

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2008年11月13日 (13.11.2008)

PCT

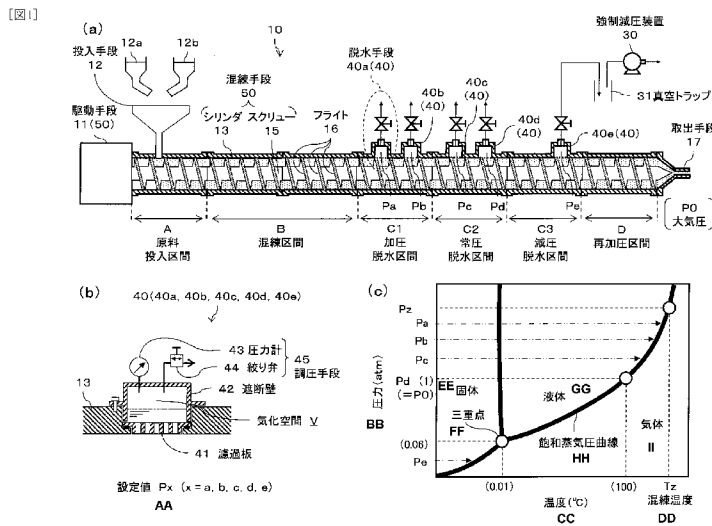
(10) 国際公開番号
WO 2008/136314 A1

- (51) 国際特許分類:
B29B 7/80 (2006.01) *C08L 23/00* (2006.01)
B09B 3/00 (2006.01) *C08L 91/06* (2006.01)
C08J 3/22 (2006.01) *C08L 101/00* (2006.01)
C08L 3/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2008/057775
- (22) 国際出願日: 2008年4月22日 (22.04.2008)
- (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2007-121112 2007年5月1日 (01.05.2007) JP
 特願2007-203021 2007年8月3日 (03.08.2007) JP
 特願2007-263879 2007年10月10日 (10.10.2007) JP
 特願2007-263880 2007年10月10日 (10.10.2007) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): アグリフューチャー・じょうえつ株式会社 (AGRI FUTURE JOETSU CO., LTD.) [JP/JP]; 〒9430132 新潟県上越市大字辰尾新田1番地 Niigata (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 大野 孝 (OHNO, Takashi) [JP/JP]; 〒9430132 新潟県上越市大字辰尾新田1番地 アグリフューチャー・じょうえつ株式会社内 Niigata (JP). 白石 信夫 (SHIRAIISHI, Nobuo) [JP/JP]; 〒6060834 京都府京都市左京区下鴨鴫子田町1-3-3 Kyoto (JP).
- (74) 代理人: 磯野 道造 (ISONO, Michizo); 〒1020093 東京都千代田区平河町2丁目7番4号 砂防会館別館内 磯野国際特許商標事務所 気付 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,

[続葉有]

(54) Title: POLYMER COMPOSITE MATERIAL, APPARATUS FOR PRODUCING THE SAME AND METHOD OF PRODUCING THE SAME

(54) 発明の名称: 高分子複合材料、その製造装置及びその製造方法



- AA SETTING VALUES P_x ($x=a, b, c, d, e$)
 BB PRESSURE (atm)
 CC TEMPERATURE ($^{\circ}\text{C}$)
 DD KNEADING TEMPERATURE
 EE SOLID
 FF TRIPLE POINT
 GG LIQUID
 HH SATURATED VAPOR PRESSURE CURVE
 II GAS
 A STARTING MATERIAL-SUPPLY AREA
 B KNEADING AREA
 C1 PRESSURIZATION/DEHYDRATION AREA
 C2 ORDINARY PRESSURE/DEHYDRATION AREA
 C3 REDUCED PRESSURE/DEHYDRATION AREA
 D RE-PRESSURIZATION
 P0 ATMOSPHERIC PRESSURE
- V VAPORIZATION SPACE
 11(50) DRIVING UNIT
 12 SUPPLYING UNIT
 13 CYLINDER
 15 SCREW
 16 FLIGHT
 17 DISCHARGE UNIT
 30 FORCED PRESSURE-REDUCING UNIT
 31 VACUUM TRAP
 40a(40) DEHYDRATION UNIT
 41 FILTERING PLATE
 42 BLOCKING WALL
 43 PRESSURE METER
 44 THROTTLE VALVE
 45 PRESSURE-CONTROLLING UNIT
 50 KNEADING UNIT

(57) Abstract: It is intended to provide a technique for making a biomass-origin dispersion phase of a polymer composite material, wherein the dispersion phase is formed in a synthetic polymer matrix, highly microscopic and homogeneous. An apparatus (10) for producing a polymer composite material characterized by comprising: a cylinder (13) in which a supply area (A) for supplying the main component of the synthetic polymer as described above and an excessive water-containing component originating in a biomass as described above is provided in the upstream side while a discharge unit (17) is provided in the downstream side; a screw (15) which axially rotates within the cylinder (13), which has been set to a kneading temperature (T_z) at which the synthetic polymer melts, and extrudes the kneaded matter comprising the main component and the excessive water-containing matter as described above toward the discharge unit (17); and a dehydration unit (40) by which the water contained in the kneaded matter is removed under setting pressures (P_a, P_b, P_c) being lower than the saturated vapor pressure (P_z) at the kneading temperature (T_z) employed in the cylinder (13) but higher than atmospheric pressure.

[続葉有]

WO 2008/136314 A1



BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY,

KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

(57) 要約: 合成高分子の母相にバイオマス由来成分の分散相が形成されている高分子複合材料において、前記分散相を高度に微細化、均一化させる技術を提供する。高分子複合材料の製造装置(10)において、前記合成高分子の主剤及び前記バイオマス由来成分の過剰含水物を投入する投入区間(A)が上流側に設けられ取出手段(17)が下流側に設けられているシリンダ(13)と、合成高分子が溶融する混練温度(T_z)に設定されているシリンダ(13)の内部で軸回転し前記主剤及び前記過剰含水物の混練物を取出手段(17)に向かって押し出すスクリュウ(15)と、シリンダ(13)に設けられ混練温度(T_z)における飽和蒸気圧(P_z)よりも低くかつ大気圧よりも高い設定圧力 (P_a, P_b, P_c) で混練物に含まれる水分を脱水する脱水手段(40)とを、備えることを特徴とする。

明 細 書

高分子複合材料、その製造装置及びその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、合成高分子及びバイオマス由来成分が混合してなる高分子複合材料に関連する技術分野に属し、特にそのような高分子複合材料を製造する製造装置及びその製造方法に関するものである。

背景技術

[0002] ここで、バイオマス(生物資源)とは、太陽のエネルギーによって、成長する動物や植物のうち再生可能な有機性資源を指す。

具体的には、リグノセルロース又はセルロースを主成分とする草木質系バイオマス(木材工業およびパルプ工業等の廃棄物である間伐材・建築解体材等、農業廃棄物である稲ワラ・さやガラ・籾ガラ等)、アミロース又はアミロペクチンを主成分とするデンプン質系バイオマス(米、小麦、とうもろこし、馬鈴薯、甘藷、タピオカ等)、甲殻類動物に由来するキチン(又はキトサン)質系バイオマス(蟹ガラ、蝦ガラ等)が挙げられる。

[0003] 現在、これらバイオマスに由来する成分と合成高分子とを複合化させることにより、化石資源から生産される合成高分子の使用量を低減させ地球環境の保全に貢献したり、従来にない新機能を発現したりする高分子複合材料を創出する研究が進められている。そのような高分子複合材料にあつては、合成高分子の母相にバイオマス由来成分をいかにして微細にかつ均一に分散させるかが重要な検討課題となっている。

しかし、バイオマスは、分子間の強固な水素結合に基づく高い結晶性を有するとともに三次元架橋等の高次構造を有している。また機械的に粉碎された場合であってもバイオマスの粉末は凝集しやすい性質を有している。このため、バイオマス由来成分を合成高分子の母相に微細にかつ均一に分散させることは一般に容易でない。

[0004] 前記した課題に対する従来技術として、前記デンプン質系バイオマスにあつては、これに含水処理を行った後に、合成高分子の主剤とともに加熱混練することにより、

デンプン質を糊化(α 化)させ母相に微細に均一に分散させる技術が公知となっている(例えば、特許文献1)。

また、草本質系バイオマスやキチン質系バイオマスにあつては、高圧ホモゲナイザー等を用いて、これらバイオマスを水溶媒中で微細化し均質な懸濁液を作製する。そして、この懸濁液を、合成高分子の主剤とともに加熱混練することにより、バイオマス由来成分を母相に微細に均一に分散させる技術が公知となっている(例えば、特許文献2)。

[0005] 特許文献1:特開2006-21502号公報

特許文献2:特開2006-289164号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0006] しかし、以上述べた従来技術では、混練処理中に微細に均一に分散したバイオマス由来成分が、大気圧開放により急激になされる脱水工程において、部分的に再凝集する現象が避けられない問題があつた。このため、前記した従来技術により製造された高分子複合材料は、母相に対する分散相の微細化・均一化の達成度が不十分であるといえる。

[0007] 本発明は、前記した問題を解決することを課題とし、合成高分子の母相におけるバイオマス由来成分の分散相を高度に微細化、均一化した高分子複合材料を製造する技術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

[0008] 前記課題を解決するために本発明は、合成高分子及びバイオマス由来成分が混合してなる高分子複合材料を製造する製造装置において、前記バイオマス由来成分の過剰含水物が少なくとも含まれる混練物を設定された混練温度で混練する混練手段と、前記混練温度における飽和蒸気圧よりも低くかつ大気圧よりも高い設定圧力で前記主剤及び前記過剰含水物を含む混練物を脱水する脱水手段と、脱水された前記混練物を取り出す取出手段とを、含むことを特徴とする。

発明の効果

[0009] 本発明により、合成高分子の母相におけるバイオマス由来成分の分散相を高度に微細化、均一化した高分子複合材料を製造する技術が提供される。

図面の簡単な説明

[0010] [図1](a)は本発明に係る高分子複合材料の製造装置の第1実施形態を示す回転軸に沿う縦断面図であり、(b)はその脱水手段の部分を拡大して示す部分断面図であり、(c)はこの脱水手段の機能説明をするのに利用する水の状態図である。

[図2](a)は本発明に係る高分子複合材料の製造装置の第2実施形態を示す回転軸に沿う縦断面図であり、(b)は第3実施形態を示す回転軸に沿う縦断面図である。

[図3](a)から(c)は第4実施形態を示す高分子複合材料の製造装置の回転軸に直交する縦断面図である。

符号の説明

- [0011] 10, 10', 10'', 60 製造装置
- 12 ホッパ(投入手段)
 - 13 シリンダ
 - 14 注入口
 - 15, 15', 15'' スクリュー
 - 16 フライト
 - 17 取出手段
 - 20 圧入手段
 - 30 強制減圧装置
 - 40(40a, 40b, 40c, 40d, 40e) 脱水手段
 - 41 濾過板
 - 42 遮断壁
 - 45 調圧手段
 - 50, 62 混練手段
 - 63 ケーシング
 - 65 ロータ
 - 67 取出手段

- 61, 68 開閉手段
- A 原料投入区間
- B 混練区間
- C1 加圧脱水区間(脱水区間)
- C2 常圧脱水区間(脱水区間)
- C3 減圧脱水区間(脱水区間)
- D 再加圧区間
- P0 大気圧
- Pz 混練温度における飽和蒸気圧
- Px(Pa, Pb, Pc, Pd, Pe) 設定圧力
- Tz 混練温度
- V 気化空間
- W 混練空間(密閉空間)

発明を実施するための最良の形態

[0012] 以下本発明の実施の形態について図面を参照しつつ説明する。

(第1実施形態)

図1(a)は本発明に係る高分子複合材料の製造装置10(以下、単に「製造装置」という)の第1実施形態を示す縦断面図である。

この製造装置10は、投入手段12(ホップ)と、混練手段50と、脱水手段40と、強制減圧装置30とを、含んで構成されている。ここで混練手段50は、駆動手段11と、シリンダ13と、スクリー15とを含んだ構成である。

[0013] このように製造装置10が構成されたことにより、投入手段12により高分子複合材料の原材料が投入されると、この原材料は、シリンダ13の内部で軸回転するスクリー15により混練されるとともに、脱水手段40及び強制減圧装置30により脱水処理されて、取出手段17から高分子複合材料の溶融体となって取り出されることになる。

なお、この高分子複合材料の溶融体は、取出手段17に設けられ小さな穴が十数ヶ所空いているダイ(図示略)を通して、束状に放出される。さらに、冷却バスを通過して凝固した後にペレタイザー(図示略)に引込まれ米粒状のペレットにカットされる。

[0014] 駆動手段11は、スクリー15の一端に接続して、このスクリー15を軸回転させるものであって、高分子複合材料の原材料を混練する動力源である。なお図1においてスクリー15は、一本のみ表示されているが、製造装置10は、このような一軸のものに限定されるものではなく、二本以上のスクリー15が並列して構成される多軸のものである場合も含まれる。

