

公告本

387914

申請日期	84.07.17.
案號	84107353
類別	C08G 63/00

A4
C4

387914

(以上各欄由本局填註)

發明專利說明書

一、發明名稱	中文	生物可分解聚合物，其製備及製造生物可分解模塑之用途
	英文	"BIODEGRADABLE POLYMERS, PREPARATION THEREOF AND USE THEREOF FOR PRODUCING BIODEGRADABLE MOLDINGS"
二、發明人	姓名	1. 沃克 華斯漢 2. 剛那 斯固尼克 3. 柏登 柏奇曼 4. 烏索拉 斯尼哥 5. 莫特諾瑞 亞曼摩托 6. 彼得 布爾
	國籍	皆德國
	住、居所	1. 德國威森漢市蘇得羅爾瑞區32號 2. 德國諾林根市柯若德街8號 3. 德國路得威格斯漢市基斯漢區79號 4. 德國路得威格斯漢市凱撒威漢街20號 5. 德國曼漢市雷斯樂區6號 6. 德國路得威格斯漢市艾瑞曲街13號
三、申請人	姓名 (名稱)	德商巴地斯顏料化工廠
	國籍	德國
	住、居所 (事務所)	德國來恩河勞域沙芬市
	代表人姓名	1. 卡爾－菲得里契·班格 2. 克勞斯·狄特·藍芬

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大類：
IPC分類：

A6
B6

本案已向：

國(地區) 申請專利，申請日期： 案號： ，☐有 ☐無主張優先權

德 1994.11.15 P4440858.7

有關微生物已寄存於： ，寄存日期： ，寄存號碼：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明⁽¹⁾

本發明係關於一種生物可分解聚酯P1係經由反應主要組成如下之混合物獲得

(a1)一種混合物主要包括

35-95莫耳% 己二酸或其成酯衍生物或混合物，

5-65莫耳% 對酞酸或其成酯衍生物或混合物，

及

0-5莫耳% 磺酸鹽化合物，

各別莫耳百分率之總和為100莫耳%，及

(a2)一種選自C₂-C₆烷二醇和C₅-C₁₀環烷二醇之二羥基化合物，

(a1)對(a2)之莫耳比係選自0.4:1至1.5:1之範圍，但聚酯P1之分子量(Mn)係於5000至50,000克/莫耳之範圍，黏度值係於30至350克/毫升之範圍(於25°C於0.5%重量比聚酯P1濃度於50:50 w/w鄰二氯苯/酚(50/50重量比)測量)及熔點係於50至170°C之範圍，又使用基於成分(a1)之莫耳量，0.01至5莫耳%具至少三個成酯基之化合物D製備聚酯P1。

本發明又係關於如申請專利範圍附屬項申請專利的聚合物及生物可分解熱塑模塑組成物，其製法，其用以生產生物可分解模塑件之用法，及得自根據本發明之聚合物及模塑組成物之黏著劑，生物可分解模塑件，發泡體及與澱粉之攪合物。

生物可分解聚合物，亦即於環境影響下可於適當可驗證的時間範圍內分解已知道一段時間。此種分解通常係藉水解及/或氧化進行，但主要係由微生物如細菌、酵母、真

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明(2)

菌及藻類作用進行。Y. Tokiwa及T. Suzuki(自然, 270 (1977) 76-78) 描述脂族聚酯, 例如²⁾含基_A於丁二酸及脂族二醇之聚酯之酶分解。

EP-A 565, 235描述含[-HN-C(O)O-] 基(胺甲酸酯單位) 之脂族共聚酯。EP-A 565, 235之共聚酯係經由預聚酯反應獲得, 預聚酯係經由主要為丁二酸之脂族二醇與二異氰酸酯, 較佳六亞甲基二異氰酸酯反應獲得。與二異氰酸酯之反應為EP-A 565, 235所需, 其原因為單獨聚縮合反應僅能獲得具有不滿意的機械性質之聚合物。嚴重缺點為使用丁二酸或其酯衍生物製備共聚酯, 因丁二酸及其衍生物昂貴無法於市場上足量獲得。此外, 使用丁二酸作為唯一酸成分製備的聚酯僅能極為緩慢分解。

WO 92/13019揭示主要基於芳族二羧酸及脂族二醇之共聚酯, 此處至少85莫耳%聚酯二醇殘基包括對酞酸殘基。共聚酯之親水性被改質增高而結晶性下降, 改質例如攪混至多2.5莫耳%5-磺基間酞酸之金屬鹽或短鏈醚二醇段如二乙二醇。WO 92/13019中如此據稱可使共聚酯變成生物可分解。但此種共聚酯之缺點為未曾驗證可被微生物生物分解, 反而傾向於於沸水中水解, 或某些例中也可使用60°C水水解。

根據Y. Tokiwa及T. Suzuki(自然, 270 (1977) 76-78或J. of Appl. Polymer Science, 26 (1981) 441-448) 之陳述, 推定主要由芳族二羧酸單位及脂族二醇組成的聚酯, 如PET (聚仲乙基對酞酸酯) 及PBT(聚仲丁基對酞酸酯) 並非酶

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明(3)

可分解。也適用於含芳族二羧酸單位及脂族二醇組成段之共聚酯。

Witt等(瑞典斯德哥爾摩皇家技術學院國際工作坊公告, 1994年4月21至23日)描述基於1,3-丙二醇, 對酞酸酯及己二酸或癸二酸之生物可分解共聚酯。此種共聚酯之缺點為由其生產的模製件, 特別薄片之機械強度不足。

本發明之目的係提供生物可分解, 亦即藉微生物分解且不具有此等缺點之聚合物。特別根據本發明之聚合物可由已知低成本單體單位製備且不溶於水。此外, 預期可獲得經由特定改質例如鏈延長, 合併親水基及具有分支作用基而設計適合供所需用途之產物。此外目標為無需犧牲機械性質來達成微生物分解性因而限制其用途。

發明人發現此目的可藉本文界定之聚合物及熱塑模塑組成物達成。

發明人又發現其製法, 生產生物可分解模塑件及黏著劑之用法, 及得自根據本發明之聚合物及模塑組成物之生物可分解模塑件, 發泡體與澱粉之攪合物及黏著劑。

根據本發明之聚酯P1具有分子量(Mn)係於5000至50,000, 較佳6000至45,000, 特佳8000至35,000克/莫耳之範圍, 黏度值係於30至350, 較佳50至300克/毫升之範圍(於25°C於0.5%重量比聚酯P1濃度於50:50 w/w 二氯苯/酚測量)及熔點係於50至170, 較佳60至150°C之範圍。根據本發明之聚酯P1係經由反應主要組成如下之混合物獲得

五、發明說明(4)

(a1) 一種混合物主要包括

35-95，較佳45至80莫耳%己二酸或其成酯衍生物，特別二-C₁-C₆-烷基酯和二甲基，二乙基，二丙基，二丁基，二戊基及二己基己二酸酯，或其混合物，較佳己二酸與二甲基己二酸酯或其混合物，

5-65，較佳20-55莫耳%對酞酸或其成酯衍生物，特別二-C₁-C₆-烷基酯如二甲基，二乙基，二丙基，二戊基或二己基對酞酸酯，或其混合物，較佳對酞酸及二甲基對酞酸酯，或其混合物，及

0-5，較佳0至3，特佳0.1至2莫耳%磺酸鹽化合物，

此處各別莫耳百分率之總和為100莫耳%，及

(a2) 一種選自C₂-C₆-烷二醇及C₅-C₁₀-環烷二醇之二羧基化合物，

此處(a1)對(a2)之莫耳比係選擇於0.4:1至1.5:1，較佳0.6:1至1.1:1之範圍。

一般使用磺酸鹽化合物為含磺酸基之二羧酸之鹼金屬或鹼土金屬鹽，或其成酯衍生物，較佳5-磺基間酞酸或其混合物之鹼金屬鹽，特佳鈉鹽。

根據本發明使用之二羧基化合物(a2)係選自C₂-C₆-烷二醇，C₅-C₁₀-環烷二醇，如伸乙基二醇，1,2-及1,3-丙二醇，1,2-及1,4-丁二醇，1,5-戊二醇或1,6-己二醇，特別伸乙基二醇，1,3-丙二醇及1,4-丁二醇，環戊二醇，環己二醇，1,2-環己二醇，1,4-環己二醇及其混合物。

根據本發明使用基於成分(a1)，0.01至5，較佳0.05至

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (5)

4 莫耳%，至少一種含至少三個成酯基之化合物 D。

化合物 D 較佳含有三至十個可生成酯鍵聯之官能基。特佳化合物 D 分子內含三至六個此類官能基，特別三至六個羥基及／或羧基。值得一提之範例有：

酒石酸，檸檬酸，蘋果酸；

三羥甲基丙烷，三羥甲基乙烷；

季戊四醇；

聚醚三醇；

甘油；

1, 3, 5- 苯三酸；

1, 2, 4- 苯三酸或酐；

1, 2, 3, 5- 苯四酸或二酐及

羥間酐酸。

當沸點低於 200°C 之化合物 D 用於製備聚酯 P1 時，部份可在反應前由聚縮合混合物蒸餾出。因此較佳於製程早期，例如轉移酯化階段或酯化階段添加此等化合物以避免複雜化及達成其餘聚縮合物內最佳可能的分布均勻。

於沸點高於 200°C 之化合物 D 之例中，也可用於製程後期階段。

藉加入化合物 D，例如可以期望方式改變熔體黏度，提高耐衝擊強度及降低根據本發明之聚合物或模塑組成物之結晶性。

生物可分解聚酯 P1 之製備原理上已知 (Sorensen 及 Campbell，聚合物化學製法，Interscience Publishers, Inc., 紐約，1961, 111-127 頁；Encycl. of Polym. Science and Eng. Vol. 12, 2nd ed.,

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(6)

John Wiley & Sons, 1988, 1-75頁; Kunststoff-Hand-buch, Vol. 3/1, Carl Hanser Verlag, 墨尼黑, 1992, p.15-23(聚酯之製備); WO 92/13019; EP-A 568 593; EP-A 565 235; EP-A 28 687), 因此不再贅述。

