

(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
2024年8月22日(22.08.2024)

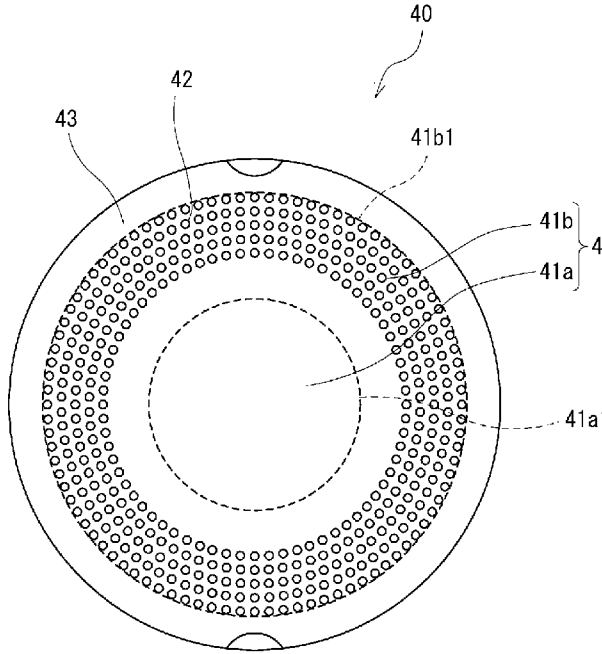


(10) 国際公開番号
WO 2024/171745 A1

- (51) 国際特許分類:
D01F 6/62 (2006.01) *D01D 5/092* (2006.01)
D01D 4/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2024/002110
- (22) 国際出願日: 2024年1月24日(24.01.2024)
- (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 2023-021483 2023年2月15日(15.02.2023) JP
- (71) 出願人: 株式会社カネカ (**KANEKA CORPORATION**) [JP/JP]; 〒5308288 大阪府大阪市北区中之島二丁目3番18号 Osaka (JP).
- (72) 発明者: 荻野 貴志(**OGINO, Takashi**).
- (74) 代理人: 弁理士法人有古特許事務所 (**ARCO PATENT & TRADEMARK ATTORNEYS**); 〒6510088 兵庫県神戸市中央区小野柄通7丁目1番1号 日本生命三宮駅前ビル5階 Hyogo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY,

(54) Title: MULTIFILAMENT PRODUCTION METHOD

(54) 発明の名称: マルチフィラメントの製造方法



(57) Abstract: The present invention provides a multifilament production method that increases productivity for a multifilament which contains a poly(3-hydroxybutyrate)-based resin and in which the average fineness of a single yarn is small. The present invention is a method for producing a multifilament having not less than 50 single yarns via melt spinning, said method comprising: a step (A) for discharging a composition containing a poly(3-hydroxyalkanoate)-based resin from a spinning nozzle to obtain not less than 50 raw yarns in a molten state; and a step (B) for blowing a gas onto the raw yarns in the molten state to cool the raw yarns. The spinning nozzle has a nozzle surface that has not less than 50 discharge holes. The nozzle surface is divided into a center region and a peripheral region that surrounds the center region. The outer edge of the center region and the outer edge of the peripheral region have similar shapes which share



WO 2024/171745 A1

MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

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

添付公開書類 :

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

an area centroid. The homothetic ratio of the outer edge of the center region and the outer edge of the peripheral region is 1:2. The number of discharge holes in the peripheral region is greater than 75% of the number of discharge holes in the nozzle surface. The temperature of the gas is $(T_c-45)^\circ\text{C}$ to $(T_c-20)^\circ\text{C}$ [where T_c is the crystallization temperature of the composition containing the poly(3-hydroxyalkanoate)-based resin]. The flow speed of the gas is not less than 0.01 m/s but less than 0.10 m/s. The average fineness of the single yarns is 3.0-15.0 dtex.

(57) 要約 : 本発明は、ポリ(3-ヒドロキシブチレート)系樹脂を含有し、単糸の繊度の平均値が小さいマルチフィラメントの生産性を向上させる、マルチフィラメントの製造方法を提供する。本発明は、熔融紡糸法による、単糸を50本以上有するマルチフィラメントの製造方法であって、ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂を含む組成物を、紡糸ノズルから吐出して、熔融状態の原糸を50本以上得る工程(A)と、前記熔融状態の原糸に気体を吹き付けることにより該原糸を冷却する工程(B)とを含み、前記紡糸ノズルは、吐出孔を50個以上有するノズル面を有し、前記ノズル面は、中心領域と、該中心領域を取り囲む周辺領域とに区分けされ、前記中心領域の外縁と前記周辺領域の外縁とが、面積重心を共有する相似形となっており、前記中心領域の外縁と前記周辺領域の外縁との相似比が、1:2であり、前記周辺領域に存在する吐出孔の個数が、前記ノズル面に存在する吐出孔の個数の75%を超え、前記気体の温度が $(T_c-45) \sim (T_c-20)^\circ\text{C}$ [T_c : ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂を含む組成物の結晶化温度]であり、前記気体の風速が 0.01 m/s 以上 0.10 m/s 未満であり、前記単糸の繊度の平均値が 3.0 dtex 以上 15.0 dtex 以下である、マルチフィラメントの製造方法である。

明 細 書

発明の名称：マルチフィラメントの製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、マルチフィラメントの製造方法に関する。

背景技術

[0002] 近年、プラスチック廃棄物が、生態系への影響、燃焼時の有害ガス発生、大量の燃焼熱量による地球温暖化等、地球環境への大きな負荷を与える原因となっている問題がある。この問題を解決できるものとして、生分解性プラスチックの開発が盛んになっている。

[0003] このような生分解性プラスチックの中でも植物由来の原料を使用して得られる生分解性プラスチックを燃焼させた際に出る二酸化炭素は、もともと空気中にあったもので、大気中の二酸化炭素は増加しない。このことをカーボンニュートラルと称し、二酸化炭素削減目標値を課した京都議定書の下、重要視され、積極的な使用が望まれている。

[0004] 最近、生分解性及びカーボンニュートラルの観点から、植物由来の原料を炭素源として微生物産生される生分解性プラスチックとして、脂肪族ポリエステル系樹脂が注目されており、特にポリヒドロキシアルカノエート系樹脂が注目されている。

[0005] 特許文献1には、ポリ(3-ヒドロキシブチレート)系樹脂を含有するマルチフィラメントの製造方法が開示されている。

具体的には、特許文献1に記載の製造方法は、ポリ(3-ヒドロキシブチレート)系樹脂を含有する樹脂組成物を、前記樹脂組成物の融点以上熱分解温度以下に加熱し、紡糸ノズルから吐出する工程と、孔数80個の紡糸ノズルから吐出した樹脂組成物に、該樹脂組成物のガラス転移温度以上結晶化温度以下の温度の気流をあてる工程と、気流をあてた樹脂組成物をロールで延伸することによりマルチフィラメントを得る工程とを有する。

また、特許文献1には、前記気流の速度が0.1 m/s未満であると、得

られる冷却効果が小さくなりすぎることが記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：国際公開第2021/206154号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] ここで、ポリ（3-ヒドロキシブチレート）系樹脂を含有し、単糸の繊度の平均値が小さいマルチフィラメントの生産性を高めるべく、糸状の樹脂組成物を引取ロールで引き取る際のロールの速度を高めようと試みたところ、引取ロールで引き取る前に糸切れが生じてしまったり、或いは、得られたマルチフィラメントの単糸どうしの融着が生じてしまうことがあり、生産性良くマルチフィラメントを得ることが出来なかった。

そこで、本発明は、ポリ（3-ヒドロキシブチレート）系樹脂を含有し、単糸の繊度の平均値が小さいマルチフィラメントの生産性を向上させることを課題とする。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明は、溶融紡糸法による、単糸を50本以上有するマルチフィラメントの製造方法であって、
ポリ（3-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂を含む組成物を、紡糸ノズルから吐出して、溶融状態の原糸を50本以上得る工程（A）と、
前記溶融状態の原糸に気体を吹き付けることにより該原糸を冷却する工程（B）とを含み、
前記紡糸ノズルは、吐出孔を50個以上有するノズル面を有し、
前記ノズル面は、中心領域と、該中心領域を取り囲む周辺領域とに区分けされ、
前記中心領域の外縁と前記周辺領域の外縁とが、面積重心を共有する相似形となっており、

