(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2009-512765
(P2009-512765A)
(43)公表日　平成21年3月26日(2009.3.26)

(51)Int.Cl.		F I			テーマコード（参考）
C08J 5/04	(2006.01)	C08J	5/04	CFD	3E033
C08L 101/16	(2006.01)	C08L	101/16	ZBP	4F072
B65D 1/00	(2006.01)	B65D	1/00	A	4J200

審査請求 未請求　予備審査請求 未請求　（全 24 頁）

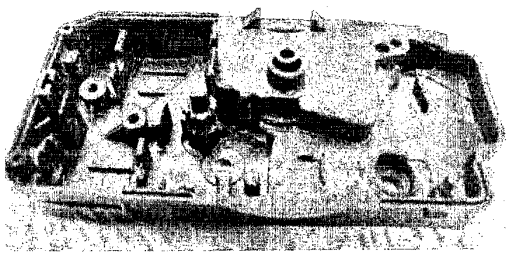
(21)出願番号　特願2008-536849 (P2008-536849)
(86)(22)出願日　平成18年10月19日 (2006.10.19)
(85)翻訳文提出日　平成20年6月23日 (2008.6.23)
(86)国際出願番号　PCT/US2006/041170
(87)国際公開番号　WO2007/047999
(87)国際公開日　平成19年4月26日 (2007.4.26)
(31)優先権主張番号　60/729,099
(32)優先日　平成17年10月21日 (2005.10.21)
(33)優先権主張国　米国 (US)

(71)出願人　508122390
クレムソン・ユニヴァーシティ
アメリカ合衆国サウスカロライナ州２９６２５，アンダーソン，テクノロジー・ドライヴ　９１，ルーム　２２２，オフィス・オヴ・テクノロジー・トランスファー
(74)代理人　100099623
弁理士　奥山　尚一
(74)代理人　100096769
弁理士　有原　幸一
(74)代理人　100107319
弁理士　松島　鉄男
(74)代理人　100114591
弁理士　河村　英文

最終頁に続く

(54)【発明の名称】再生可能な資源由来のポリマー複合材料

(57)【要約】
環境に配慮したポリマー複合材料および複合材料から形成できる製品が開示される。ポリマー複合材料は、再生可能な資源に由来する繊維を用いて強化された、ラクチドをベースとするポリマーマトリックスを含むことができ、任意選択的に、例えば天然型ＵＶ遮断剤もしくは吸収剤、抗酸化物質、抗菌剤などの１つまたは複数の有益な作用物質を含む。前記複合材料は、低エネルギー形成プロセスによって所望の構造体に形成することができ、制御分解するように設計できる。１つの特定の実施形態では、前記複合材料は、医薬品または栄養補助食品などの環境に敏感な物質を保管および保護するための容器を製造するために形成できる。有益にも、本明細書に開示した材料は、完全に再生可能な資源から形成できる。



【特許請求の範囲】
【請求項１】
ポリラクチドをベースとする複合材料を含む成形容器であって、前記ポリラクチドをベースとする複合材料は、
ポリラクチドをベースとするポリマーマトリックスと、
強化繊維であって、前記繊維は再生可能な天然資源に由来する強化繊維と、
要素が前記容器の壁を横断して前記容器の内部へ通過するのを少なくとも部分的に防止する阻害剤であって、再生可能な資源に由来する阻害剤と
を含む、成形容器。
【請求項２】
前記成形容器が、射出成形容器である、請求項１に記載の成形容器。
【請求項３】
前記成形容器が、射出ブロー成形容器である、請求項１に記載の成形容器。
【請求項４】
前記ポリラクチドをベースとするポリマーマトリックスが、ポリマーブレンドを含む、請求項１に記載の成形容器。
【請求項５】
前記ポリラクチドをベースとするポリマーマトリックスが、ポリラクチドコポリマーを含む、請求項１に記載の成形容器。
【請求項６】
前記容器が、完全に生分解性である、請求項１に記載の成形容器。
【請求項７】
前記強化繊維が、亜麻繊維、ケナフ繊維、および綿繊維からなる群から選択される、請求項１に記載の成形容器。
【請求項８】
前記ポリラクチドをベースとする複合材料が、前記強化繊維を前記複合材料の約５重量％未満の量で含む、請求項１に記載の成形容器。
【請求項９】
前記阻害剤が、天然抗酸化物質である、請求項１に記載の成形容器。
【請求項１０】
前記抗酸化物質が、ターメリックである、請求項９に記載の成形容器。
【請求項１１】
前記阻害剤が、前記壁を横断する紫外線スペクトル内の電磁放射線の量を制限する、請求項１に記載の成形容器。
【請求項１２】
前記阻害剤が、抗菌剤もしくは抗真菌剤である、請求項１に記載の成形容器。
【請求項１３】
前記複合材料が、前記容器内に保持される物質の保管寿命１ヶ月当たり容器容量１ｍＬ当たり約１～約１００μｇの量で前記阻害剤を含む、請求項１に記載の成形容器。
【請求項１４】
前記容器が、積層体構造の多層壁を含み、前記ポリラクチドをベースとする複合材料が前記積層体の少なくとも１つの層を形成する、請求項１に記載の成形容器。
【請求項１５】
前記阻害剤が、前記ポリラクチドをベースとする複合材料から経時的に遊離される、請求項１に記載の成形容器。
【請求項１６】
農産物のための包装用織物であって、前記包装用織物はポリラクチドをベースとする複合材料から形成された複数の糸を含み、前記ポリラクチドをベースとする複合材料はポリラクチドポリマーマトリックスおよび前記農産物に由来する強化繊維を含む、包装用織物。

【請求項１７】
前記織物は織布である、請求項１６に記載の織物。
【請求項１８】
前記織物が、前記ポリラクチドをベースとする複合材料から形成された糸を含む、請求項１６に記載の包装用織物。
【請求項１９】
前記農産物が、綿である、請求項１６に記載の包装用織物。
【請求項２０】
前記ポリラクチドをベースとする複合材料が、阻害剤をさらに含み、前記阻害剤は前記包装用織物の第１側から前記包装用織物の第２側へ、要素が通過するのを少なくとも部分的に防止し、前記阻害剤は再生可能な資源に由来する、請求項１６に記載の包装用織物。
【請求項２１】
前記包装用織物が、完全に生分解性である、請求項１６に記載の包装用織物。
【請求項２２】
成形容器を形成するための方法であって、
約５０ｐｐｍ未満の水分含量を有するポリラクチドをベースとするポリマー樹脂を提供する工程と、
前記ポリラクチドをベースとするポリマーを複数の強化繊維と混合する工程であって、前記強化繊維が前記ポリラクチドをベースとするポリマーの約５重量％未満の量で前記ポリラクチドをベースとするポリマー樹脂と混合され、前記繊維が再生可能な資源に由来する、混合する工程と、
前記ポリラクチドをベースとするポリマー樹脂を阻害剤と混合する工程であって、前記阻害剤が再生可能な資源に由来する、混合する工程と、
構造体を形成するために前記ポリラクチドをベースとするポリマー樹脂と、前記強化繊維と、および前記阻害剤とを含む混合物を成形する工程であって、前記阻害剤は要素が前記構造体を横断して通過するのを少なくとも部分的に防止する、成形する工程と
を含む、方法。
【請求項２３】
前記ポリラクチドをベースとするポリマー樹脂が、ポリマーブレンドを含む、請求項２２に記載の方法。
【請求項２４】
前記ポリラクチドをベースとするポリマー樹脂が、前記強化繊維および前記阻害剤と溶融混合される、請求項２２に記載の方法。
【請求項２５】
前記ポリラクチドをベースとするポリマー樹脂が、前記強化繊維および前記阻害剤と溶液混合される、請求項２２に記載の方法。
【請求項２６】
前記構造体が、射出成形される、請求項２２に記載の方法。
【請求項２７】
前記構造体が、射出ブロー成形される、請求項２２に記載の方法。
【請求項２８】
前記強化繊維が、亜麻繊維、ケナフ繊維、および綿繊維からなる群から選択される、請求項２２に記載の方法。
【請求項２９】
前記阻害剤が、天然抗酸化物質である、請求項２２に記載の方法。
【請求項３０】
前記抗酸化物質が、ターメリックである、請求項２９に記載の方法。
【請求項３１】
前記阻害剤が、前記構造体を横断する紫外線スペクトルの電磁放射線の通過を防止する、請求項２２に記載の方法。

