個々の樹脂粒子の「最小直径」とは、樹脂粒子の最も薄い部分の厚さである。例えば、樹脂粒子がシート状の樹脂原料由来の場合は、樹脂粒子の厚さはシート状の樹脂原料の厚さに依存する。この場合、樹脂粒子の最小直径は、この樹脂粒子の厚さである。また、例えば、シート状の樹脂原料に由来する樹脂粒子が折曲がって重なり部分（例えば積層構造）を生じている場合、当該重なり部分を構成する1層分（例えば積層構造を構成する1層分）の厚さが樹脂粒子の最小直径となる。なお、シート状の樹脂原料が積層シートであり、当該積層シートを構成する各層が密着した状態で樹脂粒子を構成している場合には、当該積層構造全体の厚さが樹脂粒子の最小直径となる。

上記プレスシートの調製の際のプレス圧は、例えば4.2 MPa程度とすることができる。

[0035] 上記樹脂粒子の樹脂は、結晶性樹脂を含んでもよく、非晶性樹脂を含んでもよく、これら両方を含んでもよい。

[0036] 結晶性樹脂としては、マトリックス樹脂（例えばポリオレフィン樹脂）の融点より10℃以上高い融点を有する樹脂が好ましい。混練の際に目的の樹脂粒子としてマトリックス樹脂中に分散させることができ、複合材の機械的物性を効果的に高めることが可能となる。この観点から、結晶性樹脂としては、マトリックス樹脂の融点より20℃以上高い融点を有する樹脂が好ましく、さらに好ましくはマトリックス樹脂の融点より30℃以上高い融点を有

する樹脂であり、さらに好ましくはマトリックス樹脂の融点より50℃以上高い融点を有する樹脂である。

また、結晶性樹脂としては、170℃以上に融点を有する樹脂及び／又は示差走査熱量分析(DSC)により170℃以上350℃以下に吸熱ピークを示す樹脂であることも好ましい。170℃以上350℃以下に吸熱ピークを示すとは、吸熱ピークが複数検出される場合には、少なくとも1つの吸熱ピークが170℃以上350℃以下であることを意味する。

このような結晶性樹脂を構成するポリマーとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリアミド、エチレンービニルアルコール共重合体等が挙げられる。ここで、樹脂粒子はポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート及びポリアミドの少なくとも1種を含むこと(樹脂粒子の好ましくは50質量%以上、より好ましくは60質量%以上、さらに好ましくは70質量%以上、さらに好ましくは80質量%以上が当該少なくとも1種であること)が好ましい。また、ポリエチレンテレフタレート及び／又はポリアミドを含むこと(樹脂粒子の好ましくは50質量%以上、より好ましくは60質量%以上、さらに好ましくは70質量%以上、さらに好ましくは80質量%以上がポリエチレンテレフタレート及び／又はポリアミドであること、換言すれば、樹脂粒子がポリエチレンテレフタレート及びポリアミドから選ばれるポリマーを合計で上記質量%以上含むこと)がより好ましい。また、ポリエチレンテレフタレートを含むこと(樹脂粒子の好ましくは50質量%以上、より好ましくは60質量%以上、さらに好ましくは70質量%以上、さらに好ましくは80質量%以上がポリエチレンテレフタレートであること)がさらに好ましい。

上記樹脂粒子を構成するポリマーは、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート及びポリアミドの少なくとも1種であることも好ましく、ポリエチレンテレフタレート及び／又はポリアミドであることも好ましく、ポリエチレンテレフタレートであることが特に好ましい。ポリエチレンテレフタレートは250～260℃付近に融点を有し、示差走査熱量分析

(DSC)で250～260℃付近に融解による吸熱ピークを有する。即ち、樹脂粒子がポリエチレンテレフタレートである場合は、樹脂粒子は250～260℃付近に融点を有し、示差走査熱量分析(DSC)で250～260℃付近に融解による吸熱ピークを有する。

[0037] 上記非晶性樹脂としては、70℃以上にガラス転移温度を有する樹脂が好ましい。このような樹脂を構成するポリマーとして、例えば、ポリカーボネート及びポリ塩化ビニルが挙げられる。樹脂粒子はポリカーボネート及び／又はポリ塩化ビニルを含むこと(樹脂粒子の好ましくは50質量%以上、より好ましくは60質量%以上、さらに好ましくは70質量%以上、さらに好ましくは80質量%以上がポリカーボネート及び／又はポリ塩化ビニルであること、換言すれば、樹脂粒子がポリカーボネート及びポリ塩化ビニルから選ばれるポリマーを合計で上記質量%以上含むこと)が好ましい。また、上記樹脂粒子を構成するポリマーは、ポリカーボネート及びポリ塩化ビニルの少なくとも1種であることも好ましい。

[0038] 上記樹脂粒子は、上述した複数の樹脂が積層された形態であってもよい。また、樹脂粒子は、アルミニウムの薄膜層を有するものであってもよい。つまり、樹脂粒子の樹脂と密着しているアルミニウムは、本発明において樹脂粒子を構成するものとし、後述するアルミニウム分散質とはみなさない。

[0039] 本発明の複合材において、樹脂粒子を含有する場合は、樹脂粒子の含有量は、複合材中、0.1質量%以上60質量%以下であることが好ましい。0.1質量%以上とすることにより、機械的物性をより高めることができる。機械的物性をさらに高める観点から、複合材中の樹脂粒子の含有量はより好ましくは0.3質量%以上、より好ましくは0.5質量%以上、さらに好ましくは1質量%以上、さらに好ましくは2質量%以上である。また、複合材中の樹脂粒子の含有量を60質量%以下とすることにより、成形性をより高めることができる。成形性の観点から、複合材中の樹脂粒子の含有量はより好ましくは50質量%以下、さらに好ましくは40質量%以下、さらに好ましくは30質量%以下、さらに好ましくは20質量%以下、さらに好ましく

は12質量%以下であり、10質量%以下とすることも好ましい。

ここで、樹脂粒子の含有量は、例えば、所定温度の熱キシレン中に複合材を浸漬して、ポリオレフィン樹脂を溶解して得られる不溶分量から、さらに熱分析によるセルロース繊維の量を差し引くことにより決定することができる。熱キシレンの温度は、例えば138℃であれば、ポリエチレンテレフタレートやポリアミド樹脂等は溶解されず、ポリオレフィン樹脂のみが溶解される。

[0040] 本発明の樹脂複合材は、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末に由来するセルロース繊維（換言すれば、植物性粉末に由来するセルロース繊維）に加え、別途配合した、コーヒー残渣及びコーヒー粉末に由来しないセルロース繊維（換言すれば、植物性粉末に由来しないセルロース繊維。以下、単に「セルロース繊維」という場合、特段の断りのない限り、植物性粉末に由来しないセルロース繊維を意味する。）を含有してもよい。複合材を、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末とセルロース繊維とを分散してなり、かつ単糖類を含有する形態とすることにより機械的物性をより高めることができる。例えば、耐衝撃性と曲げ弾性率、成形性をバランス良く所望の高いレベルへと高めることができる。本発明において、上記「コーヒー残渣及びコーヒー粉末に由来しないセルロース繊維」（換言すれば、植物性粉末に由来しないセルロース繊維）は、上記「多糖類を含む粉末」とは区別する。すなわち、「コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末に由来しないセルロース繊維」（換言すれば、植物性粉末に由来しないセルロース繊維）は「多糖類を含む粉末」には含まれないものとする。

本発明の複合材中、セルロース繊維の含有量は0.1質量%以上60質量%以下であることが好ましい。セルロース繊維の含有量を0.1質量%以上とすることにより、機械的物性をより高めることができる。この観点から、複合材中のセルロース繊維の含有量はより好ましくは1質量%以上、さらに好ましくは5質量%以上、さらに好ましくは8質量%以上、さらに好ましくは10質量%以上であり、15質量%以上とすることも好ましい。

