(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2014-524958
(P2014-524958A)
(43)公表日　平成26年9月25日(2014.9.25)

(51)Int.Cl.		F I		テーマコード（参考）
C08G 63/181	(2006.01)	C08G 63/181	ZBP	4F071
C08L 67/02	(2006.01)	C08L 67/02		4J002
C08J 5/18	(2006.01)	C08J 5/18	CFD	4J029
C08L 101/16	(2006.01)	C08L 101/16		4J200

審査請求 有　予備審査請求 未請求　（全 24 頁）

(21)出願番号　特願2014-520355 (P2014-520355)
(86)(22)出願日　平成24年7月13日 (2012.7.13)
(85)翻訳文提出日　平成26年1月14日 (2014.1.14)
(86)国際出願番号　PCT/US2012/046625
(87)国際公開番号　WO2013/012705
(87)国際公開日　平成25年1月24日 (2013.1.24)
(31)優先権主張番号　13/183,807
(32)優先日　平成23年7月15日 (2011.7.15)
(33)優先権主張国　米国(US)

(71)出願人　502132128
サウディ　ベーシック　インダストリーズ　コーポレイション
サウディアラビア王国　１１４２２　リヤド　ピーオー　ボックス　５１０１
(74)代理人　110001210
特許業務法人ＹＫＩ国際特許事務所
(72)発明者　アリデデオグル　フスヌ　アルプ
アメリカ合衆国　インディアナ　マウント　ヴァーノン　レキサン　レーン　1
(72)発明者　カナン　ガーネッシュ
アメリカ合衆国　インディアナ　マウント　ヴァーノン　レキサン　レーン　1

Fターム(参考)　4F071 AA45X AF34 BB04 BB06 BC01

最終頁に続く

(54)【発明の名称】ポリ（ブチレン－コ－アジパートテレフタレート）の色安定化法

(57)【要約】
芳香族ポリエステルから誘導した脂肪族－芳香族コポリエステルを含む生分解性組成物、この組成物の製造法およびこの組成物で作られた物品。

【特許請求の範囲】
【請求項１】
生分解性の脂肪族－芳香族コポリエステルであって、
前記コポリエステルは、
（ａ）エチレングリコール基、１，２－プロピレングリコール基、１，３－プロピレングリコール基、１，２－ブタンジオール基、２，３－ブタンジオール基、１，４－ブタンジオール基、テトラメチルシクロブタンジオール、イソソルビド基、１，３－シクロヘキサンジメタノール基、１，４－シクロヘキサンジメタノール基、ヘキシレングリコール基、生物系ジオール基、およびこれらの組み合わせより選ばれる二価アルコール基と、
（ｂ）ポリ（エチレンテレフタレート）、ポリ（ブチレンテレフタレート）、ポリ（トリメチレンテレフタレート）、およびこれらの組み合わせより選ばれる、解重合した芳香族ポリエステル成分から誘導した芳香族ジカルボン酸基と、
（ｃ）少なくとも３個の－ＯＨ基を持つC_{5-12}化合物、サリチル酸メチル、およびこれらの組み合わせより選ばれる減色化合物と、
（ｄ）アジピン酸基と、
（ｅ）イソフタル酸基、アンチモン含有化合物、ゲルマニウム含有化合物、コバルト含有化合物、スズ、スズ含有化合物、チタン、アルミニウム、アルミニウム塩、アルカリ塩、アルカリ土類金属塩、リン含有化合物、硫黄含有化合物、ナフタレンジカルボン酸基、エポキシ類、およびこれらの組み合わせより選ばれる芳香族ポリエステル残基と、
を含み、
前記脂肪族－芳香族コポリエステルは、少なくとも２万ドルトンの数平均分子量と２から６未満の多分散度を持ち、
前記コポリエステルは、色度計を用いたＤ６５照明での測定で、少なくともＬ＊＝７０．０；ａ＊＝－８．０；ｂ＊＝１５．０の白色度を持つ、
ことを特徴とする、生分解性の脂肪族－芳香族コポリエステル。
【請求項２】
前記二価アルコール基は、１，４－ブタンジオール基、１，３－プロパンジオール基、エチレングリコール基、またはこれらの組み合わせより選ばれることを特徴とする、請求項１に記載のコポリエステル。
【請求項３】
前記芳香族ポリエステル成分は、石油系１，３－プロパンジオールから誘導したポリ（トリメチレンテレフタレート）、生物系１，３－プロパンジオールから誘導したポリ（トリメチレンテレフタレート）、石油系１，４－ブタンジオールから誘導したポリ（ブチレンテレフタレート）、生物系１，４－ブタンジオールから誘導したポリ（ブチレンテレフタレート）、使用済みポリ（エチレンテレフタレート）から誘導したポリ（トリメチレンテレフタレート）、使用済みポリ（エチレンテレフタレート）から誘導したポリ（ブチレンテレフタレート）、未使用のポリ（エチレンテレフタレート）、リサイクルしたポリ（エチレンテレフタレート）、使用済みポリ（エチレンテレフタレート）、リサイクルしたポリ（トリメチレンテレフタレート）、テレフタル酸とエチレングリコールおよびシクロヘキサンジメタノールとから成るリサイクルしたコポリエステル、およびこれらの組み合わせより選ばれるポリマーを含むことを特徴とする、請求項１または請求項２に記載のコポリエステル。
【請求項４】
前記芳香族ポリエステル成分は、ポリ（ブチレンテレフタレート）を含み、
前記芳香族ポリエステル残基は、チタン、チタン含有化合物、スズ、スズ含有化合物、エポキシ類、およびこれらの組み合わせより選ばれる、
ことを特徴とする、請求項１から請求項３のいずれか１項に記載のコポリエステル。
【請求項５】
前記芳香族ポリエステル成分は、ポリ（トリメチレンテレフタレート）を含み、
前記芳香族ポリエステル残基は、チタン、スズ、エポキシ類、およびこれらの組み合わ

せより選ばれる、
ことを特徴とする、請求項１から請求項３のいずれか１項に記載のコポリエステル。
【請求項６】
前記芳香族ポリエステル成分は、ポリ（エチレンテレフタレート）ホモポリマー、ポリ（エチレンテレフタレート）の共重合体、またはこれらの組み合わせを含み、
芳香族コポリエステル残基は、イソフタル酸基、アンチモン含有化合物、ゲルマニウム含有化合物、コバルト含有化合物、スズ含有化合物、アルミニウム、アルミニウム塩、アルカリ塩、アルカリ土類金属塩、リン含有化合物、硫黄含有化合物、ナフタレンジカルボン酸基、およびこれらの組み合わせより選ばれる、
ことを特徴とする、請求項１から請求項３のいずれか１項に記載のコポリエステル。
【請求項７】
前記二価アルコール基は、エチレングリコール基と、ジエチレングリコール基、１，３－シクロヘキサンジメタノール基のシス異性体、１，４－シクロヘキサンジメタノール基のシス異性体、１，３－シクロヘキサンジメタノール基のトランス異性体、１，４－シクロヘキサンジメタノール基のトランス異性体、およびこれらの組み合わせの１つ以上とを含む混合物から選ばれることを特徴とする、前記請求項のいずれか１項に記載のコポリエステル。
【請求項８】
前記芳香族ポリエステル残基は、イソフタル酸基を更に含むことを特徴とする、前記請求項のいずれか１項に記載のコポリエステル。
【請求項９】
前記減色化合物は、少なくとも３個のヒドロキシル基、少なくとも１個のヒドロキシル基と２個のカルボン酸基、または少なくとも２個のヒドロキシル基と１個のカルボン酸基を持つC_{5-12}化合物であることを特徴とする、前記請求項のいずれか１項に記載のコポリエステル。
【請求項１０】
前記減色化合物は、ソルビトール、マンニトール、キシリトール、ペンタエリトリトール、アスコルビン酸、リンゴ酸、サリチル酸メチル、およびこれらの組み合わせより選ばれることを特徴とする、前記請求項のいずれか１項に記載のコポリエステル。
【請求項１１】
前記減色ポリオールは、ソルビトール、マンニトール、およびこれらの組み合わせより選ばれることを特徴とする、前記請求項のいずれか１項に記載のコポリエステル。
【請求項１２】
メタクリル酸グリシジル共重合体、ビスフェノールＡエポキシ、およびこれらの組み合わせより選ばれるエポキシ化合物の残基を更に含むことを特徴とする、前記請求項のいずれか１項に記載のコポリエステル。
【請求項１３】
－３５℃から０℃のＴｇと、９０℃から１６０℃のＴｍを持つことを特徴とする、前記請求項のいずれか１項に記載のコポリエステル。
【請求項１４】
生分解性組成物であって、
前記生分解組成物は、
（ｉ）組成物の総重量に対して１０超から５９．９９質量％の、前記請求項のいずれか１項に記載の脂肪族－芳香族コポリエステルと、
（ｉｉ）組成物の総重量に対して４０超から８９．９９質量％未満の、脂肪族ポリエステル、脂肪族ポリカーボネート、澱粉、芳香族ポリエステル、環状脂肪族ポリエステル、ポリエステルアミド、芳香族ポリカーボネート、およびこれらの組み合わせより選ばれるポリマーと、
（ｉｉｉ）組成物の総重量に対して０．０１から５質量％の、核生成剤、酸化防止剤、ＵＶ安定剤、可塑剤、エポキシ化合物、溶融強度添加剤、およびこれらの組み合わせより

