

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4124591号  
(P4124591)

(45) 発行日 平成20年7月23日 (2008. 7. 23)

(24) 登録日 平成20年5月16日 (2008. 5. 16)

|                             |               |
|-----------------------------|---------------|
| (51) Int. Cl.               | F I           |
| <b>C09K 3/10 (2006.01)</b>  | C09K 3/10 L   |
| <b>C08G 59/40 (2006.01)</b> | C09K 3/10 Q   |
| <b>C08J 9/10 (2006.01)</b>  | C09K 3/10 Z   |
| <b>C08K 3/00 (2006.01)</b>  | C08G 59/40    |
| <b>C08K 7/20 (2006.01)</b>  | C08J 9/10 CFC |

請求項の数 28 (全 16 頁) 最終頁に続く

|               |                               |           |                     |
|---------------|-------------------------------|-----------|---------------------|
| (21) 出願番号     | 特願2001-526604 (P2001-526604)  | (73) 特許権者 | 502053580           |
| (86) (22) 出願日 | 平成12年9月22日 (2000. 9. 22)      |           | シカ コーポレーション         |
| (65) 公表番号     | 特表2003-510434 (P2003-510434A) |           | アメリカ合衆国 07071 ニュージャ |
| (43) 公表日      | 平成15年3月18日 (2003. 3. 18)      |           | ージー州 リンドハースト ポリト アベ |
| (86) 国際出願番号   | PCT/US2000/026209             |           | ニュー 201             |
| (87) 国際公開番号   | W02001/023461                 | (74) 代理人  | 100080159           |
| (87) 国際公開日    | 平成13年4月5日 (2001. 4. 5)        |           | 弁理士 渡辺 望穂           |
| 審査請求日         | 平成14年10月16日 (2002. 10. 16)    | (74) 代理人  | 100090217           |
| (31) 優先権主張番号  | 09/407, 820                   |           | 弁理士 三和 晴子           |
| (32) 優先日      | 平成11年9月28日 (1999. 9. 28)      | (72) 発明者  | ハンリー ジョン エル. ザ・フォース |
| (33) 優先権主張国   | 米国 (US)                       |           | アメリカ合衆国 ミシガン州 48312 |
|               |                               |           | スターリング ハイッ ストーンゲート  |
|               |                               |           | ドライブ 13222 エーピーティ.  |
|               |                               |           | 2                   |

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 膨張温度に対する許容範囲が広い、固形の膨張性シーラントおよびバッフル構成材ならびにその製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

固形で、初期非粘着性の自動車車体キャビティのシール用の膨張性吸音バッフル構成材であって、

前記構成材は、前記車体に適用されるコーティング材の焼付硬化時に前記車体キャビティ部が経験する 110℃～191℃の温度で膨張することができ、

前記構成材は、酸無水物がグラフト結合されたある量の酸無水物ポリマーと、

前記構成材が前記膨張することができる 110℃～191℃の温度に加熱された際に、前記酸無水物ポリマーの少なくとも一部と反応する末端エポキシドを含んだある量のポリマー添加物と、

前記構成材が自動車車体キャビティ内で前記 110℃～191℃の温度に加熱された際に、前記構成材の成分を膨張させる十分な量の発泡剤と、を含む膨張性吸音バッフル構成材。

【請求項 2】

前記構成材が、選択された自動車車体キャビティ内に相補的に受け入れられるべく設計された充填成型構成材である請求項 1 に記載のバッフル構成材。

【請求項 3】

前記酸無水物ポリマーは、グラフト結合されたオレフィンベースのポリマーであって、前記オレフィンベースのポリマーの少なくとも一部が酸無水物と反応している請求項 1 に記載のバッフル構成材。

## 【請求項 4】

前記グラフト結合されたオレフィンベースのポリマーは、エチレンビニルアセテート、エチレン-*n*-ブチルアクリレート、エチレン・オクタン共重合体およびポリエチレンからなる群から選択される請求項 3 に記載のバツフル構成材。

## 【請求項 5】

前記酸無水物は、無水マレイン酸である請求項 1 に記載のバツフル構成材。

## 【請求項 6】

前記発泡剤は、変性アゾジカルボンアミドおよび未変性のアゾジカルボンアミドからなる群から選択される請求項 1 に記載のバツフル構成材。

## 【請求項 7】

前記発泡剤は、*p*、*p*'-オキシビス（ベンゼンスルホニル）ヒドラジド、*p*-トルエンスルホニルヒドラジドおよびジニトロソペンタメチレン-*tert*-アミンからなる群から選択される請求項 1 に記載のバツフル構成材。

## 【請求項 8】

前記酸無水物がグラフト結合されたポリマーは、前記構成材中に 10 質量% から 60 質量% の範囲で存在する請求項 1 に記載のバツフル構成材。

## 【請求項 9】

前記ポリマー添加物は、前記構成材中に 1 質量% から 10 質量% の範囲で存在する請求項 1 に記載のバツフル構成材。

## 【請求項 10】

前記発泡剤は、前記構成材中に 1 質量% から 10 質量% の範囲で存在する請求項 1 に記載のバツフル構成材。

## 【請求項 11】

前記オレフィンベースのポリマーは、前記構成材中に 1 質量% から 50 質量% の範囲で存在する請求項 3 に記載のバツフル構成材。

## 【請求項 12】

ある量の合成ゴム状物質を含んだ請求項 1 に記載のバツフル構成材。

## 【請求項 13】

前記合成ゴム状物質は、スチレンブタジエンゴム、エチレンプロピレンゴム、エチレンプロピレンジエンゴム、ブタジエンゴム、スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体、スチレン-ブタジエン-スチレンブロック共重合体、スチレン-エチレン/ブチレン-スチレンブロック共重合体、スチレン-エチレン/プロピレンブロック共重合体、ニトリルゴムおよび塩素化ポリエチレンからなる群から選択される請求項 12 に記載のバツフル構成材。

## 【請求項 14】

前記ゴム状物質は、前記構成材中に 1 質量% から 15 質量% の範囲で存在する請求項 12 に記載のバツフル構成材。

## 【請求項 15】

脂肪族炭化水素樹脂、芳香族炭化水素樹脂、脂肪族/芳香族炭化水素樹脂、水素化された炭化水素樹脂、ポリテルペン樹脂、ロジンエステル樹脂、クマロンインデン樹脂、 $\alpha$ -メチルスチレン樹脂およびポリスチレン樹脂からなる群から選択される添加物を含む請求項 1 に記載のバツフル構成材。

## 【請求項 16】

前記脂肪族炭化水素樹脂は、C<sub>5</sub>、C<sub>7</sub> および C<sub>9</sub> の炭化水素で構成される請求項 15 に記載のバツフル構成材。

