

(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2007-532699

(P2007-532699A)

(43) 公表日 平成19年11月15日(2007. 11. 15)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
CO8G 63/00 (2006.01)	CO8G 63/00 ZBP	4J002
CO8L 67/00 (2006.01)	CO8L 67/00	4J029
CO8L 3/02 (2006.01)	CO8L 3/02	4J040
CO8L 101/16 (2006.01)	CO8L 101/16	4J200
DO1F 6/84 (2006.01)	DO1F 6/84 3O1H	4L035
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 25 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願2007-503977 (P2007-503977)	(71) 出願人	594055158
(86) (22) 出願日	平成17年3月10日 (2005. 3. 10)		イーストマン ケミカル カンパニー
(85) 翻訳文提出日	平成18年9月15日 (2006. 9. 15)		アメリカ合衆国 37662 テネシー州
(86) 国際出願番号	PCT/US2005/008214		キングスポート ウイルコックス ドラ
(87) 国際公開番号	W02005/092948		イブ サウス 200
(87) 国際公開日	平成17年10月6日 (2005. 10. 6)	(74) 代理人	100099759
(31) 優先権主張番号	60/554, 838		弁理士 青木 篤
(32) 優先日	平成16年3月19日 (2004. 3. 19)	(74) 代理人	100077517
(33) 優先権主張国	米国 (US)		弁理士 石田 敬
(31) 優先権主張番号	10/852, 502	(74) 代理人	100087413
(32) 優先日	平成16年5月24日 (2004. 5. 24)		弁理士 古賀 哲次
(33) 優先権主張国	米国 (US)	(72) 発明者	マトスキー, アンドリュウ ジョセフ
			アメリカ合衆国, テネシー 37664,
			キングスポート, ダブリン ロード 50
			39
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 嫌氣的生分解性ポリエステル

(57) 【要約】

嫌氣的生分解性ポリエステル並びに前記ポリエステルを含む組成物及び製品を記載する。意外なことに、嫌氣性条件下で非生分解性であるところまで考えられていたポリエステルが、ポリエステル中の芳香族モノマー含量を制御することによって嫌氣的生分解性にされた。これらのポリエステルは、繊維、フィルム、不織布及び接着剤にすることができる。これらは、フラッシュ可能な個人用衛生製品のような吸収性製品への使用に適している。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

ポリエステルを嫌氣的生分解性にするのに有効な量で芳香族モノマーを含んでなる脂肪族－芳香族ポリエステル。

【請求項 2】

前記芳香族モノマーがテレフタル酸残基を含み、100モル％に等しいポリエステル中の全二酸残基のモル％に基づき、5モル％以下の前記テレフタル酸残基がイソフタル酸、5－スルホイソフタル酸及び2，6－ナフタレンジカルボン酸からなる群から選ばれた芳香族ジカルボン酸残基で置き換えられている請求項1に記載の脂肪族－芳香族ポリエステル。

10

【請求項 3】

100モル％に等しいポリエステル中の全二酸残基のモル％に基づき、約39～約43モル％のテレフタル酸残基を含む請求項2に記載の脂肪族－芳香族ポリエステル。

【請求項 4】

100モル％に等しいポリエステル中の全二酸残基のモル％に基づき、約40～約42モル％のテレフタル酸残基を含む請求項3に記載の脂肪族－芳香族ポリエステル。

【請求項 5】

100モル％に等しいポリエステル中の全ジオール残基のモル％に基づき、約85～約100モル％の1，4－ブタンジオール残基並びに約0～約15モル％の、エチレングリコール、ジエチレングリコール及び1，3－プロパンジオールからなる群から選ばれた残基を含む請求項1に記載の脂肪族－芳香族ポリエステル。

20

【請求項 6】

100モル％に等しいポリエステル中の全二酸残基のモル％に基づき、約15モル％以下のヒドロキシカルボン酸残基を含む請求項1に記載の脂肪族－芳香族ポリエステル。

【請求項 7】

前記ヒドロキシカルボン酸残基がγ－ブチロラクトン、カプロラクトン、乳酸、4－ヒドロキシブタン酸、4－ヒドロキシ吉草酸、4－ヒドロキシヘキサン酸、4－ヒドロキシオクタン酸、ポリヒドロキシブチレート、ポリヒドロキシブチレート－c o－バレレート、ポリヒドロキシブチレート－c o－オクタノエート、ポリヒドロキシブチレート－c o－ヘキサノエート、ポリカプロラクトン及びポリ乳酸からなる群から得られる請求項6に記載の脂肪族－芳香族ポリエステル。

30

【請求項 8】

(a) 100モル％に等しいポリエステル中の全二酸残基のモル％に基づき、約39～約43モル％の芳香族ジカルボン酸からの残基及び約57～約61モル％の非芳香族ジカルボン酸からの残基を含む二酸残基；並びに

(b) 100モル％に等しいポリエステル中の全ジオール残基のモル％に基づき、約85～約100モル％の1，4－ブタンジオールからの残基及び約0～約15モル％の別のジオールからの残基を含むジオール残基を含んでなる嫌氣的生分解性ポリエステル。

【請求項 9】

前記芳香族ジカルボン酸がテレフタル酸、イソフタル酸、5－スルホイソフタル酸及び2，6－ナフタレンジカルボン酸の少なくとも1種からなる群から選ばれる請求項8に記載の嫌氣的生分解性ポリエステル。

40

【請求項 10】

前記非芳香族ジカルボン酸がグルタル酸及びアジピン酸の少なくとも1種からなる群から選ばれる請求項8に記載の嫌氣的生分解性ポリエステル。

【請求項 11】

前記の別のジオールが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、1，5－ペンタンジオール、1，6－ヘキサンジオール及び1，4－シクロヘキサジメタノールの少なくとも1種からなる群から選ばれる請求項8に記載の嫌氣的生

50

分解性ポリエステル。

【請求項 12】

前記二酸残基が芳香族ジカルボン酸からの残基約 40～約 42 モル%及び非芳香族ジカルボン酸からの残基約 58～約 60 モル%を含む請求項 8 に記載の嫌氣的生分解性ポリエステル。

【請求項 13】

前記芳香族ジカルボン酸がテレフタル酸であり、且つ前記テレフタル酸の 5 モル%以下が、イソフタル酸、5-スルホイソフタル酸又は 2,6-ナフタレンジカルボン酸で置き換えられる請求項 8 に記載の嫌氣的生分解性ポリエステル。

【請求項 14】

二酸残基の総モルに基づき、約 15 モル%以下のヒドロキシカルボン酸残基を更に含む請求項 8 に記載の嫌氣的生分解性ポリエステル。

【請求項 15】

前記ヒドロキシカルボン酸残基が γ -ブチロラクトン、カプロラクトン、乳酸、4-ヒドロキシブタン酸、4-ヒドロキシ吉草酸、4-ヒドロキシヘキサノ酸、4-ヒドロキシオクタン酸、ポリヒドロキシブチレート、ポリヒドロキシブチレート-co-バレレート、ポリヒドロキシブチレート-co-オクタノエート、ポリヒドロキシブチレート-co-ヘキサノエート、ポリカプロラクトン及びポリ乳酸からなる群に由来する請求項 14 に記載の脂肪族-芳香族ポリエステル。

【請求項 16】

(a) 100 モル%に等しいポリエステル中の全二酸残基のモル%に基づき、約 39～約 43 モル%のテレフタル酸からの残基及び約 57～約 61 モル%のアジピン酸からの残基を含む二酸残基；並びに

(b) 100 モル%に等しいポリエステル中の全ジオール残基のモル%に基づき、約 100 モル%の 1,4-ブタンジオールからの残基を含むジオール残基を含んでなる嫌氣的生分解性ポリエステル。

【請求項 17】

前記二酸残基がテレフタル酸からの残基約 40～約 42 モル%及びアジピン酸からの残基約 58～約 60 モル%を含む請求項 16 に記載の嫌氣的生分解性ポリエステル。

【請求項 18】

(a) 100 モル%に等しいポリエステル中の全二酸残基のモル%に基づき約 39～約 43 モル%のテレフタル酸からの残基及び約 57～約 61 モル%のグルタル酸からの残基を含む二酸残基；並びに

(b) 100 モル%に等しいポリエステル中の全ジオール残基のモル%に基づき約 100 モル%の 1,4-ブタンジオールからの残基を含むジオール残基を含んでなる嫌氣的生分解性ポリエステル。

【請求項 19】

前記二酸残基がテレフタル酸からの残基約 40～約 42 モル%及びグルタル酸からの残基約 58～約 60 モル%を含む請求項 18 に記載の嫌氣的生分解性ポリエステル。

【請求項 20】

(I) (a) 100 モル%に等しいポリエステル中の全二酸残基のモル%に基づき、約 39～約 46 モル%の芳香族ジカルボン酸からの残基及び約 54～約 61 モル%の非芳香族ジカルボン酸からの残基を含む二酸残基；並びに

(b) 100 モル%に等しいポリエステル中の全ジオール残基のモル%に基づき、約 85～約 100 モル%の 1,4-ブタンジオールからの残基及び約 0～約 15 モル%の別のジオールからの残基を含むジオール残基を含んでなるポリエステル；並びに

