

(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2008-543610

(P2008-543610A)

(43) 公表日 平成20年12月4日(2008.12.4)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
B 3 2 B 37/00 (2006.01)	B 3 2 B 31/00	4 F 1 0 0
B 3 2 B 27/34 (2006.01)	B 3 2 B 27/34	
B 3 2 B 27/36 (2006.01)	B 3 2 B 27/36	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 79 頁)

(21) 出願番号	特願2008-516843 (P2008-516843)	(71) 出願人	594055158
(86) (22) 出願日	平成18年3月30日 (2006.3.30)		イーストマン ケミカル カンパニー
(85) 翻訳文提出日	平成20年2月6日 (2008.2.6)		アメリカ合衆国 37662 テネシー州
(86) 国際出願番号	PCT/US2006/011928		キングスポート ウイルコックス ドラ
(87) 国際公開番号	W02007/001561		イブ サウス 200
(87) 国際公開日	平成19年1月4日 (2007.1.4)	(74) 代理人	100099759
(31) 優先権主張番号	60/691,567		弁理士 青木 篤
(32) 優先日	平成17年6月17日 (2005.6.17)	(74) 代理人	100077517
(33) 優先権主張国	米国 (US)		弁理士 石田 敬
(31) 優先権主張番号	60/731,389	(74) 代理人	100087413
(32) 優先日	平成17年10月28日 (2005.10.28)		弁理士 古賀 哲次
(33) 優先権主張国	米国 (US)	(74) 代理人	100102990
(31) 優先権主張番号	60/731,454		弁理士 小林 良博
(32) 優先日	平成17年10月28日 (2005.10.28)	(74) 代理人	100128495
(33) 優先権主張国	米国 (US)		弁理士 出野 知

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 シクロブタンジオールと均一ポリアミド配合品を含むポリエステルを含有する多層透明製品の製造法

(57) 【要約】

高透明性と低曇り価とを有する、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオールを含む少なくとも1つのポリエステルを含有する少なくとも1つの層と、コポリアミド又はポリアミドの均一配合物を含有する別の層とを含む透明多層製品の製造法が開示される。ポリエステル成分とポリアミド成分とは、約0.006~約-0.0006だけ異なる屈折率を有する。この屈折率の小さな差は、高透明性を維持しながら、製品の1つ又はそれ以上の層にリグラインドを取り込むことを可能にする。これらの製品は、優れた機械的性質を保持しながら、改良された優れたバリア性と良好な溶融物加工性とを示すことができる。酸素排除性を付与するために、1つ又はそれ以上の層に金属触媒を取り込むことができる。

【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

多層成形製品の製造方法であって、

(A) 第 1 成分を、該第 1 成分の約 $T_g + 100$ ~ 約 $T_g + 300$ の温度に加熱し
[ここで該第 1 成分は以下を含む少なくとも 1 つのポリエステルを含む；

(a) 総二酸残基に基づき約 95 ~ 約 100 モルパーセントのテレフタル酸残基；及び

(b) 総ジオール残基に基づき約 15 ~ 約 40 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基と；約 60 ~ 約 85 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基とを含むジオール残基]、ここで該ポリエステルは、
約 0.55 ~ 約 0.75 dL / g のインヘレント粘度を有する；

(B) 第 2 成分を、約 290 ~ 約 310 の温度に加熱し、ここで、該第 2 成分は、
(a) ジアミンと二酸残基を有し、かつ、総ジアミン残基に基づき、約 100 モルパーセントの m - キシレンジアミン及び総二酸残基に基づき、約 100 モルパーセントのアジピン酸；並びに (b) ナイロン 6 及びナイロン 6, 6 から選ばれる少なくとも 1 のポリアミドのアミド基転移均一配合物を含む；

(C) 前記第 1 ポリマー成分と前記第 2 ポリマー成分を別の層に有する成形製品を作成し；

(D) スクラップ第 1 及び第 2 成分を回収し；

(E) 前記スクラップ第 1 及び第 2 成分を粉砕してリグラインドを作成し；

(F) 場合により、前記リグラインドを乾燥させ；そして

(G) 前記リグラインドと、工程 (A) と (B) の第 1 成分、第 2 成分、又はこれらの組合せとを一緒にする

工程を含み、

ここで、工程 (B) の第 2 成分と工程 (B) の第 1 成分は屈折率の差 [RI (第 2 成分) - RI (第 1 成分)] が約 0.006 ~ 約 - 0.0006 であり、該成形製品は透過パーセントが少なくとも 75 % で曇り価が 10 % 又はそれ以下であることを特徴とする、上記方法。

【請求項 2】

該リグラインドは、工程 (A) と (B) の第 1 及び第 2 成分の混合物を含む、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

該リグラインドは工程 (A) 該第 1 成分と一緒にされる、請求項 2 に記載の方法。

【請求項 4】

該リグラインドは、成形製品の総重量に基づき、該成形製品の約 5 重量パーセント ~ 約 60 重量パーセントである、請求項 2 に記載の方法。

【請求項 5】

該リグラインドは、該成形製品の約 10 重量パーセント ~ 約 40 重量パーセントである、請求項 4 に記載の方法。

【請求項 6】

該リグラインドは、該成形製品の約 20 重量パーセント ~ 約 30 重量パーセントである、請求項 5 に記載の方法。

【請求項 7】

該作成は、押出し、カレンダー加工、熱成形、吹込み成形、押出し吹込成形、射出成形、圧縮成形、鋳造、ドラフティング、幅出し、又は吹込みによる、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 8】

シート、フィルム、チューブ、ピン、又は予備成形物である、請求項 7 に記載の方法。

【請求項 9】

該作成は押出し機中である、請求項 7 に記載の方法。

10

20

30

40

50

【請求項 10】

該成形製品は 2 ～ 7 層を有する、請求項 7 に記載の方法。

【請求項 11】

A B A、A B A B A、又は A B C B A で示される層構造（ここで、A 層は工程（A）の該第 1 成分を含み、B 層は工程（B）の該第 2 成分を含み、C 層は、工程（A）と（B）のスクラップ第 1 及び第 2 成分、消費者使用後のリサイクルにより得られるポリエステルもしくはポリカーボネート、又はこれらの混合物を含む）を有する、請求項 10 に記載の方法。

【請求項 12】

工程（B）の該第 2 成分と工程（A）の該第 1 成分は、屈折率の差 $[RI（第 2 成分） - RI（第 1 成分）]$ が約 0.005 ～ 約 - 0.0006 である、請求項 12 に記載の方法。

10

【請求項 13】

該ジオール残基は、約 20 ～ 約 30 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基と約 70 ～ 約 80 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基とを含む、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 14】

該ジオール残基は、約 20 ～ 約 25 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基と約 75 ～ 約 80 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基とを含む、請求項 13 に記載の方法。

20

【請求項 15】

前記工程（A）の該第 1 成分は、該ポリエステルと、ビスフェノール A 残基を含むポリカーボネートとの均一配合物をさらに含む、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 16】

該ポリエステルと該ポリカーボネートは分岐している、請求項 15 に記載の方法。

【請求項 17】

前記工程（B）の該第 2 成分は、該成形製品の総重量に基づき、約 5 ～ 約 600 重量 ppm のコバルトを含有する、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 18】

該アミド基転移均一配合物は 20 ミリモル / kg 又はそれ以下の末端アミン基を含む、請求項 17 に記載の方法。

30

【請求項 19】

工程（iii）は、少なくとも 1 つの追加の層の総重量に基づき約 50 ～ 100 重量パーセントの該リグラインドを含む少なくとも 1 つの追加の層を作成することをさらに含む、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 20】

該少なくとも 1 つの追加の層は、該成形製品の総重量に基づき、約 5 ～ 約 600 重量 ppm の、銅、ニッケル、コバルト、鉄、マンガン、及びこれらの組合せから選択される少なくとも 1 つの金属を含む、請求項 19 に記載の方法。

【請求項 21】

該金属はコバルトである、請求項 20 に記載の方法。

40

【請求項 22】

該インヘレント粘度は、0.6 ～ 0.72 dL/g である、請求項 1、13 又は 14 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 23】

該ポリエステルは約 110 ～ 約 150 のガラス転移温度を有する、請求項 1、13 又は 14 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 24】

該ガラス転移温度は 120 ～ 約 135 である、請求項 23 に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

50

【技術分野】

【0001】

関連出願の相互参照

本出願は、米国仮特許出願第60/657,746号(2005年3月2日出願)と第60/657,747号(2005年3月2日出願)の利益を請求する米国特許出願第11/363,418号(2006年2月27日出願)の一部継続出願である。本出願はさらに、35 U.S.C. § 119(e)に従って、米国仮特許出願第60/691,567号(2005年6月17日出願)、米国仮特許出願第60/731,454号(2005年10月28日出願)、米国仮特許出願第60/731,389号(2005年10月28日出願)、米国仮特許出願第60/739,058号(2005年11月22日出願)、米国仮特許出願第60/738,869号(2005年11月22日出願)、米国仮特許出願第60/750,692号(2005年12月15日出願)、米国仮特許出願第60/750,693号(2005年12月15日出願)、米国仮特許出願第60/750,682号(2005年月12日15日出願)、米国仮特許出願第60/750,547号(2005年月12日15日出願)(これらのすべては参照することによりその全体が本明細書に組み込まれる)の利益を請求する。

10

【0002】

本発明の分野

本発明は、透明の多層成形製品、及びその製造法に関する。さらに詳しくは本発明は、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオールを含む少なくとも1つのポリエステルを含有する少なくとも1つの層と、ポリアミドの均一配合物とを含有する別の層とを、含有する透明多層製品の製法に関する。これらの層はその屈折率の絶対値において小さな差を有する。本発明はさらに、スクラップポリマーリグラインドがリサイクルされる透明多層成形製品の製造法にも関する。

20

【背景技術】

【0003】

本発明の背景

多くの製品(特に食品)は、酸素の存在と水の喪失や吸収に感受性である。この感受性を有するパッケージ製品は、酸素への暴露又は水分の吸収による劣化を受けやすい。例えば食品への酸素の暴露を制限するパッケージ材料は、食品の品質を維持し腐敗を少なくすることを助ける。かかるバリアパッケージの使用は、在庫製品を長期間維持し、従って補充コストや廃棄物を減少させる。この問題を解決するための試みにより、パッケージ材料において酸素バリア及び/又は水分バリアが広く使用されるようになった。酸素又は水分のバリアとして作用する多くのポリマー材料が知られている。例えば典型的な水分バリアには、ポリエチレン及びポリプロピレンがある。代表的な酸素バリアには、ポリ(エチレンビニルアルコール)(「EVOH」)、ポリ(ビニルアルコール)(「PVOH」)、ポリアミド(ナイロン)、及びこれらの物質の配合物がある。ポリ(塩化ビニリデン)、塩化ビニルコポリマー、及び塩化ビニリデン-アクリル酸メチルコポリマーもまた、水分バリア及び酸素バリアとして有用である。

30

【0004】

しかしこれらの従来のバリア材料は高価であり、不安定な構造的特徴を有するか、又はバリア材料のみからパッケージ材料を作成することを困難にするか又は好ましくないものにする他の欠陥を有する。例えばEVOHは優れた酸素バリア性を有するが、水分バリアとしては有効ではない。他のバリア材料は単独にパッケージ材料として使用するには法外に高価である。これらの問題を避けるために、高価なバリア材料の量が薄層まで低減され、構造層としてバリア層の片側又は両側で安価なポリマーとともに使用する多層構造を使用することが一般的になった。多層構造の使用はまた、構造層による劣化からバリア層を防御するのに役立つ。しかし多層製品は、製造が高価になることがある。さらに多層製品は、異なるポリマー成分を分離することが困難なため、リサイクルの問題が発生することがある。さらに新しいポリマーに、回収されたスクラップポリマー又は「リグラインド

40

50

」を配合することは、新しい材料とリグラインドとの非適合性のために、しばしば好ましくない曇り又は不透明性を与える。

【 0 0 0 5 】

バリアポリマーと他のポリマーとの配合物を使用することにより、従来のバリアポリマーの欠点が克服される可能性がある。上記したように、残念ながらバリアポリマーと他の熱可塑性ポリマーの多くの配合物は不混和性であり、不透明であるか又は曇っている。かかる配合物は、透明性が必要な用途（例えば飲料容器）には適していない。

【 0 0 0 6 】

パッケージ用途ではポリエステルポリマー（例えばポリ（エチレンテレフタレート）（「PET」））が一般的に使用される。PETは、これをパッケージ材料として有用にする多くの性質（数人分を含むビンに詰められるソフトドリンクのための、許容される二酸化炭素バリアを含む）を有する。しかし小さなビンに詰められるソフトドリンクにはPETの二酸化炭素バリアの改良が必要であり、酸素に感受性の製品（例えば、ビール、柑橘類製品、トマトベースの製品、及び無菌的に梱包される肉）をパッケージするのにあまり適していないその酸素バリアの改良が必要である。ポリ（エチレンナフタレート）（「PEN」）はバリアとしてPETより3～10倍有効であるが、さらに高価である。

【 0 0 0 7 】

PETのガスバリア性を改良するために、多層構造を使用することができる。例えば優れた酸素バリア性（「受動バリア」とも呼ばれる）又は排除性（「能動バリア」とも呼ばれる）を有するポリマーをPETと組合せて、個々のポリマーからなる積層構造を作成してもよい。しかしこれらの多層構造は製造が高価である。バリアポリマーとPETとも配合物もまた、パッケージの酸素バリアを改良するのに使用されているが、上記したように透明性が乏しく、多くのパッケージ用途には適していない。配合物の低い透明性はまた、ポリマー配合物から未使用ポリマーへのリサイクルを困難にする。

【 0 0 0 8 】

コポリエステルフィルム及び押出し吹込成形（「EBM」）されたビンは、頑丈なため好ましく、押出し吹込成形とフィルム用途にPETの代わりに一般的に使用される。これらの用途はしばしば、延伸PETに匹敵するバリアが必要である。しかし残念ながら、コポリエステルのバリア性は延伸PETよりは劣る。薄いバリアフィルムを厚いバルク構造の中心に同時押出しして多層構造を作成して、全体のバリア性を改良することができる。しかし経済的にするために、EBMとフィルム法は典型的には、高レベル（最大80%）のリグラインド（すなわち、フラッシュ及びトリム）を再処理することを必要とする。残念ながら典型的なバリア材料はコポリエステルと混和せず、これらのバリアポリマーとポリエステルとの配合物はしばしば、高レベルの曇りと低い透明性を示す。従ってスクラップポリマー（すなわちリグラインド）を最初の層に戻すと、全体のフィルム構造の曇り（ヘーズ）レベルが許容されないレベルまで上昇する。

【 発明の開示 】

【 発明が解決しようとする課題 】

【 0 0 0 9 】

良好な受動及び／又は能動バリア性を与え、安価であり、効率的にリサイクルできるポリマー配合物が、当該分野で必要である。かかる配合物は、透明で、酸素、水、及び二酸化炭素に対して高いバリア性を与える熱可塑性のバリアポリマーを含有し、高レベルのリグラインドを取り込む製品製造法で経済的に使用できる。さらに、高透明性を有する多層製品を経済的に製造するのに使用でき、高レベルのリグラインドを許容できるバリアポリマー及び熱可塑性ポリマーに対するニーズがある。

【 課題を解決するための手段 】

【 0 0 1 0 】

高い透明性と高いバリア性を有するポリマー組成物は、ポリアミド成分と熱可塑性ポリマー成分の屈折率の差は約0.006～約-0.0006であることを特徴とする、1つ又はそれ以上の熱可塑性ポリマーと、コポリアミド又は少なくとも2つのポリアミドの均一

10

20

30

40

50

なアミド基転移配合物との不混和性配合物から製造することができる。すなわち本発明はポリマー組成物であって、

(i) ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物から選択される少なくとも1つの熱可塑性ポリマーを含む第1成分と；

(ii) 少なくとも2つのポリアミドの均一なアミド基転移配合物を含む第2成分との、不混和性配合物を含んでなるポリマー組成物であって、第2成分(ii)と第1成分(i)は屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約 $0.006 \sim 約 - 0.0006$ であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下であることを特徴とする、上記組成物を提供する。

【0011】

本発明の別の態様において第1成分は、テレフタル酸、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、及び1,4-シクロヘキサジメタノールの残基を含むポリエステルを含む。すなわち本発明はまた、

(i) (a) 総二酸残基に基づき約70～約100モルパーセントのテレフタル酸残基と；0～約30モルパーセントの、最大20個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾芳香族ジカルボン酸残基と；0～約10モルパーセントの、最大16個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基とを含む二酸残基と；

(b) 総ジオール残基に基づき約1～約99モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と；約1～約99モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基とを含むジオール残基とを、含む少なくとも1つのポリエステルを含む第1成分と；

(ii) 少なくとも2つのポリアミドの均一なアミド基転移配合物を含む第2成分との不混和性配合物を含んでなるポリマー組成物であって、第2成分(ii)と第1成分(i)は屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約 $0.006 \sim 約 - 0.0006$ であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下であることを特徴とする、上記組成物を提供する。

【0012】

第1成分は、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらのポリマーの均一配合物から選択される少なくとも1つの熱可塑性ポリマーを含み、第2成分は、均一配合物を生成するようにアミド基転移された少なくとも2つのポリアミドの配合物を含む。我々は、異なるレベルの脂肪族残基と芳香族残基とを有する少なくとも2つのポリアミドを選択し、これらのポリアミドをアミド基転移して均一配合物を作成することにより、第1成分と第2成分の屈折率をほぼ一致させることができることを見いだした。すなわち熱可塑性ポリマーとポリアミドの均一配合物を使用して、屈折率の差が約 $0.006 \sim 約 - 0.0006$ である所望の範囲内になるように、第2成分と第1成分の屈折率を調整することができる。例えば、ビスフェノールAの残基を含むポリエステルとポリカーボネートの均一配合物を第1成分として使用し、m-キシレンジアミンとアジピン酸の残基を含む第1のポリアミドと第2の脂肪族ブールAとの均一配合物をバリアポリマーとして使用することができる。こうして屈折率を一致させると、第1成分と第2成分は、多くのパッケージ分野で透明性の高い成形製品の製造に適した透明な不混和性の配合物を生成する。多層製品はまた、当該分野の種々の方法で製造される。例えば第1成分と第2成分を溶融物から別の層に同時押し出し又は同時射出するか、又は個々に層を形成し、以後の操作(例えば積層)で一緒にしてもよい。

【0013】

第2成分はまた、ある比率の芳香族ジカルボン酸と脂肪族ジカルボン酸、及び第1成分と第2成分の屈折率にほぼ一致するように変化させることができるジアミン残基とを有するコポリアミドを含むこともできる。すなわち本発明の別の態様は、

(i) ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物から選択される少なくとも1つの熱可塑性ポリマーを含む第1成分と；

(ii) コポリアミドを含む第2成分との、

10

20

30

40

50

不混和性配合物を含んでなるポリマー組成物であって、第2成分(ii)と第1成分(i)は屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約0.006~約-0.0006であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下であることを特徴とする、上記組成物を提供する。別の実施態様において第1成分は、テレフタル酸、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、及び1,4-シクロヘキサジメタノールの残基を含むポリエステルを含む。すなわち本発明は、

