

(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2005-520898

(P2005-520898A)

(43) 公表日 平成17年7月14日(2005.7.14)

(51) Int.Cl.⁷

C08G 64/00
B65D 1/09
C08J 5/00
// B65D 1/02
C08L 69:00

F 1

C08G 64/00
C08J 5/00
B65D 1/00
B65D 1/02
C08L 69:00

テーマコード(参考)

3 E O 3 3
4 F O 7 1
4 J O 2 9

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 27 頁)

(21) 出願番号 特願2003-578449 (P2003-578449)
(86) (22) 出願日 平成15年3月20日 (2003.3.20)
(85) 翻訳文提出日 平成16年11月19日 (2004.11.19)
(86) 國際出願番号 PCT/EP2003/002901
(87) 國際公開番号 WO2003/080706
(87) 國際公開日 平成15年10月2日 (2003.10.2)
(31) 優先権主張番号 102 13 230.5
(32) 優先日 平成14年3月25日 (2002.3.25)
(33) 優先権主張国 ドイツ(DE)
(31) 優先権主張番号 102 29 594.8
(32) 優先日 平成14年7月2日 (2002.7.2)
(33) 優先権主張国 ドイツ(DE)

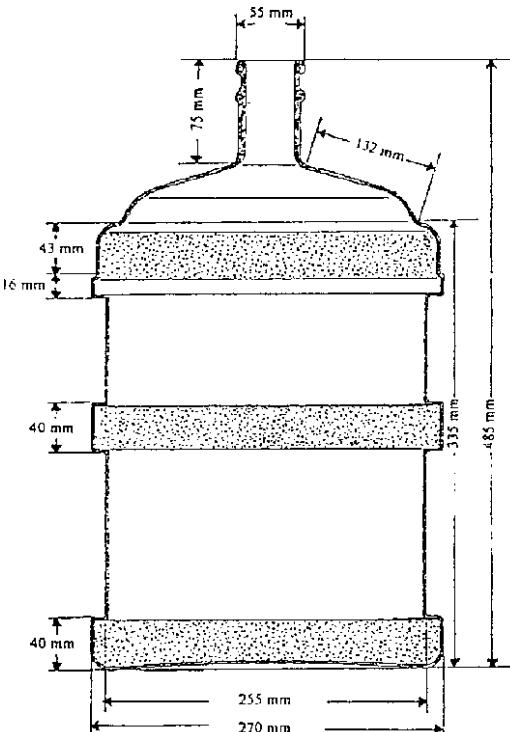
(71) 出願人 504037346
バイエル・マテリアルサイエンス・アクチ
エンゲゼルシャフト
Bayer Material Scien
ce AG
ドイツ連邦共和国デーー 5 1 3 6 8 レーフ
エルクーゼン
(74) 代理人 100086405
弁理士 河宮 治
(74) 代理人 100100158
弁理士 鮫島 瞳
(74) 代理人 100107180
弁理士 玄番 佐奈恵

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】高伸長粘度を有するポリカーボネート

(57) 【要約】

本発明はポリカーボネートを含む容器に関し、ポリカーボネートは特定の伸長流動特性を有する。本発明は、これらの容器の使用および製造にも関する。



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

200 の温度で行う一軸伸長試験において、ヘンキーひずみ の上昇とともに伸長粘度 $\dot{\epsilon}$ が3倍の剪断粘度 $\dot{\epsilon}_0$ の値に比べてより急に上昇するポリカーボネート。

【請求項 2】

S が $S = \dot{\epsilon} / \dot{\epsilon}_0 / 3$ として定義され、200 の温度で、2.0のヘンキーひずみ および 0.1 ~ 0.01 のひずみ速度範囲

【数 1】 $\dot{\epsilon}$

においては比 S が 1.1 よりも大きく、2.5 のヘンキーひずみ および 0.1 ~ 0.0 10
1 のひずみ速度範囲

【数 2】 $\dot{\epsilon}$

においては比 S が 1.1 よりも大きい請求項 1 に記載のポリカーボネート。

【請求項 3】

S が $S = \dot{\epsilon} / \dot{\epsilon}_0 / 3$ として定義され、200 の温度で、2.0のヘンキーひずみ および 0.1 ~ 0.01 のひずみ速度範囲

【数 3】 $\dot{\epsilon}$

においては比 S が 1.3 よりも大きく、2.5 のヘンキーひずみ および 0.1 ~ 0.0 20
1 のひずみ速度範囲

【数 4】 $\dot{\epsilon}$

においては比 S が 1.5 よりも大きい請求項 1 に記載のポリカーボネート。

【請求項 4】

請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載のポリカーボネートを含む容器。

【請求項 5】

容器がウォーターボトルである請求項 4 に記載の容器。

【請求項 6】

押出ブロー成形またはインジェクションブロー成形による、請求項 4 または 5 に記載の容器の製造方法。 30

【発明の詳細な説明】**【発明の詳細な説明】****【0001】**

本発明は、高伸長粘度を有するポリカーボネートおよびこのポリカーボネートを含む容器に関する。本発明は、これらの容器の製造および使用にも関する。

【0002】

ポリカーボネートを含む容器があおむね知られている。これらの容器は、例えば、ポリカーボネートおよび常套の添加剤を含む組成物（コンパウンドとも称される）から製造される。ポリマー（ポリカーボネート）および添加剤から成るこれらの組成物はプラスチックとも称される。添加剤、または助剤の例は、安定剤、加工助剤および他が挙げられる。ポリカーボネートを含む容器は、例えばゴム製のシールまたは金属もしくは他の材料製のハンドル（またはグリップ）等の他の構成要素を含むこともある。 40

【0003】

ポリカーボネートを含む容器は、例えば、軽量および容易かつ安価に製造性できることに加えて、例えば、高い透明度、優れた機械的性質、環境（又は外界）の影響に対する高耐性および長い耐用年数等の非常に多くの有利な性質を有する。

【0004】

ポリカーボネートを含む容器は、例えば、押出ブロー成形法またはインジェクションブロー成形法によって製造され得る。

【0005】

押出ブロー成形法においてポリカーボネートは、単軸スクリュー式押出機を用いて通常は溶融され、ダイによって自立パリソンを成形する。パリソンは通常はダイからぶら下がる。次いで、パリソンの下端を一体に押しつぶすブロー金型（またはモールド）をパリソンの周囲に置く。次いで、パリソンは金型の内部で膨らんで所望の形状を得る。冷却期間の後、金型を開き容器（中空物品）を取り出す。

【0006】

押出ブロー成形法は、例えば、Brinkschroeder、F.J.：「ポリカーボネート（Polycarbonate）」（Becker、Braun、Kunststoff-handbuch、第3/1巻、ポリカーボネート（Polycarbonate）、ポリアセタール（Polyacetal）、ポリエステル（Polyester）、セルロースエステル（Celluloseester）、Carl Hanser Verlag Munich、Vienna 1992、257頁～264頁）において開示されている。10

【0007】

インジェクションブロー成形法は、インジェクション成形とブロー成形との組み合わせである。

【0008】

インジェクションブロー成形法は三段階で進行する：

1. プラスチック材料の塑性温度範囲でパリソンをインジェクション成形する段階20
2. プラスチック材料の熱可塑性の範囲でパリソンを膨らませる段階（インジェクション金型のコアはブローのマンドレルとしても機能する）
3. 中空物品を取り除き、ブローのマンドレルをエアーで必要に応じて冷却する段階

【0009】

インジェクションブロー成形は、例えば、Anders, S.、Kaminski, A.、Kappenstein, R.、「ポリカーボネート（Polycarbonate）」（Becker、/Braun、Kunststoff-handbuch、第3/1巻、ポリカーボネート（Polycarbonate）、ポリアセタール（Polyacetal）、ポリエステル（Polyester）、セルロースエステル（Celluloseester）、Carl Hanser Verlag Munich、Vienna 1992、223頁～225頁）において開示されている。30

