(19)日本国特許庁(JP)　(12)公表特許公報(A)　(11)公表番号
特表2025-513898
(P2025-513898A)
(43)公表日　令和7年4月30日(2025.4.30)

(51)国際特許分類		FI		テーマコード（参考）
C08G 63/183 (2006.01)		C08G	63/183	ZBP　4J001
C08G 63/78 (2006.01)		C08G	63/78	4J029
C08G 63/85 (2006.01)		C08G	63/85	4J200
C08G 63/83 (2006.01)		C08G	63/83	
C08G 69/44 (2006.01)		C08G	69/44	

審査請求　未請求　予備審査請求　未請求　（全17頁）　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2024-560772(P2024-560772)
(86)(22)出願日　令和5年4月14日(2023.4.14)
(85)翻訳文提出日　令和6年12月4日(2024.12.4)
(86)国際出願番号　PCT/EP2023/059740
(87)国際公開番号　WO2023/198867
(87)国際公開日　令和5年10月19日(2023.10.19)
(31)優先権主張番号　22168639.7
(32)優先日　令和4年4月15日(2022.4.15)
(33)優先権主張国・地域又は機関
欧州特許庁(EP)
(81)指定国・地域　AP(BW,CV,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV
最終頁に続く

(71)出願人　524377707
ビーフォープラスチックス ビーブイ
Ｂ４ＰＬＡＳＴＩＣＳ ＢＶ
ベルギー、３６５０ ディルセン－ストッケム、アイキュー－パルクラーン ２エー
ＩＱ－Ｐａｒｋｌａａｎ ２Ａ，３６５０ Ｄｉｌｓｅｎ－Ｓｔｏｋｋｅｍ，Ｂｅｌｇｉｕｍ
(74)代理人　100103034
弁理士　野河 信久
(74)代理人　100159385
弁理士　甲斐 伸二
(74)代理人　100163407
弁理士　金子 裕輔
最終頁に続く

(54)【発明の名称】　生分解性コポリマー組成物

(57)【要約】
本明細書では、ポリエチレンテレフタレート(ＰＥＴ)成分と、３～１２個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジオール又はジアミン、７～１０個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジカルボン酸、３～１２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジオール又はジアミン、３～３２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジカルボン酸、２～５個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロキシ酸、２～２０個の炭素原子を有する脂肪族アミノ酸及び／又はそれらのアセチル化修飾物から選択される重縮合成分とから本質的になり、ＰＥＴ対重縮合成分のモル比が１：４～４：１の間の範囲である、生分解性コポリマー組成物が開示される。
【選択図】なし

【特許請求の範囲】
【請求項１】
ポリエチレンテレフタレート(ＰＥＴ)成分と、３～１２個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジオール又はジアミン、７～１０個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジカルボン酸、３～１２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジオール又はジアミン、３～３２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジカルボン酸、２～５個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロキシ酸、２～２０個の炭素原子を有する脂肪族アミノ酸及び／又はそれらのアセチル化修飾物から選択される重縮合成分とから本質的になり、ＰＥＴ対重縮合成分のモル比が１：４～４：１の間の範囲である、生分解性コポリマー組成物。
【請求項２】
前記重縮合成分が、１，５－ペンタンジオール、１，６－ヘキサンジオール、１，７－ヘプタンジオール、１，８－オクタンジオール、１，９－ノナンジオール、１，１０－デカンジオール、１，５－ペンタンジアミン、１，６－ヘキサンジアミン、１，７－ヘプタンジアミン、１，８－オクタンジアミン、１，９－ノナンジアミン及び／又は１，１０－デカンジアミンから選択される直鎖脂肪族ジオール又はジアミンである、請求項１に記載の生分解性コポリマー組成物。
【請求項３】
前記重縮合成分が、ヘプタン二酸、オクタン二酸、ノナン二酸及び／又はデカン二酸から選択される直鎖脂肪族ジカルボン酸である、請求項１に記載の生分解性コポリマー組成物。
【請求項４】
前記重縮合成分が、アルキル化又はアリール化された１，２－エタンジオール、１，３－プロパンジオール、１，４－ブタンジオール、１，５－ペンタンジオール、１，６－ヘキサンジオール、１，７－ヘプタンジオール、１，８－オクタンジオール、１，９－ノナンジオール、１，１０－デカンジオール、１，５－ペンタンジアミン、１，６－ヘキサンジアミン、１，７－ヘプタンジアミン、１，８－オクタンジアミン、１，９－ノナンジアミン及び／又は１，１０－デカンジアミンから選択される分岐鎖脂肪族ジオール又はジアミンである、請求項１に記載の生分解性コポリマー組成物。
【請求項５】
前記重縮合成分が、アルキル化マロン酸、アルキル化コハク酸、アルキル化ペンタン二酸、アルキル化アジピン酸、アルキル化ヘプタン二酸、アルキル化オクタン二酸、アルキル化ノナン二酸、アルキル化デカン二酸、アルキル化ウンデカン二酸、アルキル化ドデカン二酸、アルキル化トリデカン二酸、アルキル化ヘキサデカン二酸、及び／又はダイマー脂肪二酸から選択される分岐鎖脂肪族ジカルボン酸である、請求項１に記載の生分解性コポリマー組成物。
【請求項６】
前記重縮合成分が、２－ヒドロキシ－プロパン酸、３－ヒドロキシ－プロパン酸、３－ヒドロキシ－酪酸、４－ヒドロキシ－酪酸、３－ヒドロキシ－ペンタン酸、４－ヒドロキシ－ペンタン酸、及び／又は５－ヒドロキシ－ペンタン酸から選択される脂肪族ヒドロキシ酸である、請求項１に記載の生分解性コポリマー組成物。
【請求項７】
前記重縮合成分が、２－アミノプロパン酸、３－アミノプロパン酸、３－アミノ酪酸、４－アミノ酪酸、４－アミノペンタン酸、５－アミノペンタン酸、６－アミノヘキサン酸、９－アミノステアリン酸、９－アミノメチルステアリン酸、１０－アミノステアリン酸、１０－アミノメチルステアリン酸、１１－アミノウンデカン酸、１２－アミノドデカン酸、及び／又は１２－アミノステアリン酸から選択される脂肪族アミノ酸である、請求項１に記載の生分解性コポリマー組成物。
【請求項８】
前記ＰＥＴ成分が、ＰＥＴ使用済み廃棄物源からのＰＥＴ成分である、請求項１～７のいずれか一項に記載の生分解性コポリマー組成物。

