(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2019年12月26日(26.12.2019)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2019/244921 A1

(51) 国際特許分類:
C09K 3/00 (2006.01) *A01N 25/10* (2006.01)
A01N 25/00 (2006.01) *C08L 101/00* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2019/024261

(22) 国際出願日： 2019年6月19日(19.06.2019)

(25) 国際出願の言語： 日本語

(26) 国際公開の言語： 日本語

(30) 優先権データ：
特願 2018-117392 2018年6月20日(20.06.2018) JP

(71) 出願人:株式会社ニックス(**NIX, INC.**) [JP/JP]; 〒2206108 神奈川県横浜市西区みなとみらい二丁目３番３号 Kanagawa (JP).

(72) 発明者:坪 俊介(**TSUBO, Shunsuke**); 〒2520131 神奈川県相模原市緑区西橋本二丁目２３番３号 株式会社ニックス Ｒ＆Ｄセンター内 Kanagawa (JP). ▲高▼橋 徹(**TAKAHASHI, Toru**); 〒2520131 神奈川県相模原市緑区西橋本二丁目２３番３号 株式会社ニックス Ｒ＆Ｄセンター内 Kanagawa (JP).

(74) 代理人:稲葉 良幸，外(**INABA, Yoshiyuki** et al.); 〒1066123 東京都港区六本木６－１０－１ 六本木ヒルズ森タワー２３階 ＴＭＩ総合法律事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：
— 国際調査報告（条約第21条(3)）

WO 2019/244921 A1

(54) **Title:** COMPOSITION WITH SUSTAINED-RELEASE FUNCTION AND MOLDED OBJECT

(54) 発明の名称： 機能徐放性組成物及び成形体

(57) **Abstract:** A composition with a sustained-release function comprising: a liquid with a sustained-release function; a porous coordination polymer which includes a metal ion and an organic ligand and has a specific surface area of 900 m^2/g or larger; and a matrix resin.

(57) 要約：機能徐放性液体と、金属イオン及び有機配位子を有し、９００m^2／ｇ以上の比表面積を有する多孔性配位高分子と、マトリックス樹脂とを含む機能徐放性組成物。

明　細　書

発明の名称 ： 機能徐放性組成物及び成形体

技術分野

[0001] 本発明は、機能徐放性組成物及び成形体に関する。

背景技術

[0002] 小動物防除等の機能性成分において、所定量の機能性成分を長期間放出することにより、効果の持続性の向上が期待できる。小動物防除機能成分の効果持続性を高める方法として、小動物防除機能成分をマトリックス樹脂に展開した小動物防除複合素材を用いた成形体などが考案されている（例えば、特許文献１～３）。特許文献１～３に記載された成形体は、小動物防除機能成分を成形体表面に徐々に放出する（以下、「徐放」という。）ことにより、害虫等の小動物と接触する成形体表面における小動物防除機能を持続できる。このような徐放性を長期間持続するためには、マトリックス樹脂に展開した機能性成分を増量させることが考えられる。機能性成分を増量させることは、機能を更に強める観点からも有効である。機能性成分を増量させる方法としては、機能性成分とマトリックス樹脂との親和性を高めるために、機能性成分に官能基を修飾したり、マトリックス樹脂の極性を高めたり、機能性成分を多孔質体に担持させたりする方法が挙げられる（例えば、特許文献４）。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開２００１－７３８８６号公報

特許文献2：特開２０００－２１２００５号公報

特許文献3：特開２００８－２０６４９２号公報

特許文献4：特開２０１２－６８６８号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 液体である機能性成分をマトリックス樹脂に展開するためには、マトリックス樹脂中の自由体積の空間に機能性成分を配置したり、樹脂間を広げ、その隙間の空間に機能性成分を配置したりすることが考えられる。この際に、機能性成分とマトリックス樹脂の両者の親和性が高いほど、機能性成分を配置しやすくなり、より多くの量の機能性成分をマトリックス樹脂中に展開できる。

[0005] しかしながら、成形体の形状を維持するためには、マトリックス樹脂による骨格が形成される必要があるため、マトリックス樹脂中の自由体積は樹脂の種類、温度による熱振動等により限られた大きさとなる。また、機能性成分によって樹脂間を広げようとしても、成形体の形状を維持するためには樹脂間の距離は所定の距離以下である必要があり、自由体積も上限が存在し、機能性成分を増量させることに限界がある。マトリックス樹脂が熱可塑性樹脂である場合には、通常、マトリックス樹脂の極性を調整したりして樹脂を改質しても、機能性成分の成形体全体に対する含有量は、２０質量％前後が限度である。よって、このような成形体は、徐放効果を長時間に亘り持続できない。

[0006] 機能性成分を担持する多孔質体としては、通常、ゼオライト等（シリカ、アルミナ、モレキュラーシーブ、活性炭等）が考えられる。このような多孔質体では、細孔内の表面状態が機能性成分との親和性を制御する自由度が低く、多くの機能性成分を担持できない。このため、多孔質体を用いる方法よりも、マトリックス樹脂の改質をする方法が有効であるようである。なお、機能性成分は、種々あり、その機能性成分と高い親和性を有するマトリックス樹脂はそれぞれ異なる。しかしながら、耐用温度、強度、材料単価等の使用時に要求される性能、価格に応じて、マトリックス樹脂の選択は限られる。このように、機能性成分との親和性を考慮した成形体の素材設計は極めて困難である。

[0007] したがって、本発明の目的は、優れた徐放効果を長期間に亘り持続できる機能徐放性組成物及び成形体を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意研究を重ねた結果、特定の機能徐放性液体と、特定の多孔性配位高分子とを含有するフィラーと、マトリックス樹脂とを組み合わせると、得られる機能徐放性組成物は、上記課題を解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0009] すなわち、本発明は以下の通りである。

（１）

機能徐放性液体と、金属イオン及び有機配位子を有し、９００m^2／ｇ以上の比表面積を有する多孔性配位高分子と、マトリックス樹脂とを含む機能徐放性組成物。

（２）

前記機能徐放性液体が、６００以下の分子量、１０℃以上の融点を有する（１）の機能徐放性組成物。

（３）

前記多孔性配位高分子の平均細孔径が、前記機能徐放性液体の分子径以上である（１）又は（２）の機能徐放性組成物。

（４）

１０ＭＰａ以上圧縮した時の液体成分の表面濃度が１．０ｍｇ／ｃm^2未満である（１）～（３）のいずれかに記載の機能徐放性組成物。

（５）

（１）～（４）のいずれかの機能徐放性組成物の成形体。

発明の効果

[0010] 本発明によれば、優れた徐放効果を長期間に亘り持続できる機能徐放性組成物及び成形体を提供可能である。

図面の簡単な説明

[0011] [図1]実施例１～４、２１における、機能徐放性複合成形体中の機能徐放性液体の含有濃度と、機能徐放性複合成形体の表面量の関係を示す図である。

[図2]実施例５～８における、機能徐放性複合成形体中の機能徐放性液体の含

有濃度と、機能徐放性複合成形体の表面量の関係を示す図である。

[図3]実施例９～１２における、機能徐放性複合成形体中の機能徐放性液体の含有濃度と、機能徐放性複合成形体の表面量の関係を示す図である。

[図4]実施例１３～１６における、機能徐放性複合成形体中の機能徐放性液体の含有濃度と、機能徐放性複合成形体の表面量の関係を示す図である。

[図5]実施例１７～２０における、機能徐放性複合成形体中の機能徐放性液体の含有濃度と、機能徐放性複合成形体の表面量の関係を示す図である。

[図6]比較例１～５における、機能徐放性複合成形体中の機能徐放性液体の含有濃度と、機能徐放性複合成形体の表面量の関係を示す図である。

発明を実施するための形態

[0012] 以下、本発明を実施するための形態(以下、単に「本実施形態」という)を、必要に応じて図面を参照しつつ説明する。本実施形態は、本発明を説明するための例示であり、本発明はその実施の形態のみに限定されるものではない。

[0013] [機能徐放性組成物]

本実施形態の機能徐放性組成物は、機能徐放性液体と、金属イオン及び有機配位子を有し、９００m^2／ｇ以上の比表面積を有する多孔性配位高分子と、マトリックス樹脂とを含む。本実施形態の機能徐放性組成物は、機能徐放性液体と、多孔性配位高分子と、マトリックス樹脂とを組み合わせることにより、優れた徐放効果を長期間に亘り持続できる。このため、本実施形態の機能徐放性組成物は、製品の性能向上、メンテナンス頻度の削減によるコスト削減等の利点を備える。

[0014] (機能徐放性液体)

機能徐放性液体における「機能徐放性」としては、例えば、小動物防除機能、植物の成長を制御する機能、抗菌機能、防カビ機能、樹脂に可塑性能を付与する機能、摺動機能、自己修復機能、触媒機能、医療機能等の機能を有し、徐放性を有する性質をいう。機能徐放性液体は、機能徐放性を有する液体成分であってもよく、機能徐放性を有する固体成分を液状化した形態であ

ってもよく、機能徐放性を有する固体成分を溶媒に溶解させることにより液状化した形態であってもよい。

[0015] 小動物防除機能を有する機能性液体としては、例えば、各種の農業害虫、衛生害虫その他の昆虫類、蜘蛛類、ダニ類、鼠等の小動物の防除活性を有する薬剤又は薬剤を溶媒に溶解させた液状の形態（以下、「小動物防除薬剤」ともいう。）であればよく、例えば、小動物忌避活性を有する化合物、殺虫活性、殺ダニ活性、殺蜘蛛活性若しくは殺鼠活性等の殺小動物活性を有する化合物、小動物の摂食阻害活性を有する化合物、及び小動物の成長コントロール活性を有する化合物が挙げられる。

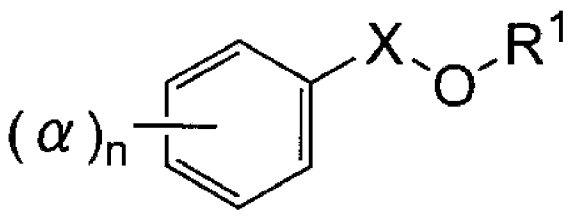
[0016] 小動物防除薬剤の具体例としては、ブロフラニリド等のメタジアミド系殺虫剤、イカリジン等のピペリジン系殺虫剤、イミダクロプリド等のクロロニコチニル系殺虫剤、シラフルオフェン等のケイ素原子を有するネオフィルラジカルからなる化合物、ベンフラカルブ、アラニカルブ、メトキシジアゾン、カルボスファン、フェノブカルブ、カルバリル、メソミル、プロポクサー、フェノキシカルブ等のカーバメート系化合物、ピレトリン、アレスリン、ｄｌ，ｄ－Ｔ８０－アレスリン、ｄ－Ｔ８０－レスメトリン、バイオアレスリン、ｄ－Ｔ８０－フタルスリン、フタルスリン、レスメトリン、フラメトリン、プロパスリン、ペルメトリン、アクリナトリン、エトフェンプロックス、トラロメトリン、フェノトリン、ｄ－フェノトリン、フェンバレレート、エンペントリン、プラレトリン、テフルスリン、ベンフルスリン、トランスフルトリン、メトフルトリン等のピレスロイド系化合物、ジクロロボス、フェニトロチオン、ダイアジノン、マラソン、プロモフォス、フェンチオン、トリクロルホン、ナレド、テメホス、フェンクロホス、クロルピリホスメチル、シアホス、カルクロホス、アザメチホス、ピリダフェンチオン、プロペタンホス、クロルピリホス等の有機リン系化合物及びこれらの異性体、誘導体、類縁体等が挙げられる。また、小動物の成長コントロール活性を有する化合物としては、例えば、メトプレン、ピリプロキシフェン、キノプレン、ハイドロプレン、デオヘノラン、ＮＣ－１７０、フルフェノクスロン、

