

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4104126号
(P4104126)

(45) 発行日 平成20年6月18日(2008.6.18)

(24) 登録日 平成20年4月4日(2008.4.4)

(51) Int.Cl.	F 1
C08F 2/40	(2006.01) C08F 2/40
C08F 4/30	(2006.01) C08F 4/30
C08F 10/00	(2006.01) C08F 10/00 510

請求項の数 6 (全 10 頁)

(21) 出願番号	特願2002-552975 (P2002-552975)
(86) (22) 出願日	平成13年12月12日 (2001.12.12)
(65) 公表番号	特表2004-535476 (P2004-535476A)
(43) 公表日	平成16年11月25日 (2004.11.25)
(86) 國際出願番号	PCT/EP2001/014570
(87) 國際公開番号	W02002/051885
(87) 國際公開日	平成14年7月4日 (2002.7.4)
審査請求日	平成16年10月7日 (2004.10.7)
(31) 優先権主張番号	100 64 752.9
(32) 優先日	平成12年12月22日 (2000.12.22)
(33) 優先権主張国	ドイツ (DE)

前置審査

(73) 特許権者	500585878 バーゼル、ポリオレフィン、ゲゼルシャフト、ミット、ペシュレンクテル、ハフツング
	ドイツ、D-50389、ヴェセリング
	、ブリューラー、シュトラーセ、60
(74) 代理人	100100354 弁理士 江藤 聰明
(72) 発明者	メーリング、フランク-オラフ ドイツ、68167、マンハイム、マクス
	-ヨーゼフ-シュトラーセ、23
(72) 発明者	デカース、アンドレアス ドイツ、55234、フロムボルン、シュ
	ールシュトラーセ、11

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 良好的機械的特性を有する無臭のエチレンホモポリマー及びコポリマー

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

化粧品、医療及び食品の分野において、射出成形された製品を製造するためのエチレンホモポリマーの使用であって、

前記エチレンホモポリマーが、

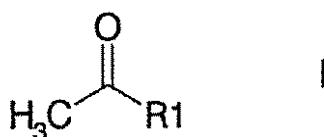
2カ所か又はそれ以上の重合ゾーンを有する管状の反応器内で 160 ~ 350 の温度範囲と 500 ~ 5000 バールの圧力範囲で、

重合開始剤として酸素を使用し、

分子量調節剤として、下記式 1 :

【化 1】

10



但し、R¹はC₁ - C₆ - アルキル又はC₃ - C₁₂ - シクロアルキルを表す、で表される1種以上の脂肪族ケトンを使用して製造する方法によって得られ、且つ

20

前記エチレンホモポリマーは、密度が920～935kg/m³で、DIN53735(190/2.16kg)に規定されたメルトフローインデックスが30～50g/10分であるエチレンホモポリマーの使用。

【請求項2】

前記分子量調節剤がメチルエチルケトンである請求項1に記載のエチレンホモポリマーの使用。

【請求項3】

流入用補助口、溶融クロージャー、一体成形されたクロージャーを有するパッキングトップサイド、複合のパック用の蓋、タンパックスチューブアプリケータからなる群から選ばれた射出成形品を製造するためのエチレンホモポリマーの使用であって、

10

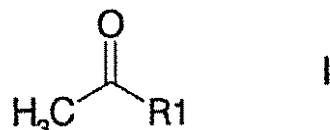
前記エチレンホモポリマーが、

2カ所か又はそれ以上の重合ゾーンを有する管状の反応器内で160～350の温度範囲と500～5000バールの圧力範囲で、

重合開始剤として酸素を使用し、

分子量調節剤として、下記式1：

【化2】



20

但し、R¹はC₁-C₆-アルキル又はC₃-C₁₂-シクロアルキルを表す、で表される1種以上の脂肪族ケトンを使用して製造する方法によって得られ、且つ

前記エチレンホモポリマーは、密度が920～935kg/m³で、DIN53735(190/2.16kg)に規定されたメルトフローインデックスが30～50g/10分であるエチレンホモポリマーの使用。

【請求項4】

30

前記分子量調節剤がメチルエチルケトンである請求項3に記載のエチレンホモポリマーの使用。

【請求項5】

化粧品、医療又は食品の分野におけるエチレンホモポリマーからなる、射出成形品であつて、

前記エチレンホモポリマーが、

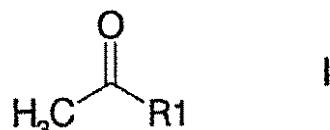
2カ所か又はそれ以上の重合ゾーンを有する管状の反応器内で160～350の温度範囲と500～5000バールの圧力範囲で、

