

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5114492号
(P5114492)

(45) 発行日 平成25年1月9日(2013.1.9)

(24) 登録日 平成24年10月19日(2012.10.19)

(51) Int. Cl.		F I	
CO8L 67/02	(2006.01)	CO8L 67/02	
CO8L 33/08	(2006.01)	CO8L 33/08	
CO8K 5/5313	(2006.01)	CO8K 5/5313	
CO8K 5/14	(2006.01)	CO8K 5/14	
CO8K 5/00	(2006.01)	CO8K 5/00	

請求項の数 7 (全 19 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2009-537190 (P2009-537190)
(86) (22) 出願日	平成19年11月14日(2007.11.14)
(65) 公表番号	特表2010-509485 (P2010-509485A)
(43) 公表日	平成22年3月25日(2010.3.25)
(86) 国際出願番号	PCT/US2007/023865
(87) 国際公開番号	W02008/060549
(87) 国際公開日	平成20年5月22日(2008.5.22)
審査請求日	平成22年11月12日(2010.11.12)
(31) 優先権主張番号	60/858,765
(32) 優先日	平成18年11月14日(2006.11.14)
(33) 優先権主張国	米国 (US)

(73) 特許権者	390023674
	イー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・
	アンド・カンパニー
	E. I. DU PONT DE NEMO
	URS AND COMPANY
	アメリカ合衆国、デラウェア州、ウイルミ
	ントン、マーケット・ストリート 100
	7
(74) 代理人	100077481
	弁理士 谷 義一
(74) 代理人	100088915
	弁理士 阿部 和夫

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 難燃性熱可塑性エラストマー組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

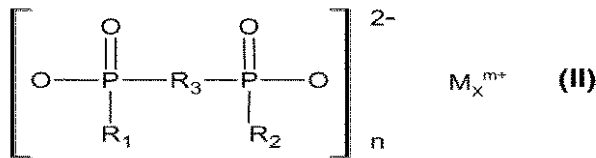
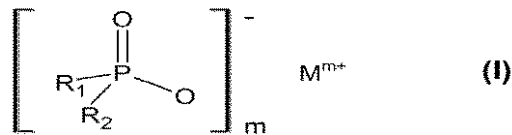
(a) (i) 15 ~ 75 重量%の少なくとも1種の熱可塑性ポリエステル連続相、および

(ii) 25 ~ 85 重量%の少なくとも1種のポリ(メタ)アクリレートまたはポリエチレン/(メタ)アクリレートゴム分散相であって、

前記ゴムが、少なくとも1種の過氧化物フリーラジカル開始剤および少なくとも1種の有機多価オレフィン助剤により動的に架橋される、ゴム分散相、を含む溶融加工可能な熱可塑性加硫物組成物を70 ~ 99 重量%と、

(b) 式(I)のホスフィン酸塩および/または式(II)のジスホスフィン酸塩

【化 1】



10

【式中、 R_1 および R_2 は、同一であっても異なってもよく、直鎖もしくは分枝鎖の $C_1 \sim C_6$ アルキル、および / またはアリールであり、 R_3 は、直鎖もしくは分枝鎖の $C_1 \sim C_{10}$ - アルキレン、 $C_6 \sim C_{10}$ - アリーレン、- アルキルアリーレンまたは - アリールアルキレンであり、 M は、カルシウムイオン、マグネシウムイオン、アルミニウムイオン、および / または亜鉛イオンであり、 m は 2 ~ 3 であり、 n は 1 または 3 であり、そ

20

して x は 1 または 2 である】、

および / またはそれらのポリマーを含む少なくとも 1 種の難燃剤を 1 ~ 30 重量%と、を含む難燃性熱可塑性エラストマー組成物であって、

ここで、(a) および (b) の重量パーセントは (a) と (b) との総重量に基づき、

(i) および (ii) の重量パーセントは (i) と (ii) との総重量に基づく、組成物。

【請求項 2】

請求項 1 に記載の組成物を含む、成型物品、押出成形物品または成形物品。

【請求項 3】

請求項 1 に記載の組成物を含むコーティングを備える、ワイヤまたはケーブル。

30

【請求項 4】

請求項 1 に記載の組成物を含むコーティングを備える、自動車用主ケーブル。

【請求項 5】

1 種もしくはそれ以上の非晶質ポリマーをさらに含む請求項 1 に記載の組成物を含む、成型物品、押出成形物品または成形物品。

【請求項 6】

1 種もしくはそれ以上の非晶質ポリマーをさらに含む請求項 1 に記載の組成物を含むコーティングを備える、ワイヤまたはケーブル。

【請求項 7】

1 種もしくはそれ以上の非晶質ポリマーをさらに含む請求項 1 に記載の組成物を含むコーティングを備える、自動車用主ケーブル。

40

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、溶融加工可能な熱可塑性加硫物と、非ハロゲン化難燃剤とを含む難燃性熱可塑性エラストマー組成物に関する。

【背景技術】

【0002】

優れた引裂強さ、引っ張り強さ、可撓性寿命、耐摩耗性、幅広い有用な最終用途温度範囲の結果として、熱可塑性ポリエーテルエステルエラストマーは広範囲の用途で使用され

50

ている。しかしながら、ある特定の用途では、熱可塑性ポリエーテルエステルエラストマー組成物が難燃性であることが望ましい。いくつかの用途では、ハロゲン化された、特にブromo化された難燃剤を使用することができるが、そのような物質の使用には欠点がある。例えば、それらは、組成物を調製および成型するために使用される加工温度で分解することがあり、その結果として生じた分解生成物は、配合押出機の樽、成型機の表面および他の装置を腐食し得る。さらに、分解生成物によって、外観不良の成型物品を生じ得る。

【0003】

したがって、非ハロゲン化難燃剤を含有する難燃性熱可塑性エラストマー組成物を得ることが望ましい。空気中での加熱老化後に物性を良好に保持するかかる組成物を得ることが特に望ましい。

10

【0004】

米国特許第7,074,857号明細書および米国特許出願公開第2005/084694号明細書には、熔融加工可能な熱可塑性エラストマー組成物（熱可塑性加硫物組成物とも呼ばれる）が記載されている。米国特許第4,180,495号明細書には、ポリエステルおよびポリアミドに難燃性を与えるホスフィン酸塩の使用が開示されている。米国特許第6,255,371号明細書には、ホスフィナート、ジスホスフィナートまたはそれらのポリマーを含む難燃剤が開示されている。米国特許第5,780,534号明細書および米国特許第6,013,707号明細書には、ホスフィン酸またはジホスフィン酸のカルシウム塩またはアルミニウム塩を含有する難燃性ポリエステル組成物が開示されている。米国特許第6,270,560号明細書には、ポリマーの成型組成物用難燃剤として適切なホスフィン酸アルミニウム、水酸化アルミニウムおよび/またはホスホン酸アルミニウムおよび/またはリン酸アルミニウムから製造された塩混合物が開示されている。

