

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5155295号
(P5155295)

(45) 発行日 平成25年3月6日(2013.3.6)

(24) 登録日 平成24年12月14日(2012.12.14)

(51) Int.Cl. F 1
CO8C 1/06 (2006.01) C O 8 C 1/06

請求項の数 1 (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願2009-502062 (P2009-502062)	(73) 特許権者	501140348
(86) (22) 出願日	平成19年3月26日 (2007.3.26)		クレイトン・ポリマーズ・リサーチ・ペー
(65) 公表番号	特表2009-531497 (P2009-531497A)		・ペー
(43) 公表日	平成21年9月3日 (2009.9.3)		オランダ国、1030・ペー・ハー・アム
(86) 国際出願番号	PCT/EP2007/052887		ステルダム、ペー・オー・ボックス・37
(87) 国際公開番号	W02007/110417		666
(87) 国際公開日	平成19年10月4日 (2007.10.4)	(74) 代理人	100062007
審査請求日	平成20年11月18日 (2008.11.18)		弁理士 川口 義雄
(31) 優先権主張番号	06111783.4	(74) 代理人	100114188
(32) 優先日	平成18年3月27日 (2006.3.27)		弁理士 小野 誠
(33) 優先権主張国	欧州特許庁 (EP)	(74) 代理人	100140523
			弁理士 渡邊 千尋
		(74) 代理人	100119253
			弁理士 金山 賢教

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 人工ラテックスの調製の方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(a) ゴムの粒度を縮小し、顆粒をより短い溶解時間で生成するステップ、
 (b) ステップ(a)の顆粒が炭化水素溶媒に溶解される、接合剤形成のステップ、
 (c) 水性石鹼溶液の調製のステップ、
 (d) ステップ(c)において調製された水性石鹼液を使用して水中油型エマルジョンを形成する、ステップ(b)において形成された接合剤を乳化するステップ、ならびに
 (e) 炭化水素溶媒を除去し、ゴムの水性エマルジョンをもたらすステップ、または
 (e) 炭化水素溶媒を除去し、ゴムの水性エマルジョンをもたらすステップと、それに
 続く

(f) エマルジョンを濃縮し、より高い固体含有量を有する人工ラテックスを形成する
 ステップ
 を含み、
 ステップ(a)において、細断機および/または造粒機を使用して粒度縮小が実行され、
石鹼が加工助剤として使用されることを特徴とする、
 水性ゴムエマルジョン(人工ラテックス)を調製するための方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、水におけるゴムのエマルジョン(いわゆる「人工ラテックス」)を製造する

方法に関する。特に、本発明は、共役ジエンポリマーラテックス、より具体的にはイソプレングムラテックスの調製に関する。

【背景技術】

【0002】

天然ゴムラテックスおよび合成ゴムラテックスは、双方とも水におけるゴムのエマルジョンである。このエマルジョンは、タンパク質または界面活性剤を加えると安定する。ゴム粒子の直径は、平均が、下は一部の合成ラテックスの0.1ミクロンほどから、天然ラテックスのほぼ1ミクロンくらいまでになる。用語「ラテックス」は、合成ならびに天然のラテックスに適用され、ゴムの木から取り出された白濁液の植物名に由来しており、この白濁液は、天然ゴムの原料である。用語「漿液」は、水性媒体に対して使用される。

10

【0003】

水におけるゴムのエマルジョンを製造する方法は、長い間に既知事項となっている。例えば、特許引用0001：US2595797において、次のステップが知られている：

1. 乳化に十分な濃度における非水溶性の揮発性有機溶媒においてゴム様ポリマーの溶液を調製するステップ、
2. 界面活性剤（例えば、スルホコハク酸ナトリウムのジオクチルエステル）を含有する水の中に、加圧下でこの溶液を導入するステップ、
3. 消泡剤（例えば、ポリシリコン油）を加え、エマルジョンが得られるまでこの混合物を攪拌するステップ、
4. 瞬間蒸発（flash）によって（過剰な発泡を避けながら）溶媒を除去するステップ、
5. エマルジョンを24時間放置して、エマルジョンの固形分を濃縮し、漿液（2%未満の固体を含有）を除去するステップ。