重合開始剤として酸素を使用し、

分子量調節剤として、下記式1：

【化3】

40



但し、R¹はC₁-C₆-アルキル又はC₃-C₁₂-シクロアルキルを表す、で表される1

50

種以上の脂肪族ケトンを使用して製造する方法によって得られ、且つ

前記エチレンホモポリマーは、密度が920～935kg/m³で、DIN53735(190/2.16kg)に規定されたメルトフローインデックスが30～50g/10分である射出成形品。

【請求項6】

前記分子量調節剤がメチルエチルケトンである請求項5に記載の射出成形品。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、脂肪族のケトンを分子量調節剤として使用し、高圧下でエチレンを重合、もしくは共重合させて製造された無臭のエチレンホモポリマーおよびコポリマーに関するものであり、また、化粧品、医療、食品の分野における、これらの射出成形用途の使用に関するものである。 10

【背景技術】

【0002】

高圧力によるエチレンの単独重合及び共重合は一般に良く知られている。使用される反応器は通常、150～350MPa(メガパスカル)の圧力と、150°C～350°Cの温度で、平均滞留時間が30～180秒の範囲で連続的に操作される(Ullmann's Encyclopedia der technischen Chemie [Ullmann's Encyclopedia of industrial Chemistry], 4th edition, Vol.19/1980/pp.169-178)。 20

【0003】

合成されたエチレンポリマーの光学的、機械的な特性は例えば、これらのモル質量(分子量)、分子量分布、分枝の程度、又は枝(プランチ)の型(タイプ)長さ及び分布に依存する。これに対し、これらのエチレンポリマーの生成物のにおいと味は、主に不純物もしくは、この製造方法に使用される出発材料の分解生成物の存在に依るものである。重合開始剤および/または分子量の調節剤は、重合中においてさえ、副生物(二量体、三量体、オリゴマー及びその他)をもたらし得る。この副生物は、望ましくないにおいや味を附加するものである。

【0004】

特に、エチレンポリマーが医療、化粧品または食料品の分野において使用された場合、このポリマーは機械的および光学的に良好なバランスを有しているだけでなく、味とにおいにおいて中性であることが重要である。 30

【0005】

ポリマーの性質は、特に反応器、例えば、オートクレーブもしくは管状反応器の選択、温度、圧力、重合化の時間もしくは型そしてコモノマー、重合開始剤または分子量調節剤の濃度に影響される。適当な分子量を設定するために、分子量調節剤と呼ばれる物質、又は略して調節剤と呼ばれる物質が使用される。各調節剤は特徴的な連鎖移動定数を有している。この連鎖移動定数は、物質が連鎖調節剤(チェーンレギュレータ)として作用する効率を示すものである。更に、調節剤によってはポリマーの鎖にコモノマーとして組込まれ、そしてそこで、付加的な官能基がもたらされる。 40

【0006】

頻繁に使用される調節剤は水素である。しかし、これは、空気又は酸素がフリーラジカルの重合開始剤として使用されると、爆鳴ガスを形成する。このため、これは安全性が危惧される。更に、エチレンは水素によって水素と化合してエタンになる。

【0007】

モル質量に影響を与える、他の頻繁に使用されるコモノマーもしくは調節剤は一酸化炭素、CO及び炭化水素、例えばエタン、プロパン、プロペンである。一酸化炭素は非常に有害であり、従って使用される時は複雑な安全上の方法が必要とされる。エタン、プロパン、プロペンのような気体の調節剤も厳しい安全上の規則が必要とされる。

【0008】

10

20

30

40

50

L D P E の製造における分子量の調節剤としてケトンを使用することはすでに公知である。E P - A 0 9 2 8 7 9 7 では、少なくとも 1 基のオートクレーブ反応器を有し、例えばメチルエチルケトン又はプロピオンアルデヒドのようなカルボニル混合物を調節剤として使用し、これにより重量百分率で 0 . 1 ~ 0 . 5 % のカルボニル基を含む L D P E を製造することが提案されている。

