

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6822956号  
(P6822956)

(45) 発行日 令和3年1月27日(2021.1.27)

(24) 登録日 令和3年1月12日(2021.1.12)

(51) Int.Cl.	F 1
CO8F 2/44	(2006.01)
CO8L 25/06	(2006.01)
CO8L 67/06	(2006.01)
CO8L 63/10	(2006.01)
CO8L 75/14	(2006.01)
CO8F	2/44
CO8L	25/06
CO8L	67/06
CO8L	63/10
CO8L	75/14

請求項の数 16 (全 23 頁)

(21) 出願番号	特願2017-530261 (P2017-530261)
(86) (22) 出願日	平成27年11月13日 (2015.11.13)
(65) 公表番号	特表2017-538011 (P2017-538011A)
(43) 公表日	平成29年12月21日 (2017.12.21)
(86) 國際出願番号	PCT/US2015/060495
(87) 國際公開番号	W02016/094026
(87) 國際公開日	平成28年6月16日 (2016.6.16)
審査請求日	平成30年11月12日 (2018.11.12)
(31) 優先権主張番号	62/089,437
(32) 優先日	平成26年12月9日 (2014.12.9)
(33) 優先権主張国・地域又は機関	米国(US)

(73) 特許権者	506347528 ルブリゾル アドバンスド マテリアルズ , インコーポレイテッド アメリカ合衆国 オハイオ 44141- 3247, クリーブランド, ブレック スピル ロード 9911
(74) 代理人	100078282 弁理士 山本 秀策
(74) 代理人	100113413 弁理士 森下 夏樹

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】不飽和熱硬化性ポリエステル組成物における低収縮添加剤の相分離を防止するための添加剤

## (57) 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

不飽和樹脂成型組成物であって、  
添加剤と、

50,000よりも高い数平均分子量を有し、および前記組成物中に分散された相として存在すると特徴付けられる、低収縮用の付加重合ポリマー(D)であって、ここで、前記付加重合ポリマー(D)が、ポリスチレン、スチレン-(メタ)アクリル酸エステル)コポリマー、スチレン-(共役ジエン)ブロックコポリマー、水素化スチレン-(共役ジエン)ブロックコポリマー、およびスチレンを含有しない(メタ)アクリレートポリマーからなる群から選択される、低収縮用の付加重合ポリマー(D)と、

不飽和ポリエステル、ビニルエステル樹脂、およびビニルウレタン樹脂からなる群から選択されるラジカル共重合性不飽和樹脂と、

重合性不飽和モノマーと  
を含み、

前記添加剤が、式：



の官能化ポリエーテルと、分子当たり少なくとも3個の第1級および/または第2級アミン基を有し100から100,000の数平均分子量を有するアミン系多塩基種との反応生成物を含み、前記R<sub>1</sub> - (O C H<sub>2</sub>)<sub>x</sub> - (O C H<sub>2</sub> C H<sub>2</sub>)<sub>y</sub> - W - - C O O H : アミン系多塩基種の重量比が10:1から60:1であり、

10

20

式中、

$R_1$  は、環状、分枝状、または非分枝状のアルキル；アリール；アルキルアリールまたはアリールアルキルであってよい  $C_1 \sim C_{3,6}$  ヒドロカルビル基であり、

は、3または4であり、

$x$  は、10～60であり、

$y$  は、0～10であり、

- (OCH<sub>2</sub>) および - (OCH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>) 繰り返し単位は、ランダムまたはプロック状などの任意の順序であってよく、 $y$  は  $x$  未満でなければならず、

W は、1～4個の炭素原子のヒドロカルビレンを含んでいてもよい、エステル、イミド、またはアミド連結基であり、

は、6～10個の炭素原子のアリール基であり、前記アリール基は、1～4個の炭素原子の直鎖状もしくは分枝状アルキル鎖、ハロゲン化物、および / または - NO<sub>2</sub> を含む置換基（単数または複数）を有していてもよい、

不飽和樹脂成型組成物。

10

【請求項2】

W は、1個の炭素原子のヒドロカルビレンを含む、エステル、イミド、またはアミド連結基である、請求項1に記載の不飽和樹脂組成物。

【請求項3】

前記  $R_1$  - (OCH<sub>2</sub>)<sub>x</sub> - (OCH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>)<sub>y</sub> - W - - COOH 対前記アミン系多塩基種の前記重量比が、15：1から50：1である、請求項1に記載の不飽和樹脂組成物。

20

【請求項4】

前記アミン系多塩基種が、140から75,000の数平均分子量を有する、請求項1から3のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

【請求項5】

$x$  が10から40である、請求項1から4のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

【請求項6】

W がエステル連結を含む、請求項1から5のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

【請求項7】

W がイミド連結を含む、請求項1から5のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

30

【請求項8】

前記アミン系多塩基種が、140から20,000の数平均分子量を有する、請求項1から7のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

【請求項9】

前記ラジカル共重合性不飽和樹脂が、不飽和ポリエステルまたはビニルエステル樹脂である、請求項1から8のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

【請求項10】

前記低収縮用の付加重合ポリマー (D) が、スチレンホモポリマー、またはスチレンモノマーから誘導された少なくとも33wt%の繰り返し単位を有するコポリマーである、請求項1から9のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

40

【請求項11】

前記アミン系多塩基種が、ポリエチレンイミンである、請求項1から10のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

【請求項12】

ラジカル共重合性不飽和樹脂：重合性不飽和モノマーの重量比が、30～90：10～70である、請求項1から11のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

【請求項13】

前記組成物が、前記不飽和樹脂成型組成物の全重量に対して、少なくとも3wt%の細断された、織られた、または巻かれた纖維をさらに含む、請求項1から12のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

50

## 【請求項 14】

請求項 1 から 13 のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物を含む、前記不飽和モノマーが重合され前記不飽和樹脂が架橋された、成型後の成型物品。

## 【請求項 15】

前記添加剤の量が、前記不飽和樹脂および不飽和モノマーの総量 100 重量部に対して 0.5 から 5 重量部の範囲内にある、請求項 1 から 13 のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

## 【請求項 16】

前記添加剤が、式



10

の官能化ポリエーテルとアミン系多塩基種との反応生成物であり、モノもしくはポリカルボン酸、鉱酸、リンおよびポリオキソメタレートを含有する酸または強酸の群から選択される酸種との塩形成反応によってさらに官能化される 1 つまたは複数の未反応のアミノ基を含む、請求項 1 から 13 および 15 のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

不飽和ポリエステルを反応性モノマーに溶かした溶液からの、低収縮添加剤 (low profile additive) の相分離を防止する、本発明の方法および添加剤。典型的には、低収縮添加剤は、反応性モノマー (単数または複数) 中に分散されたポリマー種である。本開示の添加剤は、アミン系多塩基種と、1 つの未反応のカルボン酸を含有するアリール基で官能化されたポリエーテルとの、反応生成物である。

20

## 【背景技術】

## 【0002】

U S 2 0 0 5 / 0 1 2 0 9 1 1 は、カルボン酸基を有する芳香族基で官能化されたポリエーテルについて教示している。この参考文献の分子は、分散剤として使用される。

## 【0003】

U S 2 0 0 5 / 2 7 7 7 4 5 A 1 は、耐衝撃性の低収縮性 (low shrinkage) 強化成型組成物について論じている。

## 【0004】

30

U S 6 , 8 1 5 , 4 9 9 は、相溶化剤、ラジカル共重合性の不飽和樹脂組成物、成型材料、および成型物品について論じている。

不飽和モノマーと架橋し、任意選択で纖維または微粒子により強化された不飽和樹脂成型組成物からの、低収縮添加剤の相分離を防止するための、追加の添加剤を開発できることが望ましい。

## 【先行技術文献】

## 【特許文献】

## 【0005】

【特許文献 1】米国特許出願公開第 2 0 0 5 / 0 1 2 0 9 1 1 号明細書

【特許文献 2】米国特許出願公開第 2 0 0 5 / 2 7 7 7 4 5 A 1 号明細書

40

【特許文献 3】米国特許第 6 , 8 1 5 , 4 9 9 号明細書

## 【発明の概要】

## 【課題を解決するための手段】

## 【0006】

添加剤は、モノ求核性ポリエーテルアミンおよび / またはポリエーテルアルコールと、マルチカルボキシル芳香族酸 (multi-carboxylic aromatic acid) 、その無水物、エステル、または酸塩化物誘導体とを反応させて、モノカルボン酸で官能化されたポリエーテル成分を形成し、その後、前記モノカルボン酸官能化ポリエーテル成分と、P E I のようなマルチアミンポリマーなどのマルチアミン成分とを反応させることによって調製した。

モノ求核性ポリエーテルアミンおよび / またはポリエーテルアルコールと、マルチカルボ

50

キシリ芳香族種の1個または2個の酸基との間の反応は、ポリエーテルとアリール基との間にエステル、アミド、またはイミド連結を形成する。望ましくは、マルチカルボキシリ芳香族酸のアリール基は、環に直接結合したまたは1、2、もしくは3個の炭素原子のスペーサー基を介して結合した2から3個のカルボン酸基を有する。任意選択で、アリール基は、C<sub>1</sub>~<sub>4</sub>アルキル基、ハロゲン化物基（単数または複数）、およびNO<sub>2</sub>基（単数または複数）でさらに置換されていてよい。ポリエーテルは、エチレンオキシド、プロピレンオキシド、またはブチレンオキシドを含んでいてよいが、好ましくは、エチレンオキシドよりも多く組み合わされたプロピレンおよびブチレンオキシドの繰り返し単位を有する。