また、セルロース繊維の含有量を60質量%以下とすることにより、成形性をより高めることができる。また、セルロース繊維の含有量を60質量%以下とすることにより溶融混練によりセルロース繊維が均一に分散した複合材を安定的に得ることができ、得られる複合材の吸水性を抑えることができる。このような観点から、複合材中のセルロース繊維の含有量はより好ましくは50質量%以下、さらに好ましくは40質量%以下、さらに好ましくは30質量%以下である。セルロース繊維の含有量を上記好ましい範囲とすることにより、本発明の複合材の耐衝撃性、成形性を高めると同時に複合材の吸水性も十分に抑えることができる。

[0041] 複合材中に分散しているセルロース繊維は、繊維長が0.3mm以上のセルロース繊維を含むことが好ましい。繊維長0.3mm以上のセルロース繊維を含むことにより、耐衝撃性、引張強度等の機械的物性をより向上させることができる。この点から好ましくは、繊維長0.5mm以上、より好ましくは繊維長0.8mm以上、さらに好ましくは繊維長1mm以上のセルロース繊維を含むことが好ましい。

[0042] 複合材中に分散しているセルロース繊維は、長さ加重平均繊維長が0.3mm以上であることが好ましい。長さ加重平均繊維長0.3mm以上のセルロース繊維を含むことにより、複合材ないしその成形体の機械的物性をより向上させることができる。この観点から、セルロース繊維の長さ加重平均繊維長は0.6mm以上であることがさらに好ましい。複合材中のセルロース繊維の長さ加重平均繊維長は、通常は1.3mm以下である。

ここで長さ加重平均繊維長は、複合材をその樹脂分の可溶性溶媒へ浸漬したときの複合材の溶解残さ（不溶分）についてISO 16065 2001（JIS P8226 2006）で規定されたパルプー光学的自動分析法による繊維長測定方法により決定される。複合材を構成する樹脂がポリオレフィン樹脂である場合は、熱キシレン（130～150℃）への溶解残さ（不溶分）について、同測定法により、長さ加重平均繊維長を決定することができる。

長さ加重平均繊維長は、測定に供したそれぞれの繊維の繊維長の2乗の総和を、測定したそれぞれの繊維長の合計で割ったものである。この長さ加重平均繊維長の特徴としては、繊維長の単純平均である数平均繊維長に比べて繊維長の長い繊維の繊維長さの影響と、数平均繊維長より長い繊維の確率密度の影響とが大きくなる。

[0043] 本発明の複合材がセルロース繊維を含む場合においては、複合材中のセルロース繊維とコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の総含有量は2～90質量%であることが好ましい。複合材中のセルロース繊維とコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の総含有量を2質量%以上とすることにより、機械的物性をより高めることができる。この観点から、複合材中のセルロース繊維とコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の総含有量は5質量%以上がより好ましく、10質量%以上がさらに好ましく、15質量%以上が特に好ましい。また、本発明の複合材中のセルロース繊維とコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の総含有量を90質量%以下とすることにより、成形性をより高めることができる。この観点から複合材中のセルロース繊維とコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の総含有量はより好ましくは80質量%以下、さらに好ましくは75質量%以下、さらに好ましくは65質量%以下、特に好ましくは50質量%以下である。

本発明の複合材がセルロース繊維と樹脂粒子とコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末とを含む場合においては、複合材中のセルロース繊維と樹脂粒子とコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末との総含有量は2～80質量%であることが好ましい。複合材中のセルロース繊維と樹脂粒子とコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末との総含有量は2質量%以上とすることにより、機械的物性をより高めることができる。この観点から、複合材中のセルロース繊維と樹脂粒子とコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末との総含有量は5質量%以上がより好ましく、10質量%以上がさらに好ましく、15質量%以上が特に好ましい。また、本発明の複合材中のセルロース繊維と樹脂粒子とコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末との総含有量を80質量%以下とするこ

とにより、成形性をより高めることができる。この観点から、複合材中のセルロース繊維と樹脂粒子とコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末との総含有量はより好ましくは60質量%以下、さらに好ましくは50質量%以下、さらに好ましくは40質量%以下、特に好ましくは35質量%以下である。

[0044] 本発明の複合材中に含まれる、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末由来のセルロース繊維と、コーヒー残渣及びコーヒー粉末に由来しないセルロース繊維の含有量の合計（質量%）は、複合材100質量%中、10～50質量%であることが好ましく、20～40質量%であることが好ましい。

[0045] 本発明の複合材中に含まれる、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末由来のセルロース繊維と、コーヒー残渣及びコーヒー粉末に由来しないセルロース繊維の含有量の合計（質量%）は、下記のようにして熱重量分析により求められる値を採用して決定することができる。

<セルロース繊維の合計含有量（セルロース有効質量比）の決定方法>

事前に大気雰囲気にて80℃で1時間乾燥した複合材試料（10mg）を、窒素雰囲気下において+10℃/分の昇温速度で、23℃から400℃までの熱重量分析（TGA）に付し、下記〔式1〕によりセルロース繊維の含有量（質量%、セルロース有効質量比とも称す。）を算出する。

〔式1〕（セルロース繊維の含有量〔質量%〕）=（200～380℃の間における複合材試料の質量減少量〔mg〕）×100／（熱重量分析に付す前の乾燥状態の複合材試料の質量〔mg〕）

なお、窒素雰囲気下において+10℃/minの昇温速度で200～380℃まで昇温させた場合、セルロース繊維はほぼ熱分解して消失する。本発明では、上記〔式1〕により算出される質量%を、複合材中に含まれるセルロース繊維の含有量とみなす。ただし、セルロース繊維の一部はこの温度範囲内で消失せずに残る場合があるが、この温度範囲を超えると例えば樹脂成

分の消失や、高温分解性の化合物が共存する場合にその加熱分解減量や残存成分と区別することができず、セルロース繊維量の測定が困難になる。そのため、本発明においては、[式1]により算出される質量%を、「セルロース繊維量」として、セルロース繊維の含有量の把握に用いるが、このようにして求めたセルロース繊維量と複合材の機械的物性の関係は、関連性が高いものである。

[0046] コーヒー残渣は、上記セルロース繊維の熱重量分析において、その含有量の50～55質量%程度、典型的には53質量%が、セルロース繊維の消失する200℃～380℃で消失する。即ち、複合材がセルロース繊維を含有せずコーヒー残渣を含有する場合は、上記熱重量分析による消失量（200～380℃減少質量%）の100/53倍がコーヒー残渣の含有量と換算される。なお、コーヒー粉末もコーヒー残渣と同様の熱重量分析の傾向を示し、同じように換算される。

[0047] 本発明の複合材の形態は、コーヒー残渣及び/又はコーヒー粉末と樹脂粒子とを分散してなり、かつ繊維長0.3mm以上のセルロース繊維と単糖類とを含有するものであってもよい。複合材の成形性と機械的物性とを高度に両立することが可能となる。

[0048] 本発明の複合材は、ポリオレフィン樹脂中にアルミニウムを分散してなることも好ましい。複合材中のアルミニウム（以下、アルミニウム分散質ともいう。）の含有量は、0.1質量%以上40質量%以下であることが好ましい。アルミニウムを含有することにより、複合材の熱伝導性や目視認識性、光遮蔽性が向上する。樹脂粒子を含有する本発明の複合材において、アルミニウムの含有量をこの範囲内とすることにより、複合材の加工性をより高めることができ、複合材の加工時にアルミニウムの塊まりがより生じにくくなる。このアルミニウムは、原料とするポリエチレンラミネート加工紙のアルミニウム薄膜層に由来し得る。ポリエチレンラミネート加工紙のアルミニウム薄膜層は、熔融混練時にアルミニウムが溶融することはないが、混練時の剪断力により、徐々に剪断され微細化する。

上記加工性の観点に加え、熱伝導性、難燃性等をも考慮した場合、本発明の複合材は、アルミニウムの含有量が好ましくは0.5質量%以上30質量%以下であり、さらに好ましくは1質量%以上20質量%以下である。