## 【請求項 17】

前記添加物は、ビスフェノール A ジグリシジルエーテルポリマー、ビスフェノール F ジグリシジルエーテルポリマー、二量体脂肪酸とビスフェノール A のジグリシジルエーテルとの付加物、二量体脂肪酸とビスフェノール F のジグリシジルエーテルとの付加物および末端エポキシド化されたアクリロブタジエンニトリルゴム付加物からなる群から選択され

10

20

30

40

50

る請求項 15 に記載のバッフル構成材。

【請求項 18】

前記構成材は、ある量のワックス生成物を含む請求項 1 に記載のバッフル構成材。

【請求項 19】

前記ワックス生成物は、パラフィンワックス、マイクロワックス、ポリエチレンワックス、ポリアミドワックスおよび天然ワックスからなる群から選択される請求項 18 に記載のバッフル構成材。

【請求項 20】

前記ワックス生成物は、前記構成材中に 1 質量% から 15 質量% の範囲内で存在する請求項 19 に記載のバッフル構成材。

10

【請求項 21】

前記構成材は、充填剤を含む請求項 1 に記載のバッフル構成材。

【請求項 22】

前記充填剤は、炭酸カルシウム、硫酸バリウム、シリカ、硫酸カルシウム、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸マグネシウム、カリウムアルミニウムシリケート、カルシウムメタシリケート、軽石、ガラス小球および有機物充填剤からなる群から選択される請求項 21 に記載のバッフル構成材。

【請求項 23】

前記充填剤は、前記構成材中に 1 質量% から 20 質量% の範囲内で存在する請求項 22 に記載のバッフル構成材。

20

【請求項 24】

自動車車体に適用されるコーティング材の焼付硬化時に前記車体キャビティ部が経験する  $110^{\circ}\text{C} \sim 191^{\circ}\text{C}$  の温度で膨張することができる、固形で、初期非粘着性である、自動車車体キャビティのシール用の膨張性吸音バッフル構成材を形成するための組成物を作製する方法であって、

酸無水物がグラフト結合されたある量の酸無水物ポリマーと、末端エポキシドを含んだある量のポリマー添加物と、前記構成材を自動車車体キャビティ内で前記  $110^{\circ}\text{C} \sim 191^{\circ}\text{C}$  の温度に加熱した際に、前記構成材の成分を膨張させる十分な量の発泡剤と、の混和物を連続して混合する区域を通過させて移送する工程と、

前記混合物を混合しつつ、前記末端エポキシドの少なくとも一部と前記酸無水物がグラフト結合されたポリマーとを反応させるのに十分な時間前記混和物が前記区域にあるようにする工程と、を含んだ方法。

30

【請求項 25】

前記移送する工程が、前記混和物をオーガ型の連続練りミキサを通過させて移送する工程を含む請求項 24 に記載の方法。

【請求項 26】

前記移送する工程が、前記混和物を連続して混合する区域に導入した際の温度に保持した状態で、前記連続して混合する区域を通過させて移送する工程を含む請求項 24 に記載の方法。

【請求項 27】

前記移送する工程が、前記混和物を、1 分間から2 分間の時間で、前記連続して混合する区域を通過させて移送する工程を含む請求項 24 に記載の方法。

40

【請求項 28】

固形で、初期非粘着性の自動車車体キャビティのシール用の膨張性吸音バッフル構成材であって、

前記構成材は、前記車体に適用されるコーティング材の焼付硬化時に前記車体キャビティ部が経験する温度で膨張することができ、

前記構成材は、酸無水物がグラフト結合されたある量のオレフィンベースの酸無水物ポリマーと、

前記構成材が前記膨張することができる温度に加熱された際に、前記酸無水物ポリマー

50

の少なくとも一部と反応する末端エポキシドを含んだある量のポリマー添加物と、

前記構成材が自動車車体キャビティ内で前記温度に加熱された際に、前記構成材の成分を膨張させる十分な量の発泡剤と、

を含み、前記オレフィンベースの酸無水物ポリマーが、エチレンビニルアセテート、エチレン-*n*-ブチルアクリレート、エチレン・オクタン共重合体およびポリエチレンからなる群から選択される膨張性吸音バッフル構成材。

【発明の詳細な説明】

【0001】

発明の背景

〔発明の分野〕

本発明は、膨張温度に対する許容範囲が広く、固形であって、初期非粘着性である自動車車体キャビティ部のシール用の膨張性シーラントおよびバッフル構成材に関し、本発明のシーラントおよびバッフル構成材は、車体に適用されるプライマー、シーラーおよびトップコートの焼付硬化時に、車体キャビティ部が経験する温度で、粘着性になり、かつ膨張することができる。本発明は、また従来よりも広い温度範囲で、所望の度合まで完全に膨張することができるシーラントおよびバッフル構成材を形成する改良された組成物に関する。ある特定の態様において、本発明は、改善された構造的健全性（*structural integrity*）を有し、車体キャビティを定義する構造に補強を与える所望の特性のシーラントおよびバッフル構成材を含む。本発明は、また膨張性シーラントおよびバッフル構成材を作製するための新規な方法に関し、本発明の方法は、連続処理をベースとすることで、バッチ型の処理でしばしば認められた変異性を減少させる。

【0002】

〔従来技術の説明〕

自動車車体は、様々な中空の柱部、キャビティ、通路部および同様な部位を有し、これらの部位は、雑音または汚染物質の侵入を防止するためにシールしなければ、望ましくない雑音、空気の流れ、湿気、ほこりおよび他の気中微粒子が通過しうる。米国特許第5,373,027号公報には、固形で初期非粘着性の熱膨張性シーラントおよびバッフル構成材が開示されており、このシーラントおよびバッフル構成材は、車体の支柱部、キャビティまたは通路中に挿入した後、自動車製造工程のプライマーまたは塗料硬化工程の一部をなす焼付けがまに車体を通過させて移送する際に、熱誘導で膨張し、所望の形状に成形することができる。

【0003】

同公報によれば、固形の膨張性シーラントおよびバッフル構成材を作製するための組成物は、一部が亜鉛のような金属イオンで中和された $\alpha$ 、 $\beta$ 位にエチレン基を含んだ多量のエチレン・不飽和カルボン酸共重合体と、変性されたアゾジカルボンアミドのような少量の発泡剤、少量の低分子量樹脂粘着付与剤を含み、粘着付与剤が高温になると、構成材の外表面に粘着性が付与され、発泡剤によって膨張する。

