(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号

特許第5300744号
(P5300744)

(45)発行日　平成25年9月25日(2013.9.25)　(24)登録日　平成25年6月28日(2013.6.28)

(51)Int.Cl.		F I		
C08J 9/12	(2006.01)	C08J	9/12	ZBP
C08L 101/16	(2006.01)	C08L	101/16	
C08J 9/04	(2006.01)	C08J	9/04	101

請求項の数 15　(全 18 頁)

(21)出願番号	特願2009-549817 (P2009-549817)
(86)(22)出願日	平成20年2月11日 (2008.2.11)
(65)公表番号	特表2010-518248 (P2010-518248A)
(43)公表日	平成22年5月27日 (2010.5.27)
(86)国際出願番号	PCT/EP2008/051591
(87)国際公開番号	WO2008/098888
(87)国際公開日	平成20年8月21日 (2008.8.21)
審査請求日	平成23年2月8日 (2011.2.8)
(31)優先権主張番号	07102477.2
(32)優先日	平成19年2月15日 (2007.2.15)
(33)優先権主張国	欧州特許庁 (EP)

(73)特許権者　508020155
ビーエーエスエフ　ソシエタス・ヨーロピア
ＢＡＳＦ　ＳＥ
ドイツ連邦共和国　ルートヴィヒスハーフェン　（番地なし）
Ｄ－６７０５６　Ｌｕｄｗｉｇｓｈａｆｅｎ，　Ｇｅｒｍａｎｙ
(74)代理人　100061815
弁理士　矢野　敏雄
(74)代理人　100099483
弁理士　久野　琢也
(74)代理人　100112793
弁理士　高橋　佳大

最終頁に続く

(54)【発明の名称】生分解性ポリエステル混合物をベースとするフォーム層

(57)【特許請求の範囲】

【請求項１】

以下：

ｉ）脂肪族及び芳香族ジカルボン酸及び脂肪族ジヒドロキシ化合物をベースとする少なくとも１のポリエステル　成分ｉ）～ｉｉ）の全質量に対して７０～５質量％、及び

ｉｉ）ポリラクチド　成分ｉ）～ｉｉ）の全質量に対して３０～９５質量％、及び、

ｉｉｉ）スチレン、アクリル酸エステル及び／又はメタクリル酸エステルをベースとするエポキシ基含有コポリマー　成分ｉ）～ｉｉ）の全質量に対して０．１～５質量％、及び、

ｉｖ）成核剤　成分ｉ）～ｉｉ）の全質量に対して０．５～３質量％、及び

ｖ）無機又は有機充填剤　０～５０質量％

を含む、生分解性ポリエステル混合物をベースとし、９０％を上回る独立気泡の割合を有するフォーム層。

【請求項２】

成分ｉが以下のものから構成されている、請求項１記載のフォーム層：

Ａ）以下のものからなる酸成分：

ａ１）少なくとも１の脂肪族又は少なくとも１の脂環式ジカルボン酸又はそのエステル形成性誘導体又はその混合物　３０～９９モル％、

ａ２）少なくとも１の芳香族ジカルボン酸又はそのエステル形成性誘導体又はその混合物　１～７０モル％、及び

ａ３）スルホネート基含有化合物　０～５モル％、
その際、成分ａ１）～ａ３）のモル百分率は合計で１００％であるものとする；及び
Ｂ）少なくとも１のC_2～C_{12}－アルカンジオール又はC_5～C_{10}－シクロアルカンジオール又はその混合物からのジオール成分
及び、
Ｄ）以下のものから選択された成分：
ｄ１）少なくとも３のエステル形成性基を有する少なくとも１の化合物、
ｄ２）少なくとも１のイソシアネート、
ｄ３）少なくとも１のジビニルエーテル、
又はｄ１）～ｄ３）からの混合物。

【請求項３】
成分ｉ）において、
・脂肪族又は脂環式ジカルボン酸（成分ａ１））が、コハク酸、アジピン酸又はセバシン酸、そのエステル形成性誘導体又はその混合物を表し、
・芳香族ジカルボン酸（成分ａ２））が、テレフタル酸又はそのエステル形成性誘導体を表し、かつ
・ジオール成分（成分Ｂ）が、１，４－ブタンジオール又は１，３－プロパンジオールを表す、請求項２記載のフォーム層。

【請求項４】
成分ｉｉ）が、２～９ｍｌ／１０分のメルトボリュームレート（ＩＳＯ１１３３による１９０℃及び２．１６ｋｇでのＭＶＲ）を有するポリラクチドである、請求項１から３までのいずれか１項記載のフォーム層。

【請求項５】
成分ｉｉｉ）が、３０％を上回るエポキシド割合を有する、請求項１から４までのいずれか１項記載のフォーム層。

【請求項６】
５０ｇ／ｌ未満の密度を有する、請求項１から５までのいずれか１項記載のフォーム層。

【請求項７】
１０質量％未満の、２３℃で４時間での最大吸水量を有する、請求項１から６までのいずれか１項記載のフォーム層。

【請求項８】
成分ｉ）～ｉｉ）の全質量に対して、それぞれ、
成分ｉ）　１０～３０質量％、及び
成分ｉｉ）　７０～９０質量％
含む、請求項１から６までのいずれか１項記載のフォーム層。

【請求項９】
成分ｉｉ）が連続相又は共連続相を形成する、請求項１記載のフォーム層。

【請求項１０】
０．５～１００ｃｍの層厚を有する、請求項１から９までのいずれか１項記載のフォーム層。

【請求項１１】
成分ｉ）～ｉｉ）の全質量に対して０．１～２質量％の成分ｉｉｉ）を含む、請求項１から１０までのいずれか１項記載のフォーム層。

【請求項１２】
充填剤ｖ）として、成分ｉ）及びｉｉ）に対して５～５０質量％の再生ポリマーを含有する、請求項１から１１までのいずれか１項記載のフォーム層。

【請求項１３】
請求項１から１２までのいずれか１項記載のフォーム層の製造法において、
ａ）以下：

ｉ）脂肪族及び芳香族ジカルボン酸及び脂肪族ジヒドロキシ化合物をベースとする少なくとも１のポリエステル　成分ｉ）～ｉｉ）の全質量に対して７０～５質量％、及び
ｉｉ）ポリラクチド　成分ｉ）～ｉｉ）の全質量に対して３０～９５質量％、及び、
ｉｉｉ）スチレン、アクリル酸エステル及び／又はメタクリル酸エステルをベースとするエポキシ基含有コポリマー　成分ｉ）～ｉｉ）の全質量に対して０．１～５質量％、及び、
ｉｖ）成核剤　成分ｉ）～ｉｉ）の全質量に対して０．５～３質量％、及び
ｖ）無機又は有機充填剤　０～５０質量％
を含む生分解性ポリエステル混合物を、押出機中で１６０～２２０℃で混合し、
ｂ）物理的発泡剤１～２５質量％を加圧下に注入し、かつ
ｃ）冷却し、かつ押出してフォーム層とし、かつ場合により熱成形装置中で熱成形することを特徴とする方法。