ジフルベンズロン、ルフェヌロン、クロルフルアズロン等が挙げられる。殺小動物活性を有する化合物としては、例えば、ケルセン、クロルフェナビル、デブフェンピラドピリダベン、ミルベメクチン、フェンピロキシメート等の殺ダニ剤、シリロシド、ノルボマイド、リン化亜鉛、硫酸タリウム、黄リン、アンツー、ワルファリン、エンドサイド、クマリン、クマテトラリン、プロマジオロン、ディフェチアロン等の殺鼠剤が挙げられる。また、小動物防除薬剤としては、例えば、タイワンヒノキ、アスナロ、ヒノキアスナロ（青森ヒバ）等に含まれるヒノキチオール、ハーブやヒノキに含まれるカジノール誘導体（α－カジノール、Ｔ－カジノール）、クローブ、ナツメグ、コリアンダー、クミン等の香油植物に多く含まれるゲラニオール、ピネン、カリオフィレン、ボルネオール、オイゲノール、オギスギ等の小動物防除性を有する公知の香油等の天然由来の薬剤が挙げられる。また、小動物防除薬剤としては、誘引効果、交信阻害効果等を有する昆虫などのフェロモン剤も用いられる。フェロモン剤としては、例えば、信越化学工業製品の「コンフューザーＲ」、「コンフューザーＡＡ」、「コンフューザーＮ」、「コンフューザーＭＭ」、「ハマキコン－Ｎ」、「スカシバコンＬ」、「シンクイコン－Ｌ」、「ナシヒメコン」、「ボクトウコン－Ｈ」、「ヘタムシコン」等の果樹類に用いられるフェロモン剤、信越化学工業製品の「コンフューザーＶ」、「ヨトウコン－Ｈ」、「ヨトウコン－Ｓ」、「コナガコン－プラス」、「信越コナガコン」等の野菜類に用いられるフェロモン剤、信越化学工業製品の「ハマキコン－Ｎ」等の茶類に用いられるフェロモン剤、信越化学工業製品の「オキメラコン」、「ヨトウコン－Ｉ」、「ケブカコン」等のサトウキビに用いられるフェロモン剤が挙げられる。

[0017] 更に小動物防除薬剤は、スズメバチ科ハチの忌避剤であってもよく、スズメバチ科ハチの忌避剤は、例えば、下記一般式（Ｉ）で表される化合物を有効成分として含む。

[0018]

[化1]



（Ｉ）

[0019] 式（Ｉ）中、Ｒ[1]は、水素原子、置換基βを有していてもよいＣ$_{1-4}$アルキル基、置換基βを有していてもよいＣ$_{2-4}$アルケニル基、又は置換基βを有していてもよいＣ$_{1-4}$アルキル－カルボニル基を示し、Ｘは、置換基γを有していてもよいＣ$_{1-4}$アルキレン基、又は置換基γを有していてもよいＣ$_{2-4}$アルケニレン基を示し、αは、置換基δを有していてもよいＣ$_{1-4}$アルキル基、置換基δを有していてもよいＣ$_{2-4}$アルケニル基、置換基δを有していてもよいＣ$_{1-4}$アルコキシ基、置換基δを有していてもよいＣ$_{1-4}$アルキル－カルボニル基、置換基δを有していてもよいＣ$_{1-4}$アルキル－カルボニルオキシ基、ハロゲノ基及び水酸基から選択される１以上の置換基を示す。置換基β、γ及びδは、それぞれ独立して、Ｃ$_{1-4}$アルコキシ基、Ｃ$_{1-4}$アルキル－カルボニル基、Ｃ$_{1-4}$アルキル－カルボニルオキシ基、ハロゲノ基及び水酸基からなる群より選択される１以上の置換基を示し、ｎは、０以上、５以下の整数を示す。

[0020] スズメバチ科の忌避剤の更なる具体例としては、例えば、特開２０１７－８８５４８号公報に記載された忌避剤が挙げられる。

[0021] 植物の成長を制御する機能徐放性液体としては、例えば、植物ホルモンが挙げられる。植物ホルモンとしては、例えば、インドール－３－酢酸、２，４－ジクロロフェノキシ酢酸、２，６－ジクロロ安息香酸、ナフタレン酢酸等の天然又は合成オーキシン類、ゼアチン、カイネチン、４－ベンジルアミノベンズイミダゾール、ベンジルアデニン等の天然又は合成サイトカイニン類；ジベレリン類；ブラシノライド、カスタステロン等のブラシノステロイド類、アブシシン酸等が挙げられる。これらの植物ホルモンは、１種を単独で、又は２種以上を組み合わせて用いられる。

[0022] 抗菌機能、防カビ機能を有する機能徐放性液体としては、例えば、徐放性

を有する公知の抗菌剤及び徐放性を有する防カビ剤が挙げられる。抗菌剤及び防カビ剤としては、例えば、ヒノキチオール系化合物、キトサン系化合物、カラシ抽出系化合物、ユーカリ系化合物等の天然有機系化合物、合成有機系化合物、有機複合剤等が挙げられる。これらの化合物は、１種を単独で、又は２種以上を組み合わせて用いられる。これらの中でも、菌及びカビの双方に有効に作用する観点から、合成有機系化合物が好ましい。合成有機系化合物としては、例えば、含窒素複素環系化合物、アルデヒド系化合物、フェノール系化合物、ビグアナイド系化合物、ニトリル系化合物、ハロゲン系化合物、アニリド系化合物、ジスルフィド系化合物、チオカーバメート系化合物、有機ケイ素四級アンモニウム塩系化合物、四級アンモニウム塩系化合物、アミノ酸系化合物、有機金属系化合物、アルコール系化合物、カルボン酸系化合物、エステル系化合物、チアゾリン系化合物、カチオン性ポリマー等が挙げられる。これらの合成有機系化合物は、１種を単独で、又は２種以上を組み合わせて用いられる。

[0023] 樹脂に可塑性能を付与する機能を有する機能徐放性液体としては、例えば、カルボン酸エステル誘導体、リン酸エステル誘導体、ホスファゼン誘導体、カルボン酸アミド誘導体、スルホン酸エステル誘導体、及びスルホンアミド誘導体が挙げられる。可塑剤は、１種を単独で、又は２種以上を組み合わせて用いられる。

[0024] カルボン酸エステル誘導体としては、例えば、水酸基、ニトロ基、アミノ基、エポキシ基、ハロゲン等で置換されてもよい各種カルボン酸のアルキルエステル、及び芳香族エステルが挙げられる。カルボン酸エステル誘導体の具体例としては、例えば、ジメチルフタレート、ジエチルフタレート、ジ－ｎ－オクチルフタレート、ジフェニルフタレート、ベンジルフタレート、ジメトキシエチルフタレート、４，５－エポキシヘキサヒドロフタル酸ジ（２－エチルヘキシル）、４，５－エポキシシクロヘキサヒドロフタル酸ジ（７，８－エポキシ－２－オクテニル）、４，５－エポキシシクロヘキサヒドロフタル酸ジ（９，１０－エポキシオクタデシル）、４，５－エポキシシクロ

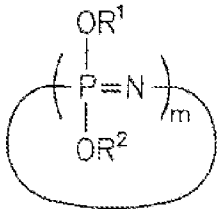
ヘキサヒドロフタル酸ジ（１０，１１－エポキシウンデシル）、フタル酸ジ（テトラヒドロフルフリロキシエチル）、各種フタル酸混合エステル及びフタル酸混合エステルのエチレンオキシド付加物等のフタル酸エステル誘導体、イソフタル酸エステル誘導体、テトラヒドロフタル酸エステル誘導体、パラヒドロキシ安息香酸ブトキシエチル、パラヒドロキシ安息香酸シクロヘキシロキシエトキシエトキシエチル、パラヒドロキシ安息香酸２－エチルヘキシル、ω－アルキルオリゴエチレンオキシドのヒドロキシ安息香酸エステル、ウンデシルグリシジルエーテルのパラヒドロキシ安息香酸付加物等の安息香酸エステル誘導体、チオジプロピオン酸ジ（テトラヒドロフルフリロキシエチル）等のプロピオン酸エステル誘導体、アジピン酸エステル誘導体、アゼライン酸エステル誘導体、セバシン酸エステル誘導体、ドデカン－２－酸エステル誘導体、マレイン酸エステル誘導体、フマル酸エステル誘導体、トリメット酸エステル誘導体、クエン酸トリ（ブトキシエトキシエチル）、クエン酸ジｎ－オクチル－モノ（ノニルフェノキシエチル）、クエン酸トリｎ－オクチル、クエン酸ジオクチル（テトラヒドロフルフリロキシエチル）、クエン酸トリミリスチル、トリエチルシトレート等のクエン酸エステル誘導体、イタコン酸エステル誘導体、オレイン酸テトラヒドロフルフリル等のオレイン酸エステル誘導体、リシノール酸エステル誘導体、乳酸（ｎ－ブチル）、乳酸（２－エチルヘキシル）、乳酸（ｎ－ブトキシエトキシエチル）、乳酸（ｎ－オクトキシエトキシエチル）、乳酸（ｎ－デシルオキシエトキシエチル）等の乳酸エステル誘導体、酒石酸ジ（オクトキシエトキシエチル）、酒石酸（ｎ－オクチル）（ノニルフェノキシエチル）、酒石酸ジ（オクトキシエトキシエチル）等の酒石酸エステル誘導体、リンゴ酸ジブトキシエチル、リンゴ酸ジ（ｎ－ブトキシエトキシエチル）、リンゴ酸ジステアリル、リンゴ酸オクタデセニルイソノニル等のリンゴ酸エステル誘導体、ベンジルグリシジルエーテルのサリチル酸付加物等のサリチル酸エステル誘導体が挙げられる。

[0025] リン酸エステル誘導体としては、例えば、トリメチルホスフェート、トリ

エチルホスフェート、トリブチルホスフェート、トリ－（２－エチルヘキシル）ホスフェート、２－エチルヘキシル・ジフェニル・ホスフェート、トリブトキシエチルホスフェート、トリフェニルホスフェート、クレジルジフェニルホスフェート、イソデシル・ジフェニル・ホスフェート、トリクレジル・ホスフェート、トリキシレニル・ホスフェート、トリ（クロロエチル）ホスフェート、キシレニル・ジフェニルホスフェート、及びテトラキス（２，４－ジ第三ブチルフェニル）４，４’－ビフェニレンジホスフォネートが挙げられる。

[0026] ホスファゼン誘導体としては、例えば、下記一般式（１）で表される環状ホスファゼン化合物が挙げられる。

[0027] [化2]

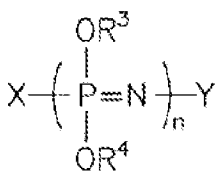


(1)

[0028] 式中、ｍは３～２５の整数を示し、R^1、及びR^2は互いに同一であっても異なっていてもよく、炭素数１～８のアルキル基、あるいは、炭素数１～８のアルキル基及び／又はアリル基で置換されていてもよいフェニル基を示す。ホスファゼン誘導体は、式（１）で表される直鎖状ホスファゼン化合物の１種類で構成されてもよく、２種類以上の混合物の形態で構成されていてもよい。

[0029] ホスファゼン誘導体としては、例えば、下記一般式（２）で表される直鎖状ホスファゼン化合物も挙げられる。

[0030] [化3]



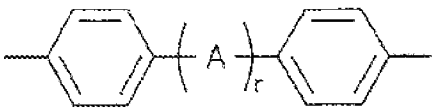
(2)