【0004】

固形の膨張性シーラントおよびバッフル構成材を形成する組成物は、従来の塗料またはプライマー焼付けがまに車体を通過させて移送する際に、車体のキャビティ内で膨張した形状を形成するように機能する。自動車車体に適用される仕上げ塗装の焼付けまたは硬化用の従来のかまは、乾燥される、または硬化されるコーティングに応じて、通常約140℃から約200℃までの範囲の温度で操作される。自動車車体は、通常約10～15分間から2時間までの時間でそれぞれの焼付けがまを通過する。この目的のために、従来の膨張性バッフル構成材は、約135℃から約185℃までの温度で好ましく膨張するように設計されていた。上記公報に開示されている固形の膨張性シーラントおよびバッフル構成材は、自動車製造分野において、実質的な商業的成功を享受している。バッフル構成材は、その使用の容易さと、適当な大きさに作製し、修正して、個々の車体キャビティ部の形状に個別に適合させることができるため、現場膨張可能な自動車用シーラントおよびバッフル構成材に対する人気が近年加速している。さらに、バッフル構成材の膨張は、この目的

のための追加の機器や製造上の操作を与える必要なしに、自動車を焼付けがまに通過させながら現場で実施することができる。

#### 【0005】

予想させる通り、自動車製造手順における塗料および／またはプライマーの焼付け処理の主眼は、自動車車体の表面に適用した塗料および／またはプライマーを適切に、かつ効果的に硬化させることである。自動車および同様の車両の製造時、処理時間は絶対不可欠であり、塗料および／またはプライマー焼付けがまへの車体の滞留時間は、要求される塗料および／またはプライマーの硬化を最短の時間で行うために注意深く調節されている。自動車車体には、位置、長さ、および塗料若しくはプライマーを焼付けするために熱処理される車体表面からの相対距離のいずれもが異なる多数のキャビティおよび通路が存在するため、塗料および／またはプライマーの焼付け硬化時に車体の特定のキャビティおよび通路が経験する実際の温度は有意に異なっており、焼付けサイクル時の他のキャビティまたは通路よりも実質的に高い温度まで上昇する場合もあれば、膨張性バッフル構成材の完全な膨張を保証するのに適切な温度まで上昇しない場合もある。

10

#### 【0006】

技術者は、膨張性バッフル構成材に関して、望ましくない雑音または汚染物質がキャビティを通過しやすいか否かに基づいて、最も都合のよい車体のキャビティ部を選択する。このバッフル位置の選択では、通常は焼付けまたは硬化サイクル時におけるその位置の加熱の程度の差は考慮されない。例えば、金属質量が高い部位では、金属質量が低い部位よりも熱エネルギーの放散が速い。したがって、焼き付け用および硬化用のかまに対して、車体の出口よりも前方では、膨張性バッフル構成材が、バッフル生成物を完全に膨張させるのに必要な十分に高い温度レベルまで到達しない。他方、他のバッフル製品の位置では、熱源に直接近接している、膨張性バッフル構成材を囲んでいるキャビティを定義する金属の性質、またはキャビティが車体の外表面からどれだけ離れているかといった理由により、バッフル材料が過熱される可能性もある。垂直の支柱は、煙突効果を発揮し、車体キャビティ部の到達温度に影響する可能性がある。

20

#### 【0007】

したがって、好適な固形の膨張性シーラントおよびバッフル生成物の組成は、複数の多様で、かつ機能的に異なったパラメータおよび条件を満足することが必要となる。このような組成物は、経済的に構成され、好ましくは既存の機器を用いて、効率的な方法で処理することが必要である。組成物は、所定の形状および大きさを有する自立の成形体へと容易に作製することが必要である。成形体は、キャビティを効果的にシールするために、それが配置される担体や、成形体に関連する好適なバッフル構造に制限されることなしに、元の大きさから全方向に実質的に均一に膨張することができる。膨張性の組成物から形成された成形体は、自動車車体の各キャビティ中に挿入する目的で形成されるため、固形で、非粘着性であることが必須である。

30

#### 【0008】

特に、自動車車体中のキャビティは、互いにその到達温度が異なるため、膨張性シーラントおよびバッフル構成材を作製するための組成物は、膨張性の部材が設置されたキャビティが経験する可能性のある最も低い温度でも高度に膨張することが必要である。同様に、膨張性シーラントおよびバッフル生成物は、車体の塗料および／またはプライマーの硬化サイクル中に、膨張性の部材を収容するキャビティのいずれか1つが経験する可能性のある最も高い温度でも炭化および／または燃焼してはならない。

40

#### 【0009】

さらに、組成物は、自動車車体のキャビティに挿入され、塗料またはプライマーの焼付けがまで硬化される膨張性の部材に形成された際に、物理的な網目状の構造を有することが必要である。この網目状の構造は、組成物中に組み込まれた発泡剤によって発生したガスの封じ込めを高めて、それによって部材が、使用の際に高度の膨張性を保持していることを保証する。

#### 【0010】

50

また、膨張性シーラントおよびバッフル構成材の特定態様において、雑音、空気および湿気に対するバリア特性を保持しつつ、車体のキャビティを定義する構造に追加の補強を与える機能的特性を有することが望ましい。

#### 【0011】

##### [発明の要約]

本発明は、膨張温度に対する許容範囲が広く、固形で、初期非粘着性である自動車車体キャビティ部のシール用の膨張性シーラントおよび吸音バッフル構成材を与える。このシーラントおよびバッフル構成材は、膨張性の部材が存在することで利益が予想される自動車車体のキャビティの、仮にその全てではなくとも、その大半が経験する温度の実質的全範囲で粘着性になり、膨張することができる。したがって、本発明のシーラントおよび吸音バッフル構成材は、同様の用途に従来利用可能な製品よりも実質的により広い時間および温度に対する許容範囲を有する。

10

#### 【0012】

具体的には、本発明は、自動車車体キャビティ用の新規の膨張性シーラントおよび吸音バッフル構成材に関し、このシーラントおよびバッフル構成材は、所望の初期形状に前もって成形されていてもよく、車体全体について見た場合に、自動車製造操作の塗料および／またはプライマーの焼付けサイクル中でキャビティが到達する温度がキャビティ間で実質的に異なるにもかかわらず、シーラントおよびバッフル構成材を収納するキャビティの位置とは実質的に関係なしに、該サイクル中に個々の車体キャビティが通常経験する温度まで上昇した際に、比較的高度に膨張する。

20

また、本発明は、以下の(1)～(28)を提供するものである。

(1) 固形で、初期非粘着性の自動車車体キャビティのシール用の膨張性吸音バッフル構成材であって、

前記構成材は、前記車体に適用されるコーティング材の焼付硬化時に前記車体キャビティ部が経験する110℃～191℃の温度で膨張することができ、

前記構成材は、酸無水物がグラフト結合されたある量の酸無水物ポリマーと、

前記構成材が前記膨張することができる110℃～191℃の温度に加熱された際に、前記酸無水物ポリマーの少なくとも一部と反応する末端エポキシドを含んだある量のポリマー添加物と、