(II) 熱可塑性澱粉を含んでなる嫌氣的生分解性組成物。

【請求項 21】

10

20

30

40

50

前記芳香族ジカルボン酸がテレフタル酸、イソフタル酸、5-スルホイソフタル酸及び2,6-ナフタレンジカルボン酸からなる群から選ばれる請求項20に記載の嫌気的生分解性組成物。

【請求項22】

前記非芳香族ジカルボン酸がグルタル酸及びアジピン酸からなる群から選ばれる請求項20に記載の嫌気的生分解性組成物。

【請求項23】

前記の別のジオールが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、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサジオール及び1,4-シクロヘキサジメタノールからなる群から選ばれる請求項20に記載の嫌気的生分解性組成物。

10

【請求項24】

前記二酸残基が芳香族ジカルボン酸約41～約43モル%及び非芳香族ジカルボン酸約57～約59モル%を含む請求項20に記載の嫌気的生分解性組成物。

【請求項25】

前記芳香族ジカルボン酸がテレフタル酸であり、且つ前記テレフタル酸の5モル%以下が、イソフタル酸、5-スルホイソフタル酸又は2,6-ナフタレンジカルボン酸で置き換えられている請求項20に記載の嫌気的生分解性ポリエステル。

【請求項26】

約5～約70重量%の熱可塑性澱粉を含む請求項20に記載の嫌気的生分解性組成物。

【請求項27】

20

カルシウム、マグネシウム、ナトリウム、カリウム、チタン、珪素及びアルミニウムからなる群から選ばれた金属イオンを含む無機塩約0.1～約60重量%を更に含む請求項20に記載の嫌気的生分解性組成物。

【請求項28】

前記無機塩がタルク、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、炭酸カリウム、炭酸ナトリウム、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、燐酸カルシウム、酸化チタン、シリコンオキサイド、酸化アルミニウム及びそれらの混合物からなる群から選ばれる請求項27に記載の嫌気的生分解性組成物。

【請求項29】

加工助剤、充填剤、界面活性剤、可塑剤、相容化剤、耐衝撃性改良剤、成核剤、酸化防止剤、熱もしくは紫外線安定剤、着色剤、帯電防止剤、潤沢剤、発泡剤、分散剤、増粘剤、抗菌剤又はそれらの混合物を更に含む請求項20に記載の嫌気的生分解性組成物。

30

【請求項30】

前記ポリエステルが、二酸残基の総モルに基づき、約15モル%以下のヒドロキシカルボン酸残基を更に含む請求項20に記載の嫌気的生分解性組成物。

【請求項31】

前記ヒドロキシカルボン酸残基がγ-ブチロラクトン、カプロラクトン、乳酸、4-ヒドロキシブタン酸、4-ヒドロキシ吉草酸、4-ヒドロキシヘキサン酸、4-ヒドロキシオクタン酸、ポリヒドロキシブチレート、ポリヒドロキシブチレート-co-バレレート、ポリヒドロキシブチレート-co-オクタノエート、ポリヒドロキシブチレート-co-ヘキサノエート、ポリカプロラクトン及びポリ乳酸からなる群から得られる請求項30に記載の脂肪族-芳香族組成物。

40

【請求項32】

(I) (a) 100モル%に等しいポリエステル中の全二酸残基のモル%に基づき、約39～約43モル%の芳香族ジカルボン酸からの残基及び約57～約61モル%の非芳香族ジカルボン酸からの残基を含む二酸残基；並びに

(b) 100モル%に等しいポリエステル中の全ジオール残基のモル%に基づき、約85～約100モル%の1,4-ブタンジオールからの残基及び約0～約85モル%の別のジオールからの残基を含むジオール残基を含むポリエステル；並びに

50

(I I) 無機塩

を含んでなる嫌氣的生分解性組成物。

【請求項 3 3】

前記芳香族ジカルボン酸がテレフタル酸、イソフタル酸、5-スルホイソフタル酸及び2, 6-ナフタレンジカルボン酸からなる群から選ばれる請求項 3 2 に記載の嫌氣的生分解性組成物。

【請求項 3 4】

前記非芳香族ジカルボン酸がグルタル酸及びアジピン酸からなる群から選ばれる請求項 3 2 に記載の嫌氣的生分解性組成物。

【請求項 3 5】

前記の別のジオールが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, 5-ペンタンジオール、1, 6-ヘキサジオール及び1, 4-シクロヘキサジメタノールからなる群から選ばれる請求項 3 2 に記載の嫌氣的生分解性組成物。

【請求項 3 6】

前記二酸残基が芳香族ジカルボン酸約 40 ~ 約 42 モル% 及び非芳香族ジカルボン酸約 58 ~ 約 60 モル% を含む請求項 3 2 に記載の嫌氣的生分解性組成物。

【請求項 3 7】

前記芳香族ジカルボン酸がテレフタル酸であり、且つ前記テレフタル酸の 5 モル% 以下が、イソフタル酸、5-スルホイソフタル酸又は2, 6-ナフタレンジカルボン酸で置き換えられる請求項 3 2 に記載の嫌氣的生分解性ポリエステル。

【請求項 3 8】

前記無機酸がタルク、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、炭酸カリウム、炭酸ナトリウム、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、磷酸カルシウム、酸化チタン、シリコンオキサイド、酸化アルミニウム及びそれらの混合物からなる群から選ばれる請求項 3 2 に記載の嫌氣的生分解性組成物。

【請求項 3 9】

加工助剤、充填剤、界面活性剤、可塑剤、相容化剤、耐衝撃性改良剤、成核剤、酸化防止剤、熱又は紫外線安定剤、着色剤、帯電防止剤、潤沢剤、発泡剤、分散剤、増粘剤、抗菌剤もしくはそれらの混合物を更に含む請求項 3 2 に記載の嫌氣的生分解性組成物。

【請求項 4 0】

前記ポリエステルが、二酸残基の総モルに基づき、約 15 モル% 以下のヒドロキシカルボン酸残基を更に含む請求項 3 2 に記載の嫌氣的生分解性組成物。

【請求項 4 1】

前記ヒドロキシカルボン酸残基がγ-ブチロラクトン、カプロラクトン、乳酸、4-ヒドロキシブタン酸、4-ヒドロキシ吉草酸、4-ヒドロキシヘキサン酸、4-ヒドロキシオクタン酸、ポリヒドロキシブチレート、ポリヒドロキシブチレート-*c o*-バレレート、ポリヒドロキシブチレート-*c o*-オクタノエート、ポリヒドロキシブチレート-*c o*-ヘキサノエート、ポリカプロラクトン及びポリ乳酸からなる群から得られる請求項 4 0 に記載の脂肪族-芳香族組成物。

【請求項 4 2】

請求項 8 に記載の嫌氣的生分解性ポリエステルを含んでなる製品。

【請求項 4 3】

フィルム、繊維、不織布又は接着剤である請求項 3 2 に記載の製品。

【請求項 4 4】

トップシート、バックシート及び前記トップシートと前記バックシートとの間に配置された吸収性層を含み、且つ前記トップシート又は前記バックシートの少なくとも一部が請求項 8 に記載の嫌氣的生分解性ポリエステルを含む吸収性製品。

【請求項 4 5】

バレル及びプランジャーを含み、且つ前記バレル又は前記プランジャーの少なくとも一部が請求項 8 に記載の嫌氣的生分解性ポリエステルを含むタンポンアプリーケーターアセン

10

20

30

40

50

ブリ。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、一般に嫌氣的生分解性ポリエステルに関する。本発明はまた、ポリエステルを含むか又はポリエステルから製造された組成物及び製品に関する。特に有用な製品としては、フィルム、繊維、不織布及び接着剤が挙げられる。これらの製品は、他の嫌氣的生分解性最終消費製品、例えばおむつ、女性用衛生用製品及び失禁用ブリーフの製造に使用できる。

【背景技術】

10

【0002】

フィルム、繊維、溶融ブローウェブ（m e l t - b l o w n w e b）及び他の溶融紡糸繊維製品は、ポリプロピレン及びポリエステルのような熱可塑性ポリマーから製造されている。これらのフィルム、繊維及び繊維製品は、一般に、不織布及び連続フィルムを含む複合構造、特にパーソナルケア製品、例えば拭き取り用の布、女性用及び個人用衛生製品、赤ちゃんのおむつ、大人の失禁用ブリーフ、病院／外科の及び他の医療用使い捨て製品、保護布及び保護層、ジオテキスタイル並びに濾材に使用される。

【0003】

残念ながら、従来の熱可塑性ポリマーから製造されるパーソナルケア製品は、処分が難しく、通常はゴミ廃棄場又は堆肥化施設に置かれる。期待できる代替りの処分法の1つは、これらの製品又はそれらの成分を「フラッシュ可能な」、即ち下水管、污水处理タンクなどのような廃水处理システムに適合するようにすることである。真にフラッシュ可能な製品の製造の別の動機付けは、前記品目の多くが、通常の使用によって、感染症を伝染するおそれがある血液又は排泄物のようなヒトの体液で汚染されることである。従って、これらの汚染された製品のフラッシュは、不注意な汚染の機会を制限する形で製品を処分する効果的で低コストの方法をもたらす。

