

(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2010-519352

(P2010-519352A)

(43) 公表日 平成22年6月3日(2010. 6. 3)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
CO8L 67/00 (2006.01)	CO8L 67/00	4J002
CO8L 101/00 (2006.01)	CO8L 101/00	4J029
CO8K 3/00 (2006.01)	CO8K 3/00	
CO8G 63/12 (2006.01)	CO8G 63/12	
CO8G 63/78 (2006.01)	CO8G 63/78	

審査請求 有 予備審査請求 未請求 (全 17 頁)

(21) 出願番号	特願2009-550146 (P2009-550146)	(71) 出願人	590005058 ザ プロクター アンド ギャンブル カ ンパニー アメリカ合衆国オハイオ州, シンシナティ ー, ワン プロクター アンド ギャンブ ル プラザ (番地なし)
(86) (22) 出願日	平成20年2月15日 (2008. 2. 15)	(74) 代理人	100077481 弁理士 谷 義一
(85) 翻訳文提出日	平成21年8月17日 (2009. 8. 17)	(74) 代理人	100088915 弁理士 阿部 和夫
(86) 国際出願番号	PCT/US2008/054053	(72) 発明者	野田 勇夫 アメリカ合衆国 45014 オハイオ州 フェアフィールド ハンター ロード 1568
(87) 国際公開番号	W02008/101145		
(87) 国際公開日	平成20年8月21日 (2008. 8. 21)		
(31) 優先権主張番号	60/901, 486		
(32) 優先日	平成19年2月15日 (2007. 2. 15)		
(33) 優先権主張国	米国 (US)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 エステル縮合を形成できる溶融加工可能な反応性ペレット及び溶融加工可能な反応性ペレットの形成方法

(57) 【要約】

反応性組成物が溶融加工可能な反応性ペレットに成形される。この反応性組成物は、タルク、粘土、パルプなどのような少なくとも1種の充填剤、並びに、少なくとも1種の多価アルコールと、少なくとも1種の有機ポリ酸、少なくとも1種の有機無水物、及びこれらの組み合わせからなる群から選択される反応物質とを含む反応性混合物を包含する。あるいは、この反応性組成物は、少なくとも1種の充填剤と、反応性混合物から形成されるプレポリマーとを含む。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

少なくとも 1 種の充填剤及び反応性混合物を含む反応性ペレットであって、前記反応性混合物が

(a) 少なくとも 1 種の多価アルコールと、少なくとも 1 種の有機ポリ酸、少なくとも 1 種の有機無水物、及びこれらの組み合わせからなる群から選択される反応物質とを含むモノマー混合物、

(b) 前記 (a) に記載のモノマー混合物から形成されるプレポリマー、

(c) 前記 (a) のモノマー混合物と前記 (b) のプレポリマーとの組み合わせ、並びに

(d) 前記 (b) のプレポリマーと、多価アルコール、有機ポリ酸、有機無水物、及びこれらの組み合わせからなる群から選択される反応物質との組み合わせ、

からなる群から選択され、前記反応性ペレットが溶融加工可能である、反応性ペレット。

10

【請求項 2】

前記多価アルコールが、グリセロール、グリコール、及びこれらの組み合わせからなる群から選択される、請求項 1 に記載の反応性ペレット。

【請求項 3】

前記有機ポリ酸が、アジピン酸、クエン酸、マレイン酸、コハク酸、ポリアクリル酸、及びこれらの組み合わせからなる群から選択される、請求項 1 に記載の反応性ペレット。

20

【請求項 4】

前記無水物が、無水コハク酸、無水マレイン酸、無水フタル酸、及びこれらの組み合わせからなる群から選択される、請求項 1 に記載の反応性ペレット。

【請求項 5】

前記少なくとも 1 種の充填剤が、タルク、粘土、パルプ、 TiO_2 、熱可塑性デンプン、生デンプン、木粉、珪藻土、カーボンブラック、シリカ、無機ガラス、無機塩、粉末可塑剤、粉末ゴム、及びこれらの組み合わせからなる群から選択される、請求項 1 に記載の反応性ペレット。

【請求項 6】

前記反応性混合物がトリグリセリドを更に含む、請求項 1 に記載の反応性ペレット。

30

【請求項 7】

前記反応性混合物がモノグリセリド又はジグリセリドを含む、請求項 1 又は 6 に記載の反応性ペレット。

【請求項 8】

前記反応性混合物が一塩基酸を更に含む、請求項 1 に記載の反応性ペレット。

【請求項 9】

前記反応性混合物が、酸基、アルコール基、及びこれらの組み合わせからなる群から選択される官能基を有する化合物を更に含み、更に前記化合物がシリコンオリゴマー、ポリエチレングリコール、及びこれらの組み合わせからなる群から選択される、請求項 1 に記載の反応性ペレット。

40

【請求項 10】

a)

1) 少なくとも 1 種の多価アルコールと、少なくとも 1 種の有機ポリ酸、少なくとも 1 種の有機無水物、及びこれらの組み合わせからなる群から選択される反応物質とを含むモノマー混合物、

2) 前記 (1) に記載のモノマー混合物から形成されるプレポリマー、

3) 前記 (1) のモノマー混合物と前記 (2) のプレポリマーとの組み合わせ、並びに

4) 前記 (2) のプレポリマーと、多価アルコール、有機ポリ酸、有機無水物、及びこれらの組み合わせからなる群から選択される反応物質との組み合わせ、からなる群から

50

選択される反応性混合物を供給する工程と、

b) 充填剤を供給する工程と、

c) 前記反応性混合物と前記充填剤を組み合わせる均質な混合物を形成する工程と、

d) 前記均質な混合物を押出成形してストランドを形成する工程と、

e) 前記ストランドをペレットに切断する工程と、

を含む、請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載の溶融加工可能な反応性ペレットを製造するための方法。

【請求項 1 1】

前記形成された反応性混合物がトリグリセリドを更に含む、請求項 1 0 に記載の方法。

【請求項 1 2】

前記形成された反応性混合物がモノグリセリド又はジグリセリドを更に含む、請求項 1 0 又は 1 1 に記載の方法。

【請求項 1 3】

前記形成された反応性混合物が一塩基酸を更に含む、請求項 1 0 に記載の方法。

【請求項 1 4】

前記形成された反応性混合物が、酸基、アルコール基、及びこれらの組み合わせからなる群から選択される官能基を有する化合物を更に含み、更に前記化合物がシリコンオリゴマー、ポリエチレングリコール、及びこれらの組み合わせからなる群から選択される、請求項 1 0 に記載の方法。