前記構成材が自動車車体キャビティ内で前記110℃～191℃の温度に加熱された際に、前記構成材の成分を膨張させる十分な量の発泡剤と、を含む膨張性吸音バッフル構成材。

30

(2) 前記構成材が、選択された自動車車体キャビティ内に相補的に受け入れられるべく設計された充填成型構成材である前記(1)に記載のバッフル構成材。

(3) 前記酸無水物ポリマーは、グラフト結合されたオレフィンベースのポリマーであって、前記オレフィンベースのポリマーの少なくとも一部が酸無水物と反応している前記(1)に記載のバッフル構成材。

(4) 前記グラフト結合されたオレフィンベースのポリマーは、エチレンビニルアセテート、エチレン-*n*-ブチルアクリレート、エチレン・オクタン共重合体およびポリエチレンからなる群から選択される前記(3)に記載のバッフル構成材。

40

(5) 前記酸無水物は、無水マレイン酸である前記(1)に記載のバッフル構成材。

(6) 前記発泡剤は、変性アゾジカルボンアミドおよび未変性のアゾジカルボンアミドからなる群から選択される前記(1)に記載のバッフル構成材。

(7) 前記発泡剤は、*p*、*p*'-オキシビス(ベンゼンスルホニル)ヒドラジド、*p*-トルエンスルホニルヒドラジドおよびジニトロソペンタメチレン-*tert*-アミンからなる群から選択される前記(1)に記載のバッフル構成材。

(8) 前記酸無水物がグラフト結合されたポリマーは、前記構成材中に10質量%から60質量%の範囲で存在する前記(1)に記載のバッフル構成材。

(9) 前記ポリマー添加物は、前記構成材中に1質量%から10質量%の範囲で存在する前記(1)に記載のバッフル構成材。

50

(10) 前記発泡剤は、前記構成材中に1質量%から10質量%の範囲で存在する前記(1)に記載のバツフル構成材。

(11) 前記オレフィンベースのポリマーは、前記構成材中に1質量%から50質量%の範囲で存在する前記(3)に記載のバツフル構成材。

(12) ある量の合成ゴム状物質を含んだ前記(1)に記載のバツフル構成材。

(13) 前記合成ゴム状物質は、スチレンブタジエンゴム、エチレンプロピレンゴム、エチレンプロピレンジエンゴム、ブタジエンゴム、スチレンーイソブレンースチレンブロック共重合体、スチレンーブタジエンースチレンブロック共重合体、スチレンーエチレン／ブチレンースチレンブロック共重合体、スチレンーエチレン／プロピレンブロック共重合体、ニトリルゴムおよび塩素化ポリエチレンからなる群から選択される前記(12)に記載のバツフル構成材。

10

(14) 前記ゴム状物質は、前記構成材中に1質量%から15質量%の範囲で存在する前記(12)に記載のバツフル構成材。

(15) 脂肪族炭化水素樹脂、芳香族炭化水素樹脂、脂肪族／芳香族炭化水素樹脂、水素化された炭化水素樹脂、ポリテルペン樹脂、ロジンエステル樹脂、クマロンインデン樹脂、 $\alpha$ -メチルスチレン樹脂およびポリスチレン樹脂からなる群から選択される添加物を含む前記(1)に記載のバツフル構成材。

(16) 前記脂肪族炭化水素樹脂は、 $C_5$ 、 $C_7$  および  $C_9$  の炭化水素で構成される前記(15)に記載のバツフル構成材。

(17) 前記添加物は、ビスフェノールAジグリシジルエーテルポリマー、ビスフェノールFジグリシジルエーテルポリマー、二量体脂肪酸とビスフェノールAのジグリシジルエーテルとの付加物、二量体脂肪酸とビスフェノールFのジグリシジルエーテルとの付加物および末端エポキシド化されたアクリロブタジエンニトリルゴム付加物からなる群から選択される前記(15)に記載のバツフル構成材。

20

(18) 前記構成材は、ある量のワックス生成物を含む前記(1)に記載のバツフル構成材。

(19) 前記ワックス生成物は、パラフィンワックス、マイクロワックス、ポリエチレンワックス、ポリアミドワックスおよび天然ワックスからなる群から選択される前記(18)に記載のバツフル構成材。

(20) 前記ワックス生成物は、前記構成材中に1質量%から15質量%の範囲内で存在する前記(19)に記載のバツフル構成材。

30

(21) 前記構成材は、充填剤を含む前記(1)に記載のバツフル構成材。

(22) 前記充填剤は、炭酸カルシウム、硫酸バリウム、シリカ、硫酸カルシウム、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸マグネシウム、カリウムアルミニウムシリケート、カルシウムメタシリケート、軽石、ガラス小球および有機物充填剤からなる群から選択される前記(21)に記載のバツフル構成材。

(23) 前記充填剤は、前記構成材中に1質量%から20質量%の範囲内で存在する前記(22)に記載のバツフル構成材。

(24) 自動車車体に適用されるコーティング材の焼付硬化時に前記車体キャビティ部が経験する110℃～191℃の温度で膨張することができる、固形で、初期非粘着性である、自動車車体キャビティのシール用の膨張性吸音バツフル構成材を形成するための組成物を作製する方法であって、

40

酸無水物がグラフト結合されたある量の酸無水物ポリマーと、末端エポキシドを含んだある量のポリマー添加物と、前記構成材を自動車車体キャビティ内で前記110℃～191℃の温度に加熱した際に、前記構成材の成分を膨張させる十分な量の発泡剤と、の混和物を連続して混合する区域を通過させて移送する工程と、

前記混合物を混合しつつ、前記末端エポキシドの少なくとも一部と前記酸無水物がグラフト結合されたポリマーとを反応させるのに十分な時間前記混和物が前記区域にあるようにする工程と、を含んだ方法。

(25) 前記移送する工程が、前記混和物をオーガ型の連続練りミキサを通過させて移

50

送する工程を含む前記（２４）に記載の方法。

（２６）前記移送する工程が、前記混和物を連続して混合する区域に導入した際の温度に保持した状態で、前記連続して混合する区域を通過させて移送する工程を含む前記（２４）に記載の方法。

（２７）前記移送する工程が、前記混和物を、１分間から２分間の時間で、前記連続して混合する区域を通過させて移送する工程を含む前記（２４）に記載の方法。

（２８）固形で、初期非粘着性の自動車車体キャビティのシール用の膨張性吸音バッフル構成材であって、

前記構成材は、前記車体に適用されるコーティング材の焼付硬化時に前記車体キャビティ部が経験する温度で膨張することができ、

前記構成材は、酸無水物がグラフト結合されたある量のオレフィンベースの酸無水物ポリマーと、

前記構成材が前記膨張することができる温度に加熱された際に、前記酸無水物ポリマーの少なくとも一部と反応する末端エポキシドを含んだある量のポリマー添加物と、

前記構成材が自動車車体キャビティ内で前記温度に加熱された際に、前記構成材の成分を膨張させる十分な量の発泡剤と、

を含み、前記オレフィンベースの酸無水物ポリマーが、エチレンビニルアセテート、エチレン-*n*-ブチルアクリレート、エチレン・オクタン共重合体およびポリエチレンからなる群から選択される、膨張性吸音バッフル構成材。