【請求項９】
請求項１～８のいずれか一項に記載の生分解性コポリマー組成物を調製するための方法であって、
(ａ)ＰＥＴプレポリマーを調製する工程と；
(ｂ)３～１２個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジオール又はジアミン、７～１０個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジカルボン酸、３～１２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジオール又はジアミン、３～３２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジカルボン酸、２～５個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロキシ酸、２～２０個の炭素原子を有する脂肪族アミノ酸及び／又はそれらのアセチル化修飾物から選択される重縮合プレポリマーを調製する工程と；
(ｃ)１：４～４：１の間の範囲のＰＥＴ対重縮合成分のモル比で、前記ＰＥＴプレポリマーを前記重縮合プレポリマーと重縮合させる工程
とを含む方法。
【請求項１０】
工程(ａ)が、テレフタル酸又はジメチルテレフタレートとエチレングリコールとの間のエステル化によってか、又はオリゴマーＰＥＴプレポリマーへのＰＥＴの解重合によって起こる、請求項９に記載の方法。
【請求項１１】
工程(ｂ)がエステル化によって起こる、請求項９又は１０に記載の方法。
【請求項１２】
工程(ｃ)が
(ｃ１)前記ＰＥＴプレポリマーを、その軟化点よりも１０～３０℃高い範囲で不活性条件下で溶融させる工程と；
(ｃ２)前記重縮合プレポリマーを前記溶融ＰＥＴ成分に添加する工程と；
(ｃ３)前記ＰＥＴ成分を前記重縮合プレポリマーと、触媒の非存在下又は存在下で反応させる工程
とを含む、請求項９～１１のいずれか一項に記載の方法。
【請求項１３】
工程(ｃ３)が触媒の存在下で起こり、前記触媒が酢酸亜鉛又はチタン(ＩＶ)ブトキシドである、請求項１２に記載の方法。
【請求項１４】
ＰＥＴ対重縮合成分のモル比が、１：３～３：１の間、より好ましくは１：２～２：１の間、より好ましくは約１：１の範囲である、請求項１～８のいずれか一項に記載の生分解性コポリマー組成物又は請求項９～１３のいずれか一項に記載の方法。
【請求項１５】
請求項１～８又は１４のいずれか一項に記載の生分解性コポリマー組成物を含む製品であって、前記製品が、好ましくは、自動車産業、消費財、医療機器、建築及び建設、並びに屋外設備におけるゴム状且つソフトタッチの物品である、製品。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、生分解性コポリマー組成物及びその製造方法に関する。
【背景技術】
【０００２】
プラスチック及びゴムは、工業的に大量生産されると同時に、日常生活や産業分野で広く使用され、その使用量が大幅に増加している。これらの合成ポリマー材は、低コスト、加工の容易さ、及び機械的強度対密度の高い比を含むそれらの特徴的な特性のために、これらの様々な用途に使用されてきた。これらのプラスチック及びゴムを含む製品は、自然の力及びそれらの指定された使用による摩耗に耐えることが望ましい。ほとんどのポリマー材は、改善された機械的特性及び耐久性のために開発されてきたので、それらは、それ

らの耐用年数の終了後でさえ、元の形状及び特性を保存する。結果として、これらのタイプの材料及び製品の多くは、自然には分解せず、それらは、いくつかの環境問題を引き起こすと考えられる。これらの問題に対する解決策は、プラスチックの単なるリサイクルだけでなく、太陽光、水、又は地中の微生物によって小分子に分解することができ、解決策の一部を形成する生分解性ポリマー材料をも含む。見過ごされることが多いのは、分解性が、摩耗する多くのプラスチック及びゴムの用途に対して良好な戦略であるということであり、形成されるマイクロプラスチックは環境中に拡散し、通常の工業的手段によってはもはやリサイクルすることができない。このようなマイクロプラスチックの制御された分解は、ニュー・プラスティック・エコノミーへの飛躍のために、ますます重要且つ魅力的なものとなっている。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【０００３】

結果として、自然環境において生分解することができるプラスチック又はゴム材に関連する材料、製品、及び方法の必要性が高まっている。このような材料、製品及び方法は、本明細書に記載されている。

【課題を解決するための手段】

【０００４】

したがって、第１の態様では、本発明は、ポリエチレンテレフタレート(ＰＥＴ)成分と、３～１２個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジオール又はジアミン、７～１０個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジカルボン酸、３～１２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジオール又はジアミン、３～３２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジカルボン酸、２～５個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロキシ酸、２～２０個の炭素原子を有する脂肪族アミノ酸及び／又はそれらのアセチル化修飾物から選択される重縮合成分とを含み、ＰＥＴ対重縮合成分のモル比が１：４～４：１の間の範囲である、生分解性コポリマー組成物を提供する。

【０００５】

特定の実施形態では、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物は、ポリエチレンテレフタレート(ＰＥＴ)成分と、３～１２個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジオール又はジアミン、７～１０個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジカルボン酸、３～１２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジオール又はジアミン、３～３２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジカルボン酸、２～５個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロキシ酸、２～２０個の炭素原子を有する脂肪族アミノ酸及び／又はそれらのアセチル化修飾物から選択される重縮合成分とから本質的になり、ＰＥＴ対重縮合成分のモル比が１：４～４：１の間の範囲である。