20

【0004】

同様に、特許引用0002：US2799662において、エラストマーの水性分散液を製造するための方法が記載されており、この方法は、乾燥ポリマー材料を適当な選択された溶媒に溶解するステップ、こうして調製されたポリマー溶液を慎重に選択され調整された水-乳化剤系中に分散するステップ、および最終的にポリマー分散液を残すために溶媒を取り除く（strip）ステップを含む数々の統合的ステップからなっている。この文献によれば、水性乳化剤系の調製においては、2種の乳化剤を存在させることが非常に望ましく、炭化水素可溶性タイプ（例えば、アルキル-アリアル構造に配列された20から21個の炭素原子を有する石油スルホナートアルカリ金属塩）の1種と、水溶性タイプ（例えば、高級アルコールの硫酸アルカリ金属塩誘導体）の1種である。ポリマー-溶媒混合物と水性乳化剤混合物との乳化は、溶媒の瞬間蒸発を抑制した状況下で達成される。

30

【0005】

溶媒を取り除いたときのエマルジョンの安定性の問題は、特許引用0003：US2871137において取り組まれており、この特許は、乳化される炭化水素ポリマーに応じた乳化剤を調製するための方法を提供する。

40

【0006】

ポリマー材料または樹脂材料の安定したエマルジョンを調製するための方法は、更に、特許引用0004：US2947715に記載されている。これは、適当な溶媒にゴムまたは樹脂を溶解するステップ、乳化の間にこのポリマー溶液にクリーム化剤を加えるステップ、および溶媒の除去に先立って、生じたラテックスをクリーム化して溶媒を除去した後で無溶媒のラテックスを再びクリーム化するステップによって達成される。

【0007】

特許引用0005：US2955094において、

50

炭化水素ポリマー由来のエマルジョンラテックスの調製における乳化剤として、オルトリン酸および有機硫酸塩が使用される。この文献において示されるように、ラテックスは、比較的不安定であり、機械的ストレスにさらされると凝固する傾向があることが経験上知られている。機械的不安定性が、コロイドを攪拌する攪拌機の単純な動きによって引き起こされ得る。装置が、凝固したゴムで覆われ、更にゴムのかなりの量が失われるので、メンテナンス費用が増加する。ポリマーラテックスに付随する別種の不安定性は、溶媒の取り除きステップの間にポリマーラテックスから油分が分離し、凝固ゴムを発生することである。

【0008】

特許引用0006：US3250737において、
溶液重合法によって製造された合成エラストマーが、技術の進歩と変化により大きな注目を集めていることが言及されている。この文献は、迅速、効率的および経済的にも、合成エラストマーの濃縮されたラテックスをこの有機溶液から製造することを目指していた。これは、有機溶媒、水および乳化剤中に合成エラストマーの溶液を混合するステップ、少なくとも生じるエマルジョンが安定するまでこの混合物を均質化するステップ、水が沸騰する条件を下回る程度に温度と圧力を上昇させて有機溶媒を取り除くステップ、生じた希薄水性ラテックスを遠心分離機にかけるステップ、前記遠心分離のステップから水性漿液を回収して再循環させるステップおよび濃縮ラテックスを回収するステップによって成し遂げられる。この文献は、瞬間蒸発および遠心分離のステップに焦点を合わせており、炭化水素溶液の作製法は重視していない。

【0009】

先行技術で記載されるような全般的方法の印象を与えるために、
非特許引用0001：Stanford Research Institute . P E P Report No . 82 . : S R I , 1972 の第9章に記載の方法について述べている。