前記中心領域の外縁と前記周辺領域の外縁との相似比が、1 : 2であり、
前記周辺領域に存在する吐出孔の個数が、前記ノズル面に存在する吐出孔の
個数の75%を超え、
前記気体の温度が $(T_c - 45) \sim (T_c - 20) \text{ } ^\circ\text{C}$ [T_c : ポリ(3-ヒ
ドロキシアルカノエート)系樹脂を含む組成物の結晶化温度]であり、
前記気体の風速が 0.01 m/s 以上 0.10 m/s 未満であり、
前記単糸の繊度の平均値が 3.0 dtex 以上 15.0 dtex 以下である
、マルチフィラメントの製造方法に関する。

発明の効果

[0009] 本発明によれば、ポリ(3-ヒドロキシブチレート)系樹脂を含有し、単
糸の繊度の平均値が小さいマルチフィラメントの生産性を向上し得る。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]本実施形態に係るマルチフィラメントの製造方法で用いる装置の概略図
。
[図2]本実施形態の紡糸ノズルのノズル面側の概略図。
[図3]本実施形態の紡糸ノズルのノズル面側の概略図。
[図4]本実施形態の紡糸ノズルのノズル面側の概略図。

発明を実施するための形態

[0011] 以下、添付図面を参照しつつ、本発明の一実施形態について説明する。
本実施形態に係るマルチフィラメントの製造方法は、熔融紡糸法による、
単糸を50本以上有するマルチフィラメントの製造方法である。
本実施形態に係るマルチフィラメントの製造方法は、ポリ(3-ヒドロキ
シアルカノエート)系樹脂を含む組成物(以下、「原料組成物」ともいう。
)を、紡糸ノズルから吐出して、熔融状態の原糸を50本以上得る工程(A
)と、前記熔融状態の原糸に気体を吹き付けることにより該原糸を冷却する
工程(B)とを含む。
前記紡糸ノズルは、吐出孔を50個以上有するノズル面を有する。
前記ノズル面は、中心領域と、該中心領域を取り囲む周辺領域とに区分け

されている。

前記中心領域の外縁と前記周辺領域の外縁とは、面積重心を共有する相似形となっている。

前記中心領域の外縁と前記周辺領域の外縁との相似比は、1 : 2である。

前記周辺領域に存在する吐出孔の個数は、前記ノズル面に存在する吐出孔の個数の75%を超える。

前記気体の温度が $(T_c - 45) \sim (T_c - 20) \text{ } ^\circ\text{C}$ [T_c :ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂を含む組成物の結晶化温度]である。

前記気体の風速が 0.01 m/s 以上 0.10 m/s 未満である。

前記単糸の繊度の平均値が 3.0 dtex 以上 15.0 dtex 以下である。

[0012] また、本実施形態に係るマルチフィラメントの製造方法は、前記工程(B)で冷却した前記原糸を引取ロールで引き取ることにより、前記マルチフィラメントを得る工程(C)を更に有する。

[0013] 上記特許文献1(国際公開第2021/206154号)には、「紡糸ノズルから吐出した樹脂組成物にあてる気流の速度が 0.1 m/s 未満であると、得られる冷却効果が小さすぎることから、気流の速度が 0.1 m/s 以上であることが好ましいこと」が記載されている。これに対し、本実施形態では、前記工程(B)の気体の風速を 0.01 m/s 以上 0.10 m/s 未満にする。

また、前記相似比が1 : 2において、ノズル面に均等に吐出孔が配されている場合には、前記ノズル面に存在する吐出孔の個数に対する前記周辺領域に存在する吐出孔の個数の比(以下、「存在比率」ともいう。)は、75%となる。これに対し、本実施形態では、前記存在比率が75%を超えていることにより、吐出孔が中心領域よりも周辺領域に多く偏在している。

[0014] 本実施形態によれば、ポリ(3-ヒドロキシブチレート)系樹脂を含有し、単糸の繊度の平均値が小さい(3.0 dtex 以上 15.0 dtex 以下)マルチフィラメントの生産性を向上し得る。

その理由は以下によるものと考えられる。

すなわち、吐出孔が周辺領域に多く偏在していることで、前記工程（B）では、原糸の束における外側の原糸よりも冷却され難い内側の原糸も十分に冷却されやすくなる。これにより、気体の風速が0.10 m/s未満であっても、原糸が熔融状態となっている時間を短くでき、原糸が切れ難くなる。また、原糸の束における外側の原糸と内側の原糸との間の冷却ムラが抑制され、原糸の織度のバラツキが抑制され、極端に細い原糸が少なくなり、原糸が切れ難くなる。

また、気体の風速が0.10 m/s未満であることにより、紡糸ノズルから吐出した後で原糸を引取ロールで引き取る前において、原糸の温度を結晶化温度範囲（例えば、50～80℃）まで下げるのを抑制しつつ適度な除熱が可能となる。その結果、原糸の結晶化を抑制でき、原糸が柔軟性に優れた状態（形状変形しやすい状態）となり、原糸が引取ロールで引き取られる際に切れ難くなる。

そして、原糸が切れ難いため、紡速（引取ロールの速度）を高めることができ、マルチフィラメントの生産性を高めることができる。

[0015] 前記原料組成物は、ポリマー成分及び添加剤を含有する。

[0016] 前記ポリマー成分は、ポリ（3-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂を含む。

また、前記ポリマー成分は、ポリ（3-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂以外に、他のポリマーを含有してもよい。

[0017] 前記ポリ（3-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂は、3-ヒドロキシアルカン酸をモノマーとするポリエステルである。

すなわち、前記ポリ（3-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂は、構成単位として3-ヒドロキシアルカン酸を含む樹脂である。

また、前記ポリ（3-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂は、生分解性を有するポリマーである。

なお、本実施形態における「生分解性」とは、自然界において微生物によ

って低分子化合物に分解され得る性質をいう。具体的には、好気条件ではISO 14855 (compost) 及びISO 14851 (activated sludge)、嫌気条件ではISO 14853 (aqueous phase) 及びISO 15985 (solid phase) 等、各環境に適合した試験に基づいて生分解性の有無が判断できる。また、海水中における微生物の分解性については、生物化学的酸素要求量 (Biochemical oxygen demand) の測定により評価できる。

前記ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂は、単独重合体及び／又は共重合体を含む。

[0018] 前記ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂は、下記式(1)で示される構成単位を含むことが好ましい。



(前記式(1)中、Rは C_pH_{2p+1} で表されるアルキル基を示し、pは1～15の整数を示す。)

[0019] 前記ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂は、3-ヒドロキシブチレートを構成単位として含む樹脂(ポリ(3-ヒドロキシブチレート)系樹脂)が好ましい。

なお、ポリ(3-ヒドロキシブチレート)系樹脂は、単独重合体及び／又は共重合体を含む。

[0020] 3-ヒドロキシブチレートを構成単位として含むポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂としては、例えば、P3HB、P3HB3HH、P3HB3HV、P3HB4HB、ポリ(3-ヒドロキシブチレート-コ-3-ヒドロキシオクタノエート)、ポリ(3-ヒドロキシブチレート-コ-3-ヒドロキシオクタデカノエート)等が挙げられる。

ここで、P3HBは、単独重合体たるポリ(3-ヒドロキシブチレート)を意味する。

P3HB3HHは、ポリ(3-ヒドロキシブチレート-コ-3-ヒドロキシヘキサノエート)を意味する。

P3HB3HVは、ポリ(3-ヒドロキシブチレート-コ-3-ヒドロキシバレレート)を意味する。

P3HB4HBは、ポリ(3-ヒドロキシブチレート-コ-4-ヒドロキシブチレート)を意味する。

[0021] なお、P3HBは、P3HB自体、及び、P3HB以外のポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂の結晶化を促進する機能を有するので、前記ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂は、P3HBを含むことが好ましい。

[0022] 前記ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂としては、優れた生分解性と成型加工性の両立の観点から、P3HB、P3HB3HH、P3HB3HV、P3HB4HBなどが好ましいが、特に限定されない。

また、前記ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂としては、本実施形態に係るマルチフィラメントの強度を高め、かつ、成型加工性を高めるという観点から、P3HB3HHが好ましい。

[0023] 前記ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂は、構成単位としての3-ヒドロキシブチレートを、好ましくは80モル%以上、より好ましくは85.0モル%~99.5モル%、更に好ましくは85.0モル%~97.0モル%含む。

前記ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂が構成単位としての3-ヒドロキシブチレートを80モル%以上含むことにより、マルチフィラメントの剛性が高くなる。

また、前記ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂が構成単位としての3-ヒドロキシブチレートを99.5モル%以下含むことにより、マルチフィラメントが柔軟性に優れる。

[0024] なお、ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂における3-ヒドロキシブチレート単位の含有割合は、後述する実施例に記載の方法で求めることができる。

[0025] 前記ポリマー成分は、前記ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂

を1種類のみ含んでもよく、2種以上含んでもよい。

前記ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂は、共重合体(P3HB3HH等)を含む場合には、構成単位の平均組成比が異なる2種類以上の共重合体を含んでもよい。