【０００６】

特定の実施形態では、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物は、以下を提供する：

【０００７】

重縮合成分は、１，２－エタンジオール、１，３－プロパンジオール、１，４－ブタンジオール、１，５－ペンタンジオール、１，６－ヘキサンジオール、１，７－ヘプタンジオール、１，８－オクタンジオール、１，９－ノナンジオール、１，１０－デカンジオール、１，１１－ウンデカンジオール、１，１２－ドデカンジオール、１，２－エタンジアミン、１，３－プロパンジアミン、１，４－ブタンジアミン、１，５－ペンタンジアミン、１，６－ヘキサンジアミン、１，７－ヘプタンジアミン、１，８－オクタンジアミン、１，９－ノナンジアミン、１，１０－デカンジアミン、１，１１－ウンデカンジアミン及び／又は１，１２－ドデカンジアミンから選択される直鎖脂肪族ジオール又はジアミンであり；

【０００８】

重縮合成分は、ヘプタン二酸、オクタン二酸、ノナン二酸及び／又はデカン二酸から選

択される直鎖脂肪族ジカルボン酸であり；
【０００９】
重縮合成分は、アルキル化又はアリール化された１，２－エタンジオール、１，３－プロパンジオール、１，４－ブタンジオール、１，５－ペンタンジオール、１，６－ヘキサンジオール、１，７－ヘプタンジオール、１，８－オクタンジオール、１，９－ノナンジオール、１，１０－デカンジオール、１，２－エタンジアミン、１，３－プロパンジアミン、１，４－ブタンジアミン、１，５－ペンタンジアミン、１，６－ヘキサンジアミン、１，７－ヘプタンジアミン、１，８－オクタンジアミン、１，９－ノナンジアミン及び／又は１，１０－デカンジアミンから選択される分岐鎖脂肪族ジオール又はジアミンであり；
【００１０】
重縮合成分は、アルキル化マロン酸、アルキル化コハク酸、アルキル化ペンタン二酸、アルキル化アジピン酸、アルキル化ヘプタン二酸、アルキル化オクタン二酸、アルキル化ノナン二酸、アルキル化デカン二酸、アルキル化ウンデカン二酸、アルキル化ドデカン二酸、アルキル化トリデカン二酸、アルキル化ヘキサデカン二酸、及び／又はダイマー脂肪二酸から選択される分岐鎖脂肪族ジカルボン酸であり；
【００１１】
重縮合成分は、２－ヒドロキシ－プロパン酸、３－ヒドロキシ－プロパン酸、３－ヒドロキシ－酪酸、４－ヒドロキシ－酪酸、３－ヒドロキシ－ペンタン酸、４－ヒドロキシ－ペンタン酸、及び／又は５－ヒドロキシ－ペンタン酸から選択される脂肪族ヒドロキシ酸であり；及び／又は
【００１２】
重縮合成分は、２－アミノプロパン酸、３－アミノプロパン酸、３－アミノ酪酸、４－アミノ酪酸、４－アミノペンタン酸、５－アミノペンタン酸、６－アミノヘキサン酸、９－アミノステアリン酸、９－アミノメチルステアリン酸、１０－アミノステアリン酸、１０－アミノメチルステアリン酸、１１－アミノウンデカン酸、１２－アミノドデカン酸、及び／又は１２－アミノステアリン酸から選択される脂肪族アミノ酸である。
【００１３】
特定の実施形態では、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物は、ＰＥＴ成分がＰＥＴ使用済み廃棄物源からのＰＥＴ成分であることを提供する。
【００１４】
特定の実施形態では、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物は、ＰＥＴ対重縮合成分のモル比が１：３～３：１の間、より好ましくは１：２～２：１の間、より好ましくは約１：１の範囲であることを提供する。
【００１５】
さらなる態様において、本発明は、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物を調製するための方法であって、
(ａ)ＰＥＴプレポリマーを調製する工程と；
(ｂ)３～１２個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジオール又はジアミン、７～１０個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジカルボン酸、３～１２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジオール又はジアミン、３～３２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジカルボン酸、２～５個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロキシ酸、２～２０個の炭素原子を有する脂肪族アミノ酸及び／又はそれらのアセチル化修飾物から選択される重縮合プレポリマーを調製する工程と；
(ｃ)１：４～４：１の間の範囲のＰＥＴ対重縮合成分のモル比で、ＰＥＴプレポリマーを重縮合プレポリマーと重縮合させる工程
とを含む方法に関する。
【００１６】
特定の実施形態では、本明細書に開示される方法は、工程(ａ)が、テレフタル酸又はジメチルテレフタレートとエチレングリコールとの間のエステル化によってか、又はオリゴ

マーＰＥＴプレポリマーへのＰＥＴの解重合によって起こることを提供する。
【００１７】
特定の実施形態では、本明細書に開示される方法は、工程(ｂ)がエステル化によって起こることを提供する。
【００１８】
特定の実施形態では、本明細書に開示される方法は、工程(ｃ)が
(ｃ１)ＰＥＴプレポリマーを、その軟化点よりも１０～３０℃高い範囲で不活性条件下で溶融させる工程と；
(ｃ２)重縮合プレポリマーを溶融ＰＥＴ成分に添加する工程と；
(ｃ３)ＰＥＴ成分を重縮合プレポリマーと、触媒の非存在下又は存在下で反応させる工程
とを含むことを提供する。
【００１９】
特定の実施形態では、本明細書に開示される方法は、工程(ｃ３)が触媒の存在下で起こり、前記触媒が酢酸亜鉛又はチタン(ＩＶ)ブトキシドであることを提供する。
【００２０】
特定の実施形態では、本明細書に開示される方法は、ＰＥＴ対重縮合成分のモル比が１：３～３：１の間、より好ましくは１：２～２：１の間、より好ましくは約１：１の範囲であることを提供する。
【００２１】
さらなる態様において、本発明は、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物を含む製品に関する。特に、前記製品は、自動車産業、消費財、医療機器、建築及び建設、並びに屋外装置におけるゴム状及びソフトタッチ物品である。
【図面の簡単な説明】
【００２２】
【図１】デンプンと比較した、３０℃での土壌中のＬＭポリマーの呼吸の段階的変化；３つの複製の平均；水平線は、ポリマー中の易生分解性化合物のレベルを示す。
【発明を実施するための形態】
【００２３】
別段の規定のない限り、本発明の開示において使用される全ての用語(技術用語及び科学用語を含む)は、本発明が属する分野の当業者によって一般的に理解されるような意味を有する。さらなる指針によって、用語の定義は、本発明の教示をより正しく評価するために含まれている。
【００２４】
本明細書で引用される全ての参考文献は、参照によりその全体が本明細書に組み込まれると見なされる。
【００２５】
本明細書で使用される場合、以下の用語は、以下の意味を有する：
「１つの(ａ)」、「１つの(ａｎ)」、及び「その(ｔｈｅ)」は、本明細書で使用される場合、文脈から明らかにそうでないと判断されない限り、単数及び複数の両方の指示対象を指す。例として、「１つの区画(ａ　ｃｏｍｐａｒｔｍｅｎｔ)」は、１つ又は複数の区画を指す。
【００２６】
測定可能な値、例えば、パラメータ、量、持続時間等に言及する「約」は、本明細書で使用される場合、指定された値の、及び指定された値からの＋／－２０％以下、特に＋／－１０％以下、より具体的には＋／－５％以下、さらにより具体的には＋／－１％以下、さらにより具体的には＋／－０．１％以下の変動を、このような変動が開示された発明において実施するのに適切である限り、包含することを意味する。しかし、「約」との修飾語が言及する値は、それ自体も具体的に、かつ好ましく開示されることが理解されるべきである。