[0031] 式中、ｎは３～１０００の整数を示し、R^3、及びR^4は互いに同一であって

も異なっていてもよく、炭素数１～８のアルキル基、あるいは、炭素数１～８のアルキル基及び／又はアリル基で置換されていてもよいフェニル基を示し、Ｘは、基－Ｎ＝Ｐ（ＯＲ^{3}）$_{3}$、基－Ｎ＝Ｐ（ＯＲ^{4}）$_{3}$、基－Ｎ＝Ｐ（Ｏ）（ＯＲ^{3}）又は基－Ｎ＝Ｐ（Ｏ）（ＯＲ^{4}）を示し、Ｙは、基－Ｐ（ＯＲ^{3}）$_{4}$、基－Ｐ（ＯＲ^{4}）$_{4}$、基－Ｐ（Ｏ）（ＯＲ^{3}）$_{2}$又は基－Ｐ（Ｏ）（ＯＲ^{4}）$_{2}$を示す。ホスファゼン誘導体は、式（２）で表される直鎖状ホスファゼン化合物の１種類で構成されてもよく、２種類以上の混合物の形態で構成されていてもよい。

[0032] ホスファゼン誘導体としては、下記式（３）で表される架橋基により、式（１）又は式（２）中のＲ^{1}、Ｒ^{2}、Ｒ^{3}、Ｒ^{4}からアルキル基が脱離し、２つの酸素原子間が架橋されたホスファゼン化合物であってもよい。

[0033] [化4]



(3)

[0034] 式中、ｒは、０又は１を示し、Ａは基－ＳＯ$_{2}$－、－Ｓ－、－Ｏ－又は－Ｃ（ＣＨ$_{3}$）$_{2}$－を示す。

[0035] 式（１）で表わされる環状ホスファゼン化合物の具体例としては、ヘキサフェノキシシクロトリホスファゼン、オクタフェノキシシクロテトラホスファゼン、デカフェノキシシクロペンタホスファゼン、ヘキサプロポキシシクロトリホスファゼン、オクタプロポキシキシシクロテトラホスファゼン、及びデカプロポキシシクロペンタホスファゼンが挙げられる。また、式（２）で表わされる直鎖状ホスファゼン化合物の具体例としては、鎖状ジクロルホスファゼンにプロポキシ基及び／又はフェノキシ基を置換した鎖状ホスファゼン化合物が挙げられる。式（３）で表される架橋構造の具体例としては、４，４’－スルホニルジフェニレン（ビスフェノール－Ｓ残基）、４，４’－オキシジフェニレン基、４，４’－チオジフェニレン基、及び４，４’－ジフェニレン基が挙げられる。これらのホスファゼン誘導体は、任意の位置にアミノ基及び／又はフェニルアミノ基が置換したものであってもよい。これら

のホスファゼン誘導体は、１種を単独で、又は２種以上を組み合わせて用いられる。

[0036] カルボン酸アミド誘導体としては、例えば、Ｎ－シクロヘキシル安息香酸アミド等を例示できる。また、スルホンアミド誘導体としては、Ｎ－メチル－ベンゼンスルホンアミド、Ｎ－エチル－ベンゼンスルホンアミド、Ｎ－ブチル－ベンゼンスルホンアミド、Ｎ－シクロヘキシル－ベンゼンスルホンアミド、Ｎ－エチル－Ｐ－トルエンスルホンアミド、Ｎ－ブチル－トルエンスルホンアミド、Ｎ－シクロヘキシル－トルエンスルホンアミドが挙げられる。

[0037] スルホン酸エステル誘導体としては、例えば、ベンゼンスルホン酸エチルが挙げられる。

[0038] スルホン酸アミド誘導体としては、例えば、メタンスルホン酸２－メトキシエチル、メタンスルホン酸２，２，２－トリフルオロエチル、ｐ－トルエンスルホン酸メチル、ｐ－トルエンスルホン酸エチル、ｐ－トルエンスルホン酸ｎ－プロピル等が挙げられる。

[0039] 摺動機能を有する機能徐放性液体としては、例えば、徐放性を有する公知の摺動剤が挙げられる。公知の摺動剤としては、例えば、鉱油、合成油、ワックス、パラフィン等が挙げられる。

[0040] 自己修復機能を有する機能徐放性液体としては、例えば、徐放性を有する公知の自己修復剤が挙げられる。公知の自己修復剤としては、ポリロタキサン、自己治癒クリヤー（ナトコ商事株式会社製品）等が挙げられる。

[0041] 触媒機能を有する機能徐放性液体としては、例えば、徐放性を有する公知の触媒が挙げられる。公知の触媒としては、イオン液体、三級アミン（例えば、東ソー株式会社製品の「ＰＺＥＴＡ」等）、有機チタン化合物（例えば、テトラ－ｉ－プロポキシチタン、テトラ－ｎ－ブトキシチタン、テトラキス（２－エチルヘキシルオキシン）チタン（例えば、日本曹達株式会社製品）等が挙げられる。

[0042] 医療機能を有する機能徐放性液体としては、例えば、徐放性を有する公知

の医療品が挙げられる。

[0043] 溶媒は、マトリックス樹脂に対する相溶性が高く、成形体の形状安定性に対して影響が小さい溶媒であることが好ましい。溶媒としては、水、メタノール、エタノール、ジメチルスルホキシド、ポリエチレングリコール、スルホンアミド誘導体、スルホン酸エステル誘導体、カルボン酸アミド誘導体、カルボン酸エステル誘導体、リン酸エステル誘導体、炭化水素系化合物、及びシリコーン系化合物が挙げられる。スルホンアミド誘導体としては、例えば、Ｎ－メチル－ベンゼンスルホンアミド、Ｎ－エチル－ベンゼンスルホンアミド、Ｎ－ブチル－ベンゼンスルホンアミド、Ｎ－シクロヘキシル－ベンゼンスルホンアミド、Ｎ－エチル－Ｐ－トルエンスルホンアミド、Ｎ－ブチル－トルエンスルホンアミド、及びＮ－シクロヘキシル－トルエンスルホンアミドが挙げられる。スルホン酸エステル誘導体としては、例えば、メタンスルホン酸２－メトキシエチル、メタンスルホン酸２，２，２－トリフルオロエチル、ｐ－トルエンスルホン酸メチル、ｐ－トルエンスルホン酸エチル、ｐ－トルエンスルホン酸ｎ－プロピル等が挙げられる。カルボン酸アミド誘導体としては、例えば、Ｎ－シクロヘキシル安息香酸アミドが挙げられる。カルボン酸エステル誘導体としては、例えば、ジメチルフタレート、ジエチルフタレート、ジ－ｎ－オクチルフタレート、ジフェニルフタレート、ベンジルフタレート、ジメトキシエチルフタレート、４，５－エポキシヘキサヒドロフタル酸ジ（２－エチルヘキシル）、４，５－エポキシシクロヘキサヒドロフタル酸ジ（７，８－エポキシ－２－オクテニル)、４，５－エポキシシクロヘキサヒドロフタル酸ジ（９，１０－エポキシオクタデシル）、４，５－エポキシシクロヘキサヒドロフタル酸ジ（１０，１１－エポキシウンデシル）、フタル酸ジ（テトラヒドロフルフリロキシエチル）、各種フタル酸混合エステル及びフタル酸混合エステルのエチレンオキシド付加物等のフタル酸エステル誘導体、イソフタル酸エステル誘導体、テトラヒドロフタル酸エステル誘導体、パラヒドロキシ安息香酸ブトキシエチル、パラヒドロキシ安息香酸シクロヘキシロキシエトキシエトキシエチル、パラヒドロキシ安息

香酸２－エチルヘキシル、ω－アルキルオリゴエチレンオキシドのヒドロキシ安息香酸エステル、ウンデシルグリシジルエーテルのパラヒドロキシ安息香酸付加物等の安息香酸エステル誘導体、チオジプロピオン酸ジ（テトラヒドロフルフリロキシエチル）等のプロピオン酸エステル誘導体、アジピン酸エステル誘導体、アゼライン酸エステル誘導体、セバシン酸エステル誘導体、ドデカン－２－酸エステル誘導体、マレイン酸エステル誘導体、フマル酸エステル誘導体、トリメット酸エステル誘導体、クエン酸トリ（ブトキシエトキシエチル）、クエン酸ジｎ－オクチル-モノ（ノニルフェノキシエチル）、クエン酸トリｎ－オクチル、クエン酸ジオクチル（テトラヒドロフルフリロキシエチル）、クエン酸トリミリスチル、トリエチルシトレート等のクエン酸エステル誘導体、イタコン酸エステル誘導体、オレイン酸テトラヒドロフルフリル等のオレイン酸エステル誘導体、リシノール酸エステル誘導体、乳酸（ｎ－ブチル）、乳酸（２－エチルヘキシル）、乳酸（ｎ－ブトキシエトキシエチル）、乳酸（ｎ－オクトキシエトキシエチル）、乳酸（ｎ－デシルオキシエトキシエチル）等の乳酸エステル誘導体、酒石酸ジ（オクトキシエトキシエチル）、酒石酸（ｎ－オクチル）（ノニルフェノキシエチル）、酒石酸ジ（オクトキシエトキシエチル）等の酒石酸エステル誘導体、リンゴ酸ジブトキシエチル、リンゴ酸ジ（ｎ－ブトキシエトキシエチル）、リンゴ酸ジステアリル、リンゴ酸オクタデセニルイソノニル等のリンゴ酸エステル誘導体、ベンジルグリシジルエーテルのサリチル酸付加物等のサリチル酸エステル誘導体が挙げられる。リン酸エステル誘導体としては、例えば、トリメチルホスフェート、トリエチルホスフェート、トリブチルホスフェート、トリ－（２－エチルヘキシル）ホスフェート、２－エチルヘキシル・ジフェニル・ホスフェート、トリブトキシエチルホスフェート、トリフェニルホスフェート、クレジルジフェニルホスフェート、イソデシル・ジフェニル・ホスフェート、トリクレジル・ホスフェート、トリキシレニル・ホスフェート、トリ（クロロエチル）ホスフェート、キシレニル・ジフェニルホスフェート、テトラキス（２，４－ジ第三ブチルフェニル）４，４’－ビフェニレンジ

ホスフォネートが挙げられる。炭化水素系化合物としては、例えば、鎖式飽和炭化水素化合物（パラフィン類）、鎖式不飽和炭化水素化合物（オレフィン類）、脂環式炭化水素化合物（シクロアルカン、シクロアルケン、シクロアルキン等）、及び芳香族炭化水素化合物が挙げられる。これらの炭化水素化合物の中でも、分子量が３３０～５３０であり、動粘度が１０～１２０ｃＳｔのパラフィンオイルが特に好適に用いられる。分子量が３３０～５３０の炭化水素化合物は、小動物の体孔から小動物の体内に容易に侵入する観点から好ましい。また、動粘度が１０～１２０ｃＳｔの炭化水素化合物は、小動物の体表面に付着しやすい観点から好ましい。更に、パラフィンオイルを用いるのは、安価かつ容易に入手できる観点から好ましい。シリコーン系化合物としては、例えば、ジメチルシリコーン、メチルフェニルシリコーン、ポリエーテル変性シリコーン、長鎖アルキル変性シリコーン、及び高級脂肪酸エステル変性シリコーンが挙げられる。