選ばれる添加剤と、
（ｉｖ）組成物の総重量に対して０．０１から４５質量％の、アルコール、アセタート、アルコール－アセタート共重合体、およびこれらの組み合わせより選ばれる添加剤と、
（ｖ）組成物の重量に対して０．０１から２質量％の、架橋剤、老化防止剤、劣化剤（retrogradation agents）、ブロッキング防止剤、水、臭気調整剤、およびこれらの組み合わせより選ばれる添加剤と、
の組み合わせを含むことを特徴とする生分解性組成物。
【請求項１５】
前記脂肪族ポリエステルは、ポリ乳酸、ポリ（ヒドロキシアルカノアート）、ポリ（ブチレンスクシナート）、ポリ（ブチレンアジパート）、ポリ（ブチレンスクシナートアジパート）、ポリ（カプロラクトン）、およびこれらの組み合わせより選ばれることを特徴とする、請求項１４に記載の組成物。
【請求項１６】
請求項１４または請求項１５の生分解性組成物を、押し出し、カレンダー処理、押出成形、ブロー成形、溶媒キャスト、または射出成形したことを特徴とする物品。
【請求項１７】
前記物品はフィルムであることを特徴とする、請求項１６に記載の物品。
【請求項１８】
前記フィルムは、前記生分解性組成物の押出成形またはカレンダー処理によって成形されることを特徴とする、請求項１７に記載のフィルム。
【請求項１９】
請求項１から請求項１３のいずれか１項に記載のコポリエステルの製造法であって、
前記製造法は、
（ａ）
（ｉ）芳香族ポリエステル成分を、
（ｉｉ）エチレングリコール、１，２－プロピレングリコール、１，３－プロピレングリコール、１，２－ブタンジオール、２，３－ブタンジオール、１，４－ブタンジオール、テトラメチルシクロブタンジオール、イソソルビド、１，３－シクロヘキサンジメタノール異性体、１，４－シクロヘキサンジメタノール異性体、ヘキシレングリコール、生物系ジオール、およびこれらの組み合わせより選ばれるジオール成分、および、
（ｉｉｉ）アジピン酸、アジピン酸オリゴマー、およびこれらの組み合わせより選ばれるアジピン酸成分と、
（ｉｖ）少なくとも３個の－ＯＨ基を持つC_{5-12}化合物、サリチル酸メチル、およびこれらの組み合わせより選ばれる減色化合物の存在下、
反応器中、少なくとも大気圧である圧力と１７０℃から２５０℃の温度範囲で、不活性雰囲気中、撹拌しながら、前記芳香族ポリエステル成分を解重合して溶融混合物とするのに十分な条件下で、また、１６０℃から２５０℃未満の温度で反応させて、反応混合物を生成することにより、芳香族ポリエステル成分を解重合する工程と、
（ｂ）前記反応混合物を、２Ｔｏｒｒ（約２．６ｈＰａ）未満の圧力と２２０から２６０℃未満の温度で減圧蒸留して、溶融コポリエステルを生成する工程と、
を含むことを特徴とする、コポリエステルの製造法。
【請求項２０】
前記反応混合物は、メタクリル酸グリシジル共重合体、ビスフェノールＡエポキシ、およびこれらの組み合わせより選ばれるエポキシ化合物を更に含むことを特徴とする、請求項１９に記載の製造法。
【請求項２１】
前記製造工程の間、鎖延長剤は存在しないことを特徴とする、請求項１９または請求項２０に記載の製造法。
【請求項２２】
前記ジオール成分は、１，４－ブタンジオールを含むことを特徴とする、請求項１９か

ら請求項２１のいずれか１項に記載の製造法。
【請求項２３】
前記ジオール成分は、エチレングリコール、１，２－プロピレングリコール、１，３－プロピレングリコール、およびこれらの組み合わせより選ばれるジオールを含み、
前記製造法は、１，４－ブタンジオールを前記溶融混合物に加える工程を更に含む、
ことを特徴とする、請求項１９から請求項２２のいずれか１項に記載の製造法。
【請求項２４】
前記芳香族ポリエステル成分は、石油系１，３－プロパンジオールから誘導したポリ（トリメチレンテレフタレート）、生物系１，３－プロパンジオールから誘導したポリ（トリメチレンテレフタレート）、石油系１，４－ブタンジオールから誘導したポリ（ブチレンテレフタレート）、生物系１，４－ブタンジオールから誘導したポリ（ブチレンテレフタレート）、使用済みポリ（エチレンテレフタレート）から誘導したポリ（トリメチレンテレフタレート）、使用済みポリ（エチレンテレフタレート）から誘導したポリ（ブチレンテレフタレート）、未使用のポリ（エチレンテレフタレート）、リサイクルしたポリ（エチレンテレフタレート）、使用済みポリ（エチレンテレフタレート）、リサイクルしたポリ（トリメチレンテレフタレート）、テレフタル酸とエチレングリコールおよびシクロヘキサンジメタノールとのリサイクルしたコポリエステル、およびこれらの組み合わせより選ばれるポリマーを含むことを特徴とする、請求項１９から請求項２２のいずれか１項に記載の製造法。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、ポリエチレンテレフタレートから得られたポリ（ブチレン－コ－アジパートテレフタレート）である脂肪族－芳香族コポリエステル、このコポリエステルを含む組成物および物品、更に、このコポリエステルの製造法に関する。
【背景技術】
【０００２】
ポリブチレンテレフタレート（ＰＢＴ）を材料とする熱可塑性成形材料は様々な用途に用いられる。多くの顧客にとって有用であるにもかかわらず、従来のＰＢＴ成形材料は、使用済みまたは工業製品供給後のＰＢＴスクラップ材料が大量に入手できないため、ＰＢＴのリサイクル資源からは一般に作ることができない。ポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）は、ＰＢＴと異なり、生産量が非常に多く、消費者廃棄物からずっと容易に回収される。
【０００３】
再生不可能な資源の保存と、十分に活用されていないスクラップＰＥＴのより効果的なリサイクルの要望が高まり、廃棄ＰＥＴ材料からＰＢＴを得るための低コストで改良された方法、特に、生成するＰＢＴ組成物が望ましい物理的特性（引張および衝撃強度など）と熱的特性を持つような方法が求められている。この方法が他のポリマー成分および／または不純物を含むＰＥＴ混合組成物にも適用可能であれば特に有益であろう。
【先行技術文献】
【特許文献】
【０００４】
【特許文献１】米国特許第６２０１０３４号明細書
【発明の概要】
【発明が解決しようとする課題】
【０００５】
本発明の発明者は、この反応で得られる生分解性の脂肪族－芳香族コポリエステル生成物が変色し、しばしばピンク～赤色になることを発見した。これは、変色が明らかで、顔料、白色剤、または充填剤で変色を容易に解決または覆い隠せないような最終用途でこのポリマーを使用する上で、白色でないポリマー生成物の美的外観が障害となる、という問

題を生じる。

【課題を解決するための手段】

【０００６】

本願では、生分解性の脂肪族－芳香族コポリエステルを開示しており、このコポリエステルは、エチレングリコール基、１，２－プロピレングリコール基、１，３－プロピレングリコール基、１，２－ブタンジオール基、２，３－ブタンジオール基、１，４－ブタンジオール基、テトラメチルシクロブタンジオール、イソソルビド基、１，３－シクロヘキサンジメタノール基、１，４－シクロヘキサンジメタノール基、ヘキシレングリコール基、生物系ジオール基、およびこれらの組み合わせより選ばれる二価アルコール基と、ポリ（エチレンテレフタレート）、ポリ（ブチレンテレフタレート）、ポリ（トリメチレンテレフタレート）、およびこれらの組み合わせより選ばれる、解重合した芳香族ポリエステル成分から誘導した芳香族ジカルボン酸基と、少なくとも３個の－ＯＨ基を持つ$Ｃ_{5-12}$化合物、サリチル酸メチル、およびこれらの組み合わせより選ばれる減色化合物と、アジピン酸基と、イソフタル酸基、アンチモン含有化合物、ゲルマニウム含有化合物、コバルト含有化合物、スズ、スズ含有化合物、チタン、アルミニウム、アルミニウム塩、アルカリ塩、アルカリ土類金属塩、リン含有化合物、硫黄含有化合物、ナフタレンジカルボン酸基、エポキシ類、およびこれらの組み合わせより選ばれる芳香族ポリエステル残基とを含み、この脂肪族－芳香族コポリエステルは、少なくとも２万ドルトンの数平均分子量と２から６未満の多分散度を持ち、このコポリエステルは、色度計を用いたＤ６５照明での測定で、少なくともＬ＊＝７０．０；ａ＊＝－８．０；ｂ＊＝１５．０の白色度を持つ。

【０００７】

別の実施の形態において、組成物は生分解性組成物を含み、この生分解組成物は、組成物の総重量に対して１０超から５９．９９質量％の脂肪族－芳香族コポリエステルと、組成物の総重量に対して４０超から８９．９９質量％未満の、脂肪族ポリエステル、脂肪族ポリカーボネート、澱粉、芳香族ポリエステル、環状脂肪族ポリエステル、ポリエステルアミド、芳香族ポリカーボネート、およびこれらの組み合わせより選ばれるポリマーと、組成物の総重量に対して０．０１から５質量％の、核生成剤、酸化防止剤、ＵＶ安定剤、可塑剤、エポキシ化合物、溶融強度添加剤、およびこれらの組み合わせより選ばれる添加剤と、組成物の総重量に対して０．０１から４５質量％の、アルコール、アセタート、アルコール－アセタート共重合体、およびこれらの組み合わせより選ばれる添加剤と、組成物の重量に対して０．０１から２質量％の、架橋剤、老化防止剤、劣化剤（retrogradation agents）、ブロッキング防止剤、水、臭気調整剤、およびこれらの組み合わせより選ばれる添加剤と、の組み合わせを含む。

【０００８】

更に別の態様では脂肪族－芳香族コポリエステルの製造法を提示し、この製造法は、芳香族ポリエステル成分を、エチレングリコール、１，２－プロピレングリコール、１，３－プロピレングリコール、１，２－ブタンジオール、２，３－ブタンジオール、１，４－ブタンジオール、テトラメチルシクロブタンジオール、イソソルビド、１，３－シクロヘキサンジメタノール異性体、１，４－シクロヘキサンジメタノール異性体、ヘキシレングリコール、生物系ジオール、およびこれらの組み合わせより選ばれるジオール成分、および、アジピン酸、アジピン酸オリゴマー、およびこれらの組み合わせより選ばれるアジピン酸成分と、少なくとも３個の－ＯＨ基を持つ$Ｃ_{5-12}$化合物、サリチル酸メチル、およびこれらの組み合わせより選ばれる減色化合物の存在下、反応器中、少なくとも大気圧である圧力と１７０℃から２５０℃の温度範囲で、不活性雰囲気中、撹拌しながら、芳香族ポリエステル成分を解重合して溶融混合物とするのに十分な条件下で、また、１６０℃から２５０℃未満の温度で反応させて、反応混合物を生成することにより、芳香族ポリエステル成分を解重合する工程と、反応混合物を、２Ｔｏｒｒ（約２．６ｈＰａ）未満の圧力と２２０から２６０℃未満の温度で減圧蒸留して、溶融コポリエステルを生成する工程とを含む。