【請求項 1 5】

請求項 1 ~ 9 のいずれか一項に記載の溶融加工可能な反応性ペレットから作製される物品。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、架橋された熱硬化性樹脂、特にアルキド樹脂と、粘土粒子などの固体充填剤とを製造することができ、溶融加工可能であるように配合されたモノマー混合物又は反応性プレポリマーのいずれかを含む、反応性組成物を目的とする。特定の実施形態では、この反応性組成物は溶融加工装置の中に供給することができる固体ペレットの形態で作製される。

【背景技術】

【0002】

多くの成形可能な物品が、熱可塑性又は熱硬化性樹脂を含む合成材料から作製される。熱可塑性樹脂及び熱硬化性樹脂は典型的には石油系原料から誘導される。石油価格の上昇により、合成材料及びそれらから作られる関連物品を製造するために、代替可能で丈夫な、低価格材料に対するニーズが高まっている。

【0003】

アルキド是一群の熱硬化性樹脂に適用される用語であり、ポリエステル縮合樹脂と記載されることが最も適している。この群の材料は、多価アルコールと有機ポリ酸とのエステル縮合体で構成される。グリセリンは、エステル縮合に使用される有力な多価アルコールである。グリセリンの供給増加により、アルキド樹脂などの非石油系原料から物品を形成するための方法を開発する機会が促進されてきた。

【0004】

従来のプラスチックは、ポリオレフィン、ポリプロピレン、ポリエステルといったような熱可塑性樹脂からなる。加熱すると、熱可塑性樹脂は加工可能な、柔軟で粘稠な溶融物になり、これは冷却により固化又は硬化する。固化後、熱可塑性樹脂から作製される材料は温度に対して安定ではなく、再び溶融することがある。これらはまた、クリープを起こすか又は可塑的に変形することがある。熱可塑性樹脂は粒状ペレットに成形することができ、これは単独又は他の添加剤と共に押出成形機又は他の加工装置に容易に供給し、溶融及び加工して、様々な最終製品を作ることができる。したがって、樹脂ペレット調製の成

10

20

30

40

50

功が、多くの場合、あらゆる有用な熱可塑性材料開発の重要な第一段階である。

【 0 0 0 5 】

アルキド樹脂などの熱硬化性樹脂は、架橋化学反応により硬化されなければならない液体モノマー又はプレポリマー混合物として出発する。エポキシ樹脂及びフェノールホルムアルデヒド樹脂は熱硬化性樹脂の別の典型例である。熱可塑性樹脂と異なって、いったん硬化すると、熱硬化性樹脂は温度に対して安定であり、クリープを起こさず、可塑的に変形しない。結果として、ほとんどの熱硬化性樹脂は溶融加工可能ではなく、したがって、従来の熱可塑性樹脂と同様な方式で、後で溶融加工することができるペレットに成形することができない。その代わりに、熱硬化性樹脂から作製された物品は、架橋反応が完了している成形型の中に注入された液体オリゴマー又はいわゆるプレポリマーから形成される。

10

【 発明の概要 】

【 発明が解決しようとする課題 】

【 0 0 0 6 】

アルキドモノマー及びプレポリマーは加熱時に適度に流体となることができるが、これらは室温では粘稠でべたつき、これにより取り扱いが困難となる。また、ほとんどの熱硬化性樹脂とは異なって、アルキド樹脂から作製された物品は、プレポリマー状態に再加工して新しい物品に成形することができる。しかしながら、このような再加工には、追加的な加工工程、エネルギー及び費用が必要となる。それゆえに、典型的には熱可塑性樹脂から作製される物品の、アルキド樹脂からの製造を、熱可塑性樹脂を加工するのに使用されるものと同じの装置で行うことはできない。したがって、熱可塑性樹脂用に広く使用されている従来の溶融加工装置で取り扱うことができる固体ペレットに、アルキドモノマー又はプレポリマーを転換する手段に対して必要性が存在する。

20

【 課題を解決するための手段 】

【 0 0 0 7 】

本発明は、溶融加工可能な反応性ペレットに成形される反応性組成物を提供する。この反応性組成物は、アルキド樹脂熱硬化性樹脂を作製することができる、充填剤及び反応性混合物を含む。充填剤には、タルク、粘土、パルプ、 TiO_2 、熱可塑性デンプン、生デンプン、木粉 (wood, flour)、珪藻土、カーボンブラック、シリカ、無機ガラス、無機塩、粉末可塑剤、粉末ゴム、及びこれらの組み合わせを挙げることができる。反応性混合物は、少なくとも1種の多価アルコールと、少なくとも1種の有機ポリ酸、少なくとも1種の有機無水物、及びこれらの組み合わせからなる群から選択される反応物質とを含むモノマー混合物を包含する。あるいは、その反応性混合物は、モノマー混合物から形成されるプレポリマー；プレポリマーとモノマー混合物の組み合わせ；又は、プレポリマーと、多価アルコール、有機ポリ酸、有機無水物、及びこれらの組み合わせなどの反応物質との組み合わせを含む。

30

【 0 0 0 8 】

本発明はまた、前述した反応性混合物と充填剤とを組み合わせると均質な混合物を形成することにより溶融加工可能な反応性ペレットを製造するための方法を目的とする。均質な混合物は押出成形されてストランドにされ、切断されてペレットになる。

【 0 0 0 9 】

本発明は、溶融加工可能な反応性ペレットから作製される成形品、シート、フィルム、繊維、発泡体、及びこれらの組み合わせなどの物品を更に目的とする。

40

【 発明を実施するための形態 】

【 0 0 1 0 】

本明細書で使用される全ての百分率、比率、割合は、特に指示がない限り反応性混合物の重量百分率による。全ての平均値は、特に明確に指示がない限り、反応性混合物又はそれらの構成要素の「重量により」計算される。ポリマーの「平均分子量」又は「分子量」は、特に指示がない限り、重量平均分子量を指す。重量平均分子量は、特に規定がない限り、ゲル透過クロマトグラフィーにより決定される。

【 0 0 1 1 】

50

本明細書で使用する時、「コポリマー」とは、コポリマー、ターポリマー、及び他のマルチモノマーポリマーを網羅することを意味する。

【0012】

本明細書で使用する時、「反応物質」とは、化学反応の開始時に存在し、化学反応の系内にあるか又は化学反応の一部として曝される1種以上の他の物質又は触媒と反応する化学物質を指す。

【0013】

本明細書で使用する時、「混合物」とは、特に規定がない限り、定義された群の構成要素のいずれかの2種以上の混合物を指す。代替の成分の列挙は、特に指示がない限り、そのような成分の混合物を包含する。