[0026] 前記原料組成物におけるポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂の重量平均分子量は、好ましくは $3.0 \times 10^5 \sim 7.0 \times 10^5$ 、より好ましくは $3.5 \times 10^5 \sim 7.0 \times 10^5$ 、さらに好ましくは $4.0 \times 10^5 \sim 7.0 \times 10^5$ 、最も好ましくは $4.5 \times 10^5 \sim 6.5 \times 10^5$ である。

前記原料組成物におけるポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂の重量平均分子量が 3.0×10^5 以上であることにより、単糸におけるポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂の重量平均分子量を高くしやすくなり、その結果、マルチフィラメントの強度を高めやすくなる。

前記原料組成物におけるポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂の重量平均分子量が 7.0×10^5 以下であることにより、マルチフィラメントの成形がしやすくなる。

[0027] 前記原料組成物におけるポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂の重量平均分子量は、加熱による溶融前の前記原料組成物におけるポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂の重量平均分子量を意味する。

[0028] なお、本実施形態における重量平均分子量は、クロロホルム溶離液を用いたゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)を用い、ポリスチレン換算分子量分布より測定されたものをいう。当該GPCにおけるカラムとしては、前記分子量を測定するのに適切なカラムを使用すればよい。

例えば、カラム温度は 40°C とし、対象物質 3mg をクロロホルム 2ml に溶解したものを $10\mu\text{l}$ 注入し、クロロホルム溶離液(移動相)の流量を $1.0\text{ml}/\text{分}$ にして、重量平均分子量(Mw)を求めることができる。GPC装置として島津20A(島津製作所製)を使用し、カラムとしてShodex K-806M(昭和電工製)を使用することができる。

[0029] 他のポリマーは、生分解性を有することが好ましい。

[0030] 生分解性を有する他のポリマーとしては、例えば、ポリカプロラクトン、ポリ乳酸、ポリブチレンサクシネート、ポリブチレンサクシネートアジペート、ポリブチレンアジペートテレフタレート、ポリエチレンサクシネート、ポリビニルアルコール、ポリグリコール酸、未変性デンプン、変性デンプン、酢酸セルロース、キトサン、ポリ（４-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂等が挙げられる。

前記ポリカプロラクトンは、 ϵ -カプロラクトンが開環重合したポリマーである。

前記ポリマー成分は、他のポリマーを１種含んでよく、また、２種以上含んでもよい。

[0031] 前記ポリマー成分は、ポリ（３-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂を、好ましくは５０重量％以上、より好ましくは８０重量％以上、さらに好ましくは９０重量％以上含有する。

[0032] 原料組成物が生分解性を有するポリマーを含むことにより、マルチフィラメントが環境中に廃棄されたとしても、環境中で分解されやすいため、環境への負荷を抑制することができる。

[0033] 前記添加剤としては、例えば、結晶核剤、滑剤、可塑剤、紡糸油剤、安定剤（酸化防止剤、紫外線吸収剤等）、着色剤（染料、顔料等）、無機充填剤、有機充填剤、帯電防止剤等が挙げられる。

[0034] ポリ（３-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂の結晶化を促進すべく、前記原料組成物は、結晶核剤を含有することが好ましい。

前記結晶核剤は、ポリ（３-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂の結晶化を促進する効果を有する化合物である。また、前記結晶核剤は、ポリ（３-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂よりも融点が高い。

前記結晶核剤としては、無機物（窒化ホウ素、酸化チタン、タルク、層状ケイ酸塩、炭酸カルシウム、塩化ナトリウム、及び金属リン酸塩など）；天然物由来の糖アルコール化合物（ペンタエリスリトール、エリスリトール、ガラクトール、マンニトール、及びアラビトール等）；ポリビニルアルコ

ール；キチン；キトサン；ポリエチレンオキシド；脂肪族カルボン酸塩；脂肪族アルコール；脂肪族カルボン酸エステル；ジカルボン酸誘導体（ジメチルアジペート、ジブチルアジペート、ジイソデシルアジペート、及びジブチルセバケート）；C=OとNH、S及びOから選ばれる官能基とを分子内に有する環状化合物（インジゴ、キナクリドン、及びキナクリドンマゼンタなど）；ソルビトール系誘導体（ビスベンジリデンソルビトール、及びビス（*p*-メチルベンジリデン）ソルビトールなど）；窒素含有ヘテロ芳香族核（ピリジン環、トリアジン環、及びイミダゾール環など）を含む化合物（ピリジン、トリアジン、及びイミダゾールなど）；リン酸エステル化合物；高級脂肪酸のビスアミド；高級脂肪酸の金属塩；並びに分岐状ポリ乳酸等が例示できる。

また、前記ポリ（3-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂であるP3HBは、結晶核剤として使用することも可能である。

これらは単独で用いても良く、2種以上を組み合わせ用いても良い。

[0035] 前記結晶核剤としては、ポリ（3-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂の結晶化速度の改善効果の観点、並びに、ポリ（3-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂との相溶性及び親和性の観点から、糖アルコール化合物、ポリビニルアルコール、キチン、キトサンが好ましい。

また、該糖アルコール化合物のうち、ペンタエリスリトールが好ましい。

[0036] 前記結晶核剤は、好ましくは、常温（25℃）で結晶構造を有する。

前記結晶核剤が常温（25℃）で結晶構造を有することにより、ポリ（3-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂の結晶化がより促進されるという利点がある。

また、常温（25℃）で結晶構造を有する結晶核剤は、好ましくは、常温（25℃）で粉末状となっている。

さらに、常温（25℃）で粉末状となっている結晶核剤の平均粒子径は、好ましくは10μm以下である。

[0037] 原料組成物における結晶核剤の含有量は、ポリ（3-ヒドロキシアルカノ

エート)系樹脂100重量部に対し、0.05重量部以上が好ましく、0.1重量部以上がより好ましく、0.5重量部以上がさらに好ましい。原料組成物における結晶核剤の含有量がポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂100重量部に対し0.05重量部以上であることにより、ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂の結晶化をより促進できるという利点がある。

また、原料組成物における結晶核剤の含有量は、ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂100重量部に対し、10重量部以下が好ましく、8重量部以下がより好ましく、5重量部以下がさらに好ましい。原料組成物における結晶核剤の含有量がポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂100重量部に対し10重量部以下であることにより、溶融物からマルチフィラメントを作製する際に、該溶融物の粘度を低くすることができ、その結果、マルチフィラメントの作製がしやすくなるという利点がある。

なお、P3HBは、ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂であり、且つ、結晶核剤としても機能し得るので、原料組成物がP3HBを含む場合には、P3HBの量は、ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂の量にも、結晶核剤の量にも含まれる。

[0038] 前記原料組成物は、滑剤を含有してもよい。

該滑剤としては、例えば、脂肪酸アミドなどが挙げられる。

前記脂肪酸アミドは、ラウリン酸アミド、ミリスチン酸アミド、ステアリン酸アミド、ベヘン酸アミド、及び、エルカ酸アミドから選ばれる1種以上を含むことが好ましい。

[0039] 原料組成物における滑剤の含有量は、前記ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂100重量部に対し、0.05重量部以上が好ましく、0.1重量部以上がより好ましく、0.5重量部以上がさらに好ましい。原料組成物における滑剤の含有量がポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂100重量部に対し0.05重量部以上であることにより、単糸の滑性に優れるという利点がある。

また、原料組成物における滑剤の含有量は、ポリ（3-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂100重量部に対し、12重量部以下が好ましく、10重量部以下がより好ましく、8重量部以下がさらに好ましく、5重量部以下が最も好ましい。原料組成物における滑剤の含有量がポリ（3-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂100重量部に対し12重量部以下であることにより、前記滑剤がマルチフィラメントの表面にブリードアウトするのを抑制できるという利点がある。

[0040] 以下では、上述した工程（A）～（C）について、図1、2を参照して説明する。

[0041] （工程（A））

前記工程（A）では、まず、材料をドライブレンドし、押出機により熔融混練して原料組成物たるペレットを得る。

そして、図1に示すように、ペレットをフィーダー10に投入する。

次に、該フィーダー10から投入されたペレットを押出機20で加熱により熔融させ、熔融した原料組成物たる熔融物を得る。

前記押出機20としては、スクリュウ押出機を用いることができる。また、該押出機20は、単軸押出機であっても、二軸押出機であってもよい。

[0042] そして、熔融した原料組成物たる熔融物を、紡糸ノズル40から吐出して、熔融状態の原糸Aを50本以上得る。

なお、紡糸ノズル40から吐出する熔融物の流量は、ギアポンプ30で調整する。

[0043] 図2に示すように、前記紡糸ノズル40は、吐出孔42を50個以上有するノズル面41を有する。なお、紡糸ノズル40に、吐出孔42が形成されていない最外縁領域43がある場合には、該最外縁領域43はノズル面41に含まれない。