[0049] 本発明の複合材は、X-Y最大長が0.005mm以上のアルミニウム分散質を含むことが好ましい。X-Y最大長が0.005mm以上のアルミニウム分散質の数に占めるX-Y最大長が3mm以上のアルミニウム分散質の割合が10%未満であることが好ましい。この割合を10%未満とすることにより、複合材の加工性をより高めることができ、また、複合材の加工時にアルミニウムの塊まりがより生じにくくなる。

X-Y最大長は、複合材の表面を観察して決定されるものである。この観察面において、アルミニウム分散質に対し、無作為に特定の方向（X軸方向）に直線を引き、当該直線とアルミニウム分散質の外周とが交わる2つの交点間を結ぶ距離が最大となる当該距離（X軸最大長）を測定し、また、当該特定方向に対して垂直方向（Y軸方向）に直線を引き、この直線とアルミニウム分散質の外周とが交わる2つの交点間を結ぶ距離が最大となる当該距離（Y軸最大長）を測定し、X軸最大長とY軸最大長のうち長い方の長さをX-Y最大長とする。X-Y最大長は、後述する実施例に記載されるように画像解析ソフトを用いて決定することができる。

本発明の複合材中に分散しているアルミニウム分散質は、個々のアルミニウム分散質のX-Y最大長の平均が0.02~2mmであることが好ましく、0.04~1mmであることがより好ましい。X-Y最大長の平均は、後述するように、画像解析ソフトを用いて測定されるX-Y最大長の平均とする。

[0050] 本発明の複合材を構成し得る上記の、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末、単糖類、マトリックス樹脂、樹脂粒子、セルロース繊維等は、これらの少なくとも一部をリサイクル材由来のものとすることができる。また、本発明の複合材に含まれ得るアルミニウムも、少なくとも一部をリサイクル材由来のものとすることができる。リサイクル材を利用することにより、複合材

の製造コストを抑えることができる。

[0051] リサイクル材としては、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末そのもの、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末を含有するポーションカップセル等が挙げられる。ポーションカップセル中には、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末に加えて単糖類が含まれている場合もある。ポーションカップセルを構成する容器は、一般的に、蓋、容器本体、容器本体中に配される構造物（例えば、仕切り板、フィルター等）等を含み、これらを構成する材料としてポリオレフィン樹脂等の樹脂成分、及び／又はアルミニウム等を含有する。ポーションカップセルには、水が含まれている場合がある。

[0052] その他、本発明に用いることができるリサイクル材としては、例えば、紙とポリオレフィン薄膜層とを有するポリオレフィン樹脂ラミネート紙、紙とポリオレフィン薄膜層とアルミニウム薄膜層とを有するポリオレフィン樹脂ラミネート紙、これらのラミネート紙からなる飲料パック及び／又は食品パックが挙げられる。本発明において「薄膜」という場合、乾燥状態で、好ましくは厚さ2 mm以下、より好ましくは厚さ1 mm以下の膜（シート）を意味する。「薄膜」は、乾燥状態で厚さ500 μ m以下でもよく、200 μ m以下でもよく、100 μ m以下でもよい。

また、セルロース繊維の供給源として古紙、再生樹脂等を用いることもできる。

上記の飲料パックや食品パックは、使用前のものであっても、使用済みの回収物であっても、あるいは飲料パックや食品パックの製造工程で排出されるポリオレフィンラミネート紙等の損紙であてもよく、これらの併用であってもよい。

また、上記のラミネート紙及び／又は飲料・食品パックをパルパーで処理して紙部分を剥ぎ取り除去して得られた、セルロース繊維が付着してなるポリオレフィン薄膜片（以下、「セルロース繊維付着ポリオレフィン薄膜片」とも称す。「セルロース繊維付着ポリオレフィン薄膜片」のなかでも、アルミニウム薄膜層を有するポリエチレンラミネート紙をパルパーで処理して得

られる薄膜片を「セルロース繊維アルミニウム付着ポリオレフィン薄膜片」とも称す。)をリサイクル材として用いることもできる。

また、ポリオレフィン樹脂とは異なる樹脂のシート（樹脂粒子に対応する樹脂シート）や、ポリオレフィン樹脂シートとポリオレフィン樹脂とは異なる樹脂のシート（樹脂粒子に対応する樹脂シート）とを有する積層物を、リサイクル材として用いることができる。さらに、この積層物にアルミニウム薄膜シートを積層した構造の積層物をリサイクル材として用いることもできる。また、これらの粉碎物等を用いることもできる。また、ポリオレフィン樹脂シートとポリオレフィン樹脂とは異なる樹脂のシート（樹脂粒子に対応する樹脂シート）とを有する積層構造の食品パック等の包装材をリサイクル材として用いることもできる。

本発明の複合材に占めるリサイクル材由来成分の割合は、乾燥質量を基準として10質量%以上が好ましく、20質量%以上がより好ましく、さらに好ましくは30質量%以上、さらに好ましくは40質量%以上である。

[0053] このようなりサイクル材を原料とした場合にも、例えば、後述の熔融混練により目的の物性を有する本発明の複合材を得ることができる。

[0054] 本発明の複合材は、上記アルミニウム分散質以外の無機質材を含有してもよい。無機質材を含有することにより曲げ弾性、耐衝撃性、難燃性が向上し得る。無機質材としては、炭酸カルシウム、タルク、クレイ、酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、酸化チタン等があげられる。

[0055] 本発明の好ましい実施形態は、複合材100質量%中に、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末5～70質量%、単糖類0.001～5質量%、及びポリオレフィン樹脂10～80質量%を含む。

本発明の別の好ましい実施形態は、複合材100質量%中に、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末5～70質量%、単糖類0.001～5質量%、及びコーヒー残渣及びコーヒー粉末に由来しないセルロース繊維0.1～40質量%、及びポリオレフィン樹脂10～80質量%を含む。

本発明のさらに別の好ましい実施形態は、複合材100質量%中に、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末5～70質量%、単糖類0.001～5質量%、コーヒー残渣及びコーヒー粉末に由来しないセルロース繊維0.1～40質量%、及び樹脂粒子0.1～10質量%、及びポリオレフィン樹脂10～80質量%を含む。

本発明のまた別の好ましい実施形態は、複合材100質量%中に、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末5～70質量%、単糖類0.001～5質量%、コーヒー残渣及びコーヒー粉末に由来しないセルロース繊維0.1～40質量%、樹脂粒子0.1～10質量%、アルミニウム0.1～3質量%、及びポリオレフィン樹脂10～80質量%を含む。

[0056] 本発明の複合材は、目的に応じて、難燃剤、酸化防止剤、安定剤、耐候剤、相溶化剤衝撃改良剤、改質剤等を含んでもよい。また、加工性向上のため、オイル成分や各種の添加剤を含むことができる。例えば、パラフィン、変性ポリエチレンワックス、ステアリン酸塩、ヒドロキシステアリン酸塩、フッ化ビニリデン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体等のフッ化ビニリデン系共重合体、有機変性シロキサン等があげられる。

[0057] 本発明の複合材は、カーボンブラック、各種の顔料、染料を含有することができる。本発明の複合材は、金属光沢系の着色材を含有することもできる。また、導電性カーボンブラック等の、導電性付与成分を含むことができる。さらに、本発明の複合材は熱伝導性付与成分を含むことができる。

[0058] 本発明の複合材は、架橋されていてもよい。架橋剤としては、有機過酸化物等が挙げられ、具体例としてジクミルパーオキサイドなどが挙げられる。本発明の複合材はシラン架橋法により架橋された形態であってもよい。

[0059] 本発明の複合材は、温度230℃、荷重5kgfにおけるメルトフローレート(MFR)が、0.1～100g/10minであることが好ましい。MFRを上記好ましい範囲内とすることにより、より良好な成形性を実現することができる。得られる成形体の耐衝撃性もより高めることができる。

[0060] 本発明の複合材の形状に特に制限はない。例えば、本発明の複合材をペレ

ット状とすることもできるし、本発明の複合材は所望の形状に成形されたものでもよい。本発明の複合材がペレット状の場合、このペレットは、成形品（樹脂製品）の形成材料として好適である。