(i)(a) 総二酸残基に基づき約70~約100モルパーセントのテレフタル酸残基と；0~約30モルパーセントの、最大20個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾芳香族ジカルボン酸残基と；0~約10モルパーセントの、最大16個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基とを含む二酸残基と；

(b) 総ジオール残基に基づき約1~約99モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と；約1~約99モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基とを含むジオール残基とを、含む少なくとも1つのポリエステルを含む第1成分と；

(ii) コポリアミドを含む第2成分との；

不混和性配合物を含んでなるポリマー組成物であって、第2成分(ii)と第1成分(i)は屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約0.006~約-0.0006であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下であることを特徴とする、上記組成物を提供する。

【0014】

本発明の別の態様は、

(i) ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物から選択される少なくとも1つの熱可塑性ポリマーを含む第1成分と；

(ii) 少なくとも2つのポリアミドの均一なアミド基転移配合物を含む第2成分とを、溶融配合することを含んでなる方法により製造されるポリマー組成物であって、第2成分(ii)と第1成分(i)は屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約0.006~約-0.0006であり、組成物は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下であることを特徴とする、上記組成物である。本発明のさらに別の態様において第1成分は、テレフタル酸、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、及び1,4-シクロヘキサジメタノールの残基を含むポリエステルを含む。すなわち本発明は、

(i)(a) 総二酸残基に基づき約70~約100モルパーセントのテレフタル酸残基と；0~約30モルパーセントの、最大20個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾芳香族ジカルボン酸残基と；0~約10モルパーセントの、最大16個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基とを含む二酸残基と；

(b) 総ジオール残基に基づき約1~約99モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と；約1~約99モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基とを含むジオール残基とを、含む少なくとも1つのポリエステルを含む第1成分と；

(ii) 少なくとも2つのポリアミドの均一なアミド基転移配合物を含む第2成分とを、溶融配合することを含んでなる方法により製造されるポリマー組成物であって、第2成分(ii)と第1成分(i)は屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約0.006~約-0.0006であり、組成物は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下であることを特徴とする、上記組成物を提供する。

【0015】

本発明の組成物は優れたバリア性を示す。酸素バリア性は、遷移金属触媒(例えば、コバルト、マンガン、鉄、ルテニウム、銅、ニッケル、パラジウム、及び白金)を配合物中に取り込んで酸素排除組成物(oxygen-scavenging composition)を生成することにより増強される。従って本発明はさらに、

(A)(i) ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物から選択される少なくとも1つの熱可塑性ポリマーを含む第1成分と；

(ii) 少なくとも2つのポリアミドのアミド基転移均一配合物を含む第2成分とを、含む不混和性配合物と

(第2成分(ii)と第1成分(i)は屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約0.006～約-0.0006であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下であること)；

(B) 元素の周期表の3～12族で4～6周期から選択される少なくとも1つの金属とを、

含む酸素排除組成物を提供する。

10

典型的な触媒には、特に限定されないが、コバルト、マンガン、及び鉄がある。不混和性配合物の第1成分は、テレフタル酸、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、1,4-シクロヘキサジメタノールの残基を含むポリエステルを含んでよい。すなわち本発明の別の実施態様は、

(A)(i)(a) 総二酸残基に基づき約70～約100モルパーセントのテレフタル酸残基と；0～約30モルパーセントの、最大20個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾芳香族ジカルボン酸残基と；0～約10モルパーセントの、最大16個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基とを含む二酸残基と；

(b) 総ジオール残基に基づき約1～約99モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と；約1～約99モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基とを含むジオール残基とを、含む少なくとも1つのポリエステルを含む第1成分と；

20

(ii) 少なくとも2つのポリアミドの均一なアミド基転移配合物を含む第2成分とを含む不混和性配合物(第2成分(ii)と第1成分(i)は屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約0.006～約-0.0006であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下であることを特徴とする)と；

(B) 元素の周期表の3～12族で4～6周期から選択される少なくとも1つの金属とを、

含む酸素排除組成物である。

30

【0016】

本発明の配合物は、改良されたバリア性、溶融物加工性、及び優れた機械的性質を有し、かつ未使用ポリマーに対して高率のリグラインドを使用して製造できる透明な成形製品を製造するのに有用である。これらの成形製品は、一層又は多層を有し、無数のパッケージ用途がある。従って本発明はさらに、成形製品を作成する方法であって、

(A)(i) ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物から選択される少なくとも1つの熱可塑性ポリマーを含む第1成分と；

(ii) コポリアミド、又は少なくとも2つのポリアミドの均一なアミド基転移配合物を含む第2成分とを、溶融配合し

(ここで、第1成分(i)と第2成分(ii)とは不混和性配合物を生成し、第2成分と第1成分は屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約0.006～約-0.0006であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下である)；

40

(B) 成形製品を作成し；

(C) 配合された第1及び第2成分(i)と(ii)を含むスクラップポリマー組成物を回収し；

(D) スクラップポリマー組成物を粉砕してポリマーリグラインドを作成し；

(E) 場合により、スクラップポリマー組成物を乾燥させ；そして

(F) ポリマーリグラインドと工程(A)の第1及び第2成分(i)と(ii)とを一緒にすることを含んでなる、上記方法を提供する。別の例において第1成分は、テレフタル

50

酸、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、及び1,4-シクロヘキサジメタノールの残基を含むポリエステルを含むことができる。すなわち本発明はまた、成形製品を作成する方法であって、

(A)(i)(a) 総二酸残基に基づき約70～約100モルパーセントのテレフタル酸残基と；0～約30モルパーセントの、最大20個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾芳香族ジカルボン酸残基と；0～約10モルパーセントの、最大16個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基とを含む二酸残基と；

(b) 総ジオール残基に基づき約1～約99モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と；約1～約99モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基とを含むジオール残基とを、含む少なくとも1つのポリエステルを含む第1成分と；

(ii) コポリアミド、又は少なくとも2つのポリアミドの均一なアミド基転移配合物を含む第2成分とを、溶融配合し

(ここで、第1成分(i)と第2成分(ii)とは不混和性配合物を生成し、第2成分(ii)と第1成分(i)は屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約0.006～約-0.0006であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下である)；

(B) 成形製品を作成し；

(C) 配合された第1及び第2成分(i)と(ii)を含むスクラップポリマー組成物を回収し；

(D) スクラップポリマー組成物を粉砕してポリマーリグラインドを作成し；

(E) 場合により、スクラップポリマー組成物を乾燥させ；そして

(F) ポリマーリグラインドと、工程(A)の第1及び第2成分(i)と(ii)とを一緒にする、

ことを含んでなる、上記方法を含む。

本発明の方法により製造される成形製品の例には、特に限定されないが、シート、フィルム、チューブ、ピン、又は異形製品がある。成形製品は、押出し、カレンダー加工、熱成形、吹込み成形、押出し吹込成形、射出成形、圧縮成形、鋳造、ドラフティング、幅出し、又は吹込みにより製造される。

【0017】

成形製品は、第1及び第2成分の不混和性配合物を含む1つ又はそれ以上の層を有するか、又は第1及び第2成分が別の層に存在する多層を有する。従って本発明はまた、多層成形製品であって、

(i) ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物から選択される少なくとも1つの熱可塑性ポリマーを含む第1層と；

(ii) 少なくとも2つのポリアミドのアミド基転移均一配合物を含む第2層とを、

含んでなり、第2層(ii)と第1層(i)は屈折率の差 $[RI(第2層) - RI(第1層)]$ が約0.006～約-0.0006であり、成形製品は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下であることを特徴とする、上記成形製品を提供する。別の実施態様において第1層は、テレフタル酸、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、及び1,4-シクロヘキサジメタノールの残基を含むポリエステルを含むことができる。すなわち本発明の別の実施態様は多層成形製品であって、

(i)(a) 総二酸残基に基づき約70～約100モルパーセントのテレフタル酸残基と；0～約30モルパーセントの、最大20個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾芳香族ジカルボン酸残基と；0～約10モルパーセントの、最大16個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基とを含む二酸残基と；

(b) 総ジオール残基に基づき約1～約99モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と；約1～約99モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基とを含むジオール残基とを含む、少なくとも1つのポリエステルを含む第1層と；

10

20

30

40

50

(ii) 少なくとも2つのポリアミドのアミド基転移均一配合物を含む第2層とを、含んでなり、

ここで第2層(ii)と第1層(i)は屈折率の差 $[RI(第2層) - RI(第1層)]$ が約0.006~約-0.0006であり、成形製品は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下であることを特徴とする、上記成形製品である。

【0018】

本発明はさらに、多層成形製品の製造方法であって、

(i) ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリレート、及びこれらの均一配合物から選択される少なくとも1つの熱可塑性ポリマーを含む第1成分を、第1成分の約 $T_g + 100$ ~ 約 $T_g + 300$ の温度に加熱し；

(ii) コポリアミド、又は少なくとも2つのポリアミドのアミド基転移均一配合物を含む第2成分を、第2成分の約 $T_g + 100$ ~ 約 $T_g + 300$ の温度に加熱し；

(iii) 第1成分と第2成分を別の層に有する成形製品を作成し；

(iv) スクラップ第1及び第2成分を回収し；

(v) スクラップ第1及び第2成分を粉砕してリグラインドを作成し；

(vi) 場合により、リグラインドを乾燥させ；そして

(vii) リグラインドと、工程(i)と(ii)の第1成分、第2成分、又はこれらの組合せとを一緒にすることを含んでなり、

ここで、工程(ii)の第2成分と工程(i)の第1成分は屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約0.006~約-0.0006であり、成形製品は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下であることを特徴とする、上記方法を提供する。別の例において第1成分は、テレフタル酸、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、及び1,4-シクロヘキサジメタノールの残基を含むポリエステルを含むことができる。従って本発明の別の態様は、多層成形製品の製造方法であって、

(i) 第1成分を、第1成分の約 $T_g + 100$ ~ 約 $T_g + 300$ の温度に加熱し[ここで第1成分は、

(a) 総二酸残基に基づき約70~約100モルパーセントのテレフタル酸残基と；0~約30モルパーセントの、最大20個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾芳香族ジカルボン酸残基と；0~約10モルパーセントの、最大16個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基とを含む二酸残基と；

(b) 総ジオール残基に基づき約1~約99モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と；約1~約99モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基とを含むジオール残基とを、含む少なくとも1つのポリエステルを含む]；

(ii) コポリアミド、又は少なくとも2つのポリアミドのアミド基転移均一配合物を含む第2成分を、第2成分の約 $T_g + 100$ ~ 約 $T_g + 300$ の温度に加熱し；

(iii) 第1成分と第2成分を別の層に有する成形製品を作成し；

(iv) スクラップ第1及び第2成分を回収し；

(v) スクラップ第1及び第2成分を粉砕してリグラインドを作成し；

(vi) 場合により、リグラインドを乾燥させ；そして

(vii) リグラインドと、工程(i)と(ii)の第1成分、第2成分、又はこれらの組合せとを一緒にすることを含んでなり、

ここで、工程(ii)の第2成分と工程(i)の第1成分は屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約0.006~約-0.0006であり、成形製品は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下であることを特徴とする、上記方法である。リグラインドは、第1及び第2層に取り込まれ、製品の約5~約60重量%でもよい。

【発明を実施するための最良の形態】

【0019】

10

20

30

40

50

詳細な説明

高い透明性と良好なバリア性を有するポリマー組成物は、1つ又はそれ以上の熱可塑性ポリマーと、少なくとも2つのアミド基転移均一配合物（ここでポリアミドと熱可塑性ポリマーの配合物間の屈折率の差は約0.006～約-0.0006である）との不混和性配合物から製造することができる。不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下である。一般例に本発明は、

(i) ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物から選択される少なくとも1つの熱可塑性ポリマーを含む第1成分と；

(ii) 少なくとも2つのポリアミドの均一なアミド基転移配合物を含む第2成分との、不混和性配合物を含んでなるポリマー組成物であって、第2成分(ii)と第1成分(i)は屈折率の差 $[RI(\text{第2成分}) - RI(\text{第1成分})]$ が約0.006～約-0.0006であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下であることを特徴とする、上記組成物を提供する。熱可塑性ポリマーとポリアミドは、広範囲のポリマーから選択される。例えば第1成分は、テレフタル酸、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、及び1,4-シクロヘキサジメタノールの残基を含むポリエステルを含むことができる。第2成分と第1成分の屈折率は、第2成分のポリアミドの選択と比率により、又は第1成分の熱可塑性ポリマーを配合して、均一配合物を作成することにより、約0.006～約-0.0006の差になるように調整することができる。我々の新規組成物は、1つ又はそれ以上の層を有する成形製品（例えば、シート、フィルム、チューブ、ピン、又は異形製品）を製造するのに使用することができる。成形製品は、押出し、カレンダー加工、熱成形、吹込み成形、押出し吹込成形、射出成形、圧縮成形、鋳造、ドラフティング、幅出し、又は吹込みにより製造される。不混和性配合物が1つ又はそれ以上の層に存在するか、又は第1及び第2成分が別々の層に存在する多層製品を製造することができる。第1及び第2成分の屈折率のわずかの差のために、本発明の組成物から製造される成形製品は、多量のリグラインドを有し良好な透明性を有することができる。これらの製造された成形製品の透明性とバリア性は、これらをパッケージ用途に有用なものにする。

【0020】

特に明記しない場合は、明細書及び請求項で使用される成分の量を示すすべての数、分子量、反応条件などは、すべての場合に「約」という用語をつけて修飾されると理解されたい。従って特に反対のことを記載しない場合は、以下の明細書や請求項中の数値パラメータは、本発明により得られると考えられる所望の性質に依存して変動し得る近似である。少なくとも各数値パラメータは、報告された有効数字の数で、及び通常の丸め法を適用して理解されたい。さらに本開示と請求項に記載の範囲は、全範囲を含むものであり、終点のみではない。例えば0～10と記載された範囲は、0と10の間のすべての整数（例えば、1、2、3、4など、0と10の間のすべての少数（例えば、1.5、2.3、4.57、6.113など）、及び終点である0と10を含むことを企図する。また化学基に関連する範囲（例えば、「 $C_1 \sim C_5$ 炭化水素」）は、具体的に C_1 炭化水素と C_5 炭化水素、ならびに C_2 、 C_3 、及び C_4 炭化水素を含むことを企図する。

【0021】

本発明の広範囲を示す数値範囲やパラメータは近似であるが、具体例に示される数値はできるだけ正確に報告されている。しかしすべての数値は、各試験測定値中に存在する標準偏差に必ず起因するある程度の誤差を本質的に含む。

【0022】

明細書と請求項で使用されるように、単数の「a」、「an」及び「the」は、文脈が明らかにその反対を意味するのでなければ、複数形も含む。例えば「ポリマー」又は「成形製品」は、複数のポリマー又は製品の加工又は製造を含むと企図される。「an」成分又は「a」ポリマーを含有するか又は含む組成物は、記載のもの以外にそれぞれ他の成分又は他のポリマーを含むことを企図する。

【0023】

「含んでなる」又は「含有する」又は「含む」とは、その組成物又は製品又は方法中に、少なくとも記載の化合物、要素、粒子、又は方法の工程などが存在するが、他の化合物、触媒、材料、粒子、方法の工程などが記載のものと同じ機能を有しても、請求項で明らかに除外されるのでなければ、これらを排除するものではない。

【0024】

また、1つ又はそれ以上の方法の工程の言及は、記載の工程の組合せ又はこれらの工程の間に介在する方法の工程が明らかに特定される前又は後に、追加の方法の工程の存在を排除しないことを理解されたい。さらに方法の工程又は成分の標記は、個別の活性又は成分を特定するための便利な手段であり、これらの標記は、特に明記しない場合は、任意の順序で構成することができる。

10

【0025】

本明細書において用語「ポリエステル」は、ホモポリエステル、コポリエステル、及びターポリエステルを含むことを企図する。一般にポリエステルは、1つ又はそれ以上の2官能性及び/又は多官能性カルボン酸と、1つ又はそれ以上の2官能性及び/又は多官能性ヒドロキシル化合物との重縮合により製造される合成ポリマーである。典型的には2官能性カルボン酸は、ジカルボン酸又はヒドロキシカルボン酸であり、2官能性ヒドロキシル化合物は2価アルコール、例えばグリコール及びジオールである。また本発明のポリエステルは、3つ又はそれ以上のカルボン酸基、ヒドロキシル基、又はカルボン酸とヒドロキシル基の組合せを含有してもよい分岐モノマーを含有することができる。従って本明細書において用語「二酸」又は「ジカルボン酸」はまた、分岐モノマーとして使用される多官能性カルボン酸（例えばトリメリット酸）も含むことを企図する。同様に本明細書において用語「ジオール」又は「グリコール」もまた、分岐モノマーとして使用される多官能性ヒドロキシル化合物（例えばペンタエリトリール）も含むことを企図する。本発明において2官能性又は多官能性カルボン酸は、脂肪族又は脂環式ジカルボン酸（例えば、アジピン酸）又は芳香族ジカルボン酸（例えばテレフタル酸）でもよい。2官能性ヒドロキシル化合物は、脂環式ジオール（例えば、1,4-シクロヘキサジメタノール）、直鎖又は分岐鎖の脂肪族ジオール（例えば1,4-ブタンジオール）又は芳香族ジオキシ（例えばヒドロキノン）でもよい。

20

【0026】

本発明で使用されるポリエステルは典型的には、実質的に同比率で反応し、その対応する残基としてポリエステルポリマー中に取り込まれる、ジカルボン酸とジオールから製造される。従って本発明のジカルボン酸とジオール残基から得られるポリエステルは、実質的に等モル比の酸残基（100モルパーセント）とジオール残基（100モルパーセント）とを含有し、そのため繰り返し単位の総モル数は100モルパーセントに等しい。従って本開示に示されるモルパーセントは、酸残基の総モル、ジオール残基の総モル、又は繰り返し単位総モルに基づく。例えば、総酸残基に基づいて30モルパーセントのテレフタル酸を含有するコポリエステルは、このコポリエステルが全部で100モルパーセントの酸残基のうちの30モルパーセントのテレフタル酸残基を含有することを意味する。すなわち、100モルの酸残基内に30モルのテレフタル酸残基がある。別の例では、総ジオール残基に基づいて30モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノールを含有するコポリエステルは、このコポリエステルが全部で100モルパーセントのジオール残基のうちの30モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基を含有することを意味する。すなわち、100モルのジオール残基内に30モルの1,4-シクロヘキサジメタノール残基がある。本明細書において、テレフタル酸、エチレングリコール、及び1,4-シクロヘキサジメタノールのコポリエステルは、グリコール成分が主にエチレングリコールである時「PET」と呼ばれ、グリコール成分が主に1,4-シクロヘキサジメタノールである時「PCT」と呼ばれ、エチレングリコール対1,4-シクロヘキサジメタノールの比が1より大きい時「PETG」と呼ばれ、エチレングリコール対1,4-シクロヘキサジメタノールの比が1より小さい時「PCTG」と呼ばれる。