【０００９】

上記の組成物を含む物品も開示する。

【００１０】

本発明のこれらおよびその他の特徴、態様、および長所は、以下の記述および添付の請求項を参照すれば、更に良く理解されよう。

【発明を実施するための形態】

【００１１】

本発明は、少なくとも３個の－ＯＨ基を持つ$Ｃ_{5-12}$化合物、サリチル酸メチル、およびこれらの組み合わせより選ばれる減色化合物を用いて重合反応を停止する方法により、ポリエチレンテレフタレートなどのリサイクルした芳香族ポリエステルから、白色で生分解性の脂肪族－芳香族コポリエステルが製造できるという発見に基づくものである。

【００１２】

本願中で用いられる用語“白色”は、その物質が、少なくとも７０、または少なくとも８０、あるいは少なくとも８５であるＬ＊値と、ほぼ０に近い（ＣＩＥカラースケール上で５単位未満）、対応する“ａ”値と“ｂ”値の組で表される白色であると記述されることを意味する。ここで、“ａ”は、ＣＩＥ　ＬＡＢカラースケール上における白色材料の赤および緑色を表し、“ｂ”は、青および黄色を表す。Ｌ＊値は、７０、または８０、あるいは８５から１００の範囲とすることができる。色を記述するための“Ｌ＊，ａ，ｂ”法は良く知られており、ＣＩＥ（Commission Internationale de l’Eclairage）により開発された。ＣＩＥは、光源と、観測者と、色を記述するための値を導き出す方法とを定めた測色法を提示しており、この方法では、色空間中での色の位置を示すため、Ｌ＊、ａ＊、およびｂ＊で表される３個の座標を使用する。色をＣＩＥＬＡＢで表す場合、Ｌ＊は明度を示し、値が０に近ければ、全吸収または色がどのくらい暗いかを意味する。Ｌ＊値が１００に近ければ、全反射または色がどのくらい明るいかを意味する。ａ＊は、色がどのくらい緑または赤いかを示し、一方、ｂ＊は、色がどのくらい青または黄色いかを表している。

【００１３】

文中で用いられている用語“リサイクル”は、製造され、使用されたか廃棄されようとしている全ての成分を指す。つまり、リサイクルポリエステルは、例えば飲用瓶として使用されたポリエステル、あるいは、製造工程の副生物で、例えば要求仕様に合わないため別の方法で廃棄または処分されようとしているポリエステルでも良い。このため、リサイクル材料に、使用されなかった未使用材料が含まれることもある。

【００１４】

文中で用いられている接頭辞“バイオ”または“生物系”は、その化合物または組成物が究極的に生物源に由来することを意味し、例えば、“バイオ－１，３－プロパンジオール”は、石油源ではなく、生物源（例えば、植物または微生物源）から誘導したものである。同様に、接頭辞“石油”または“石油系”は、その化合物または組成物が究極的に石油源に由来することを意味し、例えば、“石油系ポリ（エチレンテレフタレート）”は、石油から得た反応物から誘導したものである。

【００１５】

文中で用いられている単数形“ａ”、“ａｎ”、および“ｔｈｅ”には複数の指示対象が含まれる。用語“組み合わせ（ｃｏｍｂｉｎａｔｉｏｎ）”には、配合物、混合物、合金、反応生成物などが含まれる。別に定義のない限り、文中で用いられている技術および科学用語は、当業者に一般的に理解されているものと同じ意味を持つ。化合物は標準命名法を用いて記述する。用語“およびこれらの組み合わせ”には、指名された成分、および／または、具体的に指名されていないが本質的に同じ機能を持つ他の成分が含まれる。

【００１６】

本願中で用いられている用語“ランダム共重合体”は、鎖中のどの部分においても、所定のモノマー単位が見られる確率が、隣接する単位の性質と無関係である高分子を含む共重合体を指している。

【００１７】

操作実施例または別に指示されている以外の、本明細書および請求項で用いられている成分の量、反応条件などを示す全ての数または表現は、全ての例において、用語“約”で修飾されていると理解すべきである。本特許出願には様々な数値域が開示されている。これらの範囲は連続しているため、最小値と最大値の間の全ての値がこれに含まれる。同じ特性値または成分を示している全ての範囲の終点は独立して組み合わせることができ、挙げられた終点を含んでいる。別の方法で明確に示されていない限り、本願で指定されている様々な数値域は近似値である。用語“０超から（from more than 0 to）”である量は、指名された成分が、０を超えるような何らかの量で、また、指名されたより高い方の量までとそれを含む量で存在することを意味する。

【００１８】

全てのＡＳＴＭ試験およびデータは、別に示されていない限り、ＡＳＴＭ規格の２００３年版によるものである。

【００１９】

用語“テレフタル酸基”、“イソフタル酸基”、“エチレングリコール基”、“ブタンジオール基”、および“ジエチレングリコール基”を、例えば、分子内の基の質量％を示すために用いる場合、用語“イソフタル酸基”は、式（－Ｏ（ＣＯ）C_6H_4（ＣＯ）－）を持つイソフタル酸の基または残基を意味し、用語“テレフタル酸基”は、式（－Ｏ（ＣＯ）C_6H_4（ＣＯ）－）を持つテレフタル酸の基または残基を意味し、用語“ジエチレングリコール基”は、式（－Ｏ（C_2H_4）Ｏ（C_2H_4）－）を持つジエチレングリコールの基または残基を意味し、用語“ブタンジオール基”は、式（－Ｏ（C_4H_8）－）を持つブタンジオールの基または残基を意味し、用語“エチレングリコール基”は、式（－Ｏ（C_2H_4）－）を持つエチレングリコールの基または残基を意味している。

【００２０】

ポリオール存在下で芳香族ポリエステルを解重合してコポリエステルを製造する方法は当該技術において既知である。例えば、米国特許第５，４５１，６１１号は、ＢＤＯとの反応により、廃棄ポリエチレンテレフタレートを、ポリ（エチレン－コ－ブチレンテレフタレート）またはポリブチレンテレフタレートのいずれかに変換する方法を述べている。米国特許第５，４５１，６１１号の主目的は、ＰＥＴ廃棄物を、ＰＥＴをその成分モノマーまたはオリゴマーに分解することなく、別の高付加価値ポリマーに直接変換する方法の提示であった。この特許では、ジオール類を様々な量比で組み合わせて混合した様々なポリマーの多くの実施例を開示している。米国特許第５，４５１，６１１号の実施例１１は、ＥＧをＢＤＯで完全に置き換えて製造したＰＢＴポリマーを示している。米国特許第５，２６６，６０１号および米国特許第（U.S. Pat No.）２００９０２７５６９８（Ａ１）号は、ＰＥＴをＢＤＯと反応させて、ＰＥＴから“ＰＢＴ”を製造する方法を述べている。

【００２１】

脂肪族－芳香族コポリエステルの原料となる芳香族ポリエステル成分は、様々な形が可能である。一般に、ポリエチレンテレフタレートの場合、ＰＥＴ成分としては、フレーク、粉末／チップ、フィルム、またはペレット状のリサイクル（廃棄）ＰＥＴが挙げられる。使用前に、一般にＰＥＴを処理して、紙、接着剤、ポリオレフィン（例えば、ポリプロピレン）、ポリ塩化ビニル（ＰＶＣ）、ナイロン、ポリ乳酸（脂肪族ポリエステル）、その他の汚染物質などの不純物を除く。

【００２２】

コポリエステルに組み込む第１の二価アルコール基は、脂肪族ジカルボン酸および芳香族ポリエステルと反応してコポリエステル中の第１の二価アルコール基となるような、どのような二価アルコールから誘導しても良い。適当な二価アルコール類の例としては、エチレングリコール、１，２－プロピレングリコール、１，３－プロピレングリコール、１，２－ブタンジオール、２，３－ブタンジオール、１，４－ブタンジオール、テトラメチルシクロブタンジオール、イソソルビド、シクロヘキサンジメタノール（１，２－、１，３－、１，４－シクロヘキサンジメタノールなど）、生物系ジオール、ヘキシレングリコ

ール、およびこれらの組み合わせが挙げられる。別の実施の形態において、二価アルコールは、１，４－ブタンジオール、１，３－プロパンジオール、エチレングリコール、およびこれらの組み合わせより選ばれる。

【００２３】

前述の二価アルコールはいずれも生物源から誘導することができる。ある実施の形態では、二価アルコールの全てまたは一部が生物源由来である。文中で用いられている“生物系ジオール”は、生物源から命名および誘導されたもの（例えば、様々なペントース類、ヘキソース類、等）以外のアルコールを指す。第１の二価アルコールは一般に、芳香族ポリエステルと脂肪族ジカルボン酸とを含む混合物に加えられる。

【００２４】

コポリエステルの生成に十分な条件下、芳香族ポリエステルが第１の二価アルコールおよび脂肪族ジカルボン酸と反応する場合、芳香族ジカルボン酸基がコポリエステルに組み込まれる。芳香族ジカルボン酸基の例としては、イソフタル酸基、テレフタル酸基、ナフタル酸基、およびこれらの組み合わせが挙げられる。ポリエステル中の芳香族ジカルボン酸基は、対応するジ（C_1～C_3）アルキルエステルから誘導しても良い。望ましい実施の形態では、芳香族ジカルボン酸基を、テレフタル酸またはそのジ（$C_{1\sim3}$）アルキルエステルから誘導する。つまり、芳香族ポリエステルは、芳香族ジカルボン酸残基を含むポリエステルであり、第１の二価アルコールおよび脂肪族ジカルボン酸と反応させると、芳香族ジカルボン酸基と、第１の二価アルコール基と、第２の二価アルコール基とを含むコポリエステルが生成する、どのような芳香族ポリエステルであっても良い。