【請求項１４】

発泡剤として二酸化炭素を使用する、請求項１３記載の方法。

【請求項１５】

断熱及び防音のための、請求項１から１２までのいずれか１項記載のフォーム層の使用。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【０００１】

本発明は、以下：
ｉ）脂肪族及び芳香族ジカルボン酸及び脂肪族ジヒドロキシ化合物をベースとする少なくとも１のポリエステル　成分ｉ～ｉｉの全質量に対して７０～５質量％、及び
ｉｉ）ポリラクチド（ＰＬＡ）　成分ｉ～ｉｉの全質量に対して３０～９５質量％、及び、
ｉｉｉ）スチレン、アクリル酸エステル及び／又はメタクリル酸エステルをベースとするエポキシ基含有コポリマー　成分ｉ～ｉｉの全質量に対して０．１～５質量％、及び、
ｉｖ）添加剤、例えば、成核剤、滑剤及び耐ブロッキング剤、ワックス、帯電防止剤、防曇剤又は着色剤　０～１５質量％、及び
ｖ）無機又は有機充填剤　０～５０質量％
を含む、生分解性ポリエステル混合物をベースとするフォーム層に関する。

【０００２】

更に、本発明は、該フォーム層の製造法、及び、成形体、シートを製造するための該フォーム層の使用、並びに、該フォーム層を含有する成形材料、シートに関する。

【０００３】

成分ｉ）～ｖ）と類似の組成を有する生分解性ポリエステル混合物は、すでにＷＯ２００６／０７４８１５に記載されている。しかしながら、該文献ではフォーム層の製造には言及されていない。

【０００４】

ＪＰ２００４－０６７８９４には、ポリラクチド及び生分解性の脂肪族／芳香族ポリエステルをベースとするポリエステル混合物が記載されている。架橋剤として、低分子アクリレート及び特にペルオキシドからなる混合物が使用されている。著者は、ポリエステル混合物は発泡性であると説明しているが、フォーム層は製造されていない。フォームの化学的及び物理的特性についても何ら記載されていない。

【０００５】

ＪＰ２００５－１７９５３７には、高いポリラクチド含分と、緩慢にのみ生分解し得るポリエチレンテレフタレートをベースとする脂肪族／芳香族ポリエステルを有するポリエステル混合物が開示されている。この混合物には、発泡前に、架橋剤又は相溶化剤は添加されない。また、フォーム層は記載されていない。

【０００６】

ＷＯ９９／０６５９７７では、生分解性の脂肪族／芳香族ポリエステル及び酢酸セルロースをベースとするフォームシートが、二酸化炭素の直接注入により製造されている。シートは、２００～６００ｇ／ｌを上回る高い密度を有する。

【０００７】

従来技術から公知であるポリエステル混合物は、フォーム層の製造には限定的に好適であるに過ぎない。特に、従来、特に５０ｇ／ｌ未満の低密度のフォーム層の製造は不可能であった。独立気泡の高い割合（７０％を上回る）を有するフォーム層を提供することが望まれており、それというのも、このようなフォーム層は連続気泡よりも改善された断熱挙動を示すためである。最終的に、本発明の目的は、炭化水素又はフッ素化炭化水素のような発泡剤なしに製造可能な、生分解性ポリマーからの　－有利に再生原料からの－　フォーム層を開発することである。不活性発泡剤、例えば窒素及び特に二酸化炭素の使用は、環境保護の観点に加え、そのように製造されたフォーム層が食品分野において許容されるという利点を有する。

【０００８】

従って本発明は、上記欠点を有しない、生分解性材料からなるフォーム層を提供するという課題に基づく。

【０００９】

意想外にも、以下：

ｉ）脂肪族及び芳香族ジカルボン酸及び脂肪族ジヒドロキシ化合物をベースとする少なくとも１のポリエステル　成分ｉ～ｉｉの全質量に対して７０～５質量％、及び

ｉｉ）ポリラクチド（ＰＬＡ）　成分ｉ～ｉｉの全質量に対して３０～９５質量％、及び、

ｉｉｉ）スチレン、アクリル酸エステル及び／又はメタクリル酸エステルをベースとするエポキシ基含有コポリマー　成分ｉ～ｉｉの全質量に対して０．１～５質量％、及び、

ｉｖ）添加剤、例えば、成核剤、滑剤及び耐ブロッキング剤、ワックス、帯電防止剤、防曇剤又は着色剤　０～１５％、及び

ｖ）無機又は有機充填剤、例えば、再生原料からなるポリマー、例えば、デンプン、セルロース、穀類、ポリヒドロキシアルカノエート又はポリカプロラクトン又は脂肪族ポリエステル　０～５０％

を含むポリエステル混合物を、発泡剤、例えば二酸化炭素又は窒素を用いて、低い密度及び独立気泡の高い割合を有するフォーム層へと加工できることが見出された。

【００１０】

本発明によるフォーム層は、従来技術のフォーム層と、特に、使用されるポリエステル混合物、特に相溶化剤（成分ｉｉｉ）の点で異なる。

【００１１】

原則的に、本発明による生分解性のポリエステル混合物の製造のために、成分ｉとして、脂肪族及び芳香族ジカルボン酸及び脂肪族ジヒドロキシ化合物をベースとする全てのポリエステル、いわゆる部分芳香族ポリエステルが該当する。当然のことながら、複数のそのようなポリエステルの混合物も、成分ｉとして好適である。

【００１２】

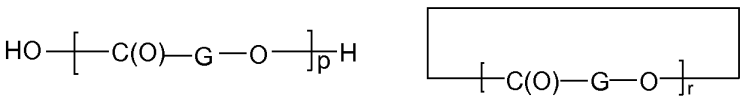
本発明によれば、ポリエステル誘導体、例えば、ポリエーテルエステル、ポリエステルアミド又はポリエーテルエステルアミドも部分芳香族ポリエステルと解釈される。好適な部分芳香族ポリエステルには、直鎖の鎖延長されていないポリエステルが挙げられる（ＷＯ　９２／０９６５４）。鎖延長された及び／又は分枝鎖部分芳香族ポリエステルは有利である。後者は、冒頭に記載した文献、ＷＯ９６／１５１７３～１５１７６、２１６８９～２１６９２、２５４４６、２５４４８又はＷＯ９８／１２２４２から公知であり、該文献は明確に引用される。同様に、種々の部分芳香族ポリエステルの混合物が挙げられる。特に、部分芳香族ポリエステルとは、例えばEcoflex(R) (BASF Aktiengesellschaft)、Eastar(R) Bio及びOrigo-Bi (Novamont)といった製品であると解釈される。