【請求項３２】
前記阻害剤が、抗菌剤もしくは抗真菌剤である、請求項２２に記載の方法。
【請求項３３】
前記構造体は容器である、請求項２２に記載の方法。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本出願は、引用することにより本明細書の一部をなすものとする、２００５年１０月２１日に提出された米国特許出願番号第６０／７２９，０９９号を有する仮特許出願が出願中の利益を請求する。
【背景技術】
【０００２】
再生可能な資源からのプラスチックの製造は、長年にわたって関心が増大している分野である。関心が高い１つの特定領域は、乳酸をベースとするモノマーの重合により形成できるポリエステルの製造に関係する。詳細には、ラクチドの開環重合は、ポリマー材料の製造における将来性を示してきた。乳酸をベースとする材料は、原料を再生可能な農業資源（例、トウモロコシ、植物性デンプン、およびトウ（ｃａｎｅｓ））から導き出すことができるので、しばしば関心が高い。
【０００３】
ラクチドをベースとする、所望の製品特性を有するポリマー材料を入手することを試みて、様々なアプローチが企図されてきた。例えば、Ｈａｓｈｉｔａｎｉ　ｅｔ　ａｌ．への米国特許第５，７４４，５１６号、Ｓｈｉｒａｉｓｈｉ　ｅｔ　ａｌ．への米国特許第６，１５０，４３８号、Ｄｅｎｅｓｕｋへの米国特許第６，７５６，４２８号、およびＭｏｈａｎｔｙ　ｅｔ　ａｌ．への米国特許第６，８６９，９８５号は、すべてがラクチドをベースとする様々なポリマー、およびラクチドをベースとするポリマーを形成する方法を開示している。
【０００４】
当分野に、および詳細には様々な用途のために適合するラクチドをベースとする材料の形成に関しては改良が加えられてきたが、依然として改良の余地が残っている。例えば、強度特性、審美的特性などに関して改良された製品に対する必要に加えて、当分野においては再生可能な資源から完全に形成される製品などのより環境に配慮した製品を形成することに対する継続的な必要もある。さらにまた現行方法が必要とするより低いエネルギーしか必要としない方法によって製品を形成することもまた有益である。
【発明の開示】
【０００５】
本明細書では、ポリラクチドをベースとするポリマーマトリックスと、例えば亜麻、ケナフもしくは綿などの再生可能な資源に由来する強化繊維、および保護用の阻害剤とを含んでもよい、ポリラクチドをベースとする複合材料を開示する。阻害剤は、複合材料を含む形成された構造体を横断する要素が通過するのを少なくとも部分的に遮断もしくは防止することができ、１つの実施形態では、複合材料が形成された構造体の内部への潜在的有害因子の通過を制限もしくは防止することにおける能力を改善することができる。例えば、複合材料は、酸素、紫外線（ＵＶ）、微生物因子、真菌因子などの因子が前記構造体の壁を横断することを少なくとも部分的に防止もしくは制限することができる。
【０００６】
ポリマー複合材料は、複合材料の約５重量％未満の量で繊維材料を含むことができる。１つの実施形態では、ポリマー複合材料は、容器内に保持される物質の１カ月当たりの保管寿命に対して約１～約１００μｇ／ｍＬ容器容量の量で阻害剤を含むことができる。
【０００７】
本明細書に記載した複合材料中に使用できるポリラクチドをベースとするポリマーは、例えば、ポリラクチドをベースとするホモポリマーもしくはコポリマー、またはポリラク

チド／ポリヒドロキシアルカノエートポリマーブレンドなどのポリマーブレンドであってよい。

【０００８】

阻害剤は、天然資源由来であってよい。１つの代表的な阻害剤は、ターメリックなどの天然抗酸化物質であってよい。１つの実施形態では、阻害剤は、例えば複合材料が分解するにつれて複合材料から経時的に遊離させることができる。

【０００９】

ポリマー複合材料から形成できる構造体は、例えば、成形容器などの容器を含むことができる。成形容器は、例えば、射出成形容器または射出ブロー成形容器であってよい。１つの実施形態では、本明細書に記載した容器は、完全に生分解性であってよい。

【００１０】

また別の実施形態では、農産物用の包装材料が開示される。包装材料には、ポリラクチドをベースとするポリマーおよび同一の農産物から形成された強化繊維を含むことができ、その材料で包装できるようになっている。例えば、包装材料は、ポリラクチドをベースとする複合材料から形成された糸を含むことのできる織物であってよい。１つの好ましい実施形態では、包装材料は綿とともに使用するために設計できる。包装材料は、その包装材料内に保持される内容物のさらなる保護のために上述した阻害剤をさらに含むことができる。

【００１１】

さらにまたポリラクチドをベースとする複合材料を形成するための方法も開示される。本方法は、例えば、約５０ｐｐｍ未満の水分含量を有するポリラクチドをベースとするポリマー樹脂を提供する工程と、前記樹脂を前記ポリマーの約５重量％未満の量の強化繊維と混合する工程と、前記ポリマーを阻害剤と混合する工程と、そして次に最終製品を入手するために前記混合物を成形する工程とを含むことができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【００１２】

以下では、添付の図面を参照しながら、最良の形態を含む完全かつ可能な開示を記載する。

【００１３】

本明細書に開示する主題の様々な実施形態、１つまたは複数の実施例を詳細に参照されたい。各実施例は、本発明を制限するためではなく、それらを説明するために提供される。実際に、当業者には、本開示の範囲または精神から逸脱することなく、本明細書に開示した主題に様々な修飾および変更を加えられることは明白である。例えば、１つの実施形態の一部として例示もしくは記載した特徴は、別の実施形態と一緒に使用してさらにまた別の実施形態を生じさせることができる。

【００１４】

一般に、本開示は、環境に配慮したポリマー材料ならびにそのような材料から形成できる製品を形成するために使用できる方法および材料を含む。詳細には、開示したポリマー複合材料は、ポリマーマトリックスを複数の天然繊維と組み合わせて含むことができる。１つの特定の実施形態では、複合材料の構成成分のすべてが再生可能な資源由来であってよい。本明細書に開示したポリマー複合材料は、低温加工処理技術によって極めて多種多様な製品のいずれかに形成することができる。そのような実施形態では、前記材料から製品を形成するために使用される材料および方法の両方が環境に配慮したものであってよい。

【００１５】

ポリマー複合材料は、複数の繊維と組み合わせたラクチドをベースとするポリマーマトリックスを含むことができ、それらはどちらも再生可能な資源由来であってよい。本開示のためには、用語「ラクチドをベースとするポリマー」は、用語「ポリラクチド」、「ポリ乳酸（ＰＬＡ）」および「ポリラクチドポリマー」と同義語であることが意図され、単独（すなわち、ホモポリマー）または他のモノマーとの混合物もしくはコポリマーのいず

れかでの、ラクチドモノマーの開環重合によって形成される任意のポリマーを含むことが企図されている。この用語は、さらにまた構成成分のモノマー（例えば、シンジオタクチック、イソタクチックなど）の任意の相違する立体配置および配列を包含することもまた企図されている。

【００１６】

複数の天然繊維と組み合わせたポリマーマトリックスに加えて、本明細書に開示したポリマー複合材料は、製品に所望の特性を提供できる、例えば、抗酸化物質、抗菌剤、抗真菌剤などの様々な環境に配慮した有益な作用物質のいずれかを含むことができる。１つの実施形態では、有益な物質もまた再生可能な資源由来であってよい。例えば、ポリマー複合材料は、最終製品内へ、最終製品を通って、または最終製品を横断する有害因子の通過を防止または制限することにおける改良された能力を備える形成されたポリマー構造体を提供できる、１つまたは複数の阻害剤を含むことができる。

【００１７】

１つの特定の実施形態では、ポリマー複合材料の構成成分のすべて、例えばポリマー、繊維、および任意の添加剤を混合し、ビーズもしくはペレットの形状にあるブレンドしたラクチドポリマー樹脂を形成するために加工処理することができる。したがって、事前に形成された樹脂ペレットは、製品製造工程における加工処理の準備が整っている。したがって、製品形成プロセスは、低コスト、低エネルギー形成プロセスになるだけではなく、極めて単純となる可能性もある。

【００１８】

一般に、ラクチドをベースとするポリマーマトリックスは、乳酸に由来してよい。乳酸は、ホエー、コーンスターチ、ジャガイモ、糖蜜などの農産物の発酵によって商業的に製造される。ラクチドをベースとするポリマーを形成する場合は、ラクチドモノマーは、最初に乳酸オリゴマーの解重合によって形成できる。以前には、ラクチドの製造は、速度の遅い、高額の費用がかかるプロセスであったが、当分野における近年の進歩は、合理的コストでの高純度ラクチドの製造を可能にしてきた。そのようなプロセスは、当業者には一般に知られているので、本明細書ではそれらについて詳細には考察しない。

