

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2011-504529

(P2011-504529A)

(43) 公表日 平成23年2月10日(2011.2.10)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
C08G 73/02 (2006.01)	C08G 73/02	4H003
C08G 69/48 (2006.01)	C08G 69/48	4J001
C11D 3/37 (2006.01)	C11D 3/37	4J043

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 11 頁)

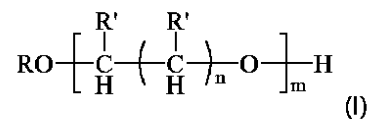
(21) 出願番号	特願2010-534454 (P2010-534454)	(71) 出願人	508020155
(86) (22) 出願日	平成20年11月17日 (2008.11.17)		ビーエーエスエフ ソシエタス・ヨーロピア
(85) 翻訳文提出日	平成22年7月23日 (2010.7.23)		BASF SE
(86) 国際出願番号	PCT/EP2008/065671		ドイツ連邦共和国 ルートヴィヒスハーフェン (番地なし)
(87) 国際公開番号	W02009/065805		D-67056 Ludwigshafen, Germany
(87) 国際公開日	平成21年5月28日 (2009.5.28)	(74) 代理人	100061815
(31) 優先権主張番号	07121398.7		弁理士 矢野 敏雄
(32) 優先日	平成19年11月23日 (2007.11.23)	(74) 代理人	100094798
(33) 優先権主張国	欧州特許庁 (EP)		弁理士 山崎 利臣
		(74) 代理人	100099483
			弁理士 久野 琢也

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 アミノ基含有ポリマーのアルコキシ化方法

(57) 【要約】

本発明は、NH基及び場合によってはNH₂基を有する少なくとも1種のモノマー単位を含有する第1ポリマーをアルコキシ化するための方法に関し、その際、第1ポリマーは少なくとも500g/モルの分子量M_wを有し、(a)第1ポリマーとアルキレンオキシドを、溶剤を含有する反応混合物中で、それぞれのNH基及びそれぞれの場合によるNH₂基、この場合、これは2個のNH基として換算する、のアルコキシ化の平均度合いが0.75~1.25になるまで反応させ；(b)式(I) (式中、Rは1~20個の炭素原子を有する直鎖又は分枝のアルキル基であり、それぞれR'は独立して1~20個の炭素原子を有する直鎖又は分枝のアルキル基又は水素であり、その際、nは独立して1~5であり、かつmは5~40である)の第2ポリマーを、工程(a)の反応混合物に添加し；(c)工程(b)の反応混合物から溶剤を少なくとも部分的に除去し；かつ、(d)工程(c)の反応混合物とアルキレンオキシドを、与えられた温度で、第1ポリマーのそれぞれのNH基及びそれぞれの場合によるNH₂基、この場合、これは2個のNH基



【特許請求の範囲】

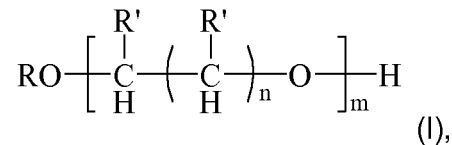
【請求項 1】

NH基及び場合によってはNN₂基を有する少なくとも1種のモノマー単位を含有する第1のポリマーをアルコキシ化するための方法において、その際、第1のポリマーは、少なくとも500g/モルの分子量M_wを有し、

(a) 溶剤を含有する反応混合物中で、第1ポリマーとアルキレンオキシドを、それぞれのNH基及びそれぞれの場合によるNN₂基、この場合、これは2個のNH基として換算する、のアルコキシ化の平均度合いが0.75~1.25になるまで反応させ、

(b) 式(I)

【化1】



[式中、Rは1~20個の炭素原子を有する直鎖又は分枝のアルキル基であり、それぞれのR'は独立して、1~20個の炭素原子を有する直鎖又は分枝のアルキル基又は水素であり、それぞれnは独立して1~5であり、かつmは5~40である]の第2ポリマーを、工程(a)の反応混合物に添加し；

