

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4785314号
(P4785314)

(45) 発行日 平成23年10月5日(2011.10.5)

(24) 登録日 平成23年7月22日(2011.7.22)

(51) Int.Cl. F I
CO8J 3/24 (2006.01) CO8J 3/24 CFJZ
 CO8L 81/02 (2006.01) CO8L 81/02

請求項の数 8 (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願2001-550315 (P2001-550315)	(73) 特許権者	503054111
(86) (22) 出願日	平成12年12月28日 (2000.12.28)		コノコフィリップス カンパニー
(65) 公表番号	特表2003-519268 (P2003-519268A)		アメリカ合衆国、テキサス、ヒューストン
(43) 公表日	平成15年6月17日 (2003.6.17)		、 ノース デイリィ アシュフォード
(86) 国際出願番号	PCT/US2000/035494		600
(87) 国際公開番号	W02001/049777	(74) 代理人	100066692
(87) 国際公開日	平成13年7月12日 (2001.7.12)		弁理士 浅村 皓
審査請求日	平成19年12月14日 (2007.12.14)	(74) 代理人	100072040
(31) 優先権主張番号	09/476, 250		弁理士 浅村 肇
(32) 優先日	平成11年12月30日 (1999.12.30)	(74) 代理人	100107504
(33) 優先権主張国	米国 (US)		弁理士 安藤 克則
		(74) 代理人	100110803
			弁理士 赤澤 太郎

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ポリ (アリーレンスルフィド) 重合体のパルス状連続硬化

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

ポリ (アリーレンスルフィド) 重合体を硬化する方法において、
間欠的に硬化容器に未硬化重合体の一部分を添加し、重合体の一部分を除去しながら、
ポリ (アリーレンスルフィド) 重合体に押し出し速度の減少をもたらすのに十分な定常状態
の硬化条件を前記硬化容器中で達成及び維持し、然も、前記重合体部分の取り出しを間欠
的間隔で行う、ことを含む、前記硬化方法。

【請求項 2】

硬化条件が、100 ~ 350 の範囲の温度を有する、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

硬化条件が、69 ~ 310 kPa (10 ~ 45 psia) の範囲の圧力を有する、請求
項 1 又は 2 に記載の方法。

【請求項 4】

硬化を、酸素含有雰囲気中で行う、請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 5】

硬化を、不活性雰囲気中で行う、請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 6】

硬化を、酸素含有雰囲気中では或る期間行い、次に不活性ガス中で硬化する、請求項 1 ~
5 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 7】

硬化容器が、連続攪拌タンク反応器である、請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の方法

【請求項 8】

重合体の一部分を、未硬化重合体を硬化容器へ添加した後、15分～15時間の範囲の間隔後に除去する、請求項 1 ~ 7のいずれか 1 項に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

本発明は、ポリ(アリーレンスルフィド)、(PAS)重合体に関する。一つの態様として、本発明は、連続的方法によりポリ(アリーレンスルフィド)重合体を硬化する方法で、その重合体の硬化した部分の除去を、未硬化重合体の存在を最少又は回避するようなタイミングで行う硬化方法に関する。

10

【0002】

ポリ(アリーレンスルフィド)重合体は、一般に当分野で知られており、それらの化学的及び熱的抵抗性が大きいため有用であることが判明している。そのようなポリ(アリーレンスルフィド)重合体の製造方法は、当分野で報告されている。典型的な製造方法として、少なくとも一種類のジハロ芳香族化合物、硫黄源、及び極性有機化合物を重合条件下で接触させる。一般に、分子量変性剤を添加せずに製造した重合体は、物品を構成するために使用する前に、その重合体を酸化硬化する場合、殆どの用途に対し一層有用になることが判明している。そのような硬化工程は、主として工業的にはバッチ法で行われてきており、この場合硬化時間及び温度を、希望の最終重合体特性を達成できるように特定化する。そのようなバッチ法は商業的プラントでは余り望ましくない。なぜなら、それらは行われる操作を不十分なものにし、即ち、工程及び処理容器の停止及び開始を繰り返す必要があり、それによりその工程の生産性を悪くすることがあるからである。硬化工程は連続的に行うことができるが、そのような方法は種々の最終生成物特性を達成する際の自由度に欠けるといふ欠点を有し、更に比較的硬化していない重合体部分のみならず、高度に硬化した重合体が存在するため、余り望ましくない最終的重合体特性を与えてしまうことが報告されている。希望の最終的重合体生成物特性を達成することができる自由度を操作する人に与え、未硬化重合体を最少にしなから、重合体を連続的方法で硬化することができる方法を有することが望ましいであろう。