## 【0007】

10

この添加剤は、混合SMC樹脂配合物などの非水性不飽和樹脂および不飽和モノマー媒体中で、良好な抗分離特性を有することが示されている。それらはスチレンモノマーに分散させた高MWポリスチレンまたはポリオレフィン樹脂などの、任意選択で不飽和モノマーに分散させた付加重合熱可塑性樹脂またはエラストマーの分散体から選択される、低収縮添加剤の第2の相から、不飽和モノマーを用いて溶解しまたは膨潤した不飽和樹脂の相が、相分離するのを防止する。

## 【0008】

低収縮添加剤は、SMCおよびBMCなどの不飽和モノマーの重合を介して架橋させた不飽和樹脂からの成型物品における収縮関連の変形、表面の不均一性、および残留製造応力を最小限に抑えるので望ましい。低収縮添加剤は、より精密な寸法、より少ない残留応力、およびより少ない表面不均一性を容易にし、成型された不飽和ポリエーテルは、精密な寸法公差および滑らかな表面品質を必要とするその他の技術と競合したものになる。しかし低収縮添加剤は、成型中に不飽和樹脂および不飽和モノマー全体を通してナノメートルまたはマイクロメートルのサイズの相として均等に分散された場合にのみ、有効に機能する。低収縮添加剤分散体は、十分に分散された低収縮添加剤を含む成型樹脂を調製して、実際の成型の前に数時間もしくは数日間貯蔵することができるよう、および/または成型設備が利用できない場合もしくは部品を成型する前に修理が必要な場合には数時間もしくは数日間保持することができるよう、数時間または数日間にわたって相移行に抗して成型樹脂中で安定化させることが望ましい。

20

## 【0009】

30

低収縮添加剤を使用する充填材および纖維強化成型組成物は、低収縮添加剤相が、実際の成型および硬化の前に不飽和樹脂相から相分離しようとする場合に、問題を提起する。纖維および充填材の物理的完全性または寸法は、配向した纖維または充填材が存在する場合、不飽和樹脂相への、相分離した低収縮添加剤の再混合を妨げる可能性がある。

## 【発明を実施するための形態】

## 【0010】

本発明は、不飽和モノマーに分散された不飽和樹脂の組成物、低収縮添加剤、不飽和樹脂および不飽和モノマー用の硬化剤、不飽和樹脂からの低収縮添加剤の相分離を防止する添加剤、ならびに成型または特定の最終使用を容易にする組成物用の様々な任意選択の添加剤を提供する。

40

## 【0011】

簡略化のため本発明者らは、これらの添加剤が、ハンドレイアップ成型、ダイ成型、フィラメントワインディング、射出成型、および不飽和モノマーと架橋し、および成型組成物として使用される不飽和樹脂のその他の多種多様な成型操作において、均等に機能することを理解しつつ、SMC（シート成型化合物）中の低収縮添加剤の機能について説明することにする。

## 【0012】

低収縮添加剤（LPA）は、シート成型化合物（SMC）樹脂配合物の部分として使用され、その役割は、成型されるときの不飽和ポリエーテル樹脂（UPE）が収縮するのを最小限に抑えることである。したがってLPAは、結果としてSMCのシートを生成する

50

のに使用される樹脂混合物（主に、UPE樹脂）のその他の成分とブレンドされる。しかしSMCシートを作製するプロセスは、時間がかかる可能性があり、樹脂混合物は、ブレンドされた後、それを全て使用することが可能になる前に放置されることをしばしば意味する。これは、LPAとUPEとのブレンド混合物が安定なブレンドではなく、および時間と共に分離し始める（これは比較例データに示されるように、ブレンド後30分程度に早くなる可能性がある）、潜在的な相分離の問題が生ずる場所である。

#### 【0013】

したがって、分離をより長く防止することができるほどより良好になるということを理解しつつ、LPAおよびUPE樹脂が分離しないような抗分離添加剤が望ましい。このことは、より長い潜在的加工時間窓および柔軟性をSMC生産者に与えるので、例えば樹脂混合物をより大きいバッチサイズでブレンドすることができ、したがってコストが削減される。

#### 【0014】

この文書で概説される生成物（単数または複数）は、LPAおよび不飽和樹脂を不飽和モノマーに混合した混合物に、特にLPA樹脂が、スチレンモノマーに分散されたポリスチレンであるときに有効な抗分離添加剤として作用する。

#### 【0015】

相分離を防止する添加剤は、官能化ポリエーテルとアミン系多塩基種との反応生成物である。官能化ポリエーテルは、式：

#### 【0016】

$R_1 - (OC H_2)_x - (OCH_2 CH_2)_y - W - - COOH$   
によって定義することができ、

式中：

$R_1$  は、環状、分枝状、または非分枝状のアルキル；アリール；アルキルアリールまたはアリールアルキルであってよい  $C_1 \sim C_{3,6}$  ヒドロカルビル基、望ましくは  $C_1 \sim C_{1,8}$  であり、

は、3および/または4であり、  
 $x$  は、10～60、特に10～40であり、  
 $y$  は、0～10、特に0であり、  
 $- (OC_2H_4)$  および $- (OC H_2)$  繰り返し単位は、ランダムまたはブロック状などの任意の順序であってよく、 $y$  は $x$  未満でなければならず、  
 $W$  は、1～4個の炭素原子、特に1個の炭素原子のヒドロカルビレンを任意選択で含んでもよい、エステル、イミド、または任意選択でアミド連結基であり、

は、6～10個、特に6個の炭素原子のアリール基であり、前記アリール基は、1～4個の炭素原子の直鎖状もしくは分枝状アルキル鎖、ハロゲン化物、および/または $-NO_2$  を含んでもよい置換基（単数または複数）（ナフタレンに関して最大5個もしくは6個、またはベンゼンに関して最大4個）を任意選択で有していてもよい。

#### 【0017】

式  $R_1 - (OC H_2)_x - (OCH_2 CH_2)_y - W - - COOH$  により定義された官能化ポリエーテルは、ポリエーテルアミンおよび/またはポリエーテルアルコールと、1,2,4-ベンゼントリカルボン酸無水物またはホモフタル酸などのマルチカルボン酸との反応によって調製することができる。

#### 【0018】

ポリエーテルアミンを調製するのに最も容易な方法を、本明細書の実施例に例示する。アミノ官能化ポリ（アルキレンオキシド）は、Surfonamines（商標）またはJeffamines（商標）という名称でHuntsmanなどの会社からも市販されている。Surfonamine（商標）アミンの特定の例は、B100およびB200である。

#### 【0019】

ポリエーテルアルコールは、ポリアルキレンオキシドモノアルキルエーテルまたはモノ

10

20

30

40

50

アルカリールエーテルアルコールであってもよい。このタイプのモノアルコール化合物は、Aldrich製の、またはDow製のSynalox(商標)もしくはClarient製のPolyglykol(商標)という商標名の下で、様々な分子量のポリプロピレングリコールモノブチルエーテルなどが市販されている。Synalox(商標)の特定の例は、100-D20、100-40B、100-50B、100-D95、および100-150Bである。Polyglykol(商標)の特定の例は、B01/20、B01/40、B01/80、B01/120、およびB01/240である。ポリプロピレングリコールモノイソトリデシルエーテルは、ClarientからPolyglykol(商標)という商標名で入手可能であり、特定の例はT01/35である。

10

### 【0020】

アミン系多塩基種は、脂肪族アミン、ポリ(ビニルアミン)、アルキレンポリアミン、もしくはポリアリルアミンなどのポリアミン、またはポリ( $C_2$ ~ $_6$ -アルキレンイミン)であり得、1つの好ましい実施形態では、ポリエチレンイミンである。ポリアミンまたはポリアルキレンイミンは、直鎖状であっても分枝状であってもよい。ポリアミンまたはポリアルキレンイミンは、100~100,000g/mol;より望ましくは140から75,000;または好ましくは140から20,000の数平均分子量を有していてもよい。脂肪族ポリアミンは、窒素原子当たり2から6個の炭素原子を有していてもよく、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペニタミンなど、スティルボトム、およびこれらの混合物を含む。望ましくは、アミン多塩基種は、分子当たり合計で少なくとも3個の第1級および/または第2級アミン基を有し、より望ましくは少なくとも4個の第1級および/または第2級アミン基を有する。

20

### 【0021】

官能化ポリエーテル対アミン系多塩基種の重量比は、10:1から60:1、より望ましくは15:1から50:1である。

### 【0022】

酸官能化ポリエーテルおよびアミン系多塩基種は、酸官能化ポリエーテルの $-CO_2H$ が多塩基種中のアミン基と反応してイオン性塩結合および/もしくは共有結合が得られるよう、またはイオン性塩結合および共有結合の混合物、特にイオン性塩結合が得られるよう、一緒に反応する。

30

### 【0023】

モノ求核性ポリエーテルアミンおよび/またはポリエーテルアルコールを、任意選択で酸触媒(オルトリン酸など)の存在下、100から200の間、より好ましくは120から180の間の温度で、不活性雰囲気下で6から24時間、マルチカルボキシル芳香族酸と反応させて、式 $R_1 - (OC_{H_2})_x - (OCH_2CH_2)_y - W - COOH$ によって定義される官能化ポリエーテルを得る。