#### 【００１３】

ある特定の態様に独自に設計された組成物は、初期固形で、非粘着性の膨張性組成物を加熱して構成材を作製した場合に、膨張性の構成材は、それを収納するキャビティを定義する自動車車体の壁面構造物に構造的健全性を付加するように作用する。

#### 【００１４】

膨張温度に対する許容範囲が広い膨張性シーラントおよびバッフル構成材の作製に用いる組成物は、無水物がグラフト結合されたある量のポリマーを含む。該ポリマーは、初期非粘着性であっても、自動車車体が塗料および／またはプライマーの焼付けがまを通過する際に、車体キャビティが経験する温度の全範囲で、膨張性構成材の粘着性および接着性を向上させる特性を有する。したがって、自動車車体内に配置された膨張性構成材は、焼付けがまでの塗料および／またはプライマーの硬化時に構成材が膨張すると、キャビティの壁面にしっかりと接着する。無水マレイン酸がグラフト結合されたエチレンビニルアセテートは、組成物の無水物がグラフト結合されたポリマーとして好ましい。これは、例えば約１２０℃未満の、比較的低い融点を持つ。これは膨張性構成材が実質的に膨張する温度よりも低い温度である。同じく重要な点として、グラフト結合されたEVAポリマーは、塗料および／またはプライマーの硬化サイクル時にシーラントおよびバッフルを収納するキャビティが経験する最も高い温度でも、燃焼または炭化することなく、粘着性を向上させる特性と所望の粘度特性を保持している。

#### 【００１５】

固形で、非粘着性である膨張性構成材を作製するための組成物は、また末端エポキシドを有するポリマー添加物を含む。このエポキシドは、シーラントおよび吸音バッフル構成材を膨張させるのに十分な高温で無水物ポリマーの少なくとも一部と反応することができる。車体の塗料および／またはプライマーの焼付け時にキャビティ内のシーラントおよび吸音バッフル構成材が経験する温度で起る無水物ポリマーおよびエポキシポリマー間の架橋反応は、三次元的な網目構造および橋掛け構造を有する構成要素を形成し、構成材が、その中に組み込まれた発泡剤によって膨張するのを容易にし、膨張後の最終生成物のガス保持特性を向上させる。従来技術のポリマーでの実施とは対照的に、末端エポキシド化されたポリマーと無水物がグラフト結合されたポリマーとの反応は触媒なしで実施される。結果的に、ポリマーの適切な架橋が起こり、発泡剤から放出されたガスを効果的に封じ込める多孔性の格子状生成物を与える。しかし、２つの構成要素間での架橋および共重合体のフリーラジカル重合は、シーラントおよびバッフル組成物から作製されたバッフル生成物

10

20

30

40

50



の柔軟性および膨張特性を減少させるほど顕著ではない。

#### 【0016】

固形で、初期非粘着性である膨張性シーラントおよび吸音バッフル構成材は、その融点で膨張後の生成物の粘着性を向上させる作用をする無水物がグラフト結合されたポリマーを含んだ組成物からバッチ型のミキサ処理により作製してもよい。成分として無水物がグラフト結合されたポリマーを含んだ組成物のバッチ式によるミキサ処理は、自動車の塗料および／またはプライマーの焼付けがまで経験される温度の範囲内で要求される程度まで膨張することができる最終生成物を作製する。しかし、従来の連続練りミキサを用いて、無水物がグラフト結合されたポリマーを含んだ成分から組成物を作製する試みは成功していない。連続練りミキサで作製した材料からなり、焼付けがま温度で硬化させた部品は、高い流動性と低い膨張性を示し、得られる生成物は所望の用途に有用ではない。

10

#### 【0017】

膨張温度に対する許容範囲が広く、固形で、初期非粘着性である膨張性シーラントおよび吸音バッフル構成材の作製に使用される組成物に、末端エポキシドを有するポリマーと、無水物がグラフト結合されたポリマーを含めることにより、成形後の未膨張の生成物を焼付けがまレベルの温度を加えた際に、該組成物から成形された組成物の膨張の程度に悪影響することなく連続型の練りミキサで処理できることを予期せず発見した。シーラントおよび吸音バッフル構成材として、無水物がグラフト結合されたポリマーおよび末端エポキシドポリマーの組み合わせで制限された反応を行うと、構成材の焼付けがま内での熱誘導による膨張と溶融粘度を増加させる。

20

#### 【0018】

[好ましい実施形態の詳細な説明]

図1の自動車車体10は、エンジン区画12、乗員区画14およびトランク区域16を定義する複数の内部接続され、中空形状のフレーム部材、支柱、またはレールを含む。引用することで本明細書の一部をなす米国特許5,506,025号公報で説明されているように、乗員区画14を囲む垂直の支柱は、従来A、BおよびCのような符号で呼ばれる。一方、前方に伸びるフレーム部材18は、エンジンレールと呼ばれる。同様に、車体10の下部の水平方向に伸びる筒状構成材20は、通常ロッカーパネルレールとして識別される。

30

#### 【0019】

本発明は、膨張温度に対する許容範囲が広く、固形で、初期非粘着性である改善された膨張性シーラントおよび吸音バッフル構成材に関し、例えば、図2～図4に示すように、成形された構成材22の形態であってもよい。構成材22は、金属またはナイロンのような様々な材料製であってよい担体24に相補的に配置されるように設計されている。担体24の機能は、自動車車体10が、自動車製造工程の一部をなす従来の塗料および／またはプライマー焼付けがまを通過させて移送する際に、成形された膨張性構成材22を車体10の選択された車体キャビティに保持し、構成材22を膨張させるまでの間所定の位置に固定することともに、膨張性構成材の車体10の特定のキャビティ内における膨張後の形状を選択的に調節するガイドバリアとして作用することである。

40

#### 【0020】

図2に最もよく示されているように、特別に設計された担体24は、例えば、主プレート部分26と、ガセットプレート30によって主プレート部分26と接続される垂直延長部分32とを有していてもよい。所望により、プレート26には、破線で示したクランプ34を受けるためのクランプ取り付け要素32が与えられてもよい。これにより、自動車車体10の壁面構造36に、担体24およびその上に配置された構成材22を固定するのが容易になる。プレート26は、成形された膨張性構成材22の主体部分42の各開口部40を受けられる多数のとげ部(b a r b)を含む。これにより構成材22が担体24のプレート26に接続される。図2～図4に図示した例において、成形された構成材22は、担体24の延長部分28の反対方向に置かれ、該延長部分28と相補的に係合する垂直方向の腕部44を有する。