本発明の複合材は、高密度ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン樹脂に対して、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末、並びに単糖類を含む、さらには樹脂粒子とセルロース繊維とを含む、改質マスターバッチとして使用することもできる。

本発明の複合材は、含水率が1質量%未満であることが好ましい。

[0061] 続いて、本発明の複合材の製造方法について、好ましい実施形態を以下に説明するが、本発明の複合材は、下記方法により得られたものに限定されるものではない。

[0062] 本発明の複合材の製造方法の一例では、少なくともポリオレフィン樹脂と、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末と、単糖類とを、ポリオレフィン樹脂が溶融し（すなわちポリオレフィン樹脂の融点以上とし）、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末と単糖類の炭化が進まない温度で溶融混練し、ポリオレフィン樹脂中にコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末を分散してなり、かつ単糖類を含有する樹脂複合材を得る工程を含む。上記温度条件で溶融混練することにより、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末及び単糖類の変質を防ぐことができる。

[0063] 本発明の複合材の製造方法の別の例では、少なくともポリオレフィン樹脂と、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末とを、水の存在下で溶融混練し、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末中の多糖類成分の加水分解を促進し、ポリオレフィン樹脂中にコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末を分散してなり、かつ単糖類を含有する樹脂複合材を得る工程を含む。上記条件で溶融混練することにより、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の変質を防ぐことができ、また、単糖類を含有する樹脂複合材とすることが可能となる。

複合材中に含まれる単糖類を、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の成分を分解して生じさせる場合、混練時に存在する水の量は、コーヒー残渣及

び／又はコーヒー粉末（乾燥物換算）100質量部に対して、25質量部以上であることが好ましく、50質量部以上がより好ましく、150質量部以上がより好ましい。混練時に存在する水の量は、製造性の観点からは、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末を乾燥物換算で100質量部に対して、1000質量部以下が好ましい。500質量部以下がより好ましく、300質量部以下がさらに好ましい。

混練時に存在する水の供給源は特に限定されない。混練時に存在する水は、原材料中に含まれていてもよいし、別途配合してもよい。

水分を含む原材料を用いる場合には、原材料中における含水率は、原材料の合計に占める水分量の合計が上記コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末に対する水分量となる含水率であればよい。

使用するマトリックス樹脂、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の、種類、配合量等により変化するため一義的に決定することはできないが、加水分解を促進する観点からは、溶融混練時の温度を175℃以上に設定することが好ましく、175～185℃に設定することがより好ましい。また、加水分解を促進する観点からは、水の存在下での溶融混練の時間を最低でも30秒以上、好ましくは1分以上に設定することが好ましい。また、混練手法にもよるが、水が十分蒸発する程度の時間であることが好ましい。

[0064] 本発明の複合材の製造方法の一例では、少なくともポリオレフィン樹脂と、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末と、セルロース繊維と、上記樹脂粒子を導く樹脂シート（本発明において単に「樹脂シート」という場合、マトリックス樹脂とは異なる樹脂を含むシート、好ましくはマトリックス樹脂とは異なる樹脂からなるシートを意味する。）と、単糖類とを、ポリオレフィン樹脂が溶融し（すなわちポリオレフィン樹脂の融点以上）、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末と単糖類とセルロース繊維との炭化が進まない温度であって、樹脂シートが溶融しない温度（すなわち樹脂シートの樹脂の融点未満）で溶融混練し、ポリオレフィン樹脂中にコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末とセルロース繊維と樹脂粒子とを分散してなり、単糖類を含有する

樹脂複合材を得ることを含む。上記温度条件で熔融混練することにより、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末、単糖類、及びセルロース繊維の変質を防ぐことができ、また、所望の形状の樹脂粒子の分散状態を形成することが可能となる。上記形態の製造法において、単糖類を配合する代わりに、水の存在下で熔融混練を行うことにより、多糖類成分の加水分解を促進して単糖類を生成してもよい。

[0065] 上記樹脂シートを構成する樹脂は、上記樹脂粒子の樹脂であり、その好ましい形態は上述した通りである。本発明の複合材の製造方法において、樹脂シートは、得られる複合材において樹脂粒子となる。樹脂シートは、そのまま使用して熔融混練により小片化して樹脂粒子としてもよい。また、樹脂シートを予め、ある程度の大きさの樹脂シートの裁断物あるいは粉碎物としてから、熔融混練に付してもよい。本発明の複合材の製法方法では、上記温度条件で混練する際に、樹脂シートは積極的に熔融させないことが好ましい。

[0066] ポリオレフィン樹脂と上記樹脂シートの共通の供給源として、ポリオレフィン樹脂シートと上記樹脂シートとを有する積層物を用いることができる。この場合において、当該積層物に加え、当該積層物に由来しない、ポリオレフィン樹脂や上記樹脂シート等を配合してもよい。

[0067] 本発明の複合材の製造方法の別の好ましい形態としては、例えば、少なくともポリオレフィン樹脂と、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末と、単糖類と、予めサイズを調整した上記樹脂粒子とを、ポリオレフィン樹脂が熔融する温度（すなわちポリオレフィン樹脂の融点以上）、かつコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の炭化が進まない温度であって、樹脂粒子が熔融しない温度（すなわち樹脂粒子の樹脂の融点未満）で熔融混練し、ポリオレフィン樹脂中にコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末と樹脂粒子とを分散してなり、単糖類を含有する樹脂複合材を得ることを含む。上記温度条件で熔融混練することにより、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の変質を防ぐことができ、また、所望のサイズの樹脂粒子の分散状態を形成することが可能となる。上記形態の製造法において、単糖類を配合する代わりに、水の存在下

で溶融混練を行うことにより、多糖類成分の加水分解を促進して単糖類を生成してもよい。

[0068] セルロース繊維の供給源としては、セルロースを主体とするものを原料として用いることができる。具体的には、パルプ、紙、古紙、紙粉、再生パルプ、ペーパースラッジ、ラミネート紙、ラミネート紙の損紙、ラミネート紙から紙分をある程度取り除かれた残りである、セルロース繊維が付着した樹脂薄膜片、その他の植物由来のセルロース繊維等があげられる。上記の紙や古紙には、セルロース繊維の他、紙の白色度を高めるために一般的に含まれる填料（例えばカオリン、タルク）、サイズ剤などが含まれていてもよい。

ここで、サイズ剤とは、紙に対してインクなど液体の浸透性を抑え、裏移りや滲みを防ぎ、ある程度の耐水性を与える目的で加えられるものである。主なものとして、ロジン石鹼、アルキルケテンダイマー、アルケニル無水コハク酸、ポリビニルアルコールなどが挙げられる。また、表面サイズ剤には酸化でんぷん、スチレン・アクリル共重合体、スチレン・メタクリル共重合体などが挙げられる。また、紙、古紙等には上記の他、各種添加剤、インク成分、リグニン等が含まれていてもよい。

上記ラミネート紙には、ポリオレフィン樹脂、セルロース繊維、紙の白色度を高めるために一般的に含まれる填料（例えばカオリン、タルク）、サイズ剤などが含まれていてもよい。

上記パルプには、機械パルプと化学パルプがあり、機械パルプにはリグニンと夾雑物が含まれる。一方、化学パルプには、リグニンは殆ど含まれないが、リグニン以外の夾雑物が含まれることがある。

[0069] 前記ポリオレフィン樹脂及び前記セルロース繊維の共通の供給源として、ポリオレフィン樹脂ラミネート紙及び／又はセルロース繊維付着ポリオレフィン薄膜片を用いることもできる。この場合において、これらに由来しないポリオレフィン樹脂やセルロース繊維等を配合してもよい。