【0014】

本明細書で使用する時、「生分解性」とは、微生物及び/又は天然の環境因子によって最終的に CH_4 、 CO_2 及び水又は生物資源に完全に分解される化合物の能力を指す。

【0015】

本明細書で使用する時、「堆肥化可能」とは、次の3つの要件を満たす材料を指す。(1)材料は、固形廃棄物用の堆肥化施設で処理することができる、(2)材料は、そのように処理されると、最後には最終堆肥になる、及び(3)堆肥を土壌中で使用すると、材料は最終的に土壌中で生物分解する。

【0016】

本明細書で使用する時、「含む」という用語は、本発明を実施する際に多様な構成要素、成分、又は工程を組み合わせて用いることができることを意味する。したがって、「含む」という用語は、より制限された用語「から本質的になる」及び「からなる」を包含する。本反応性組成物は本明細書にて開示されるあらゆる必須構成要素及び任意要素を含むことができ、これらから本質的になることができ、又はこれらからなることができる。

【0017】

本明細書で使用する時、マーカッシュ言語は、特に指示がない限り、マーカッシュ群の個々の要素の組み合わせを包含する。

【0018】

本明細書において開示される全ての数値域に関して、本明細書全体を通じて記載される各最高数値限定は、それより小さいあらゆる数値限定を、そのような小さい数値限定が本明細書に全て明確に記載されているかのように包含すると理解すべきである。加えて、本明細書全体を通じて記載される各最小数値限定は、それより大きいあらゆる数値限定を、そのような大きい数値限定が本明細書に全て明確に記載されているかのように包含する。更に、本明細書の全体を通じて与えられる各数値域は、この数値域にある全てのより狭い数値域を含み、同様にその数値域内にある個々の数字を包含し、このようなより狭い数値域及び個々の数値は全て明確に記述される。

【0019】

本発明の反応性組成物、方法、及び物品は、粒子状充填剤と、エステル縮合反応から架橋された熱硬化性樹脂、特にアルキド樹脂を作製することができる反応性混合物とを含む複合材料を用いる。この反応性混合物は、多価アルコール及び多官能性有機ポリ酸又は無水物を包含するモノマー混合物を包含する。この反応性混合物はまた、プレ架橋段階 (precrosslinking stage) にまでモノマー混合物を反応させることにより作製されたプレポリマー、又はこのプレポリマーと及びモノマーの組み合わせを包含する。この反応性混合物を充填剤と混合して、反応性組成物を形成する。この反応性組成物は小さな反応性ペレットに作製され、このペレットは保存することができる、粒状形態であって、集塊を形成することなく自由に流れることができる。この反応性ペレットは、熱可塑性樹脂を加工するためにプラスチック産業で一般的に使用されているものと同様である従来の溶融加工装置に容易に供給することができる。溶融加工の間、反応性ペレットを十分な高温に加熱して、反応性混合物のエステル縮合反応を引き起こし、水を反応副生成物として開放雰囲気から遊離させることにより、混合物を重合及び架橋する。

10

20

30

40

50

【0020】

前述した反応性ペレットを形成するのに使用される材料、この反応性ペレットの製造方法、及び、この反応性ペレットの溶融加工から形成される物品について、以下で更に述べる。

【0021】

多価アルコール

本反応性ペレットを形成するのに使用される反応性混合物は、多価アルコールを包含する。本明細書で使用する時、「多価アルコール」とは、2個以上のアルコール（すなわち、ヒドロキシル）官能基を有するアルコールを指す。あらゆる好適な多価アルコール又は多価アルコールの組み合わせが有用である。しかし、2000g/mol未満の分子量を有する、モノマー、オリゴマー、又は短鎖の多価アルコールが好ましい。好適な多価アルコールの非限定例には、グリセロール（グリセリンとしても当該技術分野において既知）、グリコール、糖、糖アルコール、及びこれらの組み合わせが挙げられる。有用なグリコールの非限定例には、エチレングリコール、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、ブチレングリコール、ヘキサントリオール、及び同種のもの、これらのオリゴマー、並びにこれらの組み合わせが挙げられる。有用な糖の非限定例には、グルコース、スクロース、フルクトース、ラフィノース、マルトデキストロース、ガラクトース、キシロース、マルトース、ラクトース、マンノース、エリトロース、ペンタエリスリトール、及びこれらの混合物が挙げられる。有用な糖アルコールの非限定例には、エリスリトール、キシリトール、マリトール、マンニトール、ソルビトール、及びこれらの混合物が挙げられる。本発明の具体的な実施形態では、多価アルコールは、グリセロール、マンニトール、ソルビトール、及びこれらの組み合わせを含む。

10

20

【0022】

典型的には、多価アルコールは、本発明の反応性混合物中に約5%～約80%、約10%～約75%、約25%～70%、又は約35%～65%の量で存在することができる。

【0023】

有機ポリ酸及び酸無水物

本反応性ペレットを形成するのに使用される反応性混合物は、有機ポリ酸及び無水物を包含する。有機ポリ酸とは2個以上の酸性官能基を有する有機酸を意味し、二塩基酸、三塩基酸（少なくとも3個の酸基を有する）、4個以上の酸性官能基を有するその他の酸、酸ポリマー若しくは酸コポリマー、又はこれらの混合物を包含することができるが、これらに限定されない。このような酸には、アジピン酸、セバチン酸、クエン酸、シュウ酸、マロン酸、コハク酸、グルタル酸、マレイン酸、フマル酸、フタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸（terphthalic acid）、及びこれらの2種以上の混合物が挙げられるが、これらに限定されない。このような酸の無水物がまた同様に用いられてもよく、本明細書の文脈の中での有機ポリ酸の参照にはこのような無水物が包含される。ラウリン酸、ステアリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、オレイン酸、リノール酸、セバチン酸、アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、及びグリシジルメタクリレートなどの一塩基酸は、所望により、どの段階でもポリ酸に加えて、包含されてもよい。例えば、一塩基酸は加工助剤として又は最終製品の特性、例えば可撓性、強度などを改質するために添加されてもよい。

30

40

【0024】

本発明には多くの異なったタイプの有機ポリ酸及び無水物が使用でき、アジピン酸、クエン酸、マレイン酸、無水マレイン酸、ポリアクリル酸、無水フタル酸、及び同種のもの、並びにこれらの混合物が挙げられる。一塩基酸、特にステアリン酸、ラウリン酸、オレイン酸、及びリノール酸のような脂肪酸も反応性混合物の中に組み入れることができる。反応性の酸性又はアルコール官能基を有するその他の官能性化合物、例えば、シリコーンオリゴマー又はポリエチレングリコールなども組み入れてもよい。