【0009】

D E - A 1 0 9 8 9 6 4 には、エチレンホモポリマーを高压法で製造する方法が開示されている。この記載された製造方法の特徴は、過酸化物のフリーラジカルの重合開始剤を第1番目の反応ゾーンで使用すること、および、空気を第2番目の反応ゾーンで使用することである。推奨された調節剤は、プロピオンアルデヒドまたはメチルエチルケトンである。高度の透明性を有する極薄フィルムまたは抵抗力のある包装用フィルムに特に好適な、高い分子量を有するポリエチレンが得られる。10

【0010】

U S 3 3 3 4 0 8 1 は、高い転化率を有する高圧力の重合法が記載されており、これは、少なくとも反応器の異なる 2 箇所でエチレンを供給することを基本にしている。推奨されたフリーラジカルの重合開始剤は、多様な有機の過酸化物であり、そして推奨された調節剤は多様な有機化合物であり、この化合物は好ましくはケトン、例えばメチルエチルケトンである。

【0011】

U S 3 3 1 7 5 0 4 は、特定の温度分布で分子量調節剤、特にメチルエチルケトンの使用によるポリエチレンを作成する製造方法が記載されている。20

【0012】

ルーマニア 特許 R O 7 5 5 8 7 (優先権主張: 1979年4月18日、C A 9 6 : 2 0 0 3 7 2 s より) には無臭の L D P E s の製造が記載されている。使用された調節剤はメチルビニルのケトンと、プロパン、エタン及び C O の混合物であり、そして反応を開始させるため、多様な有機過酸化物が使用されている。しかしながら、C O の使用は不利である。何故ならば C O は非常に有害であり、パイプと反応器の出口は C O の排出をしないように特に保証する必要があるからである。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0013】

エチレンホモポリマーおよびコポリマーを管状反応器において、高い転化率で製造することが本発明の目的であり、このポリマーは感覚器官に対する特性、すなわち無臭で味がないという特性に優れており、そして同時に良好な機械的、光学的な性質を有している。

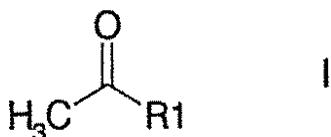
【課題を解決するための手段】

【0014】

本発明者等は、上記目的が、エチレンホモポリマーおよびコポリマーを、2カ所か又はそれ以上の重合ゾーンを有する管状反応器内で 150 °C ~ 350 °C の温度範囲と 500 ~ 5000 バールの圧力範囲で、重合開始剤として酸素を使用し、分子量調節剤として下記式 1 :

【0015】

【化1】



但し、R¹ は C₁ - C₆ - アルキル又は C₃ - C₁₂ - シクロアルキルを表す、で表される 1 種以上の脂肪族ケトンを使用して製造する製造方法によって達成されることを見出50

した。

【発明を実施するための最良の形態】

【0016】

ここで、R¹は以下ものから構成されるグループから選択される。

【0017】

C₁ - C₆ - アルキル、例えば、メチル、エチル、n - プロピル、イソプロピル、n - ブチル、イソブチル、sec - ブチル、tert - ブチル、n - ペンチル、イソペンチル、sec - ペンチル、ネオペンチル、1,2 - ジメチルプロピル、イソアミル、n - ヘキシリ、イソヘキシリ、sec - ヘキシリ、特に好ましくは、メチル、エチル、n - プロピル、イソブロピル、n - ブチル、イソブチル、sec - ブチルおよびtert - ブチル等のC₁ - C₄ - アルキル；10

C₃ - C₁₂ - シクロアルキル、例えば、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペニチル、シクロヘキシリ、シクロヘプチル、シクロオクチル、シクロノニル、シクロデシル、シクロウンデシルおよびシクロドデシル；好ましくはシクロペンチル、シクロヘキシリおよびシクロヘプチルである。

【0018】

より好ましい分子量調節剤は、アセトン、メチルエチルケトン「MEK」、メチルイソブチル「MIBK」ケトンまたは2 - ペンタノン、および特に好ましくはメチルエチルケトンである。20

【0019】

すべての分子量調節剤は、管状反応器に入れられる前に反応混合物に加えられる。しかしながら、分子量調節剤はまた、管状反応器に沿った異なる箇所で更なる重合開始剤と一緒に加えられる。通常、ポリマーのメートルトン(metric t)当たり10 ~ 200モルの分子量調節剤が使用される。この分子量調節剤の使用量は好ましくは20 ~ 100モル/メートルトンである。20