[0070] 本発明の複合材の製造方法は、上記溶融混練において、アルニウム薄膜シートを混合することができる。これにより、ポリオレフィン樹脂中にコーヒ

一残渣及び／又はコーヒー粉末と樹脂粒子とアルミニウムとを分散してなり、単糖類を含有する樹脂複合材を得ることができる。この場合において、前記ポリオレフィン樹脂、前記樹脂シート及び前記アルミニウム薄膜シートの供給源として、ポリオレフィン樹脂シートと、前記樹脂シートと、前記アルミニウム薄膜シートとを有する積層物を用いることができる。この場合において、当該積層物に加え、当該積層物に由来しない、ポリオレフィン樹脂、上記樹脂シート、上記アルミニウム薄膜シート等を配合してもよい。

例えば、前記ポリオレフィン樹脂、及び前記アルミニウム薄膜シートの共通の供給源として、アルミニウム薄膜層を有するポリオレフィン樹脂ラミネート紙及び／又はセルロース繊維アルミニウム付着ポリオレフィン薄膜片を用いることもできる。この場合において、これらに由来しないポリオレフィン樹脂、アルミニウム等を配合してもよい。

[0071] ポリオレフィン樹脂、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末、セルロース繊維、樹脂粒子を導く樹脂シート、単糖類、アルミニウム薄膜シート等の共通の供給源として、上述のリサイクル材を使用することができる。

[0072] 本発明の製造方法において、溶融混練は、水を配合して行うこともできる。水の配合は、加水分解による単糖類の生成を促進する一方、糖類の炭化（脱水反応）を抑える。また、水の配合は複合材の性状や物性に影響し、例えば、所望の形状の樹脂粒子を均質に分散した目的の複合材の生成に寄与する。一方、水を配合しても樹脂シートの樹脂が溶融しない温度で溶融混練するため、樹脂シートないし樹脂粒子を構成する樹脂それ自体の物性への影響は少ない。例えば、樹脂シートないし樹脂粒子を構成する樹脂の加水分解等を生じにくい。

溶融混練における水の配合は、溶融混練の最初から行ってもよく、溶融混練の途中から行ってもよい。水の配合は、溶融混練の最初から行うことが好ましい。

溶融混練を、水を配合して、水の存在下で行う場合の水の配合量は、「複合材中に含まれる単糖類をコーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末の成分を分

解して生じさせる場合」について説明した水の存在量と同じである。

[0073] 各原料の配合量は、上述の複合材中における含有量を満たすように適宜設定することができる。

[0074] 本発明の成形体は、本発明の複合材を用いて所望の形状に成形してなる成形体である。本発明の成形体として、シート状、板状、管（環）状、各種構造の成形体があげられる。管状の成形体としては、断面略円形、四角形状の直管、曲がり管、波付けが付与された波付管等があげられる。また、断面略円形、四角形状の直管、曲がり管、波付けが付与された波付管等の管状成形体を半割れ等により分割した多分割体があげられる。また、管の接手部材の他、土木用、建材用、自動車用又は電線保護用の部材として本発明の成形体を用いることができる。本発明の成形体は、本発明の複合材を射出成形、押出成形、プレス成型、ブロー成形等の通常の成形手段に付して得ることができる。

本発明の成形体は、機械的物性に優れており、多目的な利用が可能なものである。例えば、土木用、建材用、家具用もしくは自動車用の材料又は構成部材として好適である。家具用に用いる場合、本発明の成形体は、カップ、トレー、皿、各種容器、食器、棚板、収納ケース、タンス等とすることができる。

実施例

[0075] 本発明を実施例に基づきさらに説明するが、本発明はこれらの形態に限定されるものではない。

まず、本発明における各指標の測定方法、評価方法を説明する。

[0076] [単糖類の判定]

5 mm以下の大きさに粉碎した複合材を水に20時間浸漬し、水中に抽出された成分を、高速液体クロマトグラフィー（HPLC）を用いて測定した。表中の「単糖類」欄に、単糖類が検出されたものを（○）、単糖類が検出されなかったものを（×）として示した。

実施例1～6の複合材は、単糖類を0.003～3質量%含んでいた。

[0077] [セルロース繊維長]

シート状に成形した複合材を0.1～1gに切だして試料とした。この試料を400メッシュのステンレスメッシュで包み、138℃のキシレン100mLに24時間浸漬した。次いで試料を引き上げ、その後試料を80℃の真空中で24時間乾燥させた。乾燥試料0.1gをエタノール50mL中によく分散させ、得られた分散液をシャーレに滴下し、顕微鏡にて15mm×12mmの範囲を観察した。繊維長0.3mm以上のセルロース繊維が観察され、繊維長0.8mm以上のセルロース繊維が観察されなかったものを(○)、繊維長0.8mm以上のセルロース繊維が観察されたものを(◎)とし、繊維長0.3mm以上のセルロース繊維が観察されなかったものを(△)とした。

[0078] [複合材中のセルロース繊維含有量(セルロース有効質量比)]

事前に大気雰囲気にて80℃×1時間乾燥した複合材試料(10mg)を、窒素雰囲気下において+10℃/minの昇温速度で、23℃から400℃まで熱重量分析(TGA)を行い、下記[式1]によりセルロース繊維の含有量(質量%)を算出した。同一の複合材試料を5つ調製し、各複合材試料について上記と同様にして熱重量分析を行い、算出されたセルロース繊維の含有量(質量%)の5つの値の平均値を求めて、その平均値をセルロース繊維の含有量(質量%)とした。

[式1] (セルロース繊維の含有量[質量%]) = (200～380℃の間における複合材試料の質量減少量[mg]) × 100 / (熱重量分析に付す前の乾燥状態の複合材試料の質量[mg])

[0079] [樹脂粒子の最大直径の判定]

複合材をプレス加工(プレス圧4.2MPa)して6mm厚の成形体を得た。この成形体の縦断面(6mm厚さ方向断面)を観察面として上述した方法で測定した、樹脂粒子10個の最大直径の平均が400μm以上4mm未満の場合を(○)、樹脂粒子10個の最大直径の平均が10μm以上400

μm 未満又は4mm以上の場合を(Δ)、樹脂粒子10個の最大直径の平均が10 μm 未満の場合を(×)とした。

[0080] [樹脂粒子のアスペクト比の判定]

複合材をプレス加工(プレス圧4.2MPa)して6mm厚の成形体を得た。この成形体の縦断面を観察面として上述した方法で測定した、樹脂粒子10個のアスペクト比の平均が30以上の場合を(O)、樹脂粒子10個のアスペクト比の平均が5以上30未満の場合を(Δ)、樹脂粒子10個のアスペクト比の平均が5未満の場合を(×)とした。

[0081] [結果物(樹脂複合材)の形状]

熔融混練して得た樹脂複合材の外観を目視にて評価した。バルク(塊)の状態を合格品(O)、バルク(塊)の状態と未混練状態の粒状体(熔融混練によっても一体化しなかったもの)が混在するものを(Δ)、未混練状態の粒状体のものを(×)とした。

[0082] [引張強度]

機械的物性の一指標として、引張強度を評価した。

射出成形で試験片を作製し、JIS K 7113に準拠し、2号試験片について引張強度を測定した。単位は「MPa」である。引張強度が20MPa以上を(O)、10MPa以上20MPa未満を(Δ)、10MPa未満を(×)とした。

[0083] [曲げ弾性率及び曲げ強度]

機械的物性の一指標として、曲げ弾性率及び曲げ強度を評価した。

複合材を用い、JIS K 7171 2016に準拠し、サンプル厚さ4mm、曲げ速度2mm/minにて、曲げ弾性率を測定した。詳細には、射出成形で試験片(厚さ4mm、幅10mm、長さ80mm)を作製し、支点間距離64mm、支点及び作用点の曲率半径5mm、試験速度2mm/minにて荷重の負荷を行い、JIS K 7171 2016に準拠して曲げ試験を行ない、曲げ弾性率(MPa)及び曲げ強度(MPa)を測定した。