【００１３】

特に有利な部分芳香族ポリエステルには、必須成分として以下のものを含むポリエステルが挙げられる：
A）以下のものからなる酸成分：
ａ１）少なくとも１の脂肪族又は少なくとも１の脂環式ジカルボン酸又はそのエステル形成性誘導体又はその混合物　３０～９９モル％
ａ２）少なくとも１の芳香族ジカルボン酸又はそのエステル形成性誘導体又はその混合物　１～７０モル％、及び
ａ３）スルホネート基含有化合物　０～５モル％、
B）少なくとも１のC_2～C_{12}－アルカンジオール及び少なくとも１のC_5～C_{10}－シクロアルカンジオール又はその混合物から選択されたジオール成分
及び、所望の場合には更に、以下のものから選択された１以上の成分：
C）以下のものから選択された成分：
ｃ１）式Ｉ

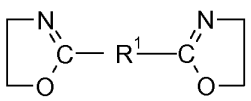
$$HO-[(CH_2)_n-O]_m-H \qquad (I)$$

［式中、
ｎは、２、３又は４を表し、
ｍは、２～２５０の整数を表す］
の少なくとも１のエーテル官能基を含有するジヒドロキシ化合物、
ｃ２）式ＩＩａ又はＩＩｂ
【化１】



(IIa)　(IIb)

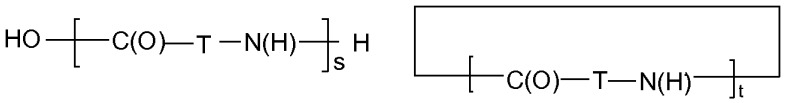
［式中、
ｐは、１～１５００の整数を表し、
ｒは、１～４の整数を表し、
Ｇは、フェニレン、－（CH_2）$_q$－（ここで、ｑは１～５の整数を表す）、－Ｃ（Ｒ）Ｈ－及び－Ｃ（Ｒ）ＨCH_2（ここで、Ｒはメチル又はエチルを表す）からなる群から選択された基を表す］
の少なくとも１のヒドロキシカルボン酸、
ｃ３）少なくとも１のアミノ－C_2～C_{12}－アルカノール又は少なくとも１のアミノ－C_5～C_{10}－シクロアルカノール又はその混合物、
ｃ４）少なくとも１のジアミノ－C_1～C_8－アルカン、
ｃ５）一般式ＩＩＩ
【化２】



(III)

［式中、
R^1は単結合、（CH_2）$_z$－アルキレン基（ここで、ｚは２、３又は４である）又はフェニレン基を表す］
の少なくとも１の２，２’－ビスオキサゾリン、
ｃ６）天然アミノ酸、４～６個のＣ原子を有するジカルボン酸と４～１０個のＣ原子を有するジアミンとの重縮合から得ることができるポリアミド、式ＩＶａ及びＩＶｂ

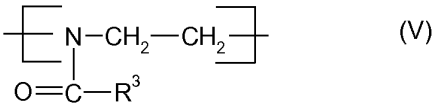
【化３】



(IVa) (IVb)

［式中、
ｓは、１～１５００の整数を表し、
ｔは、１～４の整数を表し、
Ｔは、フェニレン、－（ＣＨ$_2$）$_u$－（ここで、ｕは１～１２の整数を表す）、－Ｃ（Ｒ^2）Ｈ－及び－Ｃ（Ｒ^2）ＨＣＨ$_2$（ここで、Ｒ^{2}はメチル又はエチルを表す）からなる群から選択された基を表す］
の化合物からなる群から選択された少なくとも１のアミノカルボン酸、
及び、繰り返し単位Ｖ

【化４】



(V)

［式中、
Ｒ^{3}は、水素、Ｃ$_1$～Ｃ$_6$－アルキル、Ｃ$_5$～Ｃ$_8$－シクロアルキル、非置換又はＣ$_1$～Ｃ$_4$－アルキル基で３回まで置換されたフェニル、又はテトラヒドロフリルを表す］
を有するポリオキサゾリン
又はｃ１）～ｃ６）からの混合物、
及び
Ｄ）以下のものから選択された成分：
ｄ１）少なくとも３のエステル形成性基を有する少なくとも１の化合物、
ｄ２）少なくとも１のイソシアネート、
ｄ３）少なくとも１のジビニルエーテル、
又はｄ１）～ｄ３）からの混合物。

【００１４】

部分芳香族ポリエステルの酸成分Ａは、有利な実施態様において、ａ１　３０～７０、特に４０～６０モル％及びａ２　３０～７０、特に４０～６０モル％を含有する。

【００１５】

脂肪族酸及び相応する誘導体ａ１として、一般に、２～１０個の炭素原子、有利に４～６個の炭素原子を有するものが該当する。このａ１は、直鎖であっても分枝鎖であってもよい。本発明の範囲内で使用可能な脂環式ジカルボン酸は、通常、７～１０個の炭素原子を有するもの、特に８個の炭素原子を有するものである。しかしながら原則的に、それより多くの炭素原子、例えば３０個までの炭素原子を有するジカルボン酸を使用することもできる。

【００１６】

例示的に、以下ものが挙げられる：マロン酸、コハク酸、グルタル酸、２－メチルグルタル酸、３－メチルグルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、フマル酸、２，２－ジメチルグルタル酸、スベリン酸、１，３－シクロペンタンジカルボン酸、１，４－シクロヘキサンジカルボン酸、１，３－シクロヘキサンジカルボン酸、ジグリコール酸、イタコン酸、マレイン酸、ブラシル酸及び２，５－ノルボルナンジカルボン酸。

【００１７】

同様に使用可能な、上記の脂肪族又は脂環式ジカルボン酸のエステル形成性誘導体として、特に、ジ－Ｃ$_1$～Ｃ$_6$－アルキルエステル、例えばジメチル－、ジエチル、ジ－ｎ－プ

ロピル、ジ－イソプロピル、ジ－ｎ－ブチル、ジ－イソ－ブチル、ジ－ｔ－ブチル、ジ－ｎ－ペンチル、ジ－イソ－ペンチル又はジ－ｎ－ヘキシルエステルが挙げられる。ジカルボン酸の無水物も同様に使用できる。

【００１８】

この場合、ジカルボン酸又はそのエステル形成性誘導体を、単独で、又はこれらの２以上からの混合物として使用することができる。

【００１９】

有利に、コハク酸、アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ブラシル酸又はそのそれぞれのエステル形成性誘導体又はその混合物が使用される。特に有利に、コハク酸、アジピン酸又はセバシン酸又はそのそれぞれのエステル形成性誘導体又はその混合物が使用される。特に有利に、アジピン酸又はそのエステル形成性誘導体、例えばそのアルキルエステル又はその混合物が使用される。ポリマー混合物が、"硬質"ないし"脆性"の成分ｉｉ）、例えば、ポリヒドロキシブチレート又は特にポリラクチドを用いて製造される場合、脂肪族ジカルボン酸として、セバシン酸又はセバシン酸とアジピン酸との混合物が有利に使用される。ポリマー混合物が、"軟質"ないし"靭性"の成分ｉｉ）、例えば、ポリヒドロキシブチレート－コ－バレレートを用いて製造される場合、脂肪族ジカルボン酸として、コハク酸又はコハク酸とアジピン酸との混合物が有利に使用される。