このように、多軸で構成される製造装置10にあって駆動手段11は、設置される複数のスクリー15のそれぞれを軸回転させる。なおこの場合、複数のスクリー15のそれぞれの軸回転の方向及び速度については任意設定事項である。

[0015] 投入手段12は、高分子複合材料の原材料である合成高分子の主剤及びバイオマス由来成分の過剰含水物を、シリンダ13の内部に投入するものである。この投入されるものの分量並びに配合率は、合成高分子とバイオマス由来成分の過剰含水物とをそれぞれ供給する供給部12a, 12bによって任意に設定することができる。

さらに、この投入手段12には、バイオマス由来成分がデンプン質系バイオマスに由来するものである場合、このバイオマス由来成分が後記するように糊化するのに必要な水分が注水され過剰含水物になるための注水手段が設けられている場合がある。

[0016] ここで合成高分子として製造装置10に投入されるものとして、加熱により溶融する熱可塑性樹脂や、加熱により硬化する熱硬化性樹脂のいずれも採用することができる。

熱可塑性高分子の主剤として採用することができるものとしては、ペレット状に成形された、低密度ポリエチレン(LDPE)、高密度ポリエチレン(HDPE)、ポリプロピレン(PP)、エチレン-酢酸ビニル共重合体(EVA)、エチレン-アクリル酸エチル共重合体(EEA)等のポリオレフィン系の樹脂が好適である。

またこれらに限定されることなく、その他、ポリカーボネート樹脂(PC)、ポリエチレンテレフタレート樹脂(PET)、アクリル・ブチレン・スチレン(ABS)等、加熱により熱流動する性質を有し一般に押出成形が可能なものであれば、特に制限無く用いることができる。さらに、これら熱可塑性樹脂は、二種以上混合して使用してもよい。

[0017] 一方、熱可塑性高分子の主剤として、ポリ乳酸(PLA)、ポリブチレンサクシネート(PBS)、ポリカプロラクトン(PCL)等の生分解性を具備したものをを用いれば、その全て

が土に還元される性質を有し、環境保全の観点から好適な高分子複合材料が得られる。また、テグラノボン(商標)や、マクロテック・リサーチ社(米国)のECMマスターバッチ(商品名)等の生分解性を付与する添加剤が付与されているポリオレフィン樹脂を用いても同様に環境保全の観点から好適である。

- [0018] 熱硬化性高分子として採用することができるものとしては、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、ポリイミド、ジアリルフタレート、アルキド等の各種公知の熱硬化性樹脂が挙げられる。

これら熱硬化性高分子は、公知の硬化剤を主剤に添加して、所定の形状を保持して、硬化温度に設定して重合反応させることにより成形品にすることができるものである。なお、これら熱硬化性高分子の主剤は、重合反応前の単量体が低分子量化合物であるために、液体、固体、半固体の性状を取り得るが、少なくとも温度を上げれば流動状態を示すものである。

よって、硬化温度よりも低い温度に設定された混練温度で、熱硬化性高分子の主剤とバイオマス由来成分とが混練されることになる。

- [0019] これら熱硬化性高分子のなかでも、アルキド樹脂は、多価アルコールと多塩基酸とが縮合重合してなる合成高分子であって、この多塩基酸は、混練中にバイオマス由来成分の表面のヒドロキシ基(-OH)ともエステル結合する。このために、合成高分子とバイオマス由来成分とは界面の親和性が良好になるので、微細でかつ均一な分散構造が得られる。

このような多価アルコールとして、プロピレングリコール、グリセリン、トリメチロールプロパン、ペンタエリトリール等が挙げられる。

多塩基酸としては無水フタル酸、無水マレイン酸、アジピン酸等が挙げられる。

また硬化剤として、有機過酸化物(ベンゾイルペルオキシド、ジクミルペルオキシド等)が挙げられる。

- [0020] また、前記した多価アルコールに代えてエポキシドを採用してもよい。この場合、エポキシドが混練されるとその3員環が開裂して周囲の水分子が付加して二価の多価アルコールとなり、前記した場合と同様のアルキド樹脂が合成される。また混練時に未反応のエポキシドは、その後、硬化温度に設定して成形品にする際に、3員環が

開環重合してエポキシ樹脂になる。

[0021] 混練工程における多塩基酸を投入するタイミングとしては、多価アルコール(又はエポキシド)の投入よりも先行させて、バイオマス由来成分の表面と化学反応(エステル化)させることを優先させることが望ましい。これにより、バイオマス由来成分の表面が改質されて、合成高分子に対する親和性の向上がさらに期待できるからである。このように、混練工程の前段階でバイオマス由来成分の過剰含水物と多塩基酸の一部とを化学反応させて表面改質してから、多塩基酸の残部と多価アルコール(又はエポキシド)を投入して混練する。

なお、硬化剤を投入するタイミングは、混練工程の前半・後半及び脱水工程の前後いずれの場合もありうるが実験的に最適条件が導かれる。

[0022] ワックスとして採用することができるものとしては、常温で固体であり、加熱すると合成高分子の主剤よりも低温で溶融しかつ低粘度である有機化合物である。このワックス(C)は、天然物から抽出されるものであったり、工業的に合成されるものであったりするが、有機化合物中の鎖状炭化水素の主鎖の炭素数が10から100の範囲に含まれるものであることが望ましい。

[0023] ワックスは、混練工程において合成高分子の主剤よりも先行して溶融し、水と混合液相を形成する。このため、混練物の粘性が低下し、混練手段50の負担が軽減するとともに混練性が向上する。さらに先行して溶融したワックスは、バイオマス由来成分に吸着し、このバイオマス由来成分が、合成高分子の主剤の溶融体中に拡散するのを促進する。

[0024] この炭素数が10よりも小さいと、溶融したワックスは混練温度で気化しやすくなり、脱水工程において水とともに外部に排出されてしまう。

また炭素数が100よりも大きいと、溶融したワックスの粘度が大きくなり、水との混合液相が形成されにくくなり、混練性の向上に貢献できない。

[0025] ワックスのうち天然物から抽出されるものとしては、飽和脂肪酸が挙げられる。飽和脂肪酸とは、鎖状炭化水素の1価のカルボン酸であって、 $\text{CH}_3(\text{CH}_2)_n\text{COOH}$ の示性式で示される化合物であって、本発明に適用されるものはnが9以上であるものが好ましい。

[0026] この飽和脂肪酸は、その末端に位置するカルボキシル基(COOH)が親水基であつて、鎖状炭化水素の部分(CH₃(CH₂)_n)が疎水基(親油基)となっている。

このために溶融した飽和脂肪酸は、その疎水基が中心になり親水基が外側を向いて水と界面を成し、水との混合液相を形成しやすい。また水との混合液相中、飽和脂肪酸は、球状ミセルを形成しているので、脱水工程において水に付随して外部に排出されにくい特徴を有している。

[0027] そして、水との混合液相における飽和脂肪酸の球状ミセルは、混練により微細化して混練物の全体に一様に拡散するととなる。球状ミセルの表面に位置する飽和脂肪酸のカルボキシル基(COOH)は、バイオマス由来成分に接触すると、その表面のヒドロキシル基(OH)と、エステル反応して化学結合する(化学吸着する)。

このような化学反応により、バイオマス由来成分は、その表面が飽和脂肪酸によって化学修飾されて、親水性が解消し親油性が向上することとなる。これにより、バイオマス由来成分が合成高分子の主剤の連続相中に拡散しやすい好都合な性質を備えることになる。

[0028] 一方、ワックスのうち工業的に合成されるものとしては、メタロセン触媒に代表されるシングルサイト触媒により重合されたオレフィン樹脂(特にプロピレン系、エチレン系)が挙げられる。

具体例としては、プロピレン又はエチレンのモノマーの単独重合体、これらモノマーと α -オレフィンとの共重合体が挙げられる。なお、 α -オレフィンとしては、エチレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、4-メチル-1-ペンテン、1-ヘプテン、1-オクテンなどが挙げられ、共重合体はブロック共重合体、ランダム共重合体、ランダムブロック共重合体の何れであってもよい。

なお、ワックスは、二種以上の前記した有機化合物を混合して使用してもよい。

[0029] シングルサイト触媒により重合されたオレフィン樹脂のワックスは、チグラ-ナッタ触媒に代表されるマルチサイト触媒による場合と比較して、側鎖の分岐、分子量、結晶粒径の分布が均一化している。

シングルサイト触媒により重合されたオレフィン樹脂のワックスによれば、天然ワックスよりも分子量が大きいにもかかわらず溶融粘度が低いために、良好な混練性を維

持して脱水工程で水の効率的な排出に貢献する。

[0030] これらワックスの配合量は、前記合成高分子及び前記バイオマス由来成分の合計量100重量部に対し、1から20重量部の範囲に含まれるのが望ましい。

ワックスの配合量が1重量部よりも少ない場合、混練性の向上効果が認められなく、脱水工程における水の効率的な排出効果も認められない。

一方、ワックスの配合量が20重量部よりも多い場合、製造される高分子複合材料の平均分子量が低下することとなり成形品の機械的性質が低下することになる。

[0031] バイオマス由来成分の過剰含水物として採用することができるものとしては、水に所定時間浸漬させた後に水切りした生米、芯や表皮を取り除き大きさを適当に揃えて刻む程度の簡単な処理を行ったトウモロコシ、馬鈴薯、甘藷等のデンプン系の穀物が挙げられる。

これらデンプン系の穀物は、所定量以上の水分の存在下で一般的な混練温度 T_z ($100\sim 200^\circ\text{C}$)に置かれると、水分子が入り込んで結晶構造が崩れる糊化が起こる。このように糊化したデンプン(バイオマス由来成分)は、分子鎖相互間の水素結合の束縛から解放されているので、熔融している熱可塑性高分子中に微細に均一に分散されやすい性質を備えることとなる。

また、前記したように投入手段12に注水手段が設けられていれば、これらのデンプン系の穀物を製造装置10に投入すると同時に、デンプンを糊化させるのに必要な水分を補給する注水を適宜行って、過剰含水物を調整する場合もある。

[0032] 次に、バイオマス由来成分の過剰含水物として採用することができるものとして、リグノセルロース又はセルロースを主成分とする草木質系バイオマスや、蟹ガラ及び蝦ガラ等のキチン質系バイオマス等を水中で微細化させてなる懸濁液が挙げられる。このような懸濁液は、前記した特許文献2に挙げられるような高圧ホモゲナイザーを用いてバイオマスを水中で物理的に粉碎させる場合の他、化学的な処理を行うことにより形成させる方法もとり得る。なおここで過剰含水物とは、前記した通りバイオマスに水分が人為的に加えられて構成されるもののほか、元来水分を固有に含むバイオマスそのものも指し、混練工程で最終的に脱水される水分が含有されるものであれば全て対象になる。

[0033] 例えば、バイオマスとして木材を採用する場合は、この木材を機械的に粉砕する前処理を施して、最大径が数mm程度のサイズの粒状又はチップ状にする場合がある。もちろん、木材をそれ以下のサイズの微粒子の集合体にしても適宜採用される。なお、そのような微粒子の集合体として、バイオマスから化学的工程を経て抽出される繊維質体も含まれることとする。

これら、木材の微粉末体は、人為的に水分を加えなくても吸湿作用により、十数wt%から数十wt%の水分を含有する過剰含水物であるといえる。このような木材の微粉末体(または朶ガラ等)は、乾燥処理等の特別な工程を経ることなくそのまま製造装置10に投入することができる。

このように、バイオマスが、数mm程度の最大径のサイズを有していることの効果は、その含水量が多い場合であっても、投入手段12からバイオマス原料を製造装置10に投入するに際し、目詰まりが回避されることが挙げられる。

[0034] 一方、バイオマスのサイズがそれ以下の微粒子の集合体であって、吸湿による含水量が多くて投入手段12が目詰まりする場合は、逆に、その集合体に水を人為的に含浸させて含水量をさらに増加させることによりこの目詰まりを回避することができる。

このように、水分が元来含有されているバイオマスの過剰含水物に水をさらに含浸させることにより、前記した目詰まりを回避させる効果以外に、飛散しやすい微粒子の集合体の取り扱いが簡便化し生産効率が向上する効果が得られる。

さらに、微粒子の集合体は、内包する空気が水に置換された後に、合成高分子と混練されることになる。これにより、製造される高分子複合材料は、残留する気泡が減少し欠陥が少なくなる効果が得られる。

[0035] なお、投入手段12に対し、合成高分子とバイオマス由来成分との相溶性を向上させる相溶化剤をさらに送入させる場合もある。この相溶化剤は、例えば、飽和カルボン酸、不飽和カルボン酸またはその誘導体が用いられる。また、合成高分子を不飽和カルボン酸またはその誘導体で変性させたものを使用することもできる。