【００２７】
「含む(ｃｏｍｐｒｉｓｅ)」、「含んでいる(ｃｏｍｐｒｉｓｉｎｇ)」、及び「含む(ｃｏｍｐｒｉｓｅｓ)」及び「から構成される(ｃｏｍｐｒｉｓｅｄ　ｏｆ)」は、本明細書で使用される場合、「含む(ｉｎｃｌｕｄｅ)」、「含んでいる(ｉｎｃｌｕｄｉｎｇ)」、「含む(ｉｎｃｌｕｄｅｓ)」又は「含有する(ｃｏｎｔａｉｎ)」、「含有している(ｃｏｎｔａｉｎｉｎｇ)」、「含有する(ｃｏｎｔａｉｎｓ)」と同義であり、例えば、構成要素に続くものの存在を特定し、当技術分野で知られているか、又はそこに開示されている追加の列挙されていない構成要素、特徴、要素、部材、工程の存在を除外又は排除しない、包括的又はオープンエンドな用語である。

【００２８】
端点による数値範囲の列挙は、その範囲内に含まれている全ての数及び分数、並びに列挙された端点を含む。

【００２９】
「重量パーセント」、「％ｗｔ」又は「重量％」との表現は、本明細書を通して、別段の定義がない限り、製剤の総重量に基づくそれぞれの成分の相対重量を指す。

【００３０】
自然環境中で生分解することができるプラスチック又はゴム材に対する高い必要性を考慮して、本発明者らは、ポリエチレンテレフタレート(ＰＥＴ)成分と特定の重縮合成分とを特定の範囲で組み合わせると、典型的なエラストマー／ゴム状挙動を有する生分解性コポリマー組成物が得られることを見出した。使用される重縮合成分のタイプに応じて、ある特定の特性、例えば、柔軟性をさらに微調整することができる。

【００３１】
したがって、第１の態様では、本発明は、ポリエチレンテレフタレート(ＰＥＴ)成分と、３～１２個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジオール又はジアミン、７～１０個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジカルボン酸、３～１２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジオール又はジアミン、３～３２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジカルボン酸、２～５個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロキシ酸、２～２０個の炭素原子を有する脂肪族アミノ酸及び／又はそれらのアセチル化修飾物から選択される重縮合成分とを含み、ＰＥＴ対重縮合成分のモル比が１：４～４：１の間の範囲である、生分解性コポリマー組成物に関する。

【００３２】
特定の実施形態では、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物は、ポリエチレンテレフタレート(ＰＥＴ)成分と、３～１２個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジオール又はジアミン、７～１０個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジカルボン酸、３～１２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジオール又はジアミン、３～３２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジカルボン酸、２～５個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロキシ酸、２～２０個の炭素原子を有する脂肪族アミノ酸及び／又はそれらのアセチル化修飾物から選択される重縮合成分とから本質的になり、ＰＥＴ対重縮合成分のモル比が１：４～４：１の間の範囲である。

【００３３】
本明細書で使用される場合、「生分解性組成物」との用語及び同様の用語は、生分解性である材料／組成物を指す。生分解性組成物とは、典型的には、材料としての用途においては汎用プラスチックとほぼ同様の物性を有するが、廃棄された後は、自然条件、例えば、主に細菌や真菌である微生物、温度、湿度及び光により、自然環境下、例えば、活性汚泥、土壌、堆肥及び水において、速やかに分解されて有価物に変化し、最終的には二酸化炭素や水にまで分解される(コ)ポリマーを指す。生分解の程度は、一般に、材料が特定の程度まで生分解する時間を指す生分解速度を用いて決定することができる。例えば、２０日で３０％生分解する材料は、２０日で１０％生分解する材料よりも生分解速度が高い。

【００３４】
本明細書で使用される場合、「コポリマー組成物」との用語は、ポリマーが、共重合によって得られる２種のモノマーを含むコポリマーであるポリマー組成物を指す。さらに、

本明細書で使用される場合、「プラスチック物品」は、フィルム、シート、繊維、発泡体、成形物品、不織布、エラストマー又は接着剤に加工されたコポリマー組成物を指す。本明細書で使用される場合、本明細書で言及されるコポリマーは、ポリエチレンテレフタレート(ＰＥＴ)成分及び重縮合成分を提供する。

【００３５】

特定の実施形態では、コポリマーは、線状コポリマー、例えば、交互コポリマー、ランダムコポリマー、統計コポリマー、又はブロック若しくはセグメント化コポリマー、又は分岐鎖コポリマー、例えば、異なる構造を有する分岐鎖コポリマーのグラフトコポリマー、星型コポリマーの分岐コポリマーである。

【００３６】

特に、重縮合成分は、３～１２個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジオール又はジアミン、７～１０個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジカルボン酸、３～１２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジオール又はジアミン、３～３２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジカルボン酸、２～５個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロキシ酸、２～２０個の炭素原子を有する脂肪族アミノ酸及び／又はそれらのアセチル化修飾物から選択される。