20

【0004】

フラッシュ性は従来より、家庭及び地方自治体の衛生器具に適合することが中心とされ、消費者が水性環境に廃棄できる製品の嵩を減少する（例えばトイレ又は工業的熱水処理における水との接触時に分散可能である）能力と定義されている。このような度合いの適合性の達成に関してはこれまで多くの発明があった。これらの要求に応える種々のアプローチは、例えば特許文献1～9に記載されている。本質的に、この型の適合性は、廃水处理システムへの移行を確実にする物理的崩壊に依存するが、許容され得るように働く微生物による消化に通常は依存する系中のこれらの成分／材料に起こる問題には対応していない。

30

【0005】

フラッシュ可能な製品として売り出される消費者製品の量の増加につれて、適合性の中心は、分散された後の廃水回収及び処理システムに対する製品の影響に移った。ほとんどのシステムは、部分嫌気性から完全嫌気性にいたる低酸素環境である。製品がこれらの条件下で分解できることが非常に望ましい。

40

【0006】

嫌気性条件下で分解する能力を有する製品を提供しようとする1つの試みが、特許文献10に記載されている。この公報は、ポリエステルアミド、ポリヒドロキシアルカノエート及びそれらの混合物が嫌氣的に分解性であることを記載している。比較例4a及び4bにおいて、公報は、脂肪族ポリステルBionolle 3001及び脂肪族－芳香族ポリエステルEasstar 14766が「嫌気性汚泥中では満足な分解性を示さない」と指摘している。

【0007】

【特許文献1】米国特許第6, 548, 592号

【特許文献2】米国特許第6, 552, 162号

50

- 【特許文献3】米国特許第5, 281, 306号
【特許文献4】米国特許第5, 292, 581号
【特許文献5】米国特許第5, 935, 880号
【特許文献6】米国特許第5, 509, 913号
【特許文献7】米国特許出願第09/775, 312号
【特許文献8】米国特許出願09/752, 017号
【特許文献9】PCT国際出願公開第WO 09/66666 A2号
【特許文献10】米国特許出願公開第2002/0042599号

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

10

【0008】

従って、部分的又は完全な嫌気性条件下において生分解できるポリマー、特に脂肪族－芳香族コポリエステル及びそれから製造される製品が依然として必要とされている。

【課題を解決するための手段】

【0009】

一態様において、本発明は、嫌氣的生分解性にするのに有効な量で芳香族モノマーを含む脂肪族－芳香族ポリエステルに関する。一実施態様において、嫌氣的生分解性ポリエステルは、(a) 芳香族ジカルボン酸からの残基約39～約43モル%及び非芳香族ジカルボン酸からの残基約57～約61モル%を含む二酸残基；並びに(b) 1, 4-ブタンジオールからの残基約85～約100モル%及び別のジオールからの残基約0～約15モル%を含むジオール残基を含んでなる。別の実施態様において、ポリエステルは、(a) テレフタル酸からの残基約39～約43モル%及びアジピン酸又はグルタル酸からの残基約57～約61モル%を含む二酸残基；並びに(b) 1, 4-ブタンジオールからの残基約100モル%を含むジオール残基を含んでなる。

20

【0010】

別の態様において、本発明は、嫌氣的生分解性ポリエステル及び熱可塑性澱粉、無機塩又は両者を含む組成物に関する。

【0011】

更に別の態様において、本発明は、嫌氣的生分解性ポリエステル及び本発明の組成物から製造された又はそれらを含む製品に関する。このような製品としては、フィルム、繊維、不織布及び接着剤が挙げられる。これらのポリエステル及び組成物は、吸収製品及びタンポンアプリケーションにおいて特に有用である。

30

【発明を実施するための最良の形態】

【0012】

脂肪族－芳香族ポリエステルは、好気性条件下で生分解性であることが知られている。しかし、これらの材料は、污水处理又は下水システムに典型的な嫌気条件に暴露される場合には、妥当な時間内には一般にそれほど分解しない。例えば、米国特許出願公開第2002/0042599 A1号のパラグラフ[0003]及び[0091]を参照されたい。しかし、本発明者らは、意外にも、ポリエステル中の芳香族モノマーの量を制限することによって脂肪族－芳香族ポリエステルを嫌氣的生分解性にすることができることを見出した。

40

【0013】

本明細書中で使用する単数形は1又はそれ以上を意味する。

【0014】

特に断らない限り、本明細書及び特許請求の範囲において使用する、成分の量、分子量、反応条件などのような性質を表す全ての数値は、いずれの場合にも用語「約」によって修飾されるものと理解されたい。従って、そうでないことが示されない限り、以下の説明及び添付した「特許請求の範囲」中に記載した数値パラメーターは近似値であり、本発明によって得ることが求められる目的の性質によって異なる可能性がある。最低限でも、各数値パラメーターは少なくとも、報告された有効数字の数を考慮に入れ且つ通常の丸めを

50

適用することによって解釈すべきである。更に、本明細書の開示及び特許請求の範囲中に記載した範囲は、端点だけでなく、全範囲を具体的に含むものとする。例えば0～10と記載した範囲は、0と10の間の全ての整数、例えば1、2、3、4など、0と10の間の全ての分数、例えば1.5、2.3、4.57、6.1113など、並びに端点0及び10を開示するものとする。

【0015】

本発明を説明する数値範囲及びパラメーターは近似値であるが、具体例に記載した数値は、可能な限り正確に報告してある。しかし、全ての数値は本質的に、個々の試験測定値に見られる標準偏差から必然的に生ずる若干の誤差を含む。

【0016】

本明細書中で使用する用語「ポリエステル」は、「コポリエステル」を含むものとする。一般に、ポリエステルは、1種又はそれ以上の二官能価カルボン酸と1種又はそれ以上の二官能価ヒドロキシ化合物との重縮合によって製造された合成ポリマーである。典型的には、二官能価カルボン酸はジカルボン酸であり、二官能価ヒドロキシ化合物は二価アルコール、例えばグリコール及びジオールである。ポリエステルは場合によっては、1種又はそれ以上のヒドロキシカルボン酸（又はそれらのポリエステル形成性誘導体）で修飾されることができる。或いは、例えば環状ラクチドから製造されるポリ乳酸又はカプロラクトンから形成されるポリカプロラクトンの場合のように、ポリエステルは、環状ラクトンの開環反応によって形成できる。

【0017】

本明細書中で使用する用語「脂肪族－芳香族ポリエステル」は、脂肪族又は脂環式ジカルボン酸又はジオール及び芳香族ジカルボン酸又はジオールからの残基の混合物を含むポリエステルを意味する。

【0018】

用語「芳香族」は、ジカルボン酸又はジオールが主鎖中に芳香族を含むこと（例えば、テレフタル酸又は2,6-ナフタレンジカルボン酸）を意味する。

【0019】

本明細書中でジカルボン酸、ジオール及びヒドロキシカルボン酸モノマーに関して使用する用語「非芳香族」は、モノマーのカルボキシル又はヒドロキシル基が芳香核を介して結合されないことを意味する。例えば、アジピン酸は主鎖、即ち、カルボン酸基を結合する炭素原子の鎖中に芳香核を含まず、従って、「非芳香族」である。「非芳香族」は、本質的に飽和又はパラフィン系であることもできるし、不飽和である（即ち、非芳香族炭素－炭素二重結合を含む）こともできるし、或いはアセチレン系である（即ち、炭素－炭素三重結合を含む）こともできる成分炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖又は環状配列を主鎖として含む脂肪族及び脂環式構造、例えばジオール、二酸及びヒドロキシカルボン酸を含むものとする。従って、本発明の説明及び特許請求の範囲との関連で、「非芳香族」は、直鎖及び分岐鎖構造（ここでは「脂肪族」と称する）及び環状構造（ここでは「脂環式」と称する）を含むものとする。しかし、用語「非芳香族」は、脂肪族若しくは脂環式ジオール又は二酸若しくはヒドロキシカルボン酸の主鎖に結合できる芳香族置換基を除外するものではない。本発明において、二官能価カルボン酸は、脂肪族若しくは脂環式ジカルボン酸、例えばアジピン酸又は芳香族ジカルボン酸、例えばテレフタル酸であることができる。二官能価ヒドロキシ化合物は、脂環式ジオール、例えば1,4-シクロヘキサジメタノール、直鎖若しくは分岐鎖脂肪族ジオール、例えば1,4-ブタンジオール、又は芳香族ジオール、例えばヒドロキノンであることができる。

【0020】

本明細書中で使用する用語「残基」は、対応するモノマーを伴う重縮合反応によってポリマー中に組み込まれる任意の有機構造を意味する。

【0021】

本明細書中で使用する用語「反復単位」は、カルボニルオキシ基によって結合されたジカルボン酸残基及びジオール残基又はヒドロキシカルボン酸残基を有する有機構造を意味

10

20

30

40

50

する。このため、ジカルボン酸残基は、ジカルボン酸モノマー又はそれに関連した酸ハロゲン化物、エステル、塩、無水物又はそれらの混合物から得ることができる。

【0022】

従って、本明細書中で使用する用語「ジカルボン酸」は、高分子量ポリエステルを製造するためのジオールとの重縮合プロセスにおいて有用なジカルボン酸及びジカルボン酸の任意の誘導体、例えば、その関連した酸ハロゲン化物、エステル、半エステル、塩、半塩、無水物、混合無水物、又はそれらの混合物を含むものとする。