[0044] 機能徐放性液体は、マトリックス樹脂の加工温度の制約の観点から、６００以下の分子量、１０℃以上の融点を有することが好ましい。

[0045] （多孔性配位高分子）

多孔性配位高分子は、金属イオンと有機配位子とを含有する多孔性材料である。多孔性配位高分子は、例えば、金属イオンが有機配位子に吸着した形態を有している。有機配位子は、例えば、金属イオンと結合可能な有機配位子である。多孔性配位高分子は、ＭＯＦ（Ｍｅｔａｌ－Ｏｒｇａｎｉｃ Ｆｒａｍｅｗｏｒｋ）又はＰＣＰ（Ｐｏｒｏｕｓ Ｃｏｏｒｄｉｎａｔｉｏｎ Ｐｏｌｙｍｅｒ）ともいう。

[0046] 多孔性配位高分子は、例えば、マクロ孔又はメソ孔領域の細孔を多数有し、細孔径（細孔の直径）が結晶構造に由来して決定されるために均一な細孔径を有する。

[0047] 多孔性配位高分子は、有機配位子の長さ、化学構造による親和性を制御することにより、機能性液体成分の保持力を高くするとともに、細密充填化することができる。同様の観点から、多孔性配位高分子の平均細孔径は、機能

徐放性液体の分子径以上であることが好ましく、多孔性配位高分子のＢＥＴ法による比表面積は、９００m^2／ｇ以上（例えば、９００m^2／ｇ以上１０４００m^2／ｇ以下）であり、１０００m^2／ｇ以上であることが好ましく、１２００m^2／ｇ以上であることが更に好ましく、１５００m^2／ｇ以上であることが特に好ましい。また、ＢＥＴ法による比表面積が９００m^2／ｇ以上であると、マトリックス樹脂に機能性液体成分を直接練り込み、複合成形体を形成する場合に比べ、多孔性配位高分子は、機能性液体をマトリックス樹脂により有効に展開することができる。尚、多孔性配位高分子の平均細孔径は、ＢＥＴ法により求められる。また、機能徐放性液体の分子径は、オープンソースの「Ｍｏｌ－ｖｉｅｗ」を用いて以下の手順により求められる。まず、分子を描画し、分子の長径及び短径をソフト内で測定する。ここで、長径は、直線状に分子を伸ばした場合の長い部分の分枝間距離、短径は、同様にした場合の短い部分の分枝間距離とする。ここで、上記「分子径」は、上記短径に相当する。

[0048] 多孔性配位高分子の平均細孔径は、機能徐放性液体をマトリックス樹脂により有効に展開でき、長期徐放性を一層向上させる観点から、０．１～５．０ｎｍであることが好ましく、０．５～３．０ｎｍであることがより好ましい。

[0049] （金属イオン）

金属イオンとしては、例えば、銀イオン、アルミニウムイオン、ベリリウムイオン、カルシウムイオン、カドミニウムイオン、セリウムイオン、コバルトイオン、クロムイオン、銅イオン、ジスプロシウムイオン、エルビウムイオン、ユウロピウムイオン、鉄イオン、ガリウムイオン、ガドリニウムイオン、ホルミウムイオン、インジウムイオン、リチウムイオン、マグネシウムイオン、マンガンイオン、モリブテンイオン、ネオジムイオン、ニッケルイオン、スカンジウムイオン、サマリウムイオン、ストロンチウムイオン、テルビウムイオン、ツリウムイオン、バナジウムイオン、タングステンイオン、イットリウムイオン、イッテルビウムイオン、亜鉛イオン、及びジルコ

ニウムイオンなどが挙げられる。これらの金属イオンは、１種を単独で、又は２種以上を組み合わせて用いられる。これらの金属イオンは、塩等の化合物の形態で多孔性配位高分子に存在していてもよい。

[0050]（有機配位子）

有機配位子は、金属イオンに架橋可能な架橋配位子であることが好ましい。架橋配位子としては、例えば、２－メチルイミダゾール、テレフタル酸、２，５－ジヒドロキシテレフタル酸、１，４－ナフタレンジカルボン酸、１，３，５－ベンゼントリカルボン酸、４，４’－ビフェニルジカルボン酸、４，４’’－ｐ－テルフェニルジカルボン酸、イソフタル酸、１，３，５－ベンゼントリカルボキシル酸、１，３，５－トリ－４－カルボキシルフェニルベンゼン、メチルイミダゾール、４，４’－ビフェニルジカルボキシ酸、フマル酸、ナフタレンジカルボン酸、ヘキサアザトリフェニレン、２，５－ジヒドロキシ安息香酸、、トリメシン酸、５－シアノ－ベンゼンジカルボン酸、５－エチル－１，３ベンゾジカルボン酸、テレフェニル－３，３’，５，５’－テトラカルボン酸、９，１０－アントラセンジカルボン酸、イミダゾール、２，２’－ジアミノ－４，４’－スチルベンジカルボン酸、２，２’－ジニトロ－スチルベンジカルボン酸、２，５－ジヒドロキシテレフタル酸、３，３’，５，５’－テトラカルボキシジフェニルメタン、１，２，４，５－テトラキス（４－カルボキシフェニル）ベンゼン、４，４’，４’’－ｓ－トリアジン－２，４，６トレイル－三安息香酸、２－ヒドロキシテレフタル酸、ビフェニル－３，３’，５，５’－テトラカルボン酸、ビフェニル－３，４，５－トリカルボン酸、５－ブロモイソフタル酸、マロン酸等が挙げられる。

[0051] 機能徐放性組成物を製造する方法において、多孔性配位高分子の表面、及び／又は細孔内に付着したり、存在したりしている残渣物質を除去してから、多孔性配位高分子に機能徐放性液体を保持させることが望ましい。残渣物質が存在すると、多孔性配位高分子及び機能性液体を複合化する際、残渣物質によって細孔が狭められたり完全に塞がれたりして、機能性液体を多孔性配位高分子の細孔に注入しにくくなる虞がある。また、残渣物質が不純物と

して機能性液体に混入するため、機能徐放性液体の物性が変化して、求める効果が得られない虞がある。残渣物質を除去する方法としては、例えば溶剤で多孔性配位高分子を洗浄する方法等が挙げられる。洗浄に用いられる溶媒としては、例えば、水、メタノール、ＴＨＦ、及びＤＭＦが挙げられ、溶媒は、水、及び／又はメタノールであることが好ましい。溶媒が水及び／又はメタノールであると、溶媒の分子径が小さいため、溶媒が多孔性配位高分子の細孔内に容易に入り込み、細孔内の残渣物質を容易に除去できる。また、残渣物質を洗浄する工程において、溶剤に多孔性配位高分子を長時間浸漬してもよい。浸漬時間は、１２時間以上であることが好ましく、２４時間以上であることがより好ましい。未反応物質又は不純物を除去する方法としては、加熱処理によって残渣物質を脱離させる方法が挙げられる。未反応物質又は不純物が有機物であり、有機物を除去したい場合は、空気中又は酸素雰囲気中で加熱処理を行うことが好ましい。未反応物質又は不純物が揮発性物質であり、揮発性物質を除去したい場合は、真空加熱処理を行うことが好ましい。加熱温度は１００～３００℃であることが好ましい。溶剤による洗浄を行った後、加熱処理を行って溶剤を完全に除去する方法が好ましい。

[0052]（マトリックス樹脂）

マトリックス樹脂は、１種類又は２種類以上の樹脂を含む。樹脂としては、例えば、熱可塑性樹脂及び熱硬化性樹脂が挙げられる。熱可塑性樹脂としては、ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂、ポリ塩化ビニル樹脂、ポリ塩化ビニリデン樹脂、ポリ酢酸ビニル樹脂、ポリスチレン樹脂、ＡＳ樹脂、ＡＢＳ樹脂、メタクリル樹脂、ポリビニルアルコール樹脂、ＥＶＡ樹脂、ポリアミド樹脂、ポリアセタール樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリブチレンテレフタレート樹脂、フッ素樹脂、ポリフェニレンスルファイド樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリアリレート樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、ポリエーテルケトン樹脂、液晶ポリエステル樹脂、熱可塑性ポリイミド樹脂、及び熱可塑性ポリウレタン樹脂が挙げられる。熱硬化性樹脂とし

ては、エポキシ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、フェノール樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、アルキド樹脂、シリコーン樹脂、ポリイミド樹脂、ポリウレタン樹脂、ビニルエステル樹脂、ジアリルフタレート樹脂、フラン樹脂、ポリアミノビスマレイミド樹脂、カゼイン樹脂、エポキシアクリレート樹脂、ウレタンアクリレート樹脂、ポリウレア樹脂、ベンゾオキサジン樹脂、オキセタン樹脂、キシレン樹脂、ジシクロペンタジエン樹脂、及びエピスルフィド樹脂が挙げられる。

[0053] 多孔性配位高分子の含有量に対する機能徐放性液体の含有量の比率は、例えば、１．０～５．０であり、本発明の作用効果をより有効かつ確実に奏する観点から、１．５～３．０であることが好ましい。

[0054] 機能徐放性組成物中のマトリックス樹脂の含有量は、例えば、１０～９５質量％程度であってもよい。

[0055] （無機充填材）

機能徐放性組成物は、機械的物性が向上する観点から、無機充填材を含有してもよい。無機充填材としては、公知の無機充填材が用いられ、例えば、粒子状無機充填材、繊維状無機充填材、及び鱗片状又は板状無機充填材が挙げられる。粒子状無機充填材としては、例えば、ミクロンサイズを有する粒子状無機充填材であっても、ナノサイズを有する粒子状無機充填材であってもよい。ミクロンサイズを有する粒子状無機充填材としては、例えば、炭酸カルシウム粒子、シリカ粒子、ガラスビーズ、酸化チタン粒子、酸化亜鉛粒子、チタン酸カリウム粒子、チタニア粒子、単斜晶系チタニア粒子、リン酸カルシウム粒子、ワラストナイト、バーミキュライト、シラスバルーン、ガラスバルーン等が挙げられる。ナノサイズを有する粒子状無機充填材としては、例えば、ナノ酸化チタン、ナノシリカ、カーボンブラック、カーボンフィラー等が挙げられる。無機充填材は、１種を単独で、又は２種以上を組み合わせて用いられる。これらの中でも、粒子状無機充填材は、機能徐放性液体（特に小動物防除剤）の徐放性に一層優れる観点から、チタン酸カリウム粒子であることが好ましい。繊維状無機充填材は、成形体の外観に悪影響を

与えない観点から、０．０５～１０μｍの平均繊維径、及び３～１５０μｍの平均繊維長を有する繊維状無機充填材であることが好ましく、０．１～７μｍの平均繊維径、及び５～５０μｍの平均繊維長を有する繊維状無機充填材であることがより好ましい。繊維状無機充填材としては、例えば、ミクロンサイズを有する繊維状無機充填材であってもよく、ナノサイズを有する繊維状無機充填材であってもよい。ミクロンサイズを有する繊維状無機充填材としては、例えば、ガラス繊維、炭素繊維、石墨繊維、アラミド繊維、ビニロン繊維、ポリアミド繊維、ポリエステル繊維、木綿、麻繊維、ケナフ繊維、竹繊維、レーヨン、スチール繊維、アルミニウム繊維、石膏繊維、４チタン酸カリウム繊維、６チタン酸カリウム繊維、８チタン酸カリウム繊維、チタニア繊維、単斜晶系チタニア繊維、シリカ繊維、ワラストナイト、ゾノトライト等が挙げられる。ナノサイズを有する繊維状無機充填材としては、例えば、カーボンファイバー、カーボンナノチューブ、フラーレン、コットンフィブリル、窒化ケイ素ウイスカー、アルミナウイスカー、炭化ケイ素ウイスカー、ニッケルウイスカー等が挙げられる。これらの繊維状無機充填材は、１種を単独で、又は２種以上を組み合わせて用いられる。鱗片状又は板状無機充填材としては、例えば、ミクロンサイズを有する鱗片上又は板状無機充填材であっても、ナノサイズを有する鱗片状又は板状無機充填材であってもよい。ミクロンサイズを有する鱗片状又は板状無機充填材としては、例えば、タルク、カオリンクレイ、マイカ（合成マイカ又は天然マイカ）、ガラスフレーク、アラゴナイト、硫酸カルシウム、水酸化アルミニウム、チタン酸カリウム、チタン酸カリウムリチウム、チタン酸カリウムマグネシウム、セリサイト、板状アルミナ、窒化ホウ素等が挙げられる。ナノサイズを有する鱗片状又は板状無機充填材としては、例えば、有機化モンモリロナイト、膨潤性合成マイカ、黒鉛、グラファイト等が挙げられる。鱗片状無機充填材は、１種を単独で、又は２種以上を組み合わせて用いられる。無機充填材は、そのまま用いてもよく、樹脂との界面接着性を向上させたり、機械的物性を一層向上させたりする観点から、アミノシラン、エポキシシラン、アクリ