### 【0024】

酸官能化ポリエーテルおよび多塩基種を、90から140の間、好ましくは90から120の間の温度で、不活性雰囲気(窒素など)下で2から8時間、一緒に反応させる。

40

### 【0025】

一実施形態では、アミン系多塩基種の任意の残留未反応窒素原子を、他の求電子体と反応させて、僅かに異なる性質を与えることができる。一実施形態では、酸官能化ポリエーテルと多塩基種との反応から得た反応生成物を、さらに官能化させて、それらの性質および適用性能を特定の要件に適合させることができる。以下の修飾反応を、酸修飾ポリエーテルと多塩基付加化合物との複数の反応生成物が得られるように、必要に応じて組み合わせてもよい。2種またはそれ超の修飾反応が続けて実施される場合、分子内での1つまたは複数の後続の反応に対して反応性のある十分な残留アミン系基が利用可能であることを確実にすべきである。

### 【0026】

50

記述される修飾は、本発明の有利な実施形態であり、

a ) アミン系多塩基種の残りの遊離アミノ基の 1 つもしくは複数と、イソシアネート、ラクトン、無水物、エポキシド、環状カーボネート、もしくは(メタ)アクリレートとの反応；

b ) アミン系多塩基種の残りの遊離アミノ基の 1 つもしくは複数と、モノもしくはポリカルボン酸、鉱酸、リンおよびポリオキソメタレートを含有する酸、もしくは強酸との、塩形成および／もしくは反応；

c ) アミン系多塩基種の残りの遊離アミノ基の 1 つもしくは複数の、酸化窒素への酸化；

d ) アミン系多塩基種の残りの遊離アミノ基の 1 つもしくは複数の 4 級化；または 10

e ) アミン系多塩基種の残りの遊離アミノ基の 1 つもしくは複数と、モノアミノ反応性基で終結する MW が 150 ~ 3000 のポリマーの 1 つもしくは複数との反応

によって実現することができる。

#### 【 0027 】

任意の残りのアミノ基の修飾は、当業者に公知の方法で行ってもよい。例えば、アミノ窒素原子の塩形成および 4 級化は、鉱酸、強酸、アルキルスルフェート、アルキルもしくはアラルキルハロゲン化物、ハロカルボキシルエステル (halocarboxylic ester) 、アルキルオキサレート、またはエポキシドを使用して実現することができる。4 級化は、例えばアミノ基を結合剤系と反応させ、そこに顔料ペーストを組み込んで凝集を引き起こす場合に望ましい。この目的に適切な試薬には、塩酸、酢酸、硫酸、アルキルスルホン酸、アルキル水素スルフェート、またはアリールスルホン酸が含まれる。4 級化剤には、硫酸ジメチル、塩化ベンジル、塩素、臭素、およびヨウ素などのハロゲン化メチル、シュウ酸ジメチル、エチレンオキシド、プロピレンオキシド、およびスチレンオキシドであって、酸の存在下にあるもの、ならびにプロパン(またはブタン)スルトンが含まれる。 20

#### 【 0028 】

アミン系多塩基種の残りの遊離アミノ基の 1 つまたは複数と、モノもしくはポリカルボン酸またはリン含有酸との塩形成および／または反応が、JP 9157374、US 2010/0017973、および US 2013/0126804 に開示されている。適切なモノカルボン酸の特定の例には、任意選択で置換された C<sub>1 ~ 50</sub> 脂肪族モノカルボン酸、例えば酢酸、プロピオン酸、カプロン酸、カブリル酸、2-エチルヘキサン酸、ノナン酸、デカン酸、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、オレイン酸、リノール酸、ステアリン酸、アラキジン酸、エルカ酸、ベヘン酸、メトキシ酢酸、天然に生ずる供給源からの油、例えばヒマワリ油、菜種油、ヒマシ油、およびオリーブ油から誘導された脂肪酸の混合物、商標 Isocarb (商標) (Saso 1 製) で入手可能な分枝状アルキルカルボン酸、Baker Hughes から市販されている直鎖状 C<sub>25 ~ 50</sub> 合成第 1 級酸である Unicid (商標) 酸、および芳香族カルボン酸、例えば安息香酸、サリチル酸、およびナフト工酸が含まれる。適切なポリカルボン酸の特定の例には、コハク酸、マロン酸、アジピン酸、セバシン酸、リンゴ酸、フマル酸、クエン酸、および酒石酸が含まれる。適切なリン含有酸の特定の例には、リン酸および亜リン酸が含まれる。適切なポリオキソメタレート含有酸の特定の例には、リンモリブデン酸、リンタングステン酸、およびケイモリブデン酸が含まれる。 40

#### 【 0029 】

アミン系多塩基種の残りの遊離アミノ基の 1 つまたは複数と、無水物との反応は、US 6878799 および 7767750 に開示されている。適切な無水物の特定の例には、無水マレイン酸、無水コハク酸、無水フタル酸 (phthalic anhydride) 、テトラヒドロフタル酸無水物、メチルテトラヒドロフタル酸無水物、ヘキサヒドロフタル酸無水物、メチルヘキサヒドロフタル酸無水物、トリメリト酸無水物、C<sub>1 ~ 20</sub> アルケニルおよびアルキルコハク酸無水物が含まれる。

#### 【 0030 】

アミン系多塩基種の残りの遊離アミノ基の 1 つまたは複数と、エポキシドとの反応は、

10

20

30

40

50

JP 4 0 3 1 4 7 1 に開示されている。適切なエポキシドの特定の例には、スチレンオキシド、プロピレンオキシド、およびエチレンオキシドが含まれる。

【0031】

アミン系多塩基種の残りの遊離アミノ基の1つまたは複数の反応は、カルボン酸、スルホン酸、硫酸、ホスホン酸、リン酸、イソシアネート、エポキシド、(メタ)アクリレート、アセトアセトキシ、またはシクロカーボネート末端ポリマーと共に起こり得る。反応生成物は、カルボン酸末端ポリマーが使用されるときにはアミドおよび/または対応する塩の形をとることができ、スルホン酸、硫酸、ホスホン酸、およびリン酸末端ポリマーが使用されるときには塩の形をとることができ、共有結合が、アミノ基のNH官能基と、i) 尿素を得るためにイソシアネート末端ポリマー、ii) アミノアルコールを与えるようにエポキシ基を開環させるためのエポキシド末端ポリマー、およびiii) 二重結合へのMichele付加を介した(メタ)アクリレート末端ポリマーとの間に形成される。これらのモノ反応性末端ポリマーは、ポリエステル、ポリエーテル、ポリエーテル/ポリエステル、ポリアミド、ポリエステルアミド、ポリ(メタ)アクリレート、ポリウレタン、およびこれらの混合物をベースにすることができる。特に有用なモノ反応性ポリマーは、様々な特許に開示されてきた。

【0032】

カルボン酸末端ポリエステル、ポリエステルアミド、およびポリアミドポリマーの適切な例は、U S 4 2 2 4 2 1 2、4 8 6 1 3 8 0、5 7 0 0 3 9 5、5 7 6 0 2 5 7、6 1 9 7 8 7 7、8 2 0 2 9 3 5、JP 4 8 6 6 2 5 5、JP 8 0 1 0 6 0 1、JP 9 1 5 7 3 6 1、WO 2 0 0 6 / 1 1 3 2 5 8、およびWO 2 0 0 7 / 0 3 9 6 0 5 に開示されており、これらの文献の中で；

a) ポリエステルは：

任意選択で、カルボン酸またはエステル官能基を含有する開始剤分子の存在下、ヒドロキシカルボン酸および/またはラクトンの1種もしくは複数；あるいは

任意選択で、カルボン酸またはエステル官能基を含有する開始剤分子の存在下、ジオールの1種または複数と二塩基酸/無水物の1種または複数と

の重合から誘導され；

b) ポリエステルアミドは：

任意選択で、カルボン酸またはエステル官能基を含有する開始剤分子の存在下、ヒドロキシカルボン酸および/またはラクトンの1種もしくは複数と、アミノカルボン酸および/またはラクタムの1種もしくは複数と

の重合から誘導され；

c) ポリアミドは：

任意選択で、カルボン酸またはエステル官能基を含有する開始剤分子の存在下、アミノカルボン酸および/またはラクタムの1種もしくは複数；あるいは任意選択で、カルボン酸またはエステル官能基を含有する開始剤分子の存在下、ジアミンの1種または複数と二塩基酸/無水物の1種または複数と

の重合から誘導される。

【0033】

適切なヒドロキシカルボン酸およびラクトンの特定の例には、リシノール酸、12-ヒドロキシステアリン酸、6-ヒドロキシカプロン酸、5-ヒドロキシ吉草酸、12-ヒドロキシドデカン酸、5-ヒドロキシドデカン酸、5-ヒドロキシデカン酸、4-ヒドロキシデカン酸、10-ヒドロキシウンデカン酸、乳酸、グリコール酸、-プロピオラクトン、-ブチロラクトン、任意選択でC<sub>1</sub>~<sub>6</sub>-アルキル置換された-カプロラクトンおよび任意選択でC<sub>1</sub>~<sub>6</sub>-アルキル置換された-バレロラクトン、例えば-カプロラクトン、および7-メチル-カプロラクトン、3-メチル-カプロラクトン、5-メチル-カプロラクトン、6-メチル-カプロラクトン、4-メチル-カプロラクトン、5-テトラ-ブチル-カプロラクトン、4,4,6-トリメチル-カプロラクトン、および4,6,6-トリメチル-カプロラクトン、-バレロ