【0023】

本発明のポリエステルを場合によっては改質する状況において使用する用語「ヒドロキシカルボン酸」は、高分子量ポリエステルを製造するためのジオールとの重縮合プロセス又は開環反応において有用な、脂肪族及び脂環式ヒドロキシカルボン酸を含むモノヒドロキシーモノカルボン酸及びそれらの任意の誘導体、例えば、それに関連する酸ハロゲン化物、エステル、環状エステル（乳酸ラクチドのような二量体を含む）、塩、無水物、混合無水物又はそれらの混合物を意味する。

【0024】

用語「嫌氣的生分解性」は、ポリエステル、組成物又は製品（例えばフィルム、繊維、不織布、積層品、造形品など）が、都市下水処理プラント又は污水处理システムから得られる活性な下水汚泥中において遭遇するような嫌気性又は微好気性環境下で妥当な時間内で、例えば1～3ヶ月内で少なくとも部分的に分解され、弱められ、粉々に碎かれ、崩壊され又は溶解されることができることを意味する。

【0025】

材料が完全に生分解されるか否かは、ASTM、米国コンポスト協議会（US Composting Council）、CEN（ヨーロッパ）、DIN（ドイツ）のような国際規格機構及びアジアにおいて議論されている。しかし、世界中で、フラグメンテーション及び崩壊は、全プロセスの初期段階であるが、全生分解の不十分な証拠であることが認められている。完全な生分解は、好気性条件又は嫌気性条件（又は中間）のいずれであっても、材料の炭素を微生物細胞マスに生分解させ、最終的には二酸化炭素として発生させる。更に、引張強さ、伸び率、分子量、酸素摂取量又は質量の減少は生分解を示唆することはできるが、好氣的及び嫌氣的生分解のいずれにおいても、二酸化炭素の最終的発生のみが、完全な生分解の指標として全世界的に認められている。炭素からのCO₂、微生物細胞マス（mass）及び無機化学物質への発生の完了を、鉱物化（mineralization）と定義する。

【0026】

微生物は、酸素に対する広範な耐性及び酸素要求の差を示す。狭義の嫌気性菌と見なされる有機体でも、利用できる場合には酸素を代謝できるが、このガスの存在下では十分に増殖しない。生分解性の微生物群集においては、あらゆる種類の酸素要求が観察される。

【0027】

厳密に言えば、用語「嫌気性（的）（anaerobic）」は、空気（又はより正確に言えば、遊離酸素）がないことを意味するが、完全に空気がない液体生分解媒体はほとんどない。従って、污水处理タンク又は下水環境についてのより良い説明は、微好気性（空気が微量である）であろう。新しい材料を液体と共に污水处理タンク又は下水システムに単に添加すると（フラッシュによって）、それと共に必然的に若干の溶存酸素が運搬される。従って、用語「嫌気性（的）」は、ここではその文字通りの意味では用いられない。それはより広範に用いて、污水处理タンク又は下水システムにおいて典型的に遭遇する微好気性環境のように、遊離酸素が一部分又は完全に枯渇していることを意味する。

【0028】

いくつかの化合物は酸素が存在しない場合にのみ代謝されること並びに利用可能な酸素は好気性及び微好気性生物によって使い尽くされることが十分に立証されている。例は、フェノール系化合物及び高度塩素化分子である。EASTAR BIOコポリエステルのような脂肪族－芳香族ポリエステルの成分は、これらの化合物には含まれない。完全な嫌

10

20

30

40

50

気性環境においては、E A S T A R B I O コポリエステルの生分解も起こらないし、フラグメンテーションすらも起こらないことが観察された。実際に、刈り取られた芝（好気性条件下ではE A S T A R B I O にとって極めて侵略的な微生物環境であることが証明されている）に置かれたE A S T A R B I O コポリエステルのフィルムは、完全な嫌気性環境下では5年後にフラグメンテーションの開始すらなかった。

【0029】

また、以前の試験において、48モル%を超える割合のテレフタル酸を含むフィルムは好気性環境における生分解がはるかに遅く、また、微好気性（部分嫌気性）環境においては6ヶ月でフラグメンテーションの開始すらないことが観察された。好気性環境におけるE A S T A R B I O コポリエステルの生分解速度は、テレフタル酸の割合によってかなり影響される。厚さが同じであるがテレフタル酸の割合の低い（例えば41～43モル%）フィルムは好気性環境において、46～48モル%を含むフィルムよりも指数関数的に速く、また、50モル%超のテレフタル酸を含むフィルムよりも数オーダー速く生分解する。また、嫌気的生分解の開始は、「極めて長期間の環境順化」を有することが立証されている。以前の研究により、特に、完全な嫌気性条件下においては48%のテレフタル酸フィルムのフラグメンテーションが起こらないために、ほとんどの研究者は、脂肪族－芳香族ポリエステルが污水处理／下水環境の候補とはならないと考えていた。

10

【0030】

しかし、ここに引用した研究は、テレフタル酸の割合が非常に低い（例えば43モル%未満）場合には、脂肪族－芳香族ポリエステルは污水处理／下水条件下で実際にはフラグメンテーション及び鉱物化が可能なことを証明している。

20

【0031】

本発明の嫌気的生分解性ポリエステルは典型的には、ジカルボン酸及びジオールから製造する。それらは、実質的に等しい割合で反応し、それらの対応する残基としてポリエステルポリマー中に取り入れられる。それらは場合によっては、ヒドロキシカルボン酸又はそのポリエステル形成性誘導体の更なる存在下においても製造できる。従って、本発明のジカルボン酸及びジオール残基から得られるポリエステルは、反復単位の総モルが100モル%に等しくなるように実質的に等モル比の二酸残基（100モル%）及びジオール残基（100モル%）を含む。ポリエステルは、これらの100モル%の合計に影響を与えずにヒドロキシカルボン酸を取り入れることによって改質することができる（即ちそれらは酸基とヒドロキシ基との化学量論バランスを既に含むので、ヒドロキシカルボン酸はこの100モル%の計算に入らない）。

30

【0032】

この開示における二酸のモル%は、個々のポリマーサンプル中の二酸残基の総モルの割合（又は%）として表す。例えば、総二酸残基に基づき60モル%のアジピン酸を含むコポリエステルは、コポリエステルが合計100モル%の二酸残基のうち60モル%のアジピン酸残基を含むことを意味する。従って、二酸残基100モル%当たりアジピン酸残基が60モル%存在する。

【0033】

同様に、ジオールのモル%は、ポリマーサンプル中のジオール残基の総モルの割合（又は%）として表す。例えば、総ジオール残基に基づき、15モル%のエチレングリコールを含むコポリエステルは、コポリエステルが合計100モル%のジオール残基のうち15モル%のエチレングリコール残基を含むことを意味する。従って、ジオール残基100モル当たりエチレングリコール残基が15モル存在する。

40

【0034】

ヒドロキシカルボン酸のモル%は、本明細書では、ポリマーサンプル中の二酸残基の総モルの割合（又は%）として表す。例えば、ヒドロキシカルボン酸10モル%、アジピン酸60モル%、テレフタル酸40モル%及びブタンジオール100モル%を含むポリマーは、サンプル中に二酸残基のモル数（この場合には、アジピン酸残基のモル+テレフタル酸残基のモル数）があるので、サンプル中のヒドロキシカルボン酸残基のモル数は1／1

50

0であることを意味する。従って、ヒドロキシカルボン酸を含むコポリマーの場合には、全成分の総モル％は、200より大きくなる（ヒドロキシカルボン酸 x モル％ + 二酸 100 モル％ + ジオール 100 モル％）。

【0035】

本発明の嫌氣的生分解性ポリエステルは、1種又はそれ以上の非芳香族ジカルボン酸の残基を含むことができる。非芳香族ジカルボン酸の例としては、グルタル酸及びアジピン酸が挙げられる。

【0036】

非芳香族ジカルボン酸の他に、嫌氣的生分解性ポリエステルは芳香族ジカルボン酸の残基を含むことができる。使用できる芳香族ジカルボン酸の例としては、テレフタル酸、イソフタル酸、5-スルホイソフタル酸及び2,6-ナフタレンジカルボン酸が挙げられる。一実施態様において、芳香族ジカルボン酸はテレフタル酸を含み、テレフタル酸の5モル％以下が、イソフタル酸、5-スルホイソフタル酸及び2,6-ナフタレンジカルボン酸の1種又はそれ以上と置き換えられる。