50

## 【0021】

この点に関して、上記で参照した米国特許 5, 506, 025 号公報で詳細に説明されているように、構成材 22 は、好ましくは射出成形または、その膨張時に、車体 10 のキャビティ内に現場で発泡されたシーラントおよびバッフルバリアを形成する自立の成形体を作製するための同等の手法を用いて所望の形状を作製することが好ましい。図示の成形された構成材 22 の形状は、単に説明を目的としており、個々の構成材 22 の寸法および形状は、膨張性の構成材 22 が配置される車体キャビティの断面形状に一致するように選択的に変更してもよい。構成材 22 の具体的な形状および大きさは、車体キャビティ内で膨張された形態で実施されるシーリングおよびバッフル機能で示される多くの例である。

## 【0022】

図 1～図 4 は、特に成形可能な膨張性バッフル生成物が好適な比較的剛直な担体上に配置された形態で示しているが、本発明は相補的な担体に配置されるように設計された膨張性バッフル生成物に限定されないと理解される。特にキャビティの通路が全体において、基本的に水平方向となっているある用途において、成形された膨張性のバッフル要素は、その通路の所望の位置に単に諸条件を考慮して配置してもよい。これらの例において多くの場合、バッフル製品は、きわめて正確な位置に配置することは必要ではない。

## 【0023】

要求される物理特性および化学特性を有する膨張性構成材 22 を作製するための成形可能な組成物は、無水物がグラフト結合されたある量のポリマーと、末端エポキシドを含んだある量のポリマー添加物とを含む。自動車車体を自動車製造操作の一部をなす従来の塗料および／またはプライマー焼付けがまを通過させて移送する際に、膨張性構成材がそれを収納する自動車車体キャビティが経験する温度まで加熱されると、末端エポキシドは、無水物ポリマーの少なくとも一部と反応する。さらに、成形可能な組成物は、構成材が焼付けがま内での自動車車体の焼付け時に加熱された場合に、組成物から成形された構成材を膨張させる好適な発泡剤を含む。望ましくは、成形可能な組成物は、固形で、初期非粘着性である成形された構成材 22 が、焼付けがま中で加熱されて膨張する時に、その外表面に粘着性を付与する。成形された構成材 22 中の無水物がグラフト結合されたポリマーは、焼付けがま中で加熱する際に、接着剤のような形でいくらか機能し、成形された構成材が膨張する際に、その粘着特性を向上させる。

## 【0024】

本発明の改善された組成物を作製するのに有用な無水物がグラフト結合されたポリマーの具体例は、酸無水物が官能基としてグラフト結合されたエチレンビニルアセテート、酸無水物が官能基としてグラフト結合されたエチレン- $n$ -ブチルアセテート、酸無水物が官能基としてグラフト結合されたエチレン・オクタン共重合体、酸無水物が官能基としてグラフト結合されたポリエチレン、酸無水物が官能基としてグラフト結合されたポリプロピレン、酸無水物が官能基としてグラフト結合されたエチレンプロピレンゴムを含む。個々の例において、好ましい酸無水物は、マレイン酸無水物である。好ましいオレフィンベースのグラフト結合されたポリマーは、マレイン酸無水物が官能基としてグラフト結合されたエチレンビニルアセテートである。無水物がグラフト結合されたオレフィンベースのポリマーは、組成物中に約 10 質量%から約 60 質量%存在する。

## 【0025】

末端エポキシドを含むポリマー添加物は、好ましくはエポキシ当量約 400 超で特徴付けられる固体ビスフェノール A ジグリシジルエーテルポリマーまたは固体ビスフェノール F ジグリシジルエーテルポリマー（ビスフェノール A またはビスフェノール F と、エピクロロヒドリンから誘導される）からなる群、エポキシ当量約 150 から約 220 で特徴付けられる液体ビスフェノール A ジグリシジルエーテルポリマーまたは固体ビスフェノール F ジグリシジルエーテルポリマー（ビスフェノール A またはビスフェノール F と、エピクロロヒドリンから誘導される）からなる群、二量体脂肪酸と、ビスフェノール A またはビスフェノール F のジグリシジルエーテルとの付加物（Epikote または Epon 872）、末端エポキシドのアクリロニトリルブタジエンゴムの付加物（CTBN、Hycal

10

20

30

40

50

r 1300×8、1300×13)から選択される。好ましい添加物は、ビスフェノールAジグリシジルエーテルポリマーである。末端エポキシドを有するポリマーは、組成物中に好ましくは約1質量%から約10質量%存在する。

#### 【0026】

組成物は、また好適な発泡剤も与えられている。発泡剤は、好ましくは変性アゾジカルボンアミド、未変性のアゾジカルボンアミド、p, p'-オキシビス(ベンゼンスルホン)ヒドラジド、p-トルエンスルホンヒドラジドおよびジニトロソペンタメチレン-tert-アミンからなる群から選択される。好ましい発泡剤は、アゾジカルボンアミドである。発泡剤は、組成物中に好ましくは約1質量%から約10質量%存在する。

#### 【0027】

従来の膨張性の組成物よりも膨張温度に対する許容範囲が広い、固形で、初期非粘着性である膨張性シーラントおよび吸音バップル構成材を作製するための組成物は、また充填剤ポリマーを含んでもよい。充填剤ポリマーは、好ましくはエチレンビニルアセテート、エチレン-n-ブチルアセテート、エチレン・オクタン共重合体、ポリエチレン、ポリプロピレンおよびエチレン・メタクリル酸共重合体からなる群から選択される。好ましい充填剤ポリマーは、エチレンビニルアセテートである。組成物に組み込まれる場合に、充填剤ポリマーは、約1質量%から約50質量%存在してもよい。

#### 【0028】

ゴム状成分もまた、膨張性構成材を作製するための組成物に含んでもよい。ゴム状成分は、好ましくはスチレンブタジエンゴム、エチレンプロピレンゴム、エチレン・プロピレン・ジエンゴム、ブタジエンゴム、スチレン・イソプレン・スチレンブロック共重合体、スチレン・ブタジエン・スチレンブロック共重合体、スチレン・エチレン/プロピレンブロック共重合体、ニトリルゴム、および塩素化ポリエチレンからなる群から選択される。好ましいゴム状成分は、スチレンブタジエンゴムである。ゴム状成分は、組成物中に約1質量%から約15質量%存在してもよい。