前記紡糸ノズル40には、吐出孔42とは別の孔（例えば、紡糸ノズル40を固定するための孔など）が形成されていてもよい。

また、前記紡糸ノズル40は、図3、4のような態様であってもよい。

[0044] 前記ノズル面41は、中心領域41aと、該中心領域41aを取り囲む周辺領域41bとに区分けされている。

前記中心領域の外縁41a1と前記周辺領域の外縁41b1とは、面積重心を共有する相似形となっている。なお、面積重心とは、領域の外縁と同じ形の外縁を有する薄板であって単位面積当たりの重量が均一である薄板を仮定した際の該薄板の重心を意味する。

前記中心領域の外縁41a1と前記周辺領域の外縁41b1との相似比は、1:2である。

前記相似比が1:2であることから、前記中心領域41aと、前記周辺領域41bとの面積比は、 $1 (= 1^2) : 3 (= 2^2 - 1^2)$ であり、言い換えれば、25:75である。

[0045] 前記ノズル面41における吐出孔42の集合体を外側で結ぶように引いた線が、前記周辺領域の外縁41b1となる。言い換えれば、前記ノズル面41における吐出孔42の集合体を囲むように引いた線が、前記周辺領域の外縁41b1となる。

また、前記周辺領域の外縁41b1と面積重心を共有し該周辺領域の外縁41b1と相似形となる線であって、前記周辺領域の外縁41b1の長さの半分の長さとなる線が、前記中心領域の外縁41a1となる。

[0046] 前記周辺領域41bには、前記中心領域41aよりも高密度で吐出孔42が形成されている。

前記周辺領域41bに存在する吐出孔42の個数は、前記ノズル面41に存在する吐出孔42の個数の75%を超えており、前記ノズル面41に存在する吐出孔42の個数の80~100%であることが好ましく、前記ノズル面41に存在する吐出孔42の個数の85~100%であることがより好ましく、前記ノズル面41に存在する吐出孔42の個数の90~100%であることが更に好ましく、前記ノズル面41に存在する吐出孔42の個数の95~100%であることが特に好ましい。

前記周辺領域41bに存在する吐出孔42の個数が、前記ノズル面41に

存在する吐出孔42の個数の75%を超えていることにより、原糸の束における内側の原糸も十分に冷却されやすくなり、原糸の束における外側の原糸と内側の原糸との間で冷却ムラを抑制できる。

その結果、引取ロールの速度を高めても原糸が切れ難くなり、マルチフィラメントの生産性を向上させることができる。

また、原糸Aの織度のばらつきを抑制でき、その結果、得られるマルチフィラメントの単糸の織度のばらつきも抑制できる。

なお、中心領域41a及び周辺領域41bの両方に跨る特定の吐出孔がある場合には、該特定の吐出孔の中心領域41aにおける面積と、該特定の吐出孔の周辺領域41bにおける面積とを比較し、面積が大きい方の領域に該特定の吐出孔が存在しているとして、各領域における吐出孔42の個数を数える。

[0047] 原糸を比較的均一に冷却しやすくなるという観点から、前記ノズル面41では、吐出孔42が円周状の列となって並んでいることが好ましい。

また、前記ノズル面41は、吐出孔42が円周状に並んだ列を1列有してもよい(図3)。また、ノズル面41に多くの吐出孔42を形成しやすくなるという観点から、前記ノズル面41は、吐出孔42が円周状に並んだ列を、好ましくは2列以上、より好ましくは4列以上有する(図2では5列、図4では8列)。前記ノズル面41の大きさや吐出孔42の大きさにもよるが、前記ノズル面41は、吐出孔42が円周状に並んだ列を有する場合には、該列を20列以下、より具体的には、15列以下有する。

図2、3に示すように、前記周辺領域41bは、吐出孔42が存在しない領域を中心領域41a側に有してもよい。

また、図4に示すように、前記周辺領域41bの全体に、吐出孔42がほぼ均等に配されていてもよい。

図2~4に示すように、マルチフィラメントの生産性をより一層向上させるという観点から、前記中心領域41aには、吐出孔42が存在しないことが好ましい。なお、前記中心領域41aには、吐出孔42が存在してもよい

。

原糸を比較的均一に冷却しやすくなるという観点から、隣接する吐出孔42間の距離は、互いにほぼ同じであることが好ましい。

また、原糸を比較的均一に冷却しやすくなるという観点から、ノズル面41において吐出孔42が存在する領域では、吐出孔42がほぼ均等に配されていることが好ましい。

[0048] 原糸を比較的均一に冷却しやすくなるという観点から、前記中心領域の外縁41a1と前記周辺領域の外縁41b1とは、それぞれ円形状、楕円形状、正多角形状、又は、星形正多角形状となっていることが好ましく、それぞれ円形状、楕円形状、又は、正多角形状となっていることがより好ましく、それぞれ円形状になっていることが更に好ましい。

[0049] 前記紡糸ノズル40は、吐出孔42を50個以上、好ましくは50～10000個、より好ましくは50～5000個、さらに好ましくは50～3000個、さらにより好ましくは50～2000個、特に好ましくは50～1000個有する。

前記紡糸ノズル40が吐出孔42を50個以上有しているが、本実施形態では、前記周辺領域41bに存在する吐出孔42の個数が、前記ノズル面41に存在する吐出孔42の個数の75%を超えていることにより、原糸の束における内側の前記原糸Aも十分に冷却されやすくなっている。

前記紡糸ノズル40が吐出孔42を10000個以下有していることにより、原糸の束における内側の前記原糸Aも十分に冷却されやすくなる。

[0050] 各吐出孔42の形状及び大きさは、マルチフィラメントにおいて要求される特性（例えば、外観、織度、強度、断面形状など）に合わせて選定される。

吐出孔42同士の形状は、略同じになっていることが好ましい。また、吐出孔42同士の面積（断面積）は、略同じになっていることが好ましい。

吐出孔42の形状としては、例えば、円形状、楕円形状、正多角形状、星形正多角形状などが挙げられる。

各吐出孔42の面積（断面積）は、好ましくは $1.0 \times 10^{-3} \sim 20 \text{ mm}^2$ 、より好ましくは $5.0 \times 10^{-3} \sim 10 \text{ mm}^2$ である。

[0051] 紡糸ノズル40から吐出する組成物（溶融物）の流量は、好ましくは $1.0 \sim 20 \text{ kg/h}$ 、より好ましくは $2.0 \sim 15 \text{ kg/h}$ である。

[0052] 前記紡糸ノズル40から吐出された直後の組成物（原料組成物）の温度は、好ましくは $150 \sim 168^\circ\text{C}$ 、より好ましくは $151 \sim 167^\circ\text{C}$ である。

該温度が 150°C 以上であることにより、組成物が十分に溶融して、組成物を吐出孔42から吐出させやすくなる。

該温度が 168°C 以下であることにより、ポリ（3-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂が分解されるのが抑制され、溶融状態の原糸が切れてしまうのを抑制しやすくなる。

[0053] （工程（B））

前記工程（B）では、50本以上の溶融状態の原糸Aに気体を吹き付けることにより該原糸Aを冷却する。

前記気体としては、空気、不活性ガス（窒素ガス、アルゴンガス等）、水蒸気等が挙げられる。

前記工程（B）では、図1に示すように、50本以上の溶融状態の原糸Aに冷却部50で気体を吹き付ける。

冷却部50は、冷却ボックス51を有する。前記工程（B）では、原糸Aに冷却ボックス51内で気体を吹付ける。

吹き付け方法としては、サーキュラー法、背面法などが挙げられる。

前記背面法は、前記原糸Aの長手方向視（前記原糸Aの長手方向に垂直となる、前記原糸Aの断面視）において、50本以上の前記原糸Aに冷却ボックス51内で1方向から前記気体を吹き付ける方法である。

前記サーキュラー法は、円筒状の側壁を有する冷却ボックス51を用い、円筒状の側壁の内周面に沿って螺旋状に気体を円筒状のボックス51内に吹き付けることにより、50本以上の前記原糸Aに前記気体を吹き付ける方法である。なお、原糸Aの流れ方向は、円筒状の側壁の仮想軸と略平行とする

。

前記冷却ボックス51は、円筒状の側壁の内側に、円筒状のパンチングメタルを有し、更に、円筒状のパンチングメタルの内側に、円筒状の網（例えば、80メッシュ）を有してもよい。円筒状のパンチングメタルの外径は、円筒状の側壁の内径よりも小さい。円筒状の網の外形は、円筒状のパンチングメタルの内径よりも小さい。