10

【0037】

芳香族ジカルボン酸残基は、本発明のポリエステル中に、ポリエステルを嫌気性条件下で生分解性にするのに有効な量で存在する。正確な量は、芳香族ジカルボン酸と非芳香族ジカルボン酸との個々の組合せ並びにポリエステルの製造に使用するジオール及びヒドロキシカルボン酸によって決まるであろう。一般に、ポリエステル中の二酸残基の総モルに基づき、約39～約43モル％の芳香族ジカルボン酸残基を含む脂肪族-芳香族ポリエステルは、嫌氣的生分解性であると予想できる。ポリエステル中の二酸残基の総モルに基づき、約40～約42モル％の芳香族ジカルボン酸残基を含む脂肪族-芳香族ポリエステルもまた、嫌氣的生分解性であると予想できる。熱可塑性澱粉のような一般に容易に生分解し得る材料と配合される場合には、嫌氣的生分解性ポリエステル組成物を生成すると予想できる追加の芳香族ジカルボン酸残基の範囲としては、約39～約46モル％及び約41～約43モル％が挙げられる。

20

【0038】

本発明のポリエステル中に使用できるジオールの例としては、以下のものが挙げられるが、これらに限定するものではない。エチレングリコール、ジエチレングリコール、プロピレングリコール、1,3-プロパンジオール、2,2-ジメチル-1,3-プロパンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサジオール、ポリエチレングリコール、ジエチレングリコール、2,2,4-トリメチル-1,6-ヘキサジオール、チオジエタノール、1,3-シクロヘキサジメタノール、1,4-シクロヘキサジメタノール、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、トリエチレングリコール、及びテトラエチレングリコール。好ましいジオールは、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、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサジオール及び1,4-シクロヘキサジメタノールから選ばれた1種又はそれ以上のジオールを含んでなる。一実施態様において、本発明のポリエステルは、1,4-ブタンジオールからの残基約85～約100モル％及び別のジオールからの残基約0～約15モル％を含む。別の実施態様において、ポリエステルは、約100モル％の1,4-ブタンジオール残基を含む。

30

40

【0039】

本発明の嫌氣的生分解性ポリエステルは、適当なジカルボン酸、エステル、無水物又は塩、適当なジオール又はジオール混合物及び任意の分岐剤から、典型的な重縮合反応条件を用いて容易に製造できる。それらは、連続、半連続及び回分操作様式によって製造でき、種々の反応器型を使用できる。適当な反応器型の例としては、連続槽、連続攪拌槽、スラリー、管、ワイプトフィルム、流下膜式又は押出反応器が挙げられるが、これらに限定するものではない。

【0040】

50

本発明の嫌氣的生分解性ポリエステルは、例えば米国特許第2,012,267号に記載された、当業者に知られた方法によって製造することができる。このような反応は通常、150℃～300℃の温度において重縮合触媒、例えばアルコキシチタン化合物、アルカリ金属水酸化物及びアルコレート、有機カルボン酸の塩、アルキル錫化合物、金属酸化物などの存在下で実施する。触媒は典型的には、反応体の総重量に基づき、10～1000 ppmの量で使用する。

【0041】

ポリエステルは、二酸残基の総モルに基づき、約15モル%以下のヒドロキシカルボン酸残基を混和することによって改質できる。(1)脂肪族二酸残基、(2)存在する場合には1,4-ブタンジオール以外のジオール残基、及び(3)存在する場合には、ヒドロキシカルボン酸残基の総モル%は、望ましくは約65未満である。他の実施態様において、(1)+(2)+(3)の総モル%は約50～約65、約55～約62又は約58～約62の範囲であることができる。

10

【0042】

適当なヒドロキシカルボン酸の例としては、 γ -ブチロラクトン；カプロラクトン：乳酸(D若しくはL型又はそれらの混合物)；脂肪族ヒドロキシアルコレート、例えば4-ヒドロキシブタン酸、4-ヒドロキシ吉草酸、4-ヒドロキシヘキサン酸及び4-ヒドロキシオクタン酸；並びにポリエステルの製造に有用なそれらの誘導体が挙げられる。これらのヒドロキシカルボン酸は、それらを遊離酸の形態で又は他のポリエステル形成性誘導体、例えばそれらのエステル(例えばラクトンと称する環状エステル)の形態で反応させることによって常法でポリエステル中に直接反応させることによって、或いはそれらを、ポリヒドロキシアルカノエート(PHAs)、例えばポリヒドロキシブチレート(PHB)、ポリヒドロキシブチレート-co-バレレート(PHBv)、ポリヒドロキシブチレート-co-オクタノエート(PHBO)及びポリヒドロキシブチレート-co-ヘキサノエート(PHBHx)；ポリカプロラクトン(PCL)、及び合成又は天然供給源からのポリ乳酸(PLA)のようなポリマーの形態で前記ポリエステルと反応性ブレンドさせることによって、組み込むことができる。

20

【0043】

嫌氣的生分解性ポリエステルは、約10～約1,000個の反復単位を含むことができる。それらはまた、約15～約600個の反復単位を含むことができる。嫌氣的生分解性ポリエステルは、フェノール/テトラクロロエタンの重量比60/40の溶液100ml中ポリエステル0.5gの濃度を用いて25℃の温度で測定した場合に約0.4～約2.0 dL/g又は約0.7～約1.4 dL/gのインヘレント粘度を有することができる。

30

【0044】

嫌氣的生分解性ポリエステルは場合によっては、分岐剤の残基を含むことができる。分岐剤に関する重量%の範囲は、ポリエステルの総重量に基づき、約0～約2重量%、約0.1～約1重量%又は約0.1～約0.5重量%である。分岐剤は、約50～約5000又は約92～約3000の重量平均分子量、及び約3～約6の官能価を有することができる。例えば、分岐剤は、3～6個のヒドロキシル基を有するポリオール、3～4個のカルボキシル基(又はエステル形成性等価基)を有するポリカルボン酸又は合計3～6個のヒドロキシル及びカルボキシル基を有するヒドロキシ酸のエステル化残基であることができる。

40

【0045】

分岐剤として使用できる代表的な低分子量ポリオールとしては、以下のものが挙げられる。グリセロール、トリメチロールプロパン、トリメチロールエタン、ポリエーテルトリオール、グリセロール、1,2,4-ブタントリオール、ペンタエリスリトール、1,2,6-ヘキサントリオール、ソルビトール、1,1,4,4-テトラキス(ヒドロキシメチル)シクロヘキサン、トリス(2-ヒドロキシエチル)イソシアヌレート及びジペンタエリスリトール。高分子量ポリオール(MW400～3000)の分岐剤の具体例は、炭素数2～3のアルキレンオキシド、例えばエチレンオキシド及びプロピレンオキシドをポ

50

リオール開始剤と縮合させることによって得られるトリオールである。

【0046】

分岐剤として使用できる代表的なポリカルボン酸としては、以下のものが挙げられる。ヘミメリット酸、トリメリット酸（1，2，4-ベンゼントリカルボン酸）及び無水物、トリメシン酸（1，3，5-ベンゼントリカルボン酸）、ピロメリット酸及び無水物、ベンゼンテトラカルボン酸、ベンゾフェノンテトラカルボン酸、1，1，2，2-エタンテトラカルボン酸、1，1，2-エタントリカルボン酸、1，3，5-ペンタントリカルボン酸、及び1，2，3，4-シクロペンタンテトラカルボン酸。酸はそれ自体を使用することもできるが、それらの低級アルキルエステルの形態で又は環状無水物を形成できる場合にはそれらの環状無水物の形態で使用することもできる。

10

【0047】

分岐剤として使用できる代表的な「分岐用ヒドロキシカルボン酸」（これらのヒドロキシカルボン酸は、等しい数の酸及びヒドロキシ基を含まない点で、この説明の他の場所で述べたヒドロキシカルボン酸とは異なり、この説明の他の場所で用いたヒドロキシカルボン酸の定義からは除外される）としては、リンゴ酸、クエン酸、酒石酸、3-ヒドロキシグルタル酸、ムチン酸、トリヒドロキシグルタル酸、4-カルボキシフタル酸無水物、ヒドロキシイソフタル酸及び4-（ β -ヒドロキシエチル）フタル酸が挙げられる。このような分岐用ヒドロキシカルボン酸は、3個又はそれ以上のヒドロキシ及びカルボキシ基の組合せを含む。代表的な分岐剤としては、トリメリット酸、トリメシン酸、ペンタエリスリトール、トリメチロールプロパン及び1，2，4-ブタントリオールが挙げられる。

20

【0048】

本発明の嫌氣的生分解性ポリエステルはまた、それらの溶融粘度を増大させるために1種又はそれ以上のイオン含有モノマーを含むことができる。イオン含有モノマーは、スルホイソフタル酸又はその誘導体の塩から選択されることができる。この型のモノマーの典型例は、ソジオスルホイソフタル酸又はソジオスルホイソフタル酸のジメチルエステルである。イオン含有モノマーに典型的な濃度範囲は、二酸残基の総モルに基づき約0.3～約5.0モル%又は約0.3～約2.0モル%である。