【0010】

従来技術から既知であるポリカーボネートを含む容器の欠点は、容器の実用に重要なある要件を満たしていないということである。

【0011】

このように、例えば、既知のポリカーボネート容器は大きな機械的負荷の下に破裂し得る。例えば、液体で満ちた容器が例えば容器を搬送している運搬車の荷台等の高所から床に落ちると、このことが起こり得る。

【0012】

この機械的破損の原因是、一般には容器の不規則な壁厚である。40

【0013】

押出ブロー成形法またはインジェクションブロー成形法による加工の間、ポリカーボネートの溶融体が不規則な壁厚を引き起こすので、従来技術から既知である容器の不規則な壁厚はその製造の間に生ずる。

【0014】

容器ごとにより多くのポリカーボネートを用いることにより、不規則な壁厚を有する容器の機械的強度を必然的に増すことができ、そして壁の断面がより厚くなる。しかしながら、このことは材料の消費をふやすという欠点を有し、とりわけ高いコストをもたらす。

【0015】

それゆえ、本発明の課題は、できるだけ均一な壁厚を有する容器の製造を可能にするボ50

リカーボネートを提供することである。

【0016】

この課題は、200 の温度で行う一軸伸長試験において、ヘンキーひずみ (H e n c k y D e h n u n g) の上昇とともに、伸長粘度 ϵ_E が剪断粘度に3をかけた値 (3) に比べてより急に上昇するポリカーボネートによって達成される。

【0017】

このポリカーボネートを本発明によって提供する。

【0018】

一軸伸長試験およびその実行は当業者に知られている。一軸伸長試験は、Muens t edt 型の装置を用いて行われ得る。これらは H . Muens t edt 、 J . Rheol . 、第23巻、421頁(1979)に記載されている。これらは、例えば、Ch . W . Macosko : Rheology 、 Verlag Chemie 、 1994 、特に288頁～297頁、および M . Pahl 、 W . Gleissle 、 H . - M . Laun : Prastische Rheologie der Kunststoffe und Elastomere 、 VDI - Verlag 、 1995 、特に349頁～357頁、等の一般的な教科書にも記載されている。10

【0019】

剪断粘度を時間の関数として決定する方法が当業者に知られている。

【0020】

回転レオメーターを用いて低い剪断速度で、時間の関数として剪断粘度を好ましくは決定する。回転レオメーターを用いて振動変形のもとに剪断粘度を決定することもでき、常套の方法によって時間依存性の粘度に変換することもできる。回転レオメーターの使用方法および構造は一般的な教科書に記載されている。例えば、M . Pahl 、 W . Gleissle 、 H . - M . Laun : Prastische Rheologie der Kunststoffe und Elastomere 、 VDI - Verlag 、 1995 に記載されている。20

【0021】

Muens t edt の伸長レオメーターを用いて、伸長粘度を時間の関数として好ましくは決定する。他のレオメーター、例えば、Meissner の市販の伸長レオメーターのシリーズで一軸伸長試験を行うこともできる。このことは、J . Meissner 、レオロジカ・アクタ (Rheologica Acta) 8 、第78巻(1969)および J . S . Schulze ら、レオロジカ・アクタ (Rheol . Acta) 、第40巻(2001)457頁～466頁に記載されている。30

【0022】

ヘンキーひずみ は無次元の量である。伸長粘度 ϵ_E の単位はパスカル (P a s) ×秒である。剪断粘度 の単位も同様にパスカル (P a s) ×秒である。

【0023】

その商 S は、伸長粘度 ϵ_E の相対的な増加の尺度として用いられる。商 S は無次元である。S は、伸長粘度 ϵ_E と3倍の剪断粘度 3 との商である。S は測定温度 T 、ヘンキーひずみ速度 40

【数1】

$\dot{\varepsilon}$

(単位 : s⁻¹) およびヘンキーひずみ 並びに時間に依存する。

【0024】

以下の式が適用される :

【数2】

$$S = \eta(t, \dot{\varepsilon}) / 3\eta(t)$$

全ひずみ (単位 : 無次元) は、試料の初めの長さ L_0 (単位 : m) 、その時点の試料の長さ L (単位 : m) 、ひずみ速度

【数3】

 $\dot{\varepsilon}$ (単位: s^{-1}) および時間 t (単位: 秒) に対して:

【数4】

$$\dot{\varepsilon} = (L/L_0) \text{ の自然対数} = \dot{\varepsilon} \times t$$

の関係がある。

【0025】

ポリカーボネートは、200 の温度で、2.0 のヘンキーひずみ および 0.1 ~ 0.01 のひずみ速度範囲

10

【数5】

 $\dot{\varepsilon}$ においては比 S が 1.1 よりも大きく、2.5 のヘンキーひずみ および 0.1 ~ 0.01 のひずみ速度範囲

【数6】

 $\dot{\varepsilon}$ においては比 S が 1.1 よりも大きいことが好ましく、ここで S は、 $S = \dot{\varepsilon} / (3)$ として定義される。

【0026】

特に好ましくは、200 の温度で、2.0 のヘンキーひずみ および 0.1 ~ 0.01 のひずみ速度範囲

20

【数7】

 $\dot{\varepsilon}$ においては比 S が 1.3 よりも大きく、2.5 のヘンキーひずみ および 0.1 ~ 0.01 のひずみ速度範囲

【数8】

 $\dot{\varepsilon}$ においては比 S が 1.5 よりも大きいポリカーボネートである。

【0027】

本発明は、本発明のポリカーボネートを含む容器も提供する。このことは、例えば壁材としてプラスチック材料を含む容器を意味する。それは完全に異なる材料でできている容器を意味するのではなく、容器がその中身としてポリカーボネートを含むに過ぎないということである。

30

【0028】

本発明は、押出プロー成形またはインジェクションプロー成形によってこの容器を製造する方法も提供する。

【0029】

本発明の伸長流動特性を有するポリカーボネートを得るために、当業者はポリカーボネートの様々なパラメータを意図的に調整し得る。例えば、当業者は分子量および分岐度を変えることができる。コポリカーボネートの場合のモノマーおよびコモノマーの選択または末端基の選択もポリカーボネートの伸長流動特性に影響を及ぼす。当業者は適当な添加剤を用いることもでき、本発明の所望の伸長流動特性を得る。それゆえ、本発明において、当業者は、本発明の伸長流動特性を有する本発明のポリカーボネートを調製すること、および本発明の容器を製造する目的でポリカーボネートを用いることを実証する。これらの容器は、本明細書で説明する驚くべき良好な特性を有する。

40

【0030】

本発明は、本発明の容器の製造も提供する。

【0031】

本発明は、本発明の容器の使用も提供する。

【0032】

50

本発明のポリカーボネートの利点は、有利な特性を有する本発明の容器の製造を可能にするという事実にある。

【0033】

本発明の容器は、容器1つにつき所定量のポリカーボネートで高い機械的強度を有するという利点を有する。

【0034】

これらの容器は、均一な壁厚分布を有して製造され得るという利点も有する。

【0035】

本発明の容器は、多くの他の利点を有する。これらは機械的負荷に対する耐久性、すなわち、破壊に対して耐性があり、有利な範囲の他の機械的特性も有する。これらは、良好な光学特性、特に高い透明度を有する。これらは高い耐熱性を有する。高い耐熱性のおかげで、本発明の容器を熱水で清掃すること、および熱蒸気で殺菌することができる。これらは、本発明の容器の利用分野である、例えば多重使用するウォーターボトルの洗浄に用いる常套の洗剤に対して高い耐性を有する。これらは、既知の方法によって容易に安価で製造され得る。有利なことに、ポリカーボネートの良好な加工特性が現れる。これらの材料は使用に当たって低い材齢を得るので、長い耐用年数を有する。このことは場合に応じて起こり得る多重使用について多くの使用サイクルを意味する。

10

【0036】

本発明の容器を、液体、固体または気体のパッケージング、貯蔵または輸送に用いることができる。液体のパッケージング、貯蔵または輸送のための容器（液体容器）が好ましく、水のパッケージング、貯蔵または輸送のための容器（ウォーターボトル）が特に好ましい。