ここで、曲げ弾性率 E_f は、
 曲げ歪み 0.0005 (ε_{f1}) におけるたわみ量 S_1 において測定した曲げ応力 σ_{f1}
 曲げ歪み 0.0025 (ε_{f2}) におけるたわみ量 S_2 において測定した曲げ応力 σ_{f2}
 を求めて、これらの差を、それぞれの対応する歪み量の差で割ること、
 すなわち、下記の式

$$E_f = (\sigma_{f2} - \sigma_{f1}) / (\varepsilon_{f2} - \varepsilon_{f1})$$

で求める。

このときの曲げ応力を求めるための、たわみ量 S は、
 下記の式により求めることができる。

$$S = (\varepsilon_f \cdot L^2) / (6 \cdot h)$$

S : たわみ量

ε_f : 曲げ歪み

L : 支点間距離

h : 厚さ

曲げ弾性率が 2500 MPa 以上を (◎)、 2000 MPa 以上 2500 MPa 未満を (○)、 1400 MPa 以上 2000 MPa 未満を (△)、 1400 MPa 未満を (×) とした。

曲げ強度が 40 MPa 以上を (◎)、 20 MPa 以上 40 MPa 未満を (○)、 10 MPa 以上 20 MPa 未満を (△)、 10 MPa 未満を (×) とした。

[0084] [耐衝撃性]

機械的物性の一指標として、耐衝撃性を評価した。

射出成形で試験片 (厚さ 4 mm 、幅 10 mm 、長さ 80 mm) を作製し、
 JIS K 7110 に準じて、ノッチ有りの試験片を用いてアイゾット衝撃強度を測定した。耐衝撃性の単位は「 kJ/m^2 」である。アイゾット衝撃値が $2.0 \text{ kJ}/\text{m}^2$ 以上を (○)、 $1.0 \text{ kJ}/\text{m}^2$ 以上 $2.0 \text{ kJ}/\text{m}^2$ 未

満を (△)、 1.0 kJ/m^2 未満を (×) とした。

[0085] 上記機械的物性の各指標が、何れも (△) 以上である場合を、機械的物性に合格とする。

[0086] [成形性]

射出成形（シリダー温度： 200°C 、射出速度： 150 mm/sec 、金型温度： 40°C 、金型のスプールのサイズは、長さ 130 mm で下流側に向かって拡張形状のもので、下流側（ランナー側）が直径 7 mm であり、上流側が直径 3 mm である。）で問題なく成形できたものを (○)、スプールで若干の詰まりや材料の破断を生ずることがあったが成形可能であったものを (△) とした。(○) が合格である。

[0087] [メルトフローレート]

温度 230°C 、荷重 5 kgf の条件で、JIS-K7210に準じて測定した。MFRの単位は「 $\text{g}/10 \text{ min}$ 」である。

[0088] <実施例1>

使用済みコーヒーカプセル1を用意した。この使用済みコーヒーカプセル1は、ポリプロピレン樹脂（PP）を主体とするプラスチック容器内にコーヒー残渣を収納したものである。また、プラスチック容器内には仕切りのアルミニウム箔を有している。プラスチック容器本体はPPで、容器の蓋部はポリエチレンテレフタレート（PET）/PPの積層フィルムで構成される。コーヒーカプセル1は使用済みのため水を含み、使用済みコーヒーカプセル1全体に占める水分量（含水率）は60質量%である。使用済みコーヒーカプセル1は、乾燥状態にすると、コーヒー残渣70質量%、PP29質量%、及びアルミニウム（Al）とPETとを合計量で1質量%を含み、ものとなる。

上記使用済みコーヒーカプセル1と変性PP樹脂1（無水マレイン酸で変性されたポリプロピレン樹脂、酸価 41 mg KOH/g ）とを、使用済みコーヒーカプセル1については乾燥状態に換算して表1に示す配合量で、バッチ式混練機であるニーダに投入し、水の存在下（使用済みコーヒーカプセル

1内に含有する水の存在下を意味する)で、混練時の最高到達温度は180℃として、10分間混練して、複合材を得た。

[0089] <実施例2>

変性PP樹脂1を配合しなかった以外は、実施例1と同様にして複合材を得た。

[0090] <実施例3>

空カプセル1(使用済みコーヒーカプセル1から、容器を切開いて中身のコーヒー残渣を取り除いてカプセル(プラスチック容器本体)だけとしたもの)と、使用済みコーヒーカプセル1と変性PP樹脂1とを表1に示す配合量で配合した以外は、実施例1と同様にして複合材を得た。

[0091] <実施例4、5>

損紙1(ポリエチレンラミネート加工紙の損紙を、回転刃式の粉砕機(ホーライ社製)を使用して粉砕したもの)と、使用済みコーヒーカプセル1と、変性PP樹脂1とを、表1に示す配合量で配合した以外は、実施例1と同様にして複合材を得た。ポリエチレンラミネート加工紙は、紙、ポリエチレン薄膜層及びアルミニウム薄膜層を有し、構成比率は紙75質量%、低密度ポリエチレン(LDPE)18質量%、アルミニウム箔7質量%である。

[0092] <実施例6>

損紙1と、空カプセル1と、使用済みコーヒーカプセル1と、変性PP樹脂1とを、表1に示す配合量で配合した以外は、実施例1と同様にして複合材を得た。

[0093] <比較例1>

使用済みコーヒーカプセル1を含水率0.2質量%になるまで乾燥してから、バッチ式混練機であるニーダに投入し、混練時の最高到達温度は180℃として、10分間混練した。この場合、各成分が一体化した複合材を得ることはできなかった。

[0094] <比較例2>

使用済みコーヒーカプセル1を含水率0.2質量%になるまで乾燥してか

ら、この使用済みコーヒーカプセル1と、損紙1と、変性PP樹脂1とを、表1に示す配合量で配合した以外は、比較例1と同様にして熔融混練した。この場合、各成分が一体化した複合材を得ることはできなかった。

[0095] <比較例3>

使用済みコーヒーカプセル1（含水率60質量%）を、バッチ式混練機であるニーダに投入し、混練時の最高到達温度は170℃として、5分間混練して、複合材を得た。

[0096] <比較例4>

使用済みコーヒーカプセル1に乾燥処理を施して含水量を低減（含水率8質量%）してから、バッチ式混練機であるニーダに投入し、混練時の最高到達温度は180℃として、10分間混練して、複合材を得た。

[0097] 下記表1上段（「使用済みコーヒーカプセル1」～「損紙1」）には原材料の全量を100質量%とした場合の各原材料の配合量を示す。中段（「コーヒー残渣」～「A1」）には、複合材中のコーヒー残渣、PP、LDPE、変性PP樹脂、セルロース繊維、PET、及びアルミニウムの各含有量（質量%）、並びに単糖類の有無を、セルロース繊維長、セルロース繊維含有量、樹脂粒子の最大直径及びアスペクト比と併せて示す。下段には、各複合材の評価結果を示す。

また、実施例1と実施例2の複合材について、断面の光学顕微鏡による観察により、コーヒー残渣の粒子径をみたところ、最大直径は、実施例1は14.3μm、実施例2は18.5μmであった。

表より、単糖類を含有する実施例の複合材は、いずれもコーヒー残渣を含有するにもかかわらず成形性に優れることがわかる。また、実施例2と比較例1を比較すると、互いに単糖類の有無が異なるだけで、その他は同じ組成であるが、実施例2の複合材がMFRが高く機械的物性にも優れることがわかる。また、実施例5と比較例2と比較すると、互いに単糖類の有無が異なるだけで、その他は同じ組成であり、いずれも紙由来のセルロース繊維を含有し、比較的強度が高く、MFRが低いものである。しかし、実施例5のほう

が比較例2よりもMFRが高く、機械的物性が高く、成形性も良いものとなっている。比較例2の複合材がスプールでの破断を生ずる成形性が良くないものとなっているのに対して、実施例5の複合材がスプールでの破断のない成形性が良いものとなっているが、これは、実施例5の複合材の方がMFRと機械的物性のバランスがよいためと考えられる。

また、0.3mm以上のセルロース繊維を含む実施例4～6の複合材と、0.3mm以上のセルロース繊維を含まない実施例1及び3の複合材との比較から、0.3mm以上のセルロース繊維を含む実施例4～6の複合材は、コーヒー残渣を含むにもかかわらず、さらに機械的物性に優れるとともに加工性にも優れることがわかる。