ルシラン等のシランカップリング剤又はチタネートカップリング剤等の表面処理剤で表面処理した形態で用いてもよい。

[0056] （耐候性付与添加剤）

機能徐放性組成物は、屋外放置における耐候性を一層向上させる観点から、耐候性付与添加剤を含有してもよい。耐候性付与添加剤としては、ヒンダードフェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤、紫外線吸収性光安定剤、ヒンダードアミン系光安定剤、及びカーボンからなる群より選択される１種が挙げられる。

[0057] ヒンダードフェノール系酸化防止剤としては、例えば、ペンタエリスリトールテトラキス［３－（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート］、Ｎ，Ｎ’－ヘキサン－１，６－ジイルビス［３－（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニルプロピオンアミド）］、ビス－［３，３－ビス－（４’－ハイドロキシ－３’－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－ブタノイックアシッド］－グリコールエステル、トリス（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシベンジル）イソシアヌレート、チオジエチレンビス［３－（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート］、オクタデシル－３－（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート、３，３’，３’’，５，５’，５’’－ヘキサ－ｔｅｒｔ－ブチル－ａ，ａ’，ａ’’－（メチレン－２，４，６－トリイル）トリ－ｐ－クレゾール、ヘキサメチレンビス［３－（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート］、テトラキス［メチレン－３－（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート］メタン、及びメチレン－３－（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネートが挙げられる。

[0058] リン系酸化防止剤としては、例えば、トリス（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）フォスファイト、トリス［２－［［２，４，８，１０－テトラ－ｔｅｒｔ－ブチルベンゾ［ｄ，ｆ］［１，３，２］ジオキサフォスフェ

フィン－６－イル］オキシ］エチル］アミン、テトラキス（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）［１，１－ビフェニル］－４，４’－ジイルビスホスフォナイト、ジステアリルペンタエリスリトールジホスファイト、ビス（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）ペンタエリスリトールホスファイト、ビス（２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－フェニル）ペンタエリスリトールホスファイト、及びビス（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）ペンタエリストールジフォスファイトが挙げられる。

[0059] 紫外線吸収剤としては、例えば、２－（２Ｈ－ベンゾトリアゾール－２－イル）－４，６－ビス（１－メチル－１－フェニルエチル）フェノール、２－（２Ｈ－ベンゾトリアゾール－２－イル）－４，６－ジ－ｔｅｒｔ－ペンチルフェノール、プロパンジオックアシッド，及び［（４－メトキシフェニル）－メチレン］－ジメチルエステルが挙げられる。

[0060] ヒンダードアミン系光安定剤としては、例えば、Ｎ，Ｎ’，Ｎ’’，Ｎ’’’－テトラキス－（４，６－ビス－（ブチル－（Ｎメチル－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン－４－イル）アミノ）－トリアジン－２－イル）－４，７－ジアザデカン－１，１０－ジアミン、ポリ［（６－（１，１，３，３－テトラメチルブチル）アミノ－１，３，５－トリアジン－２，４－ジイル）（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）イミノ］ヘキサメチレン（（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）イミノ））、ビス（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）セバケート、２，２，４，４－テトラメチル－７－オキサ－３，２０－ジアザ－ジスピロ－［５．１．１１．２］－ヘンエイコサン－２１－オン、プロパン二酸，［（４－メトキシフェニル）－メチレン］－，ビス（１，２，２，６，６－ペンタメチル－４－ピペリジニル）エステル、１，３－ベンゼンジカルボキシアミド、Ｎ，Ｎ－ビス（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジニル）、及び２－エチル，２’－エトキシ－オキサラニリドが挙げられる。

[0061] 耐候性付与添加剤は、１種を単独で、又は２種以上を組み合わせて用いられる。これらの中でも、耐候性付与添加剤は、ペンタエリスリトールテトラ

キス［３－（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート］、Ｎ，Ｎ’－ヘキサン－１，６－ジイルビス［３－（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニルプロピオンアミド）］、トリス（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシベンジル）イソシアヌレート、トリス（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）フォスファイト、テトラキス（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）［１，１－ビフェニル］－４，４’－ジイルビスホスフォナイト、ビス（２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）ペンタエリスリトールホスファイト、２－（２Ｈ－ベンゾトリアゾール－２－イル）－４，６－ビス（１－メチル－１－フェニルエチル）フェノール、２－エチル，２’－エトキシ－オキサラニリド、Ｎ，Ｎ’，Ｎ’’，Ｎ’’’－テトラキス－（４，６－ビス－（ブチル－（Ｎメチル－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン－４－イル）アミノ）－トリアジン－２－イル）－４，７－ジアザデカン－１，１０－ジアミン、ポリ［（６－（１，１，３，３－テトラメチルブチル）アミノ－１，３，５－トリアジン－２，４－ジイル）（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）イミノ］ヘキサメチレン（（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジル）イミノ））、１，３－ベンゼンジカルボキシアミド、及びＮ，Ｎ’－ビス（２，２，６，６－テトラメチル－４－ピペリジニル）からなる群より選択される１種以上が好ましい。

[0062] 本実施形態の機能徐放性組成物は、１０ＭＰａ以上圧縮した時の液体成分の表面濃度が１．０ｍｇ／ｃｍ^{2}未満であることが好ましい。表面濃度が１０００μｇ/ｃｍ^{2}以上であると、機能徐放性組成物を射出成形等で加工する場合、表面がべたつく等の理由により素材ペレットが詰まる等の問題が生じる虞がある。

[0063]（用途）

機能徐放性組成物は、所定形状を有する成形体に加工して利用するだけでなく、そのままの状態で、例えば塗料、シーリング剤、クッション材又は詰め物として利用することもできる。機能徐放性組成物は、例えば、適宜のマ

トリックス樹脂を選択し、かつ機能徐放性液体を吸着させた多孔性配位高分子の添加量及び充填剤、可塑剤等の添加量を適宜調整することにより、流動性、半流動性又はゴム状弾性を有する成形体を製造できる。このため、本発明には、本実施形態の機能徐放性組成物から成形された成形体も含む。流動性を有するものは、例えば塗料として利用でき、半流動性を有するものは、例えばシーリング剤として利用できる。また、ゴム状弾性を有するものは、例えばクッション材や詰め物として利用できる。なお、機能徐放性組成物を塗料、シーリング剤、クッション材又は詰め物として利用する場合には、必要に応じてマトリックス樹脂中に着色剤や顔料等の色材を添加することができる。機能徐放性組成物の成形加工に際しては、例えば射出成形、圧縮成形、トランスファー成形、押出成形、ブロー成形、カレンダー成形、ＦＲＰ成形、積層成形、注型成形、溶液流延法、真空・圧空成形、押出複合成形、発泡成形、熱成形、インサート成形、溶融含浸法等の公知に属する適宜の成形法を適用することができる。また、製品である成形体の形状に関しては特に制限があるものではなく、平板状、棒状、円筒状、櫛形、球状等、あらゆる形状とすることができる。また、機能徐放性組成物を単体で成形するほか、金属等と組み合わせた二色乃至多色の成形を行うこともできる。

実施例

[0064] 以下に実施例及び比較例を用いて本発明を更に詳しく説明するが、本発明は以下の実施例により何ら限定されない。

[0065] ［実施例１］

機能徐放性液体としてエトフェンプロックス（融点３７℃、沸点２００℃、分子量３７６．４９、分子径（長径）１．７４８ｎｍ、分子径（短径）０．５ｎｍ、三井化学アグロ製品）、金属イオンとしてクロムイオン、有機配位子としてテレフタル酸から構成される多孔性配位高分子（「ＨＵＳＴ－１」、ＢＥＴ法による比表面積：２８００m^2／ｇ、平均細孔径：２．０～２．７ｎｍ）を用いた。多孔性配位高分子に機能徐放性液体を下記表１の組成物Ａ１に示す組成となるように吸着させた。吸着方法としては、真空ベルジャ

一内に多孔性配位高分子を配置し、多孔性配位高分子を０．０１ＭＰａ以下に減圧し、この状態にエトフェンプロックスを滴下させ、多孔性配位高分子に吸着させる方法を用いた。エトフェンプロックスを吸着させた多孔性配位高分子をマトリックス樹脂としてのポリエチレン樹脂（日本ポリエチレン製品の「ノバティックＵＪ３１０」）にコンパウンド加工及び混合し、機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体（エトフェンプロックス）の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表１の組成物Ａ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ａ２～Ａ６をそれぞれ作製した。

コンパウンド加工の方法として、ラボプラストミル装置(東洋精機製作所製品)を用い、加工温度１２０℃にて１０分間コンパウンドする方法を用いた。

次に、加熱プレス機（井本製作所製品の「ＩＭＣ１８０Ｃ型」）を用いて、各成形体素材を１２０℃にて５トン加圧し、５０ｍｍ×５０ｍｍ、厚さ１．２ｍｍのプレート状成形体を作製し、これを実施例１とした。

[0066] [表1]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
A1	91.25	6.25	2.5	5
A2	82.5	12.5	5	10
A3	65	25	10	23
A4	47.5	37.5	15	42
A5	30	50	20	78
A6	12.5	62.5	25	123

[0067] ［実施例２］

金属イオンとして鉄イオン、有機配位子としてトリメシン酸から構成される多孔性配位高分子（ＢＥＴ法による比表面積：１７５４m^2／ｇ、平均細孔径：２．４～２．９ｎｍ）を用いた以外は実施例１と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体（エトフェンプロックス）の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表２の組成物Ｂ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる

組成物Ｂ２～Ｂ７をそれぞれ作製した。その後、実施例１と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例２とした。

[0068] [表2]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
B1	93	4.5	2.5	5
B2	86	9	5	8
B3	72	18	10	12
B4	58	27	15	18
B5	44	36	20	40
B6	30	45	25	52
B7	21.6	50.4	28	58

[0069] ［実施例３］

金属イオンとして銅イオン、有機配位子としてトリメシン酸から構成される多孔性配位高分子（ＢＥＴ法による比表面積：２１００m^2／ｇ、平均細孔径：０．９ｎｍ）を用いた以外は実施例１と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体（エトフェンプロックス）の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表３の組成物Ｃ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ｃ２～Ｃ７をそれぞれ作製した。その後、実施例１と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例３とした。

[0070] [表3]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
C1	92.25	5.25	2.5	6
C2	84.5	10.5	5	18
C3	69	21	10	29
C4	53.5	31.5	15	36
C5	38	42	20	46
C6	22.5	52.5	25	65
C7	13.2	58.8	28	76

[0071] ［実施例４］

金属イオンとして亜鉛イオン、有機配位子として４，４’－ビフェニルジカルボキシ酸から構成される多孔性配位高分子（「ＵＩＯ－６７」、ＢＥＴ法による比表面積：１５３０m^2／ｇ、平均細孔径：０．６ｎｍ）を用いた以外