(c) 工程(b)の反応混合物から溶剤を少なくとも部分的に除去し；かつ

(d) さらに、工程(c)の反応混合物とアルキレンオキシドを、与えられた温度で、第1ポリマーのそれぞれのNH基及びそれぞれの場合によるNH₂基、この場合、これは2個のNH基として換算する、のアルコキシ化の平均度合いが2~40になるまで反応させる工程を含む、前記方法。

【請求項 2】

第1ポリマーがポリアルキレンイミン、ポリビニルアミン、ポリエーテルアミン、又はアミノ基含有ポリアミドである、請求項1に記載の方法。

【請求項 3】

第1ポリマーがポリエチレンイミンである、請求項2に記載の方法。

【請求項 4】

アルキレンオキシドがエチレンオキシドである、請求項1から3までのいずれか1項に記載の方法。

【請求項 5】

溶剤が水を含む、請求項1から4までのいずれか1項に記載の方法。

【請求項 6】

式(I)中、Rは1~10個の炭素原子を有する直鎖又は分枝のアルキル基である、請求項1から5までのいずれか1項に記載の方法。

【請求項 7】

式(I)中において、R'が独立してメチル又は水素である、請求項1から6までのいずれか1項に記載の方法。

【請求項 8】

式(I)中のnが1である、請求項1から7までのいずれか1項に記載の方法。

【請求項 9】

式(I)中のmが5~30である、請求項1から8までのいずれか1項に記載の方法。

【請求項 10】

工程(c)中において、溶剤を少なくとも部分的に蒸留により除去する、請求項1から9までのいずれか1項に記載の方法。

【請求項 11】

工程(d)中の第1ポリマーのアルコキシ化の平均度合いが2~20である、請求項1から10までのいずれか1項に記載の方法。

10

20

30

40

50

【請求項 1 2】

工程 (d) を、55 ~ 160 の範囲の温度で実施する、請求項 1 から 1 1 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 1 3】

工程 (d) を、塩基触媒の存在下で実施する、請求項 1 から 1 2 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 1 4】

第 1 ポリマー及び第 2 ポリマーのアルコキシ化生成物を含む、請求項 1 から 1 3 までのいずれか 1 項に記載の方法により得ることが可能なポリマー組成物。

【請求項 1 5】

第 2 ポリマーのアルコキシ化生成物が、第 1 のポリマーのアルコキシ化生成物の全量に対して 1 ~ 10 質量%である、請求項 1 4 に記載のポリマー組成物。

【請求項 1 6】

洗浄剤組成物中での請求項 1 4 又は 1 5 に記載のポリマー組成物の使用。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、NH基及び場合によってはNN₂基を有する少なくとも1種のモノマー単位を含有するポリマーのアルコキシ化方法及び当該方法から得ることが可能なポリマー組成物に関する。

【0002】

アルコキシ化アミン含有化合物はよく知られており、かつ、例えば洗浄剤組成物の成分として使用される。

【0003】

アルコキシ化アミン含有化合物の製造は、例えばH.L. Sanders et. al., Journal of the American Oil Chemists Society 46 (1969), 167-170に記載されている。ここでは、脂肪族アミンのエトキシ化が記載されている。

【0004】

エトキシ化アミンの機序は、触媒として機能するが、さらにホフマン脱離を生じる四級化窒素化合物を生じ、その結果、着色及び悪臭のある生成物を招く副生成物を生じる。

【0005】

アミンのアルコキシ化に付随する他の問題は、第 1 の付加工程において、ヒドロキシアルキル基がアミノ基と反応し、かつ引き続いての付加工程において (アルコキシ化度 > 1)、ヒドロキシ基のみが含まれ、増加したアルコキシ化度を伴うより高い粘性値を生じさせる。したがって、アミンのアルコキシ化はしばしば多段階工程反応として実施される。

【0006】

エトキシ化アミノ官能化ポリマーの場合には、WO-A 99/16811中において漂白剤、例えばNaBH₄の使用が、着色特性を増加させることが記載されている。

【0007】

前記のように、アミン含有ポリマーのアルコキシ化に付随する他の問題は、実際に、生じる生成物が、製造中で困難性を生じさせる増加した粘度を有しうることである。

【0008】

WO-A 97/23546では、この問題は、通常の溶剤を使用することにより解決されている。これは、好ましいアルコキシ化生成物を得た後に溶剤を除去しなければならないといった欠点を生じる。結果として、このような方法に関する空時収量は低くなる。