20

【0003】

本発明は、硬化工程を連続的方式で行い、生成物の除去期間中、連続的硬化容器中に殆ど又は全く未硬化重合体を存在させないように、未硬化重合体の添加及び硬化重合体の除去を組合せた、ポリ(アリーレンスルフィド)重合体の硬化方法を与える。

30

【0004】

本発明によれば、硬化容器中で硬化条件を達成及び維持し、次に前記硬化容器へ未硬化重合体を間欠的に添加し、硬化容器から重合体を間欠的に除去し、然も、前記硬化容器からの重合体の除去を未硬化重合体の存在が最少になるか又は回避されるような時間間隔で行うことからなる方法で、ポリ(アリーレンスルフィド)重合体を硬化する。

【0005】

本発明で用いられるポリ(アリーレンスルフィド)重合体は、当業者に知られているどのような方法によって製造してもよい。ポリ(アリーレンスルフィド)の重合は、一般的に当技術分野で報告されている。例えば、米国特許第 3,354,129号、第 3,919,177号、及び第 4,645,826号明細書の全てにポリ(アリーレンスルフィド)重合体を製造する方法が記載されている。上で引用した特許公報には、有用なポリ(アリーレンスルフィド)重合体生成物を回収する方法も記載されている。ポリ(アリーレンスルフィド)重合体生成物を回収する別の適当な方法は、米国特許第 4,415,729号明細書に記載されている。これらの特許公報の全てに、種々の不純物及び未反応重合成分を含有する反応混合物から希望の重合体生成物を分離することが記載されている。ポリ(アリーレンスルフィド)重合体は、一般に少なくとも一種類のジハロ芳香族化合物、硫黄源、及び極性有機化合物からなる重合反応混合物を、重合条件下で接触させることにより

40

50

製造されている。

【0006】

用いることができるジハロ芳香族化合物には、p-ジクロロベンゼン(DCB)、p-ジプロモベンゼン、p-ジヨードベンゼン、1-クロロ-4-プロモベンゼン、1-クロロ-4-ヨードベンゼン、1-プロモ-4-ヨードベンゼン、2,5-ジクロロトルエン、2,5-ジクロロ-p-キシレン、1-エチル-4-イソプロピル-2,5-ジプロモベンゼン、1,2,4,5-テトラメチル-3,6-ジクロロベンゼン、1-ブチル-4-シクロヘキシル-2,5-ジプロモベンゼン、1-ヘキシル-3-ドデシル-2,5-ジクロロベンゼン、1-オクタデシル-2,5-ジヨードベンゼン、1-フェニル-2-クロロ-5-プロモベンゼン、1-(p-トリル)-2,5-ジプロモベンゼン、1-ベンジル-2,5-ジクロロベンゼン、1-オクチル-4-(3-メチルシクロペンチル)-2,5-ジクロロベンゼン等、及びそれらの二種類以上の混合物が含まれる。本発明で用いられる好ましいジハロ芳香族化合物は、入手性及び効果性からp-ジクロロベンゼン(DCB)である。

10

【0007】

本発明の方法では、どのような適当な硫黄源でも用いることができる。適当な硫黄源は、米国特許第3,919,177号明細書に記載されている。そのような適当な硫黄源には、チオ硫酸塩、チオ尿素、チオアミド、元素状硫黄、チオカルバミン酸塩、金属二硫化物及びオキシ硫化物、チオ炭酸塩、有機メルカプタン、有機メルカプチド、有機スルフィド、アルカリ金属硫化物及び二硫化物(bisulfide)、及び硫化水素が含まれるが、それらに

20

【0008】

用いることができるアルカリ金属硫化物には、硫化リチウム、硫化ナトリウム、硫化カリウム、硫化ルビジウム、硫化セシウム及びそれらの混合物が含まれる。アルカリ金属硫化物は、水和物又は水性混合物として用いるのが好ましい。もし望むならば、アルカリ金属硫化物は、アルカリ金属水酸化物とアルカリ金属二硫化物とを水溶液中で反応させることにより水溶液として調製することができる。本発明の硫黄源として、硫化ナトリウム、又は二硫化ナトリウムと水酸化ナトリウムとの組合せを用いるのが好ましい。