【００１９】

形成プロセスの１つの実施形態は、ラクチドモノマーの開環重合を通してのラクチドをベースとするポリマーの形成を含むことができる。他の実施形態では、以下に例示する、市販で入手できるポリマーを使用できる。

【００２０】

１つの実施形態では、複合材料のラクチドをベースとするポリマーマトリックスは、ラクチドモノマーの重合から専ら形成されるホモポリマーを含むことができる。例えば、ラクチドモノマーは、一般に当分野において知られているように、適切な重合触媒の存在下で、一般に高い温度および圧力条件下で重合させることができる。一般には、触媒は、ラクチドの重合を触媒するために知られている任意の化合物または組成物であってよい。そのような触媒は周知であり、アルキルリチウム塩など、オクタン酸第一スズ、アルミニウムイソプロポキシド、ならびに引用することにより本明細書の一部をなすものとする米国特許第５，０２８，６６７号に記載されている特定の希土類金属化合物を含む。使用される特定量の触媒は、一般に材料の触媒活性ならびにプロセスの温度および所望の重合速度に依存して変動してよい。典型的な触媒濃度には、約１０：１～約１００，０００：１、および１つの実施形態では約２，０００：１～約１０，０００：１のラクチド対触媒のモル比が含まれる。１つの代表的なプロセスによると、触媒は、ラクチドモノマー出発材料中に分布させることができる。触媒は、固体である場合には比較的小さな粒径を有していてよい。１つの実施形態では、触媒は、それにより触媒の取扱いおよびモノマー溶液全体での均一な混合を促進するために、不活性溶媒中の希釈溶液としてモノマー溶液に加えることができる。触媒が毒性材料である実施形態では、本プロセスはさらにまた例えば１つまたは複数の浸出工程などの、重合反応の後に混合物から触媒を除去するための工程を含むことができる。

【００２１】
１つの実施形態では、重合プロセスは、例えば約９５℃～約２００℃、または１つの実施形態では約１１０℃～約１７０℃、および別の実施形態では約１４０℃～約１６０℃のような高温で実施できる。温度は、一般には、ポリマーの分解を回避するために十分に低い温度を維持しながら、使用される特定触媒のために合理的な重合速度を入手できるように選択できる。１つの実施形態では、重合は、当分野において一般に知られているように、高圧で発生させることができる。本プロセスは、典型的には、約１～約７２時間、例えば約１～約４時間行われる。
【００２２】
商業的起源から入手できるポリラクチドホモポリマーは、本明細書に開示したポリマー複合材料を形成する際にも利用することができる。例えば、本明細書に開示した方法では、Ｐｏｌｙｓｃｉｅｎｃｅｓ社、Ｎａｔｕｒｅｗｏｒｋｓ有限責任会社、Ｃａｒｇｉｌｌ社、Ｍｉｔｓｕｉ社（日本）、Ｓｈｉｍａｄｚｕ社（日本）、またはＣｈｒｏｎｏｐｏｌ社から入手できるポリ（Ｌ－乳酸）を利用できる。
【００２３】
ラクチドをベースとするポリマーマトリックスは、ラクチドモノマーもしくはオリゴマーから形成されるポリマーを１つまたは複数の他のポリマー材料と組み合わせて含むことができる。例えば、１つの実施形態では、ラクチドは、ポリマー複合材料中に組み込むことのできるラクチドをベースとするコポリマーを形成するために、再生可能な資源に由来する１つまたは複数の他のモノマーもしくはオリゴマーと共重合させることができる。そのような実施形態によると、コポリマーの二次モノマーは、少なくともリサイクル可能である、そして１つの実施形態では、コポリマーが分解した場合に、危険な廃棄物問題を全く生じないように、完全かつ安全に生分解性である材料であってよい。１つの特定の実施形態では、ラクチドモノマーは、ＰＬＡホモポリマーと比較してコポリマーのリサイクル可能性を改良することのできる、嫌気的にリサイクル可能であるモノマーもしくはオリゴマーと共重合させることができる。本明細書に開示した複合材料において使用するためのポリラクチドコポリマーは、所望により、ランダムコポリマーもしくはブロックコポリマーであってよい。
【００２４】
また別の実施形態では、ポリマー組成物は、ポリマーブレンドを含むことができる。例えば、ラクチドをベースとするポリマーもしくはコポリマーは、例えばポリプロピレン、ポリエチレンテレフタレート、ポリスチレン、ポリ塩化ビニルなどのリサイクル可能なポリマーである別のポリマーとブレンドすることができる。
【００２５】
１つの実施形態では、ＰＬＡの場合と同様に、再生可能な資源から形成することのできる二次ポリマーを含むポリマーブレンドを利用できる。例えば、ポリマーブレンドは、ＰＬＡポリマーもしくはコポリマーをポリヒドロキシアルカノエート（ＰＨＡ）と組み合わせて含むことができる。ＰＨＡは、細菌発酵を通して再生可能な農業資源から調製された比較的新規なクラスの生体材料のメンバーである。様々なＰＨＡ組成物は、商品名ＮＯＤＡＸ（商標）を付けてオハイオ州シンシナティに所在するＰｒｏｃｔｏｒ　＆　Ｇａｍｂｌｅ　ｃｏｒｐｏｒａｔｉｏｎ社から入手可能である。
【００２６】
ブレンド中に含まれるポリマーの相対比率は、一般に、複合材料から形成できるポリマー製品の所望の物理的特性に依存してよい。例えば、ポリマーブレンドは、ポリマーブレンドの少なくとも約５０重量％のＰＬＡホモポリマーもしくはコポリマーを含むことができる。別の実施形態では、ポリマーブレンドは、ブレンドの少なくとも約７０重量％のＰＬＡ、または他の実施形態では、例えばブレンドの約８０重量％超のＰＬＡを含むことができる。
【００２７】
ラクチドをベースとするポリマーマトリックスに加えて、本明細書に開示する複合材料

は、再生可能な資源由来であってよく、さらに生分解性であってよい複数の天然繊維を含むことができる。複合材料の繊維は、１つの実施形態では、複合材料の機械的特性を強化することができる。例えば、繊維は、材料の強度特性を改良することができる。天然繊維は、本明細書に開示した複合材料に、例えば第２材料との改良された適合性、複合材料の改良された生分解性、特定の審美的特性の達成など他の／追加の利益を提供することができる。

【００２８】

本明細書に開示した複合材料において使用するために適切な天然繊維は、植物、鉱物、および動物由来繊維を含むことができる。植物由来繊維は、種子繊維、ならびに詳細には靱皮繊維、葉繊維、および果実繊維と分類できる多細胞繊維を含むことができる。本明細書に開示した複合材料に含むことのできる植物繊維は、木材製品および非木材製品の両方を含む農産物に由来するセルロース材料を含むことができる。例えば、本明細書に開示した複合材料において使用するために適切な繊維材料は、例えば亜麻科（Ｌｉｎａｃｅａｅ）（例、亜麻）、イラクサ科（Ｕｒｔｉｃａｃｅａｅ）、シナノキ科（Ｔｉｌｉａｃｅａｅ）（例、ジュート）、マメ科（Ｆａｂａｃｅａｅ）、アサ科（Ｃａｎｎａｂａｃｅａｅ）、キョウチクトウ科（Ａｐｏｃｙｎａｃｅａｅ）、およびヤマゴボウ科（Ｐｈｙｔｏｌａｃｃａｃｅａｅ）のメンバーなどの双子葉植物、ならびに一部の実施形態では、例えばリュウゼツラン科（Ａｇａｖａｃｅａｅ）のメンバーなどの単子葉植物を含むがそれらに限定されない科由来の植物繊維を含むことができる。

【００２９】

１つの実施形態では、繊維は、ゼニアオイ科（Ｍａｌｖａｃｅａｅ）由来、および１つの特定の実施形態ではＨｉｂｉｓｃｅａｅ属の植物（例、ケナフ、ハマハイビスカス、ｒｏｓｓｅｌｌｅ）および／またはＧｏｓｓｙｐｉｅａｅ属の植物（例、綿および近縁種）由来であってよい。

【００３０】

１つの実施形態では、綿繊維が、本明細書に開示した複合材料において利用できる。一般に、綿繊維は、複合材料内に含めるための繊維材料を入手するために、まず種子から分離して、当業者には一般に知られているようないくつかの機械的加工処理工程を受けさせることができる。