20

【発明の概要】

【課題を解決するための手段】

【0005】

本明細書には、

(a) (i) 約15～約75重量%の少なくとも1種の熱可塑性ポリエステル連続相、および

(ii) 約25～約85重量%の少なくとも1種のポリ(メタ)アクリレートまたはポリエチレン/(メタ)アクリレートゴム分散相であって、前記ゴムが、少なくとも1種の過酸化物フリーラジカル開始剤および少なくとも1種の有機多価オレフィン助剤により動的に架橋される、ゴム分散相と、

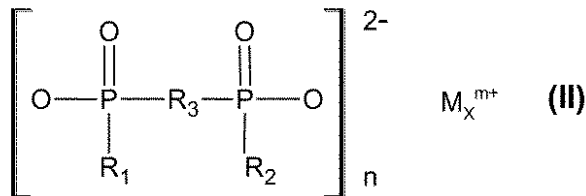
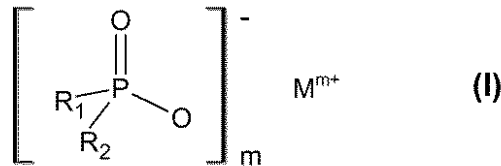
30

を含む熔融加工可能な熱可塑性加硫物組成物を約70～約99重量%と、

(b) 式(I)のホスフィン酸塩および/または式(II)のジスホスフィン酸塩

【0006】

【化1】



10

【0007】

(式中、 R_1 および R_2 は、同一であっても異なってもよく、水素、直鎖もしくは分枝鎖の $C_1 \sim C_6$ アルキル、および/またはアリールであり、 R_3 は、直鎖もしくは分枝鎖の $C_1 \sim C_{10}$ -アルキレン、 $C_6 \sim C_{10}$ -アリーレン、-アルキルアリーレンまたは-アリールアルキレンであり、Mは、カルシウムイオン、マグネシウムイオン、アルミニウムイオン、および/または亜鉛イオンであり、mは2~3であり、nは1または3であり、そしてxは1または2である)、ならびに/あるいはそれらのポリマーを含む少なくとも1種の難燃剤を約1~約30重量%と、

20

を含む難燃性熱可塑性エラストマー組成物であって、

ここで、(a)および(b)の重量パーセントは(a)と(b)との総重量に基づき、(i)および(ii)の重量パーセントは(i)と(ii)との総重量に基づく組成物を開示および請求する。さらに、それによって製造された物品を開示および請求する。

30

【発明を実施するための形態】

【0008】

本発明の難燃性熱可塑性エラストマー組成物は、熔融加工可能な熱可塑性加硫物組成物(a)と、非ハロゲン化難燃剤(b)とを含む。熔融加工可能な熱可塑性加硫物組成物(a)は、(a)+(b)の総重量に基づき、約70~約99重量%、または好ましくは約80~約98重量%、またはより好ましくは約85~約97重量%の量で存在する。非ハロゲン化難燃剤(b)は、(a)+(b)の総重量に基づき、約1~約30重量%、または好ましくは約2~約20重量%、またはより好ましくは約3~約15重量%の量で存在する。

【0009】

40

本発明で使用される熔融加工可能な熱可塑性加硫物組成物は、本明細書に参照として組み込まれる米国特許第7,074,857号明細書および米国特許出願公開第2005/084694号明細書に記載されている。熔融加工可能な熱可塑性加硫物組成物は、(i)約15~約75重量%、または好ましくは約15~約60重量%の少なくとも1種の、連続相を形成する熱可塑性ポリエステルと、(ii)約25~約85重量%、または好ましくは約40~約85重量%の少なくとも1種の、分散相を形成するポリ(メタ)アクリレートまたはポリエチレン/(メタ)アクリレートゴム(分散相は連続相中に分散される)とを含み、上記ゴムは、過氧化物フリーラジカル開始剤および有機多価オレフィン助剤により動的に架橋され、成分(i)および(ii)の重量パーセントは(i)+(ii)の総重量に基づく。

50

【 0 0 1 0 】

本明細書で使用される場合、「(メタ)アクリル酸」という用語は、メタクリル酸および/またはアクリル酸を指し、「(メタ)アクリレート」という用語は、メタクリレートおよび/またはアクリレートを指し、そして「ポリ(メタ)アクリレート」という用語は、メタクリレートおよび/またはアクリレートモノマーの重合から誘導されたポリマーを指す。本明細書で使用される場合、「熱可塑性ポリエステル」という用語は、成分(i)を指し、熱可塑性ポリエステルエラストマーを含む。本明細書で使用される場合、「アクリレートゴム」という用語は、ポリ(メタ)アクリレートまたはポリエチレン/(メタ)アクリレートゴムを指す。

【 0 0 1 1 】

1種もしくはそれ以上の(メタ)アクリレートモノマーと、1種もしくはそれ以上のオレフィンとの共重合によって、アクリレートゴムを調製することができる。好ましいオレフィンはエチレンである。本明細書で使用される場合、「架橋されたアクリレートゴム」という用語は、成分(ii)を指す。好ましいアクリレートゴムとしては、ポリ(アルキル(メタ)アクリレート)ゴム、エチレン/アルキル(メタ)アクリレートコポリマーゴムおよびポリ(ペルフルオロアルキル(メタ)アクリレート)ゴムが挙げられ、より好ましくは、アルキル基が1個~4個の炭素を有するエチレン/アルキル(メタ)アクリレートコポリマーゴムである。好ましいエチレン/アルキル(メタ)アクリレートコポリマーは、約80重量%未満のエチレンおよび約20重量%より多くのアルキル(メタ)アクリレートから誘導されたものである。

【 0 0 1 2 】

アクリレートゴムは、(メタ)アクリレートグリシジルエステル(例えば、グリシジルメタクリレート)、マレイン酸、または酸、ヒドロキシル、エポキシ、イソシアネート、アミン、オキサゾリン、クロロアセテートまたはジエン官能基を含む1種もしくはそれ以上の反応基を有する他のモノマーのような1種もしくはそれ以上の官能化モノマーから誘導された追加的な繰返し単位を任意に含んでもよい。

【 0 0 1 3 】

3種以上の(メタ)アクリレートモノマーからもアクリレートゴムを製造してもよい。例えば、エチレン、メチルアクリレートおよび第2のアクリレート(例えば、ブチルアクリレート)の重合によって製造されたアクリレートゴムである。