ラクトン、-メチル-バレロラクトン、またはこれらの混合物が含まれる。

【0034】

適切なジオールの特定の例には、アルキレングリコール、例えばエチレングリコール、プロピレングリコール、ネオベンチルグリコール、1,4-ブタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、エーテル連結を有するジオール、例えばジエチレングリコール、ジプロピレングリコール、トリプロピレングリコール、およびトリエチレングリコールが含まれる。適切なポリアルキレングリコールの例には、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリブチレングリコール、ポリエチレングリコールとポリプロピレングリコールとの混合型ブロックおよびランダムコポリマー(Pluronics(商標)およびReverse Pluronics(商標)、BASF製)であって、MWが1000未満のものが含まれる。 10

【0035】

適切な二塩基酸および無水物の特定の例には、無水マレイン酸、無水コハク酸、グルタル酸無水物、フマル酸、マロン酸、アジピン酸、セバシン酸、無水フタル酸、およびシクロヘキサンジカルボン酸無水物が含まれる。

【0036】

適切なアミノカルボン酸の特定の例には、サルコシン、ベータ-アラニン、4-アミノ酪酸、6-アミノカプロン酸、および11-アミノウンデカン酸が含まれる。

【0037】

適切なラクタムの特定の例には、ラウロラクタムおよびカプロラクタムが含まれる。 20

【0038】

適切なジアミンの特定の例には、アルキレンジアミン、例えばエチレンジアミン、1,2-プロピレンジアミン、1,3-プロピレンジアミン、異性体ブチレンジアミン、ペンタンジアミン、ヘキサンジアミン、ヘプタンジアミン、1,12-ジアミノドデカン、ジアミノシクロヘキサン、およびエーテル連結を有するジアミン、例えば1,2-ビス(2-アミノエトキシ)エタンが含まれる。適切なポリエーテルジアミンの例には、D230、D400、ED600など、Huntsmanから市販されているJeffamine(商標)ジアミンが含まれる。

【0039】

カルボン酸またはエステル基を含有する適切な開始剤分子の例には、上述のような任意選択で置換されたC<sub>1~50</sub>脂肪族モノカルボン酸と、それらのメチルまたはエチルエステルが含まれる。 30

【0040】

ホスフェート、スルフェート、およびスルホネット末端ポリエステルポリマーの適切な例は、US4861380および6197877に開示されており、このポリエステルは、ヒドロキシルまたはアミノ官能基を含有する開始剤分子を使用した上記開示されたヒドロキシカルボン酸および/またはラクトンの重合から誘導される。ヒドロキシル官能基を含有する適切な開始剤分子の特定の例には、任意選択で置換されたC<sub>1~50</sub>ヒドロカルビレン基を有するアルコール、例えばメタノール、エタノール、プロパン-1-オール、プロパン-2-オール、ブタノール、イソブタノール、ネオベンチルアルコール、ヘキサンノール、オクタン-1-オール、2-エチルヘキサンノール、デカノール、ドデカノール、オレイルアルコール、ステアリルアルコール、ベヘニルアルコール、シクロヘキサンノール、ベンジルアルコール、フェノール、オクチルフェノール、ノニルフェノール、フェニルエタノール、フッ素化アルコール、例えば1H,1H,2H,2H-パーフルオロ-1-デカノール、C<sub>8~36</sub>分枝状アルコールであって商標Isوفol(商標)(Sasol製)で入手可能なものの、Baker Hughesから市販されている直鎖状C<sub>25~50</sub>合成第1級アルコールであるUnilin(商標)アルコールが含まれる。アミノ官能基を含有する適切な開始剤分子の特定の例には、ブチルアミン、ドデシルアミン、ステアリルアミンなどのアミンが含まれる。 40

【0041】

(メタ)アクリレート末端ポリエステル、ポリエステルアミド、およびポリアミドポリマーの適切な例は、EP 713894、JP 3488001、JP 2010222522、およびUS 8202935に開示されており、それらの中で、ポリエステルは、上記開示されたヒドロキシカルボン酸および/またはラクトンの重合から：

- i) 2-ヒドロキシエチルアクリレートなどの開始剤分子を直接使用して誘導され；
- ii) ヒドロキシ官能基を含有する開始剤分子を使用して、次いで後続の、(メタ)アクリレートエステルとのエステル交換反応から誘導され；
- iii) 上述のカルボン酸またはエステル官能基を含有する開始剤分子を使用して、次いで後続の、2-ヒドロキシエチルアクリレートなどのヒドロキシル官能基を含有するまたはグリシジルメタクリレートなどのエポキシ官能基を含有する(メタ)アクリレートエステルとの反応から誘導される。

【0042】

ホスフェート、スルフェート、およびスルホネート末端ポリエーテル、ポリエーテル/ポリエステル、ポリエーテル/ポリウレタン、およびポリエーテル/ポリエステル/ポリウレタンポリマーの適切な例は、US 5130463、5151218、6111054、6310123、7595416、および8202935に開示されており、それらの中で、ポリエーテルは、上記開示されたヒドロキシルまたはアミノ官能基を含有する開始剤分子を使用して、エチレンオキシド、プロピレンオキシド、ブチレンオキシド、およびスチレンオキシドなどのアルキレンおよびアルカリーレンオキシドの重合から誘導される。これらのポリエーテルモノアルコールは、US 5130463に開示されるように、上記開示されたヒドロキシカルボン酸もしくはラクトンの1種もしくは複数と、または上述のジオールおよび二酸とさらに反応させて、アルコール基を含有するポリエーテルポリエステルポリマーを得ることができ、次いでこれをリン酸化することができる。ポリエーテルモノアルコールおよびポリエーテルポリエステルモノアルコールは、US 5130463に開示されるように、ジイソシアネートと組み合わせて上記開示されたジオールとさらに反応させることにより、それぞれアルコール基を含有するポリエーテルポリウレタンおよびポリエーテルポリエステルポリウレタンポリマーを得ることができ、次いでこれをリン酸化することができる。適切なジイソシアネートの特定の例には、ヘキサメチレンジイソシアネート(HDI)、2,4-および2,6-トルエンジイソシアネート(TDI)、イソホロンジイソシアネート(IPDI)、-テトラメチルキシレンジイソシアネート(TMHD)、ジフェニルメタン-4,4'-ジイソシアネート(4,4'-MDI)、ジフェニルメタン-2,4'-ジイソシアネート(2,4'-MDI)、およびジシクロヘキシルメタン-4,4'-ジイソシアネート(HMDI)が含まれる。

【0043】

(メタ)アクリレート末端ポリエーテルポリマーの適切な例は、US 7923474およびJP 2010222522に開示されている。

【0044】

カルボン酸末端ポリエーテルポリマーの適切な例は、JP 4248207、US 7767750、7671119、7872070、8076409、および8168713に開示されており、それらの中で、ポリマーは、i)ポリアルキレングリコールー置換エーテルと、モノクロロ酢酸ナトリウムなどのハロカルボン酸塩との反応、次いで塩酸を使用した酸性化；ii)ポリアルキレングリコールー置換エーテルとアクリロニトリルとの反応、次いで塩酸などの酸の存在下での加水分解；およびiii)ポリエーテルアミンと無水物との反応から誘導される。

【0045】

イソシアネート末端ポリエステルおよびポリエーテルポリマーの適切な例は、JP 4031471、JP 7149855、およびWO 2007/039605に開示されている。

【0046】

エポキシドまたはアセトアセトキシまたはシクロカーボネート末端ポリアクリレートボ

10

20

30

40

50

リマーの適切な例は、U.S.5.100969に開示されている。

【0047】

本発明の相溶化剤を含有するラジカル共重合性不飽和樹脂組成物は、例えば不飽和ポリエステル、ビニルエステル樹脂、ビニルウレタン樹脂、またはアクリル樹脂などのラジカル共重合性不飽和樹脂；付加重合ポリマー；および重合性不飽和モノマーから構成される。必要に応じて、重合抑制剤 (polymerization inhibitor)、硬化触媒、充填材、強化微粒子、内部離型剤、および顔料などの様々な添加剤を添加することができる。

【0048】

本発明で使用することができる不飽和ポリエステルの組成物には、<sup>10</sup>、<sup>2</sup> - 不飽和カルボン酸または場合によっては飽和カルボン酸を含有する<sup>1</sup>、<sup>2</sup> - 不飽和カルボン酸と、多価アルコールとの反応から得られる不飽和ポリエステルが含まれるが、これらに特に限定するものではない。

【0049】

<sup>1</sup>、<sup>2</sup> - 不飽和カルボン酸の例には、フマル酸、マレイン酸、無水マレイン酸、イタコン酸、シトラコン酸、メサコン酸、クロロマレイン酸、およびそれらのジメチルエステルなどが含まれる。これらの<sup>1</sup>、<sup>2</sup> - 不飽和カルボン酸は、単独でまたは組み合わせて使用してもよい。その他の不飽和および飽和カルボン酸には、例えば、フタル酸、無水フタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、HET(R)酸 (Occidental Chemical)、ヘキサヒドロフタル酸無水物、テトラヒドロフタル酸無水物、アジピン酸、セバシン酸、またはアゼライン酸などが含まれる。これらの飽和カルボン酸は、単独でまたは組み合わせて使用してもよい。<sup>20</sup>