【００３１】

別の実施形態では、亜麻繊維が、本明細書に開示した複合材料中に組み込むことができる。加工処理された亜麻繊維は、一般に１２～１６μｍの径で、０．５～３６インチの長さ範囲に及んでよい。詳細には油を得るために栽培される亜麻である亜麻仁は、明確に確立された市場を有し、この用途のために毎年数百万エーカーの亜麻仁が栽培されているが、農業繊維残留物は未使用で残される。そこで、亜麻の農業生産は、二期作、繊維加工処理施設での仕事、および付加価値作物を順番に提供する可能性を有する。

【００３２】

複合材料の強化繊維は、当分野において一般に知られている方法によって植物から抽出される靱皮繊維および／または茎繊維を含むことができる。そのような実施形態によると、植物の内部パルプは、パルプが有益にも例えば製紙プロセスにおける多数の知られている二次用途において利用できるので、本明細書に開示した方法の有用な副産物である可能性がある。例えば、繊維強化材料は、長さが約１０ｍｍまでの靱皮繊維を含むことができる。例えば、長さが約２ｍｍ～約６ｍｍのケナフ靱皮繊維を強化繊維として利用できる。

【００３３】

ポリマー複合材料は、一般には、複合材料の約５０重量％までの量で繊維成分を含むことができる。例えば、複合材料は、複合材料の約１０重量％～約４０重量％の量で繊維成分を含むことができる。１つの実施形態では、複合材料は、複合材料の約３０重量％の量で繊維成分を含むことができる。

【００３４】

１つの実施形態によると、複合材料の繊維成分は、単にポリマーマトリックスへ強化を

提供するためだけに役立ち、材料の強度特性を改良することができる。他の実施形態では、繊維成分は、任意選択的に、または加えて、複合材料および／またはそれから形成された製品に特定の審美的特性を提供することができる。例えば、特定の繊維もしくは繊維の組み合わせは、材料および／またはそれから形成される製品の不透明度、色、テクスチャー、および全体的外観に影響を及ぼすために複合材料の中に含むことができる。例えば、綿、ケナフ、亜麻、ならびにその他の天然繊維は、様々な用途のいずれかのために固有の外観および／またはテクスチャーを有する複合材料を提供するために単独または１つのまた別の繊維と組み合わせてのいずれかで開示された複合材料の中に含めることができる。

【００３５】

ポリマーマトリックスおよび天然繊維に加えて、ポリマー複合材料は、材料および／またはそれから形成された製品に所望の特性を提供できる１つまたは複数の阻害剤を含めることができる。例えば、複合材料は、完全かつ安全に生分解性であってよい抗酸化物質、抗菌剤、抗真菌剤、紫外線遮断剤、紫外線吸収剤などの再生可能な資源由来であってよい１つまたは複数の天然物質および／または生分解性物質を含むことができる。１つの代表的な実施形態では、１つまたは複数の阻害剤は、形成されたポリマー材料の一方の側面にある材料の１つまたは複数の潜在的有害因子からの保護を改良することができる。例えば、１つまたは複数の阻害剤は、複合材料から形成された構造体を横断する潜在的有害因子（例、酸素、微生物、紫外線など）の通過のさらなる防止を提供することができ、したがってポリマー複合材料の片側に保持された材料の損傷もしくは分解からの改良された保護を提供することができる。１つの実施形態では、ポリマー複合材料は、複合材料が分解するにつれてマトリックスから阻害剤を遊離し、その時点で阻害剤はポリマー複合材料の表面で例えば抗菌活性のような所望の活性を提供するように設計できる。

【００３６】

代表的な阻害剤には、ターメリック、ゴボウ、緑茶、ガーリック、ビルベリー、エルダーベリー、イチョウ、グレープシード、オオアザミ、ルテイン（卵黄、トウモロコシ、ブロッコリー、キャベツ、レタス、およびその他の果実および野菜の抽出物）、オリーブ葉、ローズマリー、サンザシ、ハコベ、トウガラシ（カイエンヌ）、およびブルーベリー・パルプなどの１つまたは複数の天然抗酸化物質を含むことができるが、これらには限定されない。

【００３７】

ポリマー複合材料には、１つまたは複数の天然抗菌剤を含むことができる。例えば、代表的な天然抗菌剤には、例えばヒドラスチス、オウレン、メギ、ヒイラギナンテン、およびイエルバ・メンサなどの植物から抽出できる薬草の抗菌剤であるベルベリンを含むことができる。その他の天然抗菌剤には、プロポリス、セイヨウオトギリソウ、クランベリー、ガーリック、Ｅ．ｃｏｃｈｉｎｃｈｉｎｅｎｓｉｓおよびＳ．ｏｆｆｉｃｉｎａｌｉｓの抽出物、ならびに例えばシナモン、クローブ、もしくはオールスパイスから入手できる油などの抗菌性精油およびミルラやググルから入手される樹脂などの抗菌性ゴム樹脂を含むことができるが、それらに限定されない。

【００３８】

複合材料中に含むことのできる他の代表的な阻害剤は、例えば、ティーツリー油およびレスベラトロール（ブドウおよび他の作物中で見出されるフィトエストロゲン）などの天然抗真菌剤、またはサンゴに見出されるミコスポリン様アミノ酸などの、天然型紫外線遮断化合物を含めることができる。

【００３９】

任意選択的に、ポリマー複合材料は、複数の阻害剤を含むことができるが、それらの各々は複合材料に１つまたは複数の所望の保護能力をもたらすことができる。

【００４０】

一般に、例えば上述したような阻害剤は、複合材料の約１０％重量未満の量で含めることができる。他の実施形態では、より高い重量％で含めることができる。１つの実施形態では、好ましい添加量は、潜在的有害因子へのそれらの物質の活性レベル、複合材料を含

む形成される構造体によって保護される材料の量、保護される材料の予想保管寿命などのうちの１つまたは複数に依存してよい。例えば、１つの実施形態では、阻害剤は、約１μｇ／ｍＬ保護される材料／月（保管寿命）～約１００μｇ／ｍＬ保護される材料／月（保管寿命）の量でポリマー複合材料中に組み込むことができる。

【００４１】

有益には、形成プロセスは、以下により詳細に考察するように低加工処理温度で実施できるので、多数の天然阻害剤を複合材料中にうまく組み込むことができる。詳細には、多数のこれまでに既知の複合材料については必要とされる高温加工処理条件中では所望の活性が破壊され得る阻害剤は、それらが形成プロセスを通して所望の活性を維持できるので、本明細書に開示した材料中にうまく含むことができる。

【００４２】

ポリマー複合材料は、任意選択的に、当分野において一般に知られているような１つまたは複数の追加の添加物を含むことができる。例えば、少量（例、複合材料の約５重量％未満）の可塑剤、安定剤、繊維サイズ剤、重合触媒などのいずれかもしくは全部を複合調製物中に含めることができる。１つの実施形態では、複合材料への任意の追加の添加物は、少なくともリサイクル可能で非毒性であってよく、１つの実施形態では、再生可能な資源から形成できる。

【００４３】

ポリマー複合材料の様々な構成成分は、適切にはポリマー構造体を形成する前に混合することができる。例えば、１つの実施形態では、構成成分は、形成された構造体にある所望の調製物中で混合され、形成プロセスへ配送するために適するペレット、ビーズなどに形成できる融液もしくは溶液であってよい。この特定の実施形態によると、製品形成プロセスは、形成プロセス（例えば、ホッパーで）に先行して必要とされる構成成分の測定もしくは混合をほとんどもしくは全く用いずに、極めて単純であってよい。

【００４４】

１つの特定の実施形態では、引用することにより本明細書の一部をなすものとするＺｕｍｂｒｕｎｎｅｎ　ｅｔ　ａｌ．への米国特許第６，７７０，３４０号に記載されている方法などのカオス的混合法を使用して、ポリマー複合材料の構成成分を混合することができる。カオス的混合プロセスは、例えば、複合材料に、混合プロセスにおいて混合される様々な相に関して、および詳細には、ポリマー、繊維強化材料、ならびに混合プロセスにおいて混合される阻害剤に関して、特定かつ選択的形態を提供するために使用できる。例えば、カオス的混合プロセスは、例えば、物質の制御された放出、例えば複合材料のポリマー成分が経時的に分解するにつれて、複合材料からの作用物質の持続放出を提供できるように、複合材料内の所定場所で濃縮させた、１つまたは複数の阻害剤を含む複合材料を形成するために利用できる。