このほか、無機・有機物質を問わず、シリカや繊維状の物質等を添加し、これら添加剤成分を高分子複合材料中に微分散させることも可能である。

[0036] シリンダ13は、投入手段12を備える原料投入区間Aを最上流とし取出手段17を備

える部分を最下流として、この最上流と最下流との間が、少なくとも混練区間B、脱水区間C(C1, C2, C3)、再加圧区間Dに分類されるよう構成されている。また、シリンダ13の周囲には、その内部を混練温度 T_z (図1(c)参照)に設定するためのヒータ(図示せず)が設けられている。

[0037] 混練区間Bは、投入手段12から投入された、合成高分子の主剤、バイオマス由来成分の過剰含水物、及び相溶化剤を、所定の圧力と混練温度 T_z とで混練する区間である。これによりバイオマス由来成分は、混練物中で微細化し、適宜相溶化剤と化学反応することによって合成高分子との親和性が付与され、混練物中に均一に分散することになる。

[0038] 脱水区間Cは、さらに加圧脱水区間C1、常圧脱水区間C2、減圧脱水区間C3に分類することができ、これらにはそれぞれ少なくとも1つ以上の脱水手段40(図1(b)参照)が設けられている。

ここで、加圧脱水区間C1は、混練物に含まれる水分を、図1(c)に示されるように、その混練温度 T_z における飽和蒸気圧 P_z よりも低くかつ大気圧 P_0 よりも高い設定圧力 P_a , P_b で脱水する部分である。

このような設定圧力 P_a , P_b で脱水処理されることにより、混練物は、含水量を急激ではなく徐々に低減させながら、さらに混練されることになる。これにより、混練物中で微細化して分散したバイオマス由来成分は、再凝集することが抑制されつつさらに、微細化、分散化が進行することとなる。

[0039] 常圧脱水区間C2は、加圧脱水区間C1を通過した混練物に含まれる水分を、図1(c)に示されるように、大気圧 P_0 に近い設定圧力 P_c , P_d で脱水する部分である。このような設定圧力 P_c , P_d で脱水処理されることにより、含水量が低減した混練物は、さらに含水量を徐々に低減しつつさらに混練されることになる。これにより、混練物中で微細化して分散したバイオマス由来成分は、再凝集することが抑制されつつさらに、微細化、分散化が進行することとなる。

[0040] 減圧脱水区間C3は、常圧脱水区間C2を通過した混練物に含まれる水分を、図1(c)に示されるように、強制減圧装置30によって大気圧 P_0 よりも低い設定圧力 P_e で脱水する部分である。このような設定圧力 P_e で脱水処理されることにより、混練物に含

まれる水分はほとんど除去されることになる。

なお減圧脱水区間C3が接続する真空トラップ31は、気化した蒸気を冷却して液体に戻し、強制減圧装置30に高温の飽和水蒸気が強制減圧装置30に入るのを防止してその劣化を抑制するものである。

このように、混練物に付与される圧力を、脱水区間Cにおいて、混練温度 T_z における飽和蒸気圧 P_z から段階的に引き下げて脱水することにより、バイオマス由来成分の再凝集を抑制しつつ、その微細化、分散化を促進させることができる。

[0041] 再加圧区間Dは、脱水処理の終了した混練物を継続して混練するとともに、再加圧して取出手段17から取り出されるに必要な圧力を付与する部位である。これにより、バイオマス由来成分が微細に分散している高分子複合材料の溶融体が取出手段17から取り出されることになる。

[0042] スクリュー15は、その軸周りに螺旋状のフライト16が形成されているものであって、軸回転することにより、フライト16が圧力を付与して混練物を、シリンダ13の上流から下流に向けて押し出すものである。

[0043] 脱水手段40は、図1(b)の部分断面図で示されるように、濾過板41と、遮断壁42と、調圧手段45とを、含んで構成されるものである。

このように構成される脱水手段40は、調圧手段45により混練温度 T_z における飽和蒸気圧 P_z よりも低くかつ大気圧 P_0 よりも高い任意の設定圧力 P_x ($x=a, b, c, d, e$) を、シリンダ13内の混練物に付与するものである。これにより脱水手段40は、混練物に含まれる水分を、急激ではなく徐々に脱水していくことが可能になる。

[0044] 濾過板41は、シリンダ13の壁面に設けられた開口を閉じるように配置され、シリンダ13の内部及びその外部を隔てるとともに混練物のうち含まれる水分を選択的に濾過するものである。このような濾過板41の構成としては、板面に多数の孔を設けられ、その板面がシリンダ13の内壁面に沿って固定されるものが挙げられる。

[0045] 遮断壁42は、濾過板41により濾過された水分を気化させる気化空間Vを形成するとともにこの気化空間Vを大気から遮断するものである。このような遮断壁42の構成としては、有底の容体はその開口とシリンダ13に設けた開口とを略一致するように固定され、さらに濾過板41を当接してこれが固定されるようにするものが挙げられる。

[0046] 調圧手段45は、気化空間Vの気圧を計測する圧力計43と、気化空間Vから遮断壁42を通過して大気側に放出される気体(水蒸気)に流動抵抗を可変して付与する絞り弁44とから構成され、気化空間Vの気圧を所定の設定圧力 P_x ($x=a, b, c, d, e$)に設定するものである。

この絞り弁44の絞り量を適宜調節することにより、気化空間Vの気圧を、混練温度 T_z における飽和蒸気圧 P_z から大気圧 P_0 までの間の任意の値に設定することができる。つまり、絞り弁44を完全に閉塞すれば気化空間Vの気圧は、この飽和蒸気圧 P_z に設定され、絞り弁44を完全に開放すればから大気圧 P_0 に設定されることになる。さらに矯正減圧装置30に接続して気化空間Vの気圧を大気圧 P_0 以下に設定することができる。

[0047] なお、この調圧手段45は、シリンダ13に設けられている複数の脱水手段40においてその設定圧力 P_x が取出手段17に近くなる程小さく設定されていること($P_a > P_b > P_c$)が、バイオマス由来成分の再凝集が抑制する上で望ましいことはすでに述べたとおりである。

また設定圧力 P_x は、投入された液状試薬が気化して排出されないように、水分が優先的に排出されるように適宜設定される。

そして、シリンダ13に複数設けられている脱水手段40のうち最下流に位置するものを大気圧 P_0 よりも低圧な設定圧力 P_e ($P_0 > P_e$)にすることで、取出手段17から押し出される混練物の脱水をより完全にすることができる。

[0048] (製造装置の動作説明)

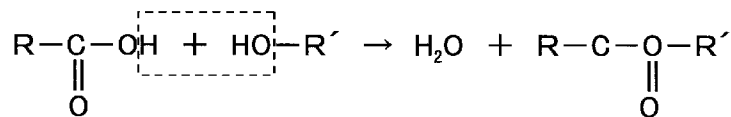
次に図1(a)並びに図1(b)及び水の状態図である図1(c)を参照して製造装置10の動作並びに脱水手段40の機能説明を行う。

製造装置10の内部に、合成高分子の主剤、バイオマス由来成分の過剰含水物及びその他必要な成分(ワックス、相溶化剤等)が、投入手段12を通じて投入され、設定された混練温度で混練手段50により混練される。すると、活性化した水がバイオマスの分子鎖間に侵入してその分子間結合を緩くする。さらに、混練で付与される機械エネルギーにより、バイオマスが開裂して微細化が進行する。

[0049] さらに、熔融したワックスは、水と低粘度の混合液相を形成し混練物全体の粘性を

低下させ混練性を向上させるとともにバイオマス由来成分の表面に吸着する。またカルボキシル基を有するその他の化合物(相溶化剤、脂肪酸、多塩基酸等)は、下記式(3)に示す脱水反応(エステル反応)によって、バイオマス由来成分の表面(R')のヒドロシル基(OH)をエステル結合を有する置換基に置換する。これにより、バイオマス由来成分の親水性が低下して水分との結びつきが弱まり、次の脱水工程において効率の良い脱水が実現される。

[0050] [化1]



[0051] シリンダ13に設けられたもののうち最上流に位置する脱水手段40aに到達した混練物は、スクリー15から付与される圧力により、濾過板41に押し付けられて、含まれる水分が選択的にこの濾過板41を通過して気化空間Vに溜まる。この気化空間Vに溜まった水分は混練温度Tzであるところ、その飽和蒸気圧Pzより低い圧力Paに設定されている気化空間Vにおいて、この溜まった水分は気化することになる。この気化した水分(水蒸気)は調圧手段45の絞り弁44を通過して大気に放出されることになる。

この脱水手段40aでは、設定圧力Paと大気圧P0との差圧が小さいために、混練物の脱水が急激にされることはなく、含水量が低減した状態となって混練されながら下流の脱水手段40bに押し出される。

[0052] 次の脱水手段40bにおいても、同様に、飽和蒸気圧Pzより低い圧力Pbに設定されている気化空間Vにおいて溜まった水分は気化して大気に放出されることになる。

以下、このように、下流側に設けられている脱水手段40(40c, 40d, 40e)において同様の動作が繰り返されて、混練物は段階的に徐々に脱水を実行しつつ混練されるためにバイオマス由来成分の再凝集が抑制されることになる。

[0053] そして、脱水が完了した混練物は、バイオマス由来成分が分散した高分子複合材料の熔融体として、取出手段17から取り出されるとともに、ペレタイザー(図示略)等により米粒状のペレット等(高分子複合材料組成物)に成形される。

このペレットは、再加熱して溶融させてから、金型に注入してバルク状の成形品としたり、延伸加工(例えばインフレーション法、カレンダー加工法、T-ダイ法、吹き込み法等)してフィルム状の成形品としたり、発泡させて発泡成形品としたりして、一般的な高分子加工成形品を製造するための原料として適用することができる。

なおこのように、ペレットの成形を経由せずに、取出手段17から押し出される高分子複合材料の溶融体からそのような成形品を直接製造してもよい。

[0054] 以上の実施形態は本発明を説明するための一例であり、本発明は前記した実施形態に限定されるものでなく、発明の要旨の範囲内で種々の変形が可能である。例えば、製造装置10は、加圧脱水区間C1が少なくとも設けられていれば、特に常圧脱水区間C2及び減圧脱水区間C3を設ける必要が無い場合がある。これは、混練温度 T_z においては、大気圧 P_0 よりも高い圧力で十分に脱水する(水分を気化させる)ことが可能であることが図1(c)の水の状態図から十分に裏付けられるからである。

[0055] また、図示されているシリンダ13の区分(A, B, C1, C2, C3, D)は例示であって、これらの区分の間に他の区分を設けること(例えば、常圧脱水区間C2と減圧脱水区間C3との間に混練区間Bを設けること、原料投入区間Aを複数設けること等)は適宜可能である。

そのような、他の具体的な適用例について例示する。投入手段12からは、バイオマス(木材の粉碎物又は靱ガラ等の未処理物等)と、相溶化剤とを、投入して第1の原料投入区間Aで両者を混練する。この原料投入区間Aで、バイオマスは、さらに粉碎されて微粒子化するとともにその表面に相溶化剤を吸着させて、後に投入される合成高分子に対する親和性を向上させる。

[0056] 次に、第2の原料投入区間(図示せず)において、合成高分子の主剤及びその他必要な試薬を投入し、バイオマスと共に混練する。これにより、バイオマス由来成分が合成高分子の連続相に微細にかつ均一に分散していくこととなる。

なお製造装置10の構成として、脱水区間C1, C2, C3は、第1の原料投入区間Aと第2の原料投入区間(図示せず)との中間工程に位置する場合、第2の原料投入区間(図示せず)の後工程に位置する場合の、いずれの場合も取り得る。さらに、混練区間Bが、任意区間の中間に追加される場合も取り得る。

[0057] (第2実施形態)

次に図2(a)に示す縦断面図を参照して、本発明に係る高分子複合材料の製造装置の第2実施形態を説明する。なお、図2(a)において図1と同一又は相当する部分は、同一符号で示し、すでにした記載を援用して、詳細な説明を省略する。

[0058] 第2実施形態の製造装置10'は、高分子複合材料の原料として用いられるバイオマス由来成分の過剰含水物として、懸濁液のような含水量が多く流動性の高いものが採用される場合に適切なものである。

そのような製造装置10'において特徴的な構成は、このバイオマス由来成分の過剰含水物をシリンダ13の内部に圧入する圧入手段20と、軸径が変化しているスクリー15'とを採用する点にある。そして、高分子複合材料の原料が投入される区間は、合成高分子の主剤が投入される主剤投入区間A1と、その下流に設けられバイオマス由来成分の過剰含水物の懸濁液が投入される懸濁液投入区間A2とに分割して構成される。

[0059] 圧入手段20は、シリンダ13の懸濁液投入区間A2に設けられている注入口14を介して接続されるものであって、バイオマス由来成分の過剰含水物が充填されている液溜21と、この液溜21からバイオマス由来成分の過剰含水物をシリンダ13に注入する駆動力を与えるモータ22と、この注入されるバイオマス由来成分の過剰含水物の逆流を防止する逆止弁24と、シリンダ13に注入されるバイオマス由来成分の過剰含水物の注入量を調節する絞り弁25とを含んで構成されている。