すなわち、イソペンタン中のポリイソブレンの溶液が予混合タンクへ送られ、ここで漿液貯蔵部からの石鹼液（大部分は漿液の再循環物）と予混合される。混合物は、再循環物対新供給物の比が約2：1である乳化ルーブへ送られる。乳化機は、高速（3,500rpm）遠心ポンプである。エマルジョンは、貯蔵タンクへ通過して行き、ここでエマルジョンは3時間保持され、何らかの「クリーム」（過大粒子を伴うエマルジョン）が上面に上昇し、再循環されるようにする。こうして、約1%のエマルジョンは再循環されて、予め十分に乳化されなかった若干量の完全な乳化を確実に行う。もし乳化された接合剤のいずれかの部分が、この部分から溶媒が瞬間蒸発されまたは取り除かれたときに過大粒子の形になっていると、生じるポリマーが、コロイド懸濁液のまままでとどまることができずに、析出して装置を詰まらせる。貯蔵タンクから、エマルジョンをヒーターへ送り、ここでは溶媒のかなりの部分（水の少量部分のみだが）が蒸発して気泡になり、ホイップクリームに似た泡状物質の形成を引き起こす。この泡状物質が一時貯留タンクに送られると、溶媒が、泡状物質全体にあるポリマーに対して平衡濃度に達することが可能となる。次いで、この泡状物質を約10psigで110°Fまで冷却して溶媒を凝結させ、泡状物質を破壊する。凝結した溶媒は、水性エマルジョン相から分離した液相を形成する。この混合物は、スチールウールを詰めたコアレッサーを通してセパレータに送られる。分離した溶媒は、溶媒サージタンクに移される。エマルジョンは、遠心分離機にかけられて遠心分離機中において濃縮され、ある量の漿液が分離されて漿液貯蔵タンクに再循環される。濃縮エマルジョンにおけるポリマー粒子は、まだ溶媒を含有しているので、エマルジョンは、気泡形成、気泡破壊、および相分離の第2段階を通過させられる。第2段階で分離された溶媒も、溶媒サージタンクへ移される。第2段階のエマルジョン相は、瞬間蒸発ヒーターにおいて180°Fまで加熱され、瞬間蒸発タンク内にとどまっている溶媒は瞬間蒸発される。この溶媒は、溶媒サージタンク内に凝結され、貯蔵される。一部の水も、瞬間蒸発タンクから瞬間蒸発されて、凝結され、分離され、石鹼溶液タンクへ再循環される。瞬間蒸発タンクからのラテックスは、約24%の固体ゴムを含有している。このラテックスは、

10

20

30

40

50

エマルジョン冷却機において110°Fまで冷却され、遠心分離機において64%まで濃縮され、最終的に集められてラテックス製品貯蔵容器に貯蔵される。濃縮ステップにおいて回転分離した漿液は、漿液貯蔵容器へ再循環される。

【0010】

特許引用0007:GB1295250において、高分子量ポリマー組成物の溶媒分散物からの水性空間格子の製造に関して、一発明が記載されている。この方法は、時間を要する漸進的な取り除きによる溶媒の除去を必要とする。この方法の開始時点で、高分子量ポリマーを、ラバーミル、Banbury等の適当な素練り装置内でこね、ここで高温および/または高剪断力をかけたポリマー材料を、半補強剤もしくは非補強剤、軟化材、ファクチスおよび他の加工助剤等の化合物と共に素練りし、所望の加工粘度を実現する。こうして見ると、この文献の方法は、ポリマーに異物を取り込むことであるように見える。更に、素練りの結果は、平均分子量の低減、即ち粘度の低減を生ずる分解になる。分子量を低下させずにポリマーを粒状化するための方法は開示されていない。

10

【0011】

特許引用0008:GB893066において、cis-1,4-ポリイソプレンを基にしたエマルジョン、空間格子および泡状物質を作るために、一方法が記載されている。この文献は、固形クラムとしてcis-1,4-イソプレンを製造し、溶液重合系からcis-1,4-イソプレンのエマルジョンおよび空間格子の調製を導入する手順を記載している。実際に約85から97%以上のcis-1,4含有量を有することができるポリイソプレンは、不活性希釈剤中で実施される、いかなる既知の溶液重合手段によっても調製することができ、この場合生じるポリマーは、重合反応の終点で希釈剤中の溶液中に含有される。この文献は、乳化手順の詳細な説明を提供し、ここではポリマーの溶液が使用される。この文献は、乾燥ポリイソプレンからこのような溶液の調製については記載していない。

20

【0012】

特許引用0009:US3310515は、エラストマーの有機溶媒溶液からの空間格子の調製に関係している。合成ラテックスは、発泡ゴムまたは多孔性製品の製造において大いに有用である。ポリマー溶液からラテックスを調製するための通常の手順において、第1の目的は、連続するスポンジまたは薄い浸漬形状を形成するためのゲル化を受け入れる程に不安定であっても、形成、取り除きおよび濃縮の加工ステップにおいて凝固ゴムの形成に抵抗性があるラテックスを調製することである。この発明は、適切な安定性のために必要な範囲内である平均粒度の、望ましい態様を有しており、同時に、幾つかの手段のいずれによる濃縮にも適当である合成エラストマーの空間格子を調製するための方法を提供し、この方法は、エラストマー接合剤の乳化、およびそれに続いての処理を含み、水性媒質においてエラストマーのラテックスを得る。固形のエラストマーは、溶解または再溶解され得るが、これをどのように行うかは、開示されていない。