[0098]

[表1-1]

表 1

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6
使用済み コーヒークラップセル 1	質量%	95	100	70.5	76	57	43
変性 PP 樹脂 1	質量%	5	—	2.5	4	3	3
空クラップセル 1	質量%	—	—	27	—	—	14
損紙 1	質量%	—	—	—	20	40	40
コーヒー残渣	質量%	66.7	70.2	49.5	53.3	40.0	30.2
PP	質量%	27.6	29.1	46.8	22.1	16.6	26.2
LDPE	質量%	—	—	—	3.6	7.2	7.2
変性 PP 樹脂 1	質量%	5.0	—	2.5	4.4	3.8	3.8
紙(セルロース)	質量%	—	—	—	15.0	30.0	30.0
PET	質量%	0.2	0.2	0.3	0.2	0.1	0.2
Al	質量%	0.5	0.5	0.9	1.4	2.3	2.5
単糖類		○	○	○	○	○	○
セルロース繊維長		△	△	△	○	○	○
セルロース繊維含有量 (セルロース有効質量比)	質量%	35.6	36.5	26.1	37.4	37.8	34.5
樹脂粒子の最大直径		○	○	○	○	○	○
樹脂粒子のアスペクト比		○	○	○	○	○	○
結果物(複合材)の形状		○	○	○	○	○	○
引張強度		○	△	○	○	○	○
	MPa	22.50	11.36	28.83	34.13	38.40	41.89
曲げ強度		○	△	○	◎	◎	◎
	MPa	29.05	14.17	34.17	42.64	41.42	48.54
曲げ弾性率		△	△	△	◎	◎	◎
	MPa	1601.7	1410.2	1554.6	2512.9	2883.0	2690.1
耐衝撃性		○	△	○	○	○	○
	kJ/m ²	2.06	1.74	3.31	2.64	3.29	3.86
MFR (230°C × 5.00kg)	g/10 分	41.86	25.29	20.70	3.41	0.53	1.04
成形性		○	○	○	○	○	○

[0099]

[表1-2]

表1(つづき)

		比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4
使用済み コーヒーカプセル 1	質量%	100	57	100	100
変性 PP 樹脂 1	質量%	—	3	—	—
空カプセル 1	質量%	—	—	—	—
損紙 1	質量%	—	40	—	—
コーヒー残渣	質量%	70.2	40.0	70.2	70.2
PP	質量%	29.1	16.6	29.1	29.1
LDPE	質量%	—	7.2	—	—
変性 PP 樹脂 1	質量%	—	3.8	—	—
紙(セルロース)	質量%	—	30.0	—	—
PET	質量%	0.2	0.1	0.2	0.2
Al	質量%	0.5	2.3	0.5	0.5
単糖類		×	×	×	×
セルロース繊維長		△	○	△	△
セルロース繊維含有量 (セルロース有効質量比)	質量%	36.8	37.9	36.9	36.7
樹脂粒子の最大直径		○	○	○	○
樹脂粒子のアスペクト比		○	○	○	○
結果物(複合材)の形状		△	△	○	○
引張強度		×	○	×	×
	MPa	8.71	28.9	8.82	7.99
曲げ強度		×	○	×	×
	MPa	9.22	29.4	9.31	8.85
曲げ弾性率		×	○	×	×
	MPa	1374	2425	1391	1256
耐衝撃性		△	△	△	△
	kJ/m ²	1.47	1.72	1.44	1.41
MFR (230°C × 5.00kg)	g/10分	7.21	0.09	6.88	8.53
成形性		△	△	△	△

[0100] 本発明をその実施態様とともに説明したが、我々は特に指定しない限り我々の発明を説明のどの細部においても限定しようとするものではなく、添付の請求の範囲に示した発明の精神と範囲に反することなく幅広く解釈される

べきであると考える。

[0101] 本願は、2020年2月17日に日本国で特許出願された特願2020-024327に基づく優先権を主張するものであり、これはここに参照してその内容を本明細書の記載の一部として取り込む。

請求の範囲

- [請求項1] 熱可塑性樹脂と、
前記熱可塑性樹脂中に分散された、多糖類を含む粉末と、
単糖類と
を含有する樹脂複合材。
- [請求項2] 前記多糖類を含む粉末が、有機性残渣を含む、請求項1に記載の樹脂複合材。
- [請求項3] 前記多糖類を含む粉末が、コーヒー残渣及び／又はコーヒー粉末を含む、請求項1に記載の樹脂複合材。
- [請求項4] 前記熱可塑性樹脂がポリオレフィン樹脂を含む、請求項1～3のいずれか1項に記載の樹脂複合材。
- [請求項5] 前記ポリオレフィン樹脂が酸変性ポリオレフィン樹脂を含む、請求項4に記載の樹脂複合材。
- [請求項6] 前記樹脂複合材が、前記ポリオレフィン樹脂とは異なる樹脂を含む樹脂粒子を含み、前記ポリオレフィン樹脂とは異なる樹脂の融点が前記ポリオレフィン樹脂の融点より10℃以上高く、前記樹脂粒子の最大直径が10μm以上である、請求項4又は5に記載の樹脂複合材。
- [請求項7] 前記樹脂粒子が、ポリエチレンテレフタレートを含む、請求項6に記載の樹脂複合材。
- [請求項8] 繊維長0.3mm以上のセルロース繊維を含む、請求項1～7のいずれか1項に記載の樹脂複合材。
- [請求項9] 土木用、建材用、家具用もしくは自動車用の材料又は構成部材として用いる、請求項1～8のいずれか1項に記載の樹脂複合材。
- [請求項10] 請求項1～8のいずれか1項に記載の樹脂複合材を用いた樹脂成形体。
- [請求項11] 土木用、建材用、家具用もしくは自動車用の材料又は構成部材として用いる、請求項10に記載の樹脂成形体。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/005741

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B29K 101/12(2006.01)n; B29K 105/12(2006.01)n; C08K 5/07(2006.01)i; C08K 5/1545(2006.01)i; C08L 1/02(2006.01)i; C08L 23/00(2006.01)i; C08L 67/02(2006.01)i; C08L 93/00(2006.01)i; C08L 101/00(2006.01)i; B29C 70/12(2006.01)i; B29C 70/28(2006.01)i

FI: C08L101/00; C08L93/00; C08L23/00; C08L1/02; C08L67/02; C08K5/07; C08K5/1545; B29C70/12; B29C70/28; B29K101:12; B29K105:12

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)

B29K101/12; B29K105/12; C08K5/07; C08K5/1545; C08L1/02; C08L23/00; C08L67/02; C08L93/00; C08L101/00; B29C70/12; B29C70/28

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	1971-2021
Registered utility model specifications of Japan	1996-2021
Published registered utility model applications of Japan	1994-2021

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 2004-292805 A (NIPPON OIL & FATS CO., LTD., ITO EN, LIMITED) 21 October 2004 (2004-10-21) claim 1, paragraphs [0043]-[0046], table 4, examples 1-2	1-4, 8-11
Y	claim 1, paragraphs [0043]-[0046], table 4, examples 1-2	5
Y	JP 2004-181881 A (DAIKEN CORPORATION) 02 July 2004 (2004-07-02) claim 4, paragraphs [0011], [0027]	5
Y	JP 2001-032515 A (MATSUSHITA ELECTRIC WORKS, LTD.) 06 February 2001 (2001-02-06) claim 7, paragraph [0026]	5

<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:	"I" 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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search 21 April 2021 (21.04.2021)	Date of mailing of the international search report 11 May 2021 (11.05.2021)
---	--

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/JP2021/005741

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 2000-136579 A. (MATSUSHITA ELECTRIC WORKS, LTD.) 16 May 2000 (2000-05-16) claim 8, paragraphs [0014], [0038]	5
A	JP 2016-520343 A (UNILEVER NV.) 14 July 2016 (2016-07-14) paragraph [0034]	1-11
A	JP 2011-526535 A (NESTEC S.A.) 13 October 2011 (2011-10-13) claim 1	1-11
A	JP 2011-505172 A (ILLYCAFFE' S.P.A.) 24 February 2011 (2011-02-24) paragraph [0019]	1-11