【００４５】

様々な構成成分の混合後、ポリマー複合材料は、低エネルギー形成プロセスによって所望の構造体に形成することができる。

【００４６】

１つの代表的な形成プロセスは、複合材料の構成成分を製品の型へ提供する工程と、インサイチューでの重合プロセスによって製品を形成する工程とを含むことができる。本方法によると、強化繊維、１つまたは複数の阻害剤、所望のモノマーもしくはオリゴマーを触媒の存在下で溶解混合もしくは溶融混合することができ、そしてポリマー製品をインサイチューでの重合プロセスにおける単一工程で形成できる。１つの実施形態では、インサイチューでの重合形成プロセスは、周囲温度もしくはほんの少し高い温度、例えば約７５℃未満の温度で実施できる。したがって、阻害剤の活性は、活性の消失をほとんどもしくは全く伴わずに、全形成プロセスを通して維持することができる。

【００４７】

インサイチューでの重合は、一部の実施形態においては、より好都合の加工処理粘度および混合度を達成できるために好ましい可能性がある。例えば、モノマー溶液は、重合さ

れた材料の溶液より低い粘度を示すことがある。したがって、反応性射出成形プロセスは、低粘度モノマー溶液を用いて利用できるが、ポリマーの粘度は同様に加工処理するには高すぎる。さらに、特定の実施形態ではインサイチューでの重合によってより良好な界面混合が発生する可能性があり、より良好な界面混合は順に最終成形構造体のより一貫性の機械的性能をもたらすことができる。

【００４８】

形成プロセスは、例えば押出成形プロセス、射出成形プロセスまたはブロー成形プロセスにおいて、ポリマー融液からポリマー構造体を形成する工程を含むことができる。本開示のためには、射出成形プロセスは、例えばラムインジェクターもしくは往復スクリューを用いて、圧力下で、ポリマー融液またはモノマーもしくはオリゴマー溶液が、成形かつ硬化される型内へ押し進められる任意の成形プロセスを含むことができる。ブロー成形プロセスは、ポリマーが流体を使用して成形され、次に硬化されて製品が形成される任意の方法を含むことができる。ブロー成形プロセスは、押出しブロー成形、射出ブロー成形、および延伸ブロー成形を所望に応じて含むことができる。押出成形法は、融液が圧力下で金型から押し出され、例えばフィルムもしくは繊維などの最終製品を形成するために硬化される方法を含む。

【００４９】

融液から構造体を形成する工程を含むプロセスを検討する場合は、ポリマー構造体は、既知の溶融プロセスより低エネルギーを利用して形成することができる。例えば、融液は、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル、ポリエチレンなどのポリマーのために必要な成形温度より約１００°Ｆ低い温度で加工処理することができる。例えば、本明細書に開示した複合ポリマー融液は、多数のガラス繊維／ポリプロピレン複合材料より約１００℃低い、約１７０℃～約１８０℃の温度で成形することができる。

【００５０】

１つの実施形態では、本明細書に開示したポリマー複合材料は、容器として、そして１つの特定の実施形態では、医薬品および栄養補助食品を含む生物活性材料などの環境に敏感な材料を保持および保護するために適切な容器として形成できる。本開示のために、用語「医薬品」は、例えば薬物およびその他の生物学的物質を含む、アメリカ合衆国政府によって規制された材料を包含すると本明細書では規定する。本開示のために、用語「栄養補助食品」は、例えばビタミン剤、健康補助食品などを含む、アメリカ合衆国政府によって必ずしも規制されない生物活性剤を指すと本明細書では規定する。

【００５１】

上記で考察したように、ポリマー複合材料は、１つまたは複数の要素が形成された構造体を横断する通過を防止できる１つまたは複数の阻害剤を含むことができる。したがって、ポリマー複合材料は、例えば酸化、紫外線エネルギーなどに起因する損傷からの容器の内容物の分解を防止するために役立つことができる。例えば、形成された構造体は、ポリマー複合材料中に天然抗酸化物質を含むことができ、酸素感受性医薬品もしくは栄養補助食品などの酸素感受性物質を保管して酸素分解から保護するために利用できる。

【００５２】

複合材料を組み込んでいる形成された構造体は、本明細書に開示した複合材料を１つまたは複数の層として含む積層体を含むことができる。例えば、積層構造体は、積層構造体内の所定の場所で特定の阻害剤を提供できるように、本明細書に記載した複合材料から形成された１つまたは複数の層を含むことができる。そのような実施形態は、例えば、阻害剤の制御された放出、例えば隣接層および複合材料のポリマー成分が経時的に分解するにつれて複合材料からの作用物質の持続放出を提供することができる。

【００５３】

また別の実施形態では、積層体は、その構造体の表面上、例えば容器（例、ボトルもしくは瓶）またはパッケージ（例、錠剤用のブリスターパック）の内面上に不透過性ポリマー層を含むことができる。１つの特定の実施形態では、ポリマー複合材料から形成された押出しフィルムは、そのような積層構造体の１つまたは複数の層を形成できる。例えば、

不透過性のＰＬＡをベースとするフィルムは、例えば、容器内に保管できる液体の漏出、分解もしくは蒸発を防止できるように、容器の内部層を形成できる。そのような実施形態は、特別には、アルコールをベースとする液体、例えばアルコールをベースとする抽出物もしくはチンキ剤の形態にある栄養補助食品の保管を検討する場合に特に有用な可能性がある。

【００５４】

別の実施形態では、ポリマー複合材料は、加工もしくは未加工作物を含む環境に敏感な農産物などの環境に敏感な物質を含有および保護するための構造体を形成することができる。例えば、ポリマー複合材料は、繊維もしくは糸を形成するために溶融加工することができ、繊維もしくは糸はさらに、最近収穫された農産物などの環境に敏感な物質もしくは任意で農産物から形成される二次製品を保護および／または含有するために利用できる織物、例えば織布、不織布、もしくは編織物を形成するために処理することができる。

【００５５】

１つの実施形態では、容器は、それらが保護および含有する農産物のために特別に設計することができる。例えば、容器は、特定の農産物を含有するように特別に設計することができ、その容器を形成するために使用される複合材料の繊維成分は同一農産物に由来してよい。例えば、ポリマー複合材料は、分解性ポリマーマトリックスおよび複数の綿繊維を含むことができる。この複合材料は、次に、綿を含有および／または保護するために特別に設計された、例えばバッグ、ラップなどの構造体を形成するために溶融加工することができる。同様に、ポリマー複合材料は、分解性の、ＰＬＡをベースとするポリマー成分および繊維性亜麻成分を含むことができ、そして複合材料は未加工亜麻もしくは加工亜麻いずれかを含有／保護するために特別に設計された容器を形成することができる。

【００５６】

そのような実施形態によると、たとえ容器が破損しても、例えば取扱いの経過において内容物が容器材料の一部分と接触した場合でも、例えば綿、亜麻などの内容物は、詳細には、何らかの事情で内容物と接触してしまった「汚染物質」が天然由来物質であり、繊維成分の場合には、容器の内容物と同一作物由来であるために、その後の加工処理のために依然として適切かつ安全である。

【００５７】

本明細書に開示した主題は、以下の実施例を参照してより明確に理解できる。

【実施例１】

【００５８】

［ポリラクチド／ケナフ複合材料の溶液ブレンド］

１００ｍＬの一つ口フラスコを炎下で乾燥させ、オーバーヘッドスター（ｏｖｅｒｈｅａｄ　ｓｔｉｒ）に接続した。このフラスコに、以下の表１に表示した様々な量の市販のＬ－ポリラクチドポリマー（Ｃａｒｇｉｌｌ　Ｄｏｗ　Ｐｏｌｙｍｅｒｓ　ＬＬＣから入手、分子量：約１９０，０００Ｍｎ）、および３０ｍＬのテトラヒドロフラン（ＴＨＦ）を加え、ポリマーペレットが完全に溶解するまで攪拌した。均質な溶液が形成された後、以下の表１に示したように、別個のランにおいて様々な量のケナフ繊維（２～５ｍｍ）をこの溶液に加えた。さらに、繊維添加を含まない対照サンプルを形成した。各々の場合に、繊維の添加に続いて、ＰＬＡ／ケナフ混合液を２時間にわたり攪拌した。生じた溶液をＴｅｆｌｏｎ製の型に加え、ベンチトップ上で一晩乾燥させた後、１時間にわたり４０℃の真空下で乾燥させた。

【００５９】

複合材料の引張強さは、Ｉｎｓｔｒｏｎ機器１１２５型を用いて室温で測定した。６．５ｃｍ×２．５ｃｍ×０．２ｃｍの仕様を備える引張試験片を使用した。各読み取りのために３片のサンプルを使用し、平均値を出した。全実験について、２０ｍｍ／分のクロスヘッド速度を使用した。