【 0 0 1 4 】

本発明の一実施形態において、米国特許第7,074,857号明細書および米国特許出願公開第2005/084694号明細書に記載の通り、有機過酸化物フリーラジカル開始剤および有機ジエン助剤の存在下で、少なくとも1種の熱可塑性ポリエステルを少なくとも1種のアクリレートゴムと混合することによって、熔融加工可能な熱可塑性加硫物組成物を調製してもよい。

【 0 0 1 5 】

適切な過酸化物フリーラジカル開始剤は、好ましくは、動的架橋の温度で迅速に分解する。例としては、2,5-ジメチル-2,5-ジ-(t-ブチルペルオキシ)-3-ヘキシン、t-ブチルペルオキシベンゾエート、2,5-ジメチル-2,5-ジ-(t-ブチルペルオキシ)-2,5-ジメチルヘキサン、ジクミルペルオキシド、 $\text{C}_6\text{H}_5\text{OOC(CH}_2\text{)}_2\text{OOC-C}_6\text{H}_5$ -ビス(t-ブチルペルオキシ)-2,5-ジメチルヘキサン等が挙げられる。

【 0 0 1 6 】

適切な有機多価オレフィン架橋助剤としては、限定されないが、ジエチレングリコールジアクリレート、ジエチレングリコールジメタクリレート、N,N'-m-フェニレンジマレイミド、トリアリルイソシアヌレート、トリメチロールプロパントリメタクリレート、テトラアリルオキシエタン、トリアリルシアヌレート、テトラメチレングリアクリレート、ポリエチレングリコールジメタクリレート等が挙げられる。

【 0 0 1 7 】

実際の成分の混合と、その後の動的架橋は、当業者に既知のいずれかの方法を使用して

10

20

30

40

50

実施されてよい。例えば、当該技術分野で一般に実施される従来の溶融ブレンド装置を使用して、バッチモードまたは連続モードのいずれで実行されてもよい。

【0018】

好ましい熱可塑性ポリエステルは、典型的に、1種もしくはそれ以上のジカルボン酸（本明細書中、「ジカルボン酸」という用語は、エステルのようなジカルボン酸誘導体も指す）と、1種もしくはそれ以上のジオールとから誘導される。好ましいポリエステルでは、ジカルボン酸は、テレフタル酸、イソフタル酸および2,6-ナフタレンジカルボン酸のうちの一つもしくはそれ以上から構成され、そしてジオール成分は、 $\text{HO}(\text{CH}_2)_n\text{OH}$ (I)、1,4-シクロヘキサジメタノール； $\text{HO}(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_m\text{CH}_2\text{CH}_2\text{OH}$ (II) および $\text{HO}(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_z\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{OH}$ (III)（式中、 n は2~10の整数であり、 m は平均で1~4であり、 z は平均で約7~約40である）のうちの一つもしくはそれ以上から構成される。(II)および(III)は、 m および z がそれぞれ変化し得る化合物の混合物であってよく、また m および z は平均であるため、それらが整数である必要はないことに留意すべきである。熱可塑性ポリエステルを形成するために使用されてもよい他のジカルボン酸としては、セバシン酸およびアジピン酸が挙げられる。ヒドロキシ安息香酸のようなヒドロキシカルボン酸をモノマーとして使用してもよい。特に好ましいポリエステルとしては、ポリ(エチレンテレフタレート)(PET)、ポリ(トリメチレンテレフタレート)(PTT)、ポリ(1,4-ブチレンテレフタレート)(PBT)、ポリ(エチレン2,6-ナフトエート)およびポリ(1,4-シクロヘキシルジメチレンテレフタレート)(PCT)が挙げられる。

10

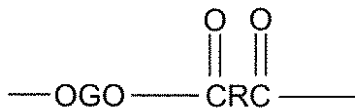
20

【0019】

熱可塑性ポリエステルは、コポリエーテルエステルのような熱可塑性ポリエステルエラストマーであってもよい。有用なコポリエーテルエステルは、エステル結合によって頭尾結合した多数の繰返し長鎖エステル単位と短鎖エステル単位とを有するコポリマーであって、上記長鎖エステル単位が式(A)

【0020】

【化2】



(A)

30

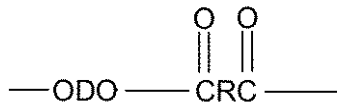
【0021】

で表され、上記短鎖エステル単位が式(B)

【0022】

40

【化3】



(B)

10

【0023】

(式中、

Gは、約400と約6000との間、または好ましくは約400と約3000との間の数平均分子量を有するポリ(アルキレンオキシド)グリコールから末端ヒドロキシル基を除去した後に残る二価の基であり、

Rは、約300未満の分子量を有するジカルボン酸からカルボキシル基を除去した後に残る二価の基であり、

Dは、約250未満の分子量を有するジオールからヒドロキシル基を除去した後に残る二価の基である)で表され、好ましくは、約15重量%～約99重量%の短鎖エステル単位と、約1重量%～約85重量%の長鎖エステル単位とを含有するか、またはより好ましくは、約20重量%～約95重量%の短鎖エステル単位と、約5重量%～約80重量%の長鎖エステル単位とを含有するコポリマーである。

20

【0024】

本明細書で使用される場合、ポリマー鎖中の単位に使用される「長鎖エステル単位」という用語は、長鎖グリコールとジカルボン酸との反応生成物を指す。適切な長鎖グリコールは、末端(または可能な限り末端に近い)ヒドロキシ基を有し、数平均分子量が約400～約6000、好ましくは約600～約3000であるポリ(アルキレンオキシド)グリコールである。好ましいポリ(アルキレンオキシド)グリコールとしては、ポリ(テトラメチレンオキシド)グリコール、ポリ(トリメチレンオキシド)グリコール、ポリ(プロピレンオキシド)グリコール、ポリ(エチレンオキシド)グリコール、これらのアルキレンオキシドのコポリマーグリコール、およびエチレンオキシド-キャップド(capped)ポリ(プロピレンオキシド)グリコールのようなブロックコポリマーが挙げられる。これらのグリコールの2種以上の混合物を使用することもできる。

30

【0025】

コポリエーテルエステルのポリマー鎖中の単位に使用される「短鎖エステル単位」という用語は、約550未満の分子量を有する低分子量化合物またはポリマー鎖単位を指す。低分子量ジオールまたはジオールの混合物(分子量が約250未満のもの)とジカルボン酸とを反応させ、上記式(B)で表されるエステル単位を形成することによって製造される。