【0009】

ポリ(アリーレンスルフィド)重合体の製造で用いられるジハロ芳香族化合物及び硫黄源のために有用な溶媒は、極性有機化合物である。そのような極性有機化合物の例には、ラクタムを含めたアミド及びスルホンが含まれる。そのような極性有機化合物の具体的な例には、ヘキサメチルホスホルアミド、テトラメチル尿素、N,N-エチレンジピロリドン、N-メチル-2-ピロリドン(NMP)、ピロリドン、カプロラクタム、N-エチルカプロラクタム、スルホラン、N,N-ジメチルアセトアミド、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、低分子量ポリアミド等が含まれる。現在好ましい極性有機化合物はNMPである。

30

【0010】

重合反応混合物中、又は重合中に他の成分を用いて製造したポリ(アリーレンスルフィド)重合体を用いることは本発明の範囲内に入る。例えば、アルカリ金属カルボン酸塩、リチウムハロゲン化物、又は水のような分子量修正又は増大剤を、重合中添加又は生成させてもよい。用いることができる適当なアルカリ金属カルボン酸塩には、式、R-COOM(式中、Rは、アルキル、シクロアルキル、アリール、アルキルアリール、アリールアルキルから選択されたヒドロカルビル基であり、R中の炭素原子数は1~約20の範囲にあり、Mは、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、及びセシウムから選択されたアルカリ金属である)を有するものが含まれる。アルカリ金属カルボン酸塩は、水和物として、又は水溶液又は水分散物として用いることができる。好ましいアルカリ金属カルボン酸塩は、入手性及び効果性から酢酸ナトリウムである。

40

【0011】

本発明により硬化される未硬化ポリ(アリーレンスルフィド)重合体は、一般に比較的低

50

い分子量のポリ(アリーレンスルフィド)重合体を含むが、本発明の方法は比較的大きな分子量の重合体を硬化するのにも用いることができる。

【0012】

用語、低分子量ポリ(アリーレンスルフィド)重合体とは、一般にASTM D1238、条件316/5に従って測定した場合、1000g/10分~約30,000g/10分の範囲に入るメルトフロー値を有するポリ(アリーレンスルフィド)重合体を指している。

【0013】

ここで用いる用語、高分子量ポリ(アリーレンスルフィド)重合体とは、未硬化状態で、約1000g/10分より小さいメルトフロー値を有する本質的に線状のポリ(アリーレンスルフィド)重合体を指している。ここで用いられる本質的に線状のポリ(アリーレンスルフィド)とは、分岐していないか、又は分岐の量が重合体の性質に実質的に影響を与えないような僅かな量である重合体として定義される。例えば、ポリ(アリーレンスルフィド)重合法で用いられるジハロ芳香族で見出されるポリハロ芳香族不純物の量は、得られるポリ(アリーレンスルフィド)が本質的に線状の定義から外れる程十分なものではないであろう。

10

【0014】

一般に、重合法で用いられる反応物の比率は広く変えることができる。ジハロ芳香族化合物の量対硫黄源の量のモル比は、約0.8/1~約2/1の範囲にあるのが好ましい。分子量修正剤としてアルカリ金属カルボン酸塩を用いる場合、アルカリ金属カルボン酸塩対ジハロ芳香族化合物のモル比は、約0.05/1~約4/1の範囲内にあるのが好ましい。

20

【0015】

極性有機化合物の使用量は、重合中、広い範囲に互って変えることができる。しかし、重合中、極性有機化合物の量対硫黄源の範囲のモル比は、1/1~10/1の範囲にあるのが好ましい。

【0016】

反応混合物の成分は、どのような順序で互いに接触させてもよい。

【0017】

ここで用いられる用語、重合停止とは、例えば、重合混合物からポリ(アリーレンスルフィド)重合体の回収を開始することにより、重合を効果的に継続するのに必要な条件の除去を行う確実な手段を取った時点として定義する。重合停止という用語を用いても、重合反応成分の完全な反応が行われたことを意味するものではないことに注意しなければならない。ここで用いられる重合停止という用語は、反応物の重合が更に行われることがないことを意味するものではないことにも注意すべきである。一般的に経済的理由から、ポリ(アリーレンスルフィド)重合体の回収は、重合が実質的に完了した時点で開始するのが典型的であり、即ち更なる重合により生ずる重合体分子量の増加が、更に重合時間を与えることが正当化される程の十分な大きさにはならなくなった時に開始する。