【0050】

多価アルコールには、例えば、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、ジプロピレングリコール、トリメチレングリコール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、2-メチル-1,3-プロパンジオール、1,6-ヘキサンジオール、シクロヘキサンジオール、ネオペンチルグリコール、2,2,4-トリメチル-1,3-ペンタンジオール、1,4-シクロヘキサンジメタノールなどのジオール；水素化ビスフェノールA、水素化ビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物、ビスフェノールAのアルキレンオキシド付加物などのグリコール；トリメチロールプロパンなどのトリオール；またはペンタエリスリトールなどのテトラオールが含まれる。これらの多価アルコールは、単独でまたは組み合わせて使用してもよい。<sup>30</sup>

【0051】

加えて、得られる不飽和ポリエステルは、グリシジルメタクリレートおよびビスフェノールAエポキシなどのエポキシ化合物、またはトルエンジイソシアネートおよびイソプロペニル-ジメチル-ベンジルイソシアネートなどのイソシアネート化合物で、修飾されてもよい。

【0052】

ジシクロペントジエンを<sup>40</sup>、<sup>1</sup> - 不飽和カルボン酸、飽和カルボン酸、および多価アルコールに添加し、それらを反応させることによって得られた、ジシクロペントジエン不飽和ポリエステルを使用することもできる。

【0053】

回収されたポリエチレン-テレフタレート (PET) と多価アルコールとを主要な原材料として高温で反応させ、それを<sup>40</sup>、<sup>1</sup> - 不飽和カルボン酸、飽和カルボン酸、および多価アルコールと反応させることによって得られたグリコール分解生成物を使用することによって得られたPET不飽和ポリエステルは、いかなる問題も引き起こすことなく本発明で使用することができる。

【0054】

本発明で使用されるビニルエステル樹脂は、エポキシ樹脂と不飽和モノカルボン酸との間の反応によって得られる反応生成物である。

【0055】

10

20

30

40

50

エポキシ樹脂には、例えば、ビスフェノールAエポキシ樹脂、ビスフェノールFエポキシ樹脂、フェノールノボラックエポキシ樹脂、クレゾールノボラックエポキシ樹脂、および臭素化工エポキシ樹脂などの、多価フェノールのグリシジルエーテル；ジプロピレングリコールジグリシジルエーテル、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル、ビスフェノールAアルキレンオキシド付加物のジグリシジルエーテル、および水素化ビスフェノールAのジグリシジルエーテルなどの、多価アルコールのグリシジルエーテル；3,4-エポキシ-6-メチルシクロヘキシルメチル-3,4-エポキシ-6-メチルシクロヘキサンなどの、脂環式エポキシ樹脂；ジグリシジルフタレート、ジグリシジルテトラヒドロフタレート、ジグリシジルp-オキシ安息香酸、およびグリシジルダイマー酸などの、グリシジルエステル；テトラグリシジルアミノジフェニルメタン、テトラグリシジルm-キシリレンジアミン、トリグリシジルp-アミノフェノール、およびN,N-ジグリシジルアニリンなどの、グリシジルアミン；1,3-ジグリシジル-5,5-ジメチルヒダントイインおよびトリグリシジルイソシアネートなどの複素環式エポキシ樹脂；ならびに同様のものが含まれる。これらのエポキシ樹脂は、単独でまたは組み合わせて使用してもよい。  
10

## 【0056】

不飽和モノカルボン酸には、例えば、アクリル酸、メタクリル酸、クロトン酸、ケイ皮酸、アクリル酸ダイマー、マレイン酸モノメチル、フマル酸モノメチル、フマル酸モノシクロヘキシル、またはソルビン酸が含まれる。これらの酸は、単独でまたは組み合わせて使用してもよい。  
20

## 【0057】

得られるビニルエステル樹脂は、無水マレイン酸、無水コハク酸、および無水酢酸などの酸無水物、またはトルエンジイソシアネート、イソプロペニル-ジメチル-ベンジルイソシアネートなどのイソシアネート化合物で、さらに修飾されてもよい。

## 【0058】

ビニルウレタン樹脂は、ポリオール化合物、有機ポリイソシアネート化合物、またはヒドロキシル含有（メタ）アクリレートから得られるオリゴマーである。ポリオール化合物は、複数のヒドロキシル基を分子内に有する化合物の一般名を指すが、イソシアネート基と反応することが可能な活性水素を有する官能基、例えばカルボキシル基、アミノ基、メルカプト基を、ヒドロキシル基の代わりに有する化合物であってもよい。そのようなポリオール化合物には、例えば、ポリエステルポリオール、ポリエーテルポリオール、アクリルポリオール（acrylic polyol）、ポリカーボネートポリオール、ポリオレフィンポリオール、ヒマシ油ポリオール、またはカブロラクトンポリオールが含まれる。これらのポリオール化合物は、単独でまたは組み合わせて使用してもよい。有機ポリイソシアネート化合物として、以下に記述されるものを使用することができる。  
30

## 【0059】

有機ポリイソシアネート化合物の典型的な例には、1,6-ヘキサメチレンジイソシアネート、トリメチルヘキサメチレ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、トリレンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、ナフタレンジイソシアネート、1,4-シクロヘキサンジイソシアネート、4,4-ジシクロヘキシルメタンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、および水素化キシリレンジイソシアネートなどが含まれる。加えて、イソシアネート化合物のそれぞれのタイプをイソシアネート化することによって得られる多量体を含めることができる。これらは単独でまたは組み合わせて使用される。  
40

## 【0060】

アクリル樹脂は、（メタ）アクリレート、および主要な成分として（メタ）アクリレートを含有する重合性不飽和モノマー、および重合性不飽和モノマーから誘導される、熱可塑性アクリルポリマーで構成される。このポリマーは、必須の成分としての（メタ）アクリレート、および必要に応じて（メタ）アクリレートと共に重合することが可能なその他の重合性不飽和モノマーを含有する、混合モノマー溶液を重合することによって得ることが  
50

できる。アクリルポリマーは、重合性モノマーに溶解したシロップの形で使用されるので、好ましくは100,000またはそれ未満の分子量を有する。アクリルポリマーは、懸濁重合および溶液重合などの一般的な重合手順によって得ることができる。また、10~40%の程度でモノマーをプレポリマー化することによって得られるシロップを、そのまま使用することができる。

【0061】

ラジカル共重合性不飽和樹脂組成物で使用することができる重合性不飽和モノマーの典型的な例には、公知のスチレン、アクリレート、メタクリレート、ジアリルフタレート、カルボン酸ビニルエステル、およびビニルエーテルなどが含まれる。しかし、それに特に限定するものではなく、樹脂溶液の使用および必要な性能に応じて様々な不飽和モノマーを適切に選択することによって、使用することができる。

10

【0062】

重合性不飽和モノマーの量は、特に限定するものではないが、(修飾)不飽和ポリエステル、ビニルエステル樹脂、ビニルウレタン樹脂、またはアクリル樹脂に対して好ましくは10~70重量%の範囲内、より好ましくは20~50重量%の範囲内にある。ラジカル重合性不飽和樹脂と重合性不飽和モノマーとの比は、樹脂組成物中で、好ましくは30~90重量%から10~70重量%の範囲内、より好ましくは50~80重量%から20~50重量%の範囲内にある。

【0063】

本発明の樹脂組成物に使用することができる重合抑制剤は、特に限定するものではなく、任意の従来から公知の重合抑制剤を使用することができる。その特定の例には、ヒドロキノン、トリメチルヒドロキノン、p-tert-ブチルカテコール、tert-ブチルヒドロキノン、トルヒドロキノン、p-ベンゾキノン、ナフトキノン、ヒドロキノンモノメチルエーテル、フェノチアジン、ナフテン酸銅、および塩化銅などが含まれる。これらの重合抑制剤は、単独で使用してもよく、またはそれらの2種またはそれ超の種類を混合した後に使用してもよい。重合抑制剤の量は、特に限定するものではない。

20

【0064】

本発明の樹脂組成物に用いることができる硬化剤として、特に限定するものではなく、任意の従来から公知の硬化剤を使用することができる。その例には、熱硬化剤、紫外線硬化剤、および電子放射線硬化などから選択される1つまたは複数が含まれる。硬化剤の量は、樹脂組成物100重量部に対して、好ましくは0.1~10重量部の範囲内にあり、特に1~5重量部の範囲内にある。

30

【0065】

熱硬化剤には、有機過酸化物、例えば公知の過酸化ジアシル、ペルオキシエステル、ヒドロペルオキシド、ケトンペルオキシド、アルキルペルエステル、ペルカーボネート化合物が含まれる。熱硬化剤は、成形条件に応じて適切に選択することができる。

【0066】

紫外線硬化剤は、光増感剤、例えば公知のアシルホスフィンオキシド、ベンゾイルエーテル、ベンゾフェノン、アセトフェノン、チオキサントン化合物である。紫外線硬化剤は、成形条件に応じて適切に選択することができる。電子放射線硬化剤には、ハロゲン化アルキルベンゼンおよびジスルフィド化合物などが含まれる。