如此, 例如成分a1二甲基酯與成分a2之反應可於大氣壓下, 較佳於惰性氣氛下, 於熔體內於160至230°C進行。

生物可分解聚酯P1之製備中, 較佳使用相對於成分(a1)為莫耳過量之成分(a2), 例如高達2又1/2倍, 較佳高達1.67倍。

生物可分解聚酯醯胺P1通常係藉添加適當習知催化劑製備, 例如基於下列元素之金屬化合物如Ti、Ge、Zn、Fe、Mn、Co、Zr、V、Ir、La、Ce、Le及Ca, 較佳基於此等金屬之有機金屬化合物, 如有機酸、烷氧化物、乙醯丙酮酸等之鹽, 特佳基於鋰、鋅、錫及鈦。

當二羧酸或其酐用作成分(a1)時, 其與成分(a2)之酯化反應可於轉移酯化反應之前、同時或之後進行。較佳具體例中, 使用DE-A 23 26 026所述改質聚伸烷基對酞酸酯之製法。

成分(a1)及(a2)反應後, 進行聚縮合反應, 採用所需分子量, 原則上係於減壓下於惰性氣流下, 例如氮氣, 且進一步加熱至180至260°C。欲避免不期望的分解及/或副反應, 若有所需也可於此製程階段添加安定劑。安定劑之例有EP-A 13 461, US 4 328 049或B. Fortunato et al., 聚合物Vol. 35, No. 18 4006-4010頁, 1994, Butterworth-Heinemann Ltd. 所述

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(7)

磷化合物。某些情況下也可作為前述催化劑之失活化劑。值得一提之範例有：有機亞磷酸鹽，亞膦酸及亞磷酸，及此等酸之鹼金屬鹽。僅能作為安定劑之化合物之範例有：三烷基亞磷酸酯，三苯基亞磷酸酯，三烷基磷酸酯，三苯基磷酸酯及生育酚（維生素E）（例如得自Uvinul^R 2003A0（BASF））。

使用根據本發明之生物可分解共聚物，例如於食品包裝區，原則上希望選擇最低可能含量催化劑且未使用毒性化合物。與其它重金屬如鉛、錫、銻、鎘、鉻等相反，鈦及鋅化合物原則上無毒（參見Sax毒性物質資料，Shizuo Fujiyama, Maruzen, K.K., 360 S.（引述於EP-A 565, 235），也參見Römpf Chemie Lexikon Vol. 6, Thieme Verlag, Stuttgart, New York, 9th Edition, 1992, p.4626-4633及p.5136-5143）。值得一提之範例有：二丁氧二乙鹽乙鹽氧鈦，四丁基原鈦酸酯及乙酸鋅（II）。

催化劑對生物可分解聚酯P1之重量比通常係於0.01：100至3：100，較佳0.05：100至2：100之範圍，於高活性鈦化合物之例也可使用更小量，例如0.0001：100。

可恰在反應之始，在去除過量二醇之前不久使用催化劑，或若有所需也可於生物可分解聚酯P1製備中分布於多個部份。若有所需可使用不同催化劑或其混合物。

根據本發明之生物可分解聚酯P2具有分子量(Mn)係於5000至80,000，較佳6000至45,000，特佳10,000至40,000克/莫耳之範圍，黏度值係於30至450，較佳50至

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

訂

線

五、發明說明(8)

400克/毫升之範圍(於25°C於0.5%重量比聚酯P2濃度於50:50 w/w鄰二氯苯/酚測量)及熔點係於50至235,較佳60至235°C之範圍。

根據本發明生物可分解聚酯P2係經由反應組成如下之混合物獲得

(b1)一種混合物主要包括

20-95,較佳25至80,特佳30至70莫耳%己二酸或其成酯衍生物或混合物,

5-80,較佳20至75,特佳30至70莫耳%對酞酸或其成酯衍生物或混合物,及

0-5,較佳0至3,特佳0.1至2莫耳%磺酸鹽化合物,此處各別莫耳百分率總量為100莫耳%,

(b2)二羥基化合物(a2)

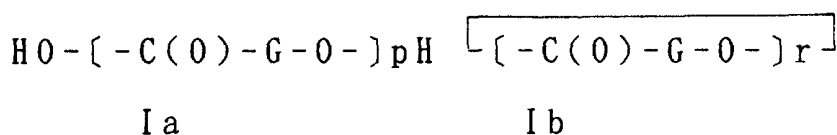
此處(b1)對(b2)之莫耳比係選擇於0.4:1至1.5:1,較佳0.6:1至1.1:1之範圍,

(b3)0.01至100,較佳0.1至80重量比

(基於成分(b1))羥基羧酸B1,及

(b4)0至5,較佳0至4,特佳0.01至3.5莫耳%(基於成分(b1))化合物D,

此處羥基羧酸B1為式Ⅱa或Ⅱb定義之化合物



此處p為1至1500,較佳1至1000之整數,r為1,2,

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明(9)

3或4，較佳1及2，及G選自伸苯基， $-(CH_2)_n-$ ，此處n為1至12，較佳1，5或12之整數， $-C(R)H-$ 及 $-C(R)HCH_2$ 此處R為甲基或乙基之基團。

生物可分解聚酯P2可藉聚酯P1製備之類似方式加速製備，可於反應開始及酯化及轉移酯化階段後添加羧基羧酸B1。

較佳具體例中，所用羧基羧酸B1為：乙醇酸，D-，L-或D，L-乳酸，6-羧基己酸，其環系衍生物如乙交酯(1,4-二噁烷-2,5-二酮)，對羧苯甲酸及其賓聚物及聚合物，如聚-3-羧丁酸，聚羧戊酸，聚丙交酯(例如得自Cargill之EcoPLA)及聚-3-羧丁酸與聚羧戊酸之混合物(後者以Biopol之名得自Zeneca)，特佳低分子量及其環系衍生物供製備聚酯P2。

根據本發明之生物可分解聚酯Q1具有分子量(Mn)係於5000至100,000，較佳8000至80,000克/莫耳之範圍，黏度值係於30至450，較佳50至400克/毫升之範圍(於25°C於0.5%重量比聚酯Q1濃度於鄰二氯苯/酚(50/50重量比)測量)及熔點係於50至235，較佳60至235°C之範圍。

根據本發明聚酯Q1係經由反應組成如下之混合物獲得

- (c1) 聚酯P1及/或聚酯PWD，
- (c2) 基於(c1)，0.01-50，較佳0.1至40%重量比之羧基羧酸B1，及
- (c3) 基於得自製備P1及/或PWD之成分(a1)，0-5，較佳0至4莫耳%化合物D。

五、發明說明 (10)

生物可分解聚酯PWD一般係經由主要成分(a1)與(a2)反應而得，(a1)對(a2)之莫耳比係選自0.4:1至1.5:1，較佳0.6:1至1.25:1之範圍，但聚酯PWD之分子量(Mn)係於5000至50,000，較佳6000至35,000克/莫耳之範圍，黏度值係於30至350，較佳50至300克/毫升之範圍(於25°C於0.5%重量比聚酯P1濃度於50:50 w/w鄰二氯苯/酚(50/50重量比)測量)及溶點係於50至170°C，較佳60至160°C之範圍。

聚酯P1及/或PWD與羥基羧酸B1，若有所需於化合物D存在下之反應較佳於惰性氣氛下於120至260°C熔體進行，若有所需也可於減壓下進行。該程序可分批或連續，例如於攪拌之容器或(反應)擠壓機進行。

若有所需，反應速率可藉添加習知轉移酯化催化劑提高(參見前文製備聚酯P1之說明)。

較佳具體例係有關由成分P1與B1生成之具嵌段結構之聚酯Q1：當使用B1之環系衍生物(化合物Ib)時，可於與生物可分解聚酯P1之反應中，藉P1端基引發之開環聚合反應而以習知方式獲得具嵌段結構之聚酯Q1(開環聚合反應時，參見Encycl. of Polym. Science and Eng. Volume 12, 2nd Edition, John Wiley & Sons, 1988, p. 36-41)。若有所需，反應可藉添加如前述轉移酯化催化劑之催化劑進行，而以辛酸錫為特佳(也參見Encycl. of Polym. Science and Eng. Volume 12, 2nd Edition, John Wiley & Sons, 1988, p. 36-41)。

當使用具較高分子量，例如p大於10之成分B1時，可經

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (11)

由與聚酯P1於攪拌之容器或擠壓機內獲得，經由選擇反應條件如溫度，停留時間及轉移酯化催化劑如前述之添加而獲得所需嵌段結構。如此，J. of Appl. Polym. Sci., 32 (1986) 6191-6207及Makromol. Chemie, 136 (1970) 311-313揭示於聚酯之熔體反應可藉轉移酯化反應由攪合物最初獲得嵌段共聚物然後獲得逢機共聚物。

根據本發明之生物可分解聚酯Q2具有分子量(Mn)係於6000至60,000，較佳8000至50,000，特佳10,000至40,000克/莫耳之範圍，黏度值係於30至350，較佳50至300克/毫升之範圍(於25℃於0.5%重量比聚酯Q2濃度於鄰二氯苯/酚(50/50重量比)測量)及熔點係於50至170，較佳60至160℃之範圍。

根據本發明聚酯Q2係經由反應組成如下之混合物獲得

(d1) 95至99.9，較佳96至99.8，特性97至99.65%重量比之聚酯P1及/或申請專利範圍第3項之聚酯PWD，

(d2) 0.1至5，較佳0.2-4，特佳0.35至3%重量比之二異氰酸酯C1及

(d3) 基於得自製備P1及/或PWD之成分(a1)，0至5，較佳0至4莫耳%化合物D。

根據觀察可使用全部習知商業可得之二異氰酸酯作為二異氰酸酯C1。較佳使用選自下列之二異氰酸酯：伸甲苯基2,4-二異氰酸酯，伸甲苯基2,6-二異氰酸酯，4,4'-及2,4'-二苯基甲烷二異氰酸酯，伸萘基1,5-二異氰酸酯，伸二甲苯基二異氰酸酯，六亞甲基二異氰酸酯，異佛爾酮

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明 (12)