【００２０】

コハク酸、アゼライン酸、セバシン酸及びブラシル酸は、更に、再生原料として入手可能であるという利点を有する。

【００２１】

芳香族ジカルボン酸ａ２として、一般に、８～１２個の炭素原子を有する芳香族ジカルボン酸、有利に８個の炭素原子を有する芳香族ジカルボン酸が挙げられる。例示的に、テレフタル酸、イソフタル酸、２，６－ナフトエ酸及び１，５－ナフトエ酸並びにそのエステル形成性誘導体が挙げられる。この場合、特に、ジ－C_1～C_6－アルキルエステル、例えばジメチル－、ジエチル、ジ－ｎ－プロピル、ジ－イソプロピル、ジ－ｎ－ブチル、ジ－イソ－ブチル、ジ－ｔ－ブチル、ジ－ｎ－ペンチル、ジ－イソ－ペンチル又はジ－ｎ－ヘキシルエステルが挙げられる。ジカルボン酸ａ２の無水物も同様に好適なエステル形成性誘導体である。

【００２２】

しかしながら原則的に、より多数の炭素原子、例えば２０個までの炭素原子を有する芳香族ジカルボン酸ａ２を使用することもできる。

【００２３】

芳香族ジカルボン酸又はそのエステル形成性誘導体ａ２は、単独で、又はこれらの２以上からの混合物として使用することができる。特に有利に、テレフタル酸又はそのエステル形成性誘導体、例えばジメチルテレフタレートが使用される。

【００２４】

スルホネート基含有化合物として、通常、スルホネート基含有ジカルボン酸又はそのエステル形成性誘導体のアルカリ－又はアルカリ土類金属塩、有利に、５－スルホイソフタル酸のアルカリ金属塩又はその混合物、特に有利にナトリウム塩が使用される。

【００２５】

有利な実施態様によれば、酸成分Ａは、ａ１　４０～６０モル％、ａ２　４０～６０モル％及びａ３　０～２モル％を含有する。もう１つの有利な実施実施態様によれば、酸成分Ａは、ａ１　４０～５９．９モル％、ａ２　４０～５９．９モル％及びａ３　０．１～１モル％、特に、ａ１　４０～５９．８モル％、ａ２　４０～５９．８モル％及びａ３　０．２～０．５モル％を含有する。

【００２６】

一般に、ジオールＢは、２～１２個の炭素原子、有利に４～６個の炭素原子を有する分枝鎖又は直鎖のアルカンジオール、又は、５～１０個の炭素原子を有するシクロアルカンジオールから選択される。

【００２７】
好適なアルカンジオールの例は、エチレングリコール、１，２－プロパンジオール、１，３－プロパンジオール、１，２－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、２，４－ジメチル－２－エチルヘキサン－１，３－ジオール、２，２－ジメチル－１，３－プロパンジオール、２－エチル－２－ブチル－１，３－プロパンジオール、２－エチル－２－イソブチル－１，３－プロパンジオール、２，２，４－トリメチル－１，６－ヘキサンジオール、特にエチレングリコール、１，３－プロパンジオール、１，４－ブタンジオール及び２，２－ジメチル－１，３－プロパンジオール（ネオペンチルグリコール）；シクロペンタンジオール、１，４－シクロヘキサンジオール、１，２－シクロヘキサンジメタノール、１，３－シクロヘキサンジメタノール、１，４－シクロヘキサンジメタノール又は２，２，４，４－テトラメチル－１，３－シクロブタンジオールである。特に成分ａ１）としてのアジピン酸と組み合わせた１，４－ブタンジオール、、及び、特に成分ａ１）としてのセバシン酸と組み合わせた１，３－プロパンジオールは特に有利である。１，３－プロパンジオールは、更に、再生原料として入手可能であるという利点を有する。種々のアルカンジオールの混合物も使用可能である。

【００２８】
過剰の酸－又はＯＨ－末端基が所望されるか否かに応じて、成分Ａ又は成分Ｂのいずれかを過剰に使用することができる。有利な実施態様によれば、使用される成分Ａ対Ｂのモル比は、０．４：１～１．５：１の範囲内、有利に０．６：１～１．１：１の範囲内であってよい。

【００２９】
成分Ａ及びＢの他に、本発明によるポリエステル混合物のベースとなるポリエステルは、さらなる成分を含有することができる。

【００３０】
ジヒドロキシ化合物ｃ１として、有利に、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール及びポリテトラヒドロフラン（ポリ－ＴＨＦ）、特に有利にジエチレングリコール、トリエチレングリコール及びポリエチレングリコールが使用され、その際、これらの混合物、又は、種々の変数ｎを有する化合物（式Ｉを参照のこと）、例えば、まずエチレンオキシドと、次いでプロピレンオキシドとを自体公知の方法により重合させることにより得られる、プロピレン単位（ｎ＝３）を有するポリエチレングリコール、特に有利に、種々の変数ｎを有するポリエチレングリコールをベースとするポリマーも使用され、その際、エチレンオキシドから形成される単位が優勢的である。ポリエチレングリコールの分子量（M_n）は、通常、２５０～８０００、有利に６００～３０００ｇ／モルの範囲内で選択される。

【００３１】
有利な一実施態様によれば、例えば、ジオールＢ及びｃ１のモル量に対して、ジオールＢ　１５～９８、有利に６０～９９．５モル％及びジヒドロキシ化合物ｃ１　０．２～８５、有利に０．５～３０モル％を、部分芳香族ポリエステルの製造に使用することができる。

【００３２】
有利な一実施態様において、ヒドロキシカルボン酸ｃ２）として、以下のものが使用される：グリコール酸、Ｄ－、Ｌ－、Ｄ、Ｌ－乳酸、６－ヒドロキシヘキサン酸、その環式誘導体、例えばグリコリド（１，４－ジオキサン－２，５－ジオン）、Ｄ－、Ｌ－ジラクチド（３，６－ジメチル－１，４－ジオキサン－２，５－ジオン）、ｐ－ヒドロキシ安息香酸並びにそのオリゴマー及びポリマー、例えば３－ポリヒドロキシ酪酸、ポリヒドロキシ吉草酸、ポリラクチド（例えば、NatureWorks(R) 4042D（NatureWorks社）として入手可能）並びに３－ポリヒドロキシ酪酸及びポリヒドロキシ吉草酸とからの混合物（PHB Industrial社、Tianan社又はMetabolix社から入手可能）。部分芳香族ポリエステルの製造のためには、その低分子でかつ環式の誘導体が特に有利である。