この場合、前記サーキュラー法では、50本以上の前記原糸Aが円筒状の網の内側を通過する。

吹き付け方法としては、前記サーキュラー法が好ましい。前記サーキュラー法は、50本以上の前記原糸Aに比較的均一に気体を吹き付けることができ、その結果、原糸Aをより一層均一に冷却でき、また、原糸Aの織度のばらつきを抑制し得る。

[0054] 前記工程(B)では、前記原糸Aに接触した気体を該原糸Aの流れ方向に沿って冷却ボックス51外に排出させることが好ましい。前記原糸Aに接触した気体を該原糸Aの流れ方向に沿って冷却ボックス51外に排出させるために、例えば、整流板、整流フィン、イジェクター、ベンチュリ管、虹吸株式会社製のトランスベクター等を利用することができる。

[0055] 前記気体の温度は、 $(T_c - 45) \sim (T_c - 20)^\circ\text{C}$ [T_c :ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂を含む組成物(原料組成物)の結晶化温度]であり、好ましくは $(T_c - 40) \sim (T_c - 25)^\circ\text{C}$ である。

なお、前記気体の温度は、気体が原糸Aに当たる直前の気体の温度を意味する。

[0056] 前記気体の温度が $(T_c - 20)^\circ\text{C}$ 以下であることにより、原糸Aが切れるのを抑制し、その結果、マルチフィラメントの生産性を向上させやすくなる。

これは、前記気体の温度が $(T_c - 20)^\circ\text{C}$ 以下であることにより、原糸Aが十分に冷却され、原糸Aが熔融状態となっている時間を短くでき、その結果、原糸Aが切れ難くなることによるものと考えられる。

[0057] また、前記気体の温度が $(T_c - 45)$ °C以上であることにより、単糸どうしの融着を抑制し、その結果、マルチフィラメントの生産性を向上させやすくなる。

これは、前記気体の温度が $(T_c - 45)$ °C以上であることにより、原糸を引取ロールで引き取った後において、原糸を構成する組成物を結晶化させやすくなり、その結果、単糸どうしの融着が抑制されることによるものと考えられる。

[0058] なお、前記原料組成物の結晶化温度 (T_c) は、JIS K7121-1987「プラスチックの転移温度測定方法」に従って測定することができる。

具体的には、示差走査熱量計（例えば、TA Instruments社製の示差走査熱量計DSC25）を用い、測定容器に試料たる原料組成物を約6.0mg充てんして、窒素ガス流量50ml/minのもと10°C/minの昇温冷却速度で-30°C~180°Cの間で昇温・冷却し、第2回目の冷却時における発熱ピークのピークトップの温度を結晶化温度とする。

発熱ピークが2つ以上ある場合には、最もピーク面積が大きい発熱ピークのピークトップの温度を結晶化温度とする。

[0059] 前記気体の風速は、0.01m/s以上0.10m/s未満であり、好ましくは0.01m/s以上0.09m/s以下である。

なお、前記気体の風速は、気体が原糸Aに当たる直前の気体の風速を意味する。

[0060] 前記気体の風速が0.10m/s未満であることにより、引取ロールの速度を高めても引取ロールによる引き取りの際に原糸Aが切れ難くなり、その結果、マルチフィラメントの生産性を向上させやすくなる。

これは、前記気体の風速を0.10m/s未満とすることにより、原糸Aを引取ロールで引き取るまでに、前記組成物が結晶化しやすい温度まで原糸が冷却されるのを抑制でき、柔軟性を有した状態で引取ロールに引き取られやすくなることによるものと考えられる。

[0061] 前記気体の風速が 0.01 m/s 以上であることにより、溶融状態の原糸Aが気体によって十分に冷却され得る。その結果、溶融状態の原糸Aが切れ難くなり、マルチフィラメントの生産性を向上させやすくなる。

[0062] 前記紡糸ノズル40の吐出孔と、該吐出孔から吐出されて得られた原糸Aに前記工程(B)において前記気体が接する位置との間の距離は、マルチフィラメントの要求特性によって決定されるが、一般的に短い方が好ましい。

[0063] (工程(C))

前記工程(C)では、前記工程(B)で冷却した前記原糸Aを引取機60の引取ロール62で引き取ることにより、前記マルチフィラメントBを得る。

引取ロール62での引取速度は、例えば $150\sim 2000\text{ m/min}$ 、好ましくは $200\sim 1000\text{ m/min}$ 、より好ましくは $250\sim 750\text{ m/min}$ である。

引取ロール62での引取速度が好ましい範囲内であることにより、マルチフィラメントの生産性をより一層高めやすくなる。

[0064] また、隣接する単糸どうしの融着を抑制するという観点、隣接する単糸どうしが静電気により離れてしまうのを抑制するという観点などから、前記工程(C)では、前記原糸Aを引取ロール62で引き取る前に、冷却された前記原糸Aそれぞれの表面に、紡糸油剤を引取機60のオイリングロール61で塗布してもよい。

前記紡糸油剤としては、例えば、カチオン界面活性剤、アニオン界面活性剤、ノニオン界面活性剤、精製エステル化油、鉱油、ポリ(オキシエチレン)アルキルエーテル、シリコンオイル、パラフィンワックスなどが挙げられる。これは単独で用いてもよく、2種以上を用いてもよい。

隣接する単糸どうしの融着をより一層抑制するという観点では、前記紡糸油剤としては、シリコンオイルが好ましい。

隣接する単糸どうしが静電気により離れてしまうのをより一層抑制するという観点では、前記紡糸油剤としては、アニオン界面活性剤、ノニオン界面

活性剤が好ましい。

前記紡糸油剤としては、例えば、シリコンオイルとアニオン界面活性剤とを含む紡糸油剤（例えば、丸菱油化社製の「ポリマックスF K Y」）を用いることができる。

[0065] そして、前記工程（C）では、前記マルチフィラメントBを巻取機70の巻取ロール71で巻き取ることができる。

なお、図1における前記工程（C）では、前記マルチフィラメントBを巻取ロール71で巻き取るが、本実施形態では、前記マルチフィラメントBを巻取ロール71で巻き取らずに、収容容器に収容させてもよい。

[0066] 前記工程（C）では、延伸用マルチフィラメントとしての前記マルチフィラメントBを延伸して、マルチフィラメント（延伸マルチフィラメント）を得てもよい。

延伸方法としては、例えば、逐次延伸法（「後延伸法」ともいう。）、スピンドロー法（「SDY法」や「直接紡糸延伸法」ともいう。）などが挙げられる。

前記逐次延伸法では、前記巻取ロール71で巻き取った延伸用マルチフィラメントを延伸して、延伸マルチフィラメントを得ることができる。

前記スピンドロー法では、前記引取ロール62で引き取った延伸用マルチフィラメントを延伸して、延伸マルチフィラメントを得、該延伸マルチフィラメントを前記巻取ロール71で巻き取る。スピンドロー法では、熔融物を複数の吐出孔から吐出することで熔融状態の原糸を複数本得る工程から、延伸用マルチフィラメントを延伸する工程までを1工程で実施する。

[0067] 前記マルチフィラメントは、単糸を50本以上有し、好ましくは50～10000本、より好ましくは50～5000本、さらに好ましくは50～3000本有する。