【0009】

したがって、これらの欠点を少なくとも部分的に排除する方法を提供することが求められる。

【0010】

したがって、本発明の対象は、このような方法の提供である。

10

20

30

40

50

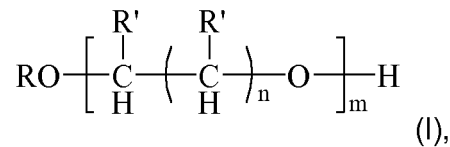
【 0 0 1 1 】

この問題は、NH基及び場合によっては NN_2 基を有する少なくとも1種のモノマーを含有する第1のポリマーをアルコキシ化するための方法によって解決され、その際、第1のポリマーは、少なくとも500g/モルの分子量 M_w を有し、この方法は、

(a) 溶剤を含有する反応混合物中で第1ポリマーをアルキレンオキシドと、それぞれのNH基及びそれぞれの場合による NN_2 基、この場合、これは2個のNH基として換算する、のアルコキシ化の平均度合いが0.75~1.25になるまで反応させ、

(b) 式(I)

【化1】



10

[式中、Rは1~20個の炭素原子を有する直鎖又は分枝のアルキル基であり、それぞれR'は独立して1~20個の炭素原子を有する直鎖又は分枝のアルキル基又は水素であり、それぞれnは独立して1~5であり、かつmは5~40である]の第2ポリマーを、工程(a)の反応混合物に添加し；

(c) 工程(b)の反応混合物から溶剤を少なくとも部分的に除去し；かつ

(d) さらに工程(c)の反応混合物をアルキレンオキシドと、与えられた温度で、第1ポリマーのそれぞれのNH基及びそれぞれの場合による NN_2 基、この場合、これは2個のNH基として換算する、のアルコキシ化の平均度合いが2~40になるまで反応させる工程を含む。

20

【 0 0 1 2 】

式(I)による第2ポリマーの使用が、ポリマー組成物を形成することにより、アルコキシ化第1ポリマーの粘度を低下させることができ、その結果、アルコキシ化の第2工程において、第1工程中で使用された溶剤が必要とされず、かつ少なくとも部分的に工程(c)中で除去することができることを見出された。

【 0 0 1 3 】

これはより高い空時収量を生じさせ、それというのも、工程(d)中のアルコキシ化が、通常の溶剤を使用することなく実施され(痕跡量が保持される場合はあったとしても)、かつアルコキシ化されてもよい添加された第2ポリマーが、洗浄剤組成物において有用な組成物中に残留しうるためである。

30

【 0 0 1 4 】

しかしながら、式(I)の第2ポリマーは、アルコキシ化されていてもよい1個のみのヒドロキシ基を有し、かつ第1ポリマーが、NH基及び場合による NN_2 を有する少なくとも1種のモノマー単位を含むことから、アルコキシ化された第2ポリマーの量(質量%)は、アルコキシ化の度合いの増加を伴って減少する。

【 0 0 1 5 】

本発明による第1ポリマーのアルコキシ化の方法は、(a)溶剤を含む反応混合物中で第1ポリマーとアルキレンオキシドを、それぞれのNH基及びそれぞれの場合による NN_2 基、この場合、これは2個のNH基として換算する、のアルコキシ化の平均度合いが0.75~1.25、好ましくは0.8~1.0、特に0.85~0.95になるまで反応させる工程(a)を含む。

40

【 0 0 1 6 】

第1ポリマーは、NH基及び場合による NN_2 基を有する少なくとも1種のモノマーを含有し、かつ少なくとも500g/モルの分子量 M_w を有する。

【 0 0 1 7 】

より好ましい分子量 M_w は、500g/モル~1000000g/モルの範囲、さらに好ましくは500g/モル~10000g/モルの範囲である。

50

【0018】

NH基及び場合によるNH₂基を有する少なくとも1種のモノマーの存在によって、第1のポリマーは、第1のモノマー単位の反復モチーフの頻度に依存する多くのNH基を含む。