20

【0037】

本発明の容器は、0.1リットル～50リットル、好ましくは0.5リットル～50リットルの容積を有する好ましくは中空物品であり、ここで1リットル、5リットル、12リットルおよび20リットルの容積が最も好ましい。

【0038】

3ガロンのウォーターボトルおよび5ガロンのウォーターボトルが特に最も好ましい。

【0039】

容器は好ましくは0.1g～3000g、より好ましくは50g～2000g、特に好ましくは650g～900gの空の重さを好ましくは有する。

30

【0040】

容器の壁厚は、好ましくは0.5mm～5mm、より好ましくは0.8mm～4mmである。

【0041】

本発明の容器は、好ましくは5mm～2000mm、特に好ましくは100mm～1000mmの長さを好ましくは有する。

40

【0042】

容器は、好ましくは10mm～250mm、より好ましくは50mm～150mm、特に最も好ましくは70～90mmの最大の広がりを好ましくは有する。

【0043】

本発明の容器は、好ましくは1mm～500mm、より好ましくは10mm～250mm、特に好ましくは50mm～100mm、特に最も好ましくは70～80mmのボトルネック長さを好ましくは有する。

【0044】

容器のボトルネックの壁厚は、0.5mm～10mm、特に好ましくは1mm～10mm、特に最も好ましくは5mm～7mmである。

【0045】

ボトルネックの直径は、5mm～200mmであるのが好ましい。10mm～100mmが特に好ましく、45mm～75mmが特に最も好ましい。

50

【 0 0 4 6 】

本発明の容器のボトルのベース（または底部）は、好ましくは10mm～250mm、より好ましくは50mm～150mm、特に最も好ましくは70mm～90mmの直径を有する。

【 0 0 4 7 】

本発明の容器は、いずれの幾何学的形状を示してもよく、例えば、円形、長円形、または例えば3～12辺を有する（角張った）多角形である。円形、長円形および六角形の形状が好ましい。

【 0 0 4 8 】

容器の設計は表面構造に基づき得る。表面構造は平坦またはリブ付きが好ましい。本発明の容器は複数の異なる表面構造を有することもできる。リブまたはひだが容器の周囲に走っていてよい。これらは、いずれの間隔であってもよく、また、互いに異なる複数の間隔を有してもよい。本発明の容器の表面構造を粗面化してよく、あるいは、構造、シンボル、装飾、紋章、会社ロゴ、商標、署名、製造者の詳細、材料の特徴および／または容積の情報と一体化することができる。10

【 0 0 4 9 】

本発明の容器は、いずれかの数の、サイド、上部、または底部に設置され得るハンドル（またはグリップ）を有し得る。ハンドルは外側にあるか、または容器の外形と一体化され得る。ハンドルは折り畳み式または固定されている。ハンドルは例えば長円形、円形または多角形のようないずれの外形を有してもよい。ハンドルは0.1mm～180mm、好ましくは20mm～120mmの長さを好ましくは有する。20

【 0 0 5 0 】

本発明のポリカーボネートに加えて、本発明の容器は、わずかの他の物、例えばゴム製のシールまたは他の材料でできているハンドルを含むこともできる。

【 0 0 5 1 】

本発明の容器は、押出プロー成形法またはインジェクションプロー成形法によって好ましくは製造される。

【 0 0 5 2 】

本発明の容器を製造する好ましい態様において、本発明のポリカーボネートは、平坦な又は溝付きの、好ましくは平坦な供給領域を有する押出機で加工される。30

【 0 0 5 3 】

押出機の駆動力はスクリューの直径に従って選択される。例として、スクリューの直径が60mmでは押出機の駆動力は約30～40kW、スクリューの直径が90mmでは約60～70kWである。

【 0 0 5 4 】

工業用熱可塑性プラスチックの加工における標準的な3ゾーン（またはセクション）スクリューが適当である。

【 0 0 5 5 】

1リットルの容積を有する容器の製造には、スクリューの直径が50～60mmであることが好ましい。20リットルの容積を有する容器の製造にはスクリューの直径が70～100mmであることが好ましい。スクリューの長さはスクリューの直径の好ましくは20～25倍である。40

【 0 0 5 6 】

プロー成形法の場合、プロー金型を好ましくは50～90に加熱して、輝いた高品質の容器表面を得る。

【 0 0 5 7 】

プロー金型を均一および効果的に加熱することを確実にするために、ベース領域および外部領域を別々に加熱することができる。

【 0 0 5 8 】

プロー金型はピンチオフの接合部の単位長さ（cm）につき1000～1500Nのピ50

ンチオフ力で好ましくは閉じる。

【0059】

加工の前に本発明によるポリカーボネートを乾燥するのが好ましく、容器の光学的品質は光線または気泡によってそこなわず、そして加工の間にポリカーボネートは加水分解によって分解されない。乾燥後の残留含水量は0.01重量%未満であるのが好ましい。乾燥温度は120℃が好ましい。より低い温度では十分な乾燥が保証されず、一方でより高い温度ではポリカーボネートのペレットが一体に固着するリスクがあるので、これらをもはや加工できない。ドライエアーの乾燥器が好ましい。

【0060】

本発明のポリカーボネートを加工するのに好ましい溶融温度は、230～300℃である。10

【0061】

本発明の容器を、液体、固体もしくは気体のパッケージング、貯蔵、または輸送に用い得る。例えば、液体のパッケージング、貯蔵または輸送に用いる容器としての態様が好ましい。例えば、水のパッケージング、貯蔵または輸送に用いるウォーターボトルとしての態様が特に好ましい。

【0062】

本発明のポリカーボネートは、好ましくは溶融加工に適する芳香族ポリカーボネートである。ポリカーボネートは、ホモポリカーボネートおよびコポリカーボネートの両方であり得る。20

【0063】

特に好ましいポリカーボネートは、ビスフェノールAに基づくホモポリカーボネート、1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサンに基づくホモポリカーボネート、ならびに二つのモノマー、ビスフェノールAおよび1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサンに基づくコポリカーボネートである。

【0064】

カーボネート基の最大80モル%まで、特に20モル%～50モル%を芳香族ジカルボン酸エステル基に置き換えたポリカーボネートも本発明のポリカーボネートに属する。分子鎖に組み込まれた芳香族ジカルボン酸の酸基および炭酸の酸基の両方を含むそのようなポリカーボネートを、芳香族ポリエステルカーボネートとしても分類する。30

【0065】

ジフェノール、炭酸誘導体、オプションとしての連鎖停止剤およびオプションとしての分岐剤から本発明のポリカーボネートを既知の方法で製造することができる。一部の炭酸誘導体を芳香族ジカルボン酸またはジカルボン酸誘導体に置き換え、ポリエステルカーボネートを製造する。このことは、芳香族ジカルボン酸エステルの構造ユニットによって置き換えられるべき、芳香族ポリカーボネート中のカーボネートの構造ユニットに従って行われる。

【0066】

ポリカーボネートの製造の詳細は既知である。例を(1～4に)示す：40

1. Schnell、「ケミストリー・アンド・フィジックス・オブ・ポリカーボネート(Chemistry and Physics of Polycarbonates)」、ポリマー・レビューズ(Polymer Reviews)、第9巻、インターライエンス・パブリッシューズ(Interscience Publishers)、New York、London、Sydney 1964；

2. D.C. Prevorsek、B.T. Debona und Y. Kesten、コーポレート・リサーチ・センター(Corporate Research Center)、アライド・ケミカル・コーポレーション(Allied Chemical Corporation)、Morristown、New Jersey 07960：「シンセシス・オブ・ポリ(エステル カーボネート)・コポリマーズ(Sy

nthesis of Poly(ester Carbonate) Copolymers」(ジャーナル・オブ・ポリマー・サイエンス(Journal of Polymer Science)、ポリマー・ケミストリー・エディション(Polymer Chemistry Edition)、第19巻、75-90(1980));

3. D. Freitag, U. Grigo, P. R. Mueller, N. Nouvertne'、BAYER AG、「ポリカーボネート(Poly carbonates)」(エンサイクロペディア・オブ・ポリマー・サイエンス・アンド・エンジニアリング(Encyclopedia of Polymer Science and Engineering)第11巻、第二版、1988、648頁~718頁)