【００２５】

ある実施の形態において、芳香族ポリエステルは、（ｉ）芳香族ジカルボン酸基として少なくとも４０モル％の総酸基を含み、（ｉｉ）は、ポリ（エチレンテレフタレート）、ポリ（ブチレンテレフタレート）、ポリプロピレンテレフタレート、前述のものの共重合体、およびこれらの組み合わせから成る群より選ばれる。適当な芳香族ポリエステルの具体例としては、ポリ（エチレンテレフタレート）、ポリ（ブチレンテレフタレート）、ポリトリメチレンテレフタレート、およびこれらの組み合わせが挙げられる。芳香族ポリエステルは石油系でも生物系でも良く、ある実施の形態では、リサイクルした芳香族ポリエステル、例えば、リサイクルポリ（エチレンテレフタレート）である。リサイクルポリエステルは、例えば、フレーク、ペレットなど、どのような形でも良い。

【００２６】

芳香族ポリエステルが第１の二価アルコールおよび脂肪族ジカルボン酸と反応してコポリエステルを生成する場合、脂肪族ジカルボン酸基がコポリエステルに組み込まれる。脂肪族ジカルボン酸の例としては、一般式$(CH_2)_m(COOH)_2$（式中、ｍは２から１０の整数）を持つ成分が挙げられる。脂肪族ジカルボン酸は、デカン二酸、アジピン酸、またはセバシン酸であっても良い。脂肪族ジカルボン酸がアジピン酸の場合、ｍの値は４である。脂肪族ジカルボン酸がセバシン酸の場合、値ｍは８である。ある実施の形態では、脂肪族ジカルボン酸の全てまたは一部が生物系脂肪族ジカルボン酸である。

【００２７】

脂肪族－芳香族コポリエステルは、芳香族ポリエステルから誘導した第２の二価アルコール基を更に含んでおり、これは、第１の二価アルコールが脂肪族ジカルボン酸存在下で芳香族ポリエステルと反応する場合に、コポリエステルに組み込まれる。このように、第１の二価アルコールとは異なり、第２の二価アルコールは、ポリエステルと脂肪族ジカルボン酸とを含む混合物には加えない。適当な第２の二価アルコール基の例としては、エチレングリコール、１，２－プロピレングリコール、１，３－プロピレングリコール、１，２－ブタンジオール、２，３－ブタンジオール、１，４－ブタンジオール、テトラメチルシクロブタンジオール、イソソルビド、シクロヘキサンジメタノール（１，２－、１，３－、１，４－シクロヘキサンジメタノールを含む）、ヘキシレングリコール、およびこれらの組み合わせの残基が挙げられる。第２の二価アルコール基は芳香族ポリエステルから誘導するため、第１および第２の二価アルコール基は、同じでも異なっていても良い。例

えば、第１の二価アルコール基を、１，４－ブタンジオール、１，３－プロパンジオール、エチレングリコール、またはこれらの組み合わせの残基とし、第２の二価アルコール基を、エチレングリコール、ジエチレングリコール、１，３－プロパンジオール、１，４－ブタンジオール、またはこれらの組み合わせとしても良い。ある実施の形態では、第１の二価アルコール基と第２の二価アルコール基が同じである。別の実施の形態では、第１の二価アルコール基と第２の二価アルコール基が異なっている。

【００２８】

具体的な実施の形態において、第１の二価アルコールは、１，４－ブタンジオール、１，３－プロパンジオール、エチレングリコール、またはこれらの組み合わせであり、脂肪族ジカルボン酸は、デカン二酸、アジピン酸、セバシン酸、またはこれらの組み合わせであり、第２の二価アルコール基は、エチレングリコール、１，３－プロパンジオール、１，４－ブタンジオール、またはこれらの組み合わせの残基であり、芳香族ポリエステルは、石油系１，３－プロパンジオールから誘導したポリ（トリメチレンテレフタレート）、生物系１，３－プロパンジオールから誘導したポリ（トリメチレンテレフタレート）、石油系１，４－ブタンジオールから誘導したポリ（ブチレンテレフタレート）、生物系１，４－ブタンジオールから誘導したポリ（ブチレンテレフタレート）、使用済みポリ（エチレンテレフタレート）から誘導したポリ（トリメチレンテレフタレート）、使用済みポリ（エチレンテレフタレート）から誘導したポリ（ブチレンテレフタレート）、未使用のポリ（エチレンテレフタレート）、リサイクルしたポリ（エチレンテレフタレート）、使用済みポリ（エチレンテレフタレート）、リサイクルしたポリ（トリメチレンテレフタレート）、テレフタル酸とエチレングリコールおよびシクロヘキサンジメタノールとのリサイクルしたコポリエステル、およびこれらの組み合わせである。

【００２９】

別の実施の形態において、芳香族ジカルボン酸エステル基は、リサイクルしたＰＥＴから誘導したテレフタル酸ジメチルと二価アルコールとの重合生成物を含み、更にこのとき、コポリエステルはテレフタル酸ジメチル残基組成物を更に含んでいる。テレフタル酸ジメチル（ＤＭＴ、またはテレフタル酸のジメチルエステルとも呼ばれる）の回収方法は、当該技術において既知であり、例えば、その内容を本件に引用して援用する、米国特許第６，４７２，５５７号およびその中に開示されている他の特許に述べられている。典型的に、ポリエチレンテレフタレートを高温かつ適当な条件下でメタノールなどのアルコールと反応させるとポリエステルのエステル結合が切れて、テレフタル酸ジメチル（ＤＭＴ）などの対応するテレフタル酸のジエステルが生じる。

【００３０】

コポリエステル中の第１の二価アルコール基と第２の二価アルコール基の量は変えることができる。ある実施の形態において、第１の二価アルコール基の含有量は、二価アルコールの全含有量の８０から９９．６モル％であり、第２の二価アルコール基の含有量は、二価アルコールの全含有量の０．４モル％から２０．０モル％である。別の実施の形態において、第１の二価アルコール基の含有量は、二価アルコール基の全含有量の８５から９９．４モル％であり、第２の二価アルコール基の含有量は、二価アルコールの全含有量の０．６から１５．０モル％である。

【００３１】

芳香族ジカルボン酸基と脂肪族ジカルボン酸基の相対量は変えることができる。ある実施の形態において、芳香族ジカルボン酸基と脂肪族ジカルボン酸基は、０．６：１から６：１の芳香族ジカルボン酸基：脂肪族ジカルボン酸基モル比を持つ。別の実施の形態において、芳香族ジカルボン酸基と脂肪族ジカルボン酸基は、０．６：１から１．３：１の芳香族ジカルボン酸基：脂肪族ジカルボン酸基モル比で存在する。

【００３２】

コポリエステル中の芳香族酸基（特に、イソフタル酸基およびテレフタル酸基）の含量は、使用する芳香族ポリエステルと反応条件に応じて変わると考えられる。ある実施の形態において、芳香族ジカルボン酸基は、共重合体中に存在する酸基の総モルに対して、０

．２から３．０モル％のイソフタル酸基と、４７から４９．８モル％のテレフタル酸基を含んでいる。

【００３３】

具体的な実施の形態において、第１の二価アルコール基の含有量は、二価アルコールの総含量の８０から９９．６モル％であり、第２の二価アルコール基の含有量は、二価アルコールの総含量の０．４モル％から２０．０モル％であり、芳香族ジカルボン酸基と脂肪族ジカルボン酸基は、０．６：１から６：１の芳香族ジカルボン酸基：脂肪族ジカルボン酸モル比を持ち、芳香族ジカルボン酸基は、共重合体中のジカルボン酸基の総モルに対して、それぞれ、０．２から３．０モル％のイソフタル酸基と、４７から４９．８モル％のテレフタル酸基を含んでいる。

【００３４】

本コポリエステルは、芳香族ポリエステルの製造に由来する触媒残基、芳香族ポリエステル中の添加剤に由来する残基、または、芳香族ポリエステルの製造、および／または、第１の二価アルコールと脂肪族二酸と芳香族ポリエステルとの反応の際に起きる副反応から生じる残基など、芳香族ポリエステル中に存在する他の残基を更に含んでいても良い。

【００３５】

例えば、芳香族ポリエステルがポリ（エチレンテレフタレート）成分を含んでいる場合、芳香族ポリエステルは、ポリ（エチレンテレフタレート）ホモポリマー、ポリ（エチレンテレフタレート）共重合体、またはこれらの組み合わせを含んでいても良く、脂肪族－芳香族コポリエステルは、ポリ（エチレンテレフタレート）組成物に由来する残基を含んでいる。ポリ（エチレンテレフタレート）成分に由来する残基は、エチレングリコール基、ジエチレングリコール基、イソフタル酸基、アンチモン含有化合物、ゲルマニウム含有化合物、チタン含有化合物、コバルト含有化合物、スズ含有化合物、アルミニウム、アルミニウム塩、１，３－シクロヘキサンジメタノール異性体、１，４－シクロヘキサンジメタノール異性体、アルカリ塩、アルカリ土類金属塩、リン含有化合物およびアニオン、硫黄含有化合物およびアニオン、ナフタレンジカルボン酸、１，３－プロパンジオール基、またはこれらの組み合わせであっても良い。ある実施の形態において、ポリ（エチレンテレフタレート）成分から誘導した残基は、エチレングリコール基、ジエチレングリコール基、より詳細には、エチレングリコール基、ジエチレングリコール基の組み合わせを含んでいる。