30

40

【0027】

50

本明細書において用語「ポリアミド」は、1つ又はそれ以上の2官能性カルボン酸と1つ又はそれ以上の2官能性アミンとの重縮合により製造されるか、又はラクタムの開環重合により製造される合成ポリマーを含み、ホモポリマーとコポリマーを含んでもよい。例えば2官能性カルボン酸はジカルボン酸（例えばアジピン酸又はイソフタル酸）でもよく、2官能性アミンはジアミン（例えばヘキサメチレンジアミン又はm-キシレンジアミン）でもよい。本明細書において用語「コポリアミド」は、少なくとも2つの化学的に別の繰り返し単位を含むポリアミドを意味すると理解される。例えばM X D 6 ナイロンは、アジピン酸とm-キシレンジアミンの残基を含有する単一の化学的に別の繰り返し単位のみを含有するため、コポリアミドではない。これに対して、ヘキサメチレンジアミンとアジピン酸及びイソフタル酸との縮合により製造されるポリ（ヘキサメチレンジアミド-コ-イソフタルアミド）は2つの化学的に別々の繰り返し単位（すなわちヘキサメチレンジアミンとアジピン酸の残基を含有する繰り返し単位とヘキサメチレンジアミンとイソフタル酸の残基を含有する別の繰り返し単位）を有する。

10

20

30

40

50

【0028】

本明細書において用語「ポリカーボネート」は、カーボネート源とジオール源との縮合産物として定義され、カーボネート成分は100モルパーセントのカーボネート単位を含有し、ジオール成分は100モルパーセントのジオール単位を含有し、全部で200モルパーセントのモノマー単位、又は100モルパーセントの「繰り返し単位」を含有する。本発明のある実施態様において第1成分のポリカーボネート部分は4,4'-イソプロピリデンジフェノール（一般にビスフェノールAとして知られている）のポリカーボネートに基づく。本発明で使用される多種類の直鎖又は分岐鎖のポリカーボネートはビスフェノールAから得られ、当該分野で公知の方法（例えば米国特許第3,030,335号及び同第3,317,466号に開示された方法）に従って製造される。本発明で使用され市販されているビスフェノールAポリカーボネートの例には、商品名レキサン（LEXAN）（登録商標）（ジネラルエレクトリック社（General Electric Company）から入手できる）及びマルロロン（MARROLON）（登録商標）（バイエル社（Bayer, Inc.）から入手できる）で販売されているものがある。

【0029】

本明細書において用語「ポリアリーレート」は、1つ又はそれ以上の2官能性芳香族ジカルボン酸と1つ又はそれ以上の2価フェノールとの重縮合により製造されるポリエステルを意味すると理解される。例えば典型的な芳香族ジカルボン酸はテレフタル酸とイソフタル酸であり、典型的な芳香族ジフェノールはビスフェノールAとヒドロキノンである。

【0030】

本明細書において本発明のポリマーについて用語「残基」は、対応するモノマーが関与する重縮合又は開環反応により、ポリマー中に取り込まれる有機構造を意味する。本明細書において用語「繰り返し単位」は、ポリマー中に繰り返し見られるモノマー残基の最も短い配列を意味する。例えばポリエステルでは繰り返し単位は、カルボニルオキシ基により結合したジカルボン酸残基とジオール残基又はヒドロキシカルボン酸を有する有機構造である。ポリアミドでは繰り返し単位は、アミド基で結合した、ジカルボン酸とジアミン残基、ラクタム、又はアミノ酸残基を有する有機構造である。

【0031】

本発明の種々のポリエステル、ポリアミド、ポリカーボネート、及びポリアリーレートに関連する残基は、その親モノマーカルボン酸自体から又は親カルボン酸の任意の誘導体から得られることもまた、当業者は理解するであろう。例えば本発明のポリマーについて参照されるジカルボン酸とアミノ酸残基は、ジカルボン酸又はアミノ酸モノマーもしくはは関連する酸ハロゲン化物、エステル、塩、無水物、又はこれらの混合物から得られる。すなわち本明細書において用語「ジカルボン酸」又は「アミノ酸」は、高分子量ポリエステル、ポリアミド、ポリカーボネート、又はポリアリーレートを製造するためのジオールとの重縮合法で有用な、ジカルボン酸及びジカルボン酸の任意の誘導体（その関連するハロゲン化物、エステル、半エステル、塩、半塩、無水物、混合無水物、又はこれらの混合物

）を含むことを企図する。用語「ヒドロキシカルボン酸」は、高分子量ポリエステルを製造するための重縮合法で有用な、脂肪族及び脂環式ヒドロキシカルボン酸ならびにモノヒドロキシ・モノカルボン酸及びこれらの任意の誘導体〔その関連するハロゲン化物、エステル、環状エステル（乳酸ラクチドのようなダイマーを含む）、塩、無水物、混合無水物、又はこれらの混合物を含む〕を含むことを企図する。同様に「アミノ酸」は、高分子量ポリアミドを製造するための重縮合法又は開環反応で有用な、脂肪族、芳香族、及び脂環式アミノ酸、及びこれらの任意の誘導体（その関連するハロゲン化物、アミド、環状アミド（ラクタム）、塩、無水物、混合無水物、又はこれらの混合物を含む）を含むことを企図する。さらに用語「ジアミン」は、ポリアミドの製造に有用な、ジアミン、ならびにその関連する塩、アミド、又はこれらの任意の他の誘導体を含むことを企図する。

10

【0032】

本出願において用語「固有（インヘレント・極限）粘度」（I.V.）が使用される時はいつも、60重量%のフェノールと40重量%のテトラクロロエタンを含む100mlの溶媒当たり0.5グラムのポリマーを使用する、25の粘度測定値を意味すると理解される。

【0033】

本明細書において用語「屈折率」（本明細書においては「RI」と省略する）は、当該分野で公知の標準的方法に従って得られる屈折率測定値を意味する。本明細書で報告される屈折率は、メトリコンプリズムカプラー（Metricon Prism Coupler）（登録商標）モデル2010屈折率測定器（メトリコン社（Metricon Inc.）から入手できる）を使用して633nmの波長で測定され、3直交方向（押出し又は延伸、横断、及び厚さ方向）で測定した屈折率の平均として報告される。本明細書において本発明の組成物、方法、及び成形製品に関連して用語「屈折率の差」はいつも、本明細書においてポリエステル、ポリカーボネート、又はポリアリーレート含有成分（典型的には本明細書において「第1成分」又は多層製品では「第1層」と呼ぶ）の屈折率を、ポリアミド又はコポリアミド含有成分（典型的には本明細書において「第2成分」又は多層製品では「第2層」と呼ぶ）の屈折率から引いて得られる値を意味する。すなわち本発明において屈折率の差（「RI」）は以下の式に従って計算される：

20

【数1】

30

$$\Delta RI = RI \text{ (第2成分又は層)} - RI \text{ (第1成分又は層)}$$

屈折率の差が正又は負の数でもよいことは当業者に明らかであろう。

【0034】

本明細書において用語「曇り（ヘーズ）%」は、ASTMメソッドD1003に従って、ハンターアソシエーツラボラトリー社（Hunter Associates Laboratory, Inc.）（レストン、バージニア州）により製造されたハンターラボウルトラスキャンスフィア（Hunter Lab UltraScan Sphere）8000を使用して、Hunterユニバーサルソフトウェア（バージョン3.8）を使用して測定した曇り値（曇り% = $100 \times \text{散乱透過} / \text{総透過}$ ）を意味する。本明細書において用語「透過（transmittance）パーセント」は、用語「透過（transmission）パーセント」と同義である。屈折率を測定するための方法は実施例に示す。本発明の組成物について、曇りと透過パーセント（すなわち透過%）は、組成物を1/8インチ又はそれ以下の厚さを有するシート又はフィルムに成形又は鑄造して、実施例に記載された方法に従って曇りと透過パーセントを測定することにより決定される。成形製品（多層成形製品を含む）について曇りと透過パーセントは、1/8インチ又はそれ以下の厚さを有する小さい（すなわち1×1cm）切片を切断し、本明細書に記載の方法に従って曇りを測定することにより決定することができる。

40

【0035】

50

本明細書において用語「ガラス転移温度（「 T_g 」）は、示差走査熱分析（「DSC」）を使用して典型的には20 / 分のスキャン速度を使用して測定される T_g 値を意味する。DSC装置の例はティーエーインストルメンツ（T A I n s t r u m e n t s ）2920示差走査熱分析計である。

【0036】

本発明の組成物は、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物から選択される1つ又はそれ以上の熱可塑性ポリマーを含む第1成分を含む。本明細書において用語「熱可塑性ポリマー」は、当業者により理解される普通の意味を有するものであり、すなわち熱に暴露された時軟化し、室温まで冷却されると元の状態に戻るポリマーである。第1成分は、単一の熱可塑性ポリマーを含むか、又は2つ又はそれ以上のポリマーの配合物（その配合物が均一配合物なら）を含有してもよい。本明細書において用語「均一配合」は用語「混和性」と同義であり、単一の組成物依存性 T_g で示される単一の均一相を有することを意味する。例えば第2ポリマーと混和性の第1ポリマーは第2ポリマーを「可塑化」するのに使用される（例えば米国特許第6,211,309号に例示されている）。均一配合物は、2つ又はそれ以上のポリマーを単に配合することにより、又はポリエステルもしくはポリアミドのような縮合ポリマーの場合は、2つ又はそれ以上のポリマーをエステル交換又はアミド基転移することにより作成する。これに対して本明細書において用語「不混和性」は、少なくとも2つのランダムに混合された相を示し2つ以上の T_g を示す配合物を意味する。不混和性であるが、互いに適合性であるいくつかのポリマーがある。混和性及び不混和性ポリマー配合物のさらなる一般的説明及びこれらの性状解析のための種々の分析法は、「ポリマー配合物（Polymer Blends）」、第1巻と第2巻、D. R. PaulとC. B. Bucknall編、2000、ジョンワイリーアンドサンズ社（John Wiley and Sons Inc.）に記載されている。

【0037】

第1成分は、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物から選択される1つ又はそれ以上の熱可塑性ポリマーを含有してもよい。例えば第1成分は、（a）総二酸残基に基づき、テレフタル酸、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、及び1,4-シクロヘキサンジカルボン酸から選択される、少なくとも80モルパーセントの少なくとも1つのジカルボン酸の残基と、2~20個の炭素原子を有する、0~約20モルパーセントの少なくとも1つの修飾ジカルボン酸残基とを含む二酸残基；及び（b）総ジオール残基に基づき、エチレングリコール、1,4-シクロヘキサンジメタノール；ネオペンチルグリコール、ジエチレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、及び2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオールから選択される、少なくとも80モルパーセントの少なくとも1つのジオールの残基と、3~16個の炭素原子を有する、0~約20モルパーセントの少なくとも1つの修飾ジオールの残基とを含むジオール残基を含むポリエステルを含む。シス及びトランス異性体を含む環状ジオールは、純粋なシスもしくはトランス異性体として、又はシス及びトランス異性体の混合物として使用される。

【0038】

例えば二酸残基は、テレフタル酸、イソフタル酸、又はこれらの組合せから選択される1つ又はそれ以上のジカルボン酸の残基を含み、ジオール残基は、1,4-シクロヘキサンジメタノール、ネオペンチルグリコール、エチレングリコール、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、及びこれらの組合せ選択される1つ又はそれ以上のジオールの残基を含む。例えばある実施態様において、二酸残基は、テレフタル酸とイソフタル酸の残基を含有する。ポリエステル中にイソフタル酸より高濃度のテレフタル酸があると、生じたポリエステルは配合物により大きな衝撃強さを与えるため、有効である。例えば二酸残基は、約60~約100モルパーセントのテレフタル酸残基と0~約40モルパーセントのイソフタル酸残基と含有し、ジオール残基は、約100モルパーセントの1,4-シクロヘキサンジメタノール残基を含有してもよい。ジカルボン酸含量の他

の例は、約 80 ~ 約 100 モルパーセントのテレフタル酸残基と 0 ~ 20 モルパーセントのイソフタル酸残基、約 95 ~ 約 100 モルパーセントのテレフタル酸残基、及び約 100 モルパーセントのテレフタル酸残基である。

【0039】

成分 (i) の熱可塑性ポリマーとして使用される他の代表的ポリエステルには、(a) 約 80 ~ 約 100 モルパーセントのテレフタル酸残基を含む二酸残基と、約 50 ~ 約 90 モルパーセントの 1,4 - シクロヘキサンジメタノール残基と約 10 ~ 約 50 モルパーセントのネオペンチルグリコールを含むジオール残基；(b) 100 モルパーセントのテレフタル酸残基を含む二酸残基と、約 10 ~ 約 40 モルパーセントの 1,4 - シクロヘキサンジメタノール残基と 60 ~ 約 90 モルパーセントのエチレングリコールの残基とを含むジオール残基；(c) 約 100 モルパーセントのテレフタル酸を含む二酸残基と、約 10 ~ 約 99 モルパーセントの 1,4 - シクロヘキサンジメタノール残基、0 ~ 90 モルパーセントのエチレングリコール残基、及び 1 ~ 約 25 モルパーセントのジエチレングリコール残基を含むジオール残基；及び (d) 100 モルパーセントのテレフタル酸を含む二酸残基と、約 50 ~ 約 90 モルパーセントの 1,4 - シクロヘキサンジメタノールと約 10 ~ 約 50 モルパーセントのエチレングリコールとを含むジオキシ残基、を含むポリエステルがある。

【0040】

別の実施態様において第 1 成分は、テレフタル酸、2,2,4,4 - テトラメチル - 1,3 - シクロブタンジオール、及び 1,4 - シクロヘキサンジメタノールの残基を含む少なくとも 1 つのポリエステルを含有する。例えばポリエステルは、(a) 総二酸残基に基づき、約 70 ~ 約 100 モルパーセントのテレフタル酸残基；0 ~ 約 30 モルパーセントの、最大 20 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾芳香族ジカルボン酸残基；及び 0 ~ 約 10 モルパーセントの、最大 16 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基を含む二酸残基；及び (b) 総ジオール残基に基づき、約 1 ~ 約 99 モルパーセントの、2,2,4,4 - テトラメチル - 1,3 - シクロブタンジオール残基；及び 1 ~ 約 99 モルパーセントの 1,4 - シクロヘキサンジメタノール残基を含むジオール残基、を含む。第 1 成分で使用されるポリエステルの他の代表例には、特に限定されないが、総二酸残基に基づき、70 ~ 約 100 モルパーセントのテレフタル酸残基；0 ~ 約 30 モルパーセントの、最大 20 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾芳香族ジカルボン酸残基；及び 0 ~ 約 10 モルパーセントの、最大 16 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基を含む二酸残基、及び以下のジオール残基組成物の任意の 1 つを含むポリエステルがある：(i) 約 5 ~ 約 60 モルパーセントの 2,2,4,4 - テトラメチル - 1,3 - シクロブタンジオール残基、及び約 40 ~ 約 95 モルパーセントの 1,4 - シクロヘキサンジメタノール残基；(ii) 約 15 ~ 約 40 モルパーセントの 2,2,4,4 - テトラメチル - 1,3 - シクロブタンジオール残基、及び約 60 ~ 約 85 モルパーセントの 1,4 - シクロヘキサンジメタノール残基；(iii) 約 20 ~ 約 30 モルパーセントの 2,2,4,4 - テトラメチル - 1,3 - シクロブタンジオール残基、及び約 70 ~ 約 80 モルパーセントの 1,4 - シクロヘキサンジメタノール残基；及び (iv) 約 20 ~ 約 25 モルパーセントの 2,2,4,4 - テトラメチル - 1,3 - シクロブタンジオール残基、及び約 75 ~ 約 80 モルパーセントの 1,4 - シクロヘキサンジメタノール残基。

【0041】

さらに別の例において、ジカルボン酸はテレフタル酸とイソフタル酸から選択され、ジオールは、1,4 - シクロヘキサンジメタノールとエチレングリコールから選択される。例えばある組成物において、ジカルボン酸はテレフタル酸であり、ジオールは 1,4 - シクロヘキサンジメタノールである。さらに別の例において二酸残基は少なくとも 95 モルパーセントのテレフタル酸残基を含み、ジオール残基は約 10 ~ 約 40 モルパーセントの 1,4 - シクロヘキサンジメタノール残基、約 1 ~ 約 25 モルパーセントのジエチレングリコール残基、及び約 35 ~ 約 89 モルパーセントのエチレングリコール残基を含む。

【0042】

10

20

30

40

50

ポリエステルはさらに、所望であれば、0～30モルパーセントの、2～20個の炭素原子を含有する1つ又はそれ以上の修飾二酸残基を含有する。例えば0～約30モル%の、8～約16個の炭素原子を含有する芳香族ジカルボン酸、8～約16個の炭素原子を含有する脂環式ジカルボン酸、約2～約16個の炭素原子を含有する脂肪族ジカルボン酸、又はこれらの混合物が使用される。修飾芳香族ジカルボン酸の例には、特に限定されないが、1つ又はそれ以上の4,4'-ビフェニルジカルボン酸、イソフタル酸、1,4-ナフタレンジカルボン酸、1,5-ナフタレンジカルボン酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、2,7-ナフタレンジカルボン酸、4,4'-オキシ安息香酸、及びトランス-4,4'-スチルベンジカルボン酸がある。修飾芳香族ジカルボン酸の例には、特に限定されないが、1つ又はそれ以上のシュウ酸、マロン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、及びセバシン酸がある。例えばポリエステルの二酸成分は、0～約10モルパーセントの、最大16個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基で修飾される。

10

20

30

40

50

【0043】

別の実施態様においてポリエステルは、ジオール残基の総モルに基づき、約1～約99モルパーセントの1,4-シクロヘキサンジメタノール残基、約99～約1モルパーセントのエチレングリコール残基を含有することができる。本発明のポリエステルのための1,4-シクロヘキサンジメタノール残基の典型的なモルパーセントは、約1～約10モルパーセント、約1～約25モルパーセント、約1～約40モルパーセント、50モルパーセント及びそれ以上、及び100モルパーセントがある。さらに別の実施態様において、例えばジカルボン酸は1,4-シクロヘキサンジカルボン酸であり、ジオールは1,4-シクロヘキサンジメタノールである。さらなる例においてポリエステルは、1,4-シクロヘキサンジメタノール単位とネオペンチルグリコールの残基を含む。さらに別の例においてポリエステルは、1,4-シクロヘキサンジメタノール単位と2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオールの残基を含む。