【0026】

コポリエーテルエステルの調製用に適切な、反応して短鎖エステル単位を形成する低分子量ジオールに含まれるのは、非環式、脂環式および芳香族ジヒドロキシ化合物である。好ましい化合物は、エチレン、プロピレン、イソブチレン、テトラメチレン、1,4-ペンタメチレン、2,2-ジメチルトリメチレン、ヘキサメチレンおよびデカメチレングリコール、ジヒドロキシシクロヘキサン、シクロヘキサジメタノール、レソルシノール、ヒドロキノン、1,5-ジヒドロキシナフタレン等のような約2～15個の炭素原子を有するジオールである。特に好ましいジオールは、2～8個の炭素原子を含有する脂肪族ジオールであり、そしてより好ましいジオールは、1,4-ブタンジオールである。使用可能なビスフェノールに含まれるものは、ビス(p-ヒドロキシ)ジフェニル、ビス(p-ヒドロキシフェニル)メタン、およびビス(p-ヒドロキシフェニル)プロパンである。

40

50

ジオールの同等のエステルを形成する誘導体も有用である（例えば、エチレングリコールの代わりにエチレンオキsidまたはエチレンカーボネートを使用可能であり、またレソルシノールの代わりに二酢酸レソルシノールを使用可能である）。本明細書で使用される場合、「ジオール」という用語には、上記のような同等のエステルを形成する誘導体が含まれる。しかしながら、いずれの分子量の要件も相当するジオールを指し、それらの誘導体を指さない。

【0027】

上記長鎖グリコールおよび低分子量ジオールと反応し、コポリエーテルエステルを生成可能なジカルボン酸は、低分子量、すなわち、約300未満の分子量を有する脂肪族、脂環式または芳香族ジカルボン酸である。本明細書で使用される場合、「ジカルボン酸」という用語には、コポリエーテルエステルポリマーの形成時にグリコールおよびジオールとの反応で、ジカルボン酸と実質的に同様に作用する2個のカルボキシル官能基を有するジカルボン酸の官能性同等物が含まれる。これらの同等物としては、エステル、ならびに酸ハロゲン化物および無水物のようなエステル形成誘導体が含まれる。分子量の要件は酸に関係し、その同等エステルまたはエステル形成誘導体に関係しない。したがって、相当する酸が約300未満の分子量を有することを条件として、300より大きい分子量を有するジカルボン酸のエステル、または300より大きい分子量を有するジカルボン酸の官能性同等物が含まれる。ジカルボン酸は、コポリエーテルエステルポリマーの形成および本発明の組成物中でのこのポリマーの使用を実質的に妨げないいずれかの置換基または組み合わせを含有することができる。

【0028】

本明細書で使用される場合、「脂肪族ジカルボン酸」という用語は、それぞれ飽和炭素原子に結合した2個のカルボキシル基を有するカルボン酸を指す。カルボキシル基が結合した炭素原子が飽和であって環状である場合、この酸は脂環式である。共役不飽和を有する脂肪族または脂環式の酸は、単独重合のため使用不可能であることが多い。しかしながら、マレイン酸のようないくつかの不飽和酸は使用可能である。

【0029】

本明細書で使用される場合、「芳香族ジカルボン酸」という用語は、それぞれ炭素環式芳香族環構造中の炭素原子に結合した2個のカルボキシル基を有するジカルボン酸を指す。両方のカルボキシル官能基が同じ芳香族環に結合する必要はなく、2個以上の環が存在する場合、それらは脂肪族または芳香族の二価の基、あるいは-O-または-SO₂-のような二価の基によって結合可能である。

【0030】

使用可能な有用な脂肪族および脂環式酸の代表としては、セバシン酸、1,3-シクロヘキサンジカルボン酸、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、1,2-シクロヘキサンジカルボン酸、アジピン酸、グルタル酸、2-エチルスベリン酸、シクロペンタンジカルボン酸、デカヒドロ-1,5-ナフチレンジカルボン酸、4,4'-ビス(シクロヘキシル)ジカルボン酸、デカヒドロ-2,6-ナフチレンジカルボン酸、4,4'-メチレンビス(シクロヘキシル)カルボン酸、および3,4-フランジカルボン酸が挙げられる。好ましい酸は、シクロヘキサン-ジカルボン酸およびアジピン酸である。

【0031】

代表的な芳香族ジカルボン酸としては、フタル酸、テレフタル酸およびイソフタル酸、ビベンゾイック酸、ビス(p-カルボキシフェニル)メタンのような2個のベンゼン核を有する置換ジカルボキシ化合物、p-オキシ-1,5-ナフタレンジカルボン酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、2,7-ナフタレンジカルボン酸、4,4'-スルホニルジベンゾイック酸、ならびにそれらのC₁~C₁₂アルキルおよび環置換誘導体、例えば、ハロ、アルコキシおよびアリアル誘導体が挙げられる。p-(ベータ-ヒドロキシエトキシ)安息香酸のようなヒドロキシル酸も使用可能であるが、ただし、芳香族ジカルボン酸も使用可能である。

【0032】

10

20

30

40

50

芳香族ジカルボン酸は、本発明で有用なコポリエーテルエステルポリマーの調製用に好ましい種類である。芳香族酸の中でも、8個～16個の炭素原子を有するものが好ましく、特にテレフタル酸単独、あるいはフタル酸および/またはイソフタル酸との混合物が好ましい。

【0033】

コポリエーテルエステルは、好ましくは、上記式(B)に相当する短鎖エステル単位を約15重量%～約99重量%含み、残りは上記式(A)に相当する長鎖エステル単位である。コポリエーテルエステルは、より好ましくは、短鎖エステル単位を約20重量%～約95重量%、さらにより好ましくは約50重量%～約90重量%含み、残りは長鎖エステル単位である。より好ましくは、上記式(A)および(B)中のRで表される基の少なくとも約70%が1,4-フェニレン基であり、上記式(B)中のDで表される基の少なくとも約70%が1,4-ブチレン基であって、1,4-フェニレン基以外のR基のパーセンテージと、1,4-ブチレン基以外のD基のパーセンテージの合計は30%を超えない。コポリエーテルエステルの製造に第2のジカルボン酸が使用される場合、イソフタル酸が好ましく、第2の低分子量ジオールが使用される場合、エチレングリコール、1,3-プロパンジオール、シクロヘキサンジメタノール、またはヘキサメチレングリコールが好ましい。

10

【0034】

2種以上のコポリエーテルエステルエラストマーのブレンドまたは混合物を使用することができる。ブレンド中で使用されるコポリエーテルエステルエラストマーは、個々に、エラストマーに関して上記された値の範囲内でなくてもよい。しかしながら、2種以上のコポリエーテルエステルエラストマーのブレンドは、加重平均基準でコポリエーテルエステルに関して本明細書に記載された値に一致しなければならない。例えば、等量の2種のコポリエーテルエステルエラストマーを含有する混合物では、1種のコポリエーテルエステルが60重量%の短鎖エステル単位を含有し、他のコポリエーテルエステルが30重量%の短鎖エステル単位を含有し得、加重平均で45重量%の短鎖エステル単位となる。