【0025】

典型的には、有機ポリ酸又は無水物は、本発明の反応性混合物中に約5%～約80%、約10%～約75%、約25%～約70%、又は約35%～約65%の量で用いることが

50

できる。

【0026】

トリグリセリド

トリアシルグリセロールとして当該技術分野において既知である任意の好適なトリグリセリドも本反応性混合物中に包含されてもよい。有用なトリグリセリドの非限定例には、トリストアリン、トリオレイン、トリパルミチン、1,2-ジパルミトオレイン、1,3-ジパルミトオレイン、1-パルミト-3-ステアロ-2-オレイン、1-パルミト-2-ステアロ-3-オレイン、2-パルミト-1-ステアロ-3-オレイン、トリリノレイン、1,2-ジパルミトリノレイン、1-パルミト-ジリノレイン、1-ステアロ-ジリノレイン、1,2-ジアセトパルミチン、1,2-ジステアロ-オレイン、1,3-ジステアロ-オレイン、トリミリスチン、トリラウリン、及びこれらの組み合わせが挙げられる。

10

【0027】

好適なトリグリセリドは、希釈していない状態で本発明の反応性組成物に添加してもよい。更に又はあるいは、好適なトリグリセリドを含有する油及び/又は加工油を反応性組成物に添加してよい。油の非限定例には、ココヤシ油、トウモロコシ胚芽油、オリーブ油、パーム種子油、綿実油、パーム油、菜種油、ヒマワリ油、鯨油、大豆油、ピーナッツ油、亜麻仁油、トール油、及びこれらの組み合わせが挙げられる。

【0028】

典型的には、トリグリセリドは反応性混合物中に約75%まで、又は約2%~約50%、又は約5%~約25%の量で用いられる。

20

【0029】

いくつかの実施形態では、酸及びトリグリセリドの組み合わせが反応性混合物中に用いられる。このような実施形態では、酸及びトリグリセリドの総量は約20%~約80%、約30%~約70%、又は約40%~60%である。更に又はあるいは、アルコール官能基：エステル及び酸官能基の合計とのモル比は、少なくとも約1:1、又は少なくとも約4:1である。いくつかの実施形態では、そのモル比は、約1:1~約200:1、又は約1:1~約50:1である。

【0030】

本発明の反応性混合物はまた、一塩基酸、及び適切な量のモノグリセリド、又はトリグリセリドの代替としてジグリセリドを包含することができる。

30

【0031】

追加の構成要素

本反応性ペレットを形成するのに使用される反応性混合物は、組成物の加工及び/又は最終用途に所望される1種以上の追加の構成要素を更に包含してもよい。追加の構成要素は、あらゆる好適な量で存在してもよい。いくつかの実施形態では、追加の構成要素は、本反応性混合物の約0.01重量%~約35重量%、又は約2重量%~約20重量%の量で存在してもよい。追加の構成要素の非限定例には、追加のポリマー、加工助剤、及び同種のもものが挙げられるが、これらに限定されない。

【0032】

有用な追加のポリマーの非限定例には、ポリヒドロキシアルカノエート、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエチレンテレフタレート、マレイン酸変性ポリエチレン、マレイン酸変性ポリプロピレン、ポリ乳酸、変性ポリプロピレン、ナイロン、カプロラクトン、及びこれらの組み合わせが挙げられる。追加のポリマーにはまた、2000g/molを超える分子量を有するポリビニルアルコール及び多価アルコールが挙げられる。

40

【0033】

生分解性及び/又はフラッシュャブル性が挙げられるがこれらに限定されない特性が所望される実施形態では、追加の好適な生分解性ポリマー及びこれらの組み合わせが有用である。いくつかの実施形態では、脂肪族構成要素を含有するポリエステルが、好適な生分解性熱可塑性ポリマーである。いくつかの実施形態では、ポリエステルの中でも、脂肪族構

50

成要素及びポリ(ヒドロキシカルボン酸)を含有するエステル重縮合体が好ましい。エステル重縮合体には、ポリブチレンサクシネート及びポリブチレンサクシネートコ-アジパートのような二酸/ジオール脂肪族ポリエステル; ブチレンジオール、アジピン酸、及びテレフタル酸から作製されるターポリマーのような脂肪族/芳香族ポリエステルが挙げられるが、これらに限定されない。ポリ(ヒドロキシカルボン酸)には、乳酸系ホモポリマー及びコポリマー、ポリヒドロキシブチレート、並びに他のポリヒドロキシアルカノエートホモポリマー及びコポリマーが挙げられるが、これらに限定されない。いくつかの実施形態では、ポリ乳酸のホモポリマー又はコポリマーが好ましい。変性ポリ乳酸及びその異なる立体構成もまた使用してもよい。好適なポリ乳酸は、典型的には、約4,000g/mol~約400,000g/molの範囲の分子量を有する。好適な市販のポリ乳酸の例には、カーギルダウ(Cargill Dow)からのネイチャーワークス(NATUREWORKS)(商標)、及び三井化学(Mitsui Chemical)からのラセア(LACEA)(商標)が挙げられる。好適な市販の二塩基酸/ジオール脂肪族ポリエステルの例は、ビオノーレ(BIONOLLE)(商標)1000及びビオノーレ(商標)3000として、昭和高分子社(Showa Highpolymer Company, Ltd.)(日本、東京)から販売されている、ポリブチレンサクシネート/アジパートコポリマーである。好適な市販の脂肪族/芳香族コポリエステルは、イーストマンケミカル(Eastman Chemical)からイースターバイオ(EASTAR BIO)(商標)コポリエステル、又はBASFからエコフレックス(ECOFLEX)(商標)として、販売されているポリ(テトラメチレンアジパート-コ-テレフタレート)である。いくつかの実施形態では、生分解性ポリマー又はポリマーの組み合わせは、ポリビニルアルコールを含んでもよい。

【0034】

前述の生分解性ポリマー及びこれらの組み合わせは、本反応性混合物の約0.1重量%~約70重量%、約1重量%~約50重量%、又は約2重量%~約25重量%の量で存在してもよい。

【0035】

加工助剤は通常、本反応性混合物中に反応性混合物の約0.1重量%~約3重量%、又は約0.2重量%~約2重量%で存在する。加工助剤の非限定例には、潤滑剤、抗粘着剤、ポリマー、界面活性剤、油、スリップ剤、及びこれらの組み合わせが挙げられる。具体的な加工助剤の非限定例には、ステアリン酸マグネシウム、脂肪酸アミド、脂肪酸の金属塩、ワックス酸エステル及びこれらの石鹸、モンタンワックス酸、エステル及びこれらの石鹸、ポリオレフィンワックス、非極性ポリオレフィンワックス、天然及び合成パラフィンワックス、フルオロポリマー、及びケイ素が挙げられる。こうした化合物の市販の例には、クロードミド(Crodamide)(商標)(クロード(Croda)、英国、ノースハンバーサイド(North Humberside))、アトマー(Atmer)(商標)(ユニケマ(Uniqema)、ベルギー、エパーベルグ(Everberg))、及びエポスタン(Epostan)(商標)(日本触媒(Nippon Shokobai)、日本、東京)が挙げられるが、これらに限定されない。