#### 【0029】

成形および処理助剤も組成物中に含めてもよい。助剤は、好ましくはパラフィンワックス、マイクロワックス、ポリエチレンワックス、ポリアミドワックス、および天然ワックスからなる群から選択される。組成物に使用する場合、好ましい成形および処理補助物はポリエチレンワックスである。成形および処理助剤は、組成物中に約1質量%から約15質量%存在してもよい。

#### 【0030】

膨張開始に続いて、膨張性の構成材の粘着性を向上させる粘着付与剤を組成物中に含めてもよい。粘着付与剤を使用する場合、脂肪族炭化水素樹脂、芳香族炭化水素樹脂、脂肪族/芳香族炭化水素樹脂、水素化された炭化水素樹脂、ポリテルペン樹脂、ロジンエステル樹脂、クマロンインデン樹脂、α-メチルスチレン樹脂およびポリスチレン樹脂からなる群から選択される。脂肪族炭化水素樹脂および芳香族炭化水素樹脂の主要部分は、好ましくは脂肪族炭化水素の場合、主としてC<sub>5</sub>、C<sub>7</sub>およびC<sub>9</sub>の炭化水素で構成され、芳香族炭化水素の場合、主として等価の炭化水素で構成される。粘着付与剤の量は、約1質量%から約15質量%であってもよい。

#### 【0031】

無機充填剤または有機充填剤を、約1質量%から約20質量%の範囲の量で組成物中に含めてもよい。充填剤は、好ましくは炭酸カルシウム、硫酸バリウム、シリカ、硫酸カルシウム、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸マグネシウム、カリウムカルシウムシリケート、カルシウムメタシリケート、軽石、ガラス小球、有機充填剤からなる群から選択される。好ましい充填剤は、炭酸カルシウムである。無機充填剤または有機充填剤の量は、組成物中に約1質量%から約20質量%であってもよい。

#### 【0032】

本発明の必須パラメータに適合する膨張性のシーラントおよびバップル構成材を作製する際、具体的に使用される組成物は、各成分を押し出し機のような従来の連続操作可能な機

10

20

30

40

50

械に導入して作製してもよい。機械の具体例は、単軸配合機、往復動単軸押出機、二軸押出機を含む。この種の押出機は、従来その長手方向に沿って、2個～4個のインレットを含み、バレルの長さに対する軸の径の比は、約7：1から約18：1の範囲である。好ましくは、発泡剤を含む反応性の試薬を除いた組成物の成分は、全て押し出し機の第1の入口ポートに添加される。反応性の試薬および発泡剤は、通常4個入口ポートを有する押し出し機の第3の入口ポートに添加される。第3の入口ポートは、第1の入口ポートから通常押し出し機のバレルの長さに沿って約50%から約75%離れている。残留時間は、名目上の処理時間が約2分間である場合に、通常約1分間から3分間の範囲である。

【0033】

連続押出機は、押し出し物を一連のペレットに切断するためのナイフが備え付けられている。望ましくは、押出機から放出された押し出し物は、水浴に浸して冷却することで、実質的に固体の状態を保証することができる。または、連続押出機からの押し出し物は、ストランドとしてストランドペレット成形機に導き、小型の円筒形のペレットに切断することもできる。

10

【0034】

押出機からのペレットは、通常は120℃未満の温度で、好ましくは80℃から100℃の範囲の温度で、射出成形機により複合物の膨張性シーラントおよびバッフル生成物に成形することができる。

【0035】

本発明の改良された膨張性バッフル構成材は、自動車車体の通路を定義するキャビティでの使用に関する特定の有用性について記載したが、膨張性構成材は、製造時および／または処理時に生成物の温度が上昇する他の生成物に使用した場合にも利益を提供すると理解される。例えば、多くの装置は、通路を与える構造保持部材を有し、この構造物が定義する通路にシーラントおよびバッフル要素を組み込むことで、通路への望ましくない汚染物質の侵入または該通路を介しての汚染物質の通過が防止される利益が得られる。さらに、これらの装置の多くは、焼付けがまで乾燥され、および／または硬化される塗料またはコーティング材が適用される。冷蔵庫は、装置の保持構造物に本発明の改良されたシーラントおよびバッフル部品を適用するのが好都合な装置の一例である。

20

【0036】

【表1】

30

| 膨張性構成材                   | 1753B-16UUU<br>バッチ処理 | 1753B-16VVV<br>バッチ処理 | 1753B-16ZZZ<br>バッチ処理 | 1753B-16ZZZ<br>連続処理 | 1753B-16B3<br>連続処理 | 372Z-001B<br>連続処理 |
|--------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|---------------------|--------------------|-------------------|
| Bynel CXA-E418           | 46.0 %               | 43.5 %               | 41.0 %               | 41.0 %              | 28.5 %             | 38.0 %            |
| Elvax 265                | 25.0 %               | 27.5 %               | 27.5 %               | 27.5 %              | 31.0 %             | 25.0 %            |
| SBR                      | 2.5 %                | 2.5 %                | 2.5 %                | 2.5 %               | 5.0 %              | 5.0 %             |
| Tylin 2136P              | 10.0 %               | 7.5 %                | 7.5 %                | 7.5 %               | 7.5 %              | 5.0 %             |
| Nevtac 100               | 5.0 %                | 7.5 %                | 7.5 %                | 7.5 %               | 7.5 %              | 10.0 %            |
| Microsere 5999           |                      |                      |                      |                     | 5.0 %              |                   |
| Marcus M200              |                      |                      |                      |                     |                    | 7.5 %             |
| Epon 1001F               |                      |                      |                      |                     |                    | 6.5 %             |
| Ardite GT 9654           | 8.0 %                | 8.0 %                | 8.0 %                | 8.0 %               | 9.0 %              |                   |
| Celogen 765A             |                      |                      |                      |                     |                    |                   |
| Unicell DL75N            | 1.0 %                | 1.0 %                | 1.0 %                | 1.0 %               | 1.5 %              |                   |
| Unicell OH               |                      |                      |                      |                     | 0.4 %              |                   |
| Unicell GP3              |                      |                      |                      |                     |                    |                   |
| ZnO                      |                      |                      |                      |                     |                    |                   |
| Polar 9910               | 2.5 %                | 2.5 %                | 2.5 %                | 2.5 %               | 4.6 %              | 3.0 %             |
| Quincy White 325         | 100.0 %              | 100.0 %              | 100.0 %              | 100.0 %             | 100.0 %            | 100.0 %           |
| 合計                       |                      |                      |                      |                     |                    |                   |
| 膨張容積                     | 高                    | 高                    | 高                    | 高                   | 高                  | 高                 |
| 149 °C                   | 高                    | 高                    | 高                    | 高                   | 高                  | 高                 |
| 163 °C                   | 高                    | 高                    | 高                    | 高                   | 高                  | 高                 |
| 177 °C                   | 高                    | 高                    | 高                    | 高                   | 高                  | 高                 |
| 191 °C                   | 高                    | 高                    | 高                    | 高                   | 高                  | 高                 |
| 接着 (163 °C) <sup>1</sup> | 良好                   | 良好                   | 良好                   | 良好                  | 良好                 | 良好                |
| 初期                       | 並                    | 並                    | 並                    | 並                   | 並                  | 並                 |
| 加熱時                      | 良好                   | 良好                   | 良好                   | 良好                  | 良好                 | 良好                |
| 250 時間                   | 良好                   | 良好                   | 良好                   | 良好                  | 良好                 | 良好                |
| 250 時間                   | 良好                   | 良好                   | 良好                   | 良好                  | 良好                 | 良好                |
| 塩水噴霧                     | 良好                   | 良好                   | 良好                   | 良好                  | 良好                 | 良好                |
| 硬化時流動(163°C)             | なし                   | なし                   | なし                   | なし                  | わずか                | わずか               |