【0044】

ポリエステルのジオール成分はまた、0から約20モルパーセントの、3～16個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾ジオール残基に修飾される。修飾ジオールの他の範囲には、特に限定されないが、0～約10モルパーセント、及び5モルパーセント未満がある。修飾ジオールは、1つ又はそれ以上の1,2-プロパンジオール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、1,4-シクロヘキサンジメタノール、p-キシレングリコール、ネオペンチルグリコール、ポリエチレングリコール、ポリテトラメチレングリコール、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオールの1つまたはそれ以上から選択される。ポリアルキレングリコールの例には、最大約2,000の分子量を有するポリ(テトラメチレングリコール)(「PTMG」)及びポリ(エチレングリコール)(「PEG」)がある。例えばジオール成分は、エラストマー性挙動を増強するために、0～約10モルパーセントのポリエチレングリコール又はポリテトラメチレングリコールで修飾することができる。別の例ではジオール残基は、約10～約99モルパーセントの1,4-シクロヘキサンジメタノール残基、0～90モルパーセントのエチレングリコール残基、及び約1～約25モルパーセントのジエチレングリコール残基を含む。ポリエステルはまた、総酸又はジオール残基に基づき、最大約5モルパーセント、典型的には約0.01～約2.0モルパーセント、又はさらに典型的には約0.01～約1モルパーセントの、分岐ポリエステルの生成するための少なくとも3つのカルボキシル及び/又はヒドロキシ基を有する化合物から得られる多官能性分岐物質を含む。かかる化合物の例には、トリメリト酸、無水トリメリト酸、及びピロメリト酸二無水物、グリセロール、ソルビトール、1,2,6-ヘキサントリオール、ペンタエリトリトール、酒石酸、クエン酸、トリメチロールエタン、及びトリメシン酸などがある。種々の樹脂を配合することにより又は直接反応槽共重合により最終組成物が得られることを当業者は理解するであろう。組成の変動を小さくするために後者が好ましいが、経済的必要性により配合はより低コストのものになる。

【 0 0 4 5 】

ポリエステルの追加の例は、総二酸残基に基づき、約 1 0 0 モルパーセントのテレフタル酸残基、及び総ジオール残基に基づき、以下のジオール残基組成物の任意の 1 つを含有するものである：(i) 約 1 ～ 約 5 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基、及び約 9 9 ～ 約 9 5 モルパーセントのエチレングリコール残基；(ii) 約 2 9 ～ 約 3 3 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基と約 7 1 ～ 約 6 7 モルパーセントのエチレングリコール残基；(iii) 約 4 5 ～ 約 5 5 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基と約 5 5 ～ 約 4 5 モルパーセントのエチレングリコール残基；(iv) 約 6 0 ～ 約 6 5 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基と約 4 0 ～ 約 3 5 モルパーセントのエチレングリコール残基；(v) 約 7 9 ～ 約 8 3 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基と約 2 1 ～ 約 1 7 モルパーセントのエチレングリコール残基；(vi) 約 1 0 0 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基；(vii) 約 5 ～ 約 6 0 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基と約 4 0 ～ 約 9 5 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基；(viii) 約 1 5 ～ 約 4 0 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基と約 6 0 ～ 約 8 5 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基；(ix) 約 2 0 ～ 約 3 0 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基と約 7 0 ～ 約 8 0 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基；(x) 約 2 0 ～ 約 2 5 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基と約 7 5 ～ 約 8 0 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基。

10

20

【 0 0 4 6 】

あるモノマー組成物、固有粘度、及び / 又はガラス転移温度を有する、テレフタル酸、そのエステル、又はこれらの混合物、1, 4 - シクロヘキサジメタノール、及び 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオールから生成されるポリエステルを含むいくつかの組成物は、当該分野で公知のポリエステルやポリカーボネートより、高衝撃強さ、加水分解安定性、強靱さ、化学耐性、良好な色及び透明性、長い結晶半減期、低い延性～脆化温度、低い比重、及び熱成形性の 1 つまたはそれ以上の点で優れていると考えられる。これらの組成物は、熱耐性がポリカーボネートと同様であるが、標準的な工業的装置で加工可能であると考えられる。

30

【 0 0 4 7 】

例えば本発明の他の態様において、本発明の組成物、方法、及び成形製品に有用なポリエステルの T g は、以下の範囲の少なくとも 1 つである：6 0 ～ 2 0 0 ； 6 0 ～ 1 9 0 ； 6 0 ～ 1 8 0 ； 6 0 ～ 1 7 0 ； 6 0 ～ 1 6 0 ； 6 0 ～ 1 5 5 ； 6 0 ～ 1 5 0 ； 6 0 ～ 1 4 5 ； 6 0 ～ 1 4 0 ； 6 0 ～ 1 3 8 ； 6 0 ～ 1 3 5 ； 6 0 ～ 1 3 0 ； 6 0 ～ 1 2 5 ； 6 0 ～ 1 2 0 ； 6 0 ～ 1 1 5 ； 6 0 ～ 1 1 0 ； 6 0 ～ 1 0 5 ； 6 0 ～ 1 0 0 ； 6 0 ～ 9 5 ； 6 0 ～ 9 0 ； 6 0 ～ 8 5 ； 6 0 ～ 8 0 ； 6 0 ～ 7 5 ； 6 5 ～ 2 0 0 ； 6 5 ～ 1 9 0 ； 6 5 ～ 1 8 0 ； 6 5 ～ 1 7 0 ； 6 5 ～ 1 6 0 ； 6 5 ～ 1 5 5 ； 6 5 ～ 1 5 0 ； 6 5 ～ 1 4 5 ； 6 5 ～ 1 4 0 ； 6 5 ～ 1 3 8 ； 6 5 ～ 1 3 5 ； 6 5 ～ 1 3 0 ； 6 5 ～ 1 2 5 ； 6 5 ～ 1 2 0 ； 6 5 ～ 1 1 5 ； 6 5 ～ 1 1 0 ； 6 5 ～ 1 0 5 ； 6 5 ～ 1 0 0 ； 6 5 ～ 9 5 ； 6 5 ～ 9 0 ； 6 5 ～ 8 5 ； 6 5 ～ 8 0 ； 6 5 ～ 7 5 ； 7 0 ～ 2 0 0 ； 7 0 ～ 1 9 0 ； 7 0 ～ 1 8 0 ； 7 0 ～ 1 7 0 ； 7 0 ～ 1 6 0 ； 7 0 ～ 1 5 5 ； 7 0 ～ 1 5 0 ； 7 0 ～ 1 4 5 ； 7 0 ～ 1 4 0 ； 7 0 ～ 1 3 8 ； 7 0 ～ 1 3 5 ； 7 0 ～ 1 3 0 ； 7 0 ～ 1 2 5 ； 7 0 ～ 1 2 0 ； 7 0 ～ 1 1 5 ； 7 0 ～ 1 1 0 ； 7 0 ～ 1 0 5 ； 7 0 ～ 1 0 0 ； 7 0 ～ 9 5 ； 7 0 ～ 9 0 ； 7 0 ～ 8 5 ； 7 0 ～ 8 0 ； 7 0 ～ 7 5 ； 7 5 ～ 2 0 0 ； 7 5 ～ 1 9 0 ； 7 5 ～ 1 8 0 ； 7 5 ～ 1 7 0 ； 7 5 ～ 1 6 0 ； 7 5 ～ 1 5 5 ； 7 5 ～ 1 5 0 ； 7 5 ～ 1 4 5 ； 7 5 ～ 1 4 0 ； 7 5 ～ 1 3 8 ； 7 5 ～ 1 3 5 ； 7 5 ～ 1 3 0 ； 7 5 ～ 1 2 5 ； 7 5 ～ 1 2 0 ； 7 5 ～ 1 1 5 ； 7 5 ～ 1 1 0 ； 7 5 ～ 1 0 5 ； 7 5 ～ 1 0 0 ； 7 5 ～ 9 5 ； 7 5 ～ 9 0 。

40

50

; 75 ~ 85 ; 75 ~ 80 ; 80 ~ 200 ; 80 ~ 190 ; 80 ~ 180 ; 8
 0 ~ 170 ; 80 ~ 160 ; 80 ~ 155 ; 80 ~ 150 ; 80 ~ 145 ; 8
 0 ~ 140 ; 80 ~ 138 ; 80 ~ 135 ; 80 ~ 130 ; 80 ~ 125 ; 8
 0 ~ 120 ; 80 ~ 115 ; 80 ~ 110 ; 80 ~ 105 ; 80 ~ 100 ; 8
 0 ~ 95 ; 80 ~ 90 ; 80 ~ 85 ; 85 ~ 200 ; 85 ~ 190 ; 85 ~ 1
 80 ; 85 ~ 170 ; 85 ~ 160 ; 85 ~ 155 ; 85 ~ 150 ; 85 ~ 1
 45 ; 85 ~ 140 ; 85 ~ 138 ; 85 ~ 135 ; 85 ~ 130 ; 85 ~ 1
 25 ; 85 ~ 120 ; 85 ~ 115 ; 85 ~ 110 ; 85 ~ 105 ; 85 ~ 1
 00 ; 85 ~ 95 ; 85 ~ 90 ; 90 ~ 200 ; 90 ~ 190 ; 90 ~ 180
 ; 90 ~ 170 ; 90 ~ 160 ; 90 ~ 155 ; 90 ~ 150 ; 90 ~ 145 10
 ; 90 ~ 140 ; 90 ~ 138 ; 90 ~ 135 ; 90 ~ 130 ; 90 ~ 125
 ; 90 ~ 120 ; 90 ~ 115 ; 90 ~ 110 ; 90 ~ 105 ; 90 ~ 100
 ; 90 ~ 95 ; 95 ~ 200 ; 95 ~ 190 ; 95 ~ 180 ; 95 ~ 170
 ; 95 ~ 160 ; 95 ~ 155 ; 95 ~ 150 ; 95 ~ 145 ; 95 ~ 140
 ; 95 ~ 138 ; 95 ~ 135 ; 95 ~ 130 ; 95 ~ 125 ; 95 ~ 120
 ; 95 ~ 115 ; 95 ~ 110 ; 95 ~ 105 ; 95 ~ 100 ; 100 ~ 200
 ; 100 ~ 190 ; 100 ~ 180 ; 100 ~ 170 ; 100 ~ 160 ; 10
 0 ~ 155 ; 100 ~ 150 ; 100 ~ 145 ; 100 ~ 140 ; 100 ~ 13
 8 ; 100 ~ 135 ; 100 ~ 130 ; 100 ~ 125 ; 100 ~ 120 ; 1
 00 ~ 115 ; 100 ~ 110 ; 105 ~ 200 ; 105 ~ 190 ; 105 ~ 1 20
 80 ; 105 ~ 170 ; 105 ~ 160 ; 105 ~ 155 ; 105 ~ 150 ;
 105 ~ 145 ; 105 ~ 140 ; 105 ~ 138 ; 105 ~ 135 ; 105 ~
 130 ; 105 ~ 125 ; 105 ~ 120 ; 105 ~ 115 ; 105 ~ 110
 ; 110 ~ 200 ; 110 ~ 190 ; 110 ~ 180 ; 110 ~ 170 ; 110
 ~ 160 ; 110 ~ 155 ; 110 ~ 150 ; 110 ~ 145 ; 110 ~ 140
 ; 110 ~ 138 ; 110 ~ 135 ; 110 ~ 130 ; 110 ~ 125 ; 11
 0 ~ 120 ; 110 ~ 115 ; 115 ~ 200 ; 115 ~ 190 ; 115 ~ 18
 0 ; 115 ~ 170 ; 115 ~ 160 ; 115 ~ 155 ; 115 ~ 150 ; 1
 15 ~ 145 ; 115 ~ 140 ; 115 ~ 138 ; 115 ~ 135 ; 110 ~ 1
 30 ; 115 ~ 125 ; 115 ~ 120 ; 120 ~ 200 ; 120 ~ 190 ; 30
 120 ~ 180 ; 120 ~ 170 ; 120 ~ 160 ; 120 ~ 155 ; 120 ~
 150 ; 120 ~ 145 ; 120 ~ 140 ; 120 ~ 138 ; 120 ~ 135
 ; 120 ~ 130 ; 125 ~ 200 ; 125 ~ 190 ; 125 ~ 180 ; 125
 ~ 170 ; 125 ~ 165 ; 125 ~ 160 ; 125 ~ 155 ; 125 ~ 150
 ; 125 ~ 145 ; 125 ~ 140 ; 125 ~ 138 ; 125 ~ 135 ; 12
 7 ~ 200 ; 127 ~ 190 ; 127 ~ 180 ; 127 ~ 170 ; 127 ~ 16
 0 ; 127 ~ 150 ; 127 ~ 145 ; 127 ~ 140 ; 127 ~ 138 ; 1
 27 ~ 135 ; 130 ~ 200 ; 130 ~ 190 ; 130 ~ 180 ; 130 ~ 1
 70 ; 130 ~ 160 ; 130 ~ 155 ; 130 ~ 150 ; 130 ~ 145 ;
 130 ~ 140 ; 130 ~ 138 ; 130 ~ 135 ; 135 ~ 200 ; 135 ~ 40
 190 ; 135 ~ 180 ; 135 ~ 170 ; 135 ~ 160 ; 135 ~ 155
 ; 135 ~ 150 ; 135 ~ 145 ; 135 ~ 140 ; 140 ~ 200 ; 140
 ~ 190 ; 140 ~ 180 ; 140 ~ 170 ; 140 ~ 160 ; 140 ~ 155
 ; 140 ~ 150 ; 140 ~ 145 ; 148 ~ 200 ; 148 ~ 190 ; 14
 8 ~ 180 ; 148 ~ 170 ; 148 ~ 160 ; 148 ~ 155 ; 148 ~ 15
 0 ; 148 より大きい ~ 200 ; 148 より大きい ~ 190 ; 148 より大きい ~
 180 ; 148 より大きい ~ 170 ; 148 より大きい ~ 160 ; 148 より大き
 い ~ 155 ; 150 ~ 200 ; 150 ~ 190 ; 150 ~ 180 ; 150 ~ 17
 0 ; 150 ~ 160 ; 155 ~ 190 ; 155 ~ 180 ; 155 ~ 170 ; 及び
 155 ~ 165 。

【 0 0 4 8 】

本発明の他の態様において本発明のポリエステルのグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも1つがある：1～99モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び1～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；1～95モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び5～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；1～90モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び10～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；1～85モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び15～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；1～80モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び20～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール、1～75モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び25～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；1～70モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び30～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；1～65モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び35～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；1～60モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び40～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；1～55モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び45～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；1～50モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び50～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；1～45モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び55～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；1～40モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び60～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；1～35モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び65～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；1～30モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び70～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；1～25モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び75～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；1～20モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び80～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；1～15モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び85～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；1～10モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び90～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；及び1～5モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び95～99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール。

【 0 0 4 9 】

本発明の他の態様において本発明のポリエステルのグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも1つがある：0.01～5モル%未満の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び95～99.99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；0.01～4.5モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び95.5～99.99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；0.01～4モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び96～99.99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；0.01～3.5モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び96.5～99.99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；0.01～3モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び97～99.99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；0.01～2.5モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び97.5～99.99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；0.01～2モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び98～99.99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；0.01～1.5モ

ル%の2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び98.5 ~ 99.9
9モル%の1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 0.01 ~ 1モル%の2, 2, 4, 4 - テ
トラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び99 ~ 99.99モル%の1, 4 - シクロ
ヘキサンジメタノール; 及び0.01 ~ 0.5モル%の2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3
- シクロブタンジオール及び99.5 ~ 99.99モル%の1, 4 - シクロヘキサンジメタ
ノール。

【0050】

本発明の他の態様においてグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組
合せの少なくとも1つがある: 5 ~ 99モル%の2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シ
クロブタンジオール及び1 ~ 95モル%の1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 5 ~ 9
5モル%の2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び5 ~ 95モル
%の1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 5 ~ 90モル%の2, 2, 4, 4 - テトラメチル
- 1, 3 - シクロブタンジオール及び10 ~ 95モル%の1, 4 - シクロヘキサンジメタノ
ール; 5 ~ 85モル%の2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び
15 ~ 95モル%の1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 5 ~ 80モル%の2, 2, 4, 4
- テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び20 ~ 95モル%の1, 4 - シクロヘ
キサンジメタノール, 5 ~ 75モル%の2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタ
ンジオール及び25 ~ 95モル%の1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 5 ~ 70モル
%の2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び30 ~ 95モル%の
1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 5 ~ 65モル%の2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1
3 - シクロブタンジオール及び35 ~ 95モル%の1, 4 - シクロヘキサンジメタノール
; 5 ~ 60モル%の2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び40
~ 95モル%の1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 5 ~ 55モル%の2, 2, 4, 4 - テ
トラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び45 ~ 95モル%の1, 4 - シクロヘキサ
ンジメタノール; 及び5 ~ 50モル%の2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタ
ンジオール及び50 ~ 95モル%の1, 4 - シクロヘキサンジメタノール。

【0051】

本発明の他の態様においてグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組
合せの少なくとも1つがある: 5 ~ 50モル%未満の2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3
- シクロブタンジオール及び50より大きい ~ 95モル%の1, 4 - シクロヘキサンジメ
タノール; 5 ~ 45モル%の2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール
及び55 ~ 95モル%の1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 5 ~ 40モル%の2, 2,
4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び60 ~ 95モル%の1, 4 - シ
クロヘキサンジメタノール; 5 ~ 35モル%の2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シク
ロブタンジオール及び65 ~ 95モル%の1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 5 ~ 3
5モル%未満の2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び65より
大きい ~ 95モル%の1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 5 ~ 30モル%の2, 2, 4,
4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び70 ~ 95モル%の1, 4 - シクロ
ヘキサンジメタノール; 5 ~ 25モル%の2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブ
タンジオール及び75 ~ 95モル%の1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 5 ~ 20モ
ル%の2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び80 ~ 95モル%
の1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 5 ~ 15モル%の2, 2, 4, 4 - テトラメチル
- 1, 3 - シクロブタンジオール及び85 ~ 95モル%の1, 4 - シクロヘキサンジメタノ
ール; 5 ~ 10モル%の2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び
90 ~ 95モル%の1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 5より大きい ~ 10モル%未
満の2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び90未満 ~ 95モル
%より大きい1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 5.5モル% ~ 9.5モル%の2, 2,
4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び94.5モル% ~ 99.5モル%
の1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 及び6 ~ 9モル%の2, 2, 4, 4 - テトラメチル
- 1, 3 - シクロブタンジオール及び94 ~ 91mole % 1, 4 - シクロヘキサンジメタノ

10

20

30

40

50

ル。

【 0 0 5 2 】

本発明の他の態様において本発明のポリエステルのグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも1つがある：10～99モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び1～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；10～95モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び5～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；10～90モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び10～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；10～85モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び15～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；10～80モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び20～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；10～75モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び25～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；10～70モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び30～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；10～65モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び35～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；10～60モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び40～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；10～55モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び45～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；10～50モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び50～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；10～50モル%未満の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び50より大きい～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；10～45モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び55～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；10～40モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び60～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；10～35モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び65～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；10～35モル%未満の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び65より大きい～90%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；10～30モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び70～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；10～25モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び75～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；10～20モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び80～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；及び10～15モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び85～90モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール。

【 0 0 5 3 】

本発明の他の態様においてグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも1つがある：14～99モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び1～86モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；14～95モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び5～86モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；14～90モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び10～86モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；14～85モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び15～86モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；14～80モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び20～86モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；14～75モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び25～86モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；14～70モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び30～

86モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 14~65モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び35~86モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 14~60モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び40~86モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 14~55モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び45~86モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 14~50モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び50~86モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 14~50モル%未満の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び50より大きい~86モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 14~45モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び55~86モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 14~40モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び60~86モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 14~35モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び65~86モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 14~30モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び70~86モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 14~24モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び76~86モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 及び14~25モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び75~86モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール。

10

20

【0054】

本発明の他の態様において本発明のポリエステルのグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも1つがある: 15~99モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び1~85モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 15~95モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び5~85モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 15~90モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び10~85モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 15~85モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び15~85モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 15~80モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び20~85モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 15~75モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び25~85モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 15~70モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び30~85モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 15~65モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び35~85モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 15~60モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び40~85モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 15~55モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び45~85モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 15~50モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び50~85モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 15~50モル%未満の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び50より大きい~85モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 15~45モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び55~85モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 15~40モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び60~85モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 15~35モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び65~85モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 15~30モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び70~85モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 15~25モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び75~85モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール; 及び15~24モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シク

30

40

50

ロブタンジオール及び 76 ~ 85 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール。

【0055】

本発明の他の態様において本発明のポリエステルのグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも 1 つがある：20 ~ 99 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 1 ~ 80 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；20 ~ 95 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 5 ~ 80 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；20 ~ 90 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 10 ~ 80 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；20 ~ 85 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 15 ~ 80 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；20 ~ 80 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 20 ~ 80 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；20 ~ 75 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 25 ~ 80 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；20 ~ 70 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 30 ~ 80 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；20 ~ 65 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 35 ~ 80 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；20 ~ 60 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 40 ~ 80 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；20 ~ 55 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 45 ~ 80 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；20 ~ 50 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 50 ~ 80 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；20 ~ 50 モル%未満の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 50 より大きい ~ 80 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；20 ~ 45 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 55 ~ 80 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；20 ~ 40 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 60 ~ 80 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；20 ~ 35 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 65 ~ 80 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；20 ~ 30 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 70 ~ 80 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；及び 20 ~ 25 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 75 ~ 80 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール。

【0056】

本発明の他の態様において本発明のポリエステルのグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも 1 つがある：25 ~ 99 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 1 ~ 75 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；25 ~ 95 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 5 ~ 75 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；25 ~ 90 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 10 ~ 75 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；25 ~ 85 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 15 ~ 75 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；25 ~ 80 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 20 ~ 75 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；25 ~ 75 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 25 ~ 75 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；25 ~ 70 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 30 ~ 75 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；25 ~ 65 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 35 ~ 75 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；25 ~ 60 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 40 ~ 75 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール；25 ~ 55 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール

ル及び 45 ~ 75 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 25 ~ 50 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 50 ~ 75 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 25 ~ 50 モル%未満の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 50 より大きい ~ 75 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 25 ~ 45 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 55 ~ 75 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 25 ~ 40 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 60 ~ 75 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 25 ~ 35 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 65 ~ 75 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 及び 25 ~ 30 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 70 ~ 75 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール。

10

【0057】

本発明の他の態様において本発明のポリエステルのグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも 1 つがある: 30 ~ 99 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 1 ~ 70 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 30 ~ 95 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 5 ~ 70 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 30 ~ 90 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 10 ~ 70 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 30 ~ 85 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 15 ~ 70 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 30 ~ 80 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 20 ~ 70 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 30 ~ 75 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 25 ~ 70 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 30 ~ 70 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 30 ~ 70 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 30 ~ 65 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 35 ~ 70 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 30 ~ 60 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 40 ~ 70 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 30 ~ 55 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 45 ~ 70 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 30 ~ 50 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 50 ~ 70 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 30 ~ 50 モル%未満の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 50 より大きい ~ 70 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 30 ~ 45 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 55 ~ 70 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 30 ~ 40 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 60 ~ 70 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 30 ~ 35 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 7, 3 - シクロブタンジオール及び 65 ~ 70 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール。

20

30

【0058】

本発明の他の態様において本発明のポリエステルのグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも 1 つがある: 35 ~ 99 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 1 ~ 65 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 35 ~ 95 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 5 ~ 65 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 35 ~ 90 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 10 ~ 65 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 35 ~ 85 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 15 ~ 65 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 35 ~ 80 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 20 ~ 65 モル%の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール; 35 ~ 75 モル%の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール及び 25 ~ 65 モル%の 1, 4 - シ

40

50

クロヘキサンジメタノール； 35～70モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び30～65モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 35～65モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び35～65モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 35～60モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び40～65モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 35～55モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び45～65モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 35～50モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び50～65モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 35～50モル%未満の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び50より大きい～65モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 35～45モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び55～65モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 35～40モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び60～65モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール。

【0059】

本発明の他の態様において本発明のポリエステルのグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも1つがある： 40～99モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び1～60モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 40～95モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び5～60モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 40～90モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び10～60モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 40～85モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び15～60モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 40～80モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び20～60モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 40～75モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び25～60モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 40～70モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び30～60モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 40～65モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び35～60モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 40～60モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び40～60モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 40～55モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び45～60モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 40～50モル%未満の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び50より大きい～60モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 40～50モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び50～60モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 及び40～45モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び55～60モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール。

【0060】

本発明の他の態様において本発明のポリエステルのグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも1つがある： 45～99モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び1～55モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 45～95モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び5～55モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 45～90モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び10～55モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 45～85モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び15～55モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 45～80モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び20～55モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール； 45～75モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び25～55モル%の1,4-シク

10

20

30

40

50

ロヘキサンジメタノール；45～70モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び30～55モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；45～65モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び35～55モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；45～60モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び40～55モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；45より大きい～55モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び45～55モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；及び45～50モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び50～60モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール。

10

【0061】

本発明の他の態様において本発明のポリエステルのグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも1つがある：50より大きい～99モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び1～50モル%未満の1,4-シクロヘキサンジメタノール；50より大きい～95モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び5～50モル%未満の1,4-シクロヘキサンジメタノール；50より大きい～90モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び10～50モル%未満の1,4-シクロヘキサンジメタノール；50より大きい～85モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び15～50モル%未満の1,4-シクロヘキサンジメタノール；50より大きい～80モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び20～50モル%未満の1,4-シクロヘキサンジメタノール；50より大きい～75モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び25～50モル%未満の1,4-シクロヘキサンジメタノール；50より大きい～70モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び30～50モル%未満の1,4-シクロヘキサンジメタノール；50より大きい～65モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び35～50モル%未満の1,4-シクロヘキサンジメタノール；50より大きい～60モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び40～50モル%未満の1,4-シクロヘキサンジメタノール。

20

30

【0062】

本発明の他の態様において本発明のポリエステルのグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも1つがある：55～99モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び1～45モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；55～95モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び5～45モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；55～90モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び10～45モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；55～85モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び15～45モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；55～80モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び20～45モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；55～75モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び25～45モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；55～70モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び30～45モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；55～65モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び35～45モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール；及び55～60モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び40～45モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール。

40

【0063】

本発明の他の態様において本発明のポリエステルのグリコール成分には、特に限定され

50

ないが、以下の範囲の組合せの少なくとも1つがある：60～99モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び1～40モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；60～95モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び5～40モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；60～90モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び10～40モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；60～85モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び15～40モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；60～80モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び20～40モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；60～75モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び25～40モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；及び60～70モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び30～40モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール。

10

【0064】

本発明の他の態様において本発明のポリエステルのグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも1つがある：65～99モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び1～35モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；65～95モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び5～35モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；65～90モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び10～35モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；65～85モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び15～35モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；65～80モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び20～35モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；65～75モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び25～35モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；及び65～70モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び35～40モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール。

20

【0065】

本発明の他の態様において本発明のポリエステルのグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも1つがある：70～99モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び1～30モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；70～95モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び5～30モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；70～90モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び10～30モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；70～85モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び15～30モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；70～80モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び20～30モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；70～75モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び25～30モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール。

30

【0066】

本発明の他の態様において本発明のポリエステルのグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも1つがある：75～99モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び1～25モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；75～95モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び5～25モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；75～90モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び10～25モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；及び75～85モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び15～25モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール。

40

【0067】

50

本発明の他の態様において本発明のポリエステルのグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも1つがある：80～99モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び1～20モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；80～95モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び5～20モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；80～90モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び10～20モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール。

【0068】

本発明の他の態様において本発明のポリエステルのグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも1つがある：37～80モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び20～63モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；40～45モル%未満の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び55より大きい～60モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；45より大きい～55モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び45～55モル%未満の1,4-シクロヘキサジメタノール；及び46～55モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び45～54モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；及び46～65モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール及び35～54モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール。

【0069】

100モル%に等しいジオール成分のモルパーセントに基づき2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオールのモルパーセントが0.01～5モル%未満であり、CHDMの存在が随時である本発明の他の態様において、本発明で有用なポリエステルのグリコール成分には、特に限定されないが、以下の範囲の組合せの少なくとも1つがある：0.01～5モル%未満の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基、0.01より大きい～95モル%のエチレングリコール残基、及び0～99.98モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；0.01～5モル%未満の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基、0.01より大きい～94.99モル%のエチレングリコール残基、及び0.01～99.98モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；0.01～5モル%未満の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基、0.01より大きい～90モル%のエチレングリコール残基、及び5～99.98モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；0.01～5モル%未満の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基、0.01より大きい～85モル%のエチレングリコール残基、及び10～99.98モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；0.01～5モル%未満の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基、0.01より大きい～80モル%のエチレングリコール残基、及び15～99.98モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；0.01～5モル%未満の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基、0.01より大きい～75モル%のエチレングリコール残基、及び20～99.98モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；0.01～5モル%未満の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基、0.01より大きい～70モル%のエチレングリコール残基、及び25～99.98モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；0.01より大きい～65モル%のエチレングリコール残基、及び30～99.98モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；0.01～5モル%未満の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基、0.01より大きい～60モル%のエチレングリコール残基、及び35～99.98モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；0.01～5モル%未満の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基、0.01より大きい～55モル%のエチレングリコール残基、及び40～99.98モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール；0.01～5モル%未満の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基、0.01より大きい～50モル%のエチレングリコール残基、及

び 45 ~ 99.98 モル% の 1, 4 - シクロヘキサジメタノール ; 0.01 ~ 5 モル% 未満の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基、0.01 より大きい ~ 45 モル% のエチレングリコール残基及び 50 ~ 99.98 モル% の 1, 4 - シクロヘキサジメタノール ; 0.01 ~ 5 モル% 未満の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基、0.01 より大きい ~ 40 モル% のエチレングリコール残基、及び 55 ~ 99.98 モル% の 1, 4 - シクロヘキサジメタノール ; 0.01 ~ 5 モル% 未満の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基、0.01 より大きい ~ 35 モル% のエチレングリコール残基、及び 60 ~ 99.98 モル% の 1, 4 - シクロヘキサジメタノール ; 0.01 ~ 5 モル% 未満の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基、0.01 より大きい ~ 30 モル% のエチレングリコール残基、及び 65 ~ 99.98 モル% の 1, 4 - シクロヘキサジメタノール ; 0.01 ~ 5 モル% 未満の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基、0.01 より大きい ~ 25 モル% のエチレングリコール残基、及び 70 ~ 99.98 モル% の 1, 4 - シクロヘキサジメタノール ; 0.01 ~ 5 モル% 未満の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基、0.01 より大きい ~ 20 モル% のエチレングリコール残基、及び 75 ~ 99.98 モル% の 1, 4 - シクロヘキサジメタノール ; 0.01 ~ 5 モル% 未満の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基、0.01 より大きい ~ 15 モル% のエチレングリコール残基、及び 80 ~ 99.98 モル% の 1, 4 - シクロヘキサジメタノール ; 0.01 ~ 5 モル% 未満の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基、0.01 より大きい ~ 10 モル% のエチレングリコール残基、及び 85 ~ 99.98 モル% の 1, 4 - シクロヘキサジメタノール ; 0.01 ~ 5 モル% 未満の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基、0.01 より大きい ~ 5 モル% のエチレングリコール残基、及び 90 ~ 99.98 モル% の 1, 4 - シクロヘキサジメタノール ; 0.01 ~ 5 モル% 未満の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基、及び 0.01 より大きい ~ 5 モル% のエチレングリコール残基、及び 90 ~ 99.98 モル% の 1, 4 - シクロヘキサジメタノール。

【0070】

グリコール成分はまた、以下の範囲の 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基の 1 つを含有する : 0.01 ~ 4.5 モル% ; 0.01 ~ 4 モル% ; 0.01 ~ 3.5 モル% ; 0.01 ~ 3 モル% ; 0.01 ~ 2.5 モル% ; 0.01 ~ 2.0 モル% ; 0.01 ~ 2.5 モル% ; 0.01 ~ 2 モル% ; 0.01 ~ 1.5 モル% ; 0.01 ~ 1.0 モル% ; 及び 0.01 ~ 0.5 モル% 。グリコール成分の残りは、グリコール成分の総量が 100 モル% に等しいなら、1, 4 - シクロヘキサジメタノール及び / 又はエチレングリコールの任意の量でもよい。

【0071】

上記ジオール以外に本発明のポリエステル組成物で有用なポリエステルは、1, 3 - プロパンジオール、1, 4 - ブタンジオール、又はこれらの混合物から作成される。1, 3 - プロパンジオール、1, 4 - ブタンジオール、又はこれらの混合物から作成される本発明の組成物は、本明細書に記載の少なくとも 1 つの Tg 範囲、本明細書に記載の少なくとも 1 つの固有粘度範囲、本明細書に記載の少なくとも 1 つのグリコールもしくは二酸範囲を有することができることが考えられる。さらに又はその代わりに、1, 3 - プロパンジオールもしくは 1, 4 - ブタンジオール、又はこれらの混合物から作成されるポリエステルはまた、以下の量の少なくとも 1 つの 1, 4 - シクロヘキサジメタノールからも作成される : 0.1 ~ 99 モル% ; 0.1 ~ 90 モル% ; 0.1 ~ 80 モル% ; 0.1 ~ 70 モル% ; 0.1 ~ 60 モル% ; 0.1 ~ 50 モル% ; 0.1 ~ 40 モル% ; 0.1 ~ 35 モル% ; 0.1 ~ 30 モル% ; 0.1 ~ 25 モル% ; 0.1 ~ 20 モル% ; 0.1 ~ 15 モル% ; 0.1 ~ 10 モル% ; 0.1 ~ 5 モル% ; 1 ~ 99 モル% ; 1 ~ 90 モル% ; 1 ~ 80 モル% ; 1 ~ 70 mole % ; 1 ~ 60 モル% ; 1 ~ 50 モル% ; 1 ~ 40 モル% ; 1 ~ 35 モル% ; 1 ~ 30 モル% ; 1 ~ 25 モル% ; 1 ~ 20 モル% ; 1 ~ 15 モル% ; 1 ~ 10 モル% ; 1 ~ 5 モル% ; 5 ~ 80 モル% ; 5 ~ 70 モル% ; 5 ~ 60 モル% ; 5 ~ 50 モル% ; 5

～ 40 モル % ; 5 ～ 35 モル % ; 5 ～ 30 モル % ; 5 ～ 25 モル % ; 5 ～ 20 モル % ; 及び 5 ～ 15 モル % ; 5 ～ 10 モル % ; 10 ～ 99 モル % ; 10 ～ 90 モル % ; 10 ～ 80 モル % ; 10 ～ 70 モル % ; 10 ～ 60 モル % ; 10 ～ 50 モル % ; 10 ～ 40 モル % ; 10 ～ 35 モル % ; 10 ～ 30 モル % ; 10 ～ 25 モル % ; 10 ～ 20 モル % ; 10 ～ 15 モル % ; 20 ～ 99 モル % ; 20 ～ 95 モル % ; 20 ～ 80 モル % ; 20 ～ 70 モル % ; 20 ～ 60 モル % ; 20 ～ 50 モル % ; 20 ～ 40 モル % ; 20 ～ 35 モル % ; 20 ～ 30 モル % ; 及び 20 ～ 25 モル % 。

【 0072 】

ポリエステルは一般に約 0.1 dL/g ～ 約 1.4 dL/g の範囲の固有粘度 (I . V .) 値を有する。 I . V . 範囲の追加の例には、約 0.65 dL/g ～ 約 1.0 dL/g 及び約 0.7 dL/g ～ 約 0.85 dL/g がある。上記したように固有粘度は、60 重量 % のフェノールと 40 重量 % のテトラクロロエタンを含む 100 ml の溶媒当たり 0.5 グラムのポリマーを使用して 25 で測定される。本発明の実施態様において本発明で有用なポリエステルは、25 で 0.5 g / 100 ml の濃度の 60 / 40 (w t / w t) フェノール / テトラクロロエタンで測定される以下の固有粘度の少なくとも 1 つを示す： 0.10 ～ 1.2 dL/g ; 0.10 ～ 1.1 dL/g ; 0.10 ～ 1 dL/g ; 0.10 ～ 1 dL/g 未満 ; 0.10 ～ 0.98 dL/g ; 0.10 ～ 0.95 dL/g ; 0.10 ～ 0.90 dL/g ; 0.10 ～ 0.85 dL/g ; 0.10 ～ 0.80 dL/g ; 0.10 ～ 0.75 dL/g ; 0.10 ～ 0.75 dL/g 未満 ; 0.10 ～ 0.72 dL/g ; 0.10 ～ 0.70 dL/g ; 0.10 ～ 0.70 dL/g 未満 ; 0.10 ～ 0.68 dL/g ; 0.10 ～ 0.68 dL/g 未満 ; 0.10 ～ 0.65 dL/g ; 0.10 ～ 0.6 dL/g ; 0.10 ～ 0.55 dL/g ; 0.10 ～ 0.5 dL/g ; 0.10 ～ 0.4 dL/g ; 0.10 ～ 0.35 dL/g ; 0.20 ～ 1.2 dL/g ; 0.20 ～ 1.1 dL/g ; 0.20 ～ 1 dL/g ; 0.20 ～ 1 dL/g 未満 ; 0.20 ～ 0.98 dL/g ; 0.20 ～ 0.95 dL/g ; 0.20 ～ 0.90 dL/g ; 0.20 ～ 0.85 dL/g ; 0.20 ～ 0.80 dL/g ; 0.20 ～ 0.75 dL/g ; 0.20 ～ 0.75 dL/g 未満 ; 0.20 ～ 0.72 dL/g ; 0.20 ～ 0.70 dL/g ; 0.20 ～ 0.70 dL/g 未満 ; 0.20 ～ 0.68 dL/g ; 0.20 ～ 0.68 dL/g 未満 ; 0.20 ～ 0.65 dL/g ; 0.20 ～ 0.6 dL/g ; 0.20 ～ 0.55 dL/g ; 0.20 ～ 0.5 dL/g ; 0.20 ～ 0.4 dL/g ; 0.20 ～ 0.35 dL/g ; 0.35 ～ 1.2 dL/g ; 0.35 ～ 1.1 dL/g ; 0.35 ～ 1 dL/g ; 0.35 ～ 1 dL/g 未満 ; 0.35 ～ 0.98 dL/g ; 0.35 ～ 0.95 dL/g ; 0.35 ～ 0.90 dL/g ; 0.35 ～ 0.85 dL/g ; 0.35 ～ 0.80 dL/g ; 0.35 ～ 0.75 dL/g ; 0.35 ～ 0.75 dL/g 未満 ; 0.35 ～ 0.72 dL/g ; 0.35 ～ 0.70 dL/g ; 0.35 ～ 0.70 dL/g 未満 ; 0.35 ～ 0.68 dL/g ; 0.35 ～ 0.68 dL/g 未満 ; 0.35 ～ 0.65 dL/g ; 0.40 ～ 1.2 dL/g ; 0.40 ～ 1.1 dL/g ; 0.40 ～ 1 dL/g ; 0.40 ～ 1 dL/g 未満 ; 0.40 ～ 0.98 dL/g ; 0.40 ～ 0.95 dL/g ; 0.40 ～ 0.90 dL/g ; 0.40 ～ 0.85 dL/g ; 0.40 ～ 0.80 dL/g ; 0.40 ～ 0.75 dL/g ; 0.40 ～ 0.75 dL/g 未満 ; 0.40 ～ 0.72 dL/g ; 0.40 ～ 0.70 dL/g ; 0.40 ～ 0.70 dL/g 未満 ; 0.40 ～ 0.68 dL/g ; 0.40 ～ 0.68 dL/g 未満 ; 0.40 ～ 0.65 dL/g ; 0.42 より大きい ～ 1.2 dL/g ; 0.42 より大きい ～ 1.1 dL/g ; 0.42 より大きい ～ 1 dL/g ; 0.42 より大きい ～ 1 dL/g 未満 ; 0.42 より大きい ～ 0.98 dL/g ; 0.42 より大きい ～ 0.95 dL/g ; 0.42 より大きい ～ 0.90 dL/g ; 0.42 より大きい ～ 0.85 dL/g ; 0.42 より大きい ～ 0.80 dL/g ; 0.42 より大きい ～ 0.75 dL/g ; 0.42 より大きい ～ 0.75 dL/g 未満 ; 0.42 より大きい ～ 0.72 dL/g ; 0.42 より大きい ～ 0.70 dL/g ; 0.42 より大きい ～ 0.70 dL/g 未満 ; 0.42 より大きい ～ 0.68 dL/g ; 0.42 より大きい ～ 0.68 dL/g ; 及び 0.42 より大きい ～ 0.65 dL/g 。