20

【0035】

好ましくは、コポリエーテルエステルエラストマーは、テレフタル酸およびイソフタル酸のエステルまたはエステルの混合物、1,4-ブタンジオールおよびポリ(テトラメチレンエーテル)グリコールまたはポリ(トリメチレンエーテル)グリコールまたはエチレンオキシド-キャップド(capped)ポリプロピレンオキシドグリコールから調製されるか、あるいは、テレフタル酸のエステル、例えば、ジメチルテレフタレート、1,4-ブタンジオールおよびポリ(エチレンオキシド)グリコールから調製される。より好ましくは、コポリエーテルエステルエラストマーは、テレフタル酸のエステル、例えば、ジメチルテレフタレート、1,4-ブタンジオールおよびポリ(テトラメチレンエーテル)グリコールから調製される。

30

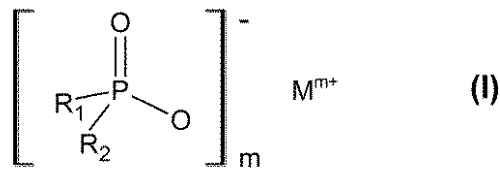
【0036】

本発明の熱可塑性エラストマー組成物中の難燃剤は、式(I)のホスフィン酸塩および/または式(II)のジホスフィン酸塩

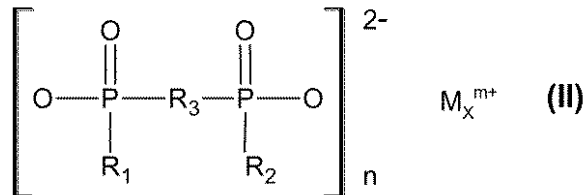
【0037】

40

【化4】



10



【0038】

(式中、 R_1 および R_2 は、同一であっても異なってもよく、水素、直鎖または分枝鎖の $C_1 \sim C_6$ アルキル、および/またはアリールであり、 R_3 は、直鎖または分枝鎖の $C_1 \sim C_{10}$ -アルキレン、 $C_6 \sim C_{10}$ -アリーレン、-アルキルアリーレンまたは-アリーラルキレンであり、Mは、カルシウム、マグネシウム、アルミニウム、および/または亜鉛であり、mは2~3であり、nは1または3であり、xは1または2である)、ならびに/あるいはこれらのポリマーを含み、メラミンの縮合生成物、および/またはメラミンとリン酸との反応生成物、および/またはメラミンの縮合生成物とリン酸との反応生成物を任意に含み、そして/あるいはこれらの混合物を含む難燃剤の組み合わせ(例えば、米国特許第6,255,371号明細書に記載のもの)である。

20

【0039】

R_1 および R_2 は、同一であっても異なってもよく、好ましくは、水素、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、第三級ブチル、n-ペンチルおよび/またはフェニルである。 R_3 は、好ましくは、メチレン、エチレン、n-プロピレン、イソプロピレン、n-ブチレン、第三級ブチレン、n-ペンチレン、n-オクチレン、n-ドデシレン、またはフェニレンもしくはナフチレン、またはメチルフェニレン、エチルフェニレン、第三級ブチルフェニレン、メチルナフチレン、エチルナフチレンもしくは第三級ブチルナフチレン、またはフェニルメチレン、フェニルエチレン、フェニルプロピレンもしくはフェニルブチレンである。Mは、好ましくは、アルミニウムまたは亜鉛である。

30

【0040】

好ましいホスフィン酸塩は、メチルエチルホスフィン酸塩およびジエチルホスフィン酸塩のような有機ホスフィン酸の金属塩である。より好ましくは、メチルエチルホスフィン酸アルミニウム、ジエチルホスフィン酸アルミニウム、メチルエチルホスフィン酸亜鉛およびジエチルホスフィン酸亜鉛である。ホスフィン酸アルミニウム、ホスフィン酸マグネシウム、ホスフィン酸カルシウムおよびホスフィン酸亜鉛も好ましい。

40

【0041】

難燃剤は、当業者に一般に理解され、使用されるようないずれの粒径分布も有し得るが、好ましくは、100ミクロン以下、より好ましくは20ミクロン以下の粒径(D90値)を有する。D90値は、Malvern製粒径分析機、Mastersizer 2000を使用して、溶媒中の粒子の懸濁液からレーザー回折の技術によって粒径分布を測定した時に、90重量%の粒子がその粒径未満となる粒径に相当する。この試験方法は、I

50

S O 1 3 3 2 0 に明示された要件を満たしている。

【 0 0 4 2 】

本発明の組成物は、任意に、1種もしくはそれ以上の熱安定剤および/または酸化防止剤をさらに含んでもよい。適切な熱安定剤および/または酸化防止剤の例としては、ジフェニルアミン、アミド、チオエステル、フェノール系酸化防止剤およびホスファイトが挙げられる。使用する場合、熱安定剤および/または酸化防止剤は、好ましくは、組成物の総重量に基づき、約0.01重量%～約5重量%、またはより好ましくは約0.01重量%～1重量%の量で存在する。

【 0 0 4 3 】

本発明の組成物は、相乗剤、顔料、潤滑剤、充填剤および補強剤、粘性改質剤、核化剤、可塑剤、離型剤、難燃剤、引っ掻き傷および傷改質剤 (s c r a t c h a n d m a r m o d i f i e r)、ドリッパ抑制剤、衝撃改質剤のような追加の添加剤をさらに含んでもよい。使用する場合、追加の添加剤は、好ましくは、組成物の総重量に基づき、約0.1重量%～約20重量%の量で存在する。

10

【 0 0 4 4 】

本発明の組成物は、任意に、1種もしくはそれ以上の表面改質剤 (例えば、高分子量シロキサン) および/または金属不活性化剤 (例えば、ヒドラジンおよび/またはヒドラジド) をさらに含んでもよい。

【 0 0 4 5 】

本発明の組成物は、任意に、1種もしくはそれ以上の、ポリカーボネート、ポリ(メチル(メタ)アクリレート)、および/またはポリアリレートのような非晶質ポリマーをさらに含んでもよい。存在する場合、1種もしくはそれ以上の非晶質ポリマーは、好ましくは、全組成物の約1重量%～約30重量%、またはより好ましくは約10重量%～約20重量%を構成する。1種もしくはそれ以上の非晶質ポリマーを含有する本発明の組成物は、ワイヤおよびケーブルコーティング用に特に適切であり、好ましくは、そのような組成物は、1種もしくはそれ以上の表面改質剤および/または金属不活性化剤および/または熱安定剤および/または酸化防止剤をさらに含む。