は実施例１と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体（エトフェンプロックス）の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表４の組成物Ｄ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ｄ２～Ｄ７をそれぞれ作製した。その後、実施例１と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例４とした。

[0072] [表4]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
D1	93.75	3.75	2.5	3
D2	87.5	7.5	5	6
D3	75	15	10	10
D4	62.5	22.5	15	19
D5	50	30	20	43
D6	37.5	37.5	25	57
D7	30	42	28	63

[0073] ［実施例５］

機能徐放性液体としてペルメトリン（融点３４℃、沸点２００℃、分子量３９１．２９、分子径（長径）１．４３１ｎｍ、分子径（短径）０．５ｎｍ）を用いた以外は実施例１と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表５の組成物Ｅ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ｅ２～Ｅ６をそれぞれ作製した。その後、実施例１と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例５とした。

[0074] [表5]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
E1	91.25	6.25	2.5	7
E2	82.5	12.5	5	14
E3	65	25	10	28
E4	47.5	37.5	15	49
E5	30	50	20	83
E6	12.5	62.5	25	131

[0075] ［実施例６］

金属イオンとして亜鉛イオン、有機配位子として４，４’－ビフェニルジカルボキシ酸から構成される多孔性配位高分子（「ＵＩＯ－６７」、ＢＥＴ法による比表面積：１５３０m^2／ｇ、平均細孔径：０．６ｎｍ）を用いた以外は実施例５と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表６の組成物Ｆ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ｆ２～Ｆ７をそれぞれ作製した。その後、実施例５と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例６とした。

[0076] [表6]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
F1	93.75	3.75	2.5	4
F2	87.5	7.5	5	7
F3	75	15	10	12
F4	62.5	22.5	15	24
F5	50	30	20	47
F6	37.5	37.5	25	59
F7	30	42	28	66.2

[0077] ［実施例７］

機能徐放性液体としてトリメリット酸エステル（沸点４１４℃、分子量５４７、分子径（長径）１．３２６ｎｍ、分子径（短径）１．３０４ｎｍ）を用いた以外は実施例１と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表７の組成物Ｇ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ｇ２～Ｇ６をそれぞれ作製した。その後、実施例１と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例７とした。

[0078]

[表7]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（μg/cm^2）
G1	92.25	5.25	2.5	8
G2	84.5	10.5	5	18
G3	69	21	10	27
G4	53.5	31.5	15	53
G5	38	42	20	77
G6	22.5	52.5	25	144

[0079] ［実施例８］

金属イオンとして亜鉛イオン、有機配位子として４，４’－ビフェニルジカルボキシ酸から構成される多孔性配位高分子（「ＵＩＯ－６７」、ＢＥＴ法による比表面積：１５３０ｍ^2／ｇ、平均細孔径：０．６ｎｍ）を用いた以外は実施例７と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表８の組成物Ｈ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ｈ２～Ｈ７をそれぞれ作製した。その後、実施例５と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例８とした。

[0080] [表8]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（μg/cm^2）
H1	94.5	3	2.5	4
H2	89	6	5	10
H3	78	12	10	13
H4	67	18	15	24
H5	56	24	20	49
H6	45	30	25	62
H7	38.4	33.6	28	73

[0081] ［実施例９］

機能徐放性液体としてスルホン酸アミド（沸点３１４℃、分子量２１３．３、分子径（長径）１．０８１ｎｍ、分子径（短径）：０．５ｎｍ）を用いた以外は実施例１と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表９の組成物Ｉ１に示すようになる量とした。同様に上記各

含有量が異なる組成物Ｉ２～Ｉ６をそれぞれ作製した。その後、実施例１と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例９とした。

[0082] [表9]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（μg/cm^2）
I1	90.5	7	2.5	5
I2	81	14	5	11
I3	62	28	10	25
I4	43	42	15	46
I5	24	56	20	81
I6	5	70	25	124

[0083] ［実施例１０］

金属イオンとして亜鉛イオン、有機配位子として４，４’－ビフェニルジカルボキシ酸から構成される多孔性配位高分子（「ＵＩＯ－６７」、ＢＥＴ法による比表面積：１５３０ｍ^2／ｇ、平均細孔径：０．６ｎｍ）を用いた以外は実施例９と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表１０の組成物Ｊ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ｊ２～Ｊ７をそれぞれ作製した。その後、実施例９と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例１０とした。

[0084] [表10]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（μg/cm^2）
J1	92.75	4.75	2.5	3
J2	85.5	9.5	5	6
J3	71	19	10	11
J4	56.5	28.5	15	21
J5	42	38	20	38
J6	27.5	47.5	25	55
J7	18.8	53.2	28	72.8

[0085] ［実施例１１］

機能徐放性液体としてメトプレン（沸点１００℃、分子量３１０．４８、分子径（長径）１．４２６ｎｍ、分子径（短径）０．４３４ｎｍ）を用いた以外は実施例１と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含

有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表１１の組成物Ｋ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ｋ２～Ｋ６をそれぞれ作製した。その後、実施例１と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例１１とした。

[0086] [表11]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
K1	91.25	6.25	2.5	5
K2	82.5	12.5	5	15
K3	65	25	10	24
K4	47.5	37.5	15	44
K5	30	50	20	84
K6	12.5	62.5	25	141

[0087] ［実施例１２］

金属イオンとして亜鉛イオン、有機配位子として４，４’－ビフェニルジカルボキシ酸から構成される多孔性配位高分子（「ＵＩＯ－６７」、ＢＥＴ法による比表面積：１５３０m^2／ｇ、平均細孔径：０．６ｎｍ）を用いた以外は実施例１１と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表１２の組成物Ｌ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ｌ２～Ｌ７をそれぞれ作製した。その後、実施例１１と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例１２とした。

[0088] [表12]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
L1	93.75	3.75	2.5	4
L2	87.5	7.5	5	9
L3	75	15	10	12
L4	62.5	22.5	15	24
L5	50	30	20	44
L6	37.5	37.5	25	67
L7	30	42	28	78

[0089] ［実施例１３］

機能徐放性液体としてオルフラルア（沸点３００℃、分子量２２６．３６、分子径（長径）１．６４５ｎｍ、分子径（短径）０．１８ｎｍ）をポリエ

チレングリコールに溶解させたものを用いた以外は実施例１と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表１３の組成物Ｍ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ｍ２～Ｍ６をそれぞれ作製した。その後、実施例１と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例１３とした。

[0090] [表13]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
M1	91.75	5.75	2.5	14
M2	83.5	11.5	5	36
M3	67	23	10	67
M4	50.5	34.5	15	94
M5	34	46	20	172
M6	17.5	57.5	25	237

[0091] ［実施例１４］

金属イオンとして亜鉛イオン、有機配位子として４，４’－ビフェニルジカルボキシ酸から構成される多孔性配位高分子（「ＵＩＯ－６７」、ＢＥＴ法による比表面積：１５３０m^2／ｇ、平均細孔径：０．６ｎｍ）を用いた以外は実施例１３と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表１４の組成物Ｎ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ｎ２～Ｎ７をそれぞれ作製した。その後、実施例１３と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例１４とした。

[0092] [表14]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
N1	93.5	4	2.5	11
N2	87	8	5	27
N3	74	16	10	38
N4	61	24	15	64
N5	48	32	20	124
N6	35	40	25	164
N7	18.8	53.2	28	234.2

[0093] ［実施例１５］

機能徐放性液体としてインドール３酢酸（融点１６８℃、分子量１７５．１８、分子径（長径）０．８８２ｎｍ、分子径（短径）０．５ｎｍ）をＤＭＳＯに溶解させたものを用いた以外は実施例１と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表１５の組成物Ｏ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ｏ２～Ｏ６をそれぞれ作製した。その後、実施例１と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例１５とした。

[0094] [表15]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
O1	90.5	7	2.5	2
O2	81	14	5	4
O3	62	28	10	16
O4	43	42	15	35
O5	24	56	20	62
O6	5	70	25	113

[0095] ［実施例１６］

金属イオンとして亜鉛イオン、有機配位子として４，４’－ビフェニルジカルボキシ酸から構成される多孔性配位高分子（「ＵＩＯ－６７」、ＢＥＴ法による比表面積：１５３０m^2／ｇ、平均細孔径：０．６ｎｍ）を用いた以外は実施例１５と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表１６の組成物Ｐ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ｐ２～Ｐ７をそれぞれ作製した。その後、実施例１３と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例１６とした。

[0096]

[表16]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（μg/cm^2）
P1	92.5	5	2.5	1
P2	85	10	5	4
P3	70	20	10	11
P4	55	30	15	19
P5	40	40	20	35
P6	25	50	25	52
P7	16	56	28	70

[0097] ［実施例１７］

機能徐放性液体としてチアベンダゾール（融点３０５℃、分子量２０１．２５、分子径（長径）１．００４ｎｍ、分子径（短径）０．５ｎｍ）をメタノールに溶解させたものを用いた以外は実施例１と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表１７の組成物Ｑ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ｑ２～Ｑ６をそれぞれ作製した。その後、実施例１と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例１７とした。

[0098] [表17]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（μg/cm^2）
Q1	90.75	6.75	2.5	7
Q2	81.5	13.5	5	14
Q3	63	27	10	30
Q4	44.5	40.5	15	51
Q5	26	54	20	90
Q6	7.5	67.5	25	146

[0099] ［実施例１８］

金属イオンとして亜鉛イオン、有機配位子として４，４’－ビフェニルジカルボキシ酸から構成される多孔性配位高分子（「ＵＩＯ－６７」、ＢＥＴ法による比表面積：１５３０ｍ^2／ｇ、平均細孔径：０．６ｎｍ）を用いた以外は実施例１７と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそ

れぞれ下記表１８の組成物Ｒ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ｒ２～Ｒ７をそれぞれ作製した。その後、実施例１７と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例１８とした。

[0100] [表18]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
R1	93	4.5	2.5	6
R2	86	9	5	9
R3	72	18	10	13
R4	58	27	15	24
R5	44	36	20	48
R6	30	45	25	64
R7	21.6	50.4	28	73.1

[0101] ［実施例１９］

機能徐放性液体としてカテキン（融点１７５℃、分子量２９０．２７、分子径（長径）１．１９５ｎｍ、分子径（短径）０．５２４ｎｍ）をエタノールに溶解させたものを用いた以外は実施例１と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表１９の組成物Ｓ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ｓ２～Ｓ６をそれぞれ作製した。その後、実施例１と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例１９とした。

[0102] [表19]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
S1	91.75	5.75	2.5	13
S2	83.5	11.5	5	27
S3	67	23	10	44
S4	50.5	34.5	15	84
S5	34	46	20	132
S6	17.5	57.5	25	169

[0103] ［実施例２０］

金属イオンとして亜鉛イオン、有機配位子として４，４’－ビフェニルジカルボキシ酸から構成される多孔性配位高分子（「ＵＩＯ－６７」、ＢＥＴ法による比表面積：１５３０m^2／ｇ、平均細孔径：０．６ｎｍ）を用いた以外

は実施例１９と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表２０の組成物Ｔ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ｔ２～Ｔ７をそれぞれ作製した。その後、実施例１９と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例２０とした。

[0104] [表20]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
T1	94.25	3.25	2.5	11
T2	88.5	6.5	5	17
T3	77	13	10	27
T4	65.5	19.5	15	38
T5	54	26	20	60
T6	42.5	32.5	25	72
T7	35.6	36.4	28	97