30

【0013】

興味深いことに、適当な溶媒に乾燥ポリマー材料を溶解するステップは、一般的に詳細には記載されていないが、このステップは、方法においておよび/または炭化水素ポリマー-有機溶媒の溶液から製造されるラテックスにおいて障害になりおよび/または更に問題を引き起こし得る。

40

【0014】

このように、より小さい粒子(より大きな表面)が、より大きな粒子より迅速に溶解するということは、常識になっている。イソプレンゴム(以後、「IR」)および類似の炭化水素ポリマーは、一般的にはボール(ball)の形で売られ、輸送されている。このため、IRをより迅速に有機溶媒に溶解するには、炭化水素ポリマーを細断しおよび/または粒状化することであることは明白である。

【0015】

50

特許引用 0010 : GB 983297

は、例えば、ジエンポリマー材料の水性分散物を製造するための方法に関しており、この分散物は、非水和性溶媒においてポリマーの溶液を形成するステップ、乳化剤を添加するステップ、生じる混合物のエマルジョンを形成するステップおよびこのエマルジョンから溶媒を除去するステップによって調製される。実施例 1 において、cis-1,4-ポリイソプレンが、3/4" (インチ) 四方で 1/4" の厚さに切断/細断された。この文献は、切断/細断ステップ自体を開示していない。その一方で、IR および類似のゴム材料は、切断しおよび/または粒子化するのが難しく、もし溶解ステップの前に何らかの輸送または貯蔵の形態がある場合には、再び集塊になる(低温フロー特性に起因する)傾向も有している。それ故に、先行技術の方法を更に改良する必要性がまだ残っている。類似した結論は、以下に基づいて導き出すことができ、

10

特許引用 0011 : US 5792494、

この特許は、単に固体エラストマーの粒度を(例えば、粉碎によって)5センチメートル未満に低減させることを記載している。これを効率的に、異物のブロッキングおよび/または導入を伴わずに行う方法は、検討されていない。

【0016】

散粉剤(タルク粉、またはステアリン酸亜鉛等)の使用は、ポリマー粒子の凝固を防ぐために普通に行われている。一方で、生じるラテックス中に異物を有するのは非常に望ましくないことである。実際、医療用手袋およびコンドーム等の浸漬商品の調製においては、いかなる形態の異物も避けるべきである。それ故に、タルク粉の使用は薦められない。

20

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0017】

本発明の一目的は、ポリマーラテックスの調製において使用されるはずの炭化水素ポリマー-有機溶媒の溶液を調製するための改良された方法を提供することである。本発明の更なる目的は、ポリマーラテックスを作るための改良された方法を提供することである。

【0018】

このように、前述の不都合に悩むことなく人工ラテックスを調製するための方法にはなお利益があることは、明らかである。これ以後、個別でもよいが特に各々を組み合わせた場合に調製方法の実行可能性を大いに向上させ、同時に、こうして調製された人工ラテックスの高品質も維持する方法の変形態態を提供する。

30

【課題を解決するための手段】

【0019】

(a) ゴムの粒度を縮小し、顆粒をより短い溶解時間で生成するステップ、
 (b) ステップ(a)の顆粒が適当な炭化水素溶媒に溶解される、接合剤形成のステップ、
 (c) 水性石鹼溶液の調製のステップ、
 (d) ステップ(c)において調製された水性石鹼液を使用して水中油型エマルジョンを形成する、ステップ(b)において形成された接合剤を乳化するステップ、
 (e) 炭化水素溶媒を除去し、ゴムの水性エマルジョンをもたらすステップ、および場
 合によって
 (f) エマルジョンを濃縮し、より高い固体含有量を有する人工ラテックスを形成する
 ステップ

40

を含み、

ステップ(a)において、細断機および/または造粒機を使用して粒度縮小が実行され、ステップ(c)および(d)において使用される石鹼と同じであることが好ましい石鹼が加工助剤として使用されることを特徴とする、