20

【 0 0 4 6 】

本発明の組成物は溶融混合ブレンドである。本発明のポリマー成分と非ポリマー成分とを組み合わせるために、いずれの溶融混合方法を使用してもよい。

30

【 0 0 4 7 】

例えば、ポリマー成分と非ポリマー成分とを、例えば、一軸または二軸押出機、ブレンダー、ニーダー、またはBanburyミキサーのような溶融混合機に、一回の添加で全部または段階的な様式で添加し、溶融混合することができる。段階的な様式でポリマー成分と非ポリマー成分とを添加する場合、ポリマー成分および/または非ポリマー成分の部分を最初に添加して溶融混合し、その後、残りのポリマー成分および非ポリマー成分を添加して、十分に混合された組成物が得られるまでさらに溶融混合する。

【 0 0 4 8 】

例えば、射出成型、吹込成型、押出成形、熱成形、メルトキャストリング、回転成型、および中空成型のような当業者に既知の方法を使用して、本発明の組成物を物品に形成することができる。

40

【 0 0 4 9 】

本発明の組成物は、高い伸び、良好な耐化学性および耐温度性を有し、そして空気中、150 程度の温度での長期加熱老化後に物性を特に良好に保持するという利点を有する。さらに、これらの組成物は良好な電気特性を有する。このようにユニークな特性の組み合わせのため、ワイヤおよびケーブル用途に非常に魅力的な候補である。そのような用途の1つは、I S O 6 7 2 2 : 2 0 0 2 の基準要件に従う自動車の主ケーブル用である。この基準は、8つの温度クラスを明記しており、それぞれにそれぞれの温度範囲があって、その温度範囲に従って、ケーブルは指定のクラスの最高温度で長期老化(3000時間)を合格しなければならず、また指定のクラスの最低温度でコールドワインディング(c o

50

ld winding) 試験に合格しなければならない。本発明の組成物は、クラスC (-40 ~ 125) およびクラスD (-40 ~ 150) ケーブルとして特に有用である。この組成物は125 ~ 150での用途のケーブル用に適切である。厚さの薄い物品の形態でさえ本発明の組成物は非常に良好な難燃性を示すため、ワイヤおよびフィルムのような薄肉用途は特に興味深い。

【実施例】

【0050】

表中は以下の成分を指す。

【0051】

熱可塑性加硫物A: E. I. du Pont de Nemours and Co. (Wilmington, Del) によって供給された熱可塑性加硫物、ETPV 90 A01 NC010、95重量%と、E. I. du Pont de Nemours and Co. (Wilmington, Del) によって供給されたHytrel (登録商標) 30HS、コポリエーテルエステル安定剤マスターバッチ、5重量%との熔融混合ブレンド。

10

【0052】

熱可塑性加硫物B: E. I. du Pont de Nemours and Co. (Wilmington, Del) によって供給されたETPV 95A02 HS BK001。

20

【0053】

コポリエーテルエステルC: E. I. du Pont de Nemours and Co. (Wilmington, Del) によって供給されたHytrel (登録商標) 6356、コポリエーテルエステル、95重量%と、Hytrel (登録商標) 30HS、5重量%との熔融混合ブレンド。

20

【0054】

ホスフィン酸塩難燃剤A: Clariantによって供給されたExolit (登録商標) OP950、ジエチルホスフィン酸Zn塩。

【0055】

ホスフィン酸塩難燃剤B: Clariantによって供給されたExolit (登録商標) OP1230、ジエチルホスフィン酸Al塩。

30

【0056】

ホスフィン酸塩難燃剤C: Italmatch Chemicalsによって供給されたPhoslite (登録商標) IP-A、次亜リン酸Al。

【0057】

成分を熔融ブレンドすることによって、実施例(表中、「実施例」と記載)および比較例(表中、「比較例」と記載)の組成物を調製した。難燃剤が15重量%より多い量で存在する組成物の場合、バレル温度が約220 ~ 約240 に設定された二軸スクルー押出機中で熔融ブレンドを行った。主供給装置を通して、ダイから最も遠いバレル中にポリマー成分を供給する。側面供給装置から難燃剤添加剤を導入する。難燃剤を含有し、難燃剤が15重量%以下の量で存在する組成物の場合、組成物が試験片へと成型される時、射出成型の工程で熔融ブレンドを実行した。これは、二軸スクルー押出機を使用して、適切なポリマー材料(熱可塑性加硫物またはコポリエーテルエステル)およびより高濃度の難燃剤を含有する組成物を調製し、この組成物を、難燃剤を含有しないポリマー材料のペレットとキューブ-ブレンド(cube-blend)することによって実行される。得られたキューブブレンドを射出成型機中に供給した。

40

【0058】

UL94試験規格、20mm 垂直燃焼試験に従って、可燃性試験を実施した。長さ125mm x 幅13mm x 厚さ0.8mm、1.6mmまたは3.2mmの寸法の試験バーの形状に射出成型することによって、表1、2および3中の組成物から試験片を形成した。この手順に従って、試験片の下部端が乾燥吸収性外科用綿布の水平層上300mmの位

50

置にあるように、試験片を長手方向軸に垂直に固定する。高さ20mmの青炎を生じる燃焼器を、炎が10秒間、試験片の底部端の中心点に集中して適用されるように配置する。試験片に10秒間炎を適用した後、燃焼器を試料から回収し、アフター-フレイムタイム(after-flame time)、 t_1 を測定する。試験片のアフター-フレイミング(after-flaming)を止めた時、燃焼器を再び試験片上にさらに10秒間配置する。この後、炎を試料から回収し、そして第2のアフター-フレイムタイム、 t_2 を測定する。試験仕様書に従って、燃焼間の材料の性質に基づき、材料をV-0、V-1またはV-2として分類する。材料が最小の要求分類(V-2)の基準を満たさない場合、表中に「不合格」と報告される。

【0059】

23 および相対湿度50%で48時間の試料の前処理後、全ての組成物について可燃性を測定した。この結果を表1~3に報告する。ほとんどの組成物では、70で1週間の試料の前処理後の可燃性についても測定した。この結果は、他の前処理によって得られた結果と同様であることがわかった。

【0060】

ダンベル型の射出成型引張試験片を使用して、ISO527に従って引張特性の測定を実施した。

【0061】

強制空気循環を備えたオープン中で、ダンベル型の同様の射出成型引張試験片を使用して、空気中加熱老化を実施した。所望の老化時間後、試料を23 および相対湿度50%で少なくとも24時間調節し、室温で引張特性を測定する。

【0062】

ホスフィン酸塩難燃剤AはコポリエーテルエステルCに難燃性を与えず、老化時に破壊時の伸び率の保持を非常に損なわせるということが表1から見てわかる。対照的に、同様のホスフィン酸塩難燃剤Aが熱可塑性加硫物AおよびB中に組み込まれた場合、この材料はV-2可燃性評価を得、また125 および150 の両方で老化時の破壊時の伸び率の良好な保持を示す。