二異氰酸酯及亞甲基貳(4-異氰酸基環己烷)，特佳六亞甲基二異氰酸酯。

原則上也可使用官能基不少於三之含異三聚氰酸基及/或縮二脲基之三官能異氰酸酯化合物，或以三-或多異氰酸酯部份替代二異氰酸酯化合物C1。

聚酯P1及/或PWD較佳於熔體與二異氰酸酯C1反應，若可能須小心未發生可能導致交聯或凝膠生成之副反應。特殊具體例中，反應通常係於130至240，較佳140至220℃進行，二異氰酸酯較佳分成多份或連續添加。

若有所需也可於習知情性溶劑如甲苯，甲基乙基甲酮或二甲基甲醯胺(DMF)或其混合物或存在下進行聚酯P1及/或PWD與二異氰酸酯C1之反應，其中反應原則上係於80至200，較佳90至150℃進行。

與二異氰酸酯C1之反應可分批或連續進行，例如於攪拌容器，反應擠壓機或經由混合頭進行。

於聚酯P1及/或PWD與二異氰酸酯C1之反應中也可使用先前技術揭示之習知添加劑(例如述於EP-A 534 295)或可用於或曾經用於製備聚酯P1及Q1者，而若聚酯P1及/或PWD未於聚酯Q2之製備中分離，則現在也可進一步使用。

值得一提之範例有：第三胺如三乙胺，二甲基環己胺，N-甲基嗎啉，N,N'-二甲基六氫吡啶，二吡雙環[2.2.2]辛烷等，特別有機金屬化合物如鈦化合物，鐵化合物，錫化合物，例如二丁氧二乙醯乙醯氧鈦，四丁基原鈦酸酯，二乙酸錫，二辛酸錫，二月桂酸錫，或脂族羧酸之二烷

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明(13)

基錫鹽如二乙酸二丁錫，二月桂酸二丁錫等，再度必須小心，若屬可能，未使用任何毒性化合物。

雖然理論上製造P1及/或PWD與二異氰酸酯C1之反應為異氰酸官能基對P1(PWD)端基為1:1莫耳比(以主要含羥基端基之聚酯P1及/或PWD為佳)，反應也可以1:3至1.5:1之莫耳比毫無技術問題地進行。莫耳比大於1:1則若有所需可於反應中或反應後添加選自成分(a2)之鏈延長劑，較佳C₂-C₆二醇。

根據本發明之生物可分解聚合物T1具有分子量(Mn)係於10,000至100,000，較佳11,000至80,000，特佳11,000至50,000克/莫耳之範圍，黏度值係於30至450，較佳50至400克/毫升之範圍(於25°C於0.5%重量比聚合物T1濃度於鄰二氯苯/酚(50/50重量比)測量)及熔點係於50至235，較佳60至235°C之範圍。

根據本發明生物可分解聚合物T1係經由如申請專利範圍第3項之聚酯Q1與下列各者反應而得

(e1)基於聚酯Q1，0.1-5，較佳0.2至4，特佳0.3至2.5%重量比之二異氰酸酯C1及

(e2)基於經由聚酯P1及/或PWD製備聚酯Q1之成分(a1)，0-5，較佳0至4莫耳%化合物D。

如此通常導致鏈延長，所得聚合物鏈較佳具有嵌段結構。

原則上，反應係以類似製備聚酯Q2之方式進行。

根據本發明之生物可分解聚合物T2具有分子量(Mn)係於

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明 (14)

10,000至100,000，較佳11,000至80,000，特佳11,000至50,000克/莫耳之範圍，黏度值係於30至450，較佳50至400克/毫升之範圍（於25℃於0.5%重量比聚合物T2濃度於鄰二氯苯/酚（50/50重量比）測量）及熔點係於50至235，較佳60至235℃之範圍。

根據本發明生物可分解聚合物T2係經由聚酯Q2與下列各者反應而得

(f1)基於聚酯Q2，0.01-50，較佳0.1至40%重量比之羥基羧酸B1及

(f2)基於經由聚酯P1及/或PWD製備聚酯醯胺Q2之成分(a1)，0-5，較佳0至4莫耳%化合物D，

反應程序方便地類似聚酯P1與羥基羧酸B1反應獲得聚酯Q1之反應。

根據本發明之生物可分解聚合物T3具有分子量(Mn)係於10,000至100,000，較佳11,000至80,000克/莫耳之範圍，黏度值係於30至450，較佳50至400克/毫升之範圍（於25℃於0.5%重量比聚合物T3濃度於鄰二氯苯/酚（50/50重量比）測量）及熔點係於50至235，較佳60至235℃之範圍。

根據本發明生物可分解聚合物T3係經由下列各者反應而得(g1)聚酯P2，或(g2)主要由聚酯P1與基於聚酯P1，0.01-50，較佳0.1至40%重量比之羥基羧酸B1組成之混合物，或(g3)一種混合物其主要組成爲彼此組成不同之聚酯P1，與

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (15)

基於所用聚酯數量，0.1-5，較佳0.2至4，特佳0.3至2.5%重量比之二異氰酸酯C1及

基於用於製備聚酯(g1)至(g3)之成分(a1)個別莫耳量，0-5，較佳0至4莫耳%化合物D，反應可方便地以類似由聚酯P1及/或PWD及二異氰酸酯C1製備聚酯Q2之方式進行。

較佳具體例中，使用重複單位隨機分布於分子之聚酯P2。

然而，也可使用聚合物鏈含嵌段結構之聚酯P2。此型聚酯P2通常係經由適當選自羧基羧酸B1，特別選擇其分子量獲得。如此，根據今日觀察通常當使用高分子量羧基羧酸B1時僅有不完全轉移酯化後轉移醯胺化反應，特別p大於10，例如即使有所述失活化劑共存亦如此(參見J. of Appl. Polym. Sci. 32 (1986) 6191-6207 and Makro-mol. Chemie 136 (1970) 311-313)。若有所需，反應可使用由聚酯Q1及二異氰酸酯C1製備聚合物T1所述溶劑於溶液進行。

生物可分解熱塑模塑組成物T4係根據本發明經由以習知方式混合獲得，較佳添加習知添加劑如安定劑，加工助劑，填充劑等(參見J. of Appl. Polym. Sci. 32 (1986) 6191-6207; WO 92/0441; EP 515, 203; Kunststoff-Handbuch, Vol. 3/1, Carl Hanser Verlag Munich, 1992, 24-28頁)，

(h1)99.5-0.5%重量比之如申請專利範圍第1項之P1，或如申請專利範圍第4項之Q2或如申請專利範圍第3項之聚酯PWD與

(h2)0.5-99.5%重量比之羧基羧酸B1。

較佳具體例中，使用高分子量羧基羧酸B1如分子量(Mn)

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

表

訂

線

五、發明說明(16)

於10,000至150,000,較佳10,000至100,000克/莫耳之聚己內酯或聚丙交酯或聚乙交酯或聚羥烷酸酯類,如聚-3-羥丁酸,或聚-3-羥丁酸與聚羥戊酸之混合物。

WO 92/0441及PE-A 515,203 揭示未添加增塑劑之高分子量聚丙交酯對大多數用途而言太脆。較佳具體例中可於0.5至20,較佳0.5至10%重量比之根據申請專利範圍第1項之聚酯醯胺P1或根據申請專利範圍第4項之聚酯醯胺Q2或如申請專利範圍第3項之聚酯PWD,及99.5-80,較佳99.5至90%重量比之聚丙交酯製備攪合物,其比較純聚丙交酯具有獨特改良之機械性質,例如耐衝擊強度增高。

另一較佳具體例係有關經由混合99.5至40,較佳99.5至60%重量比之根據申請專利範圍第1項之聚酯醯胺P1或根據申請專利範圍第4項之聚酯醯胺Q2或如申請專利範圍第3項之聚酯PWD,及0.5至60,較佳0.5至40%重量比之高分子量羥基羧酸B1所得攪合物,特佳聚丙交酯,聚乙交酯,聚-3-羥丁酸與聚己內酯。此類攪合物完全生物可分解且根據至今之觀察具有極為良好的機械性質。

根據觀察,根據本發明之熱塑模塑組成物T4較佳係經由進行數次短時間混合獲得,例如於擠壓機混合。也可經由選擇混合參數,特別,混合時間及若有所需用失活化劑獲得主要具有攪合物結構之模塑組成物,亦即,可控制混合過程,因此至少也可部份進行轉移酯化反應。

另一較佳具體例中可以下列替代0-50,較佳0-30莫耳%己二酸或其成酯衍生物或混合物:至少一種其它脂族C₄-

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (17)

C₁₀-或環脂族C₅-C₁₀-二羧酸或二元脂肪酸如丁二酸，戊二酸，庚二酸，辛二酸，壬二酸或癸二酸，或其酯衍生物如二-C₁-C₆-烷基酯或酐如丁二酐或其混合物，較佳丁二酸，丁二酐，癸二酸，二元脂肪酸及二-C₁-C₆-烷基酯如二甲基，二乙基，二正丙基，二異丁基，二正戊基，二新戊基，二正己基酯，特別二甲基丁二酸酯。

特佳具體例表示EP-A 7445所述用作混合物之成分(a1)之丁二酸，己二酸及戊二酸及C₁-C₆-烷基酯，特別二甲基酯及二異丁基酯。

另一較佳具體例中可使用下列替代0-50，較佳0-40莫耳%對酞酸或其成酯衍生物或其混合物：至少一種其它芳族二羧酸如間酞酸，酞酸或2,6-萘二羧酸，較佳間酞酸或其酯衍生物如二-C₁-C₆-烷基酯，特別二甲基酯或其混合物。

須注意一般而言根據本發明之多種聚合物可以習知方式分離聚合物後續處理，或特別若期望進一步反應聚酯醯胺P1、P2、Q1及Q2，但未分離該聚合物反而即刻進行進一步處理。

根據本發明之聚合物可藉滾塗、展布、噴塗或傾倒等用於塗覆基質。較佳塗覆基質為可堆肥或堆肥者如紙，纖維素或澱粉模製物。

根據本發明聚合物也可用於生產可堆肥之模塑件，值得一提之模塑件範例有：即棄式物件如陶器，餐具，垃圾袋，促進收成的農業用薄片，包裝紙及生長中的植物容器。

此外，可將本發明聚合物以習知方法紡成線。若有所需

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

表

訂

線

五、發明說明 (18)