4. U. Grigo, K. Kircher and P. R. Mueller「ポリカーボネート(Poly carbonate)」(Becker/Braun, Kunstsstoff-handbuch、第3/1巻、ポリカーボネート(Poly carbonate)、ポリアセタール(Poly acetale)、ポリエステル(Poly ester)、セルロースエステル(Cellulose ester)、Carl Hanser Verlag Munich, Vienna 1992、117頁~299頁)。 10

【0067】

ポリエステルカーボネートも含めてポリカーボネートは、12000~120000g/molの平均分子量(Mw)を有する(100mlの塩化メチレンにつきポリカーボネート0.5gの濃度で塩化メチレン中における相対粘度を25で測定することによって決定する)。15000~80000g/molが好ましく、15000~60000g/molが特に好ましい。 20

【0068】

本発明のポリカーボネートの製造に適当なジフェノールは、例えば、ハイドロキノン、レゾルシノール、ジヒドロキシジフェニル、ビス-(ヒドロキシフェニル)-アルカン、ビス-(ヒドロキシ-フェニル)-シクロアルカン、ビス-(ヒドロキシフェニル)-硫化物、ビス-(ヒドロキシフェニル)-エーテル、ビス-(ヒドロキシフェニル)-ケトン、ビス-(ヒドロキシフェニル)-スルホン、ビス-(ヒドロキシフェニル)-スルホキシド、(, - ビス-(ヒドロキシフェニル)-ジイソプロピルベンゼン、ならびに芳香核(もしくは芳香環)でアルキル化した化合物および芳香核(もしくは芳香環)においてハロゲン化した化合物である。 30

【0069】

好ましいジフェノールは、4,4'-ジヒドロキシフェニル、2,2-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-1-フェニル-プロパン、1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-フェニル-エタン、2,2-ビス-(4-ヒドロキシ-フェニル)プロパン、2,4-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-2-メチルブタン、1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-m/p-ジイソプロピルベンゼン、2,2-ビス-(3-メチル-4-ヒドロキシフェニル)-プロパン、ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)-メタン、2,2-ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)-プロパン、ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)-スルホン、2,4-ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)-2-メチルブタン、1,1-ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)-m/p-ジイソプロピル-ベンゼン、2,2-および1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサンである。 40

【0070】

特に好ましいジフェノールは、4,4'-ジヒドロキシジフェニル、1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-フェニル-エタン、2,2-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-プロパン、2,2-ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)-プロパン、1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-シクロヘキサン、1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-m/p-ジイソプロピルベンゼン、および1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサンである。 50

【0071】

これらおよび他の適当なジフェノールならびにその製造は、例えば、米国特許公開公報(U S - A)第 3 0 2 8 6 3 5 号、第 2 9 9 9 8 3 5 号、第 3 1 4 8 1 7 2 号、第 2 9 9 1 2 7 3 号、第 3 2 7 1 3 6 7 号、第 4 9 8 2 0 1 4 号、および第 2 9 9 9 8 4 6 号において、ドイツ特許公開公報(D E - A)第 1 5 7 0 7 0 3 号、第 2 0 6 3 0 5 0 号、第 2 0 3 6 0 5 2 号、第 2 2 1 1 9 5 6 号および第 3 8 3 2 3 9 6 号において、フランス特許公開公報(F R - A)第 1 5 6 1 5 1 8 号において、モノグラフ「 H S c h n e l l 、ケミストリー・アンド・フィジックス・オブ・ポリカーボネート(C hem i s t r y a n d P h y s i c s o f P o l y c a r b o n a t e s) 、 インターサイエンス・パブリッシュヤーズ(I n t e r s c i e n c e P u b l i s h e r s) 、 N e w Y o r k 1 9 6 4 」において、ならびに日本特許公開公報(J P - A)第 6 2 0 3 9 / 1 9 8 6 および 1 0 5 5 5 0 / 1 9 8 6 において開示されている。
10

【0072】

ホモポリカーボネートの場合においては一種類のジフェノールを用い、コポリカーボネートの場合においては複数のジフェノールを用いる。ここで、できるだけ純粋な原料を用いて作業することが望ましいが、用いるジフェノール(ビスフェノールとも称される) は、他の全ての化学物質、また、合成に添加される補助物質と同様に、自体の合成からの不純物を当然ながら含み得る。

【0073】

ポリカーボネートの製造に用い得る適当な連鎖停止剤は、モノフェノールおよびモノカルボン酸の両方である。
20

【0074】

適当なモノフェノールは、例えば、フェノール、アルキルアルコール(例えは、クレゾール、 p - t - ブチルフェノール、 p - n - オクチルフェノール、 p - イソ - オクチルフェノール、 p - n - ノニルフェノールおよび p - イソ - ノニルフェノール) 、ハロゲンフェノール(例えは、 p - クロロフェノール、 2 , 4 - ジクロロフェノール、 p - プロモフェノールおよび 2 , 4 , 6 - トリプロモフェノール) ならびにそれらの混合物である。

【0075】

適当なモノカルボン酸は、例えは、安息香酸、アルキル安息香酸およびハロゲン安息香酸である。
30

【0076】

好ましい連鎖停止剤は式(I)のフェノールである



式中、 R⁶ は、 H または枝分かれした若しくは枝分かれしていない C₁ - C₁₈ のアルキル基を表す。

【0077】

用いる連鎖停止剤の量は、各場合で用いるジフェノールのモル数に対して好ましくは 0 . 5 モル % ~ 1 0 モル % である。連鎖停止剤はホスゲン化の前、間、または後で添加され得る。

【0078】

ポリカーボネートは枝分かれし得る。ポリカーボネートを枝分かれさせるために用い得る適当な分岐剤は、ポリカーボネート化学では既知の三官能またはそれ以上の官能性の化合物であって、特にフェノール性 OH 基を三またはそれ以上有する化合物である。
40

【0079】

適当な分岐剤は、例えは、フロログルシン、 4 , 6 - ジメチル - 2 , 4 , 6 - トリ - (4 - ヒドロキシフェニル) - ヘプテン - 2 , 4 , 6 - ジメチル - 2 , 4 , 6 - トリ - (4 - ヒドロキシフェニル) - ヘプタン、 1 , 3 , 5 - トリ - (4 - ヒドロキシフェニル) - ベンゼン、 1 , 1 , 1 - トリ - (4 - ヒドロキシフェニル) - エタン、 トリ - (4 - ヒドロキシフェニル) - フェニルメタン、 2 , 2 - ビス - (4 , 4 - ビス - (4 - ヒドロキシフェニル) - シクロヘキシリル) - プロパン、 2 , 4 - ビス - (4 - ヒドロキシフェニル) -
50

イソプロピル) - フェノール、2 , 6 - ビス - (2 - ヒドロキシ - 5 ' - メチル - ベンジル) - 4 - メチルフェノール、2 - (4 - ヒドロキシフェニル) - 2 - (2 , 4 - ジヒドロキシフェニル) - プロパン、ヘキサ - (4 - (4 - ヒドロキシフェニル - イソプロピル) フェニル) - オルトテレフタル酸エステル、テトラ - (4 - ヒドロキシ - フェニル) - メタン、テトラ - (4 - (4 - ヒドロキシフェニル - イソプロピル) - フェノキシ) - メタンおよび1 , 4 - ビス (4 ' , 4 '' - ジヒドロキシ - トリフェニル) - メチル) - ベンゼン並びに2 , 4 - ジヒドロキシ安息香酸、トリメシン酸、シアヌールクロライド並びに3 , 3 - ビス - (3 - メチル - 4 - ヒドロキシフェニル) - 2 - オキソ - 2 , 3 - ジヒドロインドールである。