【0063】

表2では、難燃剤Bによって、熱可塑性加硫物AおよびコポリエーテルエステルCの両方で良好な可燃性特性が得られることが示されている。両方の場合で、広範囲の濃度でV-2評価が得られ、そして難燃剤の濃度が高い時および/または厚さがより厚い時にはV-0の評価が得られる。しかしながら、125 のより低い老化温度の場合さえ、老化特性は明らかにコポリエーテルエステルCでは著しく悪影響を受けるようである。対照的に、熱可塑性加硫物Aの場合、150 のより高い老化温度でも破壊時の伸び率の保持はなお良好である。

【0064】

10

20

30

【表 1】

表1

	比較例 1	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8
熱可塑性加硫物A	100	95.5	90	85	80	70	--	--	--	--	--	--	--
熱可塑性加硫物B	--	--	--	--	--	--	--	--	--	100	90	85	80
コポリエーテルエステルC	--	--	--	--	--	--	100	85	70	--	--	--	--
ホスフィン酸塩難燃剤A	--	4.5	10	15	20	30	--	15	30	--	10	15	20
可燃性試験(0.8 mm バール)	不合格	V-2	V-2	V-2	V-2	V-2	不合格	不合格	不合格	不合格	V-2	V-2	V-2
可燃性試験(1.6 mm バール)	不合格	V-2	--	V-2	--	--	--	--	--	不合格	V-2	--	V-2
可燃性試験(3.2 mm バール)	不合格	V-2	--	V-2	--	--	--	--	--	不合格	V-2	V-2	V-2
破壊時の伸び率 - 老化前(%)	133	--	158	--	151	--	354	417	500	184	182	174	164
破壊時の伸び率 - 125°Cで3000時間の老化後(%)	137	--	209	--	240	--	203	10	7	123	156	176	181
125°Cで3000時間の老化後の破壊時の伸び率と老化前の破壊時の伸び率との比率	1.03	--	1.33	--	1.60	--	0.57	0.02	0.01	0.67	0.86	1.01	1.10
破壊時の伸び率 - 150°Cで3000時間の老化後(%)	99	--	81	--	80	--	8	1	1	99	122	94	82
150°Cで3000時間の老化後の破壊時の伸び率と老化前の破壊時の伸び率との比率	0.74	--	0.51	--	0.53	--	0.02	<0.01	<0.01	0.54	0.67	0.54	0.50

成分量は組成物の総重量に対する重量%で表される

【 0 0 6 5 】

10

20

30

40

50

【 表 2 】

表2

	実施例 9	実施例 10	実施例 11	実施例 12	比較例 6	比較例 7	比較例 8
熱可塑性加硫物A	95	85	80	70	--	--	--
コポリエーテルエステルC	--	--	--	--	91	85	70
ホスフィン酸塩難燃剤B	5	15	20	30	9	15	30
可燃性試験(0.8 mm バール)	V-2	V-2	V-2	V-0	V-2	V-2	V-0
可燃性試験(1.6 mm バール)	V-2	--	V-2	--	V-2	V-2	V-0
可燃性試験(3.2 mm バール)	V-2	--	V-0	--	V-2	V-0	V-0
破壊時の伸び率 - 老化前 (%)	--	115	--	76	296	307	70
破壊時の伸び率 - 125°Cで3000時間の老化後 (%)	--	137	--	91	< 28 (2000時間)	< 10 (2000時間)	< 4 (2000時間)
125°Cで3000時間の老化後の破壊時の伸び率と老化前の破壊時の伸び率との比率	--	1.19	--	1.20	< 0.09	< 0.03	< 0.05
破壊時の伸び率 - 150°Cで3000時間の老化後 (%)	--	62	--	32	< 12 (2000時間)	< 9 (2000時間)	< 3 (2000時間)
150°Cで3000時間の老化後の破壊時の伸び率と老化前の破壊時の伸び率との比率	--	0.54	--	0.42	< 0.04	< 0.03	< 0.04

成分量は組成物の総重量に対する重量%で表される

【 0 0 6 6 】

10

20

30

40

【表 3】

	比較例 1	参考例 13	参考例 14	比較例 2	比較例 9	比較例 5	実施例 15
熱可塑性加硫物A	100	85	70	--	--	--	--
熱可塑性加硫物B	--	--	--	--	--	100	70
コポリエーテルエステルC	--	--	--	100	70	--	
ホスフィン酸塩難燃剤C	--	15	30	--	30	--	30
可燃性試験(0.8 mmバー)	不合格	不合格	不合格	不合格	V-2	不合格	--
可燃性試験(1.6 mmバー)	--	--	--	--	--	--	V-0

分量は組成物の総重量に対する重量%で表される

本発明は以下の実施の態様を含むものである。

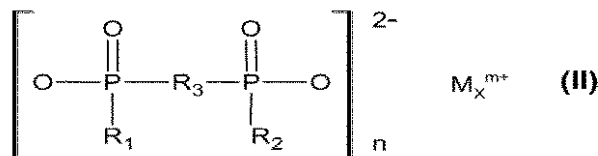
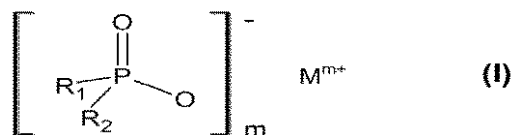
1. (a) (i) 約15～約75重量%の少なくとも1種の熱可塑性ポリエステル連続相、および

(ii) 約25～約85重量%の少なくとも1種のポリ(メタ)アクリレートまたはポリエチレン/(メタ)アクリレートゴム分散相であって、前記ゴムが、少なくとも1種の過氧化物フリーラジカル開始剤および少なくとも1種の有機多価オレフィン助剤により動的に架橋される、ゴム分散相、

を含む溶融加工可能な熱可塑性加硫物組成物を約70～約99重量%と、

(b) 式(I)のホスフィン酸塩および/または式(II)のジスホスフィン酸塩

【化 2】



[式中、R₁ および R₂ は、同一であっても異なってもよく、水素、直鎖もしくは分枝鎖の C₁～C₆ アルキル、および/またはアリールであり、R₃ は、直鎖もしくは分枝鎖の C₁～C₁₀-アルキレン、C₆～C₁₀-アリーレン、-アルキルアリーレンまたは-アリールアルキレンであり、M は、カルシウムイオン、マグネシウムイオン、アルミニウムイオン、および/または亜鉛イオンであり、m は 2～3 であり、n は 1 または 3 であり、そして x は 1 または 2 である]、および/またはそれらのポリマーを含む少なくとも 1