【００３３】

ヒドロキシカルボン酸は、例えば、Ａ及びＢの量に対して、０．０１～５０、有利に０．１～４０質量％の量で使用することができる。

【００３４】

アミノ－C_2～C_{12}－アルカノール又はアミノ－C_5～C_{10}－シクロアルカノール（成分ｃ３）（但し、４－アミノメチルシクロヘキサンメタノールもこれに該当する）として、有利に、アミノ－C_2～C_6－アルカノール、例えば２－アミノエタノール、３－アミノプロパノール、４－アミノブタノール、５－アミノペンタノール、６－アミノヘキサノール並びにアミノ－C_5～C_6－シクロアルカノール、例えばアミノシクロペンタノール及びアミノシクロヘキサノール又はその混合物が使用される。

【００３５】

ジアミノ－C_1～C_8－アルカン（成分ｃ４）として、有利に、ジアミノ－C_4～C_6－アルカン、例えば１，４－ジアミノブタン、１，５－ジアミノペンタン及び１，６－ジアミノヘキサン（ヘキサメチレンジアミン、"ＨＭＤ"）が使用される。

【００３６】

有利な一実施態様によれば、Ｂのモル量に対して、ｃ３　０．５～９９．５モル％、有利に０．５～５０モル％、及び、Ｂのモル量に対して、ｃ４　０～５０、有利に０～３５モル％を、部分芳香族ポリエステルの製造に使用することができる。

【００３７】

一般式ＩＩＩの２，２’－ビスオキサゾリンｃ５は、一般に、Angew. Chem. Int. Edit., 第11巻 (1972), 第287-288頁に記載の方法により得られる。特に有利なビスオキサゾリンは、R^1が単結合、－（CH_2）$_z$－アルキレン基（ここで、ｚ＝２、３又は４）、例えば、メチレン、エタン－１，２－ジイル、プロパン－１，３－ジイル、プロパン－１，２－ジイル、又は、フェニレン基を意味するものである。特に有利なビスオキサゾリンとして、２，２’－ビス（２－オキサゾリン）、ビス（２－オキサゾリニル）メタン、１，２－ビス（２－オキサゾリニル）エタン、１，３－ビス（２－オキサゾリニル）プロパン又は１，４－ビス（２－オキサゾリニル）ブタン、特に、１，４－ビス（２－オキサゾリニル）ベンゼン、１，２－ビス（２－オキサゾリニル）ベンゼン又は１，３－ビス（２－オキサゾリニル）ベンゼンが挙げられる。

【００３８】

部分芳香族ポリエステルの製造のために、成分Ｂ、ｃ３、ｃ４及びｃ５のモル量の合計に対してそれぞれ、例えば、Ｂ　７０～９８モル％、ｃ３　３０モル％まで、及びｃ４　０．５～３０モル％、及びｃ５　０．５～３０モル％を使用することができる。他の有利な一実施態様によれば、Ａ及びＢの全質量に対して、ｃ５　０．１～５、有利に０．２～４質量％を使用することもできる。

【００３９】

成分ｃ６として、天然アミノ酸を使用することができる。これには、バリン、ロイシン、イソロイシン、スレオニン、メチオニン、フェニルアラニン、トリプトファン、リジン、アラニン、アルギニン、アスパラギン酸、システイン、グルタミン酸、グリシン、ヒスチジン、プロリン、セリン、チロシン、アスパラギン又はグルタミンが挙げられる。

【００４０】

一般式ＩＶａ及びＩＶｂの有利なアミノカルボン酸は、ｓが１～１０００の整数を表し、かつｔが１～４の整数、有利に１又は２を表し、かつＴがフェニレン及び－（CH_2）$_u$－（ここで、ｕは１、５又は１２を表す）の群から選択されているものである。

【００４１】

さらに、ｃ６は、一般式Ｖのポリオキサゾリンであってもよい。しかしながら、ｃ６は、種々のアミノカルボン酸及び／又はポリオキサゾリンの混合物であってもよい。

【００４２】

有利な一実施態様によれば、ｃ６は、成分Ａ及びＢの全量に対して、０．０１～５０、有利に０．１～４０質量％の量で使用することができる。

【００４３】

部分芳香族ポリエステルの製造に場合により使用可能な他の成分として、少なくとも３のエステル形成性基を含む化合物ｄ１が挙げられる。

【００４４】

化合物ｄ１は、有利に、エステル結合を形成し得る３～１０個の官能基を含む。特に有利な化合物ｄ１は、分子中に、この種の官能基３～６個、特にヒドロキシ基及び／又はカルボキシ基３～６個を有する。例示的に以下のものが挙げられる：

酒石酸、クエン酸、リンゴ酸；

トリメチロールプロパン、トリメチロールエタン；

ペンタエリトリット；

ポリエーテルトリオール；

グリセリン；

トリメシン酸；

トリメリット酸、－無水物；

ピロメリット酸、－二無水物、及び

ヒドロキシイソフタル酸。

【００４５】

化合物ｄ１は、通常、成分Ａに対して０．０１～１５、有利に０．０５～１０、特に有利に０．１～４モル％の量で使用される。

【００４６】

成分ｄ２として、イソシアネート１種か又は種々のイソシアネートの混合物が使用される。芳香族又は脂肪族ジイソシアネートを使用することができる。しかしながら、高官能価イソシアネートも使用可能である。

【００４７】

芳香族ジイソシアネートｄ２とは、本発明の範囲内で、特に、

トルイレン－２，４－ジイソシアネート、トルイレン－２，６－ジイソシアネート、２，２’－ジフェニルメタンジイソシアネート、２，４’－ジフェニルメタンジイソシアネート、４，４’－ジフェニルメタンジイソシアネート、ナフチレン－１，５－ジイソシアネート又はキシリレン－ジイソシアネート

と解釈される。例示的に、BASF Aktiengesellschaft社のBasonat(R)の商品名で入手可能なイソシアネートを使用することができる。

【００４８】

その中で、２，２’－、２，４’－並びに４，４’－ジフェニルメタンジイソシアネートが成分ｄ２として特に有利である。一般に、後者のジイソシアネートは混合物として使用される。

【００４９】

三環式イソシアネートｄ２には、トリ（４－イソシアノフェニル）メタンも該当する。多環式芳香族ジイソシアネートは、例えば、単環又は二環式ジイソシアネートの製造の際に生じる。

【００５０】

例えば成分ｄ２の全質量に対して５質量％までの副次的な量で、成分ｄ２は、ウレトジオン基を、例えばイソシアネート基のキャッピングのために含むことができる。

【００５１】

脂肪族ジイソシアネートｄ２とは、本発明の範囲内で特に、２～２０個の炭素原子、有利に３～１２個の炭素原子を有する、直鎖又は分枝鎖アルキレンジイソシアネート又はシクロアルキレンジイソシアネート、例えば、１，６－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又はメチレン－ビス（４－イソシアナトシクロヘキサン）と解釈される。特に有利な脂肪族ジイソシアネートｄ２は、１，６－ヘキサメチレンジイソシアネート及びイソホロンジイソシアネートである。