水性ゴムエマルジョン(人工ラテックス)を調製するための方法。

【発明を実施するための最良の形態】

【0020】

50

人工ラテックスを形成するために使用されるゴムは、通常は当技術分野において公知の溶媒重合によって作られるいかなるポリマーでもよい。このゴムには、例えば、ポリイソブチレンおよびこのコポリマー、ポリビニル化合物（例えば、アクリル酸およびメタクリル酸エステルおよびポリビニルエーテルおよび更にセルロース誘導体）、スチレンと共役ジエンおよびまたはアクリロニトリルとのコポリマー、およびジオレフィン同士の（コ）ポリマーが含まれる。ポリマーの更なる種類は、エチレンと、エチレンとプロピレンとのエラストマー系のコポリマー、エチレンとブタン - 1 とのコポリマー等の、エチレンと 8 個までの炭素原子を有する 1 種の他のモノレフィンとから調製されるコポリマーである。ゴム様ポリマーの別の種類は、エチレン、プロピレンおよび 1, 5 - ヘキサジエン等のジエンから得られるターポリマーである。

10

【0021】

特に興味深いのはジエンの代表例としてのブタジエンおよびイソブレンを含むジオレフィンの（コ）ポリマーである。これらの（コ）ポリマーは、高い *cis* - 1, 4 含有量まで（少なくとも約 90% 程度）溶液重合によって重合されることが好ましい。これらの（コ）ポリマーは、更に（非常な）高分子量であるのが特徴である。これらは、チーグラー系触媒よりもむしろリチウム触媒の存在下でアニオン重合によって作られることが最も好ましく、こうすることで非常な低灰分含量が確保される。ゴム様ポリマーは、イソブレンゴムであることが最も好ましく、例えば KRATON Polymers によって商品化された品質等級品のいずれか 1 つがある。

【0022】

本発明の方法は、天然ゴムのペールを使用して作られる人工ラテックスの場合にも適用可能である。

20

【0023】

ゴム様ポリマー、好ましくはイソブレンゴムは、いずれかの適当な溶媒に溶解することができる。選ぶべき溶媒に関して、溶媒の選択は、ゴムの厳密な性質と溶媒自体の沸点にいくらか依拠する。ゴムを（迅速および容易に）溶解する溶媒が使用されることが必須である。より極性の少ないポリマーに対しては、4 から約 10 個までの炭素原子を有する脂肪族炭化水素溶媒が有用である。これらには、イソペンタン、シクロペンタン、*n* - ペンタン、ヘキサン類、ヘプタン類、オクタン等が含まれる。イソブレンゴムに対しては、好ましい溶媒は *n* - ペンタンである。

30

【0024】

溶媒中に溶解されるゴム様ポリマーの量に関する通常の方法は、溶媒におけるポリマーの溶解度の範囲である。イソブレンゴムの場合、好ましい濃度は、20 重量パーセント未満の固体含量で、好ましくは 10 - 15 重量パーセントである。ゴム様ポリマーの量を規定する別法は、ポリマー溶液の粘度によるもので、好ましくは粘度が 20,000 センチポアズ（25 で）を下回るべきである。

【0025】

天然ゴムまたは合成ゴムにかかわらず、ゴムペールの粒度縮小のために、細断機および/または造粒機を使用することができる。1 ステップまたは 2 ステップの調製において、ゴムを標準のペールのサイズから 50 mm より小さい、好ましくは 25 mm より小さい、より好ましくは 15 mm より小さい平均粒度に縮小させることができる細断機および/または造粒機を使用することが好ましい。約 5 mm より小さい粒度は、一般に更なる有利さを提供しない。

40

【0026】

この準備ステップに関しては特定の条件はない。明らかに装置製造者によって示された安全条件には従わねばならないし、ゴムの分解は避けられねばならない。

【0027】

原則としていかなる石鹼も使用することができる。しかし、本発明の根底に横たわる問題は、こうして製造されたラテックスの使用を制限する異物を避けることなので、石鹼は、食品および皮膚に許容されるものが好ましい。後続のステップ（c）および（d）にお

50

いて使用されている石鹼と同じであることがより好ましい。I Rラテックスの調製に関しては、ロジン系石鹼を使用することが好ましい。

【0028】

この石鹼は、水において0.5と5重量%との間の濃度で使用されることが好ましい。もっと濃縮された溶液を使用してもよいが、一般的には何の利点もない。石鹼溶液の調製に使用される水の硬度が重要であるという点に注意されたい。石鹼溶液の調製のためには、超軟水（硬度0 - 4）または軟水（硬度4 - 8）を使用すべきである。