【 0073 】

本発明の実施態様において本発明で有用なポリエステルは、25 で 0.5 g / 100 ml の濃度の 60 / 40 (w t / w t) フェノール / テトラクロロエタンで測定される以下の固有粘度の少なくとも 1 つを示す： 0.45 ～ 1.2 dL/g ; 0.45 ～ 1.1 dL/g ; 0.45 ～ 1 dL/g ; 0.45 ～ 0.98 dL/g ; 0.45 ～ 0.95 dL/g ; 0.45 ～ 0.90 dL/g ; 0.45 ～ 0.85 dL/g ; 0.45 ～ 0.80 dL/g ; 0.45 ～ 0.75 dL/g ; 0.45 ～ 0.75 dL/g 未満 ; 0.45 ～ 0.72 dL/g ; 0.45 ～ 0.70 dL/g ; 0.45 ～ 0.70 dL/g 未満

; 0.45 ~ 0.68 dL/g ; 0.45 ~ 0.68 dL/g未満 ; 0.45 ~ 0.65 dL/g ; 0.50
 ~ 1.2 dL/g ; 0.50 ~ 1.1 dL/g ; 0.50 ~ 1 dL/g ; 0.50 ~ 1 dL/g未満 ; 0.50 ~
 0.98 dL/g ; 0.50 ~ 0.95 dL/g ; 0.50 ~ 0.90 dL/g ; 0.50 ~ 0.85 dL/g ;
 0.50 ~ 0.80 dL/g ; 0.50 ~ 0.75 dL/g ; 0.50 ~ 0.75 dL/g未満 ; 0.50 ~
 0.72 dL/g ; 0.50 ~ 0.70 dL/g ; 0.50 ~ 0.70 dL/g未満 ; 0.50 ~ 0.68 dL/
 g ; 0.50 ~ 0.68 dL/g未満 ; 0.50 ~ 0.65 dL/g ; 0.55 ~ 1.2 dL/g ; 0.55 ~
 1.1 dL/g ; 0.55 ~ 1 dL/g ; 0.55 ~ 1 dL/g未満 ; 0.55 ~ 0.98 dL/g ; 0.55 ~
 0.95 dL/g ; 0.55 ~ 0.90 dL/g ; 0.55 ~ 0.85 dL/g ; 0.55 ~ 0.80 dL/g ;
 0.55 ~ 0.75 dL/g ; 0.55 ~ 0.75 dL/g未満 ; 0.55 ~ 0.72 dL/g ; 0.55 ~
 0.70 dL/g ; 0.55 ~ 0.70 dL/g未満 ; 0.55 ~ 0.68 dL/g ; 0.55 ~ 0.68 dL/
 g未満 ; 0.55 ~ 0.65 dL/g ; 0.58 ~ 1.2 dL/g ; 0.58 ~ 1.1 dL/g ; 0.58 ~ 1
 dL/g ; 0.58 ~ 1 dL/g未満 ; 0.58 ~ 0.98 dL/g ; 0.58 ~ 0.95 dL/g ; 0.58 ~
 0.90 dL/g ; 0.58 ~ 0.85 dL/g ; 0.58 ~ 0.80 dL/g ; 0.58 ~ 0.75 dL/g ;
 0.58 ~ 0.75 dL/g未満 ; 0.58 ~ 0.72 dL/g ; 0.58 ~ 0.70 dL/g ; 0.58 ~
 0.70 dL/g未満 ; 0.58 ~ 0.68 dL/g ; 0.58 ~ 0.68 dL/g未満 ; 0.58 ~ 0.6
 5 dL/g ; 0.60 ~ 1.2 dL/g ; 0.60 ~ 1.1 dL/g ; 0.60 ~ 1 dL/g ; 0.60 ~ 1 dL/g
 未満 ; 0.60 ~ 0.98 dL/g ; 0.60 ~ 0.95 dL/g ; 0.60 ~ 0.90 dL/g ; 0.60
 ~ 0.85 dL/g ; 0.60 ~ 0.80 dL/g ; 0.60 ~ 0.75 dL/g ; 0.60 ~ 0.75 dL/g
 未満 ; 0.60 ~ 0.72 dL/g ; 0.60 ~ 0.70 dL/g ; 0.60 ~ 0.70 dL/g未満 ; 0.
 60 ~ 0.68 dL/g ; 0.60 ~ 0.68 dL/g未満 ; 0.60 ~ 0.65 dL/g ; 0.65 ~ 1.
 2 dL/g ; 0.65 ~ 1.1 dL/g ; 0.65 ~ 1 dL/g ; 0.65 ~ 1 dL/g未満 ; 0.65 ~ 0.9
 8 dL/g ; 0.65 ~ 0.95 dL/g ; 0.65 ~ 0.90 dL/g ; 0.65 ~ 0.85 dL/g ; 0.6
 5 ~ 0.80 dL/g ; 0.65 ~ 0.75 dL/g ; 0.65 ~ 0.75 dL/g未満 ; 0.65 ~ 0.7
 2 dL/g ; 0.65 ~ 0.70 dL/g ; 0.65 ~ 0.70 dL/g未満 ; 0.68 ~ 1.2 dL/g ; 0.
 68 ~ 1.1 dL/g ; 0.68 ~ 1 dL/g ; 0.68 ~ 1 dL/g未満 ; 0.68 ~ 0.98 dL/g ; 0.
 68 ~ 0.95 dL/g ; 0.68 ~ 0.90 dL/g ; 0.68 ~ 0.85 dL/g ; 0.68 ~ 0.80 d
 L/g ; 0.68 ~ 0.75 dL/g ; 0.68 ~ 0.75 dL/g未満 ; 0.68 ~ 0.72 dL/g ; 0.7
 6 dL/gより大きい ~ 1.2 dL/g ; 0.76 dL/gより大きい ~ 1.1 dL/g ; 0.76 dL/gより大
 さい ~ 1 dL/g ; 0.76 dL/gより大きい ~ 1 dL/g未満 ; 0.76 dL/gより大きい ~ 0.98 d
 L/g ; 0.76 dL/gより大きい ~ 0.95 dL/g ; 0.76 dL/gより大きい ~ 0.90 dL/g ; 0.
 80 dL/gより大きい ~ 1.2 dL/g ; 0.80 dL/gより大きい ~ 1.1 dL/g ; 0.80 dL/gより
 大きい ~ 1 dL/g ; 0.80 dL/gより大きい ~ 1 dL/g未満 ; 0.80 dL/gより大きい ~ 1.2 d
 L/g ; 0.80 dL/gより大きい ~ 0.98 dL/g ; 0.80 dL/gより大きい ~ 0.95 dL/g ; 0.
 80 dL/gより大きい ~ 0.90 dL/g。

【0074】

2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオールを含有する本発明のポリエ
 ステルにおいてシス/トランス 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオー
 ルのモル比は、それぞれの純粋型又はその混合物により変動する。ある実施態様において
 シス及び/又は 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオールのモルパーセ
 ントは、50 モル%より多いシスと50 モル%未満のトランス；又は55 モル%より多い
 シスと45 モル%未満のトランス；30 ~ 70 モル%のシスと70 ~ 30 モル%のトラン
 ス；40 ~ 60 モル%のシスと60 ~ 40 モル%のトランス；50 ~ 70 モル%のトラン
 スと50 ~ 30 モル%のシス；又は50 ~ 70 モル%のシスと50 ~ 30 モル%のトラン
 ス；又は60 ~ 70 モル%のシスと30 ~ 40 モル%のトランス；又は70 モル%より多
 いシスと30 モル%未満のトランス；ここでシス及びトランス 2, 2, 4, 4 - テトラメチ
 ル - 1, 3 - シクロブタンジオールのモルパーセントの合計は100 モル%に等しい。シ
 ス/トランス 1, 4 - シクロヘキサジメタノールのモル比は、50 / 50 ~ 0 / 100
 の範囲、例えば40 / 60 ~ 20 / 80 の範囲で変動する。

【0075】

本発明の組成物は、特に明記しない場合は、本明細書に記載の少なくとも1つの固有粘

度範囲と、本明細書に記載の少なくとも1つのモノマー範囲を有することが企図される。また本発明の組成物は、特に明記しない場合は、本明細書に記載の少なくとも1つのTg範囲と、本明細書に記載の組成物についての少なくとも1つのモノマー範囲を有することが企図される。また、本発明の組成物は、特に明記しない場合は、本明細書に記載の少なくとも1つの固有粘度範囲、本明細書に記載の少なくとも1つのTg範囲、及び本明細書に記載の組成物についての少なくとも1つのモノマー範囲を有することが企図される。

【0076】

ある実施態様においてテレフタル酸又はそのエステル（例えばテレフタル酸ジメチル又はテレフタル酸残基とそのエステルの混合物）は、本発明で有用なポリエステルを作成するのに使用されるジカルボン酸成分の一部又はすべてを構成することができる。ある実施態様においてテレフタル酸残基は、少なくとも70モル%、例えば少なくとも80モル%、少なくとも90モル%、少なくとも95モル%、少なくとも99モル%、又は100モル%の濃度で、本ポリエステルを作成するのに使用されるジカルボン酸成分の一部又はすべてを構成する。ある実施態様において衝撃強さが大きいポリエステルを製造するために、より多量のテレフタル酸を使用してもよい。本開示において用語「テレフタル酸」及び「テレフタル酸ジメチル」は本明細書において同義に使用される。ある実施態様においてテレフタル酸ジメチルは、本発明で有用なポリエステルを作成するために使用されるジカルボン酸成分の一部又はすべてである。すべての実施態様において、70～100モル%；又は80～100モル%；又は90～100モル%；又は99～100モル%；又は100モル%のテレフタル酸及び/又はテレフタル酸ジメチル及び/又はこれらの混合物が使用される。

10

20

【0077】

テレフタル酸以外に、本発明で有用なポリエステルのジカルボン酸成分は、最大30モル%、最大20モル%、最大10モル%、最大5モル%、最大1モル%の修飾芳香族ジカルボン酸を含んでよい。さらに別の実施態様は、0モル%の修飾芳香族ジカルボン酸を含む。すなわち存在する場合、1つ又はそれ以上の修飾芳香族ジカルボン酸の量は、前記終点値の任意の範囲（例えば0.01～30モル%、0.01～20モル%、0.01～10モル%、0.01～5モル%、及び0.01～1モル%）であると考えられる。ある実施態様において、本発明で使用される修飾芳香族ジカルボン酸は、特に限定されないが、最大20個の炭素原子を含有し、かつ線状、パラ配向、又は対称であるものである。本発明で使用される修飾芳香族ジカルボン酸の例には、特に限定されないが、イソフタル酸、4,4'-ビフェニルジカルボン酸、1,4-、1,5-、2,6-、2,7-ナフタレンジカルボン酸、及びトランス4,4'-スチルベンジカルボン酸、及びこれらのエステルがある。ある実施態様において修飾芳香族ジカルボン酸はイソフタル酸である。

30

【0078】

本発明で有用なポリエステルのカルボン酸成分は、最大10モル%、例えば最大5モル%、又は最大1モル%の、2～16個の炭素原子を含有する1つ又はそれ以上の脂肪族ジカルボン酸（例えば、マロン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、及びドデカン二酸ジカルボン酸）でさらに修飾することができる。いくつかの実施態様はまた、0.01モル%以上、例えば0.1モル%以上、又は1モル%以上、5モル%以上、10モル%以上の1つ又はそれ以上の修飾脂肪族ジカルボン酸を含有することができる。さらに別の実施態様は、0モル%の修飾脂肪族ジカルボン酸を含有する。すなわち存在する場合、1つ又はそれ以上の修飾脂肪族ジカルボン酸の量は、前記終点値の任意の範囲（例えば0.01～10モル%、及び0.01～10モル%）である。ジカルボン酸成分の総モル%は100モル%である。

40

【0079】

ジカルボン酸の代わりに、テレフタル酸のエステル及び他の修飾ジカルボン酸又はこれらの対応するエステル及び/又は塩を使用してもよい。ジカルボン酸エステルの適切な例には、特に限定されないが、ジメチル、ジエチル、ジプロピル、ジイソプロピル、ジブチル、及びジフェニルエステルがある。ある実施態様においてエステルは以下の少なくとも

50

1つから選択される：メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、及びフェニルエステル。

【0080】

1, 4 - シクロヘキサンジメタノールはシス、トランス、又はこれらの混合物（例えばシス/トランス比が60 : 40 ~ 40 : 60）でもよい。別の実施態様においてトランス - 1, 4 - シクロヘキサンジメタノールは60 ~ 80モル%の量で存在する。

【0081】

本発明で有用なポリエステル組成物のポリエステル部分のグリコール成分は、2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール又は1, 4 - シクロヘキサンジメタノールではない25モル%又はそれ以下の1つ又はそれ以上の修飾グリコールを含有できる；ある実施態様において本発明で有用なポリエステルは、15モル%未満の1つ又はそれ以上の修飾グリコールを含有できる。別の実施態様において本発明で有用なポリエステルは、10モル%又はそれ以下の1つ又はそれ以上の修飾グリコールを含有できる。別の実施態様において本発明で有用なポリエステルは、5モル%又はそれ以下の1つ又はそれ以上の修飾グリコールを含有できる。別の実施態様において本発明で有用なポリエステルは、3モル%又はそれ以下の1つ又はそれ以上の修飾グリコールを含有できる。別の実施態様において本発明で有用なポリエステルは、0モル%の修飾グリコールを含有できる。いくつかの実施態様はまた、0.01モル%又はそれ以上、例えば0.1モル%又はそれ以上、1モル%又はそれ以上、5モル%又はそれ以上、10モル%又はそれ以上の1つ又はそれ以上の修飾グリコールを含有できる。すなわち存在する場合、1つ又はそれ以上の修飾グリコールの量は、前記終点値の任意の範囲（例えば0.01 ~ 15モル%、及び0.1 ~ 10モル%）であると考えられる。

【0082】

本発明で有用な修飾グリコールは、2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオールと1, 4 - シクロヘキサンジメタノール以外のジオールを意味し、2 ~ 16個の炭素原子を含有することができる。適切な修飾グリコールの例には、特に限定されないが、エチレングリコール、1, 2 - プロパンジオール、1, 3 - プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、1, 4 - ブタンジオール、1, 5 - ペンタンジオール、ポリエチレングリコール、ジエチレングリコール、ポリテトラメチレングリコール、1, 6 - ヘキサンジオール、p - キシレングリコール、又はこれらの混合物がある。修飾グリコールの1つの例はエチレングリコールである。他の修飾グリコールには、特に限定されないが、1, 3 - プロパンジオール及び1, 4 - ブタンジオールがある。別の実施態様においてエチレングリコールは修飾ジオールとして除外される。別の実施態様において1, 3 - プロパンジオールと1, 4 - ブタンジオールは修飾ジオールとして除外される。別の実施態様において2, 2 - ジメチル - 1, 3 - プロパンジオールは修飾ジオールとして除外される。

【0083】

本発明のポリエステル成分で有用なポリエステル及び/又はポリカーボネートは、3又はそれ以上のカルボキシル置換基、ヒドロキシル置換基、又はこれらの組合せを有する0 ~ 10モル%の1つ又はそれ以上の分岐モノマー残基（本明細書において分岐物質とも呼ぶ）を含有してもよい。本発明のポリエステル成分で有用なポリエステル及び/又はポリカーボネート中に存在してもよい分岐物質のモルパーセント範囲のさらなる例は、それぞれポリエステル及び/又はポリカーボネートのジオール又は二酸残基の総モルに基づき、約0.05 ~ 約5モルパーセント、約0.01 ~ 約1モルパーセント、約0.01 ~ 約0.7、約0.01 ~ 約0.5、及び約0.1 ~ 約0.7モルパーセントである。ある実施態様において分岐モノマー又は分岐物質は、ポリエステルの重合中に加えてもよい。従って本発明のポリエステルは線状又は分岐していてもよい。ポリカーボネートもまた線状又は分岐していてもよい。ある実施態様において分岐モノマー又は分岐物質は、ポリカーボネートの重合の前及び/又はその最中及び/又は後に加えてもよい。