【００５２】

有利なイソシアヌレートには、２～２０個の炭素原子、有利に３～１２個の炭素原子を

有するアルキレンジイソシアネート又はシクロアルキレンジイソシアネート、例えばイソホロンジイソシアネート又はメチレンービス（４－イソシアナトシクロヘキサン）から誘導される脂肪族イソシアネートが該当する。この場合、アルキレンジイソシアネートは、直鎖であっても分枝鎖であってもよい。ｎ－ヘキサメチレンジイソシアネートをベースとするイソシアヌレート、例えば、ｎ－ヘキサメチレンジイソシアネートの環式三量体、五量体又は高級オリゴマーは特に有利である。

【００５３】

一般に、成分ｄ２は、Ａ及びＢのモル量の合計に対して、０．０１～５、有利に０．０５～４モル％、特に有利に０．１～４モル％の量で使用される。

【００５４】

ジビニルエーテルｄ３として、一般に、通常の市販の全てのジビニルエーテルを使用することができる。有利に、１，４－ブタンジオール－ジビニルエーテル、１，６－ヘキサンジオール－ジビニルエーテル又は１，４－シクロヘキサンジメタノール－ジビニルエーテル又はこれらの混合物が使用される。

【００５５】

有利に、ジビニルエーテルは、Ａ及びＢの全質量に対して、０．０１～５質量％、特に０．２～４質量％の量で使用される。

【００５６】

有利な部分芳香族ポリエステルの例は、以下の成分をベースとする：

Ａ、Ｂ、ｄ１
Ａ、Ｂ、ｄ２
Ａ、Ｂ、ｄ１、ｄ２
Ａ、Ｂ、ｄ３
Ａ、Ｂ、ｃ１
Ａ、Ｂ、ｃ１、ｄ３
Ａ、Ｂ、ｃ３、ｃ４
Ａ、Ｂ、ｃ３、ｃ４、ｃ５
Ａ、Ｂ、ｄ１、ｃ３、ｃ５
Ａ、Ｂ、ｃ３、ｄ３
Ａ、Ｂ、ｃ３、ｄ１
Ａ、Ｂ、ｃ１、ｃ３、ｄ３
Ａ、Ｂ、ｃ２。

【００５７】

このうち、Ａ、Ｂ、ｄ１、又は、Ａ、Ｂ、ｄ２、又は、Ａ、Ｂ、ｄ１、ｄ２をベースとする芳香族ポリエステルが特に有利である。他の一実施態様によれば、部分芳香族ポリエステルは、Ａ、Ｂ、ｃ３、ｃ４、ｃ５又はＡ、Ｂ、ｄ１、ｃ３、ｃ５をベースとする。

【００５８】

上記の芳香族ポリエステル及び本発明によるポリエステル混合物は、通常、生分解性である。

【００５９】

本発明の範囲内で、ある材料又は材料混合物に関する「生分解性」との特徴は、この材料又は材料混合物が、ＤＩＮ　Ｖ５４９００－２（Vornorm, Stand September 1998）中に定義された３つの方法のうち少なくとも１つの方法で、少なくとも６０％の生分解度の％を示す場合に満たされるものとする。

【００６０】

一般に生分解性は、ポリエステル（混合物）が、測定され、かつ検出可能な時間中に分解することをもたらす。この分解は、酵素的、加水分解的、酸化的及び／又は電磁線、例えばＵＶ光線の作用に行われ、かつ大抵は大部分が微生物、例えば細菌、酵母、カビ類及び藻類の作用を受ける。この生分解性は、例えばポリエステルとコンポストを混合し、そして所定時間にわたって放置することによって定量することができる。例えば、ＤＩＮ

ＥＮ１３４３２又はＤＩＮ　Ｖ５４９００－２　方法３により、CO_2不含の空気を、コンポスティングの間に熟成したコンポストに通し、かつこれを規定の温度プログラムにかける。その際、生分解性を、（試料を有さないコンポストによるCO_2－放出量の差引き後の）試料の正味のCO_2放出量と試料の最大CO_2－放出量（試料の炭素含有率から算出）との比を介して、生分解度を％で規定する。生分解性ポリエステル（混合物）は、一般には既にコンポスティングの数日後において、顕著な分解現象、例えば菌類の生長、割れ及び孔の形成を示す。

【００６１】

生分解性を測定するための他の方法は、例えばＡＳＴＭ　Ｄ　５３３８及びＡＳＴＭ　Ｄ　６４００に記載されている。

【００６２】

部分芳香族ポリエステルの製造は自体公知であるか、あるいは公知の方法によって実施することができる。

【００６３】

好ましい部分芳香族ポリエステルは、１０００～１０００００、好ましくは９０００～７５０００、特に好ましくは１００００～５００００ｇ／モルの範囲内の分子量（M_n）及び６０～１７０、好ましくは８０～１５０℃の範囲内の融点を特徴とする。

【００６４】

挙げられた部分芳香族ポリエステルは、ヒドロキシ－及び／又はカルボキシ末端基をそれぞれ任意の比で有していてもよい。これらの部分芳香族ポリエステルは末端基変性されてもよい。したがって、例えばＯＨ末端基をフタル酸、フタル酸無水物、トリメリット酸、トリメリット酸無水物、ピロメリット酸又はピロメリット酸無水物との反応によって酸変性することができる。

【００６５】

生分解性ポリエステル混合物の成分ｉｉ）として、以下の特性プロフィールを有するポリラクチドが有利である：

・０．５（有利に２）～９ｍｌ／１０分のメルトボリュームレート（ＩＳＯ１１３３による１９０℃及び２．１６ｋｇでのＭＶＲ）
・１７５℃を下回る融点
・５５℃を上回るガラス転移温度（T_g）
・１０００ｐｐｍ未満の水含分
・０．３％未満のモノマー残留含分（Ｌ－ラクチド）
・８００００ダルトンを上回る分子量。

【００６６】

有利な成分ｉｉは、例えば、NatureWorks(R) 4020又は4042D（NatureWorks社のポリラクチド）である。

【００６７】

成分ｉｉｉ）として、スチレン、アクリル酸エステル及び／又はメタクリル酸エステルをベースとするエポキシ基含有コポリマーが好適である。エポキシ基含有単位は、有利に、グリシジル（メタ）アクリレートである。コポリマーの２０質量％超、特に有利に３０質量％超、特に有利に５０質量％超のグリシジルメタクリレート含分を有するコポリマー、例えば、Johnson Polymer社からJoncryl(R) ADR 4368の商品名で市販されているものが有利であることが判明した。ポリマーの平均分子量は、有利に２０００～２００００、特に４０００～１２０００である。

【００６８】

添加剤ｉｖ）とは、例えば以下のものであると解釈される：

・成核剤、例えば、タルク、チョーク、カーボンブラック、グラファイト、ステアリン酸カルシウム又はステアリン酸亜鉛、ポリ－Ｄ－乳酸、Ｎ，Ｎ’－エチレン－ビス－ヒドロキシステアラミド、ポリグルコール酸、
・滑剤及び耐ブロッキング剤、