【0036】

他の添加剤が、これらから形成される最終製品又は材料に追加の物理的特性を付与するために反応性混合物中に存在することができる。このような添加剤には、酸基、アルコール基、及びこれらの組み合わせなどの官能基を有する化合物が挙げられる。このような化合物には、シリコンオリゴマー、ポリエチレングリコール、及びこれらの組み合わせが挙げられる。

【0037】

充填剤

反応性ペレットに成形される反応性組成物を供給する反応性混合物と混合される充填剤は、300µm未満、100µm未満、又は50µm未満の等価直径を有する固体粒子を含む。本発明の反応性組成物中に存在する充填剤の非限定例には、タルク、粘土、パルプ、木粉(wood, flour)、クルミ殻、セルロース、綿、黄麻、ラフィア、米のもみ殻、動物の剛毛、キチン、TiO₂、熱可塑性デンプン、生デンプン、粒状デンプン、珪藻土、

ナノ粒子、炭素繊維、ケナフ、シリカ、無機ガラス、無機塩、粉末可塑剤、粉末ゴム、ポリマー樹脂、及びこれらの組み合わせが挙げられる。マグネシウム、アルミニウム、ケイ素及びチタンの酸化物などの無機充填剤などの更なる添加剤も、高価でない充填剤又は加工助剤として添加してもよい。他の無機材料には、水和ケイ酸マグネシウム、二酸化チタン、炭酸カルシウム、窒化ホウ素、石灰岩、雲母、ガラス、石英、及びセラミックスが挙げられる。更に、アルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩、リン酸塩などの無機塩を加工助剤として使用してもよい。添加することができる別の材料は、環境による分解プロセスを更に加速するために、ステアリン酸コバルト、クエン酸、酸化カルシウム及び米国特許第5,854,304号(ガルシア(Garcia)ら)に見出される他の化学組成物を配合した化学組成物である。

10

【0038】

前述の充填剤及びこれらの組み合わせは、反応性ペレットを形成する反応性組成物中に、反応性組成物の約25重量%~約80重量%、約30重量%~約70重量%、又は約50重量%~約65重量%の量で存在してもよい。

【0039】

エステル縮合反応

本明細書で前述しているように、アルキド樹脂は、多価アルコール及び多官能性有機ポリ酸などのモノマーを含む反応性混合物の縮合反応から、又は、多価アルコールと酸との間に縮合反応が既に部分的には生じているが完全には生じていないプレ架橋段階にまでモノマー混合物を反応させることにより作製されるプレポリマーであるオリゴマーから、作製される。縮合反応の間、反応性混合物の温度が多価アルコールと酸との間の反応を推進するために十分な時間にわたって十分に高いならば、形成される組成物は水安定性樹脂組成物に転換するであろう。例えば、反応性混合物は、水除去と水安定性組成物への転換を促進する穴又は他の改良点を備える押出成形機において溶融加工することができる。したがって、このような実施形態では、組成物を、例えば、フィルム、シート、及び成形品、並びにこれらの組み合わせなどの最終用途のために好適である形態に溶融押出成形することが好都合である。

20

【0040】

一方で、反応性混合物の溶融加工が行われる温度若しくは条件が、十分に低く、及び/又は、多価アルコールと酸との間の反応を推進するのに不十分な時間であるならば、得られる押出品は反応性混合物を含み、これは更に加工されてもよく、所望により、更なる加熱によって水安定性組成物に転換される。したがって、この実施形態では、反応性混合物は、取り扱い、更なる加工、又は同種のを容易にする形態で供給することができる。例えば、反応性混合物は、充填剤と組み合わせることができ、これは、固体形態に押出成形することができる本発明による反応性組成物を形成する。特定の実施形態では、この反応性組成物押出品は溶融加工に好適である反応性ペレットに成形される。この実施形態では、フィルム、シート、コーティング、及び成形品、又は他の所望される製品形態を形成するための反応性ペレットの更なる溶融加工が、反応性組成物の水安定性組成物又は製品への転換をもたらすのに、十分な温度及び時間条件下で行われてもよい。あるいは、溶融加工が、反応性組成物の水安定性組成物への転換をもたらすのに、十分な温度及び時間条件下で行われない場合には、得られる反応性組成物は引き続き加熱して水安定性製品に転換することができる。

30

40

【0041】

反応性ペレット形成

本発明では、反応性モノマー混合物又はプレポリマーは、前述した十分な量の粒子状充填剤と混合され、この混合物のレオロジー的稠度を溶融加工可能な反応性ペレットを製造するために好適であるようにする。このモノマー混合物又はプレポリマーは加熱して、粒子状充填剤との容易な混合に十分な流体とすることができる。例えば、混合時に、この反応性混合物の温度は約80~約130の範囲にあり、反応物質混合物の粘性は、約1000ポアズ未満、約500ポアズ未満、約200ポアズ未満、及び約100ポアズ未満

50

であることができる。十分な量の粒子状充填剤が添加されて、ストランドに押出成形して小さなペレットに切断することができる柔軟なドウ又は溶融プラスチックの稠度を達成する。冷却すると、ペレットは十分に硬質でべたつかず、集塊を形成することなく粒状形態を維持して、取り扱いを容易にする。得られる反応性で溶融加工可能な複合材料ペレットは、従来の熱可塑性樹脂の加工と同様の方式で、射出成形用鑄型を備えた押出成形機などの溶融加工装置に供給することができる。

【0042】

反応性混合物形成の間、架橋を生じるエステル縮合反応は、アルキド縮合反応についてのゲル化点よりも下にあることが望ましい。ゲル化点は、少なくとも1つの非常に大きい分子がポリマー相と同一の広がりを持ち、流動がもはや不可能であり、材料がより固体のように挙動するように、反応剤の生成物によって形成される十分なポリマー鎖が共に結合される状態であると定義される。反応物質混合物を物品に成形することができるように十分な流動性を保持するために、最終加工の前に反応性混合物がゲル化点よりも下にあることが望ましい。