40

【0067】

上述の硬化剤と組み合わせて使用される、硬化を加速させることができ添加剤(硬化促進剤)の例には、ナフテン酸コバルトおよびオクタン酸コバルトなどの金属塩、N,N-ジメチルアニリン、N,N-ジ(ヒドロキシエチル)p-トルイジン、およびジメチルアセトアセトアミドなどの第3級芳香族アミン、ならびに同様のものが含まれるが、これらに限定するものではない。それらは必要に応じて選択される。

【0068】

本発明の樹脂組成物に使用することができる充填材の典型的な例には、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、硫酸バリウム、マイカ、タルク、カオリナイト、クレイ、セライト、ア

50

スペスト、パーライト、バライト、シリカ、ケイ砂、ドロマイト、石灰岩、石膏、アルミニウム微粉末、中空バルーン、アルミナ、ガラス粉末、セルロース粉末、水酸化アルミニウム、白大理石、酸化ジルコニア、三酸化アンチモン、酸化チタン、および二酸化モリブデンなどが含まれる。これらの充填材は、得られる成型物品の加工性、強度、および外観と、経済効率などの観点から選択されるが、炭酸カルシウム、水酸化アルミニウム、シリカ、およびタルクが一般に使用される。充填材は、表面処理されたものも含む。

【0069】

本発明の樹脂組成物に使用することができる強化微粒子は、纖維強化剤として通常使用されるものであってもよい。その例には、ガラス纖維、ポリエステル纖維、フェノール纖維、ポリビニルアルコール纖維、芳香族ポリアミド纖維、ナイロン纖維、および炭素纖維などが含まれる。これらの強化剤は、チョップドストランド、チョップドストランドマット、ローピング、および布などの形をとってもよい。これらの強化剤は、組成物の粘度、および得られる成型物品の強度などの観点から選択される。

【0070】

本発明の樹脂組成物に使用することができる内部離型剤の例には、ステアリン酸などの高級脂肪酸；ステアリン酸亜鉛などの高級脂肪酸塩；およびリン酸アルキルが含まれる。しかし、それらに特に限定するものではなく、成型条件に応じて適切に選択された様々な離型剤を使用することができる。

【0071】

本発明の樹脂組成物に使用することができる顔料の典型的な例には、チタニウムホワイトおよびカーボンブラックなどの無機顔料と、フタロシアニンブルーおよびキナクリドンレッドなどの有機顔料とが含まれる。様々な顔料を、色相に応じて使用することができる。一般に顔料は、この顔料が不飽和ポリエステル樹脂などに均一に分散されているトナーとしてしばしば添加される。電気伝導性または静電散逸性の成型部品が望まれる場合、伝導性顔料および/または電気伝導性添加剤を、成型組成物に添加することができる。

【0072】

その他の様々な添加剤には、粘度低減剤などの粘度調整剤、消泡剤、シランカップリング剤、パラフィンなどの空気遮断剤、および同様のものが含まれる。市販の製品を使用することができる。

【0073】

シート成型化合物（以後、SMCと呼ぶ）およびバルク成型化合物（以後、BMCと呼ぶ）などの成型材料を調製する場合、増粘剤は、金属酸化物、水酸化物、例えば酸化マグネシウムおよび水酸化カルシウム、ならびに粗製MDIなどの多官能性イソシアネート化合物を含む。しかし、増粘剤はそれらに特に限定するものではなく、成型材料の使用および必要な性能に応じて適切に選択された様々な増粘剤を使用することができる。一般に、増粘の程度を容易に制御することが可能な酸化マグネシウムが使用される。

【0074】

本発明において、ラジカル重合性不飽和樹脂と混合される付加重合ポリマー（熱可塑性樹脂）は、特に限定するものではないが、低収縮および物理的性質（破壊靱性など）の改善などの所望の効果を発揮する付加重合ポリマーは、成型の使用、成型条件などに応じて適切に選択し、使用することができる。その典型的な例には、主要な成分としてスチレンを含有するポリスチレン樹脂、例えばポリスチレン、スチレン-（（メタ）アクリル酸エステル（(meth)acrylic ester））コポリマー、スチレン-（共役ジエン）ブロックコポリマー、および水素化スチレン-（共役ジエン）ブロックコポリマーなどが含まれる。加えて、スチレンを含有しない（メタ）アクリレートポリマー、例えばポリ（メチルメタクリレート）およびポリ（n-ブチルアクリレート）エステルなども含まれる。これらのポリマーの二重結合とその他の化合物とを反応させることによって得られるものを使用することもできる。

【0075】

スチレン-（共役ジエン）ブロックコポリマーは、スチレンと共役ブタジエンおよび共

10

20

30

40

50

役ジエン成分とを重合することによって得られたスチレン成分で作製されたブロックコポリマーである。共役ジエン成分として、ブタジエン、イソブレン、および1,3-ペンタジエンなどを使用することができる。さらに、これらのスチレン-（共役ジエン）ブロックコポリマーを水素化することによって得られたスチレン-水素化共役ジエンブロックコポリマーを使用してもよい。ブロックコポリマーの単位は、特に限定するものではないが、スチレンおよび共役ジエンの繰り返し単位、例えばスチレン-（共役ジエン）、スチレン-（共役ジエン）-スチレン、および（共役ジエン）-スチレン-（共役ジエン）が含まれる。その特定の例には、スチレン-ブタジエンブロックコポリマー、スチレン-イソブレンブロックコポリマー、スチレン-（エチレンブチレン）ブロックコポリマー、およびスチレン-（エチレンプロピレン）ブロックコポリマーなどが含まれる。

10

#### 【0076】

本発明の樹脂組成物は、例えば、成型材料（S M C およびB M C としてプレス成型用および射出成型用、吹付け成型用、ハンドレイアップ成型用、キャスティング用、引抜き用）、コーティング材料（塗料、パテ、化粧板、封止材料、および裏打ち材料）として使用することができる。本発明の成型材料は、樹脂組成物、重合抑制剤、硬化剤、充填材、強化剤、ならびに必要に応じて、内部離型剤および顔料などの様々な添加剤を含有する。

#### 【0077】

本発明の成型物品の例には、浴槽、キッチンカウンター、洗面所、防水パン、および浄化槽などの住宅設備；人造大理石、パネル、段ボール、引抜き材料、およびポリマーコンクリートなどの土木建築材料；ボートおよび船などの船舶構造物；ランプ反射材などの自動車部品；ボタンおよびボウリングボールなどの日用品；ならびに同様のものが含まれる。

20

#### 【0078】

以下の実施例は、本発明をさらに例示するが、本発明はこれらの実施例に限定されない。以下の実施例において、部は、他に明記されない限り重量によるものである。

#### 【実施例】

#### 【0079】

##### 試薬

P A G 1、ポリエーテルアミン、C 12 ~ 15 アルコールをプロピレンオキシドと反応させ（M W 1660）、その後、得られたポリエーテルアルコールの塩基触媒付加をアクリロニトリルに対して行い、引き続き水素化することにより得られたアミン（85%活性）からなる、L u b r i z o l から入手可能。

30

P A G 2、ポリエーテルアミン、C 12 ~ 15 アルコールをブチレンオキシドと反応させ（M W 1700）、その後、得られたポリエーテルアルコールの塩基触媒付加をアクリロニトリルに対して行い、引き続き水素化することにより得られたアミン（80%活性（active））、L u b r i z o l 製。

1,2,4-ベンゼントリカルボン酸無水物、S i g m a A l d r i c h から入手可能、ポリ（プロピレングリコール）モノブチルエーテル、分子量1000 g / mol、S i g m a - A l d r i c h から入手可能。

ホモフタル酸、S i g m a A l d r i c h から入手可能

40

オルトリン酸触媒、F i s h e r から入手可能

S u r f o n a m i n e (商標) B 100、分子量1000 g / mol、H u n t s m a n から入手可能

S u r f o n a m i n e (商標) B - 200 分子量2000 g / mol、H u n t s m a n から入手可能

E P O M I N (商標) S P - 200 日本触媒から入手可能なM w 10,000 g / molのポリエチレンイミン

E P O M I N (商標) S P - 018、日本触媒から入手可能なM w 1800 g / molのポリエチレンイミン

E P O M I N (商標) S P - 006、日本触媒から入手可能なM w 600 g / mol

50

## のポリエチレンイミン

テトラエチレンペントミン、Sigma Aldrich から入手可能

トリエチレンテトラミン、Sigma Aldrich から入手可能

スチレン、Sigma Aldrich から入手可能

Palapreg (商標) H 814 - 01、スチレン中にポリスチレンを含む低収縮添加剤、DSM から入手可能

Palapreg (商標) P 17 - 02、オルトフタル酸および標準のジオールからの不飽和ポリエステル樹脂、DSM から入手可能

中間体

中間体 1

10

## 【0080】

(実施例 1)

PAG 1、79.91重量部 (PAG 1 = ポリエーテルアミン、C 12 ~ 15 アルコールをプロピレンオキシドと反応させ (MW 1660)、その後、得られたポリエーテルアルコールの塩基触媒付加をアクリロニトリルに対して行い、引き続き水素化することにより得られたアミン (85% 活性) からなる、Lubrizol から入手可能) を、反応フラスコに投入し、攪拌しながら窒素プランケット下で 70 に加熱する。温度が上昇したら、1, 2, 4 - ベンゼントリカルボン酸無水物 (MW 192.13、Sigma Aldrich 製、5.72 部) をフラスコに投入し、次いで 120 に加熱し、8 時間攪拌することにより、褐色の液体が得られる。これが中間体 1 である。