・ワックス、
・帯電防止剤、
・他の相溶化剤、例えば、シラン、無水マレイン酸、無水フマル酸、イソシアネート、二酸の塩化物、
・防曇剤、
・ＵＶ安定剤、又は
・着色剤。

【００６９】

前記助剤は、特に、成分ｉ）及びｉｉ）の全質量に対して０．５～３質量％の濃度で使用される。

【００７０】

成核剤の添加は特に有利であり、かつ、フォーム層の製造の際に有利な結果をもたらす。微分散された成核剤は、気泡形成のための表面を提供し、それにより均一な気泡構造が達成され、かつフォーム密度に影響を与えることができる。

【００７１】

更に、成分ｉｖ）として、有利に、エポキシ基含有又は非置換の天然油、脂肪酸エステル又は脂肪酸アミド、例えばエルクアミド又はMerginat(R) ESBOも使用される。

【００７２】

有機充填剤ｖ）として、特に、再生原料、例えば、デンプン、デンプン誘導体、穀類、セルロース誘導体、ポリカプロラクトン及びポリヒドロキシアルカノエート、ここでは特に、デンプン、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－コ－バレレート（ＰＨＢＶ）、Biocycle(R)（PHB Ind.社のポリヒドロキシブチレート）；Enmat(R)（Tianan社のポリヒドロキシブチレート－コ－バレレート）のポリマーが有利であることが判明した。

【００７３】

無機充填剤として、すでに成核剤として記載したタルク、チョーク、カーボンブラック及びグラファイトが有利であることが判明した。しかしながら有利に、これらを、充填剤として、より高濃度で使用することができる。

【００７４】

本発明による生分解性ポリエステル混合物は、通常、成分ｉ　５～７０質量％、有利に１０～５０質量％、特に有利に１０～３０質量％、及び、成分ｉｉ　３０～９５質量％、有利に５０～９０質量％、特に有利に７０～９０質量％を含有し、その際、質量百分率はそれぞれ成分ｉ～ｉｉの全質量に関し、かつ合計で１００質量％である。

【００７５】

成分ｉｉｉ）は、成分ｉ）～ｉｉ）の全質量に対して、０．１～５質量％、有利に０．１～２質量％、特に有利に０．２～１質量％で使用される。

【００７６】

個々の成分からの本発明による生分解性ポリエステル混合物の製造は、公知の方法により行うことができる（ＥＰ７９２３０９及びＵＳ５，８８３，１９９）。

【００７７】

例示的に、成分ｉ、ｉｉ及びｉｉｉの全てを、１つの処理工程で、当業者に公知の混合装置、例えば、混練機又は押出機中で、例えば１２０℃～２５０℃の高められた温度で混合して反応させることができる。反応は有利にラジカル開始剤の存在下に行われる。

【００７８】

更に、ＷＯ　２００６／０７８１５に記載の、生分解性ポリエステル混合物の製造法を引用することができる。

【００７９】

これに関して、第一の工程において、成分ｉｉｉ　１～５０質量％、有利に５～３５質量％と、成分ｉ　５０～９９質量％、有利に６５～９５質量％とを、１１０～１４５℃、有利に１２０～１４０℃の温度で混合し、これを分岐剤バッチとする。前記温度で、言及

に値する分子量増成が生じることなく均質なブレンドが得られる。そのようにして得られた分岐剤バッチは、室温で問題なく貯蔵可能である。第二の工程において、分岐剤バッチを、成分ｉｉ及び場合により他の成分ｉに添加することによって、所望の組成を調節することができる。この配合工程は、１５０～２５０℃、有利に１６０～１９０℃で実施される。

【００８０】

押出フォームの製造のために、成分は単軸又は二軸スクリュー押出機中で１６０～２２０℃で混合される。前記温度で均質なブレンドが得られる。有利に、ＰＬＡ（成分ｉｉ）は、連続相又は共連続相を形成する。

【００８１】

走査型－及び透過型電子顕微鏡写真は、二軸スクリュー押出機を使用した場合に、成分ｉからなる非連続相が１５０ｎｍ未満の直径を有するドメインを形成することを示している。これにより、２００ｎｍ未満の直径を有する気泡壁が達成され、該気泡壁中では、依然として非連続相がマトリックス中に分散されていることができる。これにより、発泡プロセスの間の気泡の裂開が回避される。これにより、７０％超、特に８０％超、特に有利に９０％超の高い独立気泡割合がもたらされる。さらに、２００ｎｍ未満の低い気泡壁厚によって、５０ｇ／ｌ未満、有利に３０ｇ／ｌ未満の密度がもたらされる。

【００８２】

溶融物に、発泡剤１～２５質量％、有利に１～１５質量％が注入される。低いフォーム密度を保証するためには、物理的発泡剤が使用される。好適な発泡剤の例は、有利に４～６個の炭素原子を有する直鎖アルカン、窒素、二酸化炭素、エタノール、ジメチルエーテル、ジエチルエーテル、メチルエチルエーテル並びにこれらの組み合わせである。ブタン、ペンタン、窒素及び二酸化炭素、特に二酸化炭素は特に有利である。溶融物は、引き続き、第二の二軸スクリュー押出機中で冷却される。その代わりに、冷却を、単軸スクリュー溶融押出機の後方の区画で実施することもできる。選択された温度で、押出機中での圧力が、押出機中で生じ得る早期の発泡を阻止するのに十分に高くなるように留意すべきである。穿孔ノズルを使用した場合、平滑で光沢を有する表面を有するフォームストランドが得られる。

【００８３】

これに代わって、管状のフォーム層を得るために、環状のノズル形状を使用することもできる。押出された管状フォーム層は、例えば、空気により冷却され、ナイフで切断され、その際に生じる平滑なフォーム層を巻き取ってロール状にする。この場合、一定の速度で巻き取るように留意すべきである。巻き取り速度はフォーム密度に影響を及ぼし得る。更に、押出及び巻き取りの際には、フォームシートが均一の厚さ分布を有するように留意すべきである。なぜならば、このことは後続の熱成形のために極めて重要であるためである。

【００８４】

押し出されたフォーム層は、熱成形装置で、短時間でかつ均一な加熱により、例えば赤外線加熱源を用いて、８０～１２０℃、特に有利に９０～１００℃に加熱されてよく、かつ真空で、場合により付加的に圧縮空気の使用下に、工具中で熱成形され、所定の形状のフォームシェルがもたされ、引き続き、例えば空気で冷却される。

【００８５】

低下した吸油量及び吸水量を有する生分解性ポリマー混合物の特別な応用分野は、発泡包装物、例えば熱成形された食品用包装物の製造のためのフォーム層を製造するための使用に関する。