【００３７】

より具体的には、重縮合成分は、３～１２個の炭素原子、好ましくは３、４、５、６、７、８、９、１０、１１又は１２個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジオール又はジアミンである。本明細書で言及される場合、「脂肪族」との用語は、直鎖(線状)、分岐鎖、又は非芳香族環で一緒に結合された炭素及び水素を含有する有機化合物を指す。本明細書で言及される場合、「脂肪族ジオール」は、２つのヒドロキシル(－ＯＨ)基を含有する脂肪族化合物を指す。本明細書で言及される場合、「脂肪族ジアミン」は、２つのアミノ基を含有する脂肪族化合物を指す。

【００３８】

より具体的には、重縮合成分は、７～１０個の炭素原子、好ましくは７、８、９又は１０個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジカルボン酸である。本明細書で言及される場合、「脂肪族ジカルボン酸」は、２つのカルボキシル(－ＣＯＯＨ)基を含有する脂肪族化合物を指す。

【００３９】

より具体的には、重縮合成分は、３～１２個の炭素原子、好ましくは３、４、５、６、７、８、９、１０、１１又は１２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジオール又はジアミン、及び／又はそれらのアセチル化修飾物であり、アセチル化修飾物は、好ましくはアセチル化ポリオール、例えば、ソルビトールから選択される。

【００４０】

より具体的には、重縮合成分は、３～３６個の炭素原子、好ましくは３、４、５、６、７、８、９、１０、１１、１２、１３、１４、１５、１６、１７、１８、１９、２０、２１、２２、２３、２４、２５、２６、２７、２８、２９、３０、３１、又は３２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジカルボン酸、及び／又はそのアセチル化修飾物であり、アセチル化修飾物は、好ましくは、アセチル化ジカルボキシレート、例えば、酒石酸及びガラクタル酸から選択される。

【００４１】

より具体的には、重縮合成分は、２～５個の炭素原子、好ましくは２、３、４又は５個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロキシ酸、及び／又はそのアセチル化修飾物である。本明細書で言及される場合、「脂肪族ヒドロキシ酸」は、脂肪族側鎖官能基を含有するヒドロキシ酸を指す。

【００４２】

より具体的には、重縮合成分は、２～２０個の炭素原子、好ましくは３、４、５、６、７、８、９、１０、１１、１２、１３、１４、１５、１６、１７、１８、１９又は２０個の炭素原子を有する脂肪族アミノ酸、及び／又はそのアセチル化修飾物であり、アセチル化修飾物は、好ましくは、アセチル化アミノ酸、例えば、ジヒドロキシリジンから選択さ

れる。本明細書で言及される場合、「脂肪族アミノ酸」は、側鎖官能基を含有する脂肪族アミノ酸を指す。

【００４３】

特定の実施形態では、ＰＥＴ対重縮合成分のモル比は、１：４～４：１の間、より具体的には１：３～３：１の間、より具体的には１：２～２：１の間の範囲であり、より具体的にはＰＥＴ対重縮合成分のモル比は約１：１である。

【００４４】

さらなる特定の実施形態では、コポリマーは、アミド水素結合部位をさらに含む。特定の実施形態では、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物は、重縮合成分が、１，５－ペンタンジオール、１，６－ヘキサンジオール、１，７－ヘプタンジオール、１，８－オクタンジオール、１，９－ノナンジオール、１，１０－デカンジオール、１，５－ペンタンジアミン、１，６－ヘキサンジアミン、１，７－ヘプタンジアミン、１，８－オクタンジアミン、１，９－ノナンジアミン及び／又は１，１０－デカンジアミンから選択される直鎖脂肪族ジオール又はジアミンであることを提供する。特定の実施形態では、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物は、ポリエチレンテレフタレート(ＰＥＴ)成分及び重縮合成分から本質的になり、前記重縮合成分は、１，５－ペンタンジオール及び／又は１，６－ヘキサンジオールである。

【００４５】

特定の実施形態では、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物は、重縮合成分が、ヘプタン二酸、オクタン二酸、ノナン二酸、及び／又はデカン二酸から選択される直鎖脂肪族ジカルボン酸であることを提供する。特定の実施形態では、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物は、ポリエチレンテレフタレート(ＰＥＴ)成分及び重縮合成分から本質的になり、前記重縮合成分は、ノナン二酸及び／又はデカン二酸である。

【００４６】

特定の実施形態では、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物は、重縮合成分が、アルキル化又はアリール化された１，２－エタンジオール、１，３－プロパンジオール、１，４－ブタンジオール、１，５－ペンタンジオール、１，６－ヘキサンジオール、１，７－ヘプタンジオール、１，８－オクタンジオール、１，９－ノナンジオール、１，１０－デカンジオール、１，５－ペンタンジアミン、１，６－ヘキサンジアミン、１，７－ヘプタンジアミン、１，８－オクタンジアミン、１，９－ノナンジアミン及び／又は１，１０－デカンジアミンから選択される分岐鎖脂肪族ジオール又はジアミンであることを提供する。特定の実施形態では、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物は、ポリエチレンテレフタレート(ＰＥＴ)成分及び重縮合成分から本質的になり、前記重縮合成分は、アルキル化又はアリール化されており、好ましくは２－メチル－１，４－ブタンジオール、３－メチル－１，５－ペンタンジオール、１－フェニルエタン－１，２－ジオール及び／又は２－メチル－１，５－ペンタンジアミンである。

【００４７】

特定の実施形態では、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物は、重縮合成分が、アルキル化マロン酸、アルキル化コハク酸、アルキル化ペンタン二酸、アルキル化アジピン酸、アルキル化ヘプタン二酸、アルキル化オクタン二酸、アルキル化ノナン二酸、アルキル化デカン二酸、アルキル化ウンデカン二酸、アルキル化ドデカン二酸、アルキル化トリデカン二酸、アルキル化ヘキサデカン二酸、及び／又はダイマー脂肪二酸から選択される分岐鎖脂肪族ジカルボン酸であることを提供する。本明細書で言及される場合、「ダイマー脂肪二酸」(ダイマー脂肪酸とも呼ばれる)との用語は、当技術分野で周知であり、一又は多価不飽和脂肪酸及び／又はそのエステルの二量体化生成物を指す。特定の実施形態では、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物は、ポリエチレンテレフタレート(ＰＥＴ)成分及び重縮合成分から本質的になり、前記重縮合成分は、アルキル化又はアリール化コハク酸、例えば、２－メチル－サクシネートである。