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2021/005741

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2004-292805 A	21 Oct. 2004	(Family: none)	
JP 2004-181881 A	02 Jul. 2004	(Family: none)	
JP 2001-032515 A	06 Feb. 2001	(Family: none)	
JP 2000-136579 A	16 May 2000	KR 10-2000-0017472 A claim 7, p. 5, lines 9-10, p. 8, lines 6-9 CN 1249986 A claim 7, p. 3, lines 1-3, p. 6, line 21 to p. 7, line 2	
JP 2016-520343 A	14 Jul. 2016	US 2015/0173558 A1 paragraph [0068] WO 2014/146952 A1 p. 12, line 29 to p. 13, line 3 EP 2781174 A1 paragraph [0037] CN 105050458 A paragraph [0066]	
JP 2011-526535 A	13 Oct. 2011	US 2011/0139847 A1 claim 1 WO 2009/153298 A1 claim 1 CN 102066203 A claim 1	
JP 2011-505172 A	24 Feb. 2011	US 2010/0313766 A1 paragraph [0017] WO 2009/053811 A2 p. 4, lines 22-25 CN 101888801 A paragraph [0020]	

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））</p> <p>B29K 101/12(2006.01)n; B29K 105/12(2006.01)n; C08K 5/07(2006.01)i; C08K 5/1545(2006.01)i; C08L 1/02(2006.01)i; C08L 23/00(2006.01)i; C08L 67/02(2006.01)i; C08L 93/00(2006.01)i; C08L 101/00(2006.01)i; B29C 70/12(2006.01)i; B29C 70/28(2006.01)i FI: C08L101/00; C08L93/00; C08L23/00; C08L1/02; C08L67/02; C08K5/07; C08K5/1545; B29C70/12; B29C70/28; B29K101:12; B29K105:12</p>																																			
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））</p> <p>B29K101/12; B29K105/12; C08K5/07; C08K5/1545; C08L1/02; C08L23/00; C08L67/02; C08L93/00; C08L101/00; B29C70/12; B29C70/28</p> <p>最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922 - 1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971 - 2021年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2021年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2021年</td> </tr> </table> <p>国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）</p>			日本国実用新案公報	1922 - 1996年	日本国公開実用新案公報	1971 - 2021年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2021年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2021年																									
日本国実用新案公報	1922 - 1996年																																		
日本国公開実用新案公報	1971 - 2021年																																		
日本国実用新案登録公報	1996 - 2021年																																		
日本国登録実用新案公報	1994 - 2021年																																		
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>JP 2004-292805 A（日本油脂株式会社／株式会社 伊藤園）21.10.2004（2004 - 10 - 21） Claim 1, [0043]-[0046], [Table 4] Examples 1-2</td> <td>1-4, 8-11</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>Claim 1, [0043]-[0046], [Table 4] Examples 1-2</td> <td>5</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>JP 2004-181881 A（大建工業株式会社）02.07.2004（2004 - 07 - 02） Claim 4, [0011], [0027]</td> <td>5</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>JP 2001-032515 A（松下電工株式会社）06.02.2001（2001 - 02 - 06） Claim 7, [0026]</td> <td>5</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>JP 2000-136579 A（松下電工株式会社）16.05.2000（2000 - 05 - 16） Claim 8, [0014], [0038]</td> <td>5</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2016-520343 A（ユニリーバー・ナムローゼ・ベンノートシヤープ）14.07.2016 （2016 - 07 - 14） [0034]</td> <td>1-11</td> </tr> </tbody> </table> <p><input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p> <table border="0"> <tr> <td>* 引用文献のカテゴリー</td> <td>“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</td> </tr> <tr> <td>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの</td> <td>“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの</td> </tr> <tr> <td>“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの</td> <td>“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの</td> </tr> <tr> <td>“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）</td> <td>“&” 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td></td> </tr> <tr> <td>“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献</td> <td></td> </tr> </table>			引用文献の カテゴリー*	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	X	JP 2004-292805 A（日本油脂株式会社／株式会社 伊藤園）21.10.2004（2004 - 10 - 21） Claim 1, [0043]-[0046], [Table 4] Examples 1-2	1-4, 8-11	Y	Claim 1, [0043]-[0046], [Table 4] Examples 1-2	5	Y	JP 2004-181881 A（大建工業株式会社）02.07.2004（2004 - 07 - 02） Claim 4, [0011], [0027]	5	Y	JP 2001-032515 A（松下電工株式会社）06.02.2001（2001 - 02 - 06） Claim 7, [0026]	5	Y	JP 2000-136579 A（松下電工株式会社）16.05.2000（2000 - 05 - 16） Claim 8, [0014], [0038]	5	A	JP 2016-520343 A（ユニリーバー・ナムローゼ・ベンノートシヤープ）14.07.2016 （2016 - 07 - 14） [0034]	1-11	* 引用文献のカテゴリー	“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの	“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの	“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの	“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）	“&” 同一パテントファミリー文献	“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献		“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献	
引用文献の カテゴリー*	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																																	
X	JP 2004-292805 A（日本油脂株式会社／株式会社 伊藤園）21.10.2004（2004 - 10 - 21） Claim 1, [0043]-[0046], [Table 4] Examples 1-2	1-4, 8-11																																	
Y	Claim 1, [0043]-[0046], [Table 4] Examples 1-2	5																																	
Y	JP 2004-181881 A（大建工業株式会社）02.07.2004（2004 - 07 - 02） Claim 4, [0011], [0027]	5																																	
Y	JP 2001-032515 A（松下電工株式会社）06.02.2001（2001 - 02 - 06） Claim 7, [0026]	5																																	
Y	JP 2000-136579 A（松下電工株式会社）16.05.2000（2000 - 05 - 16） Claim 8, [0014], [0038]	5																																	
A	JP 2016-520343 A（ユニリーバー・ナムローゼ・ベンノートシヤープ）14.07.2016 （2016 - 07 - 14） [0034]	1-11																																	
* 引用文献のカテゴリー	“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの																																		
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの																																		
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの																																		
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）	“&” 同一パテントファミリー文献																																		
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献																																			
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献																																			
<p>国際調査を完了した日</p> <p>21.04.2021</p>	<p>国際調査報告の発送日</p> <p>11.05.2021</p>																																		
<p>名称及びあて先</p> <p>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</p>	<p>権限のある職員（特許庁審査官）</p> <p>幸田 俊希 4J 4671</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3457</p>																																		

C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリ*	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
A	JP 2011-526535 A (ネステク ソシエテ アノニム) 13.10.2011 (2011 - 10 - 13) Claim 1	1-11
A	JP 2011-505172 A (イリカフェ・ソシエタ・ベル・アチオニ) 24.02.2011 (2011 - 02 - 24) [0019]	1-11

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/JP2021/005741

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2004-292805 A	21.10.2004	(ファミリーなし)	
JP 2004-181881 A	02.07.2004	(ファミリーなし)	
JP 2001-032515 A	06.02.2001	(ファミリーなし)	
JP 2000-136579 A	16.05.2000	KR 10-2000-0017472 A Claim 7, p.5 line.9-10, p.8 line.6-9 CN 1249986 A Claim 7, p.3 line.1-3, p.6 line.21 - p.7 line.2	
JP 2016-520343 A	14.07.2016	US 2015/0173558 A1 [0068] WO 2014/146952 A1 p.12 line.29 - p.13 line.3 EP 2781174 A1 [0037] CN 105050458 A [0066]	
JP 2011-526535 A	13.10.2011	US 2011/0139847 A1 Claim 1 WO 2009/153298 A1 Claim 1 CN 102066203 A Claim 1	
JP 2011-505172 A	24.02.2011	US 2010/0313766 A1 [0017] WO 2009/053811 A2 p.4 line.22-25 CN 101888801 A [0020]	