【0080】

場合に応じて用いる分岐剤の量は、各場合で用いるジフェノールのモル数に対して好ましくは0 . 0 5 モル% ~ 2 . 5 モル%である。

【0081】

分岐剤はジフェノールおよび連鎖停止剤とともにアルカリ水相に導入され得るか、またはホスゲン化の前に有機溶媒に溶解して添加され得る。

【0082】

ポリカーボネートの製造のこれら全ての手法は当業者によく知られている。

【0083】

ポリエステルカーボネートの製造に適する芳香族ジカルボン酸は、例えば、フタル酸、テレフタル酸、イソフタル酸、t - ブチルイソフタル酸、3 , 3 ' - ジフェニルジカルボン酸、4 , 4 ' - ジフェニルジカルボン酸、4 , 4 - ベンゾフェノンジカルボン酸、3 , 4 ' - ベンゾフェノンジカルボン酸、4 , 4 ' - ジフェニルエーテルジカルボン酸、4 , 4 ' - ジフェニルスルホンジカルボン酸、2 , 2 - ビス - (4 - カルボキシフェニル) - プロパン、トリメチル - 3 - フェニルインダン - 4 , 5 ' - ジカルボン酸である。

【0084】

芳香族ジカルボン酸の中でも、テレフタル酸および / またはイソフタル酸を用いることが特に好ましい。

【0085】

ジカルボン酸の誘導体は、例えば、ジカルボン酸二ハロゲン化物およびジカルボン酸ジアルキルエステルであり、特にジカルボン酸二塩化物およびジカルボン酸ジメチルエステルである。

【0086】

カーボネート基は、実質的に化学量論的に、そして量的にも芳香族カルボン酸エステル基と置換されるので、最終的なポリエステルカーボネートにおいてもまた反応パートナーのモル比が分かる。芳香族ジカルボン酸エステル基をランダムに、またブロック毎に組み込むことができる。

【0087】

界面法または既知の溶融エステル交換法によって本発明のポリカーボネートを好ましくは製造する。前者の場合にはホスゲンを炭酸誘導体として好ましくは用い、後者の場合はジフェニルカーボネートを好ましくは用いる。

【0088】

前者の場合にはホスゲンを炭酸誘導体として好ましくは用い、後者の場合にはジフェニルカーボネートを好ましくは用いる。

【0089】

ポリカーボネートの製造についての触媒、溶媒、処理、反応条件等は、双方の場合において既知である。

【0090】

溶融エステル交換法は、特にH . Schneel 1、「ケミストリー・アンド・フィジックス・オブ・ポリカーボネート (Chemistry and Physics of Polycarbonates)」ポリマー・レビューズ、第9巻、44頁~51頁、イ

ンターサイエンス・パブリッシャーズ(*Interscience Publishers*)、New York、London、Sidney、1964ならびにドイツ特許公開公報第1031512号、米国特許公開公報第3022272号、米国特許公開公報第5340905号、および米国特許公開公報第5399659号に記載されている。

【0091】

本発明のポリカーボネートは、常套の添加剤(例えば、顔料、UV安定剤、熱安定剤、酸化防止剤および離型剤)をポリカーボネートに対して常套的な量で含むこともできる。

【0092】

ポリカーボネートが添加剤または他の助剤を含む場合、ポリカーボネートおよび添加剤または助剤から成る組成物は、ポリカーボネート成形材料(またはコンパウンド)とも称される。 10

【0093】

本発明の構成成分と同時に、または後で、これらの常套の添加剤を既知の方法でポリカーボネートに添加することができる。

【0094】

ポリカーボネートに関する常套の加工パラメータの下に、常套の加工機で既知の方法により本発明のポリカーボネート成形材料を成形物品(または成形部材)に加工することができる。 10

【0095】

不純物が少ない助剤および原料をポリカーボネートの製造に好ましくは用いる。用いるビスフェノールおよび用いる炭酸誘導体は、特に溶融エステル交換法による製造の場合、アルカリイオンおよびアルカリ土類イオンをできるだけ含まない必要がある。このような純粋な原料を、例えば、炭酸誘導体(例えば炭酸エステルおよびビスフェノール)の再結晶、洗浄または蒸留によって得てよい。 20

【0096】

溶融エステル交換法によってポリカーボネートを製造する場合、ビスフェノールおよび炭酸ジエステルの反応を、連続または不連続的に、例えば、攪拌槽、薄膜蒸発器、流下膜式蒸発器、直列攪拌槽型反応器、押出機、混練機、通常のディスクリアクターおよび高粘度ディスクリアクターにおいて行うことができる。 30

【0097】

ポリカーボネートの製造に用い得る炭酸ジエステルは、例えば、炭酸のジアリールエステルであり、二つのアリール基は6~14の炭素(C)原子を好ましくはそれぞれ有する。炭酸のジエステルは、フェノールまたはアルキル置換フェノール系のもの、言い換えると例えばジフェニルカーボネートまたはジクロジルカーボネートを使用するのが好ましい。ビスフェノール1モルにつき炭酸ジエステルを好ましくは1.01~1.30モルの量で、特に好ましくは1.02~1.15モルの量で用いる。 30

【0098】

フェノール、アルキルフェノールおよび/またはアリールフェノールを本発明のポリカーボネートの製造に用いると、これらは連鎖停止剤の効果を有する。このことは、達成し得る最大の到達可能平均分子量をこれらが制限することを意味する。これらはポリカーボネートの製造に必要なモノマーとともに、またはポリカーボネート合成の後段階で加えてよい。これらは、ポリカーボネートの合成では単官能性化合物として作用し、従って、連鎖停止剤として機能する。 40

【0099】

ポリカーボネートの製造において場合に応じて用いるフェノール、アルキルフェノールおよび/またはアリールフェノールを、各場合で用いるビスフェノールの合計に対して0.25~10mol%の量で好ましくは用いる。

【0100】

フェノールならびに/または1もしくはそれ以上のアルキルフェノールおよび/またはアリールフェノールの混合物を用いることもできる。 50

【0101】

ポリカーボネートの製造において場合に応じて用いるアルキルフェノールおよび／またはアリールフェノールは、末端アルキルフェニル基および末端アリールフェニル基をもたらす。加えて、製造方法によっては、結果として生ずるポリカーボネートにおいて、他の末端基、例えばフェノール性末端OH基または末端クロロギ酸エステル基が生じる。

【0102】

連鎖停止剤として機能できる他の添加物質を添加することなく、フェノール、アルキルフェノールおよび／またはアリールフェノールのみを連鎖停止剤として好ましくは専ら用いる。

【0103】

連鎖停止剤として機能できる適当な他の物質はモノフェノールおよびモノカルボン酸の両方である。適当なモノフェノールは、例えば、フェノール、p-クロロフェノールまたは2, 4, 6-トリブロモフェノールである。適当なモノカルボン酸は、安息香酸、アルキル安息香酸およびハロゲン安息香酸である。

【0104】

連鎖停止剤として機能できる好ましい他の物質は、フェノール、p-t-ブチルフェノール、クミルフェノールおよびイソオクチルフェノールである。

【0105】

連鎖停止剤として機能できる他の物質の量は、各場合で用いるビスフェノールの合計に対して0.25～10mol%の間が好ましい。

【0106】

一軸伸長粘度を決定するための測定方法を以下に記載する。

【0107】

一軸伸長粘度を測定するために、円筒状のポリカーボネート試験片（寸法：直径約4～5mm、長さ約20～25mm）をクランプの端で固定し、そして伸長レオメーターに取り付ける。

【0108】

次いで、試料はオイルバスを用いて温度調節され、200の測定温度において、プラスチック材料とほぼ同じ密度を有する。一定の温度に達すると（約10分後）、試料の片端でクランプにつながる離間ロッドによって変形を所定のように実施する。これにより、一定のヘンキーひずみ速度

【数9】

$\dot{\varepsilon}$

が得られる。このことは離間速度 u が時間に対して指數関数的に増加することを意味する。

【0109】

試料のもう一端において張力を時間または全伸びの関数として測定する。時間に関連した断面積に対して引張応力を用いて一軸伸長粘度を決定し得る。

【0110】

本明細書の実施例の測定に用いる伸長レオメーターの場合、最大の離間長さは約500mmであり、このことは、 $L/L_0 =$ 約25の最大変形、または $1n(L/L_0) =$ 約3.2の最大ヘンキーひずみに対応する。しかしながら、試料が事前に裂ける、あるいは破壊があるので、試験するポリカーボネートにおいて必ずしも全伸長に達するとは限らない。