30

【0018】

重合が行われる反応温度は広い範囲に互って変えることができるが、一般にそれは約170(347°F)~約325(617°F)、好ましくは約200~290の範囲内にある。反応時間は、一つには反応温度に依存し、広く変えることができるが、一般に約10分~約72時間、好ましくは約1時間~約8時間の範囲内にある。圧力は、極性有機化合物及びジハロ芳香族化合物を、実質的に液相に維持するのに十分な圧力であるのがよい。

40

【0019】

本発明により製造されるポリ(アリーレンスルフィド)重合体は、当業者に知られているどのような方法によって回収してもよい。

【0020】

本発明により、ポリ(アリーレンスルフィド)重合体を硬化して、重合体の分子量を増大

50

し、それにより希望の最終的生成物の重合体特性を達成する。

【0021】

硬化工程は、重合体を、その溶融温度以下又は以上に、その重合体生成物の希望の機械的性質を達成するのに十分な時間加熱することを含む。本発明により処理されるポリ(アリーレンスルフィド)重合体は、ほぼ室温から400以上までの範囲の溶融温度を持つことができる。従って、硬化工程の温度は広い範囲に亘って変えることができ、それは一般に約100~約350の範囲にある。約150~約275の範囲の温度で重合体を硬化するのが好ましい。硬化工程を行う時の圧力は、大気圧より僅かに低い圧力から約30psigまでの範囲にある。硬化工程は、酸素又は酸化剤の存在下で行なってもよく、窒素のような不活性ガス中で行なってもよく、或は硬化工程の一部分を酸素の存在下で行い、工程の残余を不活性ガス中で行うような併用法で処理してもよい。

10

【0022】

重合体を硬化するのに必要な時間は、硬化工程を行う時の温度、圧力、雰囲気、及び重合体の希望の最終的特性の諸条件に基づいて変化するが、一般に約1時間~約200時間の範囲にある。本発明の方法により、硬化容器中の未硬化重合体の量が最少になった時点で重合体の一部分を硬化容器から除去する。未硬化重合体の添加と、最少量の未硬化材料を含有する重合体部分の除去との間の時間間隔は、温度、圧力、雰囲気、最終生成物の希望の性質にも依存する。低分子量ポリ(アリーレンスルフィド)重合体を処理する場合、約15分~約15時間の範囲の時間間隔を用いるのが好ましい。高分子量重合体を処理する場合の時間間隔はより短くなるように選択することができ、好ましい範囲は約10分~約10時間である。本発明のパルス状連続硬化法を用いることにより、バッチ間の硬化容器への導入及び硬化重合体の除去に必要な時間を省略することができ、それらの時間は夫々容器の大きさにより3時間~8時間の範囲になる。

20

【0023】

適当な温度、圧力で操作することができ、重合体の適当な混合に必要な特徴を有する慣用的閉鎖容器で硬化工程を行うことができる。本発明により、硬化容器は連続操作ができるように選択する。本発明の硬化工程は、連続的攪拌タンク反応器で行うのが現在好ましい。硬化容器の状態をできるだけ一定に維持することができるように、供給物を予め加熱し、硬化容器中へ計量して入れることを目的とした装置により、硬化容器へ未硬化重合体を供給するのが好ましい。

30

【0024】

次の実施例は、本発明を更に例示するために与えられており、その範囲を限定するものではない。

【0025】

【実施例】

次の実施例では、10分当たりのグラム数(g/10分)として報告する重合体1270押し出し速度は、ASTM D1238、条件316/0.345の方法により決定した。1270押し出し速度を測定するために用いたオリフィスは、 2.096 ± 0.005 mmの直径及び 31.75 ± 0.05 mmの長さを持っていた。g/10分の単位での重合体メルトフロー値は、ASTM D1238、条件316/5の方法により決定した。メルトフローを測定するために用いたオリフィスは、 2.096 ± 0.005 mmの直径、 8.000 ± 0.025 mmの長さを持っていた。3/10分の単位での重合体1270押し出し速度値は、ASTM D1238、条件316/1.270の方法により決定した。1270押し出し速度を測定するために用いたオリフィスは、 2.096 ± 0.005 mmの直径及び 31.75 ± 0.05 mmの長さを持っていた。