[0105] ［実施例２１］

金属イオンとしてアルミニウムイオン、有機配位子としてテレフタル酸から構成される多孔性配位高分子（「ＡＩ－ＰＣＰ」、ＢＥＴ法による比表面積：１１００m^2／ｇ、平均細孔径：０．７ｎｍ）を用いた以外は実施例１と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表２１の組成物Ｕ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物Ｕ２～Ｕ７をそれぞれ作製した。その後、実施例１と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを実施例２１とした。

[0106] [表21]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
U1	89	6	5	12
U2	78	12	10	36
U3	67	18	15	55
U4	56	24	20	88
U5	45	30	25	134
U6	34	36	30	210
U7	23	42	35	294

[0107] ［比較例１］

機能徐放性液体として実施例１で用いたエトフェンプロックスを、マトリックス樹脂としてポリエチレン樹脂（極性基及び官能基改質を行っていないＬＤＰＥ）にコンパウンド加工及び混合し、組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量がそれぞれ下記表２２の組成物ａ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物ａ２～ａ７をそれぞれ作製した。

コンパウンド加工の方法としては、実施例１に記載の方法を用いた。混合した成形体素材を５０×５０ｍｍ、厚さ１．２ｍｍのプレート状の成形体とし、これを比較例１とした。

[0108] [表22]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
a1	99	1	-	15
a2	95	5	-	34
a3	90	10	-	135
a4	80	20	-	436
a5	70	30	-	648
a6	60	40	-	2368
a7	50	50	-	6742

[0109] ［比較例２］

機能徐放性液体として実施例１で用いたエトフェンプロックスを、マトリックス樹脂として、特許文献４の実施例６に記載のように、極性基及び官能基改質を行ったポリエチレン樹脂にコンパウンド加工及び混合し、組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量がそれぞれ下記表２３の組成物ｂ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物ｂ２～ｂ７をそれぞれ作製した。

コンパウンド加工の方法としては、実施例１に記載の方法を用いた。混合した成形体素材を５０×５０ｍｍ、厚さ１．２ｍｍのプレート状の成形体とし、これを比較例２とした。

[0110] [表23]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
b1	99	1	-	1
b2	95	5	-	5
b3	90	10	-	11
b4	80	20	-	25
b5	70	30	-	248
b6	60	40	-	978
b7	50	50	-	2236

[0111] ［比較例３］

金属イオンとして鉄イオン、有機配位子としてフマル酸から構成される多孔性配位高分子（「ＭＩＬ－８８Ａ」、ＢＥＴ法による比表面積：１７０m^2／ｇ、平均細孔径：０．６ｎｍ）を用いた以外は実施例１と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表２４の組成物ｃ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物ｃ２～ｃ７をそれぞれ作製した。その後、実施例１と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを比較例３とした。

[0112] [表24]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
c1	95.175	2.325	2.5	4.3
c2	90.35	4.65	5	74
c3	80.7	9.3	10	169
c4	71.05	13.95	15	350
c5	61.4	18.6	20	744
c6	51.75	23.25	25	1044
c7	45.96	26.04	28	1375

[0113] ［比較例４］

金属イオンとしてジルコニウムイオン、有機配位子としてテレフタル酸から構成される多孔性配位高分子（「ＵｉＯ－６６」、ＢＥＴ法による比表面積：７４０m^2／ｇ、平均細孔径：０．６ｎｍ）を用いた以外は実施例１と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液

体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表２５の組成物ｄ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物ｄ２～ｄ７をそれぞれ作製した。その後、実施例１と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを比較例４とした。

[0114] [表25]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
d1	94	3.5	2.5	2.8
d2	88	7	5	53
d3	76	14	10	135
d4	64	21	15	271
d5	52	28	20	744
d6	40	35	25	1044
d7	32.8	39.2	28	1375

[0115] ［比較例５］

多孔性配位高分子に代えてゼオライトを用いた以外は実施例１と同様にして機能徐放性組成物（成形体素材）を作製した。ポリエチレン樹脂の配合量は、マトリックス樹脂（ポリエチレン樹脂）の含有量、機能徐放性液体の含有量及びＰＣＰ（多孔性配位高分子）の含有量がそれぞれ下記表２６の組成物ｅ１に示すようになる量とした。同様に上記各含有量が異なる組成物ｅ２～ｅ７をそれぞれ作製した。その後、実施例１と同様にして各成形体素材から成形体を作製し、これを比較例５とした。

[0116] [表26]

	マトリックス樹脂（質量%）	機能徐放性液体（質量%）	PCP（質量%）	機能徐放性液体表面量（$\mu g/cm^2$）
e1	95.75	1.75	2.5	5.6
e2	91.5	3.5	5	18
e3	83	7	10	44
e4	74.5	10.5	15	139
e5	66	14	20	428
e6	57.5	17.5	25	971
e7	52.4	19.6	28	1421

[0117] 作製した実施例及び比較例の試料について、以下の方法により機能徐放性液体表面量（機能徐放性液体表面濃度）を測定した。

[0118] 先ず、２０℃環境下にて各試料（成形体）を５０ｍＬのテトラヒドロフランに浸漬し、表面に析出している機能徐放出性液体を洗浄した。次に、高速

液体クロマトグラフィーを用いて、洗浄した液中の試料単位面積当たりの機能性徐放液体の表面量（表面濃度）（μｇ／ｃｍ^2）を測定した。ここで、試料中の機能徐放出性液体の含有濃度が多いほど、上記表面量は増加するが、許容濃度を超えると極端に増加する臨界点である上限値に達する。機能徐放出性液体の含有濃度を大きくしても、上記表面量が極端に増加する傾向を示さなければ、長期徐放性に優れることを示唆している。また、表面量が１００μｇ/ｃｍ^{2}以上であると、機能徐放性複合成形体の素材として射出成形等で加工する場合、表面がべたつく等の理由により素材ペレットが詰まる等の問題が生じる虞がある。そこで、これらの２点を考慮して実施例及び比較例を評価した。

[0119] 評価結果を表１～２６及び図１～図６に示す。図１～図６に示すグラフは、機能徐放性複合成形体中の機能徐放出性液体の含有濃度と、機能徐放性複合成形体の表面量の関係を示す。図１～図６から明らかなように、各実施例及び比較例のいずれにおいても機能徐放性液体の含有濃度が増加すると表面量も増加する傾向にあるが、各比較例の場合には、機能徐放出性液体含有濃度が２０質量％を超えると、表面量が急激に増加することがわかった。これにより、各比較例の上限値は２０重量％であることがわかった。一方、各実施例の場合には、機能徐放出性液体含有濃度が４０重量％を超えても、表面量が極端に増加する臨界点、さらに加工上限値である１０００μｇ／ｃｍ^{2}には達しなかった。

[0120] 以上より、マトリックス樹脂に機能性液体を直接展開するよりも、多孔性配位高分子に吸着させる方がより多くの機能性液体を添加することができ、効能及び効果持続性を高めることができることがわかった。

産業上の利用可能性

[0121] 本実施形態の機能徐放性組成物は、例えば、小動物防除機能、摺動機能、抗菌機能、防カビ機能、自己修復機能、触媒機能、医療機能等の機能性成分を付与した成形体に利用できる。具体的には、本実施形態の機能徐放性複合成形体は、自動車、電気製品等の工業分野、衛生サービス等のアメニティ分

野、医薬品等の医療分野に利用できる。

請求の範囲

[請求項1] 機能徐放性液体と、金属イオン及び有機配位子を有し、９００m^2／ｇ以上の比表面積を有する多孔性配位高分子と、マトリックス樹脂とを含む機能徐放性組成物。

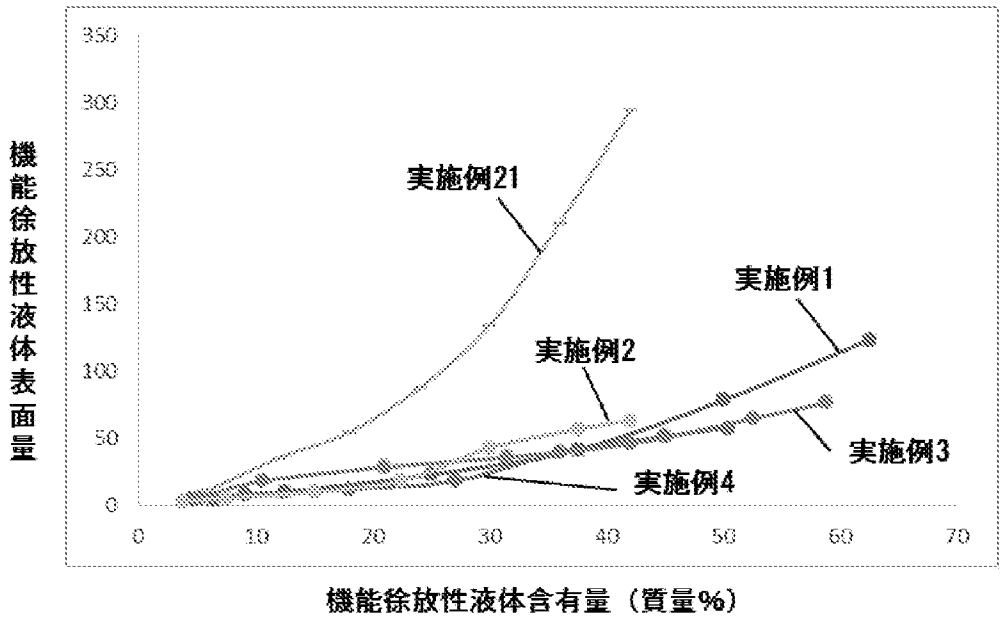
[請求項2] 前記機能徐放性液体が、６００以下の分子量、１０℃以上の融点を有する請求項１記載の機能徐放性組成物。

[請求項3] 前記多孔性配位高分子の平均細孔径が、前記機能徐放性液体の分子径以上である請求項１又は２に記載の機能徐放性組成物。

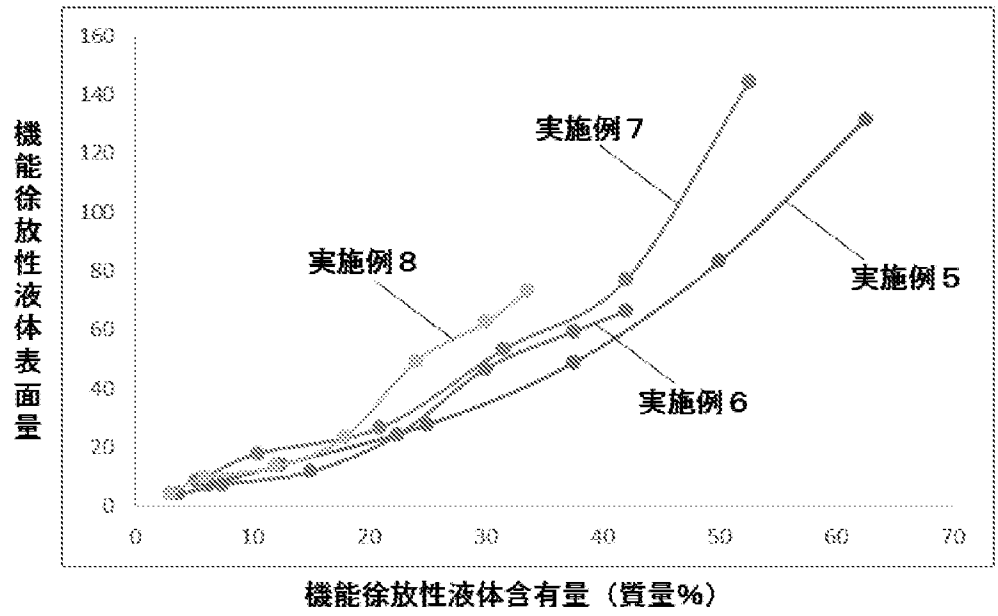
[請求項4] １０ＭＰａ以上圧縮した時の液体成分の表面濃度が１．０ｍｇ／cm^2未満である請求項１～３のいずれか１項に記載の機能徐放性組成物。