【0111】

一軸伸長試験評価は次の通りである。单一の伸長粘度の値と3倍の剪断粘度の値との対数を時間に対してグラフと一緒にプロットする。驚くべきことに、容器の製造に適するポリカーボネートは、3倍の剪断粘度と比較して一軸伸長粘度が急に増大するポリカーボネートであることが確認された（図1参照）。3倍の剪断粘度と比較して伸長粘度が急に増大しないポリカーボネート（図2参照）は、ウォーターボトルの製造にあまり適当でない

10

20

30

40

50

か、または不適当である。

【0112】

図1及び図2を以下に説明する。

【0113】

図1は、ウォーターボトル(本発明の実施例の説明のように製造する)の製造に適当なポリカーボネートに関する、一軸伸長粘度

【数10】

$$\eta_E(t, \dot{\varepsilon})$$

および3倍の剪断粘度3(t)を示す。3倍の剪断粘度、3(t)を実線で示す。0.3と0.1と0.01との3つの異なるひずみ速度

【数11】

$$\dot{\varepsilon}$$

(単位: s⁻¹)に関する一軸伸長粘度

【数12】

$$\eta_E(t, \dot{\varepsilon})$$

を記号を伴う線で示す。全てのひずみ速度に関して伸長粘度は時間に対して急に増大し、最終的には3倍の剪断速度よりも高いことがわかる。

【0114】

図2は、ウォーターボトル(比較例の説明のように製造する)に適当でないポリカーボネートに関する、一軸伸長粘度

【数13】

$$\eta_E(t, \dot{\varepsilon})$$

および3倍の剪断粘度3(t)を示す。3倍の剪断速度、3(t)を実線で示す。0.2と0.1と0.05との3つの異なるひずみ速度

【数14】

$$\dot{\varepsilon}$$

(単位: s⁻¹)に関する一軸伸長粘度

【数15】

$$\eta_E(t, \dot{\varepsilon})$$

を記号を伴う線で示す。全てのひずみ速度に関して伸長粘度は時間に対してあまり上昇せず、そして最終的に3倍の剪断粘度の付近にあることがわかる。

【0115】

図1および2において、比ヘンキーひずみ速度

【数16】

$$\dot{\varepsilon}$$

を含む曲線について時間軸tをヘンキーひずみに外挿してよい:

【数17】

ヘンキーひずみ $\varepsilon = \text{ヘンキーひずみ速度 } \dot{\varepsilon} \times \text{時間 } t$

【0116】

図3は実施例において製造されるボトルを示す。これらの寸法をミリメートル(mm)で示す。

【0117】

図4は、実施例において壁厚を測定したボトルの測定ポイントの位置を示す。

【0118】

図5は、表2で再現する壁厚の変化を図形に示す。壁厚(mm)を測定ポイント1~4

20

30

40

50

6 に対してプロットしている。本発明のポリカーボネートから作られるボトルは規則的な変化を示す(正方形の記号)。比較例のポリカーボネートから作られるボトルは不規則な変化を示す(三角形の記号)。

【0119】

実施例

本発明の(実施例の)伸長流動特性を有するポリカーボネートを製造した。次いで、プラスチックのペレットを用いて5ガロンの容積を有するウォーターボトルを製造し壁厚分布を測定した。本発明の伸長流動特性を有さない(比較例の)比較製品を用いて対応する処理を実施した。

【0120】

均一な壁厚分布を有するウォーターボトルを、比較例のポリカーボネートからでなく、本発明のポリカーボネートから得た。

【0121】

1. ポリカーボネートの製造

実施例:

ビスフェノールA 5515.7 g (24.16モル) およびイサチニスクレゾール31.10 g を6.5%の水酸化ナトリウム溶液33.40 kg に窒素雰囲気下で攪拌しながら溶解した。この溶液にフェノール70.6 g と塩化メチレン36.03 kgとの混合物を加えた。次いで、更なる水酸化ナトリウム溶液の添加によりpH 13に保ち、20~25でホスゲン2967.6 g を強く攪拌しながら30分以内に導入した。この導入の後にN-エチルピペリジン28.3 g を加え、pH 13で45分間この溶液を攪拌した。

【0122】

アルカリ相を有機相から分離した。希釈したリン酸又は塩酸を用いて有機相をpH 1に調節した。次いで、脱イオン水を用いて洗浄し電解質を殆ど含まない相を得た。塩化メチレンをクロロベンゼンと置き換えた後、ポリカーボネートを既知の方法で蒸発押出機を用いて分離した。

【0123】

こうして得られたポリカーボネートは1.325の相対溶液粘度を有した(塩化メチレン100ml中ポリカーボネート0.5 g の濃度において25で測定)。

【0124】

比較例

イサチニスクレゾール6.91 g およびフェノール78.4 g を上術の実施例と同様に用いた。1.305の相対溶液粘度を有するポリカーボネートを得た。イサチニスクレゾールは市販のものであり、その正式名は3,3-ビス(3-メチル-4-ヒドロキシフェニル)-2-オキソ-2,3-ジハイドロインドールである。

【0125】

2. 押出ブロー成形法によるポリカーボネート製5ガロンのウォーターボトルの製造の説明

以下の機械仕様を有するSIG Blowtecの押出ブロー成形機KBS 2-20を用いてボトルを製造した。比較的低いスクリュー速度で材料に摩擦熱をほとんど与えない、直径100mmおよび25Dの長さのスクリューを有する押出機を用いた。可塑化能力は、正味約750 g のボトル重量および一時間当たり130~144ボトルで約145~190 kg/h であった。可塑化シリンドラは制御される加熱ゾーンおよびファンを備えており、正確かつ一定の温度調節を保証した。サイリスタ制御の直流のユニットは材料の一様な搬出および一定のトルクを供給し、これによって駆動力を供給した。パリソンダイは、3.5リットルの保持体積および重複ハート型の溝を有する先入れ先出しのアキュムレーターへッドから成了た。180°ずれた二重ハート型溝は、内外のパリソンを製造し、溶融物フローをアキュムレーターのチャンバーに運ぶ。パリソンダイのマンドレルおよびダイは円錐形の構造であった。壁厚制御プログラムによって円錐形のダイに対して軸の方向にマンドレルを動かす。従って、ボトルの重量を最適化して壁厚をボトルの対応する

10

20

30

40

50

領域（例えばベースの領域等）で調節することができた。

【0126】

押出機の温度は、供給領域で110、個々の加熱領域で245～265であった。ダイヘッド温度は245～250、ダイの温度は275であった。確認された塊体温度は267であった。平均サイクル時間は5.3秒のパリソン押出時間で25.8秒±0.2秒であり、これは1時間当たり138～140ボトルの部品数に相応した。5ガロンのポリカーボネートボトルについての常套の壁厚鉛直プロフィールを壁厚のコントロールに用いた。製造したボトルは正味750g～850gの重量を有し、赤外線によって直ちに調整した。コンディショニングの目的は、材料を急速に緩和させること、および関連するプロセス起因の内部応力を緩和することである。Protherm 850-3モデル、製造番号：KRK 7110であるプロセス・ダイナミクス・インコーポレイテッド（Process Dynamics Inc., 米国）製の赤外線オーブンを用いた。7つの加熱領域の可変温度を選択して130±2のボトル表面温度を確保した。

【0127】

【表1】

実施例／比較例のウォーターボトルの重量および形態

実施例	平均壁厚 [mm]	面積 [cm ²]	容積 [cm ³]	算出重量 [g]
ネック	2.35	129.53	30.440	36.53
ショルダー	2.01	642.44	129.130	154.96
ボディ	1.30	2747.82	357.217	428.66
ベース	2.14	547.11	117.082	140.50
全体		4066.90	633.87	760.65