10

【0043】

ゲル化点に達するまでに、反応性混合物の縮合反応がオリゴマーのようなプレポリマー又は更により大きな分子が形成される点まで進行することが有利である場合があり、それでも、混合物は、流動して有用な物品に成形される能力を保持する。本発明のいくつかの実施形態では、充填剤と混合されて反応性ペレットを形成するのに先立って、反応性混合物の流動能力を保持しながら最大限の水が反応性混合物から取り除かれるように、反応混合物のエステル縮合反応がある程度まで進行してゲル化点に接近できることが有利である場合がある。ペレットの形成に先立って反応性混合物からの水の除去を最大化することにより、反応性ペレットが溶融加工されて物品に成形される時に、最終加工工程で必要とされる残りのエステル縮合反応及びこれに対応する水の除去を最小化することができる。

20

【0044】

本発明に記載の反応性ペレットは、反応性モノマー混合物又はプレポリマーを含む反応性混合物、及び充填剤を包含する反応性組成物を従来の混合及び/又は押出成形技術を使用して、溶融混合及び/又は押出成形することにより形成することができる。典型的には、構成要素は、従来の配合技術を使用して混合される。配合工程の目的は、視覚的に均質な溶融組成物を製造することである。

30

【0045】

好適な混合装置は、複数の注入点を有する複数の混合領域の二軸押出成形機である。複数の注入点を使用して反応性混合物及び充填剤を添加することができる。二軸バッチ混合機又は一軸押出成形システムも用いることができる。十分に混合及び加熱される限り、使用される具体的な機器は重要ではない。材料を配合するための別の方法は、押出成形システムに反応性混合物を添加することを含み、このシステムで徐々に温度を上昇しながらこれらを混合する。例えば、6つの加熱ゾーンを有する二軸押出成形機を用いてもよい。しかしながら、ペレットを形成するためには溶融した混合物を押出成形することが必要でない可能性があり、構成要素の成分を組み合わせることで反応性組成物を形成し、本発明の対応する反応性ペレットを形成するために、通常、当該技術分野において既知の又はこの目的に好適な任意の方法を使用することができる。典型的には、こうした技術には、加熱及び混合、並びに所望により加圧が挙げられるであろう。当業者であれば理解するように、詳細な順序又は混合、温度、速度又は時間、及び装置は、様々であることができる。

40

【0046】

ペレットの溶融加工

反応性組成物から形成される反応性ペレットを溶融加工して物品に作製する時、架橋反応は、反応性ペレットの溶融加工の間か又は溶融加工に続く追加の後硬化工程までかのいずれかで完了することができる。反応性ペレットの溶融加工から完全に架橋された物品を製造するために、溶融加工の間に加熱することにより、反応性混合物のエステル縮合反応を引き起こし、及び/又は、完了に向かわせる。反応副生成物として生じた水は、反応を

50

促進させるために効率良く取り除かれる。反応混合温度は、溶融加工の間に架橋反応を完了に向かわせるために、約100～約300、約120～約280、又は約150～約260であってもよい。本発明のいくつかの実施形態では、触媒が、エステル縮合及び/若しくはエステル交換反応を、開始する並びに/又は促進するために使用されてもよい。あらゆる好適な触媒が有用である。有用な触媒の非限定例には、ルイス酸が挙げられる。触媒の非限定例には、パラ-トルエンスルホン酸、メタンスルホン酸、及び直鎖アルキルベンゼンスルホン酸が挙げられる。

【0047】

後硬化を介しての架橋反応の完了は、従来の対流式又は輻射式又はマイクロ波式オーブンの中で、並びに、他の手段により、エステル縮合反応及びこれに対応して物品から水を除去することを完了するために、後硬化工程の間に製品を加熱することで、達成することができる。

10

【0048】

物品

本明細書で使用する時、「物品」とは、本発明に記載の溶融加工可能な反応性ペレットのみから作製される物品、又は少なくとも一部を本発明による溶融加工可能な反応性ペレットから作製される物品を網羅することを意味する。物品には、フィルム、シート、積層体、コーティング、及び発泡体のような押出成形品、成形品、及びこれらの組み合わせが挙げられるが、これらに限定されない。個人衛生物品及び吸収性物品は、本発明の反応性組成物から作製される物品であってもよく、又は本発明の反応性組成物から作製される物品を含んでもよい。

20

【0049】

押出成形品

フィルム

本発明のいくつかの実施形態では、物品はフィルムである。本明細書で使用する時、「フィルム」とは、長さ対厚さの比及び幅対厚さの比が大きい、薄く連続した材料又は基材を意味し、「大きい」とは、約10:1超過の比を意味する。厚さの正確な上限値の要件はないが、上限値は、約0.254mm、約0.01mm、又は約0.005mmである。

【0050】

本発明のフィルムは、使い捨て個人衛生物品（例えば、おむつ、生理用品、及び同種のもの）、包装（例えば、食品ラップ、消費者製品ラップ、パレット及び/又はクレートラップ、及び同種のもの）、あるいは袋（食料雑貨袋、食品保存袋、サンドイッチ袋、再密封可能な袋、ごみ袋、及び同種のもの）が挙げられるがこれらに限定されない様々な使い捨て製品において、用いることができる。他のフィルムとよく似ているように、本フィルムの保護価値は、その連続性、すなわち穴又は亀裂のなさに依存する可能性があるため、大気水蒸気及び/又は酸素のような分子に対する効果的なバリアとして用いられてよい。本発明のいくつかの実施形態では、フィルムは、液体不透過性であり、使い捨ておむつ、婦人衛生パッド、及び同種のもものが挙げられるがこれらに限定されない吸収性使い捨て衛生品目において使用するのに適している。

30

40

【0051】

本発明のフィルムは、例えば、生分解性及び堆肥化可能性のような多数の物理的特徴を有してもよい。おむつ及び婦人衛生パッドが挙げられるがこれらに限定されない個人衛生物品中の堆肥化可能バックシートとして良好に機能するフィルムは、米国特許第5,498,692号に記載されるような特徴を有してよい。

【0052】

本発明のフィルムは、単層又は多層フィルムを製造するために使用されるあらゆる好適な方法を使用して作製されてもよい。使用方法の非限定例には、キャストフィルム吹き込み成形、キャストフィルム押出成形、及び吹き込みフィルム押出成形が挙げられる。これらの方法、並びに他の好適な方法は、米国特許第5,498,692号に記載されている

50

。

【 0 0 5 3 】

いくつかの実施形態では、本明細書で開示されている反応性組成物から作製されるストランド、ペレット、又は粉末、並びにこれらの組み合わせは、フィルム押出成形機の中で、ドライブレンド及び溶融混合される。フィルム押出成形機の中で不十分な混合が生じる実施形態では、ストランド、ペレット、粉末、及びこれらの組み合わせは、初めにドライブレンドされ、その後、事前配合押出成形機内で溶融混合され、フィルム押出成形に先立って再ペレット化することができる。