【0084】

分岐モノマーの例には、特に限定されないが、多官能性酸又は多官能性アルコール、例

例えばトリメリット酸、無水トリメリット酸、ピロメリット酸二無水物、トリメチロールプロパン、グリセロール、ペンタエリトリール、クエン酸、酒石酸、3-ヒドロキシグルタル酸、グリセロール、ソルビトール、1,2,6-ヘキサントリオール、トリメチロールエタン、及び/又はトリメシン酸などがある。ある実施態様において分岐モノマー残基は、0.01~1モルパーセントの、以下の少なくとも1つから選択される1つ又はそれ以上の残基を含む：無水トリメリット酸、ピロメリット酸二無水物、グリセロール、ソルビトール、1,2,6-ヘキサントリオール、ペンタエリトリール、トリメチロールエタン、及び/又はトリメシン酸。分岐モノマーは、例えば米国特許第5,654,347号及び同第5,696,176号に記載のように、濃縮物の形でポリエステル反応混合物に加えられるか又はポリエステルと配合される。

10

【0085】

本発明で有用ないくつかのポリエステルが示す170 での長い結晶化半減期（例えば5分を超える）のために、射出吹込み成形製品、射出延伸吹込み成形製品、押出し吹込み成形製品、及び押出し延伸吹込み成形製品を製造することができる。本発明のポリエステルは「無定形」又は半結晶性でもよい。従ってある態様において本発明で有用なポリエステルは、比較的低い結晶性を有する。本発明で有用ないくつかのポリエステルは実質的に無定形を有し、これはポリエステルが実質的に無秩序なポリマー領域を含むことを意味する。

【0086】

ある実施態様において「無定形」ポリエステルは、170 で5分を超える、又は170 で10分を超える、又は170 で100分を超える結晶化半減期（半結晶化時間）を有する。本発明のある実施態様において結晶化半減期は170 で1,000分を超える。本発明の別の実施態様において、本発明で有用なポリエステルの結晶化半減期は170 で10,000分を超える。本明細書においてポリエステルの結晶化半減期は、当業者に公知の方法を使用して測定される。例えばポリエステルの結晶化半減期（ $t_{1/2}$ ）は、試料の光透過をレーザーや光検出器で温度制御ホットステージ上で時間の関数として測定することにより決定することができる。この測定は、ポリマーを温度 T_{max} に暴露して、次にこれを所望の温度に冷却することにより行われる。次に試料はホットステージにより所望の温度で維持され、時間の関数として透過測定が行われる。最初、試料は高光透過性を有して視覚的に透明であり、試料が結晶化するにつれて不透明になる。結晶化半減期は、光透過が初期の透過率と最終透過率の中間になる時間である。 T_{max} は、試料の結晶性ドメインを溶融するのに必要な温度として定義される（結晶性ドメインが存在する場合）。結晶化半減期測定の前に、試料を慣らすため T_{max} に加熱してもよい。絶対 T_{max} 温度は、各組成物により異なる。例えばPCTは290 より高いある温度まで加熱されて結晶性ドメインを溶融させる。

20

30

【0087】

本発明のポリマーは、結晶性、半結晶性、又は無定形ポリマーでもよい。本明細書において用語「半結晶性」は、ポリマーが2相を含むことを意味する（規則正しい結晶相と無秩序な無定形相）。半結晶性形態を有するポリマーは、結晶性溶融温度（ T_m ）とガラス転移温度（ T_g ）の両方を示し、ガラス転移温度のみを示す「無定形」ポリマーから区別される。

40

【0088】

本発明のポリエステルは、典型的重縮合反応条件を使用して、適切なジカルボン酸、エステル、無水物、又は塩、及び適切なジオール又はジオール混合物から容易に製造される。上記したように本発明のポリエステルのジカルボン酸成分は、ジカルボン酸、これらの対応するエステル、又はこれらの混合物から得ることができる。本発明で有用なジカルボン酸のエステルの例には、ジメチル、ジプロピル、ジイソプロピル、ジブチル、ジフェニルエステルなどがある。例えばある実施態様においてテレフタル酸は出発物質として使用される。別の例ではテレフタル酸ジメチルが出発物質として使用される。さらに別の実施態様では、テレフタル酸とテレフタル酸ジメチルの混合物が出発物質として使用されるか

50

及び／又は中間体物質として使用される。

【0089】

本発明のポリエステルは、当業者に公知の方法により製造される。これは、連続、半連続、及びバッチモード操作でもよく、種々のタイプの反応槽を使用してもよい。適切な反応槽タイプの例には、特に限定されないが、攪拌タンク、連続的攪拌タンク、スラリー、管状、ぬぐいフィルム、流下フィルム、又は押出し反応槽がある。ジオール及びジカルボン酸の反応は、溶融相法により従来のポリエステル重合条件を使用して行われるが、十分な結晶性を有するものは、溶融相の次に固相重縮合法を行うことにより作成される。例えばエステル交換反応によりポリエステルの製造する場合（すなわちジカルボン酸成分のエステル型から）、反応プロセスは2つの工程を含む。第1の工程ではジオール成分とジカルボン酸成分（例えば、テレフタル酸ジメチル）は高温、典型的には約150～約250で約0.5～約8時間、約0.0 kPaゲージから約414 kPaゲージ（60ポンド/平方インチ、「psig」）の範囲の圧力で反応が行われる。好ましくはエステル交換反応の温度は、約180～約230で約1～約4時間であり、好適な圧力範囲は約103 kPaゲージ（15 psig）～約276 kPaゲージ（40 psig）である。次に反応産物を高温かつ減圧下で加熱して、ジオール（これはこれらの条件下で容易に揮発し、系から除去される）が除去されたポリエステルの生成する。この第2工程すなわち重縮合工程は、高压かつ高温（これは一般に、約230～約350、好ましくは約250～約310、最も好ましくは約260～約290で、約0.1～約6時間、好ましくは約0.2～約2時間）で、固有粘度により測定する時所望の程度の重合を有するポリマーが得られるまで続けられる。重縮合工程は、約53 kPa（400 torr）～約0.013 kPa（0.1 torr）の範囲の減圧下で行われる。当該分野で公知の攪拌又は特定の混合方法が両方の段階で使用されて、反応混合物の熱移動と表面再生を確実にする。両方の段階の反応速度は、適切な触媒（例えば、アルコキシチタン化合物、アルカリ金属加水分解物、及びアルコール、有機カルボン酸の塩、アルキルスズ化合物、金属酸化物など）を使用して上昇させる。特に酸及びエステルの混合モノマー含量が使用される時、米国特許第5,290,631号に記載されたものと類似の3段階製造法も使用される。

【0090】

エステル交換反応によるジオール成分とジカルボン酸成分の反応が完了したことを確実にするために、時に1モルのジカルボン酸成分に対して約1.05～約2.5モルのジオール成分を使用することが好ましい。しかし、ジオール成分対ジカルボン酸成分の比は、一般に反応プロセスが起きる反応槽の設計により決定される。

【0091】

直接エステル化によるポリエステルの製造（すなわちジカルボン酸成分の酸型から）において、ポリエステルは、ジカルボン酸又はジカルボン酸混合物と、ジオール成分又はジオール成分の混合物とを反応させて製造される。反応は約7 kPa（1 psig）から約1379 kPaゲージ（200 psig）、好ましくは689 kPa（100 psig）未満の圧で行い、平均重合度が約1.4～約10である低分子量ポリエステル産物を得る。直接エステル化反応で使用される温度は、典型的には約180～約280、さらに好ましくは約220～約270の範囲である。次にこの低分子量ポリマーは、重縮合反応により重合される。

【0092】

本発明の熱可塑性ポリマーはまたポリアリーレートを含有してもよい。ポリアリーレートは2価フェノールとジカルボン酸の重合により得られる。本発明の組成物、方法、及び成形製品で利用できるポリアリーレートの例は、米国特許第4,598,130号；同第5,034,502号；及び同第4,374,239号に記載されている。ポリアリーレートを製造するのに使用できる2価フェノールの例は、ビスフェノール、例えばビス（4-ヒドロキシフェニル）メタン；2,2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）プロパン（「ビスフェノール-A」）、2,2-ビス（4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル）プロパン；4,4-ビス（4-ヒドロキシフェニル）ヘプタン；2,2-ビス（4-ヒドロキシ-3,5-

10

20

30

40

50

ジクロロフェニル)プロパン; 2,2-ビス(4-ヒドロキシ-3,5-ブromoフェニル)プロパン; 2価フェノールエーテル、例えばビス(4-ヒドロキシフェニル)エーテル; ビス(3,5-ジクロロ-4-ヒドロキシフェニル)エーテル; ジヒドロキシジフェニル、例えばp,p'-ジヒドロキシジフェニル、3,3'-ジクロロ-4,4'-ジヒドロキシジフェニル; ジヒドロキシアリアルスルホン、例えばビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホン; ビス(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)スルホン; ジヒドロキシベンゼン、例えばレソルシノール; ヒドロキノン; ハロ-及びアルキル-置換ジヒドロキシベンゼン、例えば1,4-ジヒドロキシ-2,5-ジクロロベンゼン; 1,4-ジヒドロキシ-3-メチルベンゼン; 及びジヒドロキシジフェニルスルホキシド、例えばビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホキシド; 及びビス(3,5-ジブromo-4-ヒドロキシフェニル)スルホキシドである。例えば米国特許第2,999,835号; 同第3,028,365号、及び同第3,153,008号に記載のような種々の追加の2価フェノールも利用できる。またハロゲン含有2価フェノールと共重合した上記2価フェノールから製造されるコポリマー、例えば2,2-ビス(3,5-ジクロロ-4-ヒドロキシフェニル)プロパン及び2,2-ビス(3,5-ジブromo-4-ヒドロキシフェニル)プロパンも適している。また、2つ又はそれ以上の異なる2価フェノール、2価フェノールとグリセロール、ヒドロキシもしくは酸末端ポリエステルとのコポリマー、又は2塩基酸とのコポリマー、ならびに上記物質の任意の配合物を使用することもできる。適切なジカルボン酸には、特に限定されないが、芳香族ジカルボン酸、例えばフタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、o-フタル酸、o-、m-、及びp-フェニレン二酢酸、及び多核芳香族炭化水素(例えば、ジフェニル酸及び1,4-ナフタレン酸)がある。

10

20

【0093】

本発明で使用可能なポリアリーレートのさらなる例には、ビスフェノールA(2,2-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)プロパン)とイソ/テレフタル酸の50:50混合物との重合から得られるポリマーがある。ポリマーの一部は、商品名「U-polymer U-100」で市販されている(アメリカコーポレーション(America Corporation)から入手できる)。他の例は、テトラメチルビスフェノール-A; 4,4'-ジヒドロキシベンゾフェノン; 及び5-tert-ブチルイソフタル酸ジクロリドに基づくポリアリーレートである。

【0094】

本発明のポリアリーレートは、当該分野で公知の任意のポリエステル生成反応、例えば有機溶媒中の芳香族ジカルボン酸二ハロゲン化物とビスフェノールのアルカリ性水溶液とを攪拌下で混合してこれらの物質を反応させる界面重合; 有機溶媒中の脱酸物質(例えばピリジン)の存在下で芳香族ジカルボン酸二ハロゲン化物とビスフェノールとを反応させる溶液重合; 芳香族ジカルボン酸ジフェニルエステルをビスフェノールと反応させる熔融重合; 芳香族ジカルボン酸、炭酸ジフェニル、及びビスフェノールを反応させる熔融重合; 芳香族ジカルボン酸を二酢酸ビスフェノールと反応させる溶液重合; および芳香族ジカルボン酸を二酢酸ビスフェノールと反応させる重合、により製造することができる。ポリアリーレート製造法の例は、米国特許第5,034,502号、同第4,321,355号、及び同第4,374,239号に記載されている。本発明のポリアリーレートは典型的には、固有粘度が約0.5~約1.1dL/gmである。

30

40

【0095】

さらにポリエステル、ポリカーボネート、及びポリアリーレートは以下の1つ又はそれ以上をさらに含有してもよい: 抗酸化剤、熔融強度増強物質、分岐物質(例えば、グリセロール、トリメリット酸、及び無水物)、鎖伸長物質、難燃剤、増量剤、酸性排除剤、色素、着色剤、顔料、抗ブロッキング剤、流れ増強剤、衝撃調節物質、静電防止剤、加工補助剤、離型添加剤、可塑剤、スリッパ剤、安定剤、蠟、紫外線吸収剤、光学的光沢剤、滑沢剤、ピン止め添加剤、発泡剤、静電防止剤、成核剤など。ポリエステルに所望の中性の色調及び/又は光沢を付与するために、着色剤(時にトナーと呼ばれる)を加えてもよい。好ましくはポリエステル組成物は、組成物の表面性質を改変するために及び/又は流れを

50

増強するために0～約30重量%の1つ又はそれ以上の加工補助物質を含有してもよい。加工補助物質の代表例には、炭酸カルシウム、タルク、粘土、雲母、ゼオライト、珪灰石、カオリン、珪藻土、 TiO_2 、 NH_4Cl 、シリカ、酸化カルシウム、硫酸ナトリウム、及びリン酸カルシウムがある。着色製品を作成するために種々の顔料又は色素が使用される。製品の表面に帯電防止剤又は他のコーティングを適用してもよい。

【0096】

本発明の組成物の第2成分(ii)は、少なくとも2つのポリアミドのアミド基転移均一配合物を含む。典型的には均一配合物は、2～約10の異なるポリアミドを含む。別の例では均一配合物は2～4個のポリアミドを含む。本発明において約300未満の融点を示すポリアミドは少なくとも1つのポリアミドとして使用することができる。別の例では融点が約275未満でガラス転移温度が約25より高いポリアミドが使用される。典型的にはポリアミドはI.V.が約0.3 dL/g及び約2.0 dL/g、好ましくは少なくとも0.5 dL/gである。

10

【0097】

本発明の組成物について、均一配合物を製造するためにポリアミド間でアミド基転移が起きることが好ましい。本明細書において用語「アミド基転移された」は、「アミド基転移する」及び「アミド基転移」と同義であり、異なるポリアミド間でアミド基を交換する工程を意味する。すなわち本明細書においてポリアミドの「アミド基転移配合物」は、配合物が均一配合物になるのに十分な量のアミド基を、ポリアミド成分が交換した配合物である。2つ又はそれ以上のポリアミド間のアミド基転移は、高温、典型的には約270～約350にポリアミドを接触させることにより行われる。アミド基転移温度の他の例は、約280～約350、及び約290～約340である。ポリアミド間のアミド基転移は、当業者に公知の標準的方法(例えばASTMメソッドD3418)を使用して示差走査熱分析(「DSC」)により測定される、配合物の単一のガラス転移温度(「Tg」)の存在により示される。ポリアミドはこれらの温度で直接加熱されるか、又は第1成分(i)の熱可塑性ポリマーの存在下で加熱される。例えば接触すなわちポリアミドのアミド基転移は、押出し中の第1及び第2成分の溶融配合により、又はポリマー組成物とその成分の他の高温処理により起きる。別の例ではポリアミドは、別の容器中で加熱され、次に第1成分と溶融配合される。

20

【0098】

第2成分の第1及び第2ポリアミドは、広範囲のポリアミドから選択される。第1成分の屈折率によく一致させるために、ポリアミドの少なくとも1つが芳香族残基を含有することが、必須ではないが好ましい。ある例ではポリアミドは、数平均分子量が7,000またはそれ以下の芳香族ポリアミド及び脂肪族ポリアミドを含むことができる。かかるポリアミドの組合せは本発明の範囲内に包含される。部分的芳香族ポリアミドは、少なくとも1つの芳香環と少なくとも1つの非芳香族種との間のアミド結合を含有する。完全な芳香族ポリアミドは一般に液晶性であるが、融点が300未満の樹脂の配合物を本発明でを使用することができる。ポリアミドの均一配合物が使用される時、脂肪族ナイロンと芳香族又は部分的芳香族ポリアミドとの急速なアミド基転移(アミド-アミド交換)が、脂肪族ポリアミドと芳香族又は部分的芳香族ポリアミドとの比率を調整することにより、ポリアミド配合物の屈折率の調整を可能にする。この方法は、均一ポリアミド配合物と第1成分の熱可塑性ポリマー(例えば1つ又はそれ以上のポリエステル)との屈折率の一致を可能にする。アミド基転移については、Y. Takedaら、Polymer, 1992、第33巻、3394頁の研究を参照されたい。

30

40

【0099】

本発明において第2成分は、2つ又はそれ以上のポリアミド(例えば第2成分と第1成分との屈折率の差 $[RI(\text{第2成分}) - RI(\text{第1成分})]$ が約0.006～約-0.006であるように第2成分の屈折率を与えるように選択される第1ポリアミドと第2ポリアミド)のトランスアミド化均一配合物でもよい。第1成分の屈折率に一致させるために、第1及び第2ポリアミドが異なる量の芳香族及び脂肪族残基を有することが便利である

50

。例えば第2成分(ii)は、芳香族残基を含む第1ポリアミドと、脂肪族残基を有する第2ポリアミドの均一配合物を含むことができる。本発明のポリアミドのジアミン及びジカルボン酸モノマーについて本明細書において用語「脂肪族」は、モノマーのカルボキシル基又はアミノ基が芳香核を介して結合していないことを意味する。例えばアジピン酸はその骨格中に芳香核を持たず、すなわちカルボン酸基を連結する炭素原子の鎖であり、これは「脂肪族」である。これに対して用語「芳香族」は、ジカルボン酸又はジアミンがこの骨格中に芳香核を有することを意味し、例えばテレフタル酸又は1,4-メタキシレンジアミンがある。芳香族ポリアミドの代表例は、ジアミン(例えばm-キシレンジアミン又はm-キシレンジアミンを含むキシレンジアミン混合物)を含む少なくとも70モル%の残基と最大30%のp-キシレンジアミン及び6~10個の炭素原子を有する脂肪族ジカルボン酸とを含むポリアミドである。用語「脂肪族」は、本質的に飽和すなわちパラフィン性、不飽和(すなわち非芳香族炭素-炭素2重結合を含む)、又はアセチレン性(すなわち、炭素-炭素3重結合を含む)である構成炭素原子の直鎖もしくは分岐鎖又は環状構成を骨格として含有する脂肪族と脂環式構造(例えば、ジアミン、二酸、ラクタム、アミノアルコール、及びアミンカルボン酸)の両方を含むことを企図する。すなわち本発明の説明と請求項において、脂肪族は直鎖又は分岐鎖構造(本明細書において「脂肪族性」と呼ぶ)及び環状構造(本明細書において「脂環式(alicyclic)」又は「環状脂肪族(cycloaliphatic)」と呼ぶ)を含むことを企図する。しかし用語「脂肪族」は、脂肪族もしくは脂環式ジオールもしくは二酸又はヒドロキシカルボン酸の骨格に結合した芳香族置換基を排除するものではない。

10

20

【0100】

アミド基転移均一配合物中に存在する第1及び第2ポリアミドの重量パーセント比は、第2成分の総重量に基づき典型的には約1:50~約50:1である。重量パーセント比の他の例は、1:20~約20:1、及び約1:10~約10:1である。