，線可藉習知方法拉伸，拉伸－加捻，拉伸－捲繞，拉伸－包裹，拉伸－上漿及拉伸－紡織。此外，平紗拉伸可於同一工作步驟（完全拉伸紗或完全取向紗）或於各別步驟進行。拉伸－包裹，拉伸－上漿及拉伸－熾通常係於紡紗之各別工作步驟進行。線可進一步以習知方式加工成纖維。然後薄片狀構造可藉編織或針織由纖維獲得。

前述模塑件、塗覆組成物及線等，若有所需，也可含有填充劑其可於聚合過程中於任何階段或隨後，例如於根據本發明之聚合物熔體內攪混。

基於本發明聚合物，可添加0-80%重量比填充劑。適當填充劑範例有炭黑、澱粉、木質素粉、纖維素纖維、天然纖維如瓊麻及麻、鐵氧化物、黏土礦、礦石、碳酸鈣、硫酸鈣、硫酸鋇及二氧化鈦。某些例中填充劑也可含安定劑如生育酚（維生素E）、有機磷化合物、一－；二－及多酚等，氫醌、二芳基胺、硫醚、紫外光安定劑、晶核劑如滑石及潤滑劑及離型劑基於烴類、脂肪醇類、高碳羧酸類、高碳羧酸之金屬鹽如鈣及鋅硬脂酸鹽，及montan蠟。此等安定劑詳細說明於Kunststoff-Handbuch, Vol. 3/1, Carl Hanser Verlag, Munich, 1992, 24-28頁。

本發明聚合物額外可藉任何所需方式加入有機或無機染料著色。染料也可最廣義定義為填充劑。

本發明聚合物之特殊用途係關於使用可堆肥薄片或可堆肥塗膜作為尿布外層。尿布外層可有效防止尿布內側由絨絮和超吸收劑吸收的液體滲出，內部較佳利用生物可分解

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

訂

線

五、發明說明 (19)

超吸收劑，例如基於交聯聚丙烯酸或交聯聚丙烯醯胺。可使用纖維素材料網作尿布內層。所述尿布外層為生物可分解，因此可堆肥。其於堆肥時崩散，因此整個尿布腐敗；而提供例如聚乙烯外層之尿布無法未經事先縮小體積或繁複的去除聚乙烯薄片的工作而分解。

根據本發明之聚合物及模塑組成物之另一較佳用途係關於以習知方式生產黏著劑（例如參見Encycl. of Polym. Sc. and Eng. Vol. 1, “黏著劑組成物”，547-577頁）。根據本發明之聚合物及模塑組成物也可如EP-A 21042使用適當發黏熱塑樹脂，較佳天然樹脂，藉其匠述方法加工。根據本發明之聚合物及模塑組成物也可如ED-A 4 234 305所述進一步加工成不含溶劑之黏著系統如熱熔薄片。

另一較佳用途係關於以類似DE-A 42 37 535所述方法生產與澱粉混合物之完全可分解攪合物（較佳含W0 90/05161所述熱塑澱粉）。根據本發明聚合物於此例可與澱粉混合物混合成顆粒或聚合物熔體，以混合成聚合物熔體為佳其原因為可節省一種製程步驟（造粒）（直接製成成品）。根據本發明之聚合物及模塑組成物，根據今日觀察，由於具疏水性，機械性質，完全生物可分解，與熱塑澱粉之相容性良好且因原料方便易得，故較佳作為合成攪合物成分。

進一步用途例如係關於根據本發明之聚合物用於農業保護性覆蓋物，種子及營養物之包裝材料、黏膠薄片之基質、嬰兒褲、藥包、床單、瓶子、盒子、集塵袋、標籤、保

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

訂

線

五、發明說明(20)

險槓覆蓋物、保護性衣著、衛生用品、手帕、玩具及抹布。

根據本發明之聚合物及模塑組成物之另一用途係關於生產發泡體，通常利用習知方法(參見EP-A 372 846；聚合物發泡體手冊及發泡技術，Hanser Publisher, Munich, 1991, p. 375-408)。通常根據本發明之聚合物或模塑組成物最初溶化，若有所需添加至多5%重量比化合物D，較佳1, 2, 3, 4, 5-苯四酸二酐及1, 2, 4-苯三酸酐，然後加入發泡劑及所得混合物藉擠壓暴露於減壓，獲得發泡。

根據本發明之聚合物優於已知生物可分解聚合物之優點為原料方便易得，起始物料方便易得，如己二酸，對酞酸及習知二醇，因聚合物鏈中“硬”(來自芳族二羧酸如對酞酸)段及“軟”(來自脂族二羧酸如己二酸)段組合故具有感興趣的機械性質，且因改質簡單故使用多變化，可被微生物滿意的分解，特別於堆肥及土壤中可分解，及於室溫對水系統中之微生物具有某種抗性，對許多用途特別有利。成分(a1)之芳族二羧酸逢機攪混於多種聚合物可進行生物攻擊，因而獲得所需生物分解性。

根據本發明之聚合物之特殊優點為可藉調整配方最適合特殊用途之生物分解及機械性質。

此外依據製法而定，較佳獲得主要具單體單位逢機分布之聚合物，主要具嵌段結構之聚合物，及主要具攪合結構之聚合物或攪合物。

實例

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明 (21)

酶試驗

聚合物以液態氮或乾冰冷卻並於研磨機中細研（酶崩解速率隨研磨物料表面積之增加而增加）。欲進行真正酶試驗，30毫克細研聚合物粉及2毫升20毫莫耳/升 K_2HPO_4/KH_2PO_4 緩衝水溶液（pH：7.0）置於衣本朵夫管內（2毫升）並於37℃於管旋轉機內平衡3小時。隨後加入100單位得自Rhizopus arrhizus, Rhizopus delemar或Pseudomonas pl.之脂解酶，混合物於37℃培育同時於管旋轉機攪拌（250 rpm）16小時。然後反應混合物經Millipore薄膜（0.45微米）過濾，及濾液之DOC（溶解有機碳）經測量。DOC之測量係僅使用緩衝液與酶（作為酶對照）及以類似方式僅使用酶及樣品（作為空白）進行。

ΔDOC 值（ $DOC（樣品 + 酶） - DOC（酶對照） - DOC（空白）$ ）測量值可視為樣品之酶分解性之測量值。於各例係經由與使用聚己內酯Tone P 787（Union Carbide）粉末之測量值比較表示。須注意評估時並非絕對可量化資料。前文曾敘述有關研磨物料表面積與酶分解速率之關係。此外，酶活性也有變化。

氣之通透性及滲透性可藉DIN 53380方法測量，水蒸氣通透性係藉DIN 53122方法測量。

分子量係藉凝膠滲透層析術（GPC）測量：

靜相：得自Polymer Laboratories之5根MIXED B聚

苯乙烯凝膠柱（7.5×300毫米，PL凝膠10微米）；平衡：35℃。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

訂

線

五、發明說明 (22)

動相：四氫呋喃 (流速：1.2毫升/分鐘)。

校準：分子量500-10,000,000克/莫耳使用得自Polymer Laboratories之PS校準套件。

於乙基苯/1,3-二苯基丁烷/1,3,5-三苯基己烷/1,3,5,7-四苯基辛烷/1,3,5,7,9-五苯基癸烷寡聚物之範圍。

檢測：RI (折射指數) Waters 410

UV (254nm) Spectra Physics 100。

羥基值 (OH值) 及酸值 (AN) 係藉下述方法測定：

a) 名目羥基值之測定

10毫升甲苯及9.8毫升乙醚化劑 (參見下文) 加至約1至2克精確稱重使用物質，混合物藉攪動於95°C加熱1小時。然後加入5毫升蒸餾水。冷卻至室溫後，加入50毫升四氫呋喃 (THF)，及混合物使用電位儀對乙醇系KOH標準溶液滴定至轉變點。

未含試驗物質重複進行實驗 (空白樣品)。

然後由下式測定名目OH值：

名目OH值 $c \times t \times 56.1 (V2 - V1) / m$ (mg KOH/g) 此處

c = 乙醇系KOH標準溶液之物質濃度量，莫耳/升，

t = 乙醇系KOH標準溶液力價

m = 試驗物質重量，毫克

$V1$ = 所用含試驗物質之標準溶液，毫升

$V2$ = 所用未含試驗物質之標準溶液，毫升

使用試劑：

乙醇系KOH標準溶液， $c = 0.5$ 莫耳/升，力價0.9933 (

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明 (23)

Merck, Cat. No. 1.09114)

乙酐，分析級 (Merck, Cat. No. 42)

吡啶，分析級 (Riedel de Haen, Cat. No. 33638)

乙酸，分析級 (Merck, Cat. No. 1.00063)

乙醚化劑：810 毫升吡啶，100 毫升乙酐及9 毫升乙酸水，去離子

THF 及甲苯

b) 酸值 (AN) 之測定

10 毫升甲苯及10 毫升吡啶加至約1 至1.5 克精確稱重試驗物質，然後混合物加熱至95℃。獲得溶液後冷卻至室溫，添加5 毫升水及50 毫升THF，對0.1N 乙醇系KOH 標準溶液滴定。

未含試驗物質 (空白樣品) 重複測定。

然後由下式計算酸值：

$$AN = c \times t \times 56.1 (V2 - V1) / m (\text{mg KOH} / \text{g})$$

此處

c = 乙醇系KOH 標準溶液之物質濃度量，莫耳 / 升，

t = 乙醇系KOH 標準溶液力價

m = 試驗物質重量，毫克

V1 = 所用含試驗物質之標準溶液，毫升

V2 = 所用未含試驗物質之標準溶液，毫升

使用試劑：

乙醇系KOH 標準溶液，c = 0.1 莫耳 / 升，力價 0.9913 (

Merck, Cat. No. 9115)

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

表

訂

線

五、發明說明 (24)

吡啶，分析級 (Riedel de Haen, Cat. No. 33638)

水，去離子

THF 及 甲 苯

c) OH 值之測定

OH 值係得自名目 OH 值與 AN 之和：

OH 值 = 名目 OH 值 + AN

使用縮寫：

DOC：溶解有機碳

DMT：二甲基對酞酸酯

PCL：聚己內酯 Tone P 787 (Union Carbide)