[0068] 前記マルチフィラメントにおける単糸の繊度の平均値は、3.0 dtex以上15.0 dtex以下である。

前記単糸の繊度の平均値が15.0 dtex以下であることにより、マル

チフィラメントは、様々な用途に用いることができる。例えば、マルチフィラメントは、紡績糸を作製するための材料として用いることができる。

前記単糸の繊度の平均値が3.0 d t e x以上であることにより、紡糸が可能となる。

前記単糸の繊度の平均値は、好ましくは3.5 d t e x以上、より好ましくは4.0 d t e x以上である。

前記単糸の繊度の平均値は、好ましくは10 d t e x以下、より好ましくは7.0 d t e x以下である。

[0069] 本実施形態において、単糸の繊度の平均値は、以下のようにして求めることができる。

まず、マルチフィラメントの繊度（総繊度）を測定する。また、マルチフィラメントに含まれる単糸の本数を求める。

そして、下記式から単糸の繊度の平均値を求める。

単糸の繊度の平均値 = マルチフィラメントの繊度 / マルチフィラメントに含まれる単糸の本数

[0070] 前記マルチフィラメントは、糸状のまま用いてもよい。

また、マルチフィラメントを切断することにより、長さが20cm以下であるステープルを得てもよい。また、該ステープルは、糸状のまま用いてもよい。

また、前記マルチフィラメント及び／又はステープルを用いて繊維製品（繊維体）を作製してもよい。

該繊維製品は、種々の形状（例えば、不織布状など）にすることができる。

マルチフィラメント、ステープル、及び、繊維製品は、従来公知の用途に好適に使用することができる。

マルチフィラメント、ステープル、及び、繊維製品は、例えば、農業（例えば、園芸など）、漁業、林業、医療業、食品産業などの分野において好適に使用することができる。

また、前記繊維製品としては、例えば、衣料、カーテン、絨毯、鞆、靴、ワイピング材、衛生品、自動車部材、建材、ろ過材（フィルター）等が挙げられる。

[0071] 〔開示項目〕

以下の項目のそれぞれは、好ましい実施形態の開示である。

[0072] 〔項目 1〕

熔融紡糸法による、単糸を 50 本以上有するマルチフィラメントの製造方法であって、
ポリ（3-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂を含む組成物を、紡糸ノズルから吐出して、熔融状態の原糸を 50 本以上得る工程（A）と、
前記熔融状態の原糸に気体を吹き付けることにより該原糸を冷却する工程（B）とを含み、
前記紡糸ノズルは、吐出孔を 50 個以上有するノズル面を有し、
前記ノズル面は、中心領域と、該中心領域を取り囲む周辺領域とに区分けされ、
前記中心領域の外縁と前記周辺領域の外縁とが、面積重心を共有する相似形となっており、
前記中心領域の外縁と前記周辺領域の外縁との相似比が、1 : 2 であり、
前記周辺領域に存在する吐出孔の個数が、前記ノズル面に存在する吐出孔の個数の 75% を超え、
前記気体の温度が $(T_c - 45) \sim (T_c - 20) \text{ } ^\circ\text{C}$ [T_c : ポリ（3-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂を含む組成物の結晶化温度] であり、
前記気体の風速が 0.01 m/s 以上 0.10 m/s 未満であり、
前記単糸の繊度の平均値が 3.0 dtex 以上 15.0 dtex 以下である、
マルチフィラメントの製造方法。

[0073] 〔項目 2〕

前記中心領域には、吐出孔が存在しない、項目 1 に記載のマルチフィラメントの製造方法。

[0074] [項目3]

前記中心領域の外縁と前記周辺領域の外縁とが、それぞれ円形状、楕円形状、又は、正多角形状となっている、項目1又は2に記載のマルチフィラメントの製造方法。

[0075] [項目4]

前記中心領域の外縁と前記周辺領域の外縁とが、それぞれ円形状となっている、項目3に記載のマルチフィラメントの製造方法。

[0076] [項目5]

前記紡糸ノズルから吐出された直後の組成物の温度が、150～168℃である、項目1～4の何れか1項に記載のマルチフィラメントの製造方法。

[0077] [項目6]

前記ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂が、ポリ(3-ヒドロキシブチレート)系樹脂を含む、項目1～5の何れか1項に記載のマルチフィラメントの製造方法。

[0078] なお、本発明は、上記実施形態に限定されるものではない。また、本発明は、上記した作用効果によって限定されるものでもない。さらに、本発明は、本発明の要旨を逸脱しない範囲で種々の変更が可能である。

実施例

[0079] 次に、実施例および比較例を挙げて本発明についてさらに具体的に説明する。なお、本発明はこれらの実施例に何ら限定されるものではない。

[0080] <実施例1>

(工程(A))

まず、下記の材料を下記の配合割合でドライブレンドし、この混合物を押出機により150℃で溶融混練してペレットたる原料組成物を得た。

ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂(P3HA)として、ポリ(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)(3-ヒドロキシブチレート単位の含有割合:94.0mol%、3-ヒドロキシヘキサノエートの割合:6mol%、重量平均分子量(Mw):582,

936) (P3HB3HH) : 100質量部

滑剤たるエルカ酸アミド (EA) : 0.5質量部

滑剤たるベヘン酸アミド (BA) : 0.5質量部

結晶核剤たるペンタエリスリトール (PETL) (日本合成化学社製、
ノライザーP) : 1.0質量部

[0081] なお、P3HAにおける重量平均分子量は、上述した方法で測定した。

また、P3HAにおける3-ヒドロキシブチレート単位の含有割合及び3-ヒドロキシヘキサノエート (3HH) 単位の含有割合は、以下のようにして求めた。

まず、乾燥した20mgのP3HAに、硫酸とメタノールとの混合液 (硫酸の体積 : メタノールの体積 = 15 : 85) 2mL、及び、クロロホルム2mLを添加した試料を密栓し、密栓した状態で該試料を100℃で140分間加熱することにより、P3HAの分解物であるメチルエステルを含む第1の反応液を得た。

そして、該第1の反応液を冷却し、冷却した第1の反応液に1.5gの炭酸水素ナトリウムを少しずつ加えて中和し、炭酸ガスの発生がとまるまで放置することにより、第2の反応液を得た。

さらに、第2の反応液と、4mLのジイソプロピルエーテルとをよく混合することにより、混合物を得た。

次に、該混合物を遠心分離することにより、上清液を得た。

そして、上清液中の前記分解物のモノマーユニット組成をキャピラリーガスクロマトグラフィーにより下記条件で分析することにより、P3HAにおける3-ヒドロキシブチレート単位の含有割合及び3-ヒドロキシヘキサノエート (3HH) 単位の含有割合を求めた。

ガスクロマトグラフ : 島津製作所製のGC-17A

キャピラリーカラム : GLサイエンス社製のNEUTRA BOND-1 (カラム長 : 25m、カラム内径 : 0.25mm、液膜厚 : 0.4μm)

キャリアガス : He

カラム入口圧：100 kPa

サンプルの量：1 μ L

温度条件については、100～200℃では8℃/分の速度で昇温し、さらに200～290℃では30℃/分の速度で昇温した。

[0082] 組成物（原料組成物）の結晶化温度は、上述した方法で測定した。組成物（原料組成物）の結晶化温度は、50℃であった。

[0083] そして、図1に示すように、押出温度170.0℃で押出機20（単軸押出機、スクリー径：25mm）を用いてペレットを溶融して、溶融物を得た。

そして、該溶融物を図2の紡糸ノズル40のノズル面41（吐出孔42の全数：400個、周辺領域41bの吐出孔42の数：400個、中心領域41aの吐出孔42の数：0個、吐出孔42の形状：円形、吐出孔42の直径：0.5mm）から吐出して、原糸Aを400本得た。

実施例1において「ノズル面41に存在する吐出孔42の個数」における「周辺領域41bに存在する吐出孔42の個数」の割合（「存在比率」）は、100%である。

紡糸ノズル40から吐出された直後の組成物（溶融物）の温度（単に「組成物の温度」ともいう。）は、161℃であった。

なお、紡糸ノズル40から吐出する組成物（溶融物）の流量は、ギアポンプ30で7.0kg/hに調整した。

[0084]（工程（B））

冷却部50で溶融状態の400本の原糸Aに20℃の気体（空気）を0.08m/sの風速でサーキュラー法により吹き付けることにより、400本の原糸Aを冷却した。

なお、組成物の結晶化温度（ T_c ）から気体の温度（ T ）を引いた値（ $T_c - T$ ）を下記表1に示す。

[0085]（工程（C））

400本の原糸Aを引取ロール62で引き取り、マルチフィラメントBを

得た。なお、引取ロール62での引取り速度を高速（650m/min）にして原糸Aを引き取った。

マルチフィラメントBにおける単糸の繊度の平均値を上述した方法で測定した。単糸の繊度の平均値は、5.0dtexであった。

[0086]（実施例2～14、比較例1～7）

マルチフィラメントの製造条件を下記表1のようにしたこと以外は、実施例1と同様にして、マルチフィラメントを作製した。

なお、単糸の繊度の平均値の調整は、紡糸ノズル40から吐出する組成物（溶融物）の流量の調整、吐出孔の総断面積の調整、及び、引取ロール62での引取り速度の調整の何れかによって実施した。

なお、実施例2では、図3の紡糸ノズルを用い、実施例3では、図4の紡糸ノズルを用いた。

[0087] <生産性の評価>

マルチフィラメントを1時間生産し、以下の基準で評価した。

○：トラブルが生じなかった。

×：下記表1の備考に記載のトラブルが1度以上生じた。

結果を下記表1に示す。

[0088]

[表1]