【００４８】

特定の実施形態では、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物は、重縮合成分

が、２－ヒドロキシ－プロパン酸、３－ヒドロキシ－プロパン酸、３－ヒドロキシ－酪酸、４－ヒドロキシ－酪酸、３－ヒドロキシ－ペンタン酸、４－ヒドロキシ－ペンタン酸、及び／又は５－ヒドロキシ－ペンタン酸から選択される脂肪族ヒドロキシ酸であることを提供する。

【００４９】

特定の実施形態では、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物は、重縮合成分が、２－アミノプロパン酸、３－アミノプロパン酸、３－アミノ酪酸、４－アミノ酪酸、４－アミノペンタン酸、５－アミノペンタン酸、６－アミノヘキサン酸、９－アミノステアリン酸、９－アミノメチルステアリン酸、１０－アミノステアリン酸、１０－アミノメチルステアリン酸、１１－アミノウンデカン酸、１２－アミノドデカン酸、及び／又は１２－アミノステアリン酸から選択される脂肪族アミノ酸であることを提供する。

【００５０】

特定の実施形態では、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物は、ＰＥＴ成分が、ＰＥＴ廃棄物、例えば、ＰＥＴ使用済み廃棄物に由来することを提供する。本発明の材料へのＰＥＴリサイクル中、ＰＥＴ廃棄物は、洗浄され、粉砕され、乾燥され、さらにリサイクルされ、最終的には、一般に知られているリサイクル及び鎖伸長技術を使用して鎖伸長される。

【００５１】

特定の実施形態では、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物は、ＰＥＴ対重縮合成分のモル比が１：３～３：１の間、より好ましくは１：２～２：１の間の範囲、より好ましくは約１：１の範囲であることを特徴とする。

【００５２】

特定の実施形態では、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物は、前記ポリマーが、１０ｋＤａ超、より好ましくは２０ｋＤａ超、最も好ましくは３０ｋＤａ超のＭｗを有することを特徴とすることを提供する。

【００５３】

さらなる態様において、本明細書に開示されるのは、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物を調製するための方法であって、

(ａ)ＰＥＴプレポリマーを調製する工程と；

(ｂ)３～１２個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジオール又はジアミン、７～１０個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジカルボン酸、３～１２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジオール又はジアミン、３～３２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジカルボン酸、２～５個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロキシ酸、２～２０個の炭素原子を有する脂肪族アミノ酸及び／又はそれらのアセチル化修飾物から選択される重縮合プレポリマーを調製する工程と；

(ｃ)１：４～４：１の間の範囲のＰＥＴ対重縮合成分のモル比で、ＰＥＴプレポリマーを重縮合プレポリマーと重縮合させる工程

とを含む方法である。

【００５４】

特定の実施形態では、コポリマーは、線状コポリマー、例えば、交互コポリマー、ランダムコポリマー、統計コポリマー、又はブロック若しくはセグメント化コポリマー、又は分岐鎖コポリマー、例えば、異なる構造を有する分岐鎖コポリマーのグラフトコポリマー、星型コポリマーの分岐コポリマーである。

【００５５】

特に、重縮合成分は、３～１２個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジオール又はジアミン、７～１０個の炭素原子を有する直鎖脂肪族ジカルボン酸、３～１２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジオール又はジアミン、３～３２個の炭素原子を有する分岐鎖脂肪族ジカルボン酸、２～５個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロキシ酸、２～２０個の炭素原子を有する脂肪族アミノ酸及び／又はそれらのアセチル化修飾物から選択される。

【００５６】

特定の実施形態では、本明細書に開示される方法は、工程(ａ)が、テレフタル酸又はジメチルテレフタレートとエチレングリコールとの間のエステル化によってか、又はオリゴマーＰＥＴプレポリマーへのＰＥＴの解重合によって起こることを提供する。

【００５７】

特定の実施形態では、本明細書に開示される方法は、工程(ｂ)が重縮合によって起こることを提供する。特に、重縮合ポリマーは、絡み合った構造を可能にする鎖長を達成する。より具体的には、ポリマーが、１０ｋＤａ超、より好ましくは２０ｋＤａ超、最も好ましくは３０ｋＤａ超のＭｗを有することを特徴とすることを提供する。

【００５８】

特定の実施形態では、本明細書に開示される方法は、工程(ｃ)が

(ｃ１)ＰＥＴプレポリマーを、その軟化点よりも１０～３０℃高い範囲で不活性条件下で溶融させる工程と；

(ｃ２)重縮合プレポリマーを溶融ＰＥＴ成分に添加する工程と；

(ｃ３)ＰＥＴ成分を重縮合プレポリマーと、触媒の非存在下又は存在下で反応させる工程

とを含むことを提供する。

【００５９】

工程(ｃ１)は、N_2雰囲気下、２３０℃～２６０℃の温度、より具体的には約２４５℃の温度で行われる。

【００６０】

特定の実施形態では、本明細書に開示される方法は、工程(ｃ３)が触媒の存在下で起こり、触媒が酢酸亜鉛又はチタン(ＩＶ)ブトキシドであることを提供する。

【００６１】

特定の実施形態では、本明細書に開示される方法は、工程(ｃ３)が触媒の存在下で起こり、前記触媒が$Ti(BuO)_4$であることを提供する。より具体的には、工程(ｃ３)は、２２０℃～２５０℃の間の温度で３～８時間、より具体的には約２３５℃の温度で３～８時間起こる。

【００６２】

特定の実施形態では、本明細書に開示される方法は、ＰＥＴ対重縮合成分のモル比が１：３～３：１の間、より好ましくは１：２～２：１の間、より好ましくは約１：１の範囲であることを提供する。