## 【0037】

<sup>1</sup> 基質：冷延鋼、溶融亜鉛めっき、ガルバニール、電着コートされた鋼、リン酸処理された鋼

Bynel CXA-E418：無水マレイン酸が官能基としてグラフト結合されたエチレンビニルアセテート

Elvax 265：エチレンビニルアセテート

SBR：スチレンブタジエンゴム

Tylin 2136P：塩素化ポリエチレン

Nevtac 100：脂肪族炭化水素樹脂（C<sub>5</sub>、C<sub>7</sub> および C<sub>9</sub>）

Microsere：マイクロワックス

Marcus M200：ポリエチレンワックス

Epon 1001F：ビスフェノールAジグリシジルエーテルポリマー

Ardite GT 9654：ビスフェノールAジグリシジルエーテルポリマー

Celogen 765A：変性アゾジカルボンアミド  
 Unicell DL75N：変性アゾジカルボンアミド  
 Unicell OH：p、p' オキシビス（ベンゼンスルホニル）ヒドラジド  
 Unicell GP3：ジニトロソペンタメチレン-tert-アミン  
 ZnO：酸化亜鉛  
 Polar9910：カリウムアルミニウムシリケート  
 Quincy White325：炭酸カルシウム  
 容積拡張 “高”：200%以下  
 “低”：800%以上

【図面の簡単な説明】

10

【図1】 自動車車体の斜視図であり、車体キャビティを与える様々な支柱、エンジンレールおよび車体側面の筒状構造を示している。個々のキャビティは、望ましくは湿気、雑音および微細物質に対して効果的にシールするシーラントおよびバッフル構成材を含む。

【図2】 図1に示す自動車車体のキャビティ内に相補して一致するように特に設計された、成形された構造材用の担体の側面図とともに、成形された、固形で、初期非粘着性である膨張性シーラントおよび吸音バッフル構成材の組み合わせを示す側面分解図との合成図である。

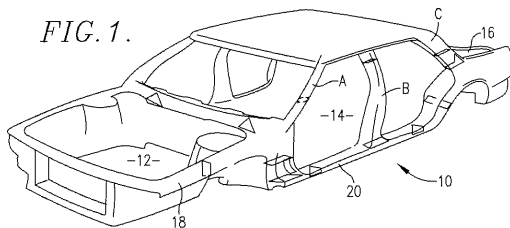
【図3】 図2の構成材および担体の側面図であり、両者が組み合わされた状態で示されている。

【図4】 図3の構成材および担体の平面図であり、アセンブリは、車体のキャビティの一部を定義する自動車車体のパネル上に配置された状態で示されている。

20

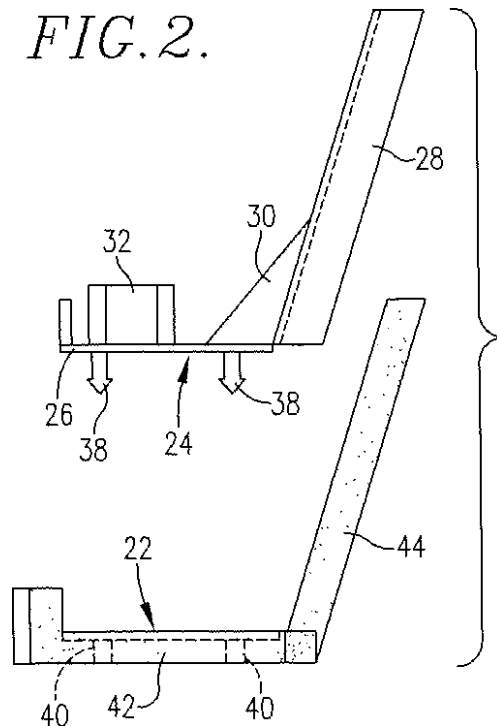
【図1】

FIG. 1.



【図2】

FIG. 2.



【図 3】

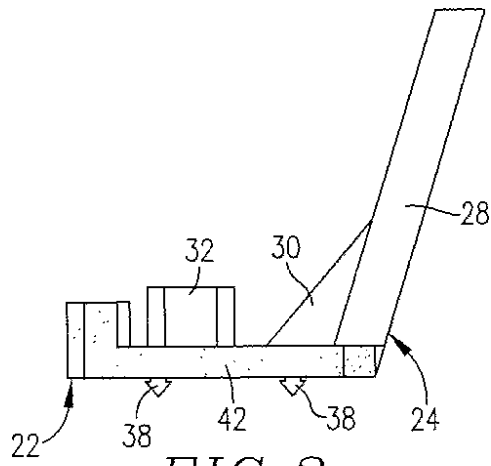


FIG. 3.

【図 4】

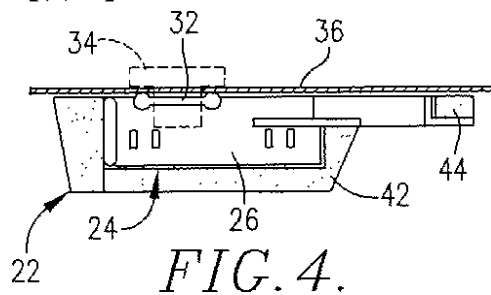


FIG. 4.

---

フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I  
C O 8 L 63/00 (2006.01) C O 8 K 3/00  
C O 8 L 101/00 (2006.01) C O 8 K 7/20  
C O 8 L 63/00 A  
C O 8 L 101/00

(72)発明者 ブランク ノーマン イー.  
アメリカ合衆国 ニュージャージー州 07470 ウェイン パークウッド ドライブ 27

審査官 中野 孝一

(56)参考文献 特開平07-034058 (JP, A)  
特開昭61-243835 (JP, A)  
特開平08-143743 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)  
C09K3/10-3/12、  
C08J9/00-9/42、  
C08L1/00-101/14