【0029】

ステップ（a）の間に使用する石鹼の量は、粒度縮小ステップにおいて使用される装置に依拠する。細断機および/または造粒機においてまたはこの直後の間の再集塊を避けるために、十分な石鹼が使用されるべきである。過剰な石鹼は再循環することができる。言い換えれば、石鹼の量はそれほど重要ではなく、むしろ当業者であれば決めるのはたやすい。適切な開始点は、石鹼溶液対ゴムの量の重量比で、3：1から1：3であり、好ましくは2：1から1：2である。

10

【0030】

顆粒化されたゴムの開始材料は、任意の普通の手段によって溶媒中に溶解されてよい。例えば、これを攪拌タンクにおける溶媒中で（これの沸点を下回る温度で）溶解してよい。

【0031】

このラテックスは、当技術分野では既知の方法のいずれによっても作ることができる。これには、段落[0003]から[0015]で引用された先行文献のそれぞれ、（参照によって本明細書に含まれる。）、およびNL287078；GB1004441；US3249566；US3261792；US3268501；US3277037；US3281386；US3287301；US3285869；US3305508；US3310151；US3310516；US3313759；US3320220；US3294719；GB1162569；GB1199325；US3424705；US3445414；SU265434；US3583967；GB1327127；US3644263；US3652482；US3808166；US3719572；DE2245370；JP48038337；FR2153913；GB1296107；FR2172455；US3815655；US3839258；US3842052；GB1384591；US3879326；US3892698；US3862078；US3879327；US3886109；US3920601；JP51080344；JP50127950；JP54124042；JP54124040；US4243566；JP56161424；US4344859；SU1014834；JP58091702；SU1375629；JP1123834；SU520769およびRO102665；加えてUS3007852；US3622127；US4160726；GB2051086；JP58147406；SU1058974；EP512736；JP8120124およびUS6075073（参照により本明細書に含まれる。）が含まれる。

20

30

【0032】

次の実施例は、本発明が実行され得る方法をより詳細に更に例示するが、いずれにしても本発明をこれらに制限する意図はない。

40

【実施例1】

【0033】

幾つかの粒度縮小テストが、装置の組合せ（例えば、細断機および粉碎機）または単一の機械（例えば、造粒機）のどちらかを使用して行われた。造粒機を使用すると非常に良い結果が得られた。

【0034】

供給シュート、ナイフミル内の回転子および固定子ナイフおよび適切なメッシュサイズ（25mm未満）の篩を装備した造粒機を使用したテストにおいて、I Rのボール（約3

50

4 k g) および半分大のペールが使用された。

【 0 0 3 5 】

散粉剤を使用すれば、ほとんど詰まりなしに I R のペールを粒状化することができた。しかし、散粉剤を使用しないときは、詰まりが起こった。1 . 5 重量%の濃度(脱ミネラル化水で調製)のロジン系石鹼を散粉剤ではなく加工助剤として、5 k g のゴムに約 3 k g の石鹼の比で使用することが、2 5 m m 未満の小さな平均粒度のゴム粒子での優れた処理量をもたらした。

フロントページの続き

(74)代理人 100103920

弁理士 大崎 勝真

(74)代理人 100124855

弁理士 坪倉 道明

(72)発明者 フアン・デル・ハイゼン, アドリック

オランダ国、エヌ・エル - 1 0 3 0 ・ ベー ・ ハー ・ アムステルダム、イー・ペー・サービシーズ

(72)発明者 フュルトン, ジヤン

オランダ国、エヌ・エル - 1 0 3 0 ・ ベー ・ ハー ・ アムステルダム、イー・ペー・サービシーズ

(72)発明者 フアン・デル・ワール, アーウィン

オランダ国、エヌ・エル - 1 0 3 0 ・ ベー ・ ハー ・ アムステルダム、イー・ペー・サービシーズ

審査官 福井 美穂

(56)参考文献 特表2003-517073(JP, A)

英国特許出願公開第00983297(GB, A)

英国特許出願公開第01295250(GB, A)

特開昭53-071148(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C08C 1