10

20

30

40

50

種の難燃剤を約 1 ~ 約 30 重量%と、

を含む難燃性熱可塑性エラストマー組成物であって、

ここで、(a) および (b) の重量パーセントは (a) と (b) との総重量に基づき、(i) および (ii) の重量パーセントは (i) と (ii) との総重量に基づく、組成物。

2. 難燃剤が、ホスフィン酸アルミニウム、ジエチルホスフィン酸アルミニウムおよび/またはジエチルホスフィン酸亜鉛である前記 1 に記載の熱可塑性エラストマー組成物。

3. 難燃剤の粒径 (D90 値) が 100 ミクロン以下である前記 1 に記載の熱可塑性エラストマー組成物。

4. 難燃剤の粒径 (D90 値) が 20 ミクロン以下である前記 1 に記載の熱可塑性エラストマー組成物。 10

5. 熱可塑性加硫物組成物 (a) が約 80 重量% ~ 約 98 重量%の量で存在し、難燃剤 (b) が約 2 重量% ~ 約 20 重量%の量で存在する前記 1 に記載の熱可塑性エラストマー組成物。

6. 熱可塑性加硫物組成物 (a) が約 85 重量% ~ 約 97 重量%の量で存在し、難燃剤 (b) が約 3 重量% ~ 約 15 重量%の量で存在する前記 1 に記載の熱可塑性エラストマー組成物。

7. 熱可塑性加硫物が、約 15 重量% ~ 約 60 重量%の成分 (i) と、約 40 重量% ~ 約 85 重量%の成分 (ii) とを含む前記 1 に記載の熱可塑性エラストマー組成物。

8. 1 種もしくはそれ以上の熱安定剤および/または酸化防止剤をさらに含む前記 1 に記載の熱可塑性エラストマー組成物。 20

9. 1 種もしくはそれ以上の表面改質剤および/または金属不活性化剤をさらに含む前記 1 に記載の熱可塑性エラストマー組成物。

10. 1 種もしくはそれ以上の表面改質剤および/または金属不活性化剤をさらに含む前記 8 に記載の熱可塑性エラストマー組成物。

11. 1 種もしくはそれ以上の非晶質ポリマーをさらに含む前記 1 に記載の熱可塑性エラストマー組成物。

12. 1 種もしくはそれ以上の非晶質ポリマーが、ポリカーボネート、ポリ(メチル(メタ)アクリレート)、および/またはポリアリレートである前記 11 に記載の熱可塑性エラストマー組成物。 30

13. 1 種もしくはそれ以上の表面改質剤および/または金属不活性化剤および/または熱安定剤および/または酸化防止剤をさらに含む前記 11 に記載の熱可塑性エラストマー組成物。

14. 熱可塑性ポリエステル連続相 (i) が、少なくとも 1 種のコポリエーテルエステルエラストマーを含む前記 1 に記載の熱可塑性エラストマー組成物。

15. コポリエーテルエステルエラストマーが、ポリ(テトラメチレンオキシド)グリコール、イソフタル酸および/またはテレフタル酸、ならびに 1, 4 - ブタンジオールおよび/または 1, 3 - プロパンジオールを含むモノマーから調製される前記 14 に記載の熱可塑性エラストマー組成物。

16. コポリエーテルエステルエラストマーが、ポリ(トリメチレンオキシド)グリコール、イソフタル酸および/またはテレフタル酸、ならびに 1, 4 - ブタンジオールおよび/または 1, 3 - プロパンジオールを含むモノマーから調製される前記 14 に記載の熱可塑性エラストマー組成物。 40

17. フリーラジカル開始剤が、2, 5 - ジメチル - 2, 5 - ジ - (t - ブチルペルオキシ) - 3 - ヘキシン、t - ブチルペルオキシベンゾエート、2, 5 - ジメチル - 2, 5 - ジ - (t - ブチルペルオキシ) - 2, 5 - ジメチルヘキサン、ジクミルペルオキシド、および、-ピス(t - ブチルペルオキシ) - 2, 5 - ジメチルヘキサンのうちの 1 つもしくはそれ以上である前記 1 に記載の熱可塑性エラストマー組成物。

18. 有機多官能性架橋助剤が、ジエチレングリコールジアクリレート、ジエチレングリコールジメタクリレート、N, N' - m - フェニレンジマレイミド、トリアリルイソシ 50

アヌレート、トリメチロールプロパントリメタクリレート、テトラアリルオキシエタン、トリアリルシアヌレート、テトラメチレンジアクリレート、およびポリエチレングリコールジメタクリレートのうちの1つもしくはそれ以上である前記1に記載の熱可塑性エラストマー組成物。

19. ゴム分散相が、少なくとも1種のポリ(ペルフルオロアルキル(メタ)アクリレート)を含む前記1に記載の熱可塑性エラストマー組成物。

20. 前記1に記載の組成物を含む、成型物品、押出成形物品または成形物品。

21. 前記1に記載の組成物を含むコーティングを含むワイヤまたはケーブル。

22. 前記1に記載の組成物を含むコーティングを含む自動車用主ケーブル。

23. 前記1に記載の組成物を含む、成型物品、押出成形物品または成形物品。

24. 前記1に記載の組成物を含むコーティングを含むワイヤまたはケーブル。

25. 前記1に記載の組成物を含むコーティングを含む自動車用主ケーブル。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.			F I		
<i>C 0 8 J</i>	<i>5/00</i>	<i>(2006.01)</i>	<i>C 0 8 J</i>	<i>5/00</i>	<i>C F D</i>
<i>H 0 1 B</i>	<i>3/42</i>	<i>(2006.01)</i>	<i>C 0 8 J</i>	<i>5/00</i>	<i>C E Y</i>
<i>H 0 1 B</i>	<i>3/44</i>	<i>(2006.01)</i>	<i>H 0 1 B</i>	<i>3/42</i>	<i>Z</i>
			<i>H 0 1 B</i>	<i>3/44</i>	<i>A</i>

(72)発明者 エレーニ カライアンニ
 スイス シーエイチ - 1 2 0 6 ジュネーブ シュマン デ ノルマンディ 6 アパートメント
 1 0 1

(72)発明者 ジャン - ミシェル フィリップス
 スイス シーエイチ - 1 1 9 7 プランジャン デ ラ ブリュイエール 3 2 エー

審査官 岡 崎 忠

(56)参考文献 国際公開第 2 0 0 6 / 0 8 6 3 3 4 (W O , A 1)
 特開 2 0 0 1 - 0 7 2 9 7 8 (J P , A)
 国際公開第 2 0 0 6 / 0 5 7 4 4 5 (W O , A 1)
 特開平 0 8 - 0 7 3 7 2 0 (J P , A)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

C08L 67/00-67/03
 33/00-33/26
 C08J 5/00-5/24
 C08K 5/00-5/59
 H01B 3/00-3/56