【００６０】

【表１】

サンプル番号	ポリマーの添加量(g)	繊維の添加量(g)	繊維の重量%	引張応力(MPa)
1	10	0	0	352.0
2	10	1.12	10	410.96
3	10	2.5	20	761.99
4	10	4.28	30	575.75
5	7.0	7.0	50	340.39

【実施例２】

【００６１】

［ポリラクチド／ケナフ複合材料の溶融混合］

様々な量のポリラクチドポリマーは、以下の表２に示したように、Ｔｈｅｒｍｏ Ｈａｋｅ Ｍｉｎｉ Ｌａｂツイン押出成形機を用いて、様々な量のケナフ繊維（２～５ｍｍ）と溶融混合した。混合温度は１７０℃であり、混合は５分間にわたり実施した。さらに、繊維を含まない対照サンプルを形成した。生じた融液は、Ｃａｒｖｅｒ Ｌａｂｏｒａｔｏｒｙプレスを用いて圧縮成形した。詳細には、サンプルは１７０℃で１分間にわたり１，０００ポンド力下の２枚のＴｅｆｌｏｎ製シート間で圧縮成形した。試験片は、次に室温まで冷却した。

【００６２】

複合材料の引張強さを上記の実施例１について記載したように測定した。結果は、以下の表２に示されている。

【００６３】

【表２】

サンプル番号	ポリマーの添加量(g)	繊維の添加量(g)	繊維の重量%	引張応力(MPa)
1	10	0	0	624.81
2	10	0.52	5	712.12
3	10	1.12	10	841.53
4	10	2.5	20	881.23
5	10	4.28	30	901.99
6	7	7	50	777.57

【実施例３】

【００６４】

［ポリラクチド／ＰＨＡ／ケナフ複合材料の溶融ブレンド］

様々な量のポリラクチドポリマーは、以下の表３に示したように、Ｔｈｅｒｍｏ Ｈａｋｅ Ｍｉｎｉ Ｌａｂツイン押出成形機を用いて、市販で入手できるＰＨＡポリマー（オハイオ州シンシナティに所在するＰｒｏｃｔｅｒ ＆ Ｇａｍｂｌｅ社から入手できるＮｏｄａｘ（商標））およびケナフ繊維（２～５ｍｍ）とブレンドした。混合温度は１７０℃であり、混合は５分間にわたり実施した。さらに、繊維を含まない対照サンプルを形成した。生じた融液は、Ｃａｒｖｅｒ Ｌａｂｏｒａｔｏｒｙプレスを用いて圧縮成形した。詳細には、サンプルは１７０℃で１分間にわたり１，０００ポンド力下で２枚のＴｅｆｌｏｎ製シート間で圧縮成形した。試験片は、次にベンチトップ上で室温へ冷却した。

【００６５】

複合材料の引張強さを上記の実施例１について記載したように測定した。結果は、以下の表３に示されている。

【００６６】

【表３】

サンプル番号	PLA の添加量 (g)	PHA の添加量 (g)	繊維の添加量 (g)	繊維の重量%	引張応力 (MPa)
1	10	1	0	0	650.13
2	10	1	0.55	5	682.8
3	10	1	1.1	10	980.2
4	7	0.7	3.3	30	985.64

【００６７】

表から明らかなように、融液形成および溶液形成された両方の複合材料について、ケナフ繊維負荷レベルの増加は約３０％の負荷レベルまでは引張係数を増強させた。溶融ブレンドおよび溶液ブレンドの両方について、ケナフ装填レベルがより高くなると、引張計数値は低下し始めた。

【実施例４】

【００６８】

数種の代表的複合材料を形成し、以下のような様々な特性について試験した。

【００６９】

［耐湿性および耐アルコール性］

ケナフ／ＰＬＡ複合材料（５～３０重量％のケナフを含有する）の薄膜を２カ月間の期間にわたって無水アルコール中および１０重量％のアルコール水溶液に浸漬させた。減量または膨張は観察されなかった。

【００７０】

［加工性および成形性］

ＰＬＡ／ケナフ複合材料の加工性および成形性に関する初期検査は実施されている。ＰＬＡ／ケナフ複合材料（３０重量％のケナフ）は、良好な構造的完全性を備えて様々な形状に成形することに成功した（図１）。

【００７１】

［天然繊維／ＰＬＡ複合材料の熱安定性］

熱重量測定分析（ＴＧＡ）を使用してケナフ／ＰＬＡ／ＰＨＡおよびケナフ／ＰＬＡ複合材料の熱安定性を決定し、結果は図２に示されている。ケナフ、ＰＬＡ、ＰＨＡおよび複合材料は、N_2下の２０℃／分の加熱速度で４００℃へ動的に加熱し、熱安定性を観察した。ケナフ天然繊維およびＰＬＡ複合材料は、各々２６０℃および３００℃で分解し始めた。ＰＬＡ／ＰＨＡ（ＰＬＡに基づくと、ＰＨＡは１０重量％）は、ＰＬＡ単独に比較してはるかに高い熱劣化を示した。しかしＰＬＡ／ケナフ複合材料は、驚くべきことにケナフ繊維単独の場合と比較してはるかに高い熱安定性を示した。これは、ＰＬＡポリマーによる良好な繊維被覆の優れた指標である。繊維含量の増加は、高温ではより高い減量をもたらした。

【実施例５】

【００７２】

綿およびケナフ繊維をＰＬＡおよび任意の天然抗酸化性添加物（ターメリック）とブレンドした。このようにして形成したブレンドを利用して、次にブロー成形容器を作製した。

【００７３】

以下の表４は、このプロセスによって調製および成形した様々な材料ブレンドを列挙している。全材料は、Ｎａｔｕｒｅ　Ｗｏｒｋｓ（登録商標）ＬＬＣ．から入手したバージンＰＬＡ（製品番号７０３２Ｄ）を用いて調製した。全添加量は、他に明記しない限り、重量％として表示されている。

【００７４】

【表４】

ブレンド番号	繊維	抗酸化物質
1	3%の綿	0.1%のターメリック
2	3%の綿	0.1%のターメリック
3	3%のケナフ	0.1%のターメリック
4	3%の綿	0.1%のターメリック
5	3%の綿	0
6	3%のケナフ	0
7	3%の綿	0

【００７５】
番号１、番号２、および番号５のブレンドを調製するために、綿を最初に浅いパンの中に入れ、その後ＰＬＡをツインスクリューに通して綿上へ流した。ＰＬＡとの３％ブレンドを作り出すために必要な綿の容量は、材料のバルク密度における差に起因して、ＰＬＡ材料の容積より有意に大きかった。綿およびターメリック（存在する場合）はＰＬＡ中に手作業で混合し、冷却させ、４ｍｍのスクリーンに通して低温粉砕した。材料をバージンＰＬＡと一緒に回転させ、ツインスクリューのフード内に置いた。材料は手作業でフィーダー内に押し進めた。
【００７６】
ブレンド番号４およびブレンド番号７の材料の綿／ＰＬＡブレンドは、ＰＬＡ／ケナフブレンドについて実施例１で記載したように、溶液ブレンドプロセスによって調製した。次にブレンドを手作業によりフィーダー内へ送り込んだ。
【００７７】
番号３および番号６のブレンドを調製するために、ケナフを数回切り刻み、長さが約１／４インチの繊維を入手した。材料を次にメッシュスクリーンに通して濾過した。濾過後に残留している材料を切り刻み、適切な量の繊維が入手されるまで再度濾過した。ケナフ繊維およびバージンＰＬＡ（および番号３のブレンドのためにはターメリック）をＭｙｌａｒバッグへの同時添加により混合し、その後に手作業による振とうを実施した。綿ブレンドと同様に、材料はツインスクリュー内へ手作業によって供給した。
【００７８】
各ブレンドについて、樹脂を１００℃で一晩乾燥させて、水分レベルを５０ｒｐｍ未満に減少させた。供給材料は、押出し前に小さな粒径に粉砕した。
【００７９】
［プリフォームの押出し］
以下の表５に記載するように、プリフォームを最適化するために、射出成形条件を確立した。プリフォームは、Ａｒｂｕｒｇ　３２０Ｍ単位キャビティ型射出成形機上で成形した。表５は、ブレンドの繊維のタイプに依存して変化したツインスクリュー押出しプロセスのための温度設定点を列挙している。押出し後、樹脂は、ケナフブレンドがより暗色に見える茶色であった。これらの繊維は、製造されたストランドおよびペレット内で見ることができた。どちらの樹脂タイプも脆性であった。
【００８０】