【００６３】

さらなる態様において、本発明は、本明細書に開示される生分解性コポリマー組成物を含む製品に関する。特に、前記製品は、自動車産業(フード下のホース、ボタン、ダッシュボードパネル)、消費財(ドリル、シェービング装置、キッチンツール、時計のリストバンド)、医療機器、建築及び建設(窓ライナー、断熱パネル)及びアウトドア用具(衝撃吸収材、靴底、ボタン及びバックパック上のストリップ)におけるゴム状及びソフトタッチ物品である。

【実施例】

【００６４】

<u>実施例１</u>

本発明による生分解性コポリマー組成物(ＬＭ０９２)は、２－メチルコハク酸(０．６６ｍｏｌ)及び１，１０－デカンジオール(０．６９ｍｏｌ)を反応器に投入し、機械的撹拌及びN_2雰囲気下で混合物を１３５℃に加熱し、３時間(水が除去されなくなるまで)連続的に水を除去しながらエステル化のために温度を２００～２２５℃に徐々に上昇させることによって、ポリ(デシレンメチルサクシネート)プレポリマーを調製することによって製造した。ＰＥＴプレポリマーは、テレフタル酸(１ｍｏｌ)及びエチレングリコール(１．３ｍｏｌ)を反応器に投入し、１９０℃、５ＭＰａの圧力で３～４時間エステル化を行うことによって調製した。

【００６５】

調製したプレポリマーは、ＰＥＴプレポリマーをフラスコに投入し、N_2流及び撹拌下で２４５℃でそれを溶融し、重縮合プレポリマーをフラスコに添加し、１０分後に$Ti(BuO)_4$触媒を添加し、調製した混合物を０．５ｍｍＨｇの真空下で２３５℃で３～８時間反応させることによって、コポリエステルに向けて重縮合した。

【００６６】

本発明による別の生分解性コポリマー組成物(ＬＭ０８６)は、コハク酸(０．６６ｍｏｌ)及び１，１０－デカンジオール(０．６９ｍｏｌ)を反応器に投入し、機械的撹拌及びN_2雰囲気下で混合物を１３５℃に加熱し、３時間(水が除去されなくなるまで)連続的に水を除去しながらエステル化のために温度を２００～２２５℃に徐々に上昇させることによって、ポリ(デシレンメチルサクシネート)プレポリマーを調製することによって製造した。ＰＥＴプレポリマーは、テレフタル酸(１ｍｏｌ)及びエチレングリコール(１．３ｍｏｌ)を反応器に投入し、１９０℃、５ＭＰａの圧力で３～４時間エステル化を行うことによって調製した。

【００６７】

調製したプレポリマーは、ＰＥＴプレポリマーをフラスコに投入し、N_2流及び撹拌下で２４５℃でそれを溶融し、重縮合プレポリマーをフラスコに添加し、１０分後に$Ti(BuO)_4$触媒を添加し、調製した混合物を０．５ｍｍＨｇの真空下で２３５℃で３～８時間反応させることによって、コポリエステルに向けて重縮合した。

表１に、調製したコポリマーの特性を示す。

【００６８】

【表１】

表1	試料	融点（℃）	ガラス転移温度（℃）
	LM086	195	−30
	LM092	90	−30

【００６９】

ＬＭ０８６及びＬＭ０９２組成物の生分解を、土壌条件におけるプラスチックの生分解についてのＡＳＴＭＤ５９８８－１８試験方法を使用して測定した。

ポリマーＬＭ０８６は、１９週間で平均１５％(１０～２０％の範囲)生分解され、その後、生分解は停止したようであった。ポリマーＬＭ０９２は、６ヶ月の時間で平均４６％(３８％～５６％の間の範囲)分解し、分解が進行していた。この４６％の平均生分解性は、デンプンの生分解性(～５７％)に近い。図１において、ＬＭ０９２の生分解は、反復実験１において、デンプンの生分解と非常に類似していたことが分かる。土壌呼吸試験により、ポリマーＬＭ０９２が高度に生分解性であり、同じ条件下でデンプンの生分解性に近い生分解性を有することが示された。

【００７０】

実施例２

本発明による生分解性コポリマー組成物を、ＰＥＴ及びポリ(ブチレンサクシネート－ｃｏ－ブチレンアジペート)プレポリマーを、実施例１の重縮合法に従って加熱することによって製造した。

試料Ａ１及びＡ２は、ＰＥＴ：ＰＢＳＡの２：３プレポリマーから、２８０～２９０℃でそれぞれ１時間及び１．６５時間反応させたコポリマーである。試料Ｂ１及びＢ２は、ＰＥＴ：ＰＢＳＡの１：１プレポリマーから、２８０～２９０℃でそれぞれ０時間及び１．５時間反応させたコポリマーである。

表２に、調製したコポリマーの特性を示す。

【００７１】

【表２】

表２	試料	融点（℃）	ショア硬度Ａ	引張強度（MPa）	引張破断歪（％）
	A1	168	89	5.72	75
	A2	128	86	3.92	65
	B1	230	96.5	20.1	153
	B2	159	90	5.98	110

【００７２】

ショア硬度Ａパラメータから、調製したコポリマー組成物は、顕著なエラストマー熱可塑性挙動を有すると結論付けることができる。

【００７３】

実施例３

本発明による生分解性コポリマー組成物(ＬＭＰ０３)は、セバシン酸(０．６６ｍｏｌ)及びネオペンチルグリコール(０．６９ｍｏｌ)を反応器に投入し、機械的撹拌及びN_2雰囲気下で混合物を１３５℃に加熱し、３時間(水が除去されなくなるまで)連続的に水を除去しながらエステル化のために温度を２００～２２５℃に徐々に上昇させることによって、ポリ(ネオペンチルセバケート)プレポリマーを調製することによって製造する。ＰＥＴプレポリマーを実施例１に従って調製する。

【００７４】

調製したプレポリマーは、ＰＥＴプレポリマーをフラスコに投入し、N_2流及び撹拌下で２４５℃でそれを溶融し、重縮合プレポリマーをフラスコに添加し、１０分後に$Ti(BuO)_4$触媒を添加し、調製した混合物を０．５ｍｍＨｇの真空下で２３５℃で３～８時間反応させることによって、コポリエステルに向けて重縮合する。