PMDA：1,2,3,5- 苯四酸二酐

AN：酸值

TBOT：四丁基原酞酸酯

VN：黏度值 (於 25°C 於 0.5% 重量比聚合物濃度於鄰二氯
苯 / 酚 (50/50 重量比) 測量)

T_m：熔點 = 出現最大吸熱通量之溫度 (DSC 圖之極端)

T_g：玻璃轉變溫度 (DSC 圖之中點)

DSC 測量係使用得自杜邦公司之 912 + 熱分析儀 990 進行。溫度及熱焓校準係以習知方式進行。樣品典型重量 13 毫克。除非另行指示否則加熱及冷卻速率為 20°K / 分鐘。

樣品係於下列條件下測量：

1. 對供應狀態之樣品進行加熱，
2. 由熔體快速冷卻，
3. 對熔體冷卻樣品 (得自 2 之樣品) 進行加熱。於均勻加

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (25)

熱前史後，各例中使用DSC回合以便比較多種樣品試驗。

聚酯P1之製備

實例1

4672千克1,4-丁二醇，7000千克己二酸及50克二辛酸錫於氮氣氛下於230至240°C範圍之溫度反應。反應中生成的水大半藉蒸餾去除後，10克TBOT加至混合物。酸值降至低於1時，於減壓下蒸餾去除過量1,4-丁二醇至OH值到達56為止。

實例2

360.4克實例1製備之聚合物，227.2克DMT，340克1,4-丁二醇及1克TBOT於氮氣氛下緩慢攪動至180°C。其間轉移酯化生成的甲醇藉蒸餾去除。混合物以2小時時間加熱至230°C，然後加入6.54克1,2,3,5-苯四酸二酐，又經1小時後加入0.4克50%重量比亞磷酸水溶液。然後以1小時時間減壓至5毫巴及混合物維持於低於2毫巴壓力於240°C又經1小時，其間藉蒸餾去除過量1,4-丁二醇。

OH值：16 mg KOH/g

AN：<1 mg KOH/g

VN：134.5 g/ml

T_m：94°C (DSC，如供應狀態)

T_g：-41°C (DSC，如供應狀態)

使用Rhizopus arrhizus之酶試驗，△DOC：571 mg/l

與PCL比較：△DOC：4044 mg/l

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (26)

實例 3

372.4 克實例 1 聚合物，215.6 克 DMT，340 克 1,4-丁二醇，5.8 克 4-羧酐酐，1.0 克 TBOT 及 0.4 克 50% 重量比亞磷酸如實例 2 反應，反應開始時加入 4-羧酐酐。

OH 值：16 mg KOH/g

AN：0.8 mg KOH/g

VN：71.4 g/ml

T_m：89°C (DSC，如供應狀態)

T_g：-43°C (DSC，如供應狀態)

實例 4

372.4 克實例 1 聚合物，215.6 克 DMT，340 克 1,4-丁二醇，6.3 克 1,3,5-苯三羧酸，1.0 克 TBOT 及 0.4 克 50% 重量比亞磷酸水溶液如實例 3 反應。

OH 值：18 mg KOH/g

AN：1.3 mg KOH/g

VN：61.3 g/ml

T_m：89°C (DSC，如供應狀態)

T_g：-43.5°C (DSC，如供應狀態)

實例 5

360.4 克實例 1 聚合物，221.4 克 DMT，340 克 1,4-丁二醇，11.5 克 4-羧酐酐，1.0 克 TBOT 及 0.4 克 50% 重量比亞磷酸水溶液如實例 3 反應。

OH 值：18 mg KOH/g

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

表

訂

線

五、發明說明 (27)

AN : 1.3 mg KOH/g

VN : 80.4 g/ml

T_m : 89°C (DSC , 如供應狀態)

T_g : -42°C (DSC , 如供應狀態)

實例 6

360克實例1聚合物，233克DMT，340克1,4-丁二醇，4.1克85-92%重量比季戊四醇與8-15%重量比二季戊四醇之混合物，1.0克TBOT及0.4克50%重量比亞磷酸水溶液如實例3反應。

OH值 : 22 mg KOH/g

AN : 0.8 g KOH/g

VN : 68.24 g/ml

T_m : 88.5°C (DSC , 如供應狀態)

T_g : -44°C (DSC , 如供應狀態)

實例 7

360克實例1聚合物，340克1,4-丁二醇，8克磺基間酞酸鈉，0.65克PMDA，1.0克TBOT及0.4克50%重量比亞磷酸水溶液如實例3反應，於反應開始時加入磺基間酞酸鈉。

OH值 : 10 mg KOH/g

AN : 2.4 g KOH/g

VN : 64.56 g/ml

T_m : 92°C (DSC , 如供應狀態)

T_g : 40°C (DSC , 如供應狀態)

實例 8

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明 (28)

341.2克DMT，646克1,4-丁二醇，0.65克PMDA，1.0克TBOT置於三頸瓶並於氮氣氛下加熱至180℃同時緩慢攪拌。其間反應生成的甲醇藉蒸餾去除。加入313克己二酸後，混合物加熱至230℃同時以2小時時間增高攪拌速度，其間反應生成的水藉蒸餾去除。又經1小時後，加入0.4克50%強度重量比亞磷酸水溶液。然後以1小時時間減壓至5毫巴，然後混合物於低於2毫巴及240℃加熱1小時，其間過量1,4-丁二醇藉蒸餾去除。

OH值：19 mg KOH/g

AN：0.2 g KOH/g

VN：48.6 g/ml

T_m：109.5℃ (DSC，如供應狀態)

T_g：-28℃ (DSC，如供應狀態)

實例9 - 聚酯P2之製備

372克乙二醇，388克DMT，1.0克TBOT及12克磺基間酞酸鈉置於三頸瓶並於氮氣氛下以緩慢攪拌加熱至180℃。其間轉移酯化生成的甲醇藉蒸餾去除。然後加入75克己二酸及43.5克91%重量比乳酸。混合物加熱至200℃同時以2小時時間提高攪拌速率。減壓至5毫巴然後於低於2毫巴壓力及210℃又加熱1小時，其間縮合反應生成水及過量乙二醇藉蒸餾去除。

OH值：13 mg KOH/g

AN：2.6 g KOH/g

T_m：176.4℃ (DSC，如供應狀態)

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (29)

實例 10

(a) 362 實例 1 聚合物，234 克 DMT，340 克 1,4-丁二醇，1TBOT 及 0.4 克 50% 強度重量比亞磷酸水溶液如實例 2 反應。

OH 值：20 mg KOH/g

AN：0.8 g KOH/g

VN：42 g/ml

(b) 120 克實例 10(a) 聚合物與 60 克聚丙交酯及 0.75 克 PMDA 於氮氣氛下加熱至 180°C 及攪拌 2 小時。然後以 15 分鐘時間，加入 1.68 克六亞甲基二異氰酸酯 (HDI) 及混合物又攪拌 30 分鐘。

加入 HDI 前產物：

VN：48 g/l

加入 HDI 後產物：

VN：65 g/l

T_m：95.5°C，143°C，151.8°C (DSC，由 200°C 快速冷卻)

T_g：-30°C，48.5°C (DSC，由 200°C 快速冷卻)

實例 11

30 克實例 10(a) 聚合物與 120 克聚己內酯及 0.75 克 1,2,3,5-苯四酸二酐於氮氣氛下加熱至 180°C 及攪拌 2 小時。然後以 15 分鐘時間，加入 1.74 克六亞甲基二異氰酸酯及混合物攪拌 30 分鐘。

加入 HDI 前產物：

VN：76 g/ml

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明 (30)

加入HDI後產物：

VN：213 g/l

T_m：-48℃ (DSC，如供應狀態)

T_g：53.3℃，91.5℃ (DSC，如供應狀態)

實例12

1.81克實例1聚合物，1.17千克DMT，1.7千克1,4-丁二醇，4.7克TBOT，6.6克PMDA及1.9克50%強度亞磷酸水溶液如實例2反應，反應完成後熔體冷卻至200℃同時於氮氣氛下攪拌。然後以40分鐘時間分成四份加入15克六亞甲基二異氰酸酯。可將聚酯造粒並加工處理成吹塑薄膜。

OH值：2 mg KOH/g

AN：5.5 mg KOH/g

GPC：M_n = 14320，M_w = 98350 (UV檢測器，254nm，Spectra Physics 100)

T_m：98℃，T_g：-31℃ (DSC，由190℃快速冷卻)

使用 *Rhizopus arrhizus* 之酶試驗：△DOC：264 mg/l (薄片) / △DOC - (PCL粉末)：2588 mg/l

薄片性質：-

- 薄片厚度：約50微米，吹上比：1：2

- 終抗拉強度 (DIN 53455) 縱：27.9/橫：28.1 N/mm²

- 斷裂點伸度 (DIN 53455) 縱：733%/橫：907%

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明 (31)

樣品編號	薄片厚度(微米)	水通透性	水滲透性
		$q \frac{g}{m^2 \times d}$	$p \frac{g \times 100 \mu m}{m^2 \times d}$
		23°C/85% →	0% r. h.
1	37	366	135
2	42	304	128

樣品編號	薄片厚度(微米)	通透性	水滲透性
		$q \frac{cm^3}{m^2 \times d \times bar}$	$p \frac{cm^3 \times 100 \mu m}{m^2 \times d \times bar}$
		23°C/0% r. h.	23°C/0% r. h.
3	49	1500	735
4	48	1560	749

r. h. = 相對濕度

實例 13

16.52 千克實例 1 聚合物，1.31 千克 DMT，17 千克 1,4-丁二醇，47 克 TBOT，16.5 克 PMDA 及 19 克 50% 強度亞磷酸水溶液如實例 2 反應，反應完成後熔體冷卻至 200°C 同時於氮氣氛下攪拌。然後以 40 分鐘時間分成⁵份加入 290 克六亞甲基二異氰酸酯。可將聚酯造粒。

OH 值：2 mg KOH/g

AN：4.1 mg KOH/g

GPC：Mn = 17589，Mw = 113550 (UV 檢測器，254nm，

Spectra Physics 100)

Tm：108.3°C

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線

五、發明說明 (32)

T_g : -25.6°C (DSC , 由 190°C 快速冷卻)