【００３６】

従って、ある実施の形態において、ポリ（エチレンテレフタレート）成分から誘導した残基には、前述の材料の個々の要素とその組み合わせが含まれる。ポリ（エチレンテレフタレート）成分から誘導した残基は、例えば、イソフタル酸基を含んでいても良い。ある実施の形態において、ポリ（エチレンテレフタレート）成分から誘導した残基は、１，３－シクロヘキサンジメタノールのシス異性体、１，４－シクロヘキサンジメタノールのシス異性体、１，３－シクロヘキサンジメタノールのトランス異性体、１，４－シクロヘキサンジメタノールのトランス異性体、およびこれらの組み合わせを更に含んでいる。ある実施の形態において、ポリ（エチレンテレフタレート）成分から誘導した残基には、エチレングリコールおよびジエチレングリコール基の組み合わせ、必要に応じて更にイソフタル酸基が含まれ、１，３－シクロヘキサンジメタノールのシス異性体、１，４－シクロヘキサンジメタノールのシス異性体、１，３－シクロヘキサンジメタノールのトランス異性体、１，４－シクロヘキサンジメタノールのトランス異性体、またはこれらの組み合わせを更に含んでいても良い。ある実施の形態において、ポリエチレンテレフタレート成分から誘導した残基は、エチレングリコール基、ジエチレングリコール基、イソフタル酸基、シクロヘキサンジメタノールのシス異性体、シクロヘキサンジメタノールのトランス異性体、およびこれらの組み合わせを含んでいる。ある実施の形態において、ポリ（エチレンテレフタレート）成分から誘導した残基は、エチレングリコール基、ジエチレングリコール基、およびコバルト含有化合物を含み、別の実施の形態において、ポリ（エチレンテレフタレート）成分から誘導した残基はイソフタル酸基を更に含んでいる。

【００３７】
芳香族ポリエステルがポリ（ブチレンテレフタレート）である場合、本組成物は、ブタンジオール、チタン、スズ、またはこれらの組み合わせなどのポリ（ブチレンテレフタレート）残基を、必要に応じてエポキシ類と共に含むことができる。
【００３８】
芳香族ポリエステルがポリ（トリメチレンテレフタレート）である場合、本組成物は、プロパンジオール、チタン、スズ、またはこれらの組み合わせなどのポリ（トリメチレンテレフタレート）残基を含んでいる。
【００３９】
本発明による製造法および組成物は、減色させる量の、少なくとも３個のヒドロキシル基、少なくとも１個のヒドロキシル基と２個のカルボン酸基、または少なくとも２個のヒドロキシル基と１個のカルボン酸基を持つC_{5-12}化合物を含んでいる。
【００４０】
望ましくは、減色化合物は、ソルビトール、マンニトール、キシリトール、ペンタエリトリトール、アスコルビン酸、リンゴ酸、サリチル酸メチル、およびこれらの組み合わせより選ばれる。別の実施の形態において、減色ポリオールは、ソルビトール、マンニトール、およびこれらの組み合わせより選ばれる。
【００４１】
一般に、本コポリエステルは、少なくとも２万ドルトンの数平均分子量と、２から６未満、より詳細には２から５の多分散度を持つ。ある実施の形態において、本コポリエステルは、－３５℃から０℃のガラス転移温度（Ｔｇ）を持つ。別の実施の形態において、本コポリエステルは、９０℃から１６０℃の融解温度（Ｔｍ）を持つ。
【００４２】
本コポリエステルは、芳香族ポリエステルと第１の二価アルコールと脂肪族二酸とを用いるどのような適当な方法によって製造しても良い。ある実施の形態において、本コポリエステルは、芳香族ポリエステルを、第１の二価アルコールおよび脂肪族ジカルボン酸と、遷移金属触媒の存在下、高温で反応させて第１の混合物を生成し、第１の混合物を減圧および高温に曝してコポリエステルを生成することによって製造する。
【００４３】
更に、本コポリエステルは、どの製造工程においても存在可能な、あるいは、溶融コポリエステルの生成後、または溶融コポリエステルの冷却後に加えることのできる、追加材料を加えて製造しても良い。
【００４４】
必要に応じた別の実施の形態では、溶融コポリエステルを、グリシジルエステルモノマーの残基を含む追加の共重合体と、効果的な時間、例えば、少なくとも５分間、より詳しくは５分から２時間、更に反応させる。この実施の形態において、脂肪族－芳香族コポリエステルは、共重合体に会合した、または共重合体に共有結合した追加共重合体の残基を更に含んでいる。グリシジルモノマーを基にした追加共重合体の例としては、アクリル酸グリシジル、メタクリル酸グリシジル、またはこれらの組み合わせの残基と、メタクリル酸メチル、アクリル酸メチル、スチレン、α－メチルスチレン、メタクリル酸ブチル、アクリル酸ブチル、またはこれらの組み合わせ、例えば、スチレンおよびメタクリル酸メチルである残基とを含む追加共重合体が挙げられる。追加共重合体の含有量は、溶融コポリエステルの０から１．５０質量％とすることができる。反応は、例えば、２５０℃以下の温度で行うことができる。
【００４５】
具体的な実施の形態では、溶融コポリエステルを、リン酸化合物および追加ポリマーと更に反応させて、リン酸化合物の残基と追加共重合体の残基を持つ共重合体を生成する。つまり、コポリエステルは、ａ）芳香族ポリエステルを、第１の二価アルコールおよび脂肪族ジカルボン酸と、１６０℃から２５０℃未満の温度、チタンアルコキシド触媒の存在下で反応させて、第１の混合物を生成する工程と、（ｂ）第１の混合物を、例えば、減圧

蒸留により、２Ｔｏｒｒ（約２．６ｈＰａ）未満の圧力と、２２０から２６０℃未満の温度に曝してコポリエステルを生成する工程と、によって製造し、このとき、二価アルコールは、エチレングリコール、プロピレングリコール、ブチレングリコール、１，４－ブタンジオール、テトラメチルシクロブタンジオール、イソソルビド、シクロヘキサンジメタノール、生物系ジオール、またはヘキシレングリコールであり、脂肪族ジカルボン酸は、一般式（CH_2）$_m$（ＣＯＯＨ）$_2$（式中、ｍ＝４から１０）で示されるものである。反応は、例えば、２５０℃以下の温度で行うことができる。

【００４６】

生分解性組成物には、コポリエステルの他に、コポリエステルと混合した他の成分、例えば、他のポリマーや添加剤、例えば、成形材料の配合に用いられる添加剤が含まれる。ポリマーの例としては、脂肪族ポリエステル、芳香族ポリカーボネート、脂肪族ポリカーボネート、澱粉、芳香族ポリエステル、環状脂肪族ポリエステル、ポリエステルアミド、これらの組み合わせ等が挙げられる。このポリマーは、全てまたは一部が生物由来であっても良く、例えば、石油系芳香族ポリエステルと生物系芳香族ポリエステルである。当該技術では、エポキシド類、ビスオキサゾリン類、ビスカプロラクタム類、二無水物などの鎖延長剤をポリエステルに使用することが報告されている。特に、エポキシド類は比較的廉価で様々な構造のものが入手できるため、最も幅広く工業規模で使用されている。

【００４７】

具体的な実施の形態では、本コポリエステルを、脂肪族ポリエステル、例えば、ポリ乳酸、ポリ（ヒドロキシアルカノアート）、ポリ（ブチレンスクシナート）、ポリ（ブチレンアジパート）、ポリ（ブチレンスクシナートアジパート）、ポリ（カプロラクトン）、またはこれらの組み合わせと混ぜ合わせる。ポリヒドロキシアルカノアート（ＰＨＡ）は、糖または脂質の細菌発酵により天然に産生する線状ポリエステルであり、例えば、ポリ（Ｒ－３－ヒドロキシブチラート）（ＰＨＢまたはポリ（３ＨＢ））が挙げられる。

【００４８】

別の具体的な実施の形態では、本コポリエステルを、芳香族ポリエステル、例えば、石油系１，３－プロパンジオールから誘導したポリ（トリメチレンテレフタレート）、生物系１，３－プロパンジオールから誘導したポリ（トリメチレンテレフタレート）、石油系１，４－ブタンジオールから誘導したポリ（ブチレンテレフタレート）、生物系１，４－ブタンジオールから誘導したポリ（ブチレンテレフタレート）、使用済みポリ（エチレンテレフタレート）から誘導したポリ（トリメチレンテレフタレート）、使用済みポリ（エチレンテレフタレート）から誘導したポリ（ブチレンテレフタレート）、未使用のポリ（エチレンテレフタレート）、リサイクルしたポリ（エチレンテレフタレート）、使用済みポリ（エチレンテレフタレート）、リサイクルしたポリ（トリメチレンテレフタレート）、テレフタル酸と、エチレングリコールおよびシクロヘキサンジメタノールとのリサイクルしたコポリエステル、またはこれらの組み合わせと混ぜ合わせる。

【００４９】

コポリエステルと添加剤、例えば、ポリマーの量は、生分解性組成物の所望の特性に応じて変えることができる。ある実施の形態において、添加剤の含有量は、組成物の総重量に対して２から９０質量％、例えば、２から４０質量％または４０から９０質量％である。コポリエステルを澱粉と共に用いる場合、澱粉の量は、組成物全体の総重量に対して４０から９０質量％の範囲とすることができ、ポリエステルの量は１０から６０％の範囲とすることができる。コポリエステルをポリ乳酸と共に用いる場合、コポリエステルの量は、組成物の総重量に対して４０から９０質量％の範囲とすることができ、ポリ乳酸の量は１０から６０質量％、より詳細には、４０から６０％の範囲とすることができる。

【００５０】

本組成物は更に、アルコール、アセタート、アルコール－アセタート共重合体、およびこれらの組み合わせより選ばれる添加剤を、組成物の総重量に対して０．０１から４５質量％含んでいても良い。更に、本組成物は、架橋剤、老化防止剤、劣化剤、ブロッキング防止剤、水、臭気調節剤、およびこれらの組み合わせより選ばれる添加剤を、組成物の重

量に対して０．０１から２質量％含んでいても良い。

【００５１】

ポリマー組成物に通常に加えられる添加剤が使用できるが、この添加剤は、組成物の所望の特性、例えば、生分解性、衝撃、曲げ強度、色などにあまり悪影響を与えないように選ぶ。このような添加剤は、組成物を製造するため成分を混合する間の適当な時期に混ぜ合わせることができる。考えられる添加剤としては、衝撃改質剤、充填剤、補強剤、酸化防止剤、熱安定剤、光安定剤、紫外光（ＵＶ）吸収剤、可塑剤、滑剤、離型剤、帯電防止剤、着色剤、発泡剤、難燃剤、ドリップ防止剤、放射線安定剤が挙げられる。添加剤の組み合わせ、例えば、酸化防止剤とＵＶ吸収剤と離型剤との組み合わせを使用しても良い。添加剤（衝撃改質剤、充填剤、または補強剤以外）の総量は一般に、組成物の総重量の０．０１から５質量％である。具体的な実施の形態では、０．０１から５．００質量％の、核生成剤、酸化防止剤、ＵＶ安定剤、可塑剤、エポキシ化合物、溶融強度添加剤、またはこれらの組み合わせが用いられる。