20

中間体 2

## 【0081】

(実施例 2)

ポリ (プロピレングリコール) モノブチルエーテル (MW 1000、Sigma Aldrich 製、75.78 部)、ホモフタル酸 (MW 180.16、Sigma Aldrich 製、13.69 部)、およびオルトリリン酸触媒 (Fisher 製、0.27 部) を反応フラスコに投入し、窒素プランケット下で 180 に加熱し、14 時間攪拌することにより、褐色の液体の生成物が得られる。これが中間体 2 である。

中間体 3

## 【0082】

30

(実施例 3)

Surfonamine B 100 (MW 1000、Huntsman 製、91.74 部) を反応フラスコに投入し、窒素プランケット下で 70 に加熱し、次いで 1, 2, 4 - ベンゼントリカルボン酸無水物 (MW 192.13、Sigma Aldrich 製、17.62 部) をフラスコに投入し、120 に加熱し、14 時間攪拌することにより、褐色の液体の生成物が得られる。これが中間体 3 である。

中間体 4

## 【0083】

(実施例 4)

PAG 2、94.2 部 (PAG 2 = ポリエーテルアミン、C 12 ~ 15 アルコールをブチレンオキシドと反応させ (MW 1700)、その後、得られたポリエーテルアルコールの塩基触媒付加をアクリロニトリルに対して行い、引き続き水素化することにより得られたアミン (80% 活性)、Lubrizol 製)、および 1, 2, 4 - ベンゼントリカルボン酸無水物 (MW 192.13、Sigma Aldrich 製、7.8 部) を反応フラスコに投入し、窒素プランケット下で 80 に加熱し、3 時間攪拌し、次いで 120 に加熱し、12 時間攪拌し、次いで 150 に加熱し、8 時間攪拌することにより、褐色の液体の生成物が得られる。これが中間体 4 である。

40

中間体 5

## 【0084】

(実施例 5)

50

Surfonamine B 200 (MW 2435、Huntsman製、89.32部)を反応フラスコに投入し、窒素プランケット下で70に加熱し、次いで1,2,4-ベンゼントリカルボン酸無水物 (MW 192.13、Sigma Aldrich製、7.047部)をフラスコに投入し、120に加熱し、11.5時間攪拌し、次いで150に4時間加熱することにより、褐色の液体の生成物が得られる。これが中間体5である。

剤 (agent)

【0085】

(実施例6)

中間体1 (56.29部)を反応フラスコに投入し、窒素下で90に加熱し、予熱したEPOMIN SP-018 (MW 1800、日本触媒製、3.75部)を投入し、1.5時間攪拌し、次いで120に加熱し、1時間攪拌することにより、褐色の粘性液体生成物が得られる。これが剤1である。

【0086】

(実施例7)

中間体1 (74.22部)を反応フラスコに投入し、窒素下で70に加熱し、予熱したEPOMIN SP-200 (MW 10,000、日本触媒製、3.17部)を投入し、次いで120に加熱し、6時間攪拌することにより、褐色の粘性液体生成物が得られる。これが剤2である。

【0087】

(実施例8)

中間体1 (64.6部)を反応フラスコに投入し、窒素下で70に加熱し、予熱したEPOMIN SP-018 (MW 1800、日本触媒製、2.48部)を投入し、次いで120に加熱し、6時間攪拌することにより、褐色の粘性液体生成物が得られる。これが剤3である。

【0088】

(実施例9)

中間体1 (64.94部)を反応フラスコに投入し、窒素下で70に加熱し、予熱したEPOMIN SP-200 (MW 10,000、日本触媒製、2.17部)を投入し、次いで120に加熱し、6時間攪拌することにより、褐色の粘性液体生成物が得られる。これが剤4である。

【0089】

(実施例10)

中間体1 (33.98部)を反応フラスコに投入し、窒素下で70に加熱し、予熱したEPOMIN SP-200 (MW 10,000、日本触媒製、0.97部)を投入し、次いで120に加熱し、6時間攪拌することにより、褐色の粘性液体生成物が得られる。これが剤5である。

【0090】

(実施例11)

中間体1 (109.98部)を反応フラスコに投入し、窒素下で70に加熱し、予熱したEPOMIN SP-200 (MW 10,000、日本触媒製、2.75部)を投入し、次いで120に加熱し、6時間攪拌することにより、褐色の粘性液体生成物が得られる。これが剤6である。

【0091】

(実施例12)

中間体1 (52.69部)を反応フラスコに投入し、窒素下で90に加熱し、予熱したEPOMIN SP-018 (MW 1800、日本触媒製、1.06部)を投入し、1.5時間攪拌し、次いで120に加熱し、1時間攪拌することにより、褐色の粘性液体生成物が得られる。これが剤7である。

【0092】

10

20

30

40

50

## (実施例 13)

中間体 1 ( 73 . 44 部 ) を反応フラスコに投入し、窒素下で 90 に加熱し、予熱したテトラエチレンペニタミン ( MW 189 . 30 、 Sigma Aldrich 製、 2 . 82 部 ) を投入し、 1 . 5 時間攪拌し、次いで 120 に加熱し、 1 時間攪拌することにより、褐色の粘性液体生成物が得られる。これが剤 8 である。

## 【0093】

## (実施例 14)

中間体 1 ( 37 . 46 部 ) を反応フラスコに投入し、窒素下で 90 に加熱し、予熱したトリエチレンテトラミン ( MW 146 . 23 、 Sigma Aldrich 製、 1 . 44 部 ) を投入し、 1 . 5 時間攪拌し、次いで 120 に加熱し、 1 時間攪拌することにより、褐色の粘性液体生成物が得られる。これが剤 9 である。

10

## 【0094】

## (実施例 15)

中間体 1 ( 20 . 76 部 ) を反応フラスコに投入し、窒素下で 90 に加熱し、予熱した E P O M I N S P - 006 ( MW 600 、日本触媒製、 0 . 8 部 ) を投入し、 1 . 5 時間攪拌し、次いで 120 に加熱し、 1 時間攪拌することにより、褐色の粘性液体生成物が得られる。これが剤 10 である。

## 【0095】

## (実施例 16)

中間体 2 ( 42 . 75 部 ) を反応フラスコに投入し、窒素下で 70 に加熱し、予熱した E P O M I N S P - 200 ( MW 10,000 、日本触媒製、 2 . 51 部 ) を投入し、次いで 120 に加熱し、 6 時間攪拌することにより、褐色の粘性液体生成物が得られる。これが剤 11 である。

20

## 【0096】

## (実施例 17)

中間体 3 ( 66 . 78 部 ) を反応フラスコに投入し、窒素下で 90 に加熱し、予熱した E P O M I N S P - 018 ( MW 1800 、日本触媒製、 2 . 56 部 ) を投入し、 1 . 5 時間攪拌し、次いで 120 に加熱し、 1 時間攪拌することにより、褐色の粘性液体生成物が得られる。これが剤 12 である。

## 【0097】

30

## (実施例 18)

中間体 4 ( 40 . 52 部 ) を反応フラスコに投入し、窒素下で 70 に加熱し、予熱した E P O M I N S P - 200 ( MW 10,000 、日本触媒製、 1 . 35 部 ) を投入し、次いで 120 に加熱し、 6 時間攪拌することにより、褐色の粘性液体生成物が得られる。これが剤 13 である。

## 【0098】

## (実施例 19)

中間体 5 ( 47 . 27 部 ) を反応フラスコに投入し、窒素下で 90 に加熱し、予熱した E P O M I N S P - 018 ( MW 1800 、日本触媒製、 1 . 82 部 ) を投入し、 1 . 5 時間攪拌し、次いで 120 に加熱し、 1 時間攪拌することにより、褐色の粘性液体生成物が得られる。これが剤 14 である。

40

## 樹脂分離試験

## 【0099】

各実施例の添加剤 ( 0 . 5 部 の活性含量 ( 0.5 parts of active content ) ) 、スチレンモノマー ( 2 部 ) および P A L A H 814 - 01 樹脂 ( 11 . 25 部 ) を、 D i s p e r m a t ポットに投入し、鋸歯インペラ - 2000 rpm で 5 分間混合する。 P 17 - 02 樹脂 ( 11 . 25 部 ) をポットに投入し、 2000 rpm で 5 分間混合する。混合物を、ガラスバイアルにデカンテーションし、密閉する。これを観察し、材料の分離が見られたら、これを記録する。

【表1】

表1

剤	分離なしが観察された最後	分離が観察された最初。	
剤なし	20 分	30 分	
剤 1	6 時間	24 時間	10
剤 2	48 時間	72 時間	
剤 3	96 時間	168 時間	
剤 4	72 時間	96 時間	
剤 5	48 時間	72 時間	
剤 6	6 時間	24 時間	
剤 7	6 時間	24 時間	
剤 8	24 時間	48 時間	20
剤 9	48 時間	72 時間	
剤 10	72 時間	96 時間	
剤 11	6 時間	24 時間	
剤 12	6 時間	24 時間	
剤 13	48 時間	72 時間	
剤 14	216 時間	240 時間	30