實例 14

澱粉與實例 13 聚酯之攪合物係於同軸旋轉之雙螺桿擠壓機 (L/D 比 : 37) 製備，通過料量約 30 千克 / 小時，溫度為 $50-220^{\circ}\text{C}$ 。首先天然馬鈴薯澱粉以甘油塑化，所得結構崩解的熱塑澱粉除氣。澱粉攪合物可造粒並加工處理成吹塑薄膜係經由將顆粒狀之實例 13 聚合物通過同軸旋轉之雙螺桿輔助擠壓機 (L/D 比 : 21) 混合而得。

澱粉攪合物組成：

- 10 千克 / 小時 D6 (得自 AVEBE ; 天然馬鈴薯澱粉水含量 6-10% 重量比)
- 6 千克 / 小時甘油
- 14 千克 / 小時實例 13 聚合物
- 0.15 千克 / 小時界醯胺
- 0.15 千克 / 小時 Loxiol G 31

Loxiol G 31 : 液態中性脂肪酸酯，傾點 $< 19^{\circ}\text{C}$ ，密度： $0.853-0.857$ 克 / 立方釐米 (20°C)，得自 Henkel

薄片性質：-

- 薄片厚度：約 100 微米，吹上比：1 : 2
- 終抗拉強度 (DIN 53455) 縱：16.6 / 橫：10.0 N/mm^2
- 斷裂點伸度 (DIN 53455) 縱：789% / 橫：652%

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (33)

樣品編號	薄片厚度(微米)	水通透性	氫滲透性
		$q \frac{g}{m^2 \times d}$	$p \frac{gx100\mu m}{m^2 \times d}$
		23°C/85% →	0% r. h.
5	97	275	267
6	106	211	224

樣品編號	薄片厚度(微米)	氧通透性	水滲透性
		$q \frac{cm^3}{m^2 \times d \times bar}$	$p \frac{cm^3 \times 100 \mu m}{m^2 \times d \times bar}$
		23°C/0% r. h.	23°C/0% r. h.
7	105	78	82
8	103	77	79

實例15

120 千克實例1聚合物，77.68 千克DMT，112.5 克1,4-丁二醇及311 克TBOT置於反應器及於氮氣氛下以緩慢攪拌加熱至180°C。其間轉移酯化生成的甲醇藉蒸餾去除。混合物加熱至230°C同時以2 小時時間提高反應速率，加入110 克1,2,3,5-苯四酸二酐，及又經1 小時後加入125 克50%重量比亞磷酸水溶液。以1.5 小時時間減壓至5 毫巴並維持低於2 毫巴及240°C 2 小時，其間過量1,4-丁二醇藉蒸餾去除。反應完成後，熔體冷卻至200°C同時於氮氣氛下攪拌。然後以60 分鐘時間連續加入2.3 千克六亞甲基二異氰酸酯。又經30 分鐘後，排放聚酯。

OH值：3 mg KOH/g

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

表

訂

線

五、發明說明 (34)

AN : 3.7 mg KOH/g

GPC : $M_n = 15892$, $M_w = 77920$ (UV 檢 測 器 , 254nm ,
Spectra Physics 100)

T_m : 97.6°C

T_g : -29.3°C (DSC , 由190°C 快速冷卻)

實例 16

澱粉與實例15聚酯之攪合物係於同軸旋轉之雙螺桿擠壓機 (L/D 比 : 37) 製備 , 通過料量約30千克/小時 , 溫度為50-220°C 。首先天然馬鈴薯澱粉以甘油/MA混合物塑化 , 所得結構崩解的熱塑澱粉除氣。澱粉攪合物可造粒並加工處理成吹塑薄膜係經由同軸旋轉之雙螺桿輔助 擠壓機 (L/D 比 : 22 , 溫度 : 50-150°C) 直接混合實例15聚合物呈聚合物熔體 (未事先分離成顆粒等) 而得。

優點 : 單一製程步驟節省 , 特別由於攪合物形態故薄片具有高度防水性。

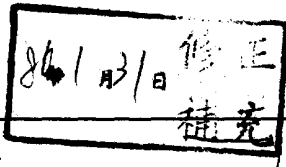
澱粉攪合物組成 :

- 10 千克 / 小時 D6 (得自 AVEBE ; 天然馬鈴薯澱粉水含量 6-10% 重量比)
- 6 千克 / 小時 甘油 + 0.5% 重量比 順丁烯二酐
- 14 千克 / 小時 實例 15 聚合物
- 0.15 千克 / 小時 界鹽胺
- 0.15 千克 / 小時 Loxiol G 31

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

線



四、中文發明摘要(發明之名稱: 生物可分解聚合物, 其製備及
製造生物可分解模塑之用途

一種生物可分解聚酯 P1 係經由反應主要組成如下之混合物獲得

(a1) 一種混合物主要包括

35-95 莫耳% 己二酸或其成酯衍生物或混合物,

5-65 莫耳% 對酞酸或其成酯衍生物或混合物,

及

0-5 莫耳% 磺酸鹽化合物,

各別莫耳百分率之總和為 100 莫耳%, 及

(a2) 一種選自 C₂-C₆ 烷二醇和 C₅-C₁₀ 環烷二醇之二羥基化合物,

(a1) 對(a2)之莫耳比係選自 0.4 : 1 至 1.5 : 1 之範圍,

英文發明摘要(發明之名稱:

" BIODEGRADABLE POLYMERS, PREPARATION
THEREOF AND USE THEREOF FOR PRODUCING
BIODEGRADABLE MOLDINGS "

Biodegradable polyesters P1 obtainable by reaction of a mixture
consisting essentially of

(a1) a mixture consisting essentially of

from 35 to 95 mol% of adipic acid or ester-forming derivatives thereof or mixtures thereof,

from 5 to 65 mol% of terephthalic acid or ester-forming derivatives thereof or mixtures thereof, and

from 0 to 5 mol% of a sulfonate compound,
the sum of the individual mole percentages being
100 mol%, and

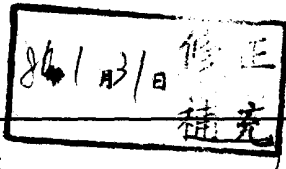
(a2) a dihydroxy compound selected from the group consisting
of C₂-C₆-alkanediols and C₅-C₁₀-cycloalkanediols,

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

錄



四、中文發明摘要(發明之名稱： 生物可分解聚合物，其製備及
製造生物可分解模塑之用途

一種生物可分解聚酯 P1 係經由反應主要組成如下之混合物獲得

(a1) 一種混合物主要包括

35-95 莫耳% 己二酸或其成酯衍生物或混合物，

5-65 莫耳% 對酞酸或其成酯衍生物或混合物，

及

0-5 莫耳% 磺酸鹽化合物，

各別莫耳百分率之總和為 100 莫耳%，及

(a2) 一種選自 C₂-C₆ 烷二醇和 C₅-C₁₀ 環烷二醇之二羥基化合物，

(a1) 對(a2)之莫耳比係選自 0.4 : 1 至 1.5 : 1 之範圍，

英文發明摘要(發明之名稱：

" BIODEGRADABLE POLYMERS, PREPARATION
THEREOF AND USE THEREOF FOR PRODUCING
BIODEGRADABLE MOLDINGS "

Biodegradable polyesters P1 obtainable by reaction of a mixture
consisting essentially of

(a1) a mixture consisting essentially of

from 35 to 95 mol% of adipic acid or ester-forming derivatives thereof or mixtures thereof,

from 5 to 65 mol% of terephthalic acid or ester-forming derivatives thereof or mixtures thereof, and

from 0 to 5 mol% of a sulfonate compound,
the sum of the individual mole percentages being
100 mol%, and

(a2) a dihydroxy compound selected from the group consisting
of C₂-C₆-alkanediols and C₅-C₁₀-cycloalkanediols,

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

錄

四、中文發明摘要(發明之名稱:)

但聚酯P1之分子量(M_n)係於5000至50,000克/莫耳之範圍,黏度值係於30至350克/毫升之範圍(於25°C於0.5%重量比聚酯P1濃度於50:50 w/w鄰二氯苯/酚(50/50重量比)測量)及熔點係於50至170°C之範圍,又使用基於成分(a1)之莫耳量,0.01至5莫耳%具至少三個成酯基之化合物D製備聚酯P1,

及其它生物可分解聚合物及熱塑模塑組成物,其製法,其用以生產生物可分解模塑件之用法,及由根據本發明之聚合物及模塑組成物所得黏著劑,生物可分解模塑件,發泡體及與澱粉之攪合物。

英文發明摘要(發明之名稱:)

the molar ratio of (a1) to (a2) being chosen within the range from 0.4:1 to 1.5:1,

with the proviso that the polyesters P1 have a molecular weight (M_n) within the range from 5000 to 50,000 g/mol, a viscosity number within the range from 30 to 350 g/ml (measured in 50:50 w/w o-dichlorobenzene/phenol at a concentration of 0.5% by weight of polyester P1 at 25°C) and a melting point within the range from 50 to 170°C and with the further proviso that the polyesters P1 are prepared using from 0.01 to 5 mol%, based on the molar quantity used of component (a1), of a compound D having at least three groups capable of ester formation,

and further biodegradable polymers and thermoplastic molding compositions, processes for the preparation thereof, use thereof for producing biodegradable moldings, and adhesives, biodegradable moldings, foams and blends with starch obtainable from the polymers or molding compositions of the present invention.