【００５２】

有益なことに、本コポリエステルおよび本コポリエステルを含む組成物は生分解性とすることができる。これは、本コポリエステルおよび本コポリエステルを含む組成物が、ＩＳＯ　１４８５５－１：２００５による測定で、好気的生分解性を示すことを意味する。周知のように、ＩＳＯ　１４８５５－１：２００５は、制御された堆肥化条件下、二酸化炭素発生量と試験終了時のプラスチックの分解度を測定することにより、有機化合物として、プラスチックスの最終的な好気的生分解性を求める方法を定めている。この方法は、固形物の混じった都市ゴミの有機物の典型的な好気的分解条件をシミュレートするよう設計されている。堆肥から得られた接種源に試験材を曝露する。温度、通気、湿度を厳密に監視および制御した環境内で堆肥化を行う。この試験法は、発生した二酸化炭素への試験材中の炭素の変換率と変換速度を求めるよう設計されている。熟成堆肥ではなく、特定の活性化相にある堆肥から得られた好熱性微生物を播種した鉱物床（バーミキュライト）を使用する、本方法の変形も定められている。この変形は、二酸化炭素に変換された試験物質中の炭素の割合と変換速度とを求めるよう設計されている。一般に、本発明のコポリエステル（および本コポリエステルを含む組成物）は、７５日後で少なくとも３０％の生分解度（気体（CO_2状の無機Ｃ）に変換された試験品の固体炭素の％で測定）を示す。ある実施の形態において、本コポリエステル（および本コポリエステルを含む組成物）は、７５日後で少なくとも４０％または５０％の生分解度を示す。本コポリエステル（および本コポリエステルを含む組成物）の生分解度は、少なくとも３０％から５０％、または少なくとも３０％から６０％、または少なくとも３０％から７０％の範囲となる。

【００５３】

有益なことに、本コポリエステルおよび本コポリエステルを含む組成物から実用品を作ることができる。具体的な実施の形態では、本共重合体または本共重合体を含む組成物を、押し出し、カレンダー処理、押出成形、ブロー成形、溶媒キャスト、または射出成形して物品とする。物品は、フィルムまたはシートでも良い。物品がフィルムの場合、本コポリエステルまたは本コポリエステルを含む組成物を押出成形またはカレンダー処理することで、物品を成形できる。本コポリエステルおよび本コポリエステルを含む組成物はフィルムとして、例えば、数ある用途の中でも、フィルム包装用に特に有用である。

【００５４】

少なくとも以下の実施の形態を提示する。

【００５５】

実施の形態１：生分解性の脂肪族－芳香族コポリエステルであって、このコポリエステルは、（ａ）エチレングリコール基、１，２－プロピレングリコール基、１，３－プロピレングリコール基、１，２－ブタンジオール基、２，３－ブタンジオール基、１，４－ブタンジオール基、テトラメチルシクロブタンジオール、イソソルビド基、１，３－シクロヘキサンジメタノール基、１，４－シクロヘキサンジメタノール基、ヘキシレングリコール基、生物系ジオール基、およびこれらの組み合わせより選ばれる二価アルコール基と、

（ｂ）ポリ（エチレンテレフタレート）、ポリ（ブチレンテレフタレート）、ポリ（トリメチレンテレフタレート）、およびこれらの組み合わせより選ばれる、解重合した芳香族ポリエステル成分から誘導した芳香族ジカルボン酸基と、（ｃ）少なくとも３個の－ＯＨ基を持つ$Ｃ_{5-12}$化合物、サリチル酸メチル、およびこれらの組み合わせより選ばれる減色化合物と、（ｄ）アジピン酸基と、（ｅ）イソフタル酸基、アンチモン含有化合物、ゲルマニウム含有化合物、コバルト含有化合物、スズ、スズ含有化合物、チタン、アルミニウム、アルミニウム塩、アルカリ塩、アルカリ土類金属塩、リン含有化合物、硫黄含有化合物、ナフタレンジカルボン酸基、エポキシ類、およびこれらの組み合わせより選ばれる芳香族ポリエステル残基と、を含み、この脂肪族－芳香族コポリエステルは、少なくとも２万ドルトンの数平均分子量と２から６未満の多分散度を持ち、コポリエステルは、色度計を用いたＤ６５照明での測定で、少なくともＬ＊＝７０．０；ａ＊＝－８．０；ｂ＊＝１５．０の白色度を持つ。

【００５６】

実施の形態２：実施の形態１のコポリエステルであって、二価アルコール基は、１，４－ブタンジオール基、１，３－プロパンジオール基、エチレングリコール基、またはこれらの組み合わせより選ばれる。

【００５７】

実施の形態３：実施の形態１または２のコポリエステルであって、芳香族ポリエステル成分は、石油系１，３－プロパンジオールから誘導したポリ（トリメチレンテレフタレート）、生物系１，３－プロパンジオールから誘導したポリ（トリメチレンテレフタレート）、石油系１，４－ブタンジオールから誘導したポリ（ブチレンテレフタレート）、生物系１，４－ブタンジオールから誘導したポリ（ブチレンテレフタレート）、使用済みポリ（エチレンテレフタレート）から誘導したポリ（トリメチレンテレフタレート）、使用済みポリ（エチレンテレフタレート）から誘導したポリ（ブチレンテレフタレート）、未使用のポリ（エチレンテレフタレート）、リサイクルしたポリ（エチレンテレフタレート）、使用済みポリ（エチレンテレフタレート）、リサイクルしたポリ（トリメチレンテレフタレート）、テレフタル酸とエチレングリコールおよびシクロヘキサンジメタノールとのリサイクルしたコポリエステル、およびこれらの組み合わせより選ばれるポリマーを含む。

【００５８】

実施の形態４：実施の形態１から３のいずれかのコポリエステルであって、芳香族ポリエステル成分はポリ（ブチレンテレフタレート）を含み、芳香族ポリエステル残基は、チタン、チタン含有化合物、スズ、スズ含有化合物、エポキシ類、およびこれらの組み合わせより選ばれる。

【００５９】

実施の形態５：実施の形態１から３のいずれかのコポリエステルであって、芳香族ポリエステル成分はポリ（トリメチレンテレフタレート）を含み、芳香族ポリエステル残基は、チタン、スズ、エポキシ類、およびこれらの組み合わせより選ばれる。

【００６０】

実施の形態６：実施の形態１から３のいずれかのコポリエステルであって、芳香族ポリエステル成分は、ポリ（エチレンテレフタレート）ホモポリマー、ポリ（エチレンテレフタレート）の共重合体、またはこれらの組み合わせを含み、芳香族コポリエステル残基は、イソフタル酸基、アンチモン含有化合物、ゲルマニウム含有化合物、コバルト含有化合物、スズ含有化合物、アルミニウム、アルミニウム塩、アルカリ塩、アルカリ土類金属塩、リン含有化合物、硫黄含有化合物、ナフタレンジカルボン酸基、およびこれらの組み合わせより選ばれる。

【００６１】

実施の形態７：前記実施の形態のいずれかのコポリエステルであって、二価アルコール基は、エチレングリコール基と、ジエチレングリコール基、１，３－シクロヘキサンジメタノール基のシス異性体、１，４－シクロヘキサンジメタノール基のシス異性体、１，３

－シクロヘキサンジメタノール基のトランス異性体、１，４－シクロヘキサンジメタノール基のトランス異性体、およびこれらの組み合わせの１つ以上とを含む混合物から選ばれる。

【００６２】

実施の形態８：前記実施の形態のいずれかのコポリエステルであって、芳香族ポリエステル残基はイソフタル酸基を更に含む。

【００６３】

実施の形態９：前記実施の形態のいずれかのコポリエステルであって、減色化合物は、少なくとも３個のヒドロキシル基、少なくとも１個のヒドロキシル基と２個のカルボン酸基、または少なくとも２個のヒドロキシル基と１個のカルボン酸基を持つC_{5-12}化合物である。

【００６４】

実施の形態１０：前記実施の形態のいずれかのコポリエステルであって、減色化合物は、ソルビトール、マンニトール、キシリトール、ペンタエリトリトール、アスコルビン酸、リンゴ酸、サリチル酸メチル、およびこれらの組み合わせより選ばれる。

【００６５】

実施の形態１１：前記実施の形態のいずれかのコポリエステルであって、減色ポリオールは、ソルビトール、マンニトール、およびこれらの組み合わせより選ばれる。

【００６６】

実施の形態１２：前記実施の形態のいずれかのコポリエステルであって、メタクリル酸グリシジル共重合体、ビスフェノールＡエポキシ、およびこれらの組み合わせより選ばれるエポキシ化合物の残基を更に含む。

【００６７】

実施の形態１３：前記実施の形態のいずれかのコポリエステルであって、－３５℃から０℃のＴｇと、９０℃から１６０℃のＴｍを持つ。

【００６８】

実施の形態１４：生分解性組成物であって、この組成物は、（ｉ）組成物の総重量に対して１０超から５９．９９質量％の、前記実施の形態のいずれかの脂肪族－芳香族コポリエステルと、（ｉｉ）組成物の総重量に対して４０超から８９．９９質量％未満の、脂肪族ポリエステル、脂肪族ポリカーボネート、澱粉、芳香族ポリエステル、環状脂肪族ポリエステル、ポリエステルアミド、芳香族ポリカーボネート、およびこれらの組み合わせより選ばれるポリマーと、（ｉｉｉ）組成物の総重量に対して０．０１から５質量％の、核生成剤、酸化防止剤、ＵＶ安定剤、可塑剤、エポキシ化合物、溶融強度添加剤、およびこれらの組み合わせより選ばれる添加剤と、（ｉｖ）組成物の総重量に対して０．０１から４５質量％の、アルコール、アセタート、アルコール－アセタート共重合体、およびこれらの組み合わせより選ばれる添加剤と、（ｖ）組成物の重量に対して０．０１から２質量％の、架橋剤、老化防止剤、劣化剤、ブロッキング防止剤、水、臭気調整剤、およびこれらの組み合わせより選ばれる添加剤と、の組み合わせを含む。