比較例	平均壁厚 [mm]	面積 [cm ²]	容積 [cm ³]	算出重量 [g]
ネック	2.75	129.53	35.588	42.71
ショルダー	2.30	642.44	147.681	177.22
ボディ	1.35	2747.82	369.696	443.64
ベース	2.23	547.11	122.224	146.67
全体		4066.90	675.19	810.23

【0128】

3. ウォーターボトルの壁厚測定の説明：

CL3 DL型のクロウトクレーマー（Krautkraemer）GmbH & Co. Huert h, Germany 製の超音波壁厚測定装置を用いて壁厚を確認した。この装置はインパルス・エコー原理で操作する。材料においてパルスによって覆われる時間の測定は、測定すべき材料の表面と進行領域との間の境界面から、超音波パルスの一部分が反射されるときに生ずる入口反射から始める。材料の厚さによって、CL3 DLが入口反射から第一後壁反射までの測定（interface-to-first mode）または連続する後壁反射間の測定（multi-echo mode）を自動的に決定する。公称22MHzの振動数および6.4mmの接続面を有する、プラスチック材料用

10

20

30

40

50

に特別に設計された超音波進行プローブ(A L P H A D F R - P と呼ばれる)を、0.125 mm ~ 3.8 mmまでの測定範囲に用いた。超音波接触手段を用いてボトルにおいて直接46の測定ポイントで壁厚測定を行った(図4参照)。

【0129】

【表2】

測定ポイントの壁厚

測定 ポイント	測定領域	壁厚 [mm] 実施例	壁厚 [mm] 比較例
1	ネック	2.27	2.57
2	ネック	2.42	2.92
3	ショルダー	2.28	2.78
4	ショルダー	2.14	2.66
5	ショルダー	1.88	2.39
6	ショルダー	1.72	1.92
7	ボディ	1.53	1.63
8	ボディ	1.36	1.36
9	ボディ	1.22	1.14
10	ボディ	1.16	1.45
11	ボディ	1.14	1.08
12	ボディ	1.16	1.32
13	ボディ	1.19	1.17
14	ボディ	1.24	1.78
15	ボディ	1.3	1.86
16	ボディ	1.38	1.96
17	ボディ	1.45	1.76
18	ボディ	1.57	1.89
19	ベース	1.72	1.78
20	ベース	1.94	2.28
21	ベース	2.16	2.56
22	ベース	2.33	2.73
23	ベース	2.46	2.53
24	ベース	2.45	2.39
25	ベース	2.35	2.48
26	ベース	2.19	2.29
27	ベース	2.02	1.94
28	ベース	1.76	1.36
29	ボディ	1.58	1.21
30	ボディ	1.45	1.09
31	ボディ	1.35	1.37
32	ボディ	1.29	1.43
33	ボディ	1.25	1.34
34	ボディ	1.19	0.94
35	ボディ	1.16	1.18
36	ボディ	1.15	0.96
37	ボディ	1.14	1.27
38	ボディ	1.22	0.94
39	ボディ	1.33	1.03
40	ボディ	1.48	1.13
測定 ポイント	測定領域	壁厚 [mm] 実施例	壁厚 [mm] 比較例
41	ショルダー	1.68	1.35
42	ショルダー	1.92	2.09
43	ショルダー	2.12	2.51
44	ショルダー	2.3	2.69
45	ネック	2.45	2.86
46	ネック	2.25	2.64

【0130】

場合によっては、ウォーター ボトルの製造に適当でないポリカーボネートは、試料が締

10

20

30

40

50

め付けられるおよび／または機能しなくなるので全ての高い全伸長（ > 2.5 ）まで変形し得ない。

【0131】

一軸伸長粘度の測定結果は、正確な実験手順に極めて依存し得る。実験を不正確に行うと、実際に存在しない非常に高い伸長粘度を測定し得る；正確な測定値を得るために、実験を適切に行い、評価することが重要である（Th. Schweizer、レオロジカ・アクタ（Rheol. Acta）39（2000）5、428頁～443頁；J. S. Schulzら、レオロジカ・アクタ（Rheol. Acta）40（2001）457頁～466頁；およびV. C. Barroso、J. A. Covas、J. M. Mai a レオロジカ・アクタ（Rheol. Acta）41（2002）154頁～161頁を参照のこと） 10

【図1】

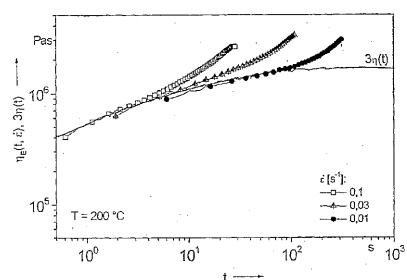


Fig. 1

【図2】

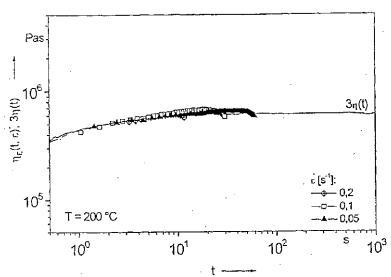


Fig. 2

【図3】

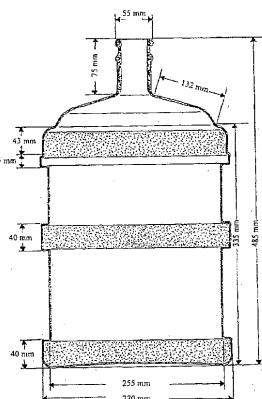


Fig. 3

【図4】

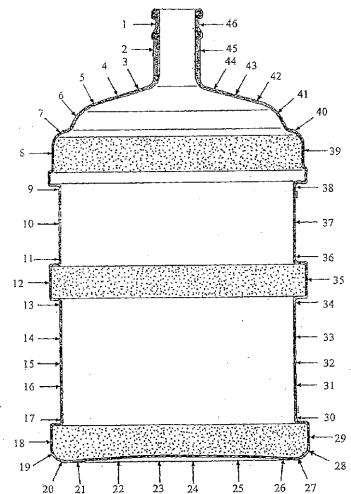


Fig.4

【図5】

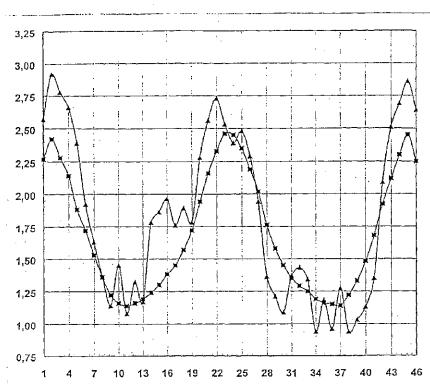


Fig.5

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP 03/02901

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 C08G64/00 B65D1/02 B29C49/04 B29C49/06

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)
IPC 7 C08G B65D B29C

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 practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ, CHEM ABS Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DE 199 43 642 A (BAYER AG) 15 March 2001 (2001-03-15) page 5, line 36 - line 39; figure 1; examples; table 1 page 6, line 24 - line 25 page 7, line 24 - line 40 ----- EP 0 411 433 A (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO) 6 February 1991 (1991-02-06) page 12, line 54 - line 56; examples; tables page 13, line 27 - line 37 page 2, line 45 -page 3, line 25 -----	1-6
X		1-6

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in 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 document but 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 23 May 2003	Date of mailing of the international search report 03/06/2003
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer Lohner, P

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

EP03/02901

Continuation of I.2

Claims: 1-3

The current Claims 1 to 3 relate to a polycarbonate that is defined by the following parameters: extensional viscosity in the uniaxial strain test at 200° C with increasing Hencky strain. In the given context the use of this parameter has to be seen as lacking in clarity (PCT Article 6). It is impossible to compare the parameter chosen by the applicant with the relevant disclosure in the prior art. The lack of clarity is such that it makes it impossible to conduct a meaningful complete search. The search for Claims 1 to 3 was therefore limited to pages 6-19 and 22-27 of the description, especially to the example.