六、申請專利範圍

88.11.30 修正
88.11 補充

1. 一種生物可分解聚酯 P1，其係經由主要組成如下之混合物反應而得：

(a1) 一種混合物，其主要包括

45 至 80 莫耳 % 己二酸或其成酯衍生物或其混合物，

20 至 55 莫耳 % 對酞酸或其成酯衍生物或其混合物，及

0-5 莫耳 % 磺酸酯化合物，

各別莫耳百分率之總和為 100 莫耳 %，及

(a2) 選自 C₂-C₆ 烷二醇及 C₅-C₁₀ 環烷二醇之二羥基化合物，

(a1) 對 (a2) 之莫耳比係選擇於 0.4 : 1 至 1.5 : 1 之範圍，但聚酯 P1 具有分子量 (Mn) 於 5000 至 50,000 克 / 莫耳之範圍，黏度值於 30 至 350 克 / 毫升之範圍 (於 25°C 下於 0.5 % 重量比聚酯 P1 濃度於 50/50 w/w 鄰二氯苯 / 酚中測量)，及熔點係於 50 至 170°C 之範圍，即聚酯 P1 係使用基於成分 (a1) 之莫耳用量，0.01 至 5 莫耳 % 含至少三個成酯基之化合物 D 加以製備。

2. 一種生物可分解聚酯 P2，其係經由主要組成如下之混合物反應而得：

(b1) 一種混合物，其主要包括

30 至 70 莫耳 % 己二酸或其成酯衍生物或其混合物，

30 至 70 莫耳 % 對酞酸或其成酯衍生物或其混合物，及

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

六、申請專利範圍

88.11.30 修正
88.11 補充

1. 一種生物可分解聚酯 P1，其係經由主要組成如下之混合物反應而得：

(a1) 一種混合物，其主要包括

45 至 80 莫耳 % 己二酸或其成酯衍生物或其混合物，

20 至 55 莫耳 % 對酞酸或其成酯衍生物或其混合物，及

0-5 莫耳 % 磺酸酯化合物，

各別莫耳百分率之總和為 100 莫耳 %，及

(a2) 選自 C₂-C₆ 烷二醇及 C₅-C₁₀ 環烷二醇之二羥基化合物，

(a1) 對 (a2) 之莫耳比係選擇於 0.4 : 1 至 1.5 : 1 之範圍，但聚酯 P1 具有分子量 (Mn) 於 5000 至 50,000 克 / 莫耳之範圍，黏度值於 30 至 350 克 / 毫升之範圍 (於 25°C 下於 0.5 % 重量比聚酯 P1 濃度於 50/50 w/w 鄰二氯苯 / 酚中測量)，及熔點係於 50 至 170°C 之範圍，即聚酯 P1 係使用基於成分 (a1) 之莫耳用量，0.01 至 5 莫耳 % 含至少三個成酯基之化合物 D 加以製備。

2. 一種生物可分解聚酯 P2，其係經由主要組成如下之混合物反應而得：

(b1) 一種混合物，其主要包括

30 至 70 莫耳 % 己二酸或其成酯衍生物或其混合物，

30 至 70 莫耳 % 對酞酸或其成酯衍生物或其混合物，及

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

六、申請專利範圍

0-5 莫耳% 磺酸酯化合物，

各別莫耳百分率之總和為100莫耳%，及

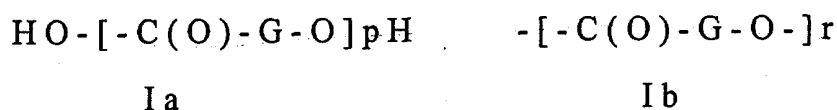
(b2) 二羥基化合物(a2)，

此處(b1)對(b2)之莫耳比係選擇於0.4：1至1.5：1之範圍，

(b3) 基於成分(b1)，0.01至100%重量比之羥基羧酸B1，及

(b4) 基於成分(b1)，0至5莫耳%含至少三個成酯基之化合物D，

羥基羧酸B1係由式Ia或Ib加以定義



其中p為1至1500之整數，r為1至4之整數，及G為選自伸苯基， $-(\text{CH}_2)_n-$ ，此處n為1至5之整數， $-\text{C}(\text{R})\text{H}-$ 及 $-\text{C}(\text{R})\text{HCH}_2-$ ，其中R為甲基或乙基之基團，

聚酯P2具有分子量(Mn)於5000至80,000克/莫耳之範圍，黏度值於30至450克/毫升之範圍（於25℃下於0.5%重量比聚酯P2濃度於50/50 w/w 鄰二氯苯/酚中測量），及熔點係於50至235℃之範圍。

3. 一種生物可分解聚酯Q1，其係經由主要組成如下之混合物反應而得：

(c1) 如申請專利範圍第1項之聚酯P1及/或聚酯PWD，

其中聚酯PWD係經由主要成分(a1)及(a2)反應而得，(a1)對(a2)之莫耳比係選擇於0.4：1至1.5：1之範圍，其中

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

六、申請專利範圍

(a1) 為一種混合物，其主要包括

45至80莫耳%己二酸或其成酯衍生物或其混合物，

20至55莫耳%對酞酸或其成酯衍生物或其混合物，及

0-5莫耳%磺酸酯化合物，

各別莫耳百分率之總和為100莫耳%，且

(a2) 為選自C₂-C₆烷二醇及C₅-C₁₀環烷二醇之二羥基化合物，

(c2) 基於(c1)，0.01至50%重量比之羧基羧酸B1，及

(c3) 基於製備P1及PWD之成分(a1)，0至5莫耳%之含至少三個成酯基之化合物D，

其限制條件為聚酯PWD具有分子量(Mn)於5000至50,000克/莫耳之範圍，黏度值於30至350克/毫升之範圍（於25℃下於0.5%重量比聚酯PWD濃度於50/50 w/w鄰二氯苯/酚中測量），及熔點係於50至170℃之範圍，聚酯Q1具有分子量(Mn)於5000至100,000克/莫耳之範圍，黏度值於30至450克/毫升之範圍（於25℃下於0.5%重量比聚酯Q1濃度於50/50 w/w鄰二氯苯/酚中測量），及熔點係於50至235℃之範圍。

4. 一種生物可分解聚酯Q2，其具有分子量(Mn)於6000至60,000克/莫耳之範圍，黏度值於30至350克/毫升之範圍（於25℃下於0.5%重量比聚酯Q2濃度於50/50 w/w鄰二氯苯/酚中測量），及熔點係於50至170℃之範圍，且其係經由主要組成如下之混合物反應而得：

六、申請專利範圍

(d1) 95至99.9%重量比之如申請專利範圍第1項之聚酯P1及/或聚酯PWD，其中聚酯PWD係經由主要成分(a1)及(a2)反應而得，(a1)對(a2)之莫耳比係選擇於0.4：1至1.5：1之範圍，其中

(a1) 為一種混合物，其主要包括

45至80莫耳%己二酸或其成酯衍生物或其混合物，

20至55莫耳%對酞酸或其成酯衍生物或其混合物，及

0-5莫耳%磺酸酯化合物，

各別莫耳百分率之總和為100莫耳%，且

(a2) 為選自C₂-C₆烷二醇及C₅-C₁₀環烷二醇之二羥基化合物，

(d2) 0.1至5%重量比之二異氰酸酯C1，及

(d3) 基於製備P1及/或PWD之成分(a1)，0至5莫耳%之含至少三個成酯基之化合物D。

5. 一種生物可分解聚合物T1，其具有分子量(Mn)於10,000至100,000克/莫耳之範圍，黏度值於30至450克/毫升之範圍（於25℃下於0.5%重量比聚合物T1濃度於50/50 w/w鄰二氯苯/酚中測量），及熔點係於50至235℃之範圍，其係經由如申請專利範圍第3項之聚酯Q1與下列反應而得：

(e1) 基於如申請專利範圍第3項之聚酯Q1，0.1-5%重量比之二異氰酸酯C1，及

(e2) 基於經由如申請專利範圍第1項之聚酯P1及/或

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

六、申請專利範圍

PWD，其中聚酯PWD係經由主要成分(a1)及(a2)反應而得，(a1)對(a2)之莫耳比係選擇於0.4：1至1.5：1之範圍，其中

(a1)為一種混合物，其主要包括

45至80莫耳%己二酸或其成酯衍生物或其混合物，

20至55莫耳%對酞酸或其成酯衍生物或其混合物，及

0-5莫耳%磺酸酯化合物，

各別莫耳百分率之總和為100莫耳%，且

(a2)為選自C₂-C₆烷二醇及C₅-C₁₀環烷二醇之二羥基化合物，

製備聚酯Q1之成分(a1)，0-5莫耳%之含至少三個成酯基之化合物D。

6. 一種生物可分解聚合物T2，其具有分子量(Mn)於10,000至100,000克/莫耳之範圍，黏度值於30至450克/毫升之範圍（於25℃下於0.5%重量比聚合物T2濃度於50/50 w/w鄰二氯苯/酚中測量），及熔點係於50至235℃之範圍，其係經由如申請專利範圍第4項之聚酯Q2與下列反應而得：

(f1) 基於聚酯Q2，0.01至50%重量比之羥基羧酸B1及

(f2) 基於經由如申請專利範圍第1項之聚酯P1及/或

PWD，其中聚酯PWD係經由主要成分(a1)及(a2)

反應而得，(a1)對(a2)之莫耳比係選擇於0.4：1

至1.5：1之範圍，其中

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

六、申請專利範圍

(a1) 為一種混合物，其主要包括

45至80莫耳%己二酸或其成酯衍生物或其混合物，

20至55莫耳%對酞酸或其成酯衍生物或其混合物，及

0-5莫耳%磺酸酯化合物，

各別莫耳百分率之總和為100莫耳%，且

(a2) 為選自C₂-C₆烷二醇及C₅-C₁₀環烷二醇之二羥基化合物，

製備聚酯Q2之成分(a1)，0至5莫耳%之含至少三個成酯基之化合物D。

7. 一種生物可分解聚合物T3，其具有分子量(Mn)於10,000至100,000克/莫耳之範圍，黏度值於30至450克/毫升之範圍（於25℃下於0.5%重量比聚合物T3濃度於50/50 w/w鄰二氯苯/酚中測量），及熔點係於50至235℃之範圍，其係經由將下列：

(g1) 如申請專利範圍第2項之聚酯P2，或

(g2) 主要由如申請專利範圍第1項之聚酯P1與基於聚酯P1為0.01至50%重量比之羧基羧酸B1組成的混合物，或

(g3) 主要由具有不同組成之聚酯P1組成的混合物，

與基於所用聚酯數量，0.1至5%重量比之二異氰酸酯C1及基於用於製備聚酯(g1)至(g3)之成分(a1)個別莫耳量計，0至5莫耳%之含至少三個成酯基之化合物D反應，其中(a1)為一種混合物，其主要包括

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

六、申請專利範圍

45至80莫耳%己二酸或其成酯衍生物或其混合物，
20至55莫耳%對酞酸或其成酯衍生物或其混合物，及
0-5莫耳%磺酸酯化合物，
各別莫耳百分率之總和為100莫耳%。