【0019】

典型的なポリマーはポリアルキレンイミン、ポリビニルアミン、ポリエーテルアミン及びアミノ基含有ポリアミドである。

【0020】

好ましい第1ポリマーは、ポリエチレンイミン又はアミノ基含有するポリアミドである。

10

【0021】

工程(a)において、多かれ少なかれ全てのNH基は、第1のヒドロキシアルキル基によりアルコキシ化される。第1級アミン基は2個のアルキレンオキシドと一緒に反応することができることから、この基は2個のNK基であるとみなす。しかしながら、アルコキシ化は統計的な方法であることから、第1のアルコキシ化工程(a)は、結果として、0.75~1.25のアルコキシ化の平均度合いを生じるか、あるいは、前記に示す好ましい度合いを生じる。

【0022】

この工程において、溶剤の存在は重要ではない。したがって、反応混合物は溶剤を含有する。この反応工程(a)に関して、通常の溶剤を使用することができる。好ましくは、溶剤は水を含有する。さらに、溶剤は水であってもよい。

20

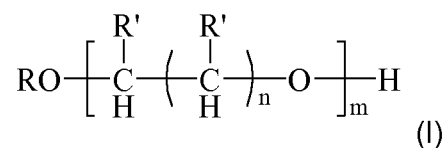
【0023】

本発明の方法におけるアルコキシ化は、アルキレンオキシドを用いて実施する。アルキレンオキシドは、好ましくは、アルキレン基が2~5個の炭素原子を有するアルキレンオキシドである。例はエチレンオキシド及びプロピレンオキシドである。好ましくは、アルキレンオキシドはエチレンオキシドである。

【0024】

第1のアルコキシ化工程(a)を完了した後に、式(I)

【化2】



30

の第2ポリマーを工程(b)に添加する。式(I)中の変数は以下の意味を有する。

【0025】

Rは1~20個の炭素原子を有する直鎖又は分枝のアルキル基であり、それぞれR'は独立して1~20個の炭素原子又は水素であり、それぞれnは独立して1~5であり、かつmは5~40である。

【0026】

本発明の意味の範囲内において、用語「ポリマー」は、詳細に定義されているようなポリマーを含むポリマー混合物をも包含するものであり、その際、このポリマーは好ましくは、混合物の主要成分であり、混合物の全質量に対して好ましくは少なくとも50質量%、より好ましくは少なくとも75質量%である。

40

【0027】

好ましくは、Rは式(I)中において、1~10個の炭素原子を有する直鎖又は分枝のアルキル基である。より好ましいRは、1~4個の炭素原子を有するアルキル基である。さらに好ましくはRは、メチルである。

【0028】

好ましくはそれぞれのR'は、独立してメチル又は水素である。

50

【0029】

好ましくはそれぞれのnは同じであるか、かつより好ましくはnは1である。

【0030】

R'及びnの定義は、反復モチーフを有するモノマー単位中において生じ、その際、それぞれの単位は好ましくは同一であるか、あるいは、2個又はそれ以上の異なるモノマー単位である。より多くのモノマー単位が存在する場合には、これは専ら2種の異なるモノマー単位が存在し、その際、異なるモノマー単位は、ランダムに又はブロックごとに分散されていていてもよい。

【0031】

好ましくは、式(I)中のmは5~30である。

10

【0032】

好ましくは、式(I)の第2のポリマーの分子量Mwは300~3000g/molである。

【0033】

式(I)の第2ポリマーを添加した後において、溶剤を少なくとも部分的に工程(c)中で除去することができる。

【0034】

この除去は、真空下及び/又は加熱下における蒸留を含む従来公知の方法により実施することができる。

さらにストリッピングガスを溶剤の除去のために使用することができる。場合により、吸着材料、たとえばモレキュラーシーブ又はゼオライトを使用することができる。

20

【0035】

好ましくは、溶剤は完全に除去される。しかしながら、部分的に、好ましくは溶剤の残留量がppmの範囲である程度に除去するものであってもよい(1000ppmを下廻る)。