なお、この注入口14の近傍のシリンダ13の内部は、合成高分子の混練物が加圧された状態にあるので、圧入手段20は、それよりも大きな圧力でバイオマス由来成分の過剰含水物を圧入させる必要がある。また、圧入された過剰含水物が混練物の温度を下げないように、圧入手段20には、過剰含水物を加熱する加熱手段を適宜設けてもよい。

[0060] 仮に、このような流動性の高いバイオマス由来成分の過剰含水物を、第1実施形態の製造装置10のように合成高分子と混合してシリンダ13に投入するとすると、投入手段12の内部で両者が分離して、バイオマス由来成分の配合比率が変動して混練物に配合比率のむらが生じることが懸念される。しかし、第2実施形態の製造装置10'

のように、流動性の高いバイオマス由来成分の過剰含水物を下流側に設けた注入口14から圧入することにより、常に一定比率でむらなくバイオマス由来成分を混練物に投入することが可能になる。

[0061] そして圧入手段20から圧入されるものは、前記したバイオマス由来成分の過剰含水物に限定されるものではなく、例えば前記したような、多塩基酸、多価アルコール、有機過酸化物のような混練工程において配合される種々の液状試薬が圧入される場合もある。

また圧入手段20は、図2に示されるように単数配置に限定されるものでなく目的に応じて複数配置される場合があり、また配置される位置も脱水手段40の上流に配置されることに限定されるものでなく、その下流に配置される場合もある。前記したような液状試薬は、脱水が充分に行われた後に、混練物に圧入されることが望ましい場合があるからである。

[0062] 次に、スクリー15'は、加圧脱水区間C1又は常圧脱水区間C2に設けられている脱水手段40(40a, 40b, 40c, 40d)の設置部位において、その軸径が上流側よりも太径に形成されている。このようにスクリー15'が構成されることにより、混練物は上流側よりもさらに加圧されることとなり、含有する水分が除去されて混練物の容積が減少してもこの混練物に付与される圧力は少なくとも維持されることになる。

[0063] さらにスクリー15'は、減圧脱水区間C3に設けられている脱水手段40(40e)の設置部位において、その軸径が上流側よりも細径に形成されている。このようにスクリー15'が構成されることにより、混練物はこの区間においてスクリー15'から混練物に付与されている圧力は解除(減圧)されることになり、さらに混練物は大気圧P0より低圧にさらされて脱水が促進されることになる。

[0064] さらにスクリー15'は、脱水区間C1, C2, C3を通過した再加圧区間Dにおいて、その軸径が上流側よりも太径に形成されている。このようにスクリー15'が構成されることにより、脱水された混練物はこの区間において再加圧されて取出手段17から取り出されることになる。

[0065] また、前記した第2実施形態の説明においては、投入手段12からシリンダ13の内部には合成高分子の主剤が投入され、圧入手段20からシリンダ13の内部にバイオ

マス由来成分を含む懸濁液が投入される例を示した。

第2実施形態における他の適用例として、投入手段12からは合成高分子の主剤及びデンプン質系バイオマス(生米等)がシリンダ13の内部に投入されることとして、圧入手段20を注水手段としてシリンダ13の内部に水を注水する場合もある。

この場合、圧入手段20は、流量並びに温度の調節機能を有する一般的な給湯手段を用いることができる。そして、デンプン質系バイオマス(生米等)は、合成高分子の主剤とともに混練されつつ、注水された水を吸水して過剰含水物になってから糊化する。

[0066] (第3実施形態)

次に図2(b)に示す縦断面図を参照して、本発明に係る高分子複合材料の製造装置の第3実施形態を説明する。なお、図2(b)において図1及び図2(a)と同一又は相当する部分は、同一符号で示し、すでにした記載を援用して、詳細な説明を省略する。

[0067] 第3実施形態の製造装置10”は、第2実施形態の場合と同様に、高分子複合材料の原料として用いられるバイオマス由来成分の過剰含水物として、懸濁液のように含水量が多く流動性の高いものを採用する場合に適切なものである。

そして製造装置10”において特徴的な構成は、フライト16のピッチが変化しているスクリー15”を採用する点にある。

このようにスクリー15の下流に向うに従いフライト16のピッチが狭く変化すると混練物に付与される圧力は増大し、逆にピッチが広く変化すると混練物に付与される圧力は減少することになる。

[0068] そこでスクリー15”は、加圧脱水区間C1又は常圧脱水区間C2に設けられている脱水手段40(40a, 40b, 40c, 40d)の設置部位において、フライト16のピッチが上流側よりも狭く形成することにする。そしてスクリー15”は、減圧脱水区間C3に設けられている脱水手段40(40e)の設置部位において、フライト16のピッチが上流側よりも広く形成されている。

このようにスクリー15”が構成されることにより、混練物は、第2実施形態の場合と同じ要領で、脱水手段40が設けられている位置で加圧又は減圧されることになり、そ

の脱水が段階的に促進されることになる。

[0069] (第4実施形態)

次に図3に示す断面図を参照して、本発明に係る高分子複合材料の製造装置の第4実施形態を説明する。前記した図1及び図2の製造装置10は、原料の投入工程、混練工程、混練物の取出工程がそれぞれ寸断されることなく同時に進行し連続的に高分子複合材料を製造する連続式のものであった。これに対し、第4実施形態に係る製造装置60は、原料の投入工程、混練工程、混練物の取出工程がそれぞれ順繰りに繰り返され断続的に高分子複合材料を製造するバッチ式のものである。

[0070] この製造装置60は、投入手段12(ホップ)と、混練手段62と、脱水手段40とを、含んで構成されている。ここで混練手段62は、駆動手段(図示せず)と、ケーシング63と、ロータ65とを含んだ構成である。

また図3(a)～(c)は、ロータ65の回転軸に直交する断面であって、その長手方向に沿って異なる(それぞれ投入手段12、脱水手段40、取出手段67を含む)製造装置60の断面図を示している。

なお、図3において図1と同一又は相当する部分は、同一符号で示し、すでにした記載を援用して、詳細な説明を省略する。

[0071] 混練手段62は、ケーシング63と、ロータ65とを構成に含み、投入された合成高分子の主剤、バイオマス由来成分の過剰含水物及びその他のものを設定した混練温度で攪拌して混練し、微細にかつ均一な高分子複合材料にするものである。

ケーシング63は、合成高分子の主剤及びバイオマス由来成分の過剰含水物を投入する投入手段12並びに混練物を外部に取り出す取出手段67が設けられている。

この投入手段12は、第1開閉手段61を介してケーシング63内部の混練空間Wと連通しており、この第1開閉手段61を「開状態」にすると投入手段12から混練空間Wに合成高分子の主剤やバイオマス由来成分の過剰含水物を投入することができるようになっている。一方、第1開閉手段61を「閉状態」にすると混練空間Wと投入手段12との間を行き交う気体の流れも遮断される。

[0072] 取出手段67は、第2開閉手段68を介してケーシング63の混練空間Wと連通しており、この第2開閉手段68を「開状態」にすると混練空間Wにある混練物を取り出せる

ことができるようになっている。一方、第2開閉手段68を「閉状態」にすると混練空間Wと取出手段67との間を行き交う気体の流れも遮断される。

このように、第1開閉手段61及び第2開閉手段68を「閉状態」にすると混練空間Wは密閉空間になり、混練空間Wは、設定された混練温度 T_z における飽和蒸気圧 P_z ($> P_0$: 大気圧)に保持されることになる(図1(c)参照)。

[0073] ロータ65は、密閉空間にされ混練温度に設定されたケーシング63の混練空間Wで回転し混練物を混練するものである。このロータ65は、図3中、互いに回転方向が逆方向である二つの回転体が、投入手段12からの投入物を巻き込むようにかつ取出手段67へ混練物を押し出すように回転するものが例示されているが、このような実施形態に限定されるものでなく公知のものを適用することができる。

[0074] 脱水手段40は、図3(b)に示されるように、ケーシング63に穿設された混練空間Wの開口に設けられ、密閉空間の圧力を調節し、この調節された圧力により混練物の脱水を実行するものである。

濾過板41は、ケーシング63の混練空間W及び外部を隔てるとともに混練物のうち含まれる水分を選択的に濾過するものである。

遮断壁42は、濾過板41を介して混練空間Wに連通する気化空間Vが形成されるとともに調圧手段45が設けられている。

調圧手段45は、密閉空間にされた混練空間Wの気圧を調節して設定圧力に設定するものであって、圧力計43及び絞り弁44を備える。

[0075] なお図3(b)の脱水手段40は、図1(b)と同じものが示されているが、本実施形態の製造装置60においては、混練空間Wの上部も連通する気化空間Vと同じ役割を果たしている。このために、濾過板41及び遮断壁42を設けずに、ケーシング63に直接調圧手段45を設ける構成も取り得る。

また、図3で図示されていないが、製造装置60において、圧入手段20(図2参照)が設けられる構成も取り得る。

[0076] (製造装置の動作説明)

次に図3を参照して製造装置60の動作説明を行う。

第1開閉手段61を「開状態」とし第2開閉手段68を「閉状態」とし、製造装置60の内

部に、合成高分子の主剤、バイオマス由来成分の過剰含水物及びその他必要な成分(ワックス、相溶化剤等)を、投入手段12を通じて投入する。そして、第1開閉手段61を「閉状態」にして投入物を混練温度に設定し混練手段62により混練する。

[0077] そして、適時、調圧手段45を動作させて混練空間Wにある水分を水蒸気にして外部に放出させたり、図示しない圧入手段20(図2参照)から必要な液状試薬を投入したりする。また必要に応じて強制減圧装置30(図1(a)参照)により、混練空間Wを大気圧よりも減圧し、脱水を完全にする。

次に第2開閉手段68を「開状態」とし混練空間W内の混練物を取出手段67から取り出す。以上の工程を繰り返すことにより、高分子複合材料を量産する。

[0078] 以上述べた高分子複合材料の製造装置10, 10', 10'', 60で混練される合成高分子の主剤としては、熱可塑性高分子及び熱硬化性高分子のいずれも適用することができるものである。また、これら合成高分子の主剤に適宜添加される試薬(熱硬化性高分子の硬化剤を含む)については、その種類、性状、添加方法について公知のものを採用することができる。さらにそのような試薬を主剤に混合する手段は、例示した実施形態に限定されるものでなく、事例に応じて最適な手段が採用される。

[0079] また合成高分子の主剤、バイオマス由来成分の過剰含水物及びその他必要な成分(ワックス、相溶化剤等)が、投入手段12から投入される順番並びに脱水を実施するタイミング及び回数についても任意である。

つまり、前記した成分を全て一機に投入して混練・脱水して取り出す場合の他、例えば、バイオマス由来成分の過剰含水物及び相溶化剤を、先行して投入し混練・脱水した後に、合成高分子の主剤を投入して混練して混練物を取り出す場合も取り得る。

[0080] <高分子複合材料のバイオマス濃厚体について>

バイオマス由来成分が高比率に配合されている高分子複合材料のバイオマス濃厚体が予め用意されていれば、これを合成高分子と共に混練し、バイオマス由来成分の濃度を任意に希釈して樹脂成形品を製造することができる。

またこのような製造方法によれば、水分を介在させずにバイオマス由来成分が均一分散した複合材料を量産することができる。さらに、前記したような脱水手段4

0を備えた特殊な製造装置10を必要とせずに、一般的な成形装置でバイオマス複合材料を簡便に量産することができる。

また、バイオマス由来成分は単体で放置すると、表面酸化により、合成高分子との親和性が低下するが、この濃厚物に成形しておけば、バイオマス由来成分の粒子は、合成高分子に被覆されているので、酸化等の材質劣化が進行しにくい。

[0081] 以下、そのように希釈して使用するのに最適な高分子複合材料のバイオマス濃厚体(以下、単に「濃厚体」という)について説明を行う。なお、このバイオマス濃厚体に含まれる合成高分子を第1合成高分子とし、後で希釈するのに用いる合成高分子を第2合成高分子と定義する。

[0082] 第1合成高分子として採用することができる合成樹脂としては、特に限定はないが、プロピレン系樹脂及びエチレン系樹脂のオレフィン樹脂が好適に用いられる。

これらプロピレン系樹脂及びエチレン系樹脂の重合様式は、特に限定されるものでなく、重合度も、モノマーの結合数が10から100未満のオリゴマー(ワックス)、100を超えるポリマーの両方を含むこととする。

そして、第1合成高分子は、バイオマス由来成分が均一かつ微細な分散相を形成する複合材料を製造するために、分子設計の自由度が高いシングルサイト触媒による重合様式を採用し、後記する融解温度特性を有する重合度で合成されることが望ましい。

[0083] この濃厚体を構成する第1合成高分子が具備すべき特性の一つとして、濃厚体を製造する混練温度において、良好な流動特性を備えていること挙げられる。

第1合成高分子に採用され得る前記した熱可塑性樹脂のうち結晶性高分子であるものについては、示差走査熱量計(DSC; Differential Scanning Calorimetry)により測定される融解温度を、流動特性を評価する指標にすることができる。