【0020】

重合は管状反応器において500 ~ 5000バールの圧力で実施される。この圧力は1500 ~ 3500バールが好ましく、そして1900 ~ 3100バールが特に好ましい。反応温度は40 °C以上である。反応温度は150 °C ~ 350 °Cで、好ましくは200 °C ~ 330 °Cで、そして非常に、特に好ましくは250 °C ~ 320 °Cである。30

【0021】

管状反応器の直径に対する長さの比は好ましくは10000 ~ 50000の範囲であり、特に好ましくは15000 ~ 35000である。

【0022】

一般に、管状反応器における反応混合物の平均の滞留時間は30 ~ 300秒で、特に60 ~ 180秒である。

【0023】

通例の方法により、管状反応器は反応の熱を除去するために冷却ジャケットが備えられている。好ましくは、ここで、熱水ジャケットであることが好ましく、内部はまた区分けされていることが好ましい。40

【0024】

使用されている重合開始剤は、本発明に従い酸素であり、又は簡素化のために、空気である。酸素は習慣的に、製造されたポリエチレンにつき、1 ~ 1000グラム/メートルトンの量の範囲で使用され、この範囲は好ましくは5 ~ 500グラム/メートルトンであり、特に好ましくは20 ~ 200グラム/メートルトンである。

【0025】

好ましい態様において、この管状反応器は少なくとも2カ所の反応ゾーンを有し、この内部で付加的な低温の又は先だって加熱されたモノマーおよび/または低温の又は先だって加熱されたコモノマーが、各反応ゾーンの開始点の上流で原料ガス流として加えられる。ここで、引き続いて2カ所 ~ 4カ所の反応ゾーンを形成し、重合開始剤の添加により重50

合が再び開始されることが好ましい。この手順に適当な反応器は、特に管状反応器であり、これは重合開始剤とモノマーの更なる量を供給するための入り口箇所を数カ所備えているものである。

【0026】

米国特許4135044及び4175169に述べられている反応器も、本発明の製造方法を用いて操作され得る。この場合では、管状反応器は重合開始剤を供給するゾーンから温度が最大になるゾーンの各反応ゾーンにおいて管の直径が、引き続くクーリングゾーン（温度が最大になるゾーンから次の重合開始剤を供給するゾーン）の管の拡大された直径と比較して比較的小さくなっている。この結果、この反応器の長さ方向の全域において、圧力の降下を比較的に入れて小さくしながら高い転化率が達成される。

10

【0027】

本発明に係る製造方法はホモポリマリゼーション（単独重合）のみならず、他のモノマーとエチレンとのコポリマリゼーション（共重合）にも使用することができる。但し、この使用は、高圧下においてフリーラジカル法でエチレンとこれらモノマーを重合させることを前提条件としている。共重合可能である適当なモノマーの例は： - エチレンの不飽和の C₃ ~ C₈ - カルボキシル酸、特にマレイン酸、フマル酸、イタコン酸、アクリル酸、メタクリル酸、およびクロトン酸； - エチレンの不飽和の C₃ ~ C₁₅ - カルボキシルエステルまたは無水物、特にメチルメタクリル酸塩、エチルメタクリル酸塩、n - ブチルメタクリル酸塩またはtert - ブチルメタクリル酸塩、メチルアクリル酸塩、エチルアクリル酸塩、n - ブチルアクリル酸塩、2 - エチルヘキシリーアクリル酸塩、tert - ブチルアクリル酸塩、メタクリル酸の無水物、マレイン酸無水物またはイタコン酸無水物；および - オレフィン、例えば、プロパン、1 - プテン、1 - ペンテン、1 - ヘキセン、1 - オクテンまたは1 - デセンである。更に、ビニルカルボン酸塩、特に好ましくは、ビニル酢酸塩がコモノマーとして使用できる。1種類または複数の種類のコモノマーのエチレンモノマーに対する割合は、質量で 0.1 ~ 45 % の範囲にとることができる。特に好ましくは、エチレンホモポリマーがこれに該当する。