8 一種生物可分解熱塑模塑組成物T4，其係經由混合下列而得：

(h1) 99.5至0.5%重量比如申請專利範圍第1項之聚酯P1或如申請專利範圍第4項之聚酯Q2或聚酯PWD，其中聚酯PWD係經由主要成分(a1)及(a2)反應而得，(a1)對(a2)之莫耳比係選擇於0.4：1至1.5：1之範圍，其中

(a1)為一種混合物，其主要包括

45至80莫耳%己二酸或其成酯衍生物或其混合物，

20至55莫耳%對酞酸或其成酯衍生物或其混合物，及

0-5莫耳%磺酸酯化合物，

各別莫耳百分率之總和為100莫耳%，且

(a2)為選自C₂-C₆烷二醇及C₅-C₁₀環烷二醇之二羥基化合物，與

(h2) 0.5至99.5%重量比之羧基羧酸B1。

9、一種製備如申請專利範圍第1項之生物可分解聚酯P1之方法，包括反應主要組成如下之混合物：

(a1) 一種混合物，其主要包括

45至80莫耳%己二酸或其成酯衍生物或其混合物，

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

六、申請專利範圍

20至55莫耳%對酞酸或其成酯衍生物或其混合物，及
0-5莫耳%磺酸酯化合物，

各別莫耳百分率之總和為100莫耳%，及

(a2) 選自C₂-C₆烷二醇及C₅-C₁₀環烷二醇之二羥基化合物，

(a1) 對(a2)之莫耳比係選擇於0.4：1至1.5：1之範圍，及基於成分(a1)莫耳用量，0.01至5莫耳%含至少三個成酯基之化合物D。

10. 一種製備如申請專利範圍第2項之生物可分解聚酯P2之方法，其包括反應主要組成如下之混合物：

(b1) 一種混合物，其主要包括：

30至70莫耳%己二酸或其成酯衍生物或其混合物，

30至70莫耳%對酞酸或其成酯衍生物或其混合物，及

0-5莫耳%磺酸酯化合物，

各別莫耳百分率之總和為100莫耳%，及

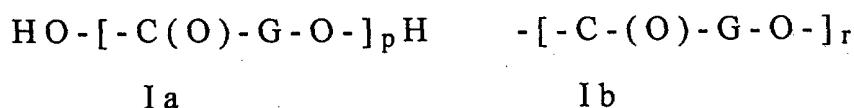
(b2) 二羥基化合物(a2)，

此處(b1)對(b2)之莫耳比係選擇於0.4：1至1.5：1之範圍，

(b3) 基於成分(b1)，0.01至100%重量比之羧基羧酸B1，及

(b4) 基於成分(b1)，0至5莫耳%含至少三個成酯基之化合物D，

羧基羧酸B1係由式Ia或Ib加以定義



六、申請專利範圍

其中p為1至1500之整數，r為1至4之整數，及G為選自伸苯基， $-(CH_2)_n-$ ，其中n為1至5之整數， $-C(R)H-$ 及 $-C(R)HCH_2-$ ，其中R為甲基或乙基之基團。

11. 一種製備如申請專利範圍第3項之生物可分解聚酯Q1之方法，其包括反應主要組成如下之混合物：

(c1) 如申請專利範圍第1項之聚酯P1及/或聚酯PWD，其中聚酯PWD係經由主要成分(a1)及(a2)反應而得，(a1)對(a2)之莫耳比係選擇於0.4:1至1.5:1之範圍，其中

(a1) 為一種混合物，其主要包括

45至80莫耳%己二酸或其成酯衍生物或其混合物，

20至55莫耳%對酞酸或其成酯衍生物或其混合物，及

0-5莫耳%磺酸酯化合物，

各別莫耳百分率之總和為100莫耳%，且

(a2) 為選自C₂-C₆烷二醇及C₅-C₁₀環烷二醇之二羧基化合物，

(c2) 基於(c1)，0.01至50%重量比之羧基羧酸B1，及

(c3) 基於製備P1及PWD之成分(a1)，0至5莫耳%之含至少三個成酯基之化合物D。

12. 一種製備如申請專利範圍第4項之生物可分解聚酯Q2之方法，其包括反應主要組成如下之混合物：

(d1) 95至99.9%重量比之如申請專利範圍第1項之聚酯

六、申請專利範圍

P1及/或聚酯PWD，其中聚酯PWD係經由主要成分(a1)及(a2)反應而得，(a1)對(a2)之莫耳比係選擇於0.4：1至1.5：1之範圍，其中

(a1)為一種混合物，其主要包括

45至80莫耳%己二酸或其成酯衍生物或其混合物，

20至55莫耳%對酞酸或其成酯衍生物或其混合物，及

0-5莫耳%磺酸酯化合物，

各別莫耳百分率之總和為100莫耳%，且

(a2)為選自C₂-C₆烷二醇及C₅-C₁₀環烷二醇之二羥基化合物，

(d2) 0.1至5%重量比之二異氰酸酯C1，及

(d3) 基於製備P1及/或PWD之成分(a1)，0至5莫耳%之含至少三個成酯基之化合物D。

13. 一種製備如申請專利範圍第5項之生物可分解聚合物T1之方法，其包括將如申請專利範圍第3項之聚酯Q1與下列反應：(e1)基於如申請專利範圍第3項之聚酯Q1，0.1-5%重量比之二異氰酸酯C1，及(e2)基於經由如申請專利範圍第1項之聚酯P1及/或PWD，其中聚酯PWD係經由主要成分(a1)及(a2)反應而得，(a1)對(a2)之莫耳比係選擇於0.4：1至1.5：1之範圍，其中

(a1)為一種混合物，其主要包括

45至80莫耳%己二酸或其成酯衍生物或其混合物，

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

六、申請專利範圍

20至55莫耳%對酞酸或其成酯衍生物或其混合物，及

0-5莫耳%磺酸酯化合物，

各別莫耳百分率之總和為100莫耳%，且

(a2) 為選自C₂-C₆烷二醇及C₅-C₁₀環烷二醇之二羥基化合物，

製備聚酯Q1之成分(a1)，0-5莫耳%之含至少三個成酯基之化合物D。

14. 一種製備如申請專利範圍第6項之生物可分解聚合物T2之方法，包括將如申請專利範圍第4項之聚酯Q2與下列反應：

(f1) 基於聚酯Q2，0.01至50%重量比之羧基羧酸B1，及

(f2) 基於經由如申請專利範圍第1項之聚酯P1及/或PWD，其中聚酯PWD係經由主要成分(a1)及(a2)反應而得，(a1)對(a2)之莫耳比係選擇於0.4：1至1.5：1之範圍，其中

(a1) 為一種混合物，其主要包括

45至80莫耳%己二酸或其成酯衍生物或其混合物，

20至55莫耳%對酞酸或其成酯衍生物或其混合物，及

0-5莫耳%磺酸酯化合物，

各別莫耳百分率之總和為100莫耳%，且

(a2) 為選自C₂-C₆烷二醇及C₅-C₁₀環烷二醇之二

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

六、申請專利範圍

羥基化合物，

製備聚酯Q2之成分(a1)，0至5莫耳%之含至少三個成酯基之化合物D。

15. 一種製備如申請專利範圍第7項之生物可分解聚合物T3之方法，其包括將下列各者

(g1) 如申請專利範圍第2項之聚酯P2，或

(g2) 主要由如申請專利範圍第1項之聚酯P1與基於聚酯P1為0.01至50%重量比之羥基羧酸B1所組成的混合物，或

(g3) 主要由具有不同組成之聚酯P1所組成的混合物，與基於所用聚酯數量，0.1至5%重量比之二異氰酸酯C1，及

與基於用於製備聚酯(g1)至(g3)之成分(a1)個別莫耳量，0至5莫耳%之含至少三個成酯基之化合物D加以反應。

16. 一種製備如申請專利範圍第8項之生物可分解熱塑模塑組成物T4之方法，其包括混合99.5至0.5%重量比如申請專利範圍第1項之聚酯P1或如申請專利範圍第4項之聚酯Q2或聚酯PWD，其中聚酯PWD係經由主要成分(a1)及(a2)反應而得，(a1)對(a2)之莫耳比係選擇於0.4:1至1.5:1之範圍，其中

(a1) 為一種混合物，其主要包括

45至80莫耳%己二酸或其成酯衍生物或其混合物，

20至55莫耳%對酞酸或其成酯衍生物或其混合物。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

六、申請專利範圍

物，及

0-5 莫耳% 磺酸酯化合物，

各別莫耳百分率之總和為100莫耳%，且

(a2) 為選自 C₂-C₆ 烷二醇及 C₅-C₁₀ 環烷二醇之二羥基化合物，

與 0.5 至 99.5% 重量比之羧基羧酸 B1。

17. 根據申請專利範圍第1至4項中任一項之生物可分解聚酯，其係用於生產可堆肥模塑件。
18. 根據申請專利範圍第5至7項中任一項之生物可分解聚合物，其係用於生產可堆肥模塑件。
19. 根據申請專利範圍第8項之熱塑模塑組成物，其係用於生產可堆肥模塑件。
20. 根據申請專利範圍第1至4項中任一項之生物可分解聚酯，其係用於生產黏著劑。
21. 根據申請專利範圍第5至7項中任一項之生物可分解聚合物，其係用於生產黏著劑。
22. 根據申請專利範圍第8項之熱塑模塑組成物，其係用於生產黏著劑。
23. 根據申請專利範圍第1至4項中任一項之生物可分解聚酯，其係用於生產主要含有本發明聚合物及澱粉之生物可分解攪合物。
24. 根據申請專利範圍第5至7項中任一項之生物可分解聚合物，其係用於生產主要含有本發明聚合物及澱粉之生物可分解攪合物。
25. 根據申請專利範圍第8項之熱塑模塑組成物，其係用於

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

六、申請專利範圍

生產主要含有本發明聚合物及澱粉之生物可分解攪合物。

26. 根據申請專利範圍第1至4項中任一項之生物可分解聚酯，其係用於生產生物可分解發泡體。
27. 根據申請專利範圍第5至7項中任一項之生物可分解聚合物，其係用於生產生物可分解發泡體。
28. 根據申請專利範圍第8項之熱塑模塑組成物，其係用於生產生物可分解發泡體。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線