【0049】

本発明の嫌氣的生分解性ポリエステルはまた、ポリエステルの総重量に基づき、0～約5重量%の1種又はそれ以上の連鎖延長剤を含むことができる。典型的な連鎖延長剤は、米国特許第5，817，721号に開示されたようなジビニルエーテル又は米国特許第6，303，677号に開示されたようなジイソシアネートである。代表的なジビニルエーテルは1，4-ブタンジオールジビニルエーテル、1，5-ヘキサジオールジビニルエーテル及び1，4-シクロヘキサジメタノールジビニルエーテルである。代表的なジイソシアネートはトルエン2，4-ジイソシアネート、トルエン2，6-ジイソシアネート、2，4'-ジフェニルメタンジイソシアネート、ナフチレン-1，5-ジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート及びメチレンビス（2-イソシアナトシクロヘキサン）である。使用可能な重量%範囲は、ポリエステルの総重量に基づき、約0.3～約3.5重量%及び約0.5～約2.5重量%である。3以上の官能価を有するイソシアヌレート及び／若しくはビウレア基を含むことができる三官能価イソシアネート化合物を用いること又はジイソシアネート化合物を一部、トリ-若しくはポリイソシアネートで置き換えることも原則的に可能である。

30

40

【0050】

本発明のポリエステルは熱可塑性澱粉とブレンドして嫌氣的生分解性組成物を形成できる。組成物中の熱可塑性澱粉の量は、組成物の総重量に基づき、約5～約70重量%の範囲であることができる。熱可塑性澱粉との配合は、ポリエステルの生分解速度を増大すると予想される。

【0051】

50

澱粉とポリエチレン（P E）及びポリプロピレン（P P）のような合成ポリマーとの配合は、ここ数年、関心の増えつつあるテーマである。澱粉は豊富に存在し且つ安価な充填材であるので、強く望まれている。更に、澱粉は、得られるブレンドに増大した生分解性を与えることができる。しかし、これらのP E及びP Pポリマーは、完全な生分解が望ましいようないくつかの用途への使用には適さない。

【0052】

植物生成物中に含まれる天然澱粉は、顆粒状粉末として単離できる。天然澱粉は、一定量の水を添加して高温高压で処理することにより、メルトを形成できる。このようなメルトを、ゼラチン化又は非組織化（*destructurized*）澱粉と称する。非組織化澱粉を可塑剤のような添加剤と混合して、熱可塑性澱粉又はTPSを得ることができる。これらの形態の澱粉は、米国特許第5,095,054号及び第5,362,777号に記載されたような従来の方法を用いて本発明のポリエステルと混合できる。これらの特許の全内容を引用することによって本明細書に組み入れる。

【0053】

TPSに加えて又はTPSの他に、本発明のポリエステルはまた、無機塩と合して、嫌氣的生分解性組成物を形成できる。この組成物は、少なくとも約0.1重量%の無機塩を含むことができる。無機塩の非限定的例としては、金属炭酸塩、金属酸化物、金属磷酸塩、金属塩化物、金属硫酸塩及びそれらの混合物が挙げられる。これらの無機塩中の代表的な金属陽イオンとしては、カルシウム、カリウム、ナトリウム、マグネシウム、他の第I族及び第II族金属陽イオン、アルミニウム、チタン及び珪素を挙げることができる。代表的な無機塩としては、タルク、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、炭酸カリウム、炭酸ナトリウム、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、磷酸カルシウム、酸化チタン、シリコンオキサイド、酸化アルミニウム及びそれらの混合物が挙げられる。典型的には、無機塩含量は約0.1～約60重量%、約1～約50重量%、又は約2～約40重量%の範囲である。一実施態様において、嫌氣的生分解性組成物は、約1～約20重量%の炭酸カルシウム又はタルクを含む。

【0054】

場合によっては、本発明の嫌氣的生分解性組成物中に1種又はそれ以上の添加剤を混和するのが望ましい場合がある。適当な添加剤としては、加工助剤、充填剤、界面活性剤、可塑剤、相容化剤、耐衝撃性改良剤、成核剤、酸化防止剤、熱又は紫外線安定剤、着色剤、帯電防止剤、潤沢剤、発泡剤、分散剤、増粘剤、抗菌剤及びそれらの混合物が挙げられるが、これらに限定されるものではない。典型的には、これらの添加剤は、本発明の組成物の約10重量%以下、約20重量%以下又は約30重量%以下を構成する。

【0055】

本発明のポリエステル及び組成物は、常法を用いて有用な製品にすることができる。このような製品は、部分的嫌気性条件下（低酸素）又は完全嫌気性条件下で崩壊し且つ引き続いて二酸化炭素、水及びバイオマスに鉱物化する、新しく且つ予想外の能力を示す。従って、本発明は、一義的に有用なポリエステル及び組成物だけでなく、それらから製造された製品を含む。可能な製品としては、フィルム、メルトブローウェブ、スパンボンド式不織布、二成分繊維成分、粘着促進層、セルロース樹脂用結合剤、フラッシュ可能な不織布及びフィルム、溶解可能なバインダー繊維、保護層並びに活性成分を水中に放出又は溶解するためのキャリアーが挙げられるが、これらに限定するものではない。他の押出可能な、溶融紡糸繊維材料も考えられる。

【0056】

最終製品を製造するために使用する加工技術としては、メルトブロー、溶融流延、カレンダー加工及びスパンボンドが挙げられるが、これらに限定するものではない。従来の接合及び組み立て手段（例えば加圧及び加熱積層と場合によって組合された適当な溶剤又は接着系を用いた溶剤接着若しくは接着剤接着、共押出又は当業界で使用される他の接着／接合技術の組合せ）を用いて個々の成分構造を更に合して、最終製品構造を得ることができる。

【0057】

本発明のポリエステル及び組成物は、使い捨て吸収性製品への使用に特に適している。本明細書中で使用する用語「吸収性製品」とは、体液を吸収し且つ収容できる製品を意味し、より詳細には、身体から排出される種々の液体を吸収し且つ収容できる、着用者の身体に接触して又は着用者の身体の前傍に配置される製品を意味する。更に、用語「使い捨て吸収性製品」は、1回の使用後に廃棄するように作られた製品を意味する（即ち、元の吸収性製品は全体としては洗濯されるようにも、吸収性製品として他の方法で復元又はリユースするようにも作られていないが、吸収性製品の一部の材料又は全てをリサイクルし、リユースし、堆肥化し又はフラッシュされる場合もある）。本発明は、種々の吸収性製品、例えばおむつ、失禁用ブリーフ、失禁用パッド、トレーニングパンツ、プルオン式おむつ、おむつインサート、月経パッド、生理用ナプキン、おりものシート、陰唇用器具（interlabial devices）、タンポン、フェイシャルティッシュ、ペーパータオル、ブレストパッドなど並びに他のフラッシュできる可能性のある品目、例えばタンポン・アプリーケーター・アセンブリ（バレルとプランジャーを含む）、タンポンコード、包み紙及び使い捨て吸収性製品、使い捨て手袋などを含む種々の製品用の包装に適用できる。

10

【0058】

これらの吸収性製品は、典型的には、本発明のフィルムから製造される実質的に水不透過性のバックシート、バックシートに接合された又は他の方法でバックシートに関連づけられた実質的に水透過性のトップシート並びにバックシートとトップシートとの間に配置された吸収性コアを含む。トップシートは、吸収性コアの身体に向いた表面に隣接して配置される。トップシートは、当業界でよく知られたような取り付け手段によって吸収性コア及びバックシートに接合することができる。ここで使用する用語「接合する」とは、一方の要素を他方の要素に直接貼ることによって一方の要素が他方の要素に直接固定された配置及び一方の要素を中間部材に貼り、次にそれをもう一方の要素に貼ることによって一方の要素が他方の要素に間接的に固定された配置を包含する。一部の吸収性製品においては、トップシート及びバックシートを、その外周において互いに直接接合する。トップシートとバックシートはまた、それらを取り付け手段によって吸収性コアに直接接合することによって間接的に接合することができる。

20

【実施例】

30

【0059】

本発明を更に、以下の実施例によって例示及び説明する。

【0060】

実施例 1微生物の付着及びフラグメンテーションの分析

The Technical Service Laboratory of Eastman Chemical Companyにおいて、従来型のインフレーションフィルム加工装置を用いて、二酸成分としてのアジピン酸とテレフタル酸との混合物及びジオール成分としての100モル%の1,4-ブタンジオールからフィルムを製造した。テレフタル酸含量及びフィルム組成を表Iに示す。

40

【0061】

表Iに記載したフィルムについて、ベース樹脂を、24:1の長さ:直径比を有し且つ中程度の切断力、混合を行わない汎用ポリエステルスクリュウ及び3:1の圧縮比を用いる2~1/2"の一軸スクリュウ押出機中に供給した。樹脂を乾燥させから、デシカントドライヤー中で150°Fにおいて8時間処理した。加工添加剤も同様に乾燥させてから加工を行い、重量計量供給システムを用いて一軸スクリュウ押出プロセスに送出した。加工添加剤及びフィルム中におけるそれらの最終濃度もまた、表Iに示す。ベース樹脂と同じ樹脂中のCaCO₃ 50重量%のコンцентレート又はベース樹脂と同じ樹脂中のタルク50重量%のコンцентレートを適当な量で用いて、添加剤を混和した。