20

【0028】

本発明の製造方法によれば、エチレンホモポリマーとコポリマーが、特に好ましい特性を有する状態で製造することができる。本発明のエチレンホモポリマーは 920 ~ 935 kg / m³ の密度を有し、これは、好ましくは 922 ~ 930 kg / m³ そして特に好ましくは 924 ~ 927 kg / m³ の密度である。これらエチレンポリマーのメルトフローインデックス（メルトフローインデックスは ISO 1133 (190 / 2.16 kg) に規定されている）は、30 ~ 50 g / 10 分であり、この範囲は特に 36 ~ 50 g / 10 分であり、特に好ましくは、40 ~ 45 g / 10 分である。これにより、壁の厚さが 0.3 ~ 0.5 mm の範囲にある壁が薄い容器を短い射出時間で製造できるようになる。

30

【0029】

これに加え、本発明の製造方法により製造されたポリマー、特にエチレンホモポリマーは、化粧品、医療、及び食品の分野における射出成形された製品を製造するのに非常に適切である。本発明のエチレンホモポリマーによって製造された射出成形された製品は、顕著に優れた光学的、機械的特性を有する。好ましい例として、プラスチックの成形製品、例えばボトルを挙げることができ、このボトルは、弾性係数が 200 ~ 400 N / m²、好ましくは 280 ~ 350 N / m² であり、そして、環境応力亀裂の耐性、ESCR、が少なくとも 30 分好ましくは少なくとも 50 分更に特に好ましくは少なくとも 60 分である。更に、この成形製品は、ストライク（縦すじ）やフローマークのない非常に良好な表面の品質を有している。

40

【0030】

カートン容器の分野（TetraPak（登録商標）、CombiBloc（登録商標））では、本発明のエチレンホモポリマーは、流入用補助口又は溶融クロージャー、およびこの2種の結合物を製造するのに特に適切である。容器の全体、または一体成形されたクロージャーを含むカートンのトップサイドもまた本発明のエチレンホモポリマーから製

50

造され得る。

【0031】

ところが、流入の補助口および溶融クロージャーは保管されている間は容器の内容物とは接触せず（アルミニウムホイル層）、容器の内容物は、テトラトップパック（カートントップサイド）の場合、常にプラスチックと接触している。この容器の内容物（現在、一般的にフルーツジュース）はにおいや味を損なわれるべきではないので、従って、ここで材料に要求されることは、感覚器官の検査に関し相対的に高水準であるということである。

【0032】

本発明のエチレンホモポリマーは、特にポテトチップ、カバ（飲料の粉末）、子供用の飲料の粉末、インスタントスープ等に用いられているように、複合のパック用の蓋（アルミニウムでコーティングされた厚紙の容器）という分野に使用できる。この使用において、保管されている間は容器の内容物はプラスチックの蓋とは直接に接触しない。しかし、容器は通常、酸素バリアとしてアルミニウムのシーリングホイルでシールされており、このため、プラスチックの蓋が除去された時、不快なにおいが非常に妨害するものとして知覚され、このことは、まさに子供用の飲料の粉末およびチップスの容器にあてはまる。

10

【0033】

更に、本発明のエチレンホモポリマーはタンパックスチューブアプリケータに使用される。この場合においても、容器が開かれた時、不快なにおいは知覚されてはならない。

20

【0034】

プラスチックの成形の製造の前だけでなく後においても、本発明のエチレンホモポリマーは感覚器官の検査に対して非常に優れた特性を示す。これらは、問題の項目により、無臭であると分類された。使用されたケトン、特に、メチルエチルケトンと、二量体、三量体、及び類似の生成物は両方共は、ある特徴的で、快適な特徴的においを決して持たないということにもかかわらず、驚くべきことである。

【0035】

この感覚器官に関する特性は、また機器で測定できる。例えば、ガスクロマトグラフィー又は、示差熱重量分析で、各場合において、分離または継続的な測定機器により、発生する揮発性の混合物の量と種類が決定される。多グループの試験者による試験は非常に重要である。

30

【0036】

頻繁に使用されるアルデヒド、例えばプロピオンアルデヒドは、特有の不快なにおいを有するポリマーを製造し、大規模な工程の後においてのみ、上記使用のために適切な成分となるポリマーを与えるのであるから、本発明は、驚くべきことであった。蒸気を用いた徹底処理をしても、弱いがしかし不快なにおいが依然として観察されるかも知れない。更に、本願発明の方法により、転化率は25%以上、特徴的には、30%よりも多く、達成される。

【0037】

本発明は実施例を用いて記載する。

40

【0038】

実施例および比較

実施例および比較を、長さ560mおよび直径に対する長さの比が26500の管状反応器内で実施した。コンプレッサーゾーンにおいて、空気を加え、複数の段階で各反応圧力に圧縮し、そして管状反応器の入り口箇所に供給した。