【 0 0 5 4 】

発泡体

本発明の別の実施形態では、物品は発泡体である。本明細書で使用する時、「発泡体」とは、その見掛け密度が、そのバルク全体にわたって分布する多数の気泡の存在によって実質的に低下した本発明の反応性組成物を指す（ASTM D 883 - 62 T、米国材料試験協会（American Society for Testing and Materials）、ペンシルベニア州フィラデルフィア（Philadelphia）、1962年を参照されたい）。固体が連続的で、合成ポリマー又はゴムからなる、このような二相気体／固体系には、気泡ポリマー（又はコポリマー）、膨張プラスチック、及び発泡プラスチック（「工業化学百科事典（Encyclopedia of Chemical Technology）」11巻、ジョン・ワイリー＆サンズ（John Wiley & Sons）、ニューヨーク、1980年）が挙げられる。

【 0 0 5 5 】

気体相は、ポケット又は「気泡」と呼ばれる空洞に分配されてよく、気泡は連続気泡及び独立気泡の2種類に分類される。連続気泡材料は、気体が自由に気泡を通過してよいように、その気泡が相互結合する発泡体である。独立気泡材料は、別個の気泡を有し、互いに分離される。

【 0 0 5 6 】

発泡体は、可撓性及び硬性発泡体に更に分類される。この分類は、特定のASTM試験手順（ASTM D、37巻、1566～1578頁、米国材料試験協会（American Society of Testing and Materials）、ペンシルベニア州フィラデルフィア（Philadelphia）、1978年を参照されたい）に基づく。可撓性発泡体は、20×2.5×2.5cm片が、15～25において均一速度1lap/5秒で2.5cmマンドレルの周りに巻き付く時、破裂しない発泡体である。この試験下で破裂する発泡体は、硬性発泡体と呼ばれる。

【 0 0 5 7 】

本発明に記載の発泡体は、包装、快適緩衝材、断熱材、構造用構成要素及び同種のもの、が挙げられるが、これらに限定されないあらゆる好適な用途を見出すことができる。包装のいくつかの領域においては、生分解性及び／又は堆肥化可能性が向上した発泡材料は、例えばポリスチレン、紙、及びデンプン発泡体のような、現在使用されている包装に、優れた利益を提供するであろう。熱い食品用容器では、ポリスチレンは、唯一の現在分解可能な代替りの包装紙よりも、著しく高い断熱を提供する。本発明の反応性組成物を含む発泡物品は、ポリスチレンの断熱特性を有するが、それにも関わらず生分解性及び／又は堆肥化可能である。これらの材料は、熱い食品のテイクアウト及び冷たい食品の包装に理想的である。

【 0 0 5 8 】

発泡ポリスチレンチップは、消費者及び工業製品のためのクッション付包装材料として使用される。これらのチップの多くは、埋立地で処分される。本発明の反応性組成物を含む発泡チップは、ポリスチレンのように機能することができるが、それにも関わらず生分解性及び／又は堆肥化可能性が高い。更に、本発明に記載の発泡チップは水安定性であり得る。

【 0 0 5 9 】

本発明の発泡体は、あらゆる好適な方法を使用して作製することができる。方法の非限

10

20

30

40

50

定例は、米国特許第 5, 498, 692 号に記載されている。

【0060】

成形品

本発明の別の実施形態では、物品は成形品である。本明細書で使用する時、「成形品」とは、反応性組成物から形成されるものを指す。本発明の反応性組成物から形成される熔融加工可能な反応性ペレットは、熔融加工され、引き続いて、例えば、雌型によって画定される形状に、射出されてもよく、圧縮されてもよく、又は気体によって吹きつけられてもよい。これらの物品は、玩具のような固体物品、又はボトル及び容器のような中空であることができる。成形品の製造方法は、米国特許第 5, 498, 692 号に更に詳細に記載されている。

10

【0061】

使い捨てパーソナルケア製品

更に本発明は、本発明の反応性組成物を含む使い捨てパーソナルケア製品に関する。いくつかの実施形態では、使い捨てパーソナルケア吸収性物品は、液体透過性トップシート、本発明のフィルムを含む液体不透過性バックシート、及びトップシートとバックシートとの間に位置する吸収性コアを含む。いくつかの実施形態では、パーソナルケア吸収性物品は、堆肥化可能である。こうした吸収性物品の非限定例には、幼児おむつ、成人失禁ブリーフ及びパッド、並びに婦人衛生パッド及びライナーが挙げられる。

【0062】

本発明の反応性組成物を含む更なるパーソナルケア製品には、個人洗浄拭き取り用品；包帯、創傷包帯、創傷洗浄パッド、手術衣、手術用カバー、手術用パッドなどの使い捨てヘルスケア製品；ガウン、拭き取り用品、パッドなどの他の施設用の (institutional) 及びヘルスケア用の使い捨て製品、シーツ及び枕カバー、発泡体マットレスパッドなどの寝具品目が挙げられるが、これらに限定されない。

20

【0063】

重要なことには、本発明に記載の吸収性物品は、ポリオレフィン (例えばポリエチレンバックシート) のような材料を用いる従来の吸収性物品より、生分解性及び/又は堆肥化可能の程度が大きい可能性がある。

【実施例】

【0064】

実施例 1：反応性モノマー混合物の調製

1, 000 g のグリセロール (スーパーロール・グリセリン (Superol Glycerin)、プロクター & ギャンブル社 (Procter & Gamble)、シンシナティ (Cincinnati)) を約 60 に加熱して、過剰な粘性を低減する。2.5 g の直鎖アルキルベンゼンスルホン酸 (HLAS、プロクター & ギャンブル社 (Procter & Gamble)、シンシナティ (Cincinnati)) を触媒として添加し、1, 000 g の無水マレイン酸 (アルドリッチ社 (Aldrich)、セントルイス (St. Louis)) をグリセロールに徐々に混合して透明な混合溶液を形成する。無水マレイン酸をクエン酸、アジピン酸、又はコハク酸 (アルドリッチ社 (Aldrich)、セントルイス (St. Louis)) に換えて、この手順を繰り返して、異なるモノマー混合物を作製する。

40

【0065】

実施例 2：反応性プレポリマーの調製

実施例 1 のグリセロール、無水マレイン酸、及び HLAS の混合物 1, 000 g を 140 に加熱して、無水マレイン酸とグリセロールとの間の縮合反応を行って、オリゴマー性の反応性プレポリマーを製造する。反応が停止したら 40 分以内で 100 以下に冷却し、混合物がゲル化しないようにする。実施例 1 の他の反応性モノマー混合物を使用することにより、同様の方式で他の反応性プレポリマーも作製する。