[0084] つまり、結晶性高分子の温度を連続的に変化させるとともに、結晶が融解して固体から液体に変化する際の転移熱をDSCにより検出することにより、任意温度における第1合成高分子の固体-液体比率を知ることができる。

そして、任意温度において、液体比率が高い程、全部液体の場合は融解ピークが低温にあるものほど、低粘性で流動性に優れると一般にいえる。

なお、熱可塑性樹脂のうち非晶性高分子については、結晶性高分子のような融解現象は観測されないので、DSCにより測定されるガラス転移温度が流動特性を評価する指標として用い得る。

[0085] 結晶性高分子であるプロピレン系樹脂を主成分にする第1合成高分子においては、DSCで測定される融解温度が50°Cから150°Cの範囲に含まれることが望ましい。

結晶性高分子であるエチレン系樹脂を主成分にする第1合成高分子においては、DSCで測定される融解温度が50°Cから120°Cの範囲に含まれることが望ましい。

[0086] ここで、融解温度とは、JISK7121で定められる融解開始温度 T_{im} から融解終了温度 T_{em} までの温度範囲を指す。

この第1合成高分子の融解開始温度 T_{im} が規定した前記温度範囲の下限(50°C)未満であるとする、第1合成高分子は一般的使用温度(常温)において部分的に融解することになり、最終製品であるバイオマス複合材料の表面がべたつき感を有する場合がある。

また第1合成高分子の融解終了温度 T_{em} が規定した前記温度範囲の上限よりも高温であるとする、一般的な同系統の合成樹脂の混練温度において、未融解な部分が残存する場合があり、最終製品であるバイオマス複合材料が内部欠陥を包含する場合がある。

[0087] このように規定された温度範囲の融解温度を有するために第1合成高分子は、前記したシングルサイト触媒により重合されたオレフィン樹脂(プロピレン系樹脂、エチレン系樹脂)であることが望ましい。

なぜならば、これら結晶性高分子の融解温度は、その高分子の一次構造と密接な関係を有している為、一次構造を精密に制御することができるシングルサイト触媒による重合は好都合であるからである。そのような、精密制御された一次構造を実現することができるのは、このシングルサイト触媒が、重合反応に関わる部分が単一の性質を有するため重合反応が均一化する為と考えられている。

[0088] シングルサイト触媒により合成される場合は、チグラール・ナッタ触媒に代表されるマルチサイト触媒による場合と比較して、等側鎖の分岐が少なく、分子量、結晶粒径の分布が均一化したオレフィン樹脂が重合される。このため、DSC測定による融解温度

が規定した範囲に含まれる任意の温度範囲であって融解ピークの形状がシャープであるオレフィン樹脂(第1合成高分子)が得られる。

[0089] ここで、第1合成高分子が、鎖状炭化水素の主鎖の炭素数10から100の範囲に含まれるワックスを含む場合について考察する。このワックスは、工業的に合成される合成樹脂であったり、天然物から抽出される天然樹脂であったりし、いずれも常温で固体であり加熱して溶融すると第2合成高分子よりも低粘度を示すものである。このため、このワックスが配合されている濃厚体と第2合成高分子とを混合して混練すると、ワックス成分が先行して溶融することになる。すると、混練物の粘性が低下して混練装置の負担が低減するとともに混練性が向上しバイオマス由来成分が第2合成高分子の連続相中に均一でかつ微細に分散していくことになる。

[0090] ここで、ワックスの主鎖の炭素数が10よりも小さいと、ワックスの融点が低温となり常温で液体を示し、製造されるバイオマス樹脂の表面がべたつき感を有することになる。

またワックスの主鎖の炭素数が100よりも大きいと、ワックスの融点が高温となり溶融粘度が大きくなる。すると、第2合成高分子の連続相に対するバイオマス由来成分の分散性が低下することになる。

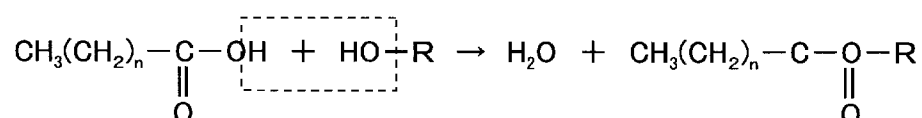
[0091] ワックスとして、天然樹脂のものとしては飽和脂肪酸が挙げられる。

飽和脂肪酸とは、鎖状炭化水素の1価のカルボン酸であって、 $\text{CH}_3(\text{CH}_2)_n\text{COOH}$ の示性式で示される化合物であって、本発明に適用されるものはnが9以上であるものが好ましい。

[0092] この飽和脂肪酸は、その末端に位置するカルボキシル基(COOH)が親水基であって、鎖状炭化水素の部分($\text{CH}_3(\text{CH}_2)_n$)が疎水基(親油基)となっている。

このために飽和脂肪酸は、末端のカルボキシル基(COOH)が、バイオマス由来成分(R)の表面のヒドロシル基(OH)と、下記式に示す脱水反応(エステル反応)により化学結合(化学吸着)することになる。

[0093] [化2]



[0094] このような化学反応により、バイオマス由来成分は、その表面のヒドロシル基(OH)が飽和脂肪酸によって化学修飾されて、親水性が解消し親油性が向上することとなる。これにより、バイオマス由来成分の分散相が第2合成高分子の連続相中に拡散しやすい好都合な性質を備えることになる。

[0095] 合成樹脂のワックスとしては、前記したシングルサイト触媒により重合されたオレフィン樹脂が好適である。これによれば、同様の融点(又は溶融粘度)を有する天然樹脂のワックスと対比した場合、長鎖であるがゆえに硬度が高い特徴を有するため、機械的特性の優れたバイオマス樹脂の複合材料を得ることができる。

また、シングルサイト触媒により重合されたオレフィン樹脂のワックスは、同程度の硬度を有する他の合成ワックス(チグラール・ナッタ触媒法、高压法等)と対比した場合、低融点でかつ低粘度である特徴を具備している。

[0096] 濃厚体を構成するバイオマス由来成分としては、グルコースが $\alpha-1,4$ グルコシド結合によって直鎖状に結合したアミロース又は $\alpha-1,4$ グルコシド結合と $\alpha-1,6$ グルコシド結合の両者の直鎖を枝に持つアミロペクチンを主成分とするデンプン質系バイオマス、リグノセルロース又はセルロースを主成分とする草木質系バイオマス、甲殻類動物に由来するキチン(又はキトサン)質系バイオマス(蟹ガラ、蝦ガラ等)が挙げられる。

[0097] 濃厚体を製造するにあたり、これらデンプン質系バイオマスの前処理としては、芯や表皮を取り除き大きさを適当に揃えて刻んだり、糊化に必要な水分の追加をしたりする程度の簡単な処理で十分である。このような簡単な処理をしたデンプン質系バイオマスと、第1合成高分子とを共に混練すると、その過程において含有する水分によりデンプンが糊化し微細化し第1合成高分子中に均一に分散していくことになる。

なおこの含有する水分は濃厚体を製造する混練工程の後工程において混練装置に設けられている脱水手段から排出されることになる。

また濃厚体の原料として適用されるデンプン質系バイオマスは、このような簡単な前処理を実施した穀物に限定されるものではなく、予め公知方法で糊化させた穀物(非晶構造を取るデンプン)や、これら穀物からアミロース又はアミロペクチンの成分を公知の方法で抽出させたものを原料としてもよい。

[0098] またデンプン由来のバイオマス由来成分を採用する場合において、その微細化を促進するために、濃厚体の製造時において、アミラーゼを添加する場合がある。

このアミラーゼは、分子量約55,000の酵素であり、 α -アミラーゼ、 β -アミラーゼ、グルコアミラーゼがあり、いずれも工業的に大量生産されるものである。

α -アミラーゼは、デンプンの α -1,4グルコシド結合を不規則に切断して多糖又はオリゴ糖に加水分解し、 β -アミラーゼは、デンプンを末端からブドウ糖2個単位で切断し、麦芽糖に分解し、グルコアミラーゼは、糖鎖の非還元末端の α -1,4グルコシド結合を切断してブドウ糖に分解する。

さらに、イソアミラーゼ、プルラナーゼは、糖類の分岐部分である α -1,4グルコシド結合を選択的に切断する。

[0099] このなかで α -アミラーゼが、デンプン由来のバイオマス由来成分の微細化を促進させる観点において好適である。また、イソアミラーゼ、プルラナーゼは、バイオマス由来成分の低分子量化を防ぐために好適である。

ところで、 α -アミラーゼの酵素活性は、水素イオン指数pH5~pH7、温度40°C~80°Cの範囲で、高く維持されるものである。

従って、濃厚体を製造するにあたり、アミラーゼがデンプン質系バイオマスに投入されるタイミングは、デンプン質系バイオマスが混練装置に投入される前、同時、後のいずれの場合も取り得るが、アミラーゼの酵素活性が失われない条件が維持されることが必要である。

[0100] 特に、デンプン質系バイオマスが混練装置に投入されると同時又は後にアミラーゼが投入される場合は、混練温度が酵素活性が失われない範囲に設定する必要がある。この場合は、投入される第1合成高分子も、酵素活性が失われない温度範囲で十分に流動する程度に融解温度が低いことが望まれる。

アミラーゼの活性条件の範囲を外れるとアミラーゼの酵素は変性して失活し、特に高温においては、アミラーゼの活性の低下速度が急激に早くなる。一例を示すと、70°Cで20分放置した場合の残存活性が90%であるのに対し、75°Cで20分放置した場合の残存活性が50%まで低下するといった報告例がある。

なお、アミラーゼの添加量は、デンプン質系バイオマス100重量部に対して、0.00

1～5重量部であることが望ましい。ここで、アミラーゼの添加量が0.001重量部未満である場合は、デンプンの分解速度が遅くなり、5重量部よりも多い場合は、デンプンの分解が促進されすぎてバイオマス由来成分が低分子量化して好ましくない。

[0101] デンプン質系バイオマスがアミラーゼの酵素活性によって分解されれば、糊化反応も促進されることとなり、共に混練される第1合成高分子中にバイオマス由来成分が微細に均一に分散していくことになる。

このように、デンプンを酵素分解させた後の α -アミラーゼは、不要なものであるがこれを選択的に取り除く手段がないので、そのまま濃厚体中に混入させておいたり、混練温度を高温にして熱変性させ活性を殺した状態で混入させておいたりしてもよい。

[0102] 一方、草木質系バイオマスを原料とするものとして、具体的には、木材工業およびパルプ工業等の廃棄物である間伐材・建築解体材等、農業廃棄物である稲ワラ・さやガラ、故紙、粉碎処理した木片、木粉、鋸屑、カンナ屑、竹粉、バガス、果実殻粉、木綿、人絹(レーヨン)等を挙げることが出来る。また、これらの形状には別に制限なく、繊維状、粉末状のものが使用できる。

また、これら草木質系バイオマス及びキチン質系バイオマスを、高圧ホモゲナイザーを用いて水中で物理的に粉碎させたり、化学処理により水中で微細化させたりして懸濁液状にしたものも適宜利用することができる。

[0103] また、これらバイオマス由来成分同士の凝集を緩和するために、濃厚体の製造時において、アルカリ金属塩を添加する場合がある。

アルカリ金属塩の種類は特に限定されるものではないが、炭酸リチウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸セシウム等のアルカリ金属炭酸塩、さらに、炭酸バリウム、炭酸カルシウム、炭酸ストロンチウム等のアルカリ土類金属塩が挙げられる。

[0104] これらアルカリ金属塩が添加されると、濃厚体の製造時において、アルカリ金属イオンとバイオマス由来成分の親和性によりバイオマス由来成分間の凝集力が弱まり、バイオマス由来成分の第1合成高分子に対する分散性が高まることとなる。

また濃厚体の製造後、貯蔵中に、微細化したバイオマス由来成分が再凝集することが防止される。また、濃厚体と第2合成高分子とを混合させる際に、第2合成高分子中における濃厚体の流動性が向上し分散しやすくなる。