【００６９】

実施の形態１５：実施の形態１４の組成物であって、脂肪族ポリエステルは、ポリ乳酸、ポリ（ヒドロキシアルカノアート）、ポリ（ブチレンスクシナート）、ポリ（ブチレンアジパート）、ポリ（ブチレンスクシナートアジパート）、ポリ（カプロラクトン）、およびこれらの組み合わせより選ばれる。

【００７０】

実施の形態１６：実施の形態１４または１５の生分解性組成物を、押し出し、カレンダー処理、押出成形、ブロー成形、溶媒キャスト、または射出成形した物品。

【００７１】

実施の形態１７：実施の形態１６の物品であって、物品はフィルムである。

【００７２】

実施の形態１８：実施の形態１７のフィルムであって、フィルムは、生分解性組成物の

押出成形またはカレンダー処理によって成形される。

【００７３】

実施の形態１９：実施の形態１から１３のいずれかによるコポリエステルの製造法であって、この方法は、（ａ）（ｉ）芳香族ポリエステル成分を、（ｉｉ）エチレングリコール、１，２－プロピレングリコール、１，３－プロピレングリコール、１，２－ブタンジオール、２，３－ブタンジオール、１，４－ブタンジオール、テトラメチルシクロブタンジオール、イソソルビド、１，３－シクロヘキサンジメタノール異性体、１，４－シクロヘキサンジメタノール異性体、ヘキシレングリコール、生物系ジオール類、およびこれらの組み合わせより選ばれるジオール成分、および、（ｉｉｉ）アジピン酸、アジピン酸オリゴマー、およびこれらの組み合わせより選ばれるアジピン酸成分と、（ｉｖ）少なくとも３個の－ＯＨ基を持つC_{5-12}化合物、サリチル酸メチル、およびこれらの組み合わせより選ばれる減色化合物の存在下、反応器中、少なくとも大気圧である圧力と１７０℃から２５０℃の範囲の温度で、不活性雰囲気中、撹拌しながら、芳香族ポリエステル成分を解重合して溶融混合物とするのに十分な条件下で、また、１６０℃から２５０℃未満の温度で反応させて、反応混合物を生成することにより、芳香族ポリエステル成分を解重合する工程と、ｂ）反応混合物を、２Ｔｏｒｒ（約２．６ｈＰａ）未満の圧力と２２０から２６０℃未満の温度で減圧蒸留して、溶融コポリエステルを生成する工程と、を含む。

【００７４】

実施の形態２０：実施の形態１９の製造法であって、反応混合物は、メタクリル酸グリシジル共重合体、ビスフェノールＡエポキシ、およびこれらの組み合わせより選ばれるエポキシ化合物を更に含む。

【００７５】

実施の形態２１：実施の形態１９または２０の製造法であって、製造工程の間、鎖延長剤は存在しない。

【００７６】

実施の形態２２：実施の形態１９から２１のいずれかによる製造法であって、ジオール成分は、１，４－ブタンジオールを含む。

【００７７】

実施の形態２３：実施の形態１９から２２のいずれかによる製造法であって、ジオール成分は、エチレングリコール、１，２－プロピレングリコール、１，３－プロピレングリコール、およびこれらの組み合わせより選ばれるジオールを含み、この製造法は、１，４－ブタンジオールを溶融混合物に加える工程を更に含む。

【００７８】

実施の形態２４：実施の形態１９から２２のいずれかによる製造法であって、芳香族ポリエステル成分は、石油系１，３－プロパンジオールから誘導したポリ（トリメチレンテレフタレート）、生物系１，３－プロパンジオールから誘導したポリ（トリメチレンテレフタレート）、石油系１，４－ブタンジオールから誘導したポリ（ブチレンテレフタレート）、生物系１，４－ブタンジオールから誘導したポリ（ブチレンテレフタレート）、使用済みポリ（エチレンテレフタレート）から誘導したポリ（トリメチレンテレフタレート）、使用済みポリ（エチレンテレフタレート）から誘導したポリ（ブチレンテレフタレート）、未使用のポリ（エチレンテレフタレート）、リサイクルしたポリ（エチレンテレフタレート）、使用済みポリ（エチレンテレフタレート）、リサイクルしたポリ（トリメチレンテレフタレート）、テレフタル酸とエチレングリコールおよびシクロヘキサンジメタノールとのリサイクルしたコポリエステル、およびこれらの組み合わせより選ばれるポリマーを含む。

【００７９】

上記のように、前述の実施の形態の様々な組み合わせを用いることができる。

【００８０】

説明を行うための以下の実施例で、本発明について更に述べるが、この中の部および百分率は、別途指示のない限り全て重量比である。

【実施例】
【００８１】
実施例で使用する材料、頭字語、および選択した入手源を以下に示す。
ＡＤＡ：アジピン酸（ＩＮＶＩＳＴＡ製）
ＢＤＯ：１，４－ブタンジオール（ＢＡＳＦ製、純度規格９９．５質量％）
Ｄ－マンニトール：Ｄ－マンニトール（Ａｌｄｒｉｃｈ製）
Ｄ－ソルビトール：Ｄ－ソルビトール（Ａｌｄｒｉｃｈ製）
サリチル酸メチル：サリチル酸メチル（Ａｌｄｒｉｃｈ製）
ＴＰＴ：チタン酸テトライソプロピル（ＤｕＰｏｎｔ製、工業用Tyzorグレード）
ＰＢＴ－コ－アジパート：ポリ（ブチレンテレフタレート）－コ－アジパート
ＰＥＴ：ポリ（エチレンテレフタレート）
リサイクルＰＥＴ：フレークまたはペレット状のリサイクルＰＥＴを、インドに本社のある商業的供給メーカーから入手。
【００８２】
［比較例Ａおよび実施例１から実施例７］
比較例Ａおよび実施例１から実施例７の目的は、本発明に従い、実験室規模で、ＰＥＴと１，４－ブタンジオール（ＢＤＯ）とアジピン酸（ＡＤＡ）とから誘導した、ＰＢＴ－コ－アジパートを製造することであった。材料、量、反応条件を表１に示す。
【００８３】
【表１】
比較例Ａおよび実施例１から実施例７の材料および条件

実施例番号	反応規模(g)	PET:BDO (mol/mol)	ADA:BDO (mol/mol)	Ti (ppm)	EI 温度(℃)	EI 時間(分)	重合温度(℃)	重合時間(分)
A*	143	0.39	0.39	250	220	32	250	29
1	143	0.39	0.39	250	220	34	230	64
2	143	0.39	0.39	250	220	31	230	51
3	143	0.39	0.39	250	220	28	250	38
4	143	0.39	0.39	250	220	36	250	36
5	143	0.39	0.39	125	220	42	250	28
6	143	0.39	0.39	65	220	38	250	63
7	143	0.39	0.39	33	220	40	250	45

＊ 比較例

【００８４】
［比較例Ａ］
添加剤を使用しない比較例として、ポリエステルＰＢＴ－コ－アジパート（比較例Ａ）を調製した。従って、４８ｇのリサイクルＰＥＴと、３６．５ｇのＡＤＡと、５８ｇのＢＤＯを３つ口丸底フラスコに入れた。反応器を油浴に浸し、その温度を１７０℃に調節した。次に、２５０ｐｐｍのチタン酸テトライソプロピル（ＴＰＴ）を反応混合物に加え、窒素気流下、２６０ｒｐｍで撹拌しながら、エステル交換（表１の“ＥＩ”）温度を２℃／分の割合で２２０℃まで上げた。発生した水／エチレングリコール混合物を別々に集めた。反応混合物の温度を更に２５０℃まで上げて、残りのＰＥＴフレークを完全に融解させた。反応器温度を２５０℃に保ち、３０分間、１Ｔｏｒｒ（約１．３ｈＰａ）以下に減圧して、重合（表１の“重合”）させた。重合の終わりに、減圧を開放した。生成したポリマーは赤色を呈した。
【００８５】
［実施例１、実施例２］
異なる触媒失活剤を用いて、ポリエステルＰＢＴ－コ－アジパート（実施例１、実施例

２）を調製した。従って、４８ｇのリサイクルＰＥＴと、３６．５ｇのＡＤＡと、５８ｇのＢＤＯを３つ口丸底フラスコに入れた。反応器を油浴に浸し、その温度を１７０℃に調節した。次に、２５０ｐｐｍのＴＰＴを反応混合物に加え、窒素気流下、２６０ｒｐｍで撹拌しながら、エステル交換（表１の“ＥＩ”）温度を２℃／分の割合で２２０℃まで上げた。発生した水／エチレングリコール混合物を別々に集めた。反応混合物の温度を更に２５０℃まで上げて、残りのＰＥＴフレークを完全に融解させた。次に、反応器温度を２３０℃まで下げ、１時間、１Ｔｏｒｒ（約１．３ｈＰａ）以下に減圧して、重合（表１の“重合”）させた。重合の終わりに、減圧を開放した。

【００８６】

実施例１では、重合終了時に３００ｐｐｍのＤ－マンニトールを溶融物に加え、混合物を窒素気流下で６分間撹拌した。

【００８７】

実施例２では、重合終了時に３００ｐｐｍのＤ－ソルビトールを溶融物に加え、混合物を窒素気流下で６分間撹拌した。

【００８８】

［実施例３、実施例４］

実施例３および実施例４の目的は、ポリマーの最終色に対する高い重合温度（２５０℃）とポリオール濃度の影響を求めることであった。従って、１Ｔｏｒｒ（約１．３ｈＰａ）以下に減圧しつつ、重合温度を２５０℃とする以外は、実施例１および実施例２で述べたものと同様にして、ＰＢＴ－コ－アジパート（実施例３および実施例４）を合成した。重合の終わりに、減圧を開放した。