[請求項5] 請求項１～４のいずれか１項に記載の機能徐放性組成物の成形体。

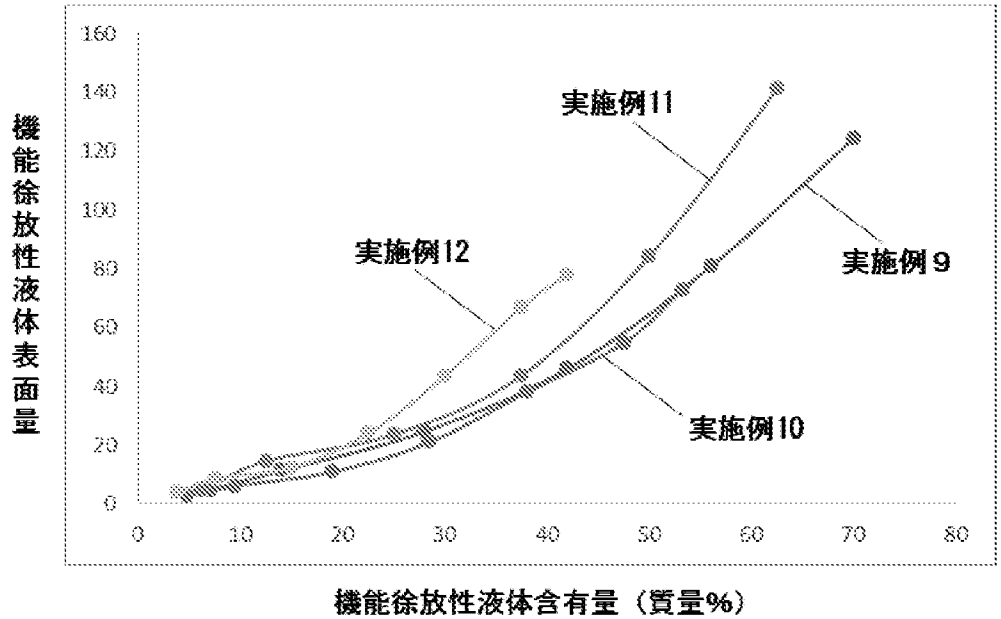
[図1]


機能徐放性液体表面量
350
300
250
200
150
100
50
0
0
10
20
30
40
50
60
70
実施例21
実施例1
実施例2
実施例3
実施例4
機能徐放性液体含有量（質量%）

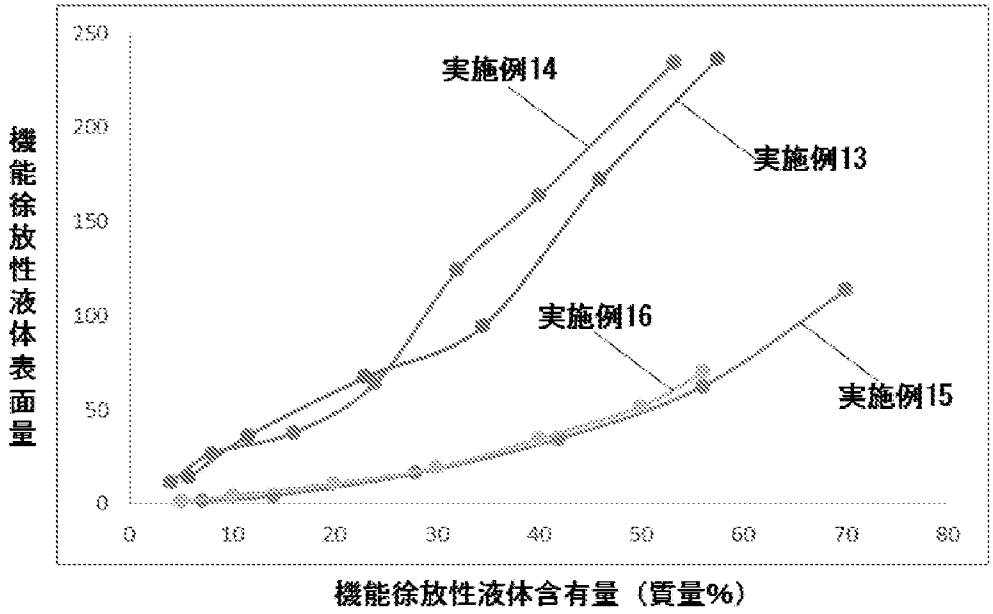
[図2]


機能徐放性液体表面量
160
140
120
100
80
60
40
20
0
0
10
20
30
40
50
60
70
実施例７
実施例８
実施例５
実施例６
機能徐放性液体含有量（質量%）

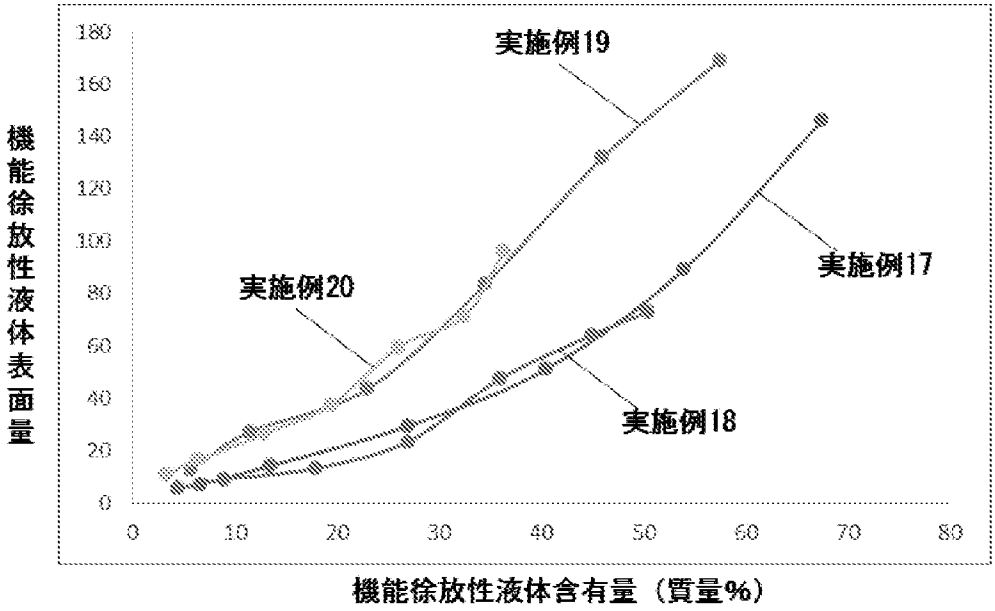
[図3]


機能徐放性液体表面量
160
140
120
100
80
60
40
20
0
0
10
20
30
40
50
60
70
80
実施例11
実施例12
実施例９
実施例10
機能徐放性液体含有量（質量%）

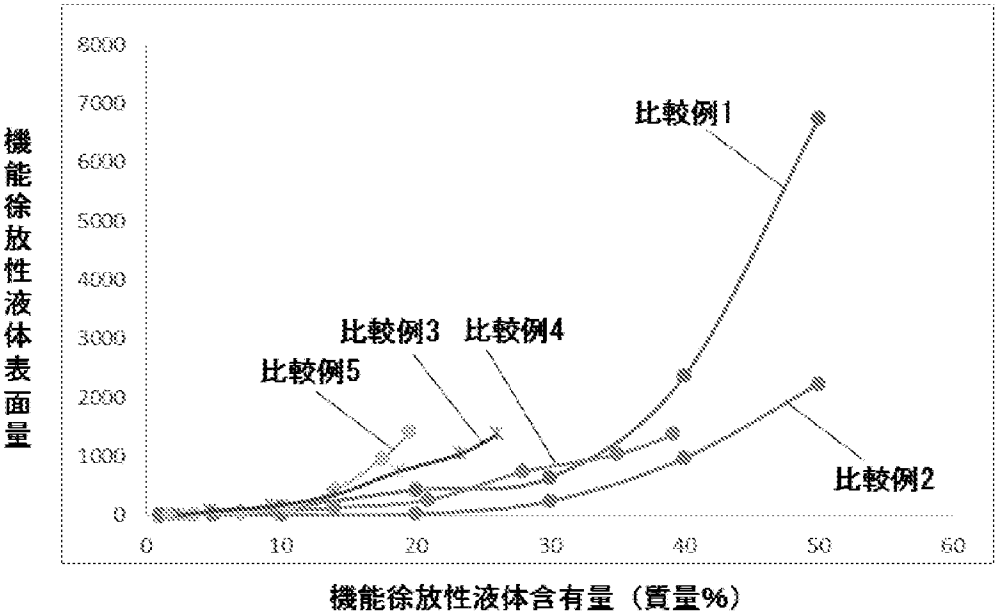
[図4]


機能徐放性液体表面量
250
200
150
100
50
0
0
10
20
30
40
50
60
70
80
実施例14
実施例13
実施例16
実施例15
機能徐放性液体含有量（質量%）

[図5]


機能徐放性液体表面量
180
160
140
120
100
80
60
40
20
0
0
10
20
30
40
50
60
70
80
実施例19
実施例20
実施例17
実施例18
機能徐放性液体含有量（質量%）

[図6]


機能徐放性液体表面量
8000
7000
6000
5000
4000
3000
2000
1000
0
0
10
20
30
40
50
60
比較例1
比較例3
比較例4
比較例5
比較例2
機能徐放性液体含有量（質量%）

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2019/024261

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl. C09K3/00(2006.01)i, A01N25/00(2006.01)i, A01N25/10(2006.01)i, C08L101/00(2006.01)i

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)
Int.Cl. C09K3/00, A01N25/00, A01N25/10, C08L101/00

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

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2019
Registered utility model specifications of Japan	1996-2019
Published registered utility model applications of Japan	1994-2019

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)
CAplus/MEDLINE/EMBASE/BIOSIS/WPIDS (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	KR 10-2015-0029460 A (KOREA RESEARCH INSTITUTE OF CHEMICAL TECHNOLOGY) 18 March 2015, claims 1, 9-10, paragraphs [0038], [0057]-[0058], [0066]-[0068] (Family: none)	1-5
A	JP 2016-17055 A (INSTITUTE OF NATIONAL COLLEGES OF TECHNOLOGY JAPAN) 01 February 2016, claims 1-5, examples (Family: none)	1-5

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

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
21 August 2019 (21.08.2019)	03 September 2019 (03.09.2019)

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Telephone No.

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１９／０２４２６１

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C09K3/00(2006.01)i, A01N25/00(2006.01)i, A01N25/10(2006.01)i, C08L101/00(2006.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C09K3/00, A01N25/00, A01N25/10, C08L101/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１９年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１９年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１９年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)
CAplus/MEDLINE/EMBASE/BIOSIS/WPIDS (STN)

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	KR 10-2015-0029460 A (KOREA RESEARCH INSTITUTE OF CHEMICAL TECHNOLOGY) 2015.03.18, 請求項１、９～１０、段落[0038]、[0057]～[0058]、[0066]～[0068]（ファミリーなし）	1-5
A	JP 2016-17055 A (独立行政法人国立高等専門学校機構) 2016.02.01, 請求項１～５、実施例（ファミリーなし）	1-5

☐　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「Ｘ」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Ｙ」特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
２１．０８．２０１９	０３．０９．２０１９

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｚ　３６４６
吉岡　沙織
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４８０