【0062】

50

次いで、メルトを6インチの単層スパイラルマンドレルダイを通して送出した。冷風を用いるが内部バブル冷却を用いないデュアルリップ・エアリングを用いて、縦方向／幅方向ブローアップ比が2：1のフィルムを生成した。18フィートの案内板高さをを用いて、チューブラフィルムをつぶすことによってフィルムを生成した。フィルムの加工に用いた温度分布を表ⅠⅠⅠに示す。

【0063】

他の嫌氣的生分解性ポリマーから製造された市販フィルムを入手した。それらを表ⅠⅠに記載する。

【0064】

全てのフィルムを、稼働中の污水处理タンク（部分的嫌気性）環境に置いた。3ヶ月後、フィルムを回収し、微生物の付着及びフラグメンテーションの度合いについて評価した。

【0065】

表中で使用する「T」はテレフタル酸を意味し、「TPS」は熱可塑性澱粉を意味する。

【0066】

【表1】

表Ⅰ：Eastmanにおいて製造されたフィルム

フィルム ID No.	フィルム組成	フィルム厚 (ミル)	微生物の付着	フラグメンテーション
1	T 43モル％／ タルク10重量％	1.45	優	良
2	T 45モル％／ タルク10重量％	1.25	可	非常に不良
3	T 48モル％／ CaCO ₃ 15重量％	1.20	無	無

【0067】

【表2】

表Ⅱ：市販フィルム

フィルム ID No.	フィルム組成	フィルム厚 (ミル)	微生物の付着	フラグメンテーション
4	Ecoflex BAG (-T 47モル％) + TPS 30重量％	1.45	非常に不良	無
5	Belgian Competitor (-T 47モル％) + TPS 30重量％	1.45	無	無

【0068】

【表 3】

表Ⅲ：インフレーションフィルムの加工条件

抽出機ゾーン1	150℃ (300° F)
抽出機ゾーン2	150℃ (300° F)
抽出機ゾーン3	155℃ (310° F)
抽出機ゾーン4	160℃ (320° F)
アダプター	135℃ (280° F)
ダイブロック	135℃ (280° F)
下部ダイ	135℃ (280° F)
上部ダイ	135℃ (280° F)
ダイギャップ	0.030インチ
エアリング温度	10℃ (50° F)

10

【0069】

表Ⅰ及びⅠⅠからわかるように、1, 4-ブタンジオール100モル%、テレフタル酸45モル%未満及びアジピン酸55モル%超を含む脂肪族-芳香族ポリエステルから製造されたフィルムは、全て、優れた微生物付着及びフィルムフラグメンテーションを示した。1, 4-ブタンジオール100モル%、テレフタル酸45モル%超及びアジピン酸55モル%未満を含むコポリエステルから製造されたフィルムは、わずかな付着及びフラグメンテーションを示した。1, 4-ブタンジオール100モル%、テレフタル酸46～7モル%、及びアジピン酸53～4モル%を含む脂肪族-芳香族ポリエステルから高レベル（30重量%）の熱可塑性澱粉の添加によって製造した市販の袋は、付着もフラグメンテーションも示さなかった。

20

【0070】

完全な生分解は、好気性条件又は嫌気性条件（又は中間）のいずれであっても、材料の炭素を微生物細胞マスへと生分解し、最終的には二酸化炭素として発生する。更に、引張強さ、伸び率、分子量、又は酸素摂取量若しくは質量の低下は、生分解を示唆することができるが、二酸化炭素の最終的発生のみが、好氣的及び嫌氣的生分解のいずれにおいても完全な生分解の指標として普遍的に認められている。

30

【0071】

実施例2

放射化学分析

フィルム形成手順：

炭素-14標識テレフタル酸を用いて、3種の炭素-14標識脂肪族-芳香族ポリエステル樹脂（芳香環炭素上で標識）を合成した。フィルムの製造に用いた成分及び方法を以下に記載する。

40

【0072】

反応器装填材料（50ml丸底フラスコ24／40STG）

1. 42モル%のTのためのテレフタル酸ジメチル…3.92g；
43モル%のTのためのDMT…4.01g；又は
46モル%のTのためのDMT…4.32g
2. アジピン酸…4.3136g
3. 1, 4-ブタンジオール…8.0698g
4. BuOH中Ti触媒1.02w/vol%…0.10ml
5. 42モル%のTのためのC-14標識DMT（Lot#NEN2992-135）

50

… 0. 004 g ;
 43 モル%の T のための C-14 標識 DMT (Lot # NEN 2992-135)
 … 0. 005 g ; 又は
 46 モル%の T のための C-14 標識 DMT (Lot # NEN 2992-135)
 … 0. 005 g
 6. 225 °C に温度を上昇させる前に添加されるブタンジオール 0. 5 ml 中でスラリ
 ー化された U l t r a n o x 626 … 6. 1 mg

【0073】

手順

1. 品目 1、2、3、4 及び 5 をフラスコに装填し ; N₂ でフラッシュし、真空ポンプ
 で排気 ; フラッシュ 2 回。 10

【0074】

2. 以下の温度及び時間でフラスコを加熱 :

温度 (°C)	時間
190	1 時間
200	1 時間
210	1. 5 時間
U L T R A N O X 626 を添加 (品目 6)	
255 まで	30 分間 (わずかに真空, 激しく攪拌しながら)

20

真空を 0. 11 トルまで増加

高温、高真空

1. 5 時間

ポリマーは、薄い琥珀色を有していた。また、ポリマーは、攪拌機に巻き付きつつあり
 且つフラスコの壁から離れつつある点まで粘度が増加した。ポリマー塊の上部は、高粘度
 のために典型的な渦又は波しわを有していた。

【0075】

3. 真空を窒素で置き換え、金属浴を下げ、反応フラスコを室内空気によって冷却し、
 次いで水で冷却 (30 分間)。

【0076】

4. ポリマーの硬化後、フラスコを高温金属浴中に浸漬し、「引いた」 (2 分間)。 30

【0077】

5. ポリマーが完全に冷却されるまで攪拌機を回転させた (30 分間)。

【0078】

6. フラスコの周囲において首に垂直にガラスナイフで筋をつけ、高温ガラスビーズを
 用いて割り、2 分された部分を引き離して、ポリマーが付着した攪拌機をはずした。

【0079】

得られた 3 種の樹脂は、概ね、テレフタル酸 42 モル%、テレフタル酸 43 モル% 及び
 テレフタル酸 46 モル% を含んでいた。テレフタル酸のモル% は、プロトン NMR を用い
 て測定した (二重分析)。樹脂サンプルを 1 : 3 のメタノール : 塩化メチレン溶剤混合物
 中に溶解するまで、窒素下で 0 ~ 2 °C において乾燥剤中に貯蔵した。サンプルを T e f l
 o n 加工パン上に溶液流延し、1 × 2 インチのストリップに切断した。厚さは、パン上に
 注がれたポリエステル対溶剤の量によって制御した。6 枚にフィルムを切断して、最終厚
 さを 1. 0 m i l ± 0. 2 m i l にしておいた。各フィルムは、400, 000 d p m (40
 分当たりの崩壊) ± 1500 d p m を示した (d p m は、期間中に回収されたバックグラ
 ウンドに応じて調整された分当たりの放射能のカウントを意味する)。

【0080】

放射化学試験手順

A S T M D 6340-98 S t a n d a r d M e t h o d R e c i p e の修正
 された手順を用いて、500 g の堆肥を調製し、2 リットルの反応フラスコに添加した。
 気流を制限して、この堆肥を周囲温度において 2 週間にわたって微好気性にした。この微 50

好気性堆肥にフィルムを加え、空気の取り入れを最小限に抑えて、堆肥とよく混合した、混合後、容器をシールし、この実験ではミキサーはもはや使わなかった。水溜を通して泡立てられた空気を、1週間当たり90秒間の24期間の間、反応がまの底部に400cc/分の「フラッシュ」で添加した。気流は、tylanマスコントローラーでCamille制御によって制御した。堆肥からの排ガスを、連続したトラップ容器、最初はカラム#1、次いでカラム#2を通して泡立てた（カラムはCO₂用のCarbosorb E）。カラム2におけるカウント数は、第1カラムにおいてトラップされなかったC14-CO₂を表す。カラムの効率を以下の表IVに示す。

【0081】

【表4】

10

表IV

時間間隔	カラム#1	カラム#2
4時間目におけるdpm	138,881	0
6時間目におけるdpm	283,425	511
8時間目におけるdpm	114,044	560

20

【0082】

Carbosorbトラップを総dpmカウントについて週に1回試験した。総数の累積%を以下のようにして計算した：（今週の総カウントー前週のカウント）／元のフィルム中の総カウント）。必要に応じて、追加のCarbosorbをトラップに加えた。トラップ中の材料を、30日ごとに污水处理タンク流出液100ccの添加によって、液体の活性微生物状態に保った。

【0083】

使用した装置及び方法は、以下の修正を除いて、D6340-98 ASTM法と一致していた。

30

1. 前記のような気流の制限；
2. 前記のような污水处理タンク流出液の添加；
3. この方法に使用される58℃の温度の代わりに周囲室内温度を用いた（これは、1トンより多い活性堆肥パイルをシミュレートすることを意味した）。