## 【0100】

本明細書で使用される場合、「含む (inc luding)」、「含有する (containing)」、または「～によって特徴付けられる」と同義である、移行句の「含む (com prising)」は、包括的で制約がなく、追加の列挙されていない要素または方法ステップを排除するものではない。しかし、本明細書での「含む (com prising)」の各列挙では、この用語が、代替の実施形態として、「～から本質的になる」および「～からなる」という文言を包含することも意図されるが、この場合、「～からなる」は、指定されていない任意の要素またはステップを排除し、「～から本質的になる」は、検討中の組成物または方法の基本的かつ新規な特徴に実質的に影響を及ぼさない追加の列挙されていない要素またはステップを包含することを許容する。

## 【0101】

「ヒドロカルビル」または「ヒドロカルビレン」という用語は、本発明の文脈内で、分子の残りの部分に直接結合した炭素原子を有しつつ炭化水素または主として炭化水素の特性を有する基を示す。そのような基は、下記を含む：(1) 純粹な炭化水素基；即ち、脂肪族（例えば、アルキルまたはアルケニル）、脂環式（例えば、シクロアルキルまたはシクロアルケニル）、芳香族、脂肪族および脂環式置換芳香族、芳香族置換脂肪族および脂環式基、ならびに同様のもの、ならびに環状基であって、この環が、分子の別の部分を通して完成されている環状基（即ち、任意の 2 個の指示される置換基が、一緒になって脂環式基を形成していてもよい）。そのような基は、当業者に公知である。例には、メチル、

エチル、オクチル、デシル、オクタデシル、シクロヘキシル、フェニルなどが含まれる。  
(2) 置換炭化水素基；即ち、基の主な炭化水素特性を変化させない非炭化水素置換基を含有する基。当業者なら、適切な置換基に気付く。例には、ヒドロキシ、ニトロ、シアノ、アルコキシ、アシルなどが含まれる。  
(3) ヘテロ基；即ち、特性が主に炭化水素であるが、通常なら炭素原子で構成される鎖または環に炭素以外の原子を含有する基。適切なヘテロ原子は、当業者に明らかであり、例えば窒素、酸素、および硫黄を含む。

## 【0102】

以下に記述されるように、本発明のポリマーの数平均分子量は、エチレンオキシドを含有するものを除く全てのポリマー鎖に関してポリスチレン標準を使用するGPC分析などの公知の方法を使用して決定してきた。エチレンオキシドを含有するポリマー鎖の数平均分子量は、GPCによって決定される(THF溶出剤、PEG標準)。

10

## 【0103】

上記にて参照された文書のそれぞれは、参照により本明細書に組み込まれる。実施例の場合または他に明確に示されている場合を除き、材料の量、反応条件、分子量、および炭素原子の数などを指定する、この記述における全ての数量は、「約」という単語により修飾されることを理解されたい。他に指示しない限り、本明細書で言及される各化学物質または組成物は、異性体、副生成物、誘導体、および商用グレードに存在することが通常理解されるそのようなその他の材料を含有していてもよい、商用グレード材料であると解釈すべきである。しかし、各化学成分の量は、他に指示しない限り、商用材料中に通例存在し得る任意の溶媒または希釈油を除外して提示される。本明細書に記述される量、範囲、および比の上限および下限は、独立して組み合わせてもよいことを理解されたい。同様に、本発明の各要素に関する範囲および量は、その他の要素のいずれかに関する範囲または量と一緒に使用されてもよい。

20

## 【0104】

本明細書で使用される場合、「ヒドロカルビレン」という用語は、その用語の通常の意味で使用され、2個の水素原子を炭化水素から除去することによって形成された任意の二価ラジカルを含むものとする。

## 【0105】

本明細書で使用される場合、「アルキ(ケニ)レン(alk(en)ylene)」という用語は、その用語の通常の意味で使用され、アルキレンおよび/またはアルケニレン基を含むものとする。

30

## 【0106】

本発明について、その好ましい実施形態に関連して説明してきたが、本明細書を読むことによってそれらの様々な改変が当業者に明らかになることを理解されたい。したがって、本明細書に開示される本発明は、添付される特許請求の範囲内に包含されるような改変を包含するものであることを理解されたい。

一実施形態において、例えば、以下の項目が提供される。

## (項目1)

不飽和樹脂成型組成物であって、  
相分離を防止する添加剤と、  
50,000g/molよりも高い数平均分子量を有し、および前記組成物中に分散された相として存在すると特徴付けられる、低収縮用の付加重合ポリマー(D)と、  
ラジカル共重合性不飽和樹脂と、  
重合性不飽和モノマーと  
を含み、

40

相分離を防止する前記添加剤が、式：

$R_1 - (OC_2H_2)_x - (OCH_2CH_2)_y - W - COOH$

の官能化ポリエーテルと、分子当たり少なくとも3個の第1級および/または第2級アミン基を有し100から100,000g/molの数平均分子量を有するアミン系多塩基種との反応生成物を含み、前記 $R_1 - (OC_2H_2)_x - (OCH_2CH_2)_y - W -$

50

- COOH : アミン系多塩基種の重量比が 10 : 1 から 60 : 1 であり、  
式中、

R<sub>1</sub> は、環状、分枝状、または非分枝状のアルキル；アリール；アルキルアリールまたはアリールアルキルであってよい C<sub>1</sub> ~ C<sub>3,6</sub> ヒドロカルビル基であり、  
は、3 および / または 4 であり、

x は、10 ~ 60 であり、

y は、0 ~ 10 であり、

- (OC H<sub>2</sub>) および - (OCH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>) 繰り返し単位は、ランダムまたはプロック状などの任意の順序であってよく、y は x 未満でなければならず、

W は、1 ~ 4 個の炭素原子、特に 1 個の炭素原子のヒドロカルビレンを任意選択で含んでもよい、エステル、イミド、または任意選択でアミド連結基であり、

は、6 ~ 10 個の炭素原子のアリール基であり、前記アリール基は、1 ~ 4 個の炭素原子の直鎖状もしくは分枝状アルキル鎖、ハロゲン化物、および / または - NO<sub>2</sub> を含む置換基（単数または複数）を任意選択で有してもよい、

不飽和樹脂成型組成物。

(項目 2)

前記 R<sub>1</sub> - (OC H<sub>2</sub>)<sub>x</sub> - (OCH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>)<sub>y</sub> - W - - COOH 対前記アミン系多塩基種の前記重量比が、15 : 1 から 50 : 1 である、項目 1 に記載の不飽和樹脂組成物。

(項目 3)

前記アミン系多塩基種が、約 140 から約 75,000 g / mol の数平均分子量を有する、項目 1 または 2 に記載の不飽和樹脂組成物。

(項目 4)

x が 10 から 40 である、前記項目のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

(項目 5)

W がエステル連結を含む、項目 1 から 4 のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

(項目 6)

W がイミド連結を含む、項目 1 から 4 のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

(項目 7)

前記アミン系多塩基種が、約 140 から約 20,000 g / mol の数平均分子量を有する、前記項目のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

(項目 8)

前記ラジカル共重合性不飽和樹脂が、不飽和ポリエステルまたはビニルエステル樹脂である、前記項目のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

(項目 9)

前記低収縮添加剤が、スチレンホモポリマー、またはスチレンモノマーから誘導された少なくとも 33 wt % の繰り返し単位を有するコポリマーである、前記項目のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

(項目 10)

前記アミン系多塩基種が、ポリエチレンイミンである、前記項目のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

(項目 11)

ラジカル共重合性不飽和樹脂：重合性不飽和モノマーの重量比が、30 ~ 90 : 10 ~ 70 である、前記項目のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

(項目 12)

前記組成物が、前記不飽和樹脂成型組成物の全重量に対して、少なくとも 3 wt % の細断された、織られた、または巻かれた纖維をさらに含む、前記項目のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

(項目 13)

前記項目のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物を含む、前記不飽和モノマーが重合され

10

20

30

40

50

前記不飽和樹脂が架橋された、成型後の成型物品。

(項目14)

相分離を防止する前記添加剤の量が、前記不飽和樹脂および不飽和モノマーの総量100重量部に対して約0.5から約5重量部の範囲内にある、項目1から12のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

(項目15)

式



の官能化ポリエーテルとアミン系多塩基種との反応生成物である、相分離を防止する前記添加剤が、モノもしくはポリカルボン酸、鉛酸、リンおよびポリオキソメタレートを含有する酸または強酸の群から選択される酸種との塩形成反応によってさらに官能化されるの1つまたは複数の未反応のアミノ基を含む、項目1から12および14のいずれかに記載の不飽和樹脂組成物。

---

フロントページの続き

- (72)発明者 コールベック, エリオット  
イギリス国 エム9 8ゼットエス グレイター マンチェスター, ブラックリー, ヘキサゴ  
ン タワー, ピー.オー. ボックス 42, ルブリゾル リミテッド
- (72)発明者 セトフォード, ディーン  
イギリス国 エム9 8ゼットエス グレイター マンチェスター, ブラックリー, ヘキサゴ  
ン タワー, ピー.オー. ボックス 42, ルブリゾル リミテッド
- (72)発明者 サンダーランド, パトリック ジェイ.  
イギリス国 エム9 8ゼットエス グレイター マンチェスター, ブラックリー, ヘキサゴ  
ン タワー, ピー.オー. ボックス 42, ルブリゾル リミテッド

審査官 北田 祐介

- (56)参考文献 特開2001-213967(JP, A)  
米国特許出願公開第2002/0111429(US, A1)  
特表平04-502645(JP, A)  
特開平10-279644(JP, A)  
特開平11-172092(JP, A)  
特表2007-523966(JP, A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C 08 F  
C 08 L  
C 08 K