40

【0026】

重合体試料中に存在する揮発物の相対的量は、石英結晶微量天秤(QCM)を用いて測定した。この試験は、溶融PPS試料から揮発性物質を気化し、それら蒸気を水冷振動石英結晶上に収集し、振動結晶の周波数の変化により凝縮物質の量を比較することを含んでいた。PPS重合体の秤量試料を加熱(325)ステンレス鋼ビーカーの底に入れ、その

50

ピーカーを振動結晶の入った蓋で覆った。結晶上に蒸気が凝縮するに従って、結晶の共鳴周波数は付着した量に比例して減少した。試験値は、10分の試験時間で結晶の周波数の変化に比例した無ジメンションの相対的数の形で表されている。試験値が低い程、試験試料が試験温度で高いQCM値を有する試料よりも揮発物の含有量が低いことを示している。

【0027】

各試料のアニールした又はアニールしていないものの引張り強度は、ASTM D638に従って決定した。各試料の曲げモジュラス及び曲げ強度は、ASTM D790の方法により決定した。各試料のノッチ付きアイゾット衝撃試験及びノッチなしアイゾット衝撃試験は、ASTM D256の方法により決定した。

10

【0028】

例I

全ての硬化工程は、約5.875inの半径の半円筒状底を有し、35.5inの長さ、11.75inの幅、及び前記半円筒状底の始まりまで8.5inの深さの大きさを有し、合計14.375inの全深さを与える大きさを有する長方形の樋の中で行った。

【0029】

この例及び本発明の例IIで用いたポリ(フェニレンスルフィド)重合体は、米国特許第3,919,177号明細書に記載された方法に従い製造された酸洗浄高分子量重合体であり、フィリップス・ペトロリアム社(Phillips Petroleum Co.)製のPR26を用いた。実験I-1、II-1、及びII-2で用いた未硬化重合体は、38.4g/10分の1270 20
押し出し速度、7.14のQCM値、及び20.3ポンド/ft³の嵩密度を持っていた。実験I-2及びII-3で用いた重合体は、36.2g/10分の1270押し出し速度、9.48のQCM値、及び22.1ポンド/ft³の嵩密度を持っていた。

【0030】

実験I-1では、重合体を硬化容器へ導入し、350~370°Fの範囲の温度で約11時間硬化し、次にその硬化容器から取り出した。

【0031】

実験I-2では、重合体を硬化容器へ導入し、300~355°Fの範囲の温度で約7.5時間硬化し、次にその硬化容器から取り出した。

【0032】

例II

この例は、パルス状連続法に従い、重合体を硬化する時の、本発明を用いた効果を記述する。

30

【0033】

実験II-1で、重合体を約5時間に亘って硬化容器へ導入し、硬化容器及び内容物の温度を特定の設定点まで上昇させた。その設定点に到達した時、容器から測定された量の硬化重合体を排出し、その排出直後に同じ量の未硬化重合体を硬化容器へ導入した。排出された重合体の1270押し出し速度が定常値に到達するまで、設定された間隔でこの排出・供給手順を繰り返した。較正容器を用いて、約4リットルの重合体の供給及び排出を達成した。硬化容器へ供給した未硬化重合体は、予め加熱されていなかったため、未硬化重合体を硬化容器へ供給する毎に約50°Fの温度低下が起きた。未硬化重合体を導入した後、毎回温度は10分以内で設定点まで上昇した。重合体除去の時間間隔は1.5時間に設定し、容器温度は0.5時間毎に測定した。硬化容器の設定点温度は、425°Fであった。硬化は約18時間に亘って行った。

40

【0034】

実験II-2は、実験II-1と同様なやり方で行った。但し硬化容器設定点は390°Fであったが、後で約360°Fへ移行した。硬化は約27時間に亘って行った。

【0035】

実験II-3は、実験II-2と同様なやり方で行った。但し、用いた重合体は、例I、実験I-2で用いたものと同じ生成物ロットから得たものであり、温度設定点は、350°F

50

と400°Fとの間で移行し、それは一つには、硬化工程中の間隔毎に排出量と供給量の大きさが変化したことによるものと考えられている。硬化工程は59時間に亘って継続した。