【0084】

180日間にわたる3種のフィルムの生分解（前述のようにして計算）の累積%を以下の表Vに示す。データからわかるように、3種のフィルムは全て、120日目において5%超、150日目において10%超が生分解した。テレフタル酸42モル%を含むフィルムは、テレフタル酸46モル%を含むフィルムよりも同じ期間にわたって速い速度で大きく生分解した。

40

【0085】

【表 5】

表V

日数	合計の生分解%		
	46% T	44% T	43% T
0	0.16	0.14	0.14
7	0.16	0.15	0.31
14	0.16	0.15	0.49
21	0.16	0.16	0.96
28	0.19	0.31	1.15
35	0.41	0.78	1.94
42	0.45	1.09	2.59
49	0.49	1.19	3.07
56	0.95	1.33	4.25
63	1.22	2.14	4.98
70	1.39	3.06	5.31
77	1.63	4.52	6.64
84	1.99	4.97	7.36
91	2.58	5.81	9.03
98	2.97	7.07	10.21
105	3.65	8.32	12.11
112	4.42	9.51	13.78
119	5.74	10.85	15.41
126	6.9	12.98	18.23
133	7.59	15.11	21.06
140	8.99	18.26	24.48
147	10.31	21.18	27.35
154	11.78	23.88	29.69
161	13.46	26.46	31.86
168	15.47	28.39	34.7
175	17.49	31.24	37.66

10

20

30

【国際調査報告】

60700130019



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

 International Application No
 PCT/US2005/008214

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 C08G63/02 C08G63/183 C08L67/00		
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) IPC 7 C08G C08L		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal, WPI Data		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DE 44 32 161 A1 (GESELLSCHAFT FUER BIOTECHNOLOGISCHE FORSCHUNG MBH , 38124 BRAUNSCHWEIG) 14 March 1996 (1996-03-14) claims 1,4,5 tables 2,6 example 8 page 5, paragraph 4-7 figures 3,4 ----- -/--	1,3-19, 32-42
☒ Further documents are listed in the continuation of box C.		
☒ Patent family members are listed in annex.		
* Special categories of cited documents :		
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubt 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 17 May 2005		Date of mailing of the international search report 03/06/2005
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentstrasse 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel: (+31-70) 940-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 940-3016		Authorized officer Lauteschlaeger, S

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (January 2004)

01.3.2007

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/US2005/008214

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DE 195 08 737 A1 (GESELLSCHAFT FUER BIOTECHNOLOGISCHE FORSCHUNG MBH , 38124 BRAUNSCHWEIG) 12 September 1996 (1996-09-12) claims 1,4-8 page 3, paragraph 2 - paragraph 6 table 2 page 6, line 20 - line 65 example 8 figures 3,4	1,3-19, 32-44
X,Y	US 5 446 079 A (BUCHANAN ET AL) 29 August 1995 (1995-08-29) claims 1,4,5,10,12,13 column 12, lines 29,30 column 13, line 3 - line 17 column 18, line 50 - column 19, line 13 tables I,II,XVI column 45, lines 51,52	1-45
X	US 2003/088033 A1 (SHELBY MARCUS DAVID ET AL) 8 May 2003 (2003-05-08) paragraphs [0061], [0069]	1-19,42, 43
X,Y	WO 93/07199 A (E.I. DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY) 15 April 1993 (1993-04-15) claim 1 page 4, paragraph 1-3 page 6, line 14 - line 23 page 7, line 30 - page 8, line 33 example 2	1-45

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/US2005/008214

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 4432161	A1	14-03-1996	WO 9607687 A1 14-03-1996
		EP 0779907 A1 25-06-1997	
		JP 10505620 T 02-06-1998	
DE 19508737	A1	12-09-1996	WO 9607687 A1 14-03-1996
		EP 0779907 A1 25-06-1997	
		JP 10505620 T 02-06-1998	
US 5446079	A	29-08-1995	US 5292783 A 08-03-1994
		US 6342304 B1 29-01-2002	
		US 5599858 A 04-02-1997	
		US 5580911 A 03-12-1996	
		US 5559171 A 24-09-1996	
		US 6495656 B1 17-12-2002	
		US 5900322 A 04-05-1999	
		AT 150058 T 15-03-1997	
		AT 199383 T 15-03-2001	
		AU 696544 B2 10-09-1998	
		AU 4557496 A 06-06-1996	
		AU 664831 B2 07-12-1995	
		AU 9105091 A 25-06-1992	
		BR 9107138 A 05-04-1994	
		CA 2095536 A1 31-05-1992	
		CN 1324891 A ,C 05-12-2001	
		CN 1062740 A 15-07-1992	
		CN 1183426 A 03-06-1998	
		CN 1183423 A ,C 03-06-1998	
		CN 1183433 A ,C 03-06-1998	
		CN 1183427 A 03-06-1998	
		CN 1183428 A 03-06-1998	
		CN 1183429 A 03-06-1998	
		DE 69125170 D1 17-04-1997	
		DE 69132548 D1 05-04-2001	
		DE 69132548 T2 28-06-2001	
		EP 0559785 A1 15-09-1993	
		EP 0736557 A1 09-10-1996	
		EP 0950678 A1 20-10-1999	
		FI 932450 A 28-05-1993	
		FI 20000496 A 03-03-2000	
		HK 1041708 A1 08-10-2004	
		IE 914155 A1 03-06-1992	
		JP 6504558 T 26-05-1994	
		JP 3362040 B2 07-01-2003	
		JP 3393124 B2 07-04-2003	
		JP 2001354802 A 25-12-2001	
		JP 3530178 B2 24-05-2004	
		JP 2003128768 A 08-05-2003	
		JP 2003221464 A 05-08-2003	
		JP 2004084156 A 18-03-2004	
		KR 220443 B1 15-09-1999	
		KR 245905 B1 15-03-2000	
		KR 233885 B1 15-03-2000	
		KR 245906 B1 15-03-2000	
		MX 9102312 A1 31-01-1994	
		NO 931920 A 16-07-1993	
		NZ 240799 A 26-01-1994	
		SG 47853 A1 17-04-1998	
		WO 9209654 A2 11-06-1992	

4

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/US2005/008214

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2003088033 A1	08-05-2003	CN 1541252 A	27-10-2004
		EP 1414904 A1	06-05-2004
		JP 2004536192 T	02-12-2004
		WO 03008499 A1	30-01-2003
WO 9307199 A	15-04-1993	AU 2694992 A	03-05-1993
		AU 2751592 A	03-05-1993
		WO 9307198 A1	15-04-1993
		WO 9307199 A1	15-04-1993
		US 5295985 A	22-03-1994
		AU 2762992 A	03-05-1993
		WO 9307213 A1	15-04-1993
		US 5219646 A	15-06-1993
		AU 2753592 A	03-05-1993
		DE 69207201 D1	08-02-1996
		DE 69207201 T2	18-07-1996
		DK 606362 T3	29-01-1996
		EP 0606362 A1	20-07-1994
		ES 2083195 T3	01-04-1996
		WO 9307197 A1	15-04-1993
		US 5171309 A	15-12-1992

フロントページの続き

(51)Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
D 0 1 F 6/92 (2006.01)	D 0 1 F 6/92 3 0 8 Z	4 L 0 4 7
D 0 4 H 1/42 (2006.01)	D 0 4 H 1/42 T	
C 0 9 J 167/00 (2006.01)	C 0 9 J 167/00	
C 0 9 J 167/04 (2006.01)	C 0 9 J 167/04	
C 0 9 J 11/04 (2006.01)	C 0 9 J 11/04	

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW

(特許庁注：以下のものは登録商標)

1. T E F L O N

(72)発明者 バンザント, レイア ジョーガンナ

アメリカ合衆国, テネシー 3 7 6 1 5, グレイ, フリー ヒル ロード 2 6 6

(72)発明者 ジャームロス, テッド カルバン

アメリカ合衆国, テネシー 3 7 6 6 4, キングスポート, クックス バレー ロード 1 9 7 4

(72)発明者 タンナー, カンダス ミッシェル

アメリカ合衆国, テネシー 3 7 6 6 0, キングスポート, ソーンウッド プレイス 7 0 4

Fターム(参考) 4J002 AB04X CF03W DD066 DE136 DE146 DE226 DE236 DH046 DJ016 DJ046

FD016 FD020 FD050 FD070 FD090 FD100 FD200 FD310 FD320 GB00

GC00 GK00

4J029 AA03 AB01 AC02 AD10 AE02 AE06 AE13 AE18 BA02 BA03

BA04 BA05 BD03A BF09 CA05 CA06 CB05A CB06A CC05A CH02

DB02 EA02 EG05 EG09

4J040 ED011 ED041 HA136 HA176 HA196 HA306 HA356 KA25 KA28 KA29

KA31 KA32 KA35 KA37 KA38 KA42 MA09 MA10 MB03 NA02

NA05

4J200 AA04 BA09 BA37 CA01 CA08 DA21 EA01 EA11

4L035 BB31 EE20 FF04 FF05 GG01

4L047 AA21 AA29 CC03