	ノズル面			気体の温度T (°C)	Tc-T (°C)	気体の風速 (m/s)	単糸の織度の平均値 (dtex)	押出温度 (°C)	組成物の温度 (°C)	結果	
	吐出孔の全数 (個)	周辺領域の吐出孔の数(個)	中心領域の吐出孔の数(個)							存在比率 (%)	生産性
実施例 1	400	400	0	100	20	30	0.08	170.0	161	○	
実施例 2	50	50	0	100	20	30	0.08	170.0	160	○	
実施例 3	600	600	0	100	20	30	0.08	170.0	161	○	
実施例 4	400	400	0	100	5	45	0.08	170.0	161	○	
実施例 5	400	400	0	100	30	20	0.08	170.0	161	○	
実施例 6	400	400	0	100	20	30	0.05	170.0	161	○	
実施例 7	400	400	0	100	20	30	0.03	170.0	161	○	
実施例 8	400	400	0	100	20	30	0.01	170.0	161	○	
実施例 9	400	400	0	100	20	30	0.08	170.0	161	○	
実施例 10	400	400	0	100	20	30	0.08	170.0	161	○	
実施例 11	400	400	0	100	20	30	0.08	170.0	161	○	
実施例 12	400	400	0	100	20	30	0.08	160.0	151	○	
実施例 13	400	400	0	100	20	30	0.08	175.0	167	○	
実施例 14	1000	1000	0	100	25	25	0.09	170.0	165	○	
比較例 1	400	400	0	100	2	48	0.08	170.0	161	×	単糸どうしの融着が多く生じた。
比較例 2	400	400	0	100	35	15	0.08	170.0	161	×	紡糸ノズル付近で糸切れが多発した。
比較例 3	400	400	0	100	20	30	0.12	170.0	161	×	単糸どうしの融着が多く生じた。
比較例 4	400	400	0	100	20	30	0.15	170.0	161	×	単糸どうしの融着が多く生じた。
比較例 5	400	400	0	100	20	30	0.08	170.0	161	×	紡糸が出来なかった。
比較例 6	184	138	46	75	20	30	0.08	170.0	161	×	紡糸が出来なかった。
比較例 7	184	138	46	75	20	30	0.08	170.0	161	×	紡糸ノズル付近で糸切れが多発した。

[0089] 表1に示すように、本発明の範囲内である実施例1～14では、工程(B)の気体の温度が(Tc-45)°Cよりも小さい比較例1、工程(B)の気

体の温度が $(T_c - 20)$ °C よりも大きい比較例 2、工程 (B) の気体の風速が 0.12 m/s 、 0.15 m/s である比較例 3、4、マルチフィラメントにおける単糸の繊度の平均値が 2.0 dtex である比較例 5、存在比率が 75% であり、且つ、マルチフィラメントにおける単糸の繊度の平均値が 2.0 dtex である比較例 6、存在比率が 75% である比較例 7 に比べて、生産性が良好であった。

従って、本発明によれば、ポリ(3-ヒドロキシブチレート)系樹脂を含有し、単糸の繊度の平均値が小さいマルチフィラメントの生産性を向上し得る。

符号の説明

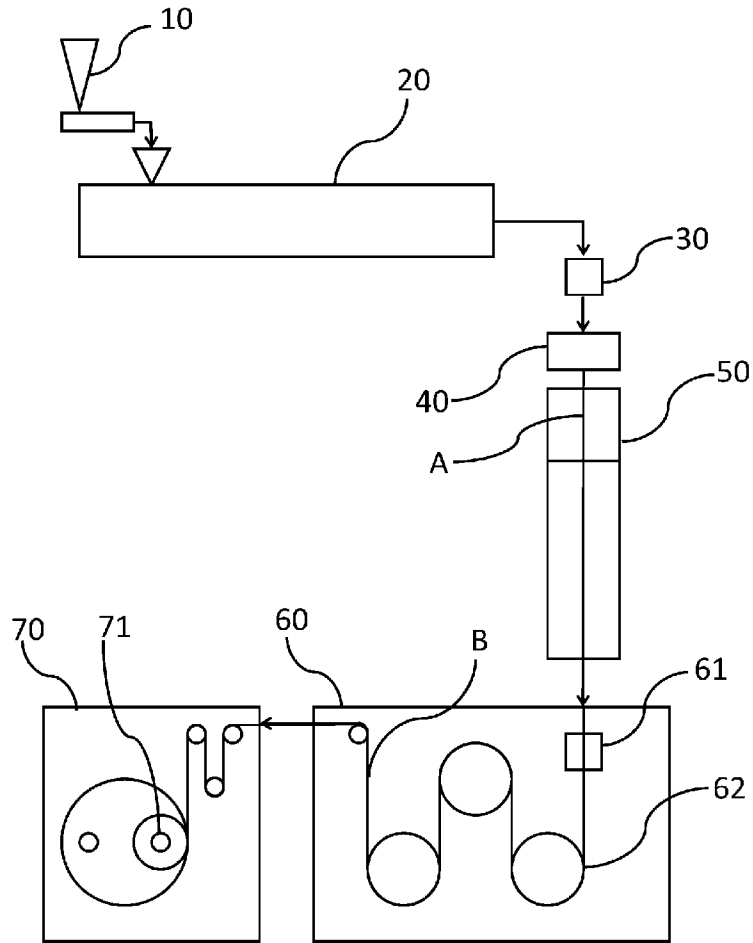
[0090] A : 原糸、 B : マルチフィラメント、
10 : フィーダー、 20 : 押出機、 30 : ギアポンプ、 40 : 紡糸ノズル、
41 : ノズル面、 41a : 中心領域、 41a1 : 中心領域の外縁、 41b :
周辺領域、 41b1 : 周辺領域の外縁、 42 : 吐出孔、 43 : 最外縁領域、
50 : 冷却部、 51 : 冷却ボックス、 60 : 引取機、 61 : オイリングロール、
62 : 引取ロール、 70 : 巻取機、 71 : 巻取ロール

請求の範囲

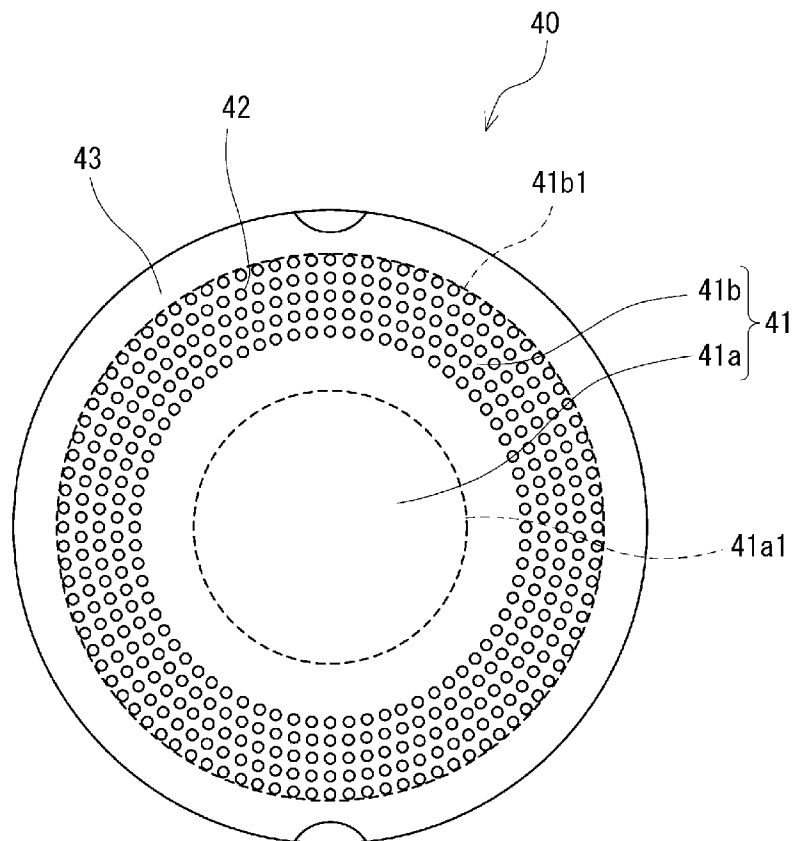
- [請求項1] 溶融紡糸法による、単糸を50本以上有するマルチフィラメントの製造方法であって、
- ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂を含む組成物を、紡糸ノズルから吐出して、溶融状態の原糸を50本以上得る工程(A)と、
- 前記溶融状態の原糸に気体を吹き付けることにより該原糸を冷却する工程(B)とを含み、
- 前記紡糸ノズルは、吐出孔を50個以上有するノズル面を有し、
- 前記ノズル面は、中心領域と、該中心領域を取り囲む周辺領域とに区分けされ、
- 前記中心領域の外縁と前記周辺領域の外縁とが、面積重心を共有する相似形となっており、
- 前記中心領域の外縁と前記周辺領域の外縁との相似比が、1:2であり、
- 前記周辺領域に存在する吐出孔の個数が、前記ノズル面に存在する吐出孔の個数の75%を超え、
- 前記気体の温度が $(T_c - 45) \sim (T_c - 20)^\circ\text{C}$ [T_c : ポリ(3-ヒドロキシアルカノエート)系樹脂を含む組成物の結晶化温度]であり、
- 前記気体の風速が 0.01 m/s 以上 0.10 m/s 未満であり、
- 前記単糸の繊度の平均値が 3.0 dtex 以上 15.0 dtex 以下である、マルチフィラメントの製造方法。
- [請求項2] 前記中心領域には、吐出孔が存在しない、請求項1に記載のマルチフィラメントの製造方法。
- [請求項3] 前記中心領域の外縁と前記周辺領域の外縁とが、それぞれ円形状、楕円形状、又は、正多角形状となっている、請求項1又は2に記載のマルチフィラメントの製造方法。