【表５】

繊維のタイプ	綿ブレンド	ケナフブレンド
ゾーン温度（℃）		
ゾーン１	160	160
ゾーン２	170	170
ゾーン３	180	180
ゾーン４	190	190
ゾーン５	200	200
スクリュー速度(rpm)	125	125

【００８１】
相違する各ブレンドを成形するために使用した条件は、以下の表６に詳細に記載されている。表から明らかなように、条件は様々なブレンド間で変更された。ケナフを含むブレンドのプリフォームは、綿を用いたプリフォームより暗色であった。ターメリックを含有するプリフォームはさらにより暗色であり、黄色の色合いを有した。
【００８２】

【表６】

ブレンド番号	1	2	3	4	5	6	7
相対湿度	29%	29%	29%	29%	29%	29%	29%
露点(°F)	36.4	36.4	36.4	36.4	36.4	36.4	36.4
成形温度(°F)	65	65	90	75	75	90	75
周囲温度(°F)	70.5	70.5	70.5	70.5	70.5	70.5	70.5
バレル温度							
供給温度（℃）	191	191	179	191	191	182	191
ゾーン２温度（℃）	197	197	183	190	197	185	191
ゾーン３温度（℃）	193	193	185	196	193	188	196
ゾーン４温度（℃）	193	193	189	196	193	188	196
ノズル温度（℃）	190	190	191	195	190	191	192
射出							
射出圧 1(bar)	800	800	900	900	800	900	900
射出時間（秒）	2.2	2.2	1.8	2.3	2.2	1.8	2.2
第１回射出速度(ccm/秒)	12.0	12.0	12.0	12.0	12.0	12.0	12.0
第２回射出速度(ccm/秒)	8.0	8.0	10.0	8.0	8.0	10.0	8.0
保持圧							
転換点(ccm)	9.0	9.0	6.0	9.0	9.0	6.0	9.0
第１回保持圧(bar)	100.0	100.0	100.0	350.0	100.0	100.0	350.0
第２回保持圧(bar)	250.0	250.0	200.0	250.0	250.0	200.0	250.0
第３回保持圧(bar)	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0
第１回保持圧時間(秒)	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
第２回保持圧時間(秒)	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
第３回保持圧時間(秒)	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
冷却保持時間(秒)	10.0	10.0	12.0	10.0	10.0	12.0	10.0
容量							
周囲速度(mL/分)	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0	15.0
背圧(bar)	25.0	25.0	25.0	25.0	25.0	25.0	25.0
投与用量(ccm)	25.0	25.0	25.0	25.0	25.0	25.0	25.0
平均投与時間(秒)	2.0	2.0	2.2	3.0	2.0	2.2	3.2
クッション(ccm)	9.0	9.0	5.9	8.9	9.0	5.9	8.9
調整データ							
サイクル時間(秒)	23.2	23.5	25.4	22.0	23.5	25.4	23.5

【００８３】

［ブロー成形］

上述したブレンドから成形したプリフォームは、Ｓｉｄｅｌ　ＳＢＯ機を用いて１０オンスの単位キャビティ型内へブローした。

【００８４】

各サンプルのためのブロー成形プロセスについては、以下の表７に詳細に記載する。個々のランプ設定は、エンドキャップおよび本体内では少ない熱、そして上部では高い熱を提供するように調整した。ブレンド番号１から形成されたボトルの底部は、氷浴中でさらに急冷した。図３は、数種の入手したブロー成形ボトルを例示している。

【００８５】

【表７】

ブレンド番号	1	2	3	4	5	6	7
速度(bph)	600	600	600	600	600	600	600
全オーブンランプ設定	40	45	45	30	45	45	40
ゾーン６	35	0	0	0	0	0	0
ゾーン５	35	30	30	35	30	30	30
ゾーン４	50	40	40	35	40	40	40
ゾーン３	50	40	40	35	40	40	40
ゾーン２	50	50	50	50	50	50	50
ゾーン１	100	100	100	100	100	100	100
延伸速度	0.9	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
プリフォーム温度(℃)	97	92	90	68	89	89	89
ﾌﾞﾛｰのﾀｲﾐﾝｸﾞ/圧力							
サイクル時間	3.39	3.35	3.35	3.35	3.35	3.35	3.35
低ブロー位置(mm)	155	173	173	173	173	173	173
低圧(bar)	7	6.5	6.5	6.5	6.5	6.5	6.5
高ブロー位置(mm)	195	210	210	210	210	210	210
高ブロー圧(bar)	40	40	40	40	40	40	40
プリブローフロー(bar)	3	0	0	3	0	0	3
本体成形温度(° F)	40	40	40	40	40	40	40
底部成形温度(° F)	40	40	40	40	40	40	40
上部重量(g)	7.7	8.1	8.4	8.1	8.2	8.2	8.1
パネル重量(g)	6.7	6.3	6	6	6.4	6.4	6
底部重量(g)	6.2	4.8	5.1	5.2	4.9	4.9	5.2

【００８６】

［ボトル試験］

形成後、ボトルは、Ｐｅｒｋｉｎ－Ｅｌｍｅｒ　Ｌａｍｂｄａ　９　ＵＶ／Ｖｉｓ／ＮＩＲ分光光度計を用いて３００～４００ｎｍのＵＶ透過について分析した。Ｂｅｅｒ－Ｌａｍｂｅｒｔの法則を用いて、ＰＥＴボトルについての一般的肉厚である厚さ０．０１２’’に、データを補正した。３セットのＰＬＡ容器をＵＶ透過について評価した。ブレンド番号２、ブレンド番号３およびブレンド番号６。結果は、表８および図４に示した。明らかなように、綿繊維およびターメリックの両方を含むブレンド番号２についてのＵＶ透過は、試験した３セットのうち、最低の透過速度を有した。ケナフ繊維およびターメリックの両方を含むブレンド番号３から形成されたボトルは、ケナフ繊維を含むがターメリックを含まないブレンド番号６から形成されたボトルより低いＵＶ透過を示したが、これはターメリックが容器の側壁を通してＵＶ光線が通過するのを防止することを示唆している。ＵＶ範囲を超えて、綿含有およびケナフ含有ブレンド間の差は、はるかに低い透過特性を示す綿ブレンドを用いた場合に大きくなることが見出された。

【００８７】

【表８】

波長(nm)	ブレンド番号２ (透過率(%))	ブレンド番号３ (透過率(%))	ブレンド番号６ (透過率(%))
300	0.86	3.78	4.94
310	1.03	4.31	5.80
320	1.08	4.76	6.71
330	1.24	5.23	7.60
340	1.35	5.66	8.51
350	1.52	6.15	9.66
360	1.76	7.03	10.90
370	1.96	7.62	11.92
380	1.92	8.12	12.89
390	2.14	8.29	13.92
400	2.06	8.47	14.53

【００８８】

［水蒸気の透過および吸着］

３本のボトルに室温の蒸留水を充填して計量した。次にボトルを７２°Ｆおよび５０％相対湿度の一定温度環境内に置き、５週間にわたり１週間に１回計量した。これらのボトルは、ボトルに水とアルコールの８０／２０混合液を充填した以外は上記と同様の様式でも試験した。これらのボトルもまた、５週間にわたり１週間に１回計量した。結果は、以下の表９に示されている。

【００８９】

試験した２種のブレンドは、極めて類似する水およびアルコール／水蒸気透過速度を示した。透過についての試験から５週間後、ボトルを空にし、容器側壁中に吸収された水の量を決定するために計量した。これらの容器は、次に３週間を通して１週間に１回計量し、飽和した側壁からの水および水／アルコールの損失を決定した。結果は、水より水／アルコールブレンドの吸収率の方がわずかに高いことを示している。

【００９０】

【表９】

ブレンド番号	透過(平均g/日)	収着(g)	脱着(g/日)
水蒸気の透過および収着			
2	0.04	0.15	0.01
3	0.04	0.18	0.02
80/20の水/アルコール蒸気の透過および収着			
2	0.04	0.24	0.02
3	0.03	0.16	0.01

【００９１】

ボトルは、ＡＳＴＭ法Ｆ１２４９を用いて水蒸気透過についても試験した。この方法のために、１本の空のボトルを１００°Ｆおよび１００％相対湿度でＭｏｃｏｎ装置を用いて試験し、結果を海面気圧へ補正した。結果は、以下の表１０に示されている。