【実施例】

【００８６】

応用技術的測定：

油、水及びエタノールの吸収量を、以下の通り測定した：

同一の直径を有する所定のフォームストランドを、端部で溶接し、計量し、室温ないし

６０℃で油又は水中で数時間貯蔵した。該ストランドの相対的な質量増加を測定した。

【００８７】

部分芳香族ポリエステルの分子量M_nを、以下の通り測定した：

部分芳香族ポリエステル１５ｍｇを、ヘキサフルオロイソプロパノール（ＨＦＩＰ）１０ｍｌ中に溶解させた。この溶液それぞれ１２５μｌを、ゲル浸透クロマトグラフィー（ＧＰＣ）を用いて分析した。この測定を室温で実施した。溶離液のために、ＨＦＩＰ＋トリフルオロ酢酸－Ｋａ－塩０．０５質量％を使用した。溶離速度は０．５ｍｌ／分であってあった。この場合、以下のカラム組み合わせを使用した（いずれのカラムも日本国在のShowa Denko Ltd.社製）：Shodex(R) HFIP- 800P（直径８ｍｍ、長さ５ｃｍ）、Shodex(R) HFIP-803（直径８ｍｍ、長さ３０ｃｍ）、Shodex(R) HFIP-803（直径８ｍｍ、長さ３０ｃｍ）。部分芳香族ポリエステルを、ＲＩ検出器（示差屈折率測定）により検出した。この較正は、M_n＝５０５ないしM_n＝２７４０００の分子量を有する狭い分布のポリメチルメタクリレート標準物を用いて実施した。この間隔の外に存在する溶離範囲を、外挿法により決定した。

【００８８】

この部分芳香族ポリエステルの溶融温度を、Seiko社製の装置Exstet DSC 6200Rを用いたＤＳＣ測定により測定した：

それぞれの試料の１０～１５ｍｇを窒素雰囲気下で２０℃／分の加熱速度で－７０℃から２００℃に加熱した。この試料の融点は、この場合に観察された溶融ピークのピーク温度であった。対照として、それぞれ空の試料るつぼを使用した。

【００８９】

成分ｉ、ｉｉ及びｉｉｉの混合物の均質性、並びに、比較用に製造された混合物の均質性を、これらの混合物を１９０℃でそれぞれ３０μｍの厚さのシートにプレスすることにより測定した。このシート中で分散されずに存在する成分ｉｉの分画を視覚的に評価した。

【００９０】

生分解性ポリエステル混合物から、押出及び環状ノズルの使用により、それぞれ２～３ｍｍ厚のフォーム層を製造した。

【００９１】

フォーム試料を計量し、水中での排除体積を測定することによって、密度を決定した。

【００９２】

独立気泡の割合を測定するために、フォームストランドないしフォーム層の横断面を、電子顕微鏡を用いて分析した。長方形の部分で、独立気泡壁構造を含む気泡の割合を測定した。

【００９３】

気泡壁厚及び形態を、透過型電子顕微鏡及び走査型電子顕微鏡を用いて測定した。

【００９４】

使用物質：

成分ｉ：

ｉ－１：ポリエステルｉ－１の製造のために、ジメチルテレフタレート８７．３ｋｇ、アジピン酸８０．３ｋｇ、１，４－ブタンジオール１１７ｋｇ及びグリセリン０．２ｋｇと、テトラブチルオルトチタネート（ＴＢＯＴ）０．０２８ｋｇとを一緒に混合し、その際、アルコール成分と酸成分とのモル比は１．３０であった。反応混合物を１８０℃の温度に加熱し、この温度で６時間反応させた。次いで、温度を２４０℃に高め、過剰のジヒドロキシ化合物を真空下に３時間の期間にわたって留去した。次いで、ヘキサメチレンジイソシアネート０．９ｋｇを２４０℃で１時間以内でゆっくりと供給した。

【００９５】

そのようにして得られたポリエステルｉ－１は、１１９℃の溶融温度及び２３０００ｇ／モルの分子量（M_n）を有していた（BASF Aktiengesellschaft社製のEcoflex(R) FBX 7011に相当）。

【００９６】
成分ｉｉ：
ｉｉ－１：脂肪族ポリエステル、ポリラクチド、NatureWorks社のNatureworks(R) 4042D、
成分ｉｉｉ：
ｉｉｉ－１：Johnson Polymer社のJoncryl(R) ADR 4368
他の成分：
成核剤：タルク、チョーク
フォームストランドを得るために、その都度、穿孔ノズルを使用した。
【００９７】
【表１】

実施例１～４

実施例	成分i	成分ii	成分iii	添加剤	発泡剤
実施例1	(Ecoflex® FBX 7011) 19質量%	PLA 4042D 80質量%	Joncryl 4368 0質量%	$CaCO_3$ 1質量%	CO_2 10質量%
実施例2	(Ecoflex® FBX 7011) 18,8質量%	PLA 4042D 80質量%	Joncryl 4368 0,2質量%	$CaCO_3$ 1質量%	CO_2 10質量%

実施例	密度 g/l	独立気泡の割合	気泡壁厚 nm	外観
実施例1	27	> 80	< 200 nm	平滑な光沢表面、良好な触感
実施例2	34	> 90	< 180 nm	平滑な光沢表面、良好な触感

【００９８】
実施例２は、相溶化剤の使用により、独立気泡の割合を、いずれにせよ既に極めて良好な実施例１と比較して、さらに向上させることができることを示している。
【００９９】

【表２】

吸水量：

実施例	温度/ °C	4ｈ後の相対的吸収％
実施例１	23	43
実施例１	60	129
実施例２	23	1
実施例２	60	12

オリーブ油の吸収量：

実施例	温度/ °C	4ｈ後の相対的吸収％
実施例１	23	111
実施例１	60	82
実施例２	23	16
実施例２	60	16

エタノールの吸収量：

実施例	温度/ °C	4ｈ後の相対的吸収％
実施例１	23	147
実施例１	60	429
実施例２	23	38
実施例２	60	189

【０１００】

実施例２は、本発明による相溶化剤により、吸水量及び吸油量を劇的に低減することができることを明確に示している。

フロントページの続き

(74)代理人 100128679
弁理士 星 公弘
(74)代理人 100135633
弁理士 二宮 浩康
(74)代理人 100114890
弁理士 アインゼル・フェリックス＝ラインハルト
(72)発明者 ビイェルン ディートリヒ
ドイツ連邦共和国 ハイデルベルク ザンクト アンナ ガッセ ５
(72)発明者 ダニエラ ロンゴ
ドイツ連邦共和国 ジークブルク ボンナー シュトラーセ ４７
(72)発明者 ガブリエル スクーピン
ドイツ連邦共和国 シュパイアー シュヴェアトシュトラーセ ４６
(72)発明者 フローリアン クリュックル
ドイツ連邦共和国 ホッケンハイム トーマス－マン－シュトラーセ ３

審査官 前田 知也

(56)参考文献 特開２００５－０６０６８９（ＪＰ，Ａ）
国際公開第２００５／０６３８８６（WO，Ａ１）
特開２００５－１７９５３７（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
Ｃ０８Ｊ９／００－９／４２