【００８９】

実施例３では、重合終了時に４５０ｐｐｍのＤ－マンニトールを溶融物に加え、混合物を窒素気流下で６分間撹拌した。

【００９０】

実施例４では、重合終了時に６００ｐｐｍのＤ－マンニトールを溶融物に加え、混合物を窒素気流下で６分間撹拌した。

【００９１】

［実施例５から実施例７］

実施例５から実施例７の目的は、重合に対する触媒濃度の影響を示すことであった。１２５、６６、および３３ｐｐｍの触媒濃度を用い、重合温度を２５０℃とする以外は、実施例２および実施例３で述べたものと同様にして、ＰＢＴ－コ－アジパート（実施例５から実施例７）を合成した。それぞれ重合終了時に６００ｐｐｍのＤ－マンニトールを溶融物に加え、混合物を窒素気流下で６分間撹拌した。

【００９２】

［結果］

表２に、比較例Ａおよび実施例１から実施例７のガラス転移温度（Ｔｇ）、ＤＳＣで求めた融解温度（Ｔｍ）、ゲル浸透クロマトグラフィ（ＧＰＣ）で求めた分子量データ、固有粘度（Ｉ．Ｖ．）、色（拡散反射法により、Gretag Macbeth Color-Eye 7000A上、Ｄ６５照明で測定した、Ｌ＊，ａ＊，ｂ＊値）を示す。

【００９３】

【表２】

実施例番号	失活剤	失活剤量(ppm)	IV(dL/分)	T_m(℃)	T_g(℃)	PDI	Mn	Mw	L*	a*	b*
A*	なし	0	1.00	116	-24	4.6	27500	125000	62.0	12.2	13.6
1	D-マンニトール	300	1.05	110	-25	2.9	34000	99000	77.7	-2.7	3.9
2	D-ソルビトール	300	1.12	128	-28	3.0	37000	111000	81.7	-4.5	7.5
3	D-マンニトール	450	1.16	115	-25	3.1	37000	112000	78.0	-7.9	14.9
4	D-マンニトール	600	1.11	122	-26	3.1	35000	108000	77.6	-7.7	21.8
5	D-マンニトール	600	1.03	121	-28	3.0	33000	98000	79.8	-5.1	7.3
6	D-マンニトール	600	1.07	122	-28	3.2	31000	99000	78.7	-8.4	10.0
7	D-マンニトール	600	1.14	122	-28	3.9	29000	112000	71.2	1.1	9.5

＊ 比較例

【００９４】

［考察］

欧州特許第０２７２４１７号は、コポリエステル組成物の色安定剤としてのポリオールの使用、特に、式 Ｒ－（ＯＨ）$_x$を持つ様々なポリオール類をチタン触媒の失活に用いると白色のコポリエステルが得られることを示している。実施例１および実施例２では、Ｄ－マンニトールと Ｄ－ソルビトールを用いて、重合後、２３０℃で、コポリエステル溶融物中のチタン触媒を失活させた。理論によって束縛するものではないが、Ｄ－マンニトールと Ｄ－ソルビトールのｐＫａ値が７に近いため、加水分解によるポリマーの分子量低下が抑えられたと考えられる。表２に示すように、この方法でポリオール失活剤を用いると、コポリエステルの分子量を保ちながら、白色のコポリエステルが得られる。

【００９５】

しかし、実施例３および実施例４に示すように、２５０℃で重合後、黄色の着色が見られた。失活工程のポリオール濃度を上げても、黄色を除く上で何の効果もなかった。理論によって束縛するものではないが、これは、高い重合温度でメチレン炭素から水素が奪われて二重結合を生じ、これがチタン触媒と錯形成する、コポリエステルの熱分解によるものと説明できると考えられる。

【００９６】

更に、大量のＴＰＴは、重合段階での分解および錯形成反応に触媒作用を及ぼすことが分かった。配合物中のＴＰＴ量を減らすと（実施例５、実施例６）、白色のコポリエステルが得られた。これは、触媒濃度とコポリエステルの最終色との強い相関を裏付けている。

【００９７】

実施例１から実施例７の分子量と融解温度は、市販のＰＢＴ－コ－アジパートと同じである。しかし、得られたコポリエステルの多分散度は、市販のＰＢＴ－コ－アジパートに比べて低い。

【００９８】

［実施例８］

実施例８の目的は、本発明に従い、実験室規模で、有機失活剤としてサリチル酸メチルを用い、ＰＥＴと１，４－ブタンジオール（ＢＤＯ）とアジピン酸（ＡＤＡ）とから誘導した、ＰＢＴ－コ－アジパートの製造であった。材料、量、および反応条件を、表３に示す。

【００９９】

【表３】

実施例８の材料および条件

実施例番号	反応規模 (g)	PET:BDO (mol/mol)	ADA:BDO (mol/mol)	Ti (ppm)	EI 温度 (℃)	EI 時間 (分)	重合温度 (℃)	重合時間 (分)
8	143	0.39	0.39	250	220	35	250	40

【０１００】

実施例８の目的は、ポリマーの最終色に対する、高い重合温度（２５０℃）とポリオール濃度の影響を求めることであった。従って、１Ｔｏｒｒ（約１．３ｈＰａ）以下に減圧しつつ、重合温度を２５０℃とする以外は、実施例１および実施例２で述べたものと同様にして、ＰＢＴ－コーアジパート（実施例８）を合成した。重合の終わりに減圧を開放し、４５０ｐｐｍのサリチル酸メチルを溶融物に加え、混合物を窒素気流下で６分間撹拌した。

【０１０１】

［結果］

表４に、実施例８のガラス転移温度（Ｔｇ）、ＤＳＣで求めた融解温度（Ｔｍ）、ゲル浸透クロマトグラフィ（ＧＰＣ）で求めた分子量データ、固有粘度（Ｉ．Ｖ．）、色（拡散反射法により、Gretag Macbeth Color-Eye 7000A上、Ｄ６５照明で測定した、Ｌ＊，ａ＊，ｂ＊値）を示す。

【０１０２】

【表４】

実施例８の結果

実施例番号	失活剤	失活剤量 (ppm)	IV (dL/分)	T_m (℃)	T_g (℃)	PDI	Mn	Mw	L*	a*	b*
8	サリチル酸メチル	450	0.67	117	-28	3.1	13000	125000	69.8	17.7	37.0

【０１０３】

［考察］

実施例８は、触媒失活剤としてサリチル酸メチルが使用できることを示している。この失活剤は樹脂本体の色を除く。

【０１０４】

前述の特許、特許出願、およびその他の参考文献は全て、その内容を全て本件に引用して援用する。

【０１０５】

本発明を、その望ましいある特定の形態を参照しながら詳細に述べてきたが、その他の変形も可能である。故に、添付の請求項の精神および範囲は、文中に含まれている形態の記述に限定されるものではない。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/US2012/046625

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. C08G63/181 C08G63/183 C08G63/85 C08K5/053 C08K5/09
C08K5/10 C08J11/10
ADD.
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C08G C08K C08J

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 practicable, 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.
Y	US 6 201 034 B1 (WARZELHAN VOLKER [DE] ET AL) 13 March 2001 (2001-03-13) cited in the application	1-13
A	column 1, line 12 - line 27 examples	14-24

Y	EP 0 272 417 A2 (GEN ELECTRIC [US]) 29 June 1988 (1988-06-29)	1-13
A	page 2, line 19 - line 22 page 7, line 8	14-24

A	US 5 266 601 A (KYBER MANFRED [DE] ET AL) 30 November 1993 (1993-11-30) claims	1-24

☐ 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
12 December 2012	20/12/2012
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer Kaul-Buchberger, Eva

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (April 2005)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No
PCT/US2012/046625

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 6201034 B1	13-03-2001	AT 224414 T	15-10-2002
		AT 265485 T	15-05-2004
		AU 695820 B2	20-08-1998
		BR 9509685 A	16-09-1997
		CA 2205071 A1	23-05-1996
		CN 1170418 A	14-01-1998
		CZ 9701437 A3	12-11-1997
		DE 4440858 A1	23-05-1996
		DE 59510382 D1	24-10-2002
		DE 59510897 D1	03-06-2004
		DK 792309 T3	14-10-2002
		DK 1074570 T3	16-08-2004
		EP 0792309 A1	03-09-1997
		EP 1074570 A2	07-02-2001
		ES 2183878 T3	01-04-2003
		ES 2219247 T3	01-12-2004
		FI 118223 B1	31-08-2007
		FI 972059 A	14-07-1997
		HU 222853 B1	29-12-2003
		JP 3411289 B2	26-05-2003
		JP H10508640 A	25-08-1998
		KR 977007206 A	01-12-1997
		MX 209461 B	05-08-2002
		NO 972226 A	14-07-1997
		NZ 289416 A	28-01-2000
		PL 321599 A1	08-12-1997
		PT 792309 E	28-02-2003
		PT 1074570 E	30-09-2004
		TW 387914 B	21-04-2000
		US 6018004 A	25-01-2000
		US 6114042 A	05-09-2000
		US 6201034 B1	13-03-2001
		US 6303677 B1	16-10-2001
		WO 9615173 A1	23-05-1996
EP 0272417 A2	29-06-1988	EP 0272417 A2	29-06-1988
		JP 63213554 A	06-09-1988
US 5266601 A	30-11-1993	DE 4220473 A1	05-01-1994
		EP 0575847 A1	29-12-1993
		ES 2092183 T3	16-11-1996
		US 5266601 A	30-11-1993

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (April 2005)

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(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),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,CL,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,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,ZA

Fターム(参考) 4J002 AB04X CF03X CF05W CF05X CF06X CF07X CF18X CF19X CG00X CL08X
EC056 EL066 FD206
4J029 AA01 AC02 AD01 AD06 AD07 AE01 BA02 BA03 BA04 BA05
BD02 BD07 BF30 CA06 CB06 EB05 HA01 HB01 HB02 JB123
JB131 JE162 JF251 KB14
4J200 AA02 AA04 AA06 BA10 BA17 CA01 EA16