- [請求項4] 前記中心領域の外縁と前記周辺領域の外縁とが、それぞれ円形状となっている、請求項3に記載のマルチフィラメントの製造方法。
- [請求項5] 前記紡糸ノズルから吐出された直後の組成物の温度が、150～168℃である、請求項1又は2に記載のマルチフィラメントの製造方法。
- [請求項6] 前記ポリ（3-ヒドロキシアルカノエート）系樹脂が、ポリ（3-ヒドロキシブチレート）系樹脂を含む、請求項1又は2に記載のマルチフィラメントの製造方法。

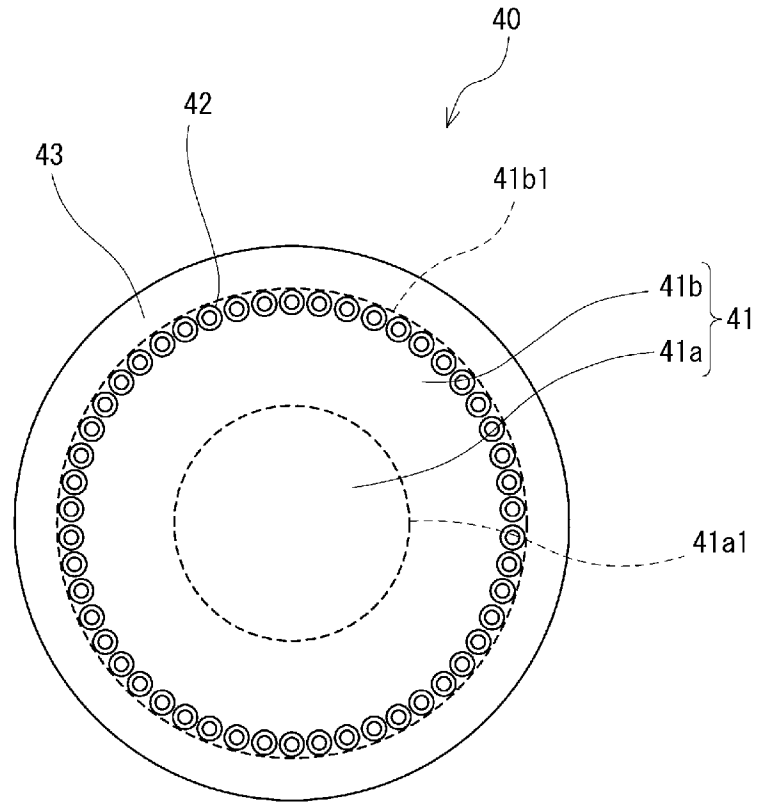
[図1]



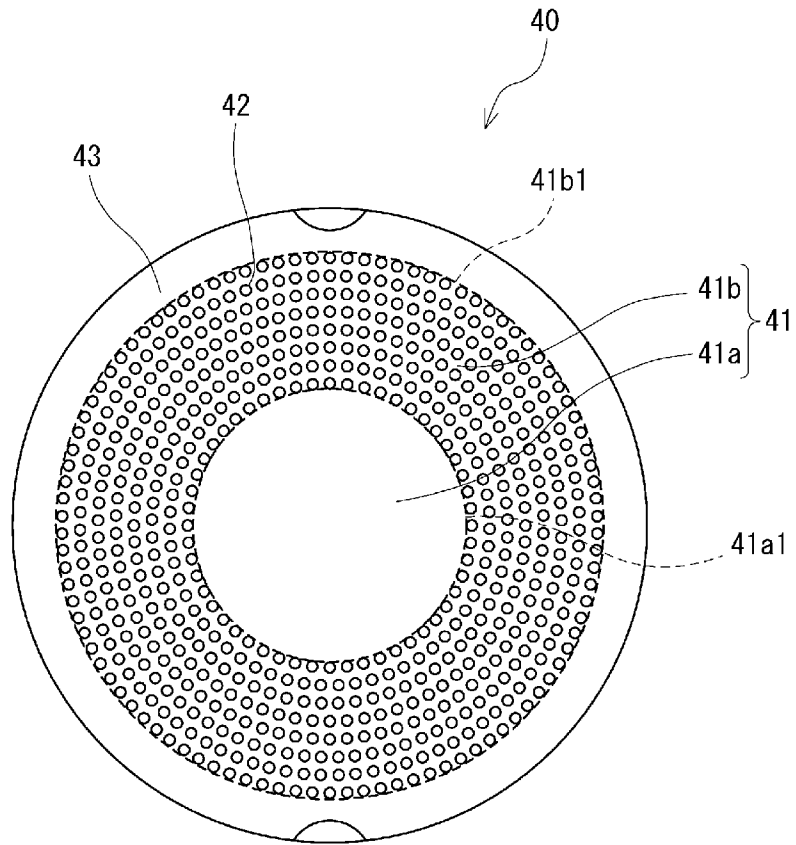
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/002110

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<i>D01F 6/62</i> (2006.01)i; <i>D01D 4/02</i> (2006.01)i; <i>D01D 5/092</i> (2006.01)i FI: D01F6/62 305Z; D01D4/02; D01D5/092 103		
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) D01F6/62; D01F6/84; D01F6/92; D01D1/00-13/02		
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 1971-2024 Registered utility model specifications of Japan 1996-2024 Published registered utility model applications of Japan 1994-2024		
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.
A	WO 2022/202397 A1 (KANEKA CORP.) 29 September 2022 (2022-09-29) example 1, paragraph [0059]	1-6
A	WO 2021/206154 A1 (KANEKA CORP.) 14 October 2021 (2021-10-14) example 3, paragraph [0052]	1-6
A	JP 7-310230 A (UNITIKA LTD.) 28 November 1995 (1995-11-28) claims, drawings	1-6
A	JP 10-226920 A (NIPPON ESTER CO., LTD.) 25 August 1998 (1998-08-25) claims, drawings	1-6
<input 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 27 March 2024		Date of mailing of the international search report 09 April 2024
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No. PCT/JP2024/002110

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO 2022/202397 A1	29 September 2022	EP 4317554 A1 example 1, paragraphs [0132]- [0136] CN 117098881 A	
WO 2021/206154 A1	14 October 2021	CN 115380136 A	
JP 7-310230 A	28 November 1995	(Family: none)	
JP 10-226920 A	25 August 1998	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） D01F 6/62(2006.01)i; D01D 4/02(2006.01)i; D01D 5/092(2006.01)i FI: D01F6/62 305Z; D01D4/02; D01D5/092 103		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） D01F6/62; D01F6/84; D01F6/92; D01D1/00-13/02 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2024年 日本国実用新案登録公報 1996-2024年 日本国登録実用新案公報 1994-2024年		
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	WO 2022/202397 A1 (株式会社カネカ) 29.09.2022 (2022-09-29) 実施例 1, [0059]	1-6
A	WO 2021/206154 A1 (株式会社カネカ) 14.10.2021 (2021-10-14) 実施例 3, [0052]	1-6
A	JP 7-310230 A (ユニチカ株式会社) 28.11.1995 (1995-11-28) 特許請求の範囲, 図面	1-6
A	JP 10-226920 A (日本エステル株式会社) 25.08.1998 (1998-08-25) 特許請求の範囲, 図面	1-6
<input 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。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの “D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献 “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日	27.03.2024	国際調査報告の発送日 09.04.2024
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 齋藤 克也 4S 9344 電話番号 03-3581-1101 内線 3474	

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/JP2024/002110

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO 2022/202397 A1	29.09.2022	EP 4317554 A1 Example 1, [0132]-[0136] CN 117098881 A	
WO 2021/206154 A1	14.10.2021	CN 115380136 A	
JP 7-310230 A	28.11.1995	(ファミリーなし)	
JP 10-226920 A	25.08.1998	(ファミリーなし)	