【００９２】

【表１０】

ブレンド番号	結果(g/日)
2	0.16
3	0.16

【００９３】

［酸素の透過］

ボトルをO_2透過速度について試験した。ボトルは、容器の内側上に４２～４８％の相対湿度雰囲気中においてエポキシを備えるＭｏｃｏｎステーション上に配置した。容器の外側は、７２°Ｆ、５０％相対湿度の環境に暴露させた。以下の表では、試験した各ブレンドについての平衡化された酸素透過を示している。参照のために、ＰＥＴ容器のための透過速度は、このタイプの容器については０．０４０～０．０５０ｃｃ／ｐｋｇ／日の範囲内になる。

【００９４】

【表１１】

ブレンド番号	結果(cc/pkg/日)
2	0.066
3	0.065
6	0.066

【００９５】

酸素透過は、さらにＭｏｃｏｎヘッドスペース法を用いて評価した。本方法では、ゴム隔膜を用いて固定した金属製ワッシャを容器上塗りに適用することによって、各サンプル番号タイプの５本のボトルを長期酸素透過試験のために調製した。約５０ｍＬの水道水を各容器に加え、次にボトルをパージシステムへ固定した。これらのボトルは次に９９．９９９％の窒素でフラッシュ洗浄し、内部酸素濃度を２００ｐｐｍ未満へ減少させた。ボトルをパージしたら、各容器から小さなサンプルを引き出し、Ｍｏｃｏｎ　ＰＡＣ　ＣＨＥＣＫ　４５０酸素分析装置上で分析することによって、初期酸素濃度を決定した。次にボトルを７２°Ｆおよび４５～５０％相対湿度の制御環境内に保管した。ボトルをチャンバーから取り出し、Ｍｏｃｏｎ　ＰＡＣ　Ｃｈｅｃｋ　４５０を用いて定期的にサンプリングして経時的な酸素侵入を決定した。現在までに収集して平均した結果は、以下の表１２、および図５に示されている。

【００９６】

【表１２】

ブレンド番号	第 14 日	第 21 日	第 30 日
3	8.6	12.7	22.8
7	10.3	15.3	23.4

【００９７】

例示する目的で提供された上記の実施例は、本開示の範囲を限定するものと見なすべきではないことが理解される。上記では少数の代表的な実施形態についてのみ詳述してきたが、当業者は、主題の新規な教示および長所から実質的に逸脱することなく、代表的な実

施形態において多数の修飾が可能であることを容易に理解する。したがって、すべてのそのような改変は、本開示の範囲内に含まれることは企図されている。さらに、一部の実施形態の長所のすべてを達成するのではない多数の実施形態を着想できることは認識されているが、それでも特定の長所の不在は、そのような実施形態が本開示の範囲外にあることを必ずしも意味しないと見なすべきである。

【図面の簡単な説明】

【００９８】

【図１】本明細書に開示した複合材料から形成された代表的な成形製品を示す。

【図２】本明細書に開示した複合物を形成する際に使用できる代表的な天然繊維の熱重量測定分析（ＴＧＡ）ならびに数種の代表的なポリマー複合材料のＴＧＡを示す。

【図３】実施例のセクションに記載したように形成した数種の代表的な容器を示す。

【図４】実施例のセクションに記載したように形成した容器のエネルギー移動特性を示したグラフである。

【図５】実施例のセクションに記載したように形成した容器の経時的な酸素侵入を示したグラフである。

【図１】

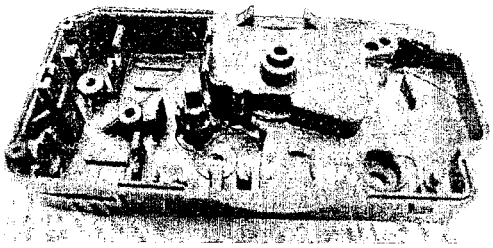


Figure 1

【図３】

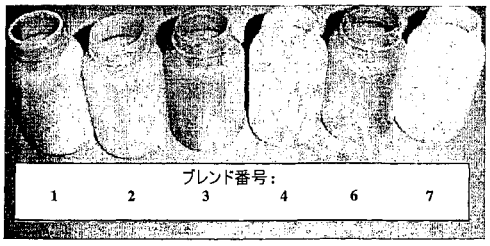


Figure 3

【図２】

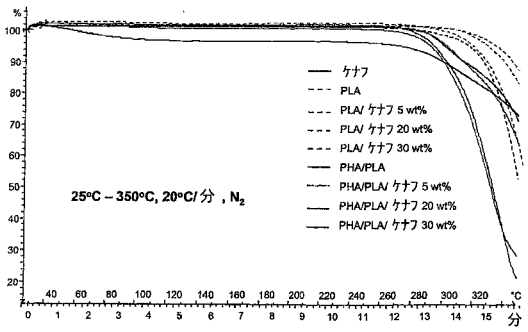


Figure 2

【図４】

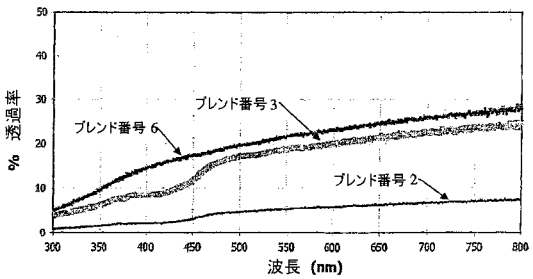


Figure 4

【図５】

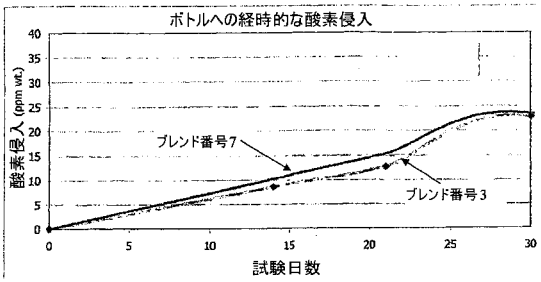

ボトルへの経時的な酸素侵入
酸素侵入 (ppm wt.)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
5
10
15
20
25
30
試験日数
ブレンド番号7
ブレンド番号3

Figure 5

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/US06/41170

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC: **B29D 22/00**(2006.01),**23/00**(2006.01);**B32B 1/08**(2006.01),**37/00**(2006.01),**33/00**(2006.01);**B29C 63/00**(2006.01);**D01F 8/00**(2006.01),**1/08**(2006.01);**D01D 5/24**(2006.01)

USPC: 428/35.7,35.2,35.6,36.1,36.3,36.4;264/171.1,171.26,172.11
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)
U.S. : 428/35.7,35.2,35.6,36.1,36.3,36.4; 264/171.1,171.26,172.11

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)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 5,817,728 A (HIGUCHI et al) 06 October 1998 (06.10.1998), abstract, column 2, lines 55-67, column 17, lines 38-67, column 19, lines 18-48.	1-33

☐ 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 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
22 January 2007 (22.01.2007)

Date of mailing of the international search report
13 FEB 2007

Name and mailing address of the ISA/US
Mail Stop PCT, Attn: ISA/US
Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, Virginia 22313-1450
Facsimile No. (571) 273-3201

Authorized officer
Michael C. Miggins
Telephone No. 571-272-1494

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

フロントページの続き

(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,LV,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,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KM,KN,KP,KR,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,LY,MA,MD,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PG,PH,PL,PT,RO,RS,RU,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,SV,SY,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,ZA,ZM,ZW

（特許庁注：以下のものは登録商標）
１．ＴＥＦＬＯＮ

(74)代理人 100118407
弁理士 吉田 尚美
(74)代理人 100125380
弁理士 中村 綾子
(74)代理人 100130960
弁理士 岡本 正之
(74)代理人 100125036
弁理士 深川 英里
(74)代理人 100142996
弁理士 森本 聡二
(72)発明者 ロバーツ，ダニー・エイチ
アメリカ合衆国サウスカロライナ州２９６３１，クレムソン，セッジフィールド ２０６
(72)発明者 ギャンジェミ，ジョゼフ・ディー
アメリカ合衆国サウスカロライナ州２９６７２，セネカ，マリナ・ポイント・コート ８０９
(72)発明者 スミス，デニス・ダブリュー，ジュニア
アメリカ合衆国サウスカロライナ州２９６７２，セネカ，クレア・コート １７０６

Ｆターム(参考) 3E033 AA01 BA13 BA30 BB02 CA03 CA09 CA11 CA16 CA18 DA03
FA02 FA03 GA02
4F072 AA08 AB03 AB14 AB17 AD37 AE10 AK14 AL01
4J200 AA06 BA14 DA03 EA04