- [0105] なお、アルカリ金属塩の添加量は、バイオマス由来成分100重量部に対して、0.001～5重量部であることが望ましい。ここで、アルカリ金属塩の添加量が0.001重量部未満である場合は、バイオマス由来成分の凝集力が弱まることがなく、5重量部よりも多い場合は、バイオマス由来成分の粘度が下がりすぎて第1合成高分子との混練性が低下して好ましくない。
- [0106] なお濃厚体の製造時においては、第1合成樹脂と共に混練されるバイオマスは、デンプン質系に限らず草木質系やキチン質系であっても、十分な水分の存在により、第1合成樹脂の連続相中への分散が促進される事は、すでに述べたとおりである。このため、バイオマス由来成分の分散性を向上させる目的で原料となるバイオマスに水分を追加して混練装置に投入する場合がある。
- [0107] また濃厚体を製造するにあたり、飽和カルボン酸、不飽和カルボン酸又はこれらの誘導体等の相溶化剤も共に混練させてバイオマス由来成分をエステル化させる場合がある。
- そのような飽和カルボン酸としては、無水コハク酸、コハク酸、無水フタル酸、フタル酸、無水テトラヒドロフタル酸、無水アジピン酸等が挙げられる。不飽和カルボン酸としては、マレイン酸、無水マレイン酸、無水ナジック酸、イタコン酸、無水イタコン酸、シトラコン酸、無水シトラコン酸、ソルビン酸、アクリル酸等が挙げられる。
- 不飽和カルボン酸の誘導体としては、前記不飽和カルボン酸の金属塩、アミド、イミド、エステル等を使用することができる。
- [0108] またこれら相溶化剤を導入するタイミングとしては、バイオマス由来成分と第1合成高分子とほぼ同時に混練装置に投入する場合や、混練装置に投入する前に予めバイオマス由来成分を相溶化剤によりエステル化させておく前処理を実施する場合や、混練装置に投入する前に予め第1合成高分子を不飽和カルボン酸またはその誘導体で変性させておく前処理を実施する場合がある。
- [0109] 前記した相溶化剤がバイオマス由来成分に作用すると、その表面の水酸基がエステル基に置換されることにより(エステル化)、一般に親水性を示すバイオマス由来成分と、一般に疎水性を示す合成樹脂との界面における低親和性が改善される。これにより、バイオマス由来成分は、第1合成高分子との親和性が向上するために濃厚体

内で凝集することがなく、後に配合される第2合成高分子との親和性も向上するために、混練される複合材料にバイオマス由来成分がに高速に微細に均一分散していくことになる。さらに混練体の流動特性も向上し複合材料の諸性質を向上させる。

[0110] 濃厚体において、バイオマス由来成分及び第1合成高分子の配合比率としては、バイオマス由来成分100重量部に対して、第1合成高分子が5～100重量部であることが好ましい。

第1合成高分子が5重量部未満であると、微細化したバイオマス由来成分の表面の全てを第1合成高分子で濡らすことができない。そうすると、濃厚体に第2合成高分子を配合して混練する際に、バイオマス由来成分と第2合成高分子との相溶性が低下する場合があります、複合材料中におけるバイオマス由来成分の均一分散が阻害されることになる。

第1合成高分子が100重量部よりも多いと、相対的に配合される第2合成高分子の分量が低減する。そうすると、第1合成高分子よりも相対的に高粘性でかつ空間占有率の低い第2合成高分子は、バイオマス由来成分の拡散が鈍いことになり、バイオマス由来成分の均一分散が阻害されることになる。

[0111] (濃厚体の製造方法)

濃厚体を加熱混練して製造する製造装置としては、例えばニーダー、バンバリーミキサー、1軸もしくは2軸の押出機などが挙げられる。これら製造装置には、一般的に具備される構成の他に、混練体に包含される水分を脱水する脱水手段を具備する必要がある。

この脱水手段は、混練体が混練される製造装置の内部が高温・高圧の密閉状態になっていることから、この内部に連通する開閉自在な大気開放路を設ければそのような脱水手段として機能することになる。

さらに脱水手段として、製造装置の内部を大気圧よりも減圧することができる強制減圧装置をさらに設けることができれば、混練体に包含される水分の脱水がより効率的に実行される。

[0112] このような濃厚体の製造装置の原材料投入口に、所定の前処理を行ったバイオマス、第1合成高分子、適宜相溶化剤、アルカリ金属塩及び水分を直接投入する。また

原料とするバイオマスがデンプン由来のものであれば、適宜アミラーゼも投入する。

そして、混練ゾーンが所定温度になるように設定し所定時間かけて混練し、第1合成高分子中にバイオマス由来成分が微細に分散している状態を形成する。

このようにバイオマスと水とが共に混練されると、活性化した水がバイオマスの分子鎖間に侵入してその分子間結合を緩くする。さらに、混練で付与される機械エネルギーにより、バイオマスが破碎して微細化が進行する。さらに、熔融した第1合成高分子(ワックス)は水と混合液相を形成しバイオマスの表面に吸着しバイオマスの親油性が向上する。

そして、この状態から脱水手段の大気開放路を開けば、混練体に含まれる水分が圧力差により大気中に放出される。さらに、強制減圧装置を動作させて確実に脱水させてもよい。

[0113] 最後に、濃厚体の製造装置の取出口から取り出した濃厚体の混練体を、公知の造粒装置に通過させて造粒(ペレット化)する。

このようにして製造された高分子複合材料のバイオマス濃厚体のペレットは、微細化されたバイオマス由来成分が第1合成高分子に対して高比率で配合されているものである。またこのようにバイオマス由来成分が高比率で配合されている濃厚体は、第1合成高分子中への分散促進剤として機能する水分を減量させて製造することができる。これにより、脱水手段により排出される水分も少量ですみ濃厚体の生産性を低下させることはない。

[0114] (第2合成高分子について)

濃厚体に配合される第2合成高分子については、熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂である場合も取り得ることとし、第1合成高分子と親和性が良好なものであれば特に限定されない。

ただし、濃厚体と第2合成高分子とを混練してバイオマス複合材料にした際に、この複合材料におけるバイオマス由来成分の良好な分散性及びその他の諸特性を確保するために、第1合成高分子と第2合成高分子とは次式の関係の有していることが望ましい(但し、共に結晶性高分子である場合に限る)。

$$T1 \leq T2 \cdots (2)$$

[0115] ここでT1は第1合成高分子のDSC測定による融解ピーク温度T_{pm}、T2は濃厚体に配合される第2合成高分子の融解ピーク温度T_{pm}を示す。ここで融解ピーク温度T_{pm}とは、DSC測定による融解ピークの頂点の温度を指す(JISK7121参照)。

ところで、結晶性高分子である合成樹脂のDSC測定による融解ピークは、一般に、その頂点の温度T_{pm}を中心として対称形であるわけではない。しかし、混練温度は、第2合成高分子が十分に融解する温度に設定されるものであって、この設定温度で濃厚体と第2合成高分子とが混練されれば、第2合成高分子が固体から溶融体になる前に、第1合成高分子が先行して融解し、溶融体となって、混練体の全体に均一に行き渡ることになる。

[0116] さらに、第2合成高分子よりも融解ピーク温度T_{pm}が低い第1合成高分子の方が(T1 < T2)、一般に、混練温度における粘度が小さいといった流動特性を有するものである。このため、混練初期においては、固体の第2合成高分子のペレットの隙間に低粘度の濃厚体の溶融体が先行して充填されるために、混練装置の内部流動抵抗を低減させる効果も得られ、複合材料の成形性・生産性の向上にも貢献する。

また、T1 = T2である場合は、実質的に第1合成高分子と第2合成高分子とは同じ合成樹脂であることを意味しており、混練される物同士の親和性が極めて良好な状態が実現される。これにより、バイオマス由来成分が複合材料の全体に均一に分散するとともに、複合材料の成形性・生産性が向上する。

[0117] (複合材料の製造方法1; 第2合成高分子が熱可塑性樹脂である場合)

前記した濃厚体の製造方法により製造された濃厚体のペレットに、熱可塑性樹脂である第2合成高分子を配合し、共に混練装置により混練する。用いられる混練装置は、汎用のニーダー、ミキシングロール、バンバリーミキサー、1軸もしくは2軸の押出機などが挙げられる。

[0118] 熱可塑性樹脂である第2合成高分子と濃厚体とを混練する工程において、最終的に製造される複合材料の総重量に対するワックスの重量占有率が0.5から30重量%の範囲に含まれるようにこのワックスを追加する場合がある。これにより、混練物の粘性が低下して混練装置の負担が低減するとともに混練性が向上しバイオマス由来成分が第2合成高分子の連続相中に均一でかつ微細に分散していくことになる。

[0119] ワックスの重量占有率が0.5重量%よりも少ない場合、微細化したバイオマス由来成分の表面をワックスで濡らすことができない。そうすると、親水性であるバイオマスの分散相を疎水性である合成樹脂の連続相に均一に拡散させることが困難になる。

一方、ワックスの配合量が30重量%よりも多い場合、製造される複合材料を構成する合成樹脂成分の平均分子量が低下することとなりその機械的性質が低下することになる。

[0120] さらにこれらの混練装置から、複合材料の溶融体を、射出成形、押出成形、ブロー成形、インフレーション成形等の各種熱可塑性樹脂の成形装置に導いて、従来から熱可塑性樹脂を用いて加工される各種製品、埋立により土に還元されることを目的とする各種製品、例えば家電製品、農林水産業用資材、土木・建築資材、野外レジャー用ディスプレイ製品、包装用フィルム、ゴミ袋、砂漠・荒地などで用いる植林用素材、釣り糸、魚網、包装フィルム、紙おむつ等の衛生製品、文具、容器、トレー、雑貨等を製造することができる。

[0121] (複合材料の製造方法2;第2合成高分子が熱硬化性樹脂である場合)

前記した濃厚体の製造方法により製造された濃厚体と、熱硬化性樹脂である第2合成高分子とを混合し、一般的に用いられる熱硬化性樹脂の成形装置に投入し、バイオマス複合材料を製造することができる。

用いられる成形装置は、圧縮成形機、射出成形機、トランスファ成形機等が具体的に挙げられ、従来から熱硬化性樹脂を用いて製造される各種製品、車部品、電気部品、電子部品等を製造することができる。

[0122] 圧縮成形機を用いて複合材料を製造する場合は、濃厚体と熱硬化性樹脂(第2合成高分子)との混合物を硬化温度に設定された金型の凹部(キャビティ)に入れて、プレスして硬化させる。この場合、加温により高分子複合材料のバイオマス濃厚体が流動化し、第2合成高分子の粒子の隙間を充填する。その後、第2合成高分子の硬化反応が進行することとなり、バイオマス由来成分が均一かつ微細に分散したバイオマス複合材料を得る。

[0123] 射出成形機又はトランスファ成形機を用いて複合材料を製造する場合は、濃厚体と熱硬化性樹脂(第2合成高分子)との混合物を、硬化温度よりも低温である流動温度

に設定し、流動化させる。そして、この流動化した混合物(濃厚体+第2合成高分子)を硬化温度に設定された金型に圧入し、硬化させる。

なお、バイオマス由来成分の分散相の微細化・均一化を図るために、流動状態にある混合物を十分に攪拌することが望ましい。

[0124] もしくは、第2合成高分子に混合する前に濃厚体のペレットをミキサー等を用いて粉碎処理してもよい。この場合、粉碎されたバイオマス由来成分の表面は新生面であるので、熱硬化性樹脂との親和性も高く、均一な分散相が得られやすくなる。

この場合、濃厚体のペレットは、複合材料の成形時に粉碎処理により微粒子化されることを前提に、所定大きさ(通常、米粒から豆粒の大きさ)で外気に接する表面積が小さくなるように成形されるわけである。

このことは、前記したように粉碎して微粒子化されるバイオマス由来成分の新生面が広く確保されることのみならず、濃厚体の表面酸化による発熱を抑制し、長期保存に耐える貯蔵安定性が付与されることになる。

[0125] なお、前記した濃厚体の製造工程又は複合材料の製造工程において、消臭剤として平均粒径50ミクロン以下のシリカパウダーを投入したり、埋立処分する際の分解を促進させる公知の生分解性付与剤を投入したりする場合がある。

[0126] このように、濃厚体を利用することにより、一般的な混練装置を用いて、バイオマス由来成分の分散相を合成樹脂の連続相に微細でかつ均一に分散させることができ、バイオマス複合材料を簡便に量産することができる。

請求の範囲

- [1] 合成高分子及びバイオマス由来成分が混合してなる高分子複合材料の製造装置において、
- 前記バイオマス由来成分の過剰含水物が少なくとも含まれる混練物を設定された混練温度で混練する混練手段と、
- 前記混練温度における飽和蒸気圧よりも低くかつ大気圧よりも高い設定圧力で前記混練物を脱水する脱水手段と、
- 脱水された前記混練物を取り出す取出手段とを、含むことを特徴とする高分子複合材料の製造装置。
- [2] 請求項1に記載の高分子複合材料の製造装置において、
- 前記混練手段は、
- 前記合成高分子の主剤及び前記バイオマス由来成分の過剰含水物を投入する投入手段が上流側に設けられ前記取出手段が下流側に設けられているシリンダと、
- 前記混練温度に設定されている前記シリンダの内部で軸回転し前記混練物を前記投入手段から前記取出手段へ向かって押し出すスクリュウとを、有し、
- 前記脱水手段は、
- 前記シリンダの内部及びその外部を隔てるとともに前記混練物のうち含まれる水分を選択的に濾過する濾過板と、
- 前記濾過板により濾過された水分を気化させる気化空間を形成するとともに大気を遮断する遮断壁と、
- 前記気化空間の気圧を前記設定圧力に設定する調圧手段とを、有することを特徴とする高分子複合材料の製造装置。
- [3] 請求項2に記載の高分子複合材料の製造装置において、
- 前記過剰含水物、液状試薬又は水が前記投入手段よりも下流側に設けられている圧入手段から圧入されることを特徴とする高分子複合材料の製造装置。
- [4] 請求項1に記載の高分子複合材料の製造装置において、
- 前記混練手段は、
- 前記合成高分子の主剤及び前記バイオマス由来成分の過剰含水物を投入する投