【0039】

この重合の時に開放された反応熱は反応混合物から、冷却液回路を経て取り除いた。結果として生じるポリマーは、習慣的な、そして公知の方法で、未反応のエチレン及び他の低分子量の混合物から、反応器の下流の分離器において分離し、押出機と造粒機を経て排出して処理した。未反応エチレンは複数の段階において精製し、そして、コンプレッサー

50

の吸入側に再び流通した。この詳細は、Ullmanns Encyclopaedie der technischen Chemie [Ullmanns Encyclopedia of industrial Chemistry]、第19巻、169 - 178頁(1980)から得られる。

【0040】

結果として得られるポリマーの特性は、以下の方法で測定し、そして表1から得られる。すなわち：

温度190 及びISO1133で規定された加圧力2.16kgおよびISO1183で規定された密度におけるメルトフローインデックス(MFI)。

【0041】

ポリマーは、慣習的そして公知の方法で使用して、射出成形の例を製造し、これをにおいと味に関して試験者によって調査した。 10

【0042】

使用した略語：MEK：メチルエチルケトン、PA：プロピオンアルデヒド、PE：ポリエチレン。

【0043】

表1：実施例1-4及び比較V1-V4の重合条件である。

【0044】

【表1】

N.O.	調節材 (材料)	重合開始材 の種類	生産量 [kg/h]	調節材 [t PE/h]	密度 [g/cm ³]	MFI [g/cm ³]
1	MEK	空気	20.6	2.1	0.9256	38
2	MEK	空気	19.8	2.0	0.9260	41
3	MEK	空気	22.7	2.2	0.9261	45
4	アセトン	空気	31.4	2.0	0.9255	44
V1	PA	空気	8.4	2.1	0.9257	41
V2	PA	過酸化物	8.5	1.9	0.9259	52
V3	PA	過酸化物	8.2	2.0	0.9257	48
V4	MEK	過酸化物	20.5	2.0	0.9260	45

【0045】

ポリマーの感覚器官の検査に関する試験

上記に挙げられた実施例1～4及びV1～V4によるポリマーを試験するため、サンプルが2組の試験者に提供された。試験者の組1は特別な訓練をしていない23人で構成されている。試験者の組2はにおいと味の試験を専門的に実施する12人で構成した。評価は各場合において得点(1：非常に良い、2：良い、3：申し分ない、4：普通、5：不十分)を用いてなされ、表2に示されている。 40

【0046】

表2：感覚器官に関する試験

【0047】

【表2】

サンプル	試験者組1	試験者組2	使用した重合開始材	使用した調節材
1	1.5	2	空気	MEK
2	1	1.5	空気	MEK
3	1	1	空気	MEK
4	2	2.5	空気	アセトン
V1	3.5	4	空気	PA
V2	4	4	過酸化物	PA
V3	4	4	過酸化物	PA
V4	3	3	過酸化物	MEK

10

20

フロントページの続き

- (72)発明者 ケーラー , ゲルノト
　　ドイツ、5 3 3 4 0、メッケンハイム、ヨーハン - ゼバスティアン - バッハ、ヴェーク、3
- (72)発明者 シュミツツ , アクセル
　　ドイツ、5 0 3 8 9、ヴェセリング、マルティーンシュトラーセ、1
- (72)発明者 ヴィトコウスキー , ラルス
　　ドイツ、6 8 1 6 7、マンハイム、アイヒエンドルフシュトラーセ、4 1
- (72)発明者 ホバッハ , ミヒヤエル
　　ドイツ、6 4 5 7 2、ビュテルボルン / ヴォルフェルデン、ルヴァーシュトラーセ、1

審査官 吉澤 英一

- (56)参考文献 米国特許第0 3 3 3 4 0 8 1 (U S , A)
　　特表2 0 0 2 - 5 0 0 2 5 0 (J P , A)
　　特開昭5 3 - 0 5 5 3 8 6 (J P , A)
　　特開平1 1 - 1 7 1 9 2 2 (J P , A)
　　特表2 0 0 2 - 5 1 9 4 8 5 (J P , A)

(58)調査した分野(Int.CI. , DB名)

C08F 2/00-2/60

C08F 4/30

C08F 10/00