The applicant is advised that claims or parts of claims relating to inventions in respect of which no international search report has been established normally cannot be the subject of an international preliminary examination (PCT Rule 66.1(e)). In its capacity as International Preliminary Examining Authority the EPO generally will not carry out a preliminary examination for subjects that have not been searched. This also applies to cases where the claims were amended after receipt of the international search report (PCT Article 19) or where the applicant submits new claims in the course of the procedure under PCT Chapter II.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No
PCT/EP 03/02901

Patent document cited in search report	Publication date		Patent family member(s)	Publication date
DE 19943642	A	15-03-2001	DE 19943642 A1 AU 5661100 A AU 7415200 A BG 106482 A BR 0014181 A CA 2384428 A1 CN 1371400 T CZ 20020893 A3 WO 0119892 A1 EP 1218436 A1 HU 0202602 A2 JP 2003509551 T SK 3372002 A3 TR 200200644 T2 TW 462934 B	15-03-2001 15-03-2001 17-04-2001 30-09-2002 07-05-2002 22-03-2001 25-09-2002 14-08-2002 22-03-2001 03-07-2002 28-12-2002 11-03-2003 08-10-2002 21-08-2002 11-11-2001
EP 0411433	A	06-02-1991	JP 3182524 A JP 7103235 B BR 9003792 A DE 69034012 D1 DE 69034012 T2 EP 0411433 A2 JP 2628562 B2 JP 3163131 A KR 9702663 B1 US 5283314 A US 5104964 A JP 2628563 B2 JP 3163132 A	08-08-1991 08-11-1995 03-09-1991 28-11-2002 13-03-2003 06-02-1991 09-07-1997 15-07-1991 07-03-1997 01-02-1994 14-04-1992 09-07-1997 15-07-1991

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/02901

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 7 C08G 00 B65D1/02 B29C49/04 B29C49/06
--

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestpräfiziert (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 C08G B65D B29C

Recherchierte aber nicht zum Mindestpräfiziert gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der Internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ, CHEM ABS Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Beltr. Anspruch Nr.
X	DE 199 43 642 A (BAYER AG) 15. März 2001 (2001-03-15) Seite 5, Zeile 36 – Zeile 39; Abbildung 1; Beispiele; Tabelle 1 Seite 6, Zeile 24 – Zeile 25 Seite 7, Zeile 24 – Zeile 40 -----	1-6
X	EP 0 411 433 A (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO) 6. Februar 1991 (1991-02-06) Seite 12, Zeile 54 – Zeile 56; Beispiele; Tabellen Seite 13, Zeile 27 – Zeile 37 Seite 2, Zeile 45 – Seite 3, Zeile 25 -----	1-6

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung,

eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann nahelegend ist

& Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

23. Mai 2003

03/06/2003

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Lohner, P

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP 03/02901

Feld I Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)

Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:

1. Ansprüche Nr. _____ weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich

2. Ansprüche Nr. 1-3 weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich
siehe Zusatzblatt WEITERE ANGABEN PCT/ISA/210

3. Ansprüche Nr. _____ weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.

Feld II Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

1. Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.
2. Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchengebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.
3. Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr. _____.
4. Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt:

Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

- Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt.
 Die Zahlung zusätzlicher Recherchengebühren erfolgte ohne Widerspruch.

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03 A2901

WEITERE ANGABEN	PCT/ISA/ 210
Fortsetzung von Feld I.2	
Ansprüche Nr.: 1-3	
<p>Die geltenden Patentansprüche 1 bis 3 sind auf ein Polycarbonat, das mittels folgender Parameter definiert wird, zu beziehen: Dehnviskosität im uniaxialen Dehnversuch bei 200°C mit steigender Hencky-Dehnung. Die Verwendung von diesem Parameter muss im gegebenen Zusammenhang als Mangel an Klarheit im Sinne von Art. 6 PCT erscheinen. Es ist unmöglich, der vom Anmelder gewählte Parameter mit dem zu vergleichen, was der Stand der Technik hierzu offenbart. Der Mangel an Klarheit ist dergestalt, daß er eine sinnvolle vollständige Recherche unmöglich macht. Daher wurde die Recherche für Ansprüche 1 bis 3 beschränkt auf die Beschreibung Seiten 6-19 und 22-27, insbesondere auf das Ausführungsbeispiel.</p> <p>Der Anmelder wird darauf hingewiesen, daß Patentansprüche, oder Teile von Patentansprüchen, auf Erfindungen, für die kein internationaler Recherchenbericht erstellt wurde, normalerweise nicht Gegenstand einer internationalen vorläufigen Prüfung sein können (Regel 66.1(e) PCT). In seiner Eigenschaft als mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde wird das EPA also in der Regel keine vorläufige Prüfung für Gegenstände durchführen, zu denen keine Recherche vorliegt. Dies gilt auch für den Fall, daß die Patentansprüche nach Erhalt des internationalen Recherchenberichtes geändert wurden (Art. 19 PCT), oder für den Fall, daß der Anmelder im Zuge des Verfahrens gemäß Kapitel II PCT neue Patentansprüche vorlegt.</p>	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 03/02901

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
DE 19943642	A	15-03-2001		DE 19943642 A1		15-03-2001
				AU 5661100 A		15-03-2001
				AU 7415200 A		17-04-2001
				BG 106482 A		30-09-2002
				BR 0014181 A		07-05-2002
				CA 2384428 A1		22-03-2001
				CN 1371400 T		25-09-2002
				CZ 20020893 A3		14-08-2002
				WO 0119892 A1		22-03-2001
				EP 1218436 A1		03-07-2002
				HU 0202602 A2		28-12-2002
				JP 2003509551 T		11-03-2003
				SK 3372002 A3		08-10-2002
				TR 200200644 T2		21-08-2002
				TW 462934 B		11-11-2001
EP 0411433	A	06-02-1991		JP 3182524 A		08-08-1991
				JP 7103235 B		08-11-1995
				BR 9003792 A		03-09-1991
				DE 69034012 D1		28-11-2002
				DE 69034012 T2		13-03-2003
				EP 0411433 A2		06-02-1991
				JP 2628562 B2		09-07-1997
				JP 3163131 A		15-07-1991
				KR 9702663 B1		07-03-1997
				US 5283314 A		01-02-1994
				US 5104964 A		14-04-1992
				JP 2628563 B2		09-07-1997
				JP 3163132 A		15-07-1991

フロントページの続き

(81)指定国 AP(GH,GM,KE,LS,MW,MZ,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,IE,IT,LU,MC,NL,PT,SE,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,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EC,EE,ES, FI,GB,GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KP,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,MA,MD,MG,MK,MN,MW,MX,MZ,N I,NO,NZ,OM,PH,PL,PT,RO,RU,SC,SD,SE,SG,SI,SK,SL,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,YU,ZA,ZM,ZW

(72)発明者 クラウス・ホルン

ドイツ連邦共和国デー - 4 1 5 3 9 ドルマゲン、バーンホーフシュトラーセ 13 番

(72)発明者 ラルフ・フーフェン

ドイツ連邦共和国デー - 4 7 2 3 9 デュースブルク、ツーム・レットゲンホーフ 25 番

(72)発明者 マルクス・クリーター

ドイツ連邦共和国デー - 4 0 7 6 4 ランゲンフェルト、グラーフェンベルガー・ヴェーク 8 番

(72)発明者 ディルク・ジャック・ディクストラ

ドイツ連邦共和国デー - 5 1 3 7 9 レーフエルクーゼン、ビルケンベルクシュトラーセ 40 番

(72)発明者 イエンス・ヘッペルレ

ドイツ連邦共和国デー - 5 0 6 6 7 ケルン、シルダーガッセ 83 番

(72)発明者 ヘルムート・ミュンシュテット

ドイツ連邦共和国デー - 9 1 0 5 4 ブッケンホーフ、ヴァルトヴェーク 16 番

F ターム(参考) 3E033 AA02 BA26 CA02 DA02 DB01 DC10 DD02 FA02 FA03

4F071 AA50 AA80 AA88 AF06 AF54 AH05 BA01 BB09 BC04

4J029 AA09 AB07 AC01 AC02 AD01 AD10 AE01 BB13 BD03 BD06

HC03