入手段並びに前記取出手段が設けられるケーシングと、

密閉空間にされ前記混練温度に設定された前記ケーシングの内部で回転し前記混練物を混練するローターとを、有し、

前記脱水手段は、

前記密閉空間の気圧を前記設定圧力に設定する調圧手段を、有することを特徴とする高分子複合材料の製造装置。

[5] 請求項4に記載の高分子複合材料の製造装置において、

前記ケーシングの内部及び外部を隔てるとともに前記混練物のうち含まれる水分を選択的に濾過する濾過板と、

前記濾過板を介して前記密閉空間に連通する気化空間が形成されるとともに前記調圧手段が設けられている遮断壁とを、有することを特徴とする高分子複合材料の製造装置。

[6] 合成高分子及びバイオマス由来成分が混合してなる高分子複合材料の製造方法において、

前記バイオマス由来成分の過剰含水物が少なくとも含まれる混練物を設定された混練温度で混練する混練工程と、

前記混練温度における飽和蒸気圧よりも低くかつ大気圧よりも高い設定圧力で混練物を脱水する脱水工程と、

脱水された混練物を取り出す取出工程とを、含むことを特徴とする高分子複合材料の製造方法。

[7] 請求項6に記載の高分子複合材料の製造方法において、

前記バイオマス由来成分はデンプン質系バイオマスに由来するものであって、このデンプン質系バイオマスを過剰含水物にする水を注水する注水工程を含むことを特徴とする高分子複合材料の製造方法。

[8] 請求項6に記載の高分子複合材料の製造方法において、

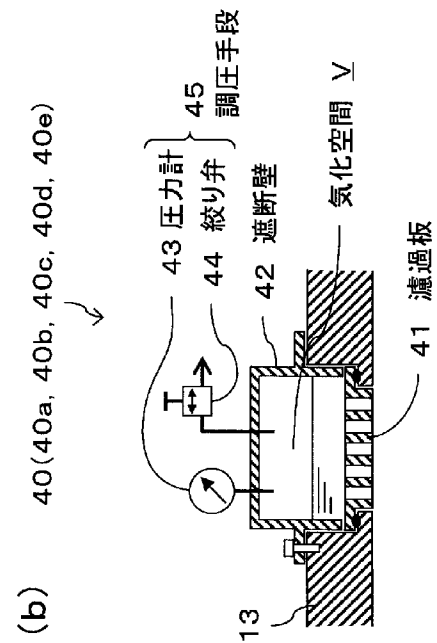
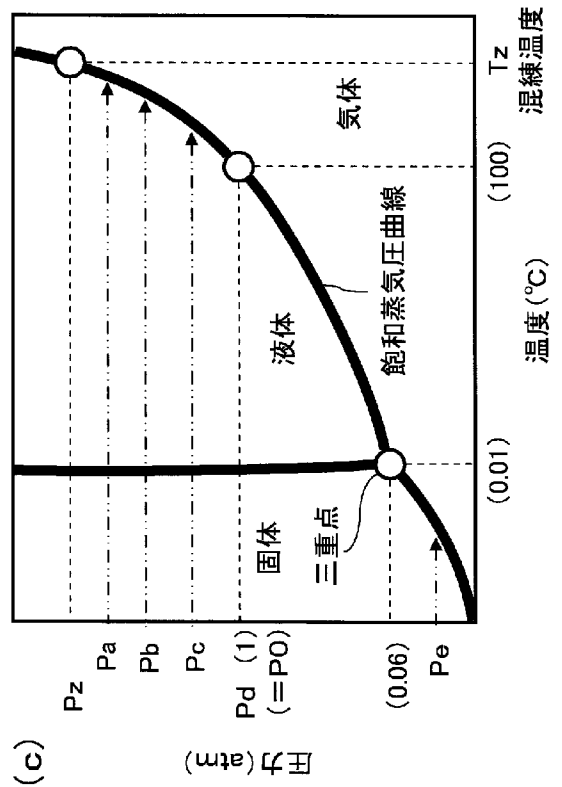
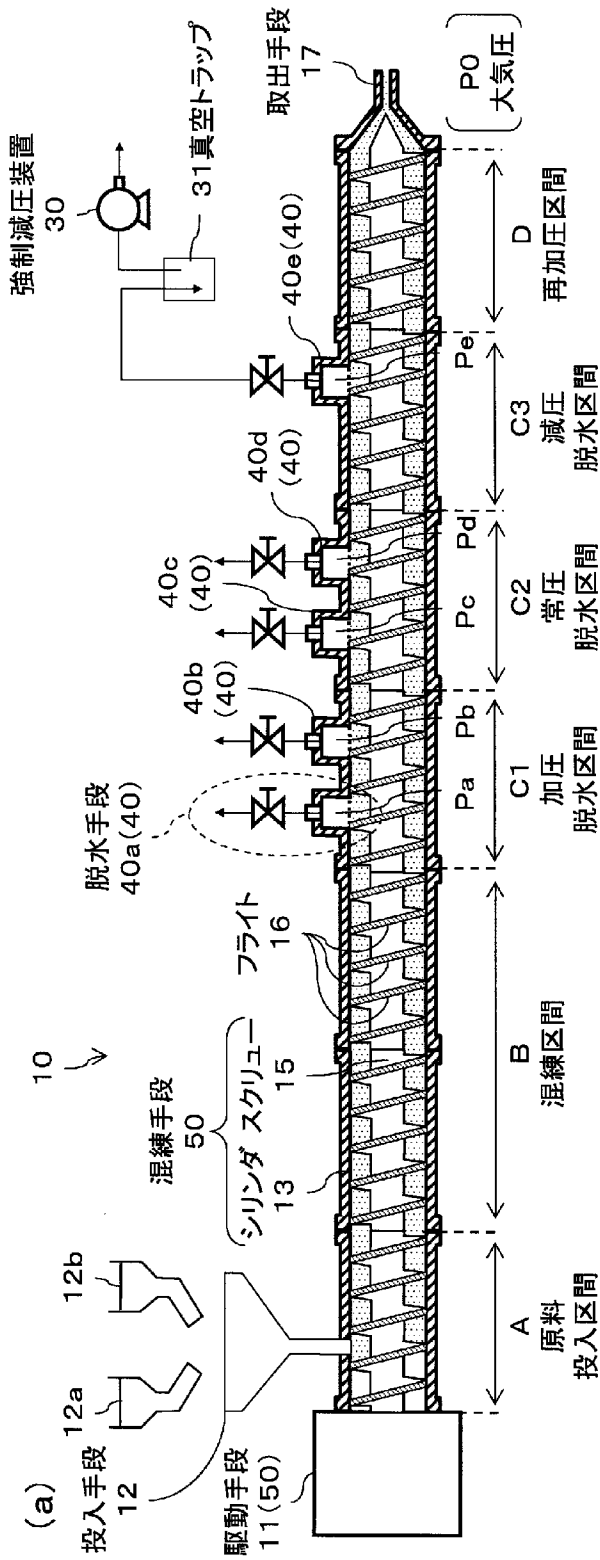
前記バイオマス由来成分はバイオマスを機械的に微粒子化したものであって、その集合体に水を含浸させて過剰含水物にする含水工程を含むことを特徴とする高分子複合材料の製造方法。

- [9] 請求項6に記載の高分子複合材料の製造方法において、
前記混練工程では前記バイオマス由来成分の過剰含水物及び相溶化剤を混練し、
前記脱水工程を経てから前記合成高分子の主剤を混合しさらに混練することを特徴とする高分子複合材料の製造方法。
- [10] 請求項6に記載の製造方法により得られるバイオマス由来成分が分散した高分子複合材料。
- [11] 請求項10に記載のバイオマス由来成分が分散した高分子複合材料を成形して得られる成形品。
- [12] 第1合成高分子とバイオマス由来成分とを主構成要素にする高分子複合材料のバイオマス濃厚体であって、第2合成高分子を配合し前記バイオマス由来成分の濃度を希釈して製造される複合材料の原料であることを特徴とする高分子複合材料のバイオマス濃厚体。
- [13] 請求項12に記載の高分子複合材料のバイオマス濃厚体において、
前記第1合成高分子は、鎖状炭化水素の主鎖の炭素数10から100の範囲に含まれるワックスが含まれていることを特徴とする高分子複合材料のバイオマス濃厚体。
- [14] 請求項12に記載の高分子複合材料のバイオマス濃厚体において、
前記第1合成高分子は、シングルサイト触媒により合成されたオレフィン系樹脂を主成分にすることを特徴とする高分子複合材料のバイオマス濃厚体。
- [15] 請求項12に記載の高分子複合材料のバイオマス濃厚体において、
前記バイオマス由来成分はデンプン由来のアミロース、アミロペクチン又はこれらの分解物を主成分とするものであって、
デンプンを酵素分解したアミラーゼ又はその熱変性物が混入していることを特徴とする高分子複合材料のバイオマス濃厚体。
- [16] 請求項12に記載の高分子複合材料のバイオマス濃厚体において、
アルカリ金属塩が配合されていることを特徴とする高分子複合材料のバイオマス濃厚体。
- [17] 請求項12に記載の高分子複合材料のバイオマス濃厚体において、

前記バイオマス由来成分は、飽和カルボン酸、不飽和カルボン酸又はこれらの誘導体でエステル化されていることを特徴とする高分子複合材料のバイオマス濃厚体。

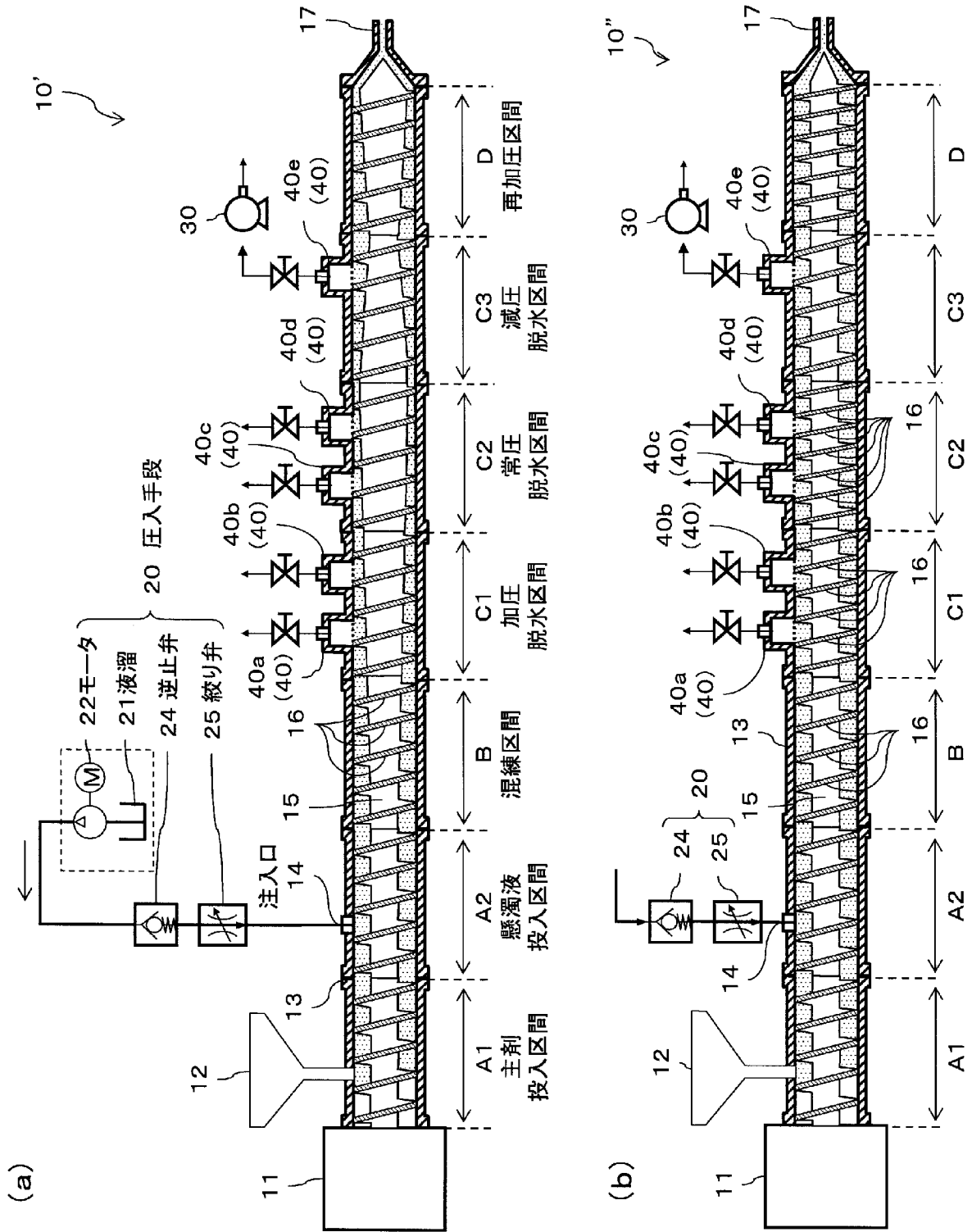
- [18] 請求項12に記載の高分子複合材料のバイオマス濃厚体と、前記第2合成高分子とを混合し、共に混練する工程を含むことを特徴とする高分子複合材料の製造方法。