【0036】

本発明の方法の工程(d)において、工程(c)で得られた反応混合物は、さらにアルキレンオキシドと、与えられた温度で、第1ポリマーのそれぞれのNH基及びそれぞれの場合によるNH₂基、この場合、これは2個のNH基として換算する、のアルコキシ化の平均度合いが2~40になるまで反応させる。

30

【0037】

アルコキシ化のより好ましい平均度合いは2~20である。

【0038】

工程(d)中の与えられた反応温度は、好ましくは55~160の範囲である。

【0039】

好ましくは、温度は80~120の範囲である。

【0040】

工程(d)中のアルコキシ化は、好ましくは塩基触媒の存在下で実施され、この場合、これは一般に知られた技術であり、かつこれは水酸化ナトリウム又は水酸化カリウムであってもよい。

40

【0041】

工程(d)中でのさらなる反応前において、塩基性触媒を添加する。触媒は、工程(c)の後であるか、あるいは工程(b)と(c)の間又は工程(a)と(b)の間において添加することができる。さらに、工程(c)中で少なくとも部分的な除去を開始し、触媒を添加し、かつ溶剤の少なくとも部分的な除去を完了することが可能であり、その結果、工程(c)中で触媒の添加を実施する。

【0042】

本発明のもう一つの目的は、第1ポリマー及び第2ポリマーのアルコキシ化生成物を含む、本発明の方法から得ることが可能なポリマー組成物である。

【0043】

50

このポリマー組成物は、アルコキシ化生成物を分離することなく洗浄剤組成物中で使用することができる。

【0044】

第2のポリマーのアルコキシ化生成物は、第1のポリマーのアルコキシ化生成物の全量に対して1～10質量%である。

【0045】

実施例

例1 (PEI 5000-10 EO/NH-7 PO/NH)

1012.7gのLupasol G100^(R) (BASF AG Ludwigshafen (Germany))を、これは、平均分子量5000g/モルを有するポリエチレンイミン (PEI 5000) 50質量%を含む水性溶液であり、2lのオートクレーブ中で、80℃で、5パールまでの窒素を用いてフラッシュする。

10

【0046】

温度を120℃まで上昇させ、かつ466.3gのエチレンオキシドを、310分に亘って添加する。反応混合物を2時間に亘って攪拌する。得られた生成物を冷却し、窒素でフラッシュし、かつ脱ガスすることで、黄色の粘性の液体が生じる (1472g)。

【0047】

168.7gの液体を、14.88gのKOH溶液 (40質量%) 及び17.85gのPluriol A 350 E^(R) (BASF AG, Ludwigshafen (Germany))、これは、平均分子量350g/モルを有するポリエチレングリコールのモノメチルエーテルである、と一緒に組み合わせた。得られた混合物を、窒素を用いてフラッシュし、かつ70～120℃の温度に増加させながら20パールで3時間に亘ってバキュームし、水を除去した。この後に586gのエチレンオキシドを145℃で添加し、かつ、60分に亘って反応させた。引き続いて、576gのポリエチレンオキシドを145℃で添加し、かつ60分に亘って反応させた。ポリマー組成物を80℃に冷却し、かつ窒素でフラッシュして1260gの生成物を生じた。

20

【0048】

例2

動的粘度 [m P a s] を、装置HAAKE Rheostress RS 150、円錐板法を用いて測定した。

30

【0049】

【表1】

ポリマー	100 °C	120 °C	140 °C
PEI 5000 + 1 EO/NH	28000	8400	約6000
PEI 5000 + 1 EO/NH + 15質量% Pluriol A 350 E	3800	1300	620