【００７５】

実施例４

本発明による生分解性コポリマー組成物(ＬＭＰ０４)は、１モルの６－ヘキサノラクトン及び０．１モルのデシルアルコールを反応器に投入し、混合物を機械的撹拌及びN_2雰囲気下で１５０℃に加熱し、温度を２００℃に３０分間かけて徐々に上昇させることによってポリ(６－ヒドロキシ－ヘキサノエート)プレポリマーを調製することによって製造する。ＰＥＴプレポリマーを実施例１に従って調製する。

【００７６】

調製したプレポリマーは、ＰＥＴプレポリマーをフラスコに投入し、N_2流及び撹拌下で２４５℃でそれを溶融し、ポリ(６－ヒドロキシ－ヘキサノエート)プレポリマーをフラスコに添加し、２０ｍｏｌ％の無水コハク酸を添加し、１０分後に２５０ｐｐｍの$Ti(BuO)_4$触媒を添加し、調製した混合物を０．５ｍｍＨｇの真空下で２３５℃で３～８時間反応させることによって、コポリエステルに向けて等モルで重縮合する。

【００７７】

実施例５

本発明による生分解性コポリマー組成物(ＬＭＰ０５)は、１．０ｍｏｌの６－アミノ－ヘキサン酸及び０．０５ｍｏｌの酢酸を反応器に投入し、混合物を機械的撹拌及びN_2雰囲気下で１８０℃に加熱し、８時間連続的に水を除去しながらアミド化のために温度を２６０℃に徐々に上昇させることによってポリ(６－アミノ－ヘキサノエート)プレポリマーを調製することによって製造する。ＰＥＴプレポリマーを実施例１に従って調製する。

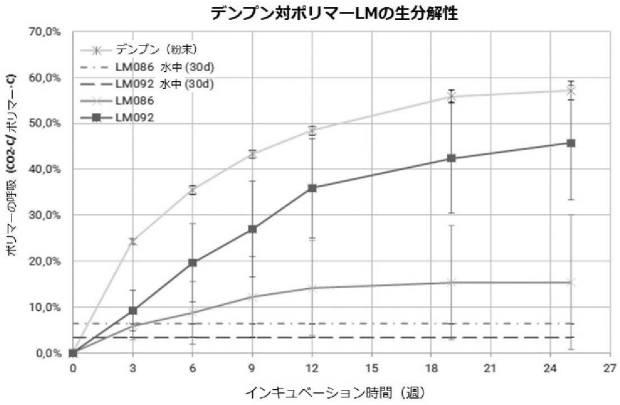
【００７８】

調製したプレポリマーは、ＰＥＴプレポリマーをフラスコに投入し、N_2流及び撹拌下で２４５℃でそれを溶融し、ポリ(６－アミノ－ヘキサノエート)プレポリマーをフラスコに添加し、２０ｍｏｌ％のアジピン酸無水物を添加し、１０分後に２５０ｐｐｍの$Ti(BuO)_4$触媒を添加し、調製した混合物を０．５ｍｍＨｇの真空下で２３５℃で３～８

時間反応させることによって等モルで重縮合する。

【図面】

【図１】



【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2023/059740

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. C08G63/183
ADD.

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)
C08G

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

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 8 916 322 B2 (XEROX CORP [US]) 23 December 2014 (2014-12-23) example 3 -----	1-15
A	WO 2016/028837 A1 (RESINATE MATERIALS GROUP INC [US]) 25 February 2016 (2016-02-25) example I -----	1-15

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☒ See patent family annex.

* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance;; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance;; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
12 July 2023	20/07/2023

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Scheunemann, Sven

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (April 2005)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No
PCT/EP2023/059740

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 8916322 B2	23-12-2014	BR 102013028225 A2	21-10-2014
		CA 2832607 A1	15-05-2014
		JP 6138021 B2	31-05-2017
		JP 2014098149 A	29-05-2014
		RU 2013150709 A	20-05-2015
		US 2014134534 A1	15-05-2014
WO 2016028837 A1	25-02-2016	BR 112017003344 A2	23-01-2018
		CN 107087412 A	22-08-2017
		EP 3183286 A1	28-06-2017
		JP 2017535662 A	30-11-2017
		KR 20170081164 A	11-07-2017
		US 2017029551 A1	02-02-2017
		US 2017029561 A1	02-02-2017
		WO 2016028837 A1	25-02-2016
		WO 2016028841 A1	25-02-2016

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (April 2005)

フロントページの続き

(51)国際特許分類	FI	テーマコード（参考）
C08L 101/16 (2006.01)	C08L 101/16	

,MC,ME,MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,CV,CZ,DE,DJ,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IQ,IR,IS,IT,JM,JO,JP,KE,KG,KH,KN,KP,KR,KW,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LU,LY,MA,MD,MG,MK,MN,MU,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SA,SC,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

(74)代理人 100166936
弁理士 稲本 潔
(74)代理人 100189429
弁理士 保田 英樹
(74)代理人 100213849
弁理士 澄川 広司
(72)発明者 ドゥ ワイルドマン，ステファン
ベルギー、３６３０ マースメヘレン、パウル ランベルトラーン ８８
(72)発明者 モンセギュー，ルチアーノ
オランダ、６２１４－ピーイー マーストリヒト、ブローウェルズウェッヒ １ディー

Ｆターム（参考）
4J001 DA03 DB04 DC03 DC14 EA23 EB09 EB13 EB37 EC08 EC09 ED04 ED05 ED06 ED07 ED08 ED09 ED13 EE29A GA12 JA01 JA05 JA12 JB06 JB07 JB21
4J029 AA03 AB01 AB04 AC02 AE01 AE03 AE06 BA02 BA03 CA02 CA09 HA01 HA05 HB01 HB03A HB07 JB131 JB161 JC032 JF181 JF321 KA02 KB03 KB13 KG02
4J200 AA02 AA09 BA03 BA05 BA19 BA29 CA01 DA22 DA28 EA04