【0066】

実施例 3：反応性プレポリマーによるペレットの調製

実験室用ミキサーを使用して、450 g の温めた実施例 2 のマレイン酸グリセロールブ

50

レポリマーを550gのカオリン粘土(ユニミン社(Unimin Corporation)、スノブライト(Snobrite))と混合し、柔らかなドウを製造する。電気挽肉機(キッチンエイド社(Kitchen Aid)、ミシガン州セント・ジョゼフ(St. Joseph))を通過させることにより、ドウを更に混合する。このドウ混合物を共回転押出成形機(ベルシュトルフ・ウルトラグライド(Berstorff Ultragliding))に供給して、41.1(106°F)、71.1(160°F)、93.3(200°F)、132.8(271°F)、148.9(300°F)、162.8(325°F)、及び176.7(350°F)の設定温度範囲で、150rpmのスクリー速度で操作する。熱を持った押出品のストランドをエアテーブル上で冷却し、次にバーリン(Berlyn)ペレット製造機(マサチューセッツ州ウースター(Worcester))でペレット化する。同様の手順を使用して、実施例2の他の反応性プレポリマーでペレットを作製する。

10

【0067】

実施例4：モノマー混合物によるペレットの調製

実験室用ミキサーを使用して、実施例1のグリセロールと無水マレイン酸の140の混合物400gをカオリン粘土(ユニミン社(Unimin Corporation)、スノブライト(Snobrite))600gと混合し、柔らかなドウを製造する。挽肉機(キッチンエイド社(Kitchen Aid)、ミシガン州セント・ジョゼフ(St. Joseph))を通過させることにより、ドウを更に混合する。このドウ混合物を共回転押出成形機(ベルシュトルフ・ウルトラグライド(Berstorff Ultragliding))に供給して、41.1(106°F)、71.1(160°F)、93.3(200°F)、132.8(271°F)、148.9(300°F)、162.8(325°F)、及び176.7(350°F)の設定温度範囲で、150rpmのスクリー速度で操作する。熱を持った押出品のストランドをエアテーブル上で冷却し、次にバーリン(Berlyn)ペレット製造機(マサチューセッツ州ウースター(Worcester))でペレット化する。同様の手順を使用して、実施例1の他のモノマー混合物でペレットを作製する。

20

【0068】

実施例5：成形品の調製

実施例3の溶融加工可能な反応性ペレットを、射出成形機(アールブルグ社(Arburg GmbH))を備えた押出成形機(ベルシュトルフ・ウルトラグライド(Berstorff Ultragliding))に供給して、通常のプラスチック物品と同様の方式で成形品を製造する。いくつかの成形品を90のオーブンで16時間にわたって焼成して、更に反応性構成要素の硬化を完了させる。

30

【0069】

本明細書に開示されている寸法及び値は、列挙した正確な数値に厳しく限定されるものとして理解するべきではない。それよりむしろ、特に指定されない限り、こうした寸法はそれぞれ、列挙された値とその値周辺の機能的に同等の範囲との両方を意味するものとする。例えば、「40ミリメートル」として開示する寸法は、「約40ミリメートル」を意味することを意図したものである。

【0070】

本発明の「発明を実施するための形態」で引用した全ての文献は、関連部分において、本明細書に参考として組み込まれるが、いずれの文献の引用も、それが本発明に対する先行技術であることを容認するものとして解釈されるべきではない。本書における用語の任意の意味又は定義が、参照により組み込まれた文献における同一の用語の任意の意味又は定義と相反する限りにおいては、本書においてその用語に与えられた意味又は定義が適用されるものとする。

40

【0071】

本発明の特定の諸実施形態を図示し、記載したが、本発明の趣旨及び範囲から逸脱することなく他の様々な変更及び修正を実施できることが当業者には自明であろう。したがって、本発明の範囲内にあるこのような全ての変更及び修正を、添付の特許請求の範囲で扱うものとする。

50

【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/US2008/054053A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. C08J5/24

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)
C08J C08L C08K

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	US 4 451 610 A (COLLISTER JON E [US]) 29 May 1984 (1984-05-29) claim 20; examples	1-15
X	US 2 757 160 A (ANDERSON THOMAS F) 31 July 1956 (1956-07-31) claim 1; examples	1-15
X	EP 1 085 032 A (NIPPON CATALYTIC CHEM IND [JP]) 21 March 2001 (2001-03-21) claims; examples	15
X	US 5 254 642 A (CHANG KEN K [US] ET AL) 19 October 1993 (1993-10-19) claims; examples	15
X	US 3 825 517 A (FICARRA B) 23 July 1974 (1974-07-23) the whole document	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 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

10 June 2008

Date of mailing of the international search report

18/06/2008

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel: (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Zeslawski, Wojciech

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/US2008/054053

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 4451610	A	29-05-1984	NONE	
US 2757160	A	31-07-1956	GB 752236 A	04-07-1956
EP 1085032	A	21-03-2001	WO 0046269 A1 US 6384151 B1	10-08-2000 07-05-2002
US 5254642	A	19-10-1993	AU 5125293 A CA 2122618 A1 WO 9405709 A1	29-03-1994 17-03-1994 17-03-1994
US 3825517	A	23-07-1974	AU 471823 B2 AU 5188173 A CA 1024684 A1 CH 580135 A5 DE 2316563 A1 FR 2185654 A1 GB 1430402 A JP 49031787 A NL 7302858 A	06-05-1976 08-08-1974 17-01-1978 30-09-1976 06-12-1973 04-01-1974 31-03-1976 22-03-1974 27-11-1973

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, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW

(72)発明者 ウィリアム マックスウェル アレン ジュニア
アメリカ合衆国 4 5 0 4 4 オハイオ州 リバティー タウンシップ サファリ ドライブ 5
6 1 2

(72)発明者 ジェイムズ テリー ナップメイヤー
アメリカ合衆国 4 5 2 3 6 オハイオ州 シンシナティ クグラール ミル ロード 4 2 2 2

(72)発明者 マイケル マシュー サトコウスキー
アメリカ合衆国 4 5 0 5 6 オハイオ州 オックスフォード ワインディングブルック ドライブ 6 1 3

Fターム(参考) 4J002 AB012 AB042 AC002 AH002 CF011 CF031 DA036 DE136 DJ006 DJ016
DJ036 DJ046 DL006 FD012 FD016
4J029 AA03 AE02 AE03 CA04 CA06 FC03 FC12 GA13 HA01 HB01
HB06 JA303 JC371