【0050】

例3

ジエチレントリアミン + アジピン酸 (36 : 35) + 30 EO / NHからのポリマー
ジエチレントリアミン及びアジピン酸 (36 : 35モル比) を水性溶液 (73%) の形で縮合することによって得られた1379.2gのポリマーを、オートクレーブ中に70℃で導入し、かつ5パールまで窒素でフラッシュした。温度を90℃まで上昇させ、かつ210.6gのエチレンオキシドを少量ずつ3.5時間に亘って添加した。反応を完了するために、混合物をさらに3時間に亘って攪拌した。黄色の粘性液体が得られ (1565g、76.7%水中)、これはNH結合当たり0.9のエチレンオキシドを有するジエチレントリアミンとアジピン酸とからのポリマーから構成される。沃素価 (iodine color number) は1.4 (水中10%) であった。

40

【0051】

得られたポリマー (179.2g) をオートクレーブ中に導入し、かつ9.29gの水

50

酸化カリウム（水中50%溶液）及び27.5gのPluriol A 1000 E（BASF AG, Ludwigshafen (Germany)）、これは、平均分子量1000g/molを有するポリエチレングリコールのモノメチルエーテルである、と一緒にした。得られた混合物を、窒素を用いてフラッシュし、かつ90℃まで温度を増加させながら20パスで2時間に亘ってバキュームし、水を除去した。79.2gのエチレンオキシドを90℃で添加した。この混合物は、3時間に亘って後反応可能であった。ポリマー組成物を80℃に冷却し、かつ窒素でフラッシュした。褐色固体が得られ（95.0g）、これはNH結合1モル当たり30モルのエチレンオキシドを有するジエチレントリアミン及びアジピン酸からのポリマーから構成されている。

【0052】

例4

動的粘度 [m P a s] を、装置HAAKE Rheostress RS 150、円錐板法を用いて測定した。

【0053】

【表2】

ポリマー	100°C	130°C
DETA+ADS (36:35)+0,9 EO/NH	105 000	15 000
DETA+ADS (36:35)+0,9 EO/NH+ 20質量% Pluriol A 1000E	47 000	約4000

【0054】

例5

ジエチレントリアミン+アジピン酸（5：4）+5.3EO/NHからのポリマー

ジエチレニアミン及びアジピン酸（モル比5：4）を、水性溶液（69%）の形で縮合することによって得られた1373.5gのポリマーを、オートクレーブ中に70℃で導入し、かつ5パスまで窒素でフラッシュした。温度は90℃まで増加させ、かつ30.3gのエチレンオキシドを少量ずつ3時間に亘って添加した。反応を完了するために、混合物をさらに1時間に亘って攪拌した。黄色の粘性液体が得られ（166.0g、67%水中）、これはNH結合当たり0.9のエチレンオキシドを有するジエチレントリアミンとアジピン酸とからのポリマーから構成される。

【0055】

得られたポリマー（375g）を、オートクレーブ中に導入し、26.5gの水酸化カリウム（水中40%溶液）及び76.8gのPluriol A 1000 E（BASF AG, Ludwigshafen (Germany)）、これは、平均分子量1000g/molを有するポリエチレングリコールのモノメチルエーテルと一緒にした。得られた混合物を、窒素を用いてフラッシュし、かつ温度を90℃まで増加させながら20mパスで2時間に亘ってバキュームし、水を除去した。344.8gのエチレンオキシドを、90℃で少量ずつ2時間に亘って添加した。この混合物は、3時間に亘って後反応可能であった。ポリマー組成物を80℃に冷却し、かつ窒素を用いてフラッシュした。褐色固体が得られ（69.0g）、これはNH結合1モル当たり5.3モルのエチレンオキシドを有するジエチレントリアミンとアジピン酸からのポリマーから構成される。沃素価は1.0（水中10%）であった。