【0036】

例Iと例IIの硬化方法及び得られた硬化重合体の性質の比較を下の表Iに示す。本発明の方法により硬化した重合体は、既知のバッチ式硬化法に従って硬化したものに匹敵する1270押出し速度をもっていたが、本発明の方法のパルス状連続硬化を用いることにより、操作する人は、一層大きな生成速度を達成し、重合体の生成量を最大にすることができる。

【0037】

10

表 I

実験番号	硬化方式	硬化温度 (°F)	硬化時間 (時)	押出し速度 (g/10分)	QCM値
I-1	バッチ	350-370	11	20.5	3.4
I-2	バッチ	300-355	7.5	25.8	5.8
II-1	パルス	425	18	5.7	2.0
II-2	パルス	360-400	27	17.9	3.4
II-3	パルス	350-400	59	18.8	3.3

20

【0038】

例III

例I及びIIで製造した重合体を用いて配合物を形成し、それを次に機械的性質を試験するため、成型して試料とした。配合物は、PPS粉末、ガラス繊維、及び添加剤の混合物をプラスチック袋中で回転混合することにより調製した。ガラス繊維及び添加剤は、G-フィラメントガラス繊維、この例ではオーエンス・コニング(Owens-Corning)から供給されたOC497EE；エポキシシラン、この例ではユニオン・カーバイド(Union Carbide)からTC-100として入手されたγ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン；ハイドロタルサイト、この例ではキョウワ・ケミカル・インダストリー(Kiowa Chemical Industry)により供給されたDHT-4A；ポリエーテルエーテルケトン、この例ではICIから供給された380P；及び高密度ポリエチレン、この例ではフィリップス・ペトロリアム社から供給されたTR-161；から選択された。次にこの乾燥混合物を1.5in、24:1(L:D)のデビス・スタンダード(Davis-Standard)一軸押出し機で620~620°Fに設定した温度で熔融混合した。押し出し物を細断し、次にアルバーグ(Arburg)ECO305射出成形機により当業者に知られている手順を用いて試験片に成形した。試験前に、全ての試料を392°Fで2時間アニールした。ASTM D638及び790の方法を用いて、機械的性質を決定した。それらの性質を、例1に記載したやり方で製造した重合体から調製した、フィリップス・ペトロリアム社からR-4XTとして販売されている同様な組成を有する市販製品と比較した。結果を下の表IIに示す。表IIから分かるように、機械的性質は、慣用的バッチ法により硬化された重合体から調製された配合物及び本発明のパルス状連続硬化法によるものについて同等であった。パルス状連続硬化法により、操作する人は、硬化すべき各バッチについて最初の導入及び最終的除去の時間が不要になることにより、製造を最大にすることができる。

30

40

【0039】

50

表II

重合体	ノッチ付	ノッチなし	引張りモ	引張り	曲げモ	曲げ	QCM
配合物	アイゾット	アイゾット	ジュラス	破断強度	ジュラス	強度	値
実験	ftlb/in	ftlb/in	Ksi	Ksi	Ksi	Ksi	
II-1 (本発明)	1.31	13.2	2310	25.4	2000	40.6	1.31
II-2 (本発明)	1.39	12.8	2280	27.5	2020	41.4	1.42
I-1	1.38	13.8	2250	27.4	2040	40.4	1.20
II-3 (本発明)	1.38	13.3	2340	28.4	2030	39.5	1.97
I-2	1.35	11.3	2400	24.8	2030	38.8	2.39
R-4XT	1.50	13.6	2500	27.8	2100	40.4	1.85

10

20

【0040】

本発明を例示の目的から詳細に記述してきたが、本発明は、それによって限定されるものではなく、全ての合理的な修正は本発明の範囲内に入るものである。

フロントページの続き

- (72)発明者 フォドーア、ジェフリー、エス
アメリカ合衆国 テキサス、ボージャー、スカイクレスト 209
- (72)発明者 サウス、オードリー、ジュニア
アメリカ合衆国 オクラホマ、バトルズヴィル、エスイー ルイス ドライブ 4725
- (72)発明者 ヴィドーリ、フェルナンド、シー、ジュニア
アメリカ合衆国 オクラホマ、バトルズヴィル、マーティン レイン 5925

審査官 米村 耕一

- (56)参考文献 米国特許第04370471(US, A)
欧州特許出願公開第00518702(EP, A1)
特開昭59-174314(JP, A)
特開平06-065376(JP, A)
特開平07-165933(JP, A)
特開平08-120081(JP, A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
C08J 3/00-3/40