図1



設定値 Px (x = a, b, c, d, e)

[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2008/057775

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
B29B7/80(2006.01)i, *B09B3/00*(2006.01)i, *C08J3/22*(2006.01)i, *C08L3/00*
 (2006.01)i, *C08L23/00*(2006.01)i, *C08L91/06*(2006.01)i, *C08L101/00*
 (2006.01)i
 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED
 Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
B29B7/80, *B09B3/00*, *C08J3/22*, *C08L3/00*, *C08L23/00*, *C08L91/06*, *C08L101/00*

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2008
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2008	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2008

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 A	WO 2005/087857 A1 (Agri Future Joetsu Co., Ltd.), 22 September, 2005 (22.09.05), Claims 1, 2, 13; Par. Nos. [0001] to [0003], [0010] to [0023], [0055] to [0057] & EP 1724300 A1 Par. Nos. [0001] to [0003], [0015] to [0032], [0077] to [0080]; Claims 1, 2, 13 & JP 2005-255743 A & JP 2005-330402 A & JP 2006-21502 A & CN 1930228 A	12, 17, 18 1-11, 13-16
X	JP 2004-18603 A (Kabushiki Kaisha Kankyo Keiei Sogo Kenkyusho), 22 January, 2004 (22.01.04), Claims; Par. Nos. [0020] to [0031], [0055] to [0074]; Figs. 4 to 6 (Family: none)	12-14, 16, 18

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"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
"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 15 July, 2008 (15.07.08)	Date of mailing of the international search report 29 July, 2008 (29.07.08)
---	--

Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/057775

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2005-199531 A (Kabushiki Kaisha Kankyo Keiei Sogo Kenkyusho), 28 July, 2005 (28.07.05), Claims; Par. Nos. [0023] to [0034], [0058] to [0077]; Figs. 4 to 6 & KR 10-2005-0074887 A	12-14, 16, 18
X	JP 04-173868 A (Nippon Petrochemicals Co., Ltd.), 22 June, 1992 (22.06.92), Claims; page 3, lower right column to page 4, upper left column; page 6, lower right column to page 7, upper left column (Family: none)	12, 18
A	JP 06-184358 A (Roquette Freres), 05 July, 1994 (05.07.94), Full text & US 5703160 A & EP 579546 A2 & FR 2693734 A & CA 2100593 A1	1-18
A	JP 07-113028 A (Du Pont-Mitsui Polychemicals Co., Ltd.), 02 May, 1995 (02.05.95), Full text (Family: none)	1-18
A	JP 2006-9007 A (Chen, Ming-Tung), 12 January, 2006 (12.01.06), Full text & US 2005/0288399 A1 & EP 1702950 A2 & TW 248957 B	1-18
A	JP 2006-21502 A (Agri Future Joetsu Co., Ltd.), 26 January, 2006 (26.01.06), Full text & EP 1724300 A1 & WO 2005/087857 A1	1-18
A	JP 2006-289164 A (Agri Future Joetsu Co., Ltd.), 26 October, 2006 (26.10.06), Full text (Family: none)	1-18
A	JP 2006-328377 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 07 December, 2006 (07.12.06), Full text (Family: none)	1-18
P, A	JP 2007-169612 A (Japan Polypropylene Corp.), 05 July, 2007 (05.07.07), Full text (Family: none)	1-18

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/057775

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:
(See extra sheet.)

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest
the

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, payment of a protest fee.
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

Continuation of Box No.III of continuation of first sheet(2)

The inventions according to claims 1 to 11 relate to an apparatus for producing a polymer composite material in which a synthetic polymer and a biomass-originating component are mixed together or a method of producing the same. The inventions according to claims 12 to 18 relate to a concentrated biomass of a polymer composite material in which a synthetic polymer and a biomass-originating component are mixed together and a method of producing a polymer composite material using this concentrated biomass.

Thus, the matter common to the inventions according to claims 1 to 18 resides in a polymer composite material in which a synthetic polymer and a biomass-originating component are mixed together. However, it has been clarified as the results of the search that this polymer composite material is not novel because of having been disclosed in documents WO 2005/087857 A1 (AGRI FUTURE JOETSU Co., Ltd.), September 22, 2005 (09.22.05), claims 1, 2 and 13, [0001] to [0003], [0010] to [0023], and [0055] to [0057]; EP 1724300 A1, [0001] to [0003], [0015] to [0032], and [0077] to [0080], claims 1, 2 and 13; JP 2005-255743 A; JP 2005-330402 A; JP 2006-21502 A; and CN 1930228 A.

As a result, such a polymer composite material in which a synthetic polymer and a biomass-originating component are mixed together falls within the category of prior art and, therefore, this common matter (a polymer composite material in which a synthetic polymer and a biomass-originating component are mixed together) cannot be considered as a special technical feature in the meaning within the second sentence of PCT Rule 13.2.

Next, the presence or absence of another common matter seemingly being a special technical feature in the meaning within the second sentence of PCT Rule 13.2 will be discussed.

<1> The inventions according to claims 1 to 11 are common to each other in "an apparatus for producing a polymer composite material in which a synthetic polymer and a biomass-originating component are mixed together, comprising a kneading unit whereby a matter to be kneaded which contains at least an excessive water-containing component originating in a biomass is kneaded at a setting kneading temperature and a dehydration unit whereby the kneaded matter is dehydrated under setting pressures being lower than the saturated vapor pressure at the kneading temperature but higher than the atmospheric pressure, or a production method using this production apparatus".

<2> The inventions according to claims 12, 17 and 18 are publicly known, since it is described in the documents as cited above that a molded article is obtained by separately adding a thermoplastic resin to a starch-containing resin composition that has been obtained by mixing a thermoplastic resin with a starch-based material. Therefore, these inventions have no special technical feature.

<3> The invention according to claim 13 is an invention that is characterized in "a first synthetic polymer containing a wax having from 10 to 100 carbon atoms in the main chain of a chain type hydrocarbon".

<4> The invention according to claim 14 is an invention that is characterized in "a first synthetic polymer containing an olefin-based resin having been synthesized using a single site catalyst as the main component".

(Continued to the next sheet.)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/057775

<5> The invention according to claim 15 is an invention that is characterized in "the biomass-origin component comprising starch-origin amylose, amylopectin or a digestion product thereof as the main component and being contaminated with amylase formed by the enzymatic digestion of starch or a thermal denaturation product thereof".

<6> The invention according to claim 16 is an invention that is characterized in "the concentrated biomass containing an alkali metal salt".

There is no special technical feature common to <1> and <3> to <6>.

Such being the case, the present international application has at least five invention groups.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. B29B7/80(2006.01)i, B09B3/00(2006.01)i, C08J3/22(2006.01)i, C08L3/00(2006.01)i, C08L23/00(2006.01)i, C08L91/06(2006.01)i, C08L101/00(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. B29B7/80, B09B3/00, C08J3/22, C08L3/00, C08L23/00, C08L91/06, C08L101/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2008年
日本国実用新案登録公報	1996-2008年
日本国登録実用新案公報	1994-2008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 請求の範囲の番号
X	WO 2005/087857 A1 (アグリフューチャー・じょうえつ株式会社) 2005.09.22, 請求の範囲第1、2、13項、[0001]-[0003]、[0010]	12, 17, 18
A	- [0023]、[0055]-[0057] & EP 1724300 A1, [0001]-[0003], [0015]-[0032], [0077]-[0080], Claims 1, 2, 13 & JP 2005-255743 A & JP 2005-330402 A & JP 2006-21502 A & CN 1930228 A	1-11, 13-16
X	JP 2004-18603 A (株式会社環境経営総合研究所) 2004.01.22, 特許 請求の範囲、【0020】-【0031】、【0055】-【0074】、図4-6 (フ ァミリーなし)	12-14, 16, 18

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日
15.07.2008

国際調査報告の発送日
29.07.2008

国際調査機関の名称及びあて先
 日本国特許庁 (ISA/JP)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)
 有田 恭子
 電話番号 03-3581-1101 内線 3430

C (続き) . 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 請求の範囲の番号
X	JP 2005-199531 A (株式会社環境経営総合研究所) 2005.07.28, 特許請求の範囲、【0023】－【0034】、【0058】－【0077】、図4－6 & KR 10-2005-0074887 A	12-14, 16, 18
X	JP 04-173868 A (日本石油化学株式会社) 1992.06.22, 特許請求の範囲、第3頁右下欄－第4頁左上欄、第6頁右下欄－第7頁左上欄 (ファミリーなし)	12, 18
A	JP 06-184358 A (ロケット フレール) 1994.07.05, 文献全体 & US 5703160 A & EP 579546 A2 & FR 2693734 A & CA 2100593 A1	1-18
A	JP 07-113028 A (三井・デュポンポリケミカル株式会社) 1995.05.02, 文献全体 (ファミリーなし)	1-18
A	JP 2006-9007 A (陳銘通) 2006.01.12, 文献全体 & US 2005/0288399 A1 & EP 1702950 A2 & TW 248957 B	1-18
A	JP 2006-21502 A (アグリフューチャー・じょうえつ株式会社) 2006.01.26, 文献全体 & EP 1724300 A1 & WO 2005/087857 A1	1-18
A	JP 2006-289164 A (アグリフューチャー・じょうえつ株式会社) 2006.10.26, 文献全体 (ファミリーなし)	1-18
A	JP 2006-328377 A (三菱化学株式会社) 2006.12.07, 文献全体 (ファミリーなし)	1-18
P, A	JP 2007-169612 A (日本ポリプロ株式会社) 2007.07.05, 文献全体 (ファミリーなし)	1-18

第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、

2. 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、

3. 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

特別ページ参照。

1. 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。

請求の範囲1-11に係る発明は、合成高分子及びバイオマス由来成分が混合してなる高分子複合材料の製造装置又は製造方法の発明である。請求の範囲12-18に係る発明は、合成高分子及びバイオマス由来成分が混合してなる高分子複合材料のバイオマス濃厚体及び当該バイオマス濃厚体を用いた高分子複合材料の製造方法の発明である。

したがって、請求の範囲1-18に係る発明の共通の事項は、合成高分子及びバイオマス由来成分が混合してなる高分子複合材料であるが、調査の結果、当該高分子複合材料は、文献WO 2005/087857 A1 (アグリフューチャー・じょうえつ株式会社) 2005.09.22, 請求の範囲第1、2、13項、[0001] - [0003]、[0010] - [0023]、[0055] - [0057] & EP 1724300 A1, [0001] - [0003], [0015] - [0032], [0077] - [0080], Claims 1, 2, 13 & JP 2005-255743 A & JP 2005-330402 A & JP 2006-21502 A & CN 1930228 A に開示されているから、新規でないことが明らかとなった。

結果として、合成高分子及びバイオマス由来成分が混合してなる高分子複合材料は先行技術の域を出ないから、PCT規則13.2の第2文の意味において、この共通事項(合成高分子及びバイオマス由来成分が混合してなる高分子複合材料)は特別な技術的特徴ではない。

次に、PCT規則13.2の第2文の意味における特別の技術的特徴と考えられる他の共通事項の有無について検討する。

<1> 請求の範囲1-11に係る発明は、「バイオマス由来成分の過剰含水物が少なくとも含まれる混練物を設定された混練温度で混練する混練手段と、混練温度における飽和蒸気圧よりも低くかつ大気圧よりも高い設定圧力で混練物を脱水する脱水手段とを有する合成高分子及びバイオマス由来成分が混合してなる高分子複合材料の製造装置又は当該製造装置を用いた製造方法」である点で共通する。

<2> 請求の範囲12, 17及び18に係る発明は、上記文献に、熱可塑性樹脂と澱粉系物質とを混合して得られた澱粉配合樹脂組成物に別途熱可塑性樹脂を混合して成形品を得る旨が記載されているから公知であり、特別な技術的特徴を有しない。

<3> 請求の範囲13に係る発明は、「第1合成高分子は、鎖状炭化水素の主鎖の炭素数10から100の範囲に含まれるワックスが含まれていること」を特徴とする発明である。

<4> 請求の範囲14に係る発明は、「第1合成高分子は、シングルサイト触媒により合成されたオレフィン系樹脂を主成分にすること」を特徴とする発明である。

<5> 請求の範囲15に係る発明は、「バイオマス由来成分はデンプン由来のアミロース、アミロペクチン又はこれらの分解物を主成分とするものであって、デンプンを酵素分解したアミラーゼ又はその熱変性物が混入していること」を特徴とする発明である。

<6> 請求の範囲16に係る発明は、「バイオマス濃厚体において、アルカリ金属塩が配合されていること」を特徴とする発明である。

上記<1>、<3>-<6>のそれぞれに共通する特別な技術的特徴は存在しない。

したがって、この国際出願は、少なくとも5の発明が存在する。