【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No PCT/EP2008/065671		
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER INV. . C08G65/00 C08G65/30				
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 practical, 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.		
X	WO 97/23546 A (PROCTER & GAMBLE [US]) 3 July 1997 (1997-07-03) claim 1 together with page 4 lines 15-20 example page 11	1-16		
X	WO 2006/108857 A (BASF AG [DE]; BOECKH DIETER [DE]; BITTNER CHRISTIAN [DE]; MISSKE ANDRE) 19 October 2006 (2006-10-19) examples 1-3,5-7	14-16		
X	WO 95/32272 A (PROCTER & GAMBLE [US]) 30 November 1995 (1995-11-30) examples II, IX, XI	14-16		
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.				
* Special categories of cited documents : <table border="0" style="width: 100%;"> <tr> <td style="width: 50%; vertical-align: top;"> *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance *E* earlier document 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 </td> <td style="width: 50%; vertical-align: top;"> *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. *Z* document member of the same patent family </td> </tr> </table>			*A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance *E* earlier document 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. *Z* document member of the same patent family
A document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance *E* earlier document 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. *Z* document member of the same patent family			
Date of the actual completion of the international search 7 May 2009		Date of mailing of the international search report 18/05/2009		
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5618 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer Kositza, Matthias		

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2008/065671

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 9723546	A	03-07-1997	NONE
WO 2006108857	A	19-10-2006	AR 054250 A1 13-06-2007 CA 2602128 A1 19-10-2006 CA 2604873 A1 19-10-2006 CN 101184834 A 21-05-2008 CN 101160385 A 09-04-2008 EP 1877531 A2 16-01-2008 EP 1869154 A1 26-12-2007 WO 2006108856 A2 19-10-2006 JP 2008534727 T 28-08-2008 JP 2008535991 T 04-09-2008 KR 20080002942 A 04-01-2008 US 2008153983 A1 26-06-2008
WO 9532272	A	30-11-1995	AT 187763 T 15-01-2000 AU 703460 B2 25-03-1999 AU 2387095 A 18-12-1995 BR 9507691 A 23-09-1997 CA 2189749 A1 30-11-1995 CN 1154137 A 09-07-1997 DE 69513973 D1 20-01-2000 DE 69513973 T2 20-07-2000 DK 760846 T3 01-05-2000 EG 21165 A 31-12-2000 EP 0760846 A1 12-03-1997 ES 2139897 T3 16-02-2000 GR 3032810 T3 30-06-2000 JP 10500717 T 20-01-1998 KR 100225998 B1 15-10-1999 MA 23550 A1 31-12-1995 PT 760846 E 30-06-2000 TR 28773 A 20-02-1997 US 5565145 A 15-10-1996

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP(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), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, 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, JP, 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, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW

(74)代理人 100110593

弁理士 杉本 博司

(74)代理人 100112793

弁理士 高橋 佳大

(74)代理人 100128679

弁理士 星 公弘

(74)代理人 100135633

弁理士 二宮 浩康

(74)代理人 100114890

弁理士 アインゼル・フェリックス＝ラインハルト

(72)発明者 ディーター ベック

ドイツ連邦共和国 リンブルガーホーフ ツェッペリンヴェーク 3

(72)発明者 シュテファン フレンツェル

ドイツ連邦共和国 マンハイム テー 6.31/32

(72)発明者 クリティアン ビットナー

ドイツ連邦共和国 ベンスハイム ニーベルンゲンシュトラッセ 26

(72)発明者 アンドレア ミスケ

ドイツ連邦共和国 シュパイアー ズィークベルトシュトラッセ 5

(72)発明者 ウルリッヒ アネン

ドイツ連邦共和国 ハスロツホ エドゥアルト - ヨースト - シュトラッセ 4 ベー

(72)発明者 ヴィルフリート ザーガー

ドイツ連邦共和国 ムターシュタット アイゼンバーンシュトラッセ 78

(72)発明者 ソフィア エーベルト

ドイツ連邦共和国 マンハイム リヒャルト - ヴァーグナー - シュトラッセ 53

(72)発明者 アンドレアス アイヒホアン

ドイツ連邦共和国 エラーシュタット シュパイラー シュトラッセ 10

Fターム(参考) 4H003 AC08 EB28 EB34

4J001 DA01 DB01 EB08 EC77 EC87 GE03 JA20

4J043 QA04 SA33 YB22 YB29 ZB60

【要約の続き】

として換算する、が2～40になるまでさらに反応させる工程を含む。本発明はさらにこの方法により得ることが可能なポリマー組成物及びこのようなポリマー組成物の使用に関する。