【0101】

本発明の均一配合物で使用されるポリアミドの例には、イソフタル酸、テレフタル酸、シクロヘキサン-ジカルボン酸、メタ-キシレンジアミン(本明細書において「m-キシレンジアミン」とも呼ぶ)、パラ-キシレンジアミン(本明細書において「p-キシレンジアミン」とも呼ぶ)、1,3-シクロヘキサン(ビス)メチルアミン、1,4-シクロヘキサン(ビス)メチルアミン、6~12個の炭素原子を有する脂肪族二酸、6~12個の炭素原子を有する脂肪族アミノ酸又はラクタム、4~12個の炭素原子を有する脂肪族ジアミンから選択される1つ又はそれ以上の残基を含むポリアミドがある。二酸やジアミンを生成する他の一般的に公知のポリアミドを使用することができる。ポリアミドはまた、少量の3官能性又は4官能性コモノマー、例えば無水トリメリット酸、ピロメリット酸二無水物、又は当該分野で公知の多価酸やポリアミンを生成する他のポリアミドも含有する。

30

【0102】

部分的芳香族ポリアミドの例には、特に限定されないが、以下がある: ポリ(m-キシレンジアジパミド)(本明細書において「MXD6」ナイロンと呼ぶ)、ポリ(ヘキサメチレンイソフタルアミド)、ポリ(ヘキサメチレンアジパミド-コ-イソフタルアミド)、ポリ(ヘキサメチレンアジパミド-コ-テレフタルアミド)、及びポリ(ヘキサメチレンイソフタルアミド-コ-テレフタルアミド)。ある実施態様において部分的芳香族ポリアミドは、ポリ(m-キシレンジアジパミド)である。ある実施態様において部分的芳香族ポリアミドは数平均分子量が7000又はそれ以下である。脂肪族ポリアミドの代表例には、ポリ(2-ピロリジノン)(ナイロン4,6;CAS番号44,299-2);ポリカブラミド(ナイロン6;CAS番号18,111-0);ポリ(2-ピペリドン)(ナイロン5;CAS番号24938-57-6);ポリ(7-アミノヘプタン酸)(ナイロン7;CAS番号25035-01-2);ポリ(ノナナミド)(ナイロン9;CAS番号25748-72-5);ポリ(11-アミノウンデカン酸)(ナイロン11;CAS番号25035-04-5);ポリ(12-アミノラウリン酸)(ナイロン12;CAS番号2

40

50

4 9 3 7 - 1 6 - 4) ; ポリ (エチレンアジパミド) (ナイロン 2 , 6) ; ポリテトラメチレン - アジパミド (ナイロン 4 , 6 ; C A S 番号 5 0 3 2 7 - 2 2 - 5) ; ポリヘキサメチレン - アジパミド (ナイロン 6 , 6 ; C A S 番号 4 2 , 9 1 7 - 1) 、 (ナイロン 6 , 9 ; C A S 番号 1 8 , 8 0 6 - 9) ポリ (ヘキサメチレン - セバカミド) (ナイロン 6 , 1 0 ; C A S 番号 9 0 0 8 - 6 6 - 6) 、 ポリ (ヘキサメチレン - ウンデカナミド) (ナイロン 6 , 1 1) ポリ (ヘキサメチレン - ドデカナミド) (ナイロン 6 , 1 2 ; C A S 番号 2 4 9 3 6 - 7 4 - 1) 、 ポリ (オクタメチレン - アジパミド) (ナイロン 8 , 6) ; アジピン酸 - デカメチレンジアミンコポリマー (ナイロン 1 0 , 6 ; C A S 番号 2 6 1 2 3 - 2 7 - 3) ; ポリデカメチレン - ドデカミド (ナイロン 1 0 , 1 2) ; ポリ (ドデカメチレン - アジパミド (ナイロン 1 2 , 6) ; 及びポリ (ドデカメチレン - セバカミド) (ナイロン 1 2 , 8)) がある。

10

【 0 1 0 3 】

例えば第 2 成分 (i i) は、 m - キシレンジアミンとアジピン酸の残基を含む第 1 ポリアミドと、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ウンデカン二酸、ドデカン二酸、カプロラクタム、ブチロラクタム、1 1 - アミノウンデカン二酸、及びヘキサメチレンジアミンから選択される少なくとも 1 つの脂肪族又は脂環式モノマーの残基を含む第 2 ポリアミドとを含む均一配合物を含む。例えば第 1 ポリアミドは M X D 6 ナイロン (これは M i t s u b i s h i C o r p o r a t i o n から販売されている) を含むことができる。別の例では第 2 ポリアミドは、ナイロン 4 ; ナイロン 6 ; ナイロン 9 ; ナイロン 1 1 ; ナイロン 1 2 ; ナイロン 6 , 6 ; ナイロン 5 , 1 0 ; ナイロン 6 , 1 2 ; ナイロン 6 , 1 1 ; ナイロン 1 0 , 1 2 ; 及びこれらの組合せから選択される少なくとも 1 つのポリアミドを含むことができる。さらに別の例では第 2 ポリアミドは、ナイロン 6 、ナイロン 6 , 6 、又はこれらの配合物を含むことができる。

20

【 0 1 0 4 】

第 2 成分はまた、モノマー残基の組成物が第 1 成分の屈折率とほぼ一致する屈折率を与えるように選択される、単一のコポリアミドを含んでよい。すなわち別の例で本発明は、

(i) ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物から選択される少なくとも 1 つの熱可塑性ポリマーを含む第 1 成分と ;

(i i) コポリアミドを含む第 2 成分との、

不混和性配合物を含んでなるポリマー組成物であって、第 2 成分 (i i) と第 1 成分 (i) は屈折率の差 $[R I (第 2 成分) - R I (第 1 成分)]$ が約 0 . 0 0 6 ~ 約 - 0 . 0 0 0 6 であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも 7 5 % で曇り価が 1 0 % 又はそれ以下であることを特徴とする、上記組成物を提供する。別の例で第 1 成分は、テレフタル酸、2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール、及び 1, 4 - シクロヘキサジメタノールの残基を含むポリエステルを含む。すなわち本発明はまた、

30

(i) (a) 総二酸残基に基づき約 7 0 ~ 約 1 0 0 モルパーセントのテレフタル酸残基と ; 0 ~ 約 3 0 モルパーセントの、最大 2 0 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾芳香族ジカルボン酸残基と ; 0 ~ 約 1 0 モルパーセントの、最大 1 6 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基とを含む二酸残基と ;

(b) 総ジオール残基に基づき約 1 ~ 約 9 9 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基と ; 約 1 ~ 約 9 9 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基とを含むジオール残基とを、含む少なくとも 1 つのポリエステルを含む第 1 成分と ;

40

(i i) コポリアミドを含む第 2 成分との、

不混和性配合物を含んでなるポリマー組成物であって、第 2 成分 (i i) と第 1 成分 (i) は屈折率の差 $[R I (第 2 成分) - R I (第 1 成分)]$ が約 0 . 0 0 6 ~ 約 - 0 . 0 0 0 6 であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも 7 5 % で曇り価が 1 0 % 又はそれ以下であることを特徴とする、上記組成物である。例えばコポリアミドは、m - キシレンジアミン、p - キシレンジアミン、又はこれらの組合せ ; 及びテレフタル酸、イソフタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ウンデカン二

50

酸、ドデカン二酸、カプロラクタム、ブチラクタム、1,11-アミノウンデカン二酸、及び1,6-ヘキサメチレンジアミンから選択される少なくとも1つのモノマーの残基、を含有する。別の例ではコポリアミドは、総ジアミン残基含量の100モル%に基づき、約15～約100モルパーセントのm-キシレンジアミン残基、及び総二酸残基含量の100モル%に基づき、約15～約85モルパーセントのアジピン酸残基、及び約85～約15モルパーセントの、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ウンデカン二酸、ドデカン二酸、及び1,4-シクロヘキサンジカルボン酸から選択される1つ又はそれ以上の脂肪族又は脂環式ジカルボン酸の残基を含有する。本明細書に記載のポリアミドとコポリアミドの均一配合物の種々の実施態様は、上記ポリエステルの任意の実施態様と組合せることができると理解される。

10

【0105】

本発明の組成物に単独で又は他のポリアミドとの均一配合物の一部として使用できるコポリアミドの他の例には、特に限定されないが、総ジアミン残基含量の100モル%に基づき、約15～約100モルパーセントのm-キシレンジアミン残基と、アジピン酸残基を含むコポリアミドがある。これらのコポリアミド中に存在してもよいアジピン酸残基の典型的な量は、二酸残基の総モル量に基づき、約5～約85モルパーセント、約20～約80モルパーセント、及び約25～約75モルパーセントである。ジカルボン酸残基の残りは、例えばピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ウンデカン二酸、ドデカン二酸、又は1,4-シクロヘキサンジカルボン酸から選択される、7～12個の炭素原子を有する1つ又はそれ以上の脂肪族ジカルボン酸、の残基を含有する。別の例ではポリアミドはまた、イソフタル酸及びテレフタル酸の残基を含有する。

20

【0106】

本発明のコポリアミドはまた、m-キシレンジアミン残基以外に他のジアミン又はラクタム残基を含有する。例えばコポリアミドは、少なくとも15モルパーセント又は少なくとも約20モルパーセントのm-キシレンジアミンの残基を、1つ又はそれ以上の脂肪族又は芳香族ジアミンの残基を含む残りのジアミン残基とともに含有する。例えばコポリアミドは、ジアミン残基の総モル数に基づき、約80モルパーセント又は約85モル%の1,6-ヘキサレンジアミンの残基を含有する。異なる量のp-キシレンジアミン、1,3-シクロヘキサンプス(メチレンジアミン)、又は1,4-シクロヘキサンプス(メチルアミン)も使用される。同様にコポリアミドは、カプロラクタムのようなラクタム残基、又はガンマ-アミノ酪酸もしくは1,11-アミノ-ウンデカン酸に基づくラクタムを、繰り返し単位の総モル数に基づき、約10モルパーセント～約90モルパーセント、又は約10モルパーセント～約70モルパーセントの量で含有する。別の実施態様において本発明のコポリアミドは、ジアミンの総モル数に基づき、約15モルパーセント～約85モルパーセント、約20～約80モルパーセント、又は約25～約75モルパーセントのm-キシレンジアミンの残基を含有してもよく、ジアミン残基含量の残りは、脂肪族ジアミン、特に1,6-ヘキサメチレンジアミンのような1つ又はそれ以上のジアミン残基を含有する。この実施態様のジアミン残基は、少量の他のジアミン残基(例えばp-キシレンジアミン)又は環状脂肪族ジアミン(例えば1つ又はそれ以上の1,3-シクロヘキサンプス(メチルアミン)又は1,4-シクロヘキサンプス(メチルアミン))をさらに含有する。さらにポリアミドは、アジピン酸部分の代わりに、場合により7～12個の炭素原子を有する1つ又はそれ以上の脂肪族又は芳香族ジカルボン酸(例えばピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ウンデカン二酸、ドデカン二酸、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、又はイソフタル酸)の残基を含み、これらは約15モルパーセント～約85モルパーセントの量で存在し、随時少量のテレフタル酸を含有する。ポリアミドはまた、カプロラクタムのようなラクタム残基、又はガンマ-アミノ酪酸もしくは1,11-アミノ-ウンデカン酸に基づくラクタムを、繰り返し単位の総モル数に基づき、約10モルパーセント～約90モルパーセント、又は約10モルパーセント～約70モルパーセントの量で含有してもよい。

30

40

【0107】

50

別の実施態様において本発明のコポリアミドは、ジカルボン酸残基の総モル数に基づき、約 15 モルパーセント～最大約 90 モルパーセントのアジピン酸残基の含有し、残りの二酸残基は約 10 ～約 85 モルパーセントのイソフタル酸残基をでもよい。アジピン酸とイソフタル酸残基含量のさらなる例は、約 20 ～80 モルパーセント及び約 25 ～約 75 モルパーセントである。この実施態様においてポリアミドは場合により、7 ～12 個の炭素原子を有する 1 つ又はそれ以上の脂肪族ジカルボン酸（例えばピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ウンデカン二酸、ドデカン二酸、又は 1,4 - シクロヘキサンジカルボン酸）の残基の少量を含み、随時少量のテレフタル酸を含有する。場合によりポリアミドは m - キシレンジアミン残基を含む。m - キシレンジアミン残基濃度の例は、約 15 ～約 90 モルパーセント、約 20 モルパーセント～約 85 モルパーセント、又は約 25 ～約 80 モルパーセントである。残りの残基は、1 つ又はそれ以上の脂肪族ジアミン（例えば 1,6 - ヘキサメチレンジアミン）、1 つ又はそれ以上の芳香族ジアミン（例えば、p - キシレンジアミン）を含有する。同様にコポリアミドはまた、カプロラクタムのようなラクタム残基、又はガンマ - アミノ酪酸もしくは 11 - アミノ - ウンデカン酸に基づくラクタムを、繰り返し単位の総モル数に基づき、約 10 モルパーセント～約 90 モルパーセント、又は約 10 モルパーセント～約 70 モルパーセントの量で含有してもよい。

【0108】

さらに別の例では本発明のコポリアミドは、カプロラクタムのような 1 つ又はそれ以上のラクタム残基、又はガンマ - アミノ酪酸もしくは 11 - アミノ - ウンデカン酸に基づくラクタムを、繰り返し単位の総モル数に基づき、約 10 モルパーセント～約 90 モルパーセント、又は約 10 モルパーセント～約 70 モルパーセント、又は約 15 モルパーセント～約 60 モルパーセントの量で含有する。7 ～12 個の炭素原子を有する 1 つ又はそれ以上の脂肪族ジカルボン酸（例えばピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ウンデカン二酸、ドデカン二酸、又は 1,4 - シクロヘキサンジカルボン酸）の残基は、繰り返し単位の総モル数に基づき、約 20 モルパーセント～約 80 モルパーセントの量で存在してもよい。例えばコポリアミドは、イソフタル酸又はテレフタル酸の残基を含有する。この実施態様においてコポリアミドは、ジアミン残基の総モル数に基づき、約 15 モルパーセント～約 85 モルパーセントの m - キシレンジアミン残基を含有する。m - キシレンジアミン含量の他の例は、約 20 ～約 80 モルパーセント及び約 25 ～約 75 モルパーセントである。残りのジアミン残基は、1 つ又はそれ以上の脂肪族ジアミン（例えば 1,6 - ヘキサメチレンジアミン）の残基を含有する。この実施態様においてジアミン残基は、少量の他のジアミン残基（例えば、p - キシレンジアミン）又は環状脂肪族ジアミン（例えば、1,3 - シクロヘキサンプス（メチルアミン）又は 1,4 - シクロヘキサンプス（メチルアミン）の 1 つ又はそれ以上）をさらに含有する。場合により少量の p - キシレンジアミン、1,3 - シクロヘキサンプス（メチルアミン）又は 1,4 - シクロヘキサンプス（メチルアミン）の 1 つ又はそれ以上が使用される。

【0109】

本発明の他の実施態様は、基本的に：

(i) ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物から選択される少なくとも 1 つの熱可塑性ポリマーから基本的になる第 1 成分と；

(ii) 少なくとも 2 つのポリアミドの均一なアミド基転移配合物から基本的になる第 2 成分との、

不混和性配合物から基本的になるポリマー組成物であって、第 2 成分 (ii) と第 1 成分 (i) は屈折率の差 $[RI(\text{第 2 成分}) - RI(\text{第 1 成分})]$ が約 0.006 ～約 -0.0006 であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも 75 % で曇り価が 10 % 又はそれ以下であることを特徴とする、上記組成物である。本発明の別の態様において第 1 成分は、テレフタル酸、2,2,4,4 - テトラメチル - 1,3 - シクロブタンジオール、及び 1,4 - シクロヘキサンジメタノールの残基を含むポリエステルから基本的になる。すなわち本発明はまた、

(i) (a) 総二酸残基に基づき約 70 ~ 約 100 モルパーセントのテレフタル酸残基と； 0 ~ 約 30 モルパーセントの、最大 20 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾芳香族ジカルボン酸残基と； 0 ~ 約 10 モルパーセントの、最大 16 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基とを含む二酸残基と；

(b) 総ジオール残基に基づき約 1 ~ 約 99 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオールの残基と；約 1 ~ 約 99 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノールの残基とから基本的になるジオール残基とを、含む少なくとも 1 つのポリエステルから基本的になる第 1 成分と；

(ii) 少なくとも 2 つのポリアミドの均一なアミド基転移配合物から基本的になる第 2 成分との

不混和性配合物から基本的になるポリマー組成物であって、第 2 成分 (ii) と第 1 成分 (i) は屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約 0.006 ~ 約 - 0.006 であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも 75 % で曇り価が 10 % 又はそれ以下であることを特徴とする、上記組成物を提供する。本明細書において用語「から基本的になる」は、不混和性配合物（すなわち DSC により測定すると、少なくとも 2 つの組成物依存性 Tg を有する）であって、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物を含有する第 1 成分と、少なくとも 2 つのポリアミドの均一なアミド基転移配合物を含有する第 2 成分とを有する組成物を包含することを企図する。この実施態様において組成物は、この用語が示す組成物の基本的性質を実質的に変更するような要素を排除すると理解される。例えば組成物は、成分の屈折率、不混和性配合物の曇り %、不混和性配合物の透過 %、又は混和性を変化させない他の成分は含有してもよい。例えば相溶化物質 (compatibilizer)（これは組成物の混和性及び屈折率を変化させることがある）の添加は、この実施態様から排除されるであろう。同様に成分モノマーの共重合により製造されるコポリアミドは、モノマー残基のモルパーセントが同等であっても、少なくとも 2 つのポリアミドの均一なアミド基転移配合物とは異なる性質を有すると考えられるため、かかるポリアミドを含有する第 2 成分は除外される。

【 0 1 1 0 】

本発明のポリアミドは、典型的にはジカルボン酸とジアミンから製造され、これらは実質的に等しい比率で反応されるか、又はラクタムの開環重合により反応され、対応する残基としてポリアミドポリマー中に取り込まれる。従って本発明のジカルボン酸及びジアミン残基から得られるポリアミドは、繰り返し単位の総モル数が 100 モルパーセントに等しくなるように、実質的に等モル比率の酸残基 (100 モルパーセント) とジアミン残基 (100 モルパーセント) を含有する。従って本開示で与えられるモルパーセントは、酸残基の総モル数、ジアミン残基の総モル数、又は繰り返し単位の総モル数に基づく。例えば総酸残基に基づき、30 モルパーセントのテレフタル酸を含有するポリアミド又はコポリアミドは、コポリアミドが全部で 100 モルパーセントの酸残基のうちの 30 モルパーセントのテレフタル酸残基を含有することを意味する。すなわち、各 100 モルの酸残基につき 30 モルのテレフタル酸残基が有る。別の例では総ジアミン残基に基づき、30 モルパーセントの m - キシレンジアミンを含有するコポリアミドは、コポリエステルが全部で 100 モルパーセントのジアミン残基のうちの 30 モルパーセントの m - キシレンジアミン残基を含有することを意味する。すなわち、各 100 モルのジアミン残基につき 30 モルの m - キシレンジアミン残基が有る。

【 0 1 1 1 】

ポリアミドを製造するのに当該分野で公知の任意の方法を使用することができる。ポリアミドは一般に、インサイチュで又は別の工程で製造される二酸 - ジアミン複合体から溶融相重合により製造される。いずれの方法でも、二酸とジアミンは出発物質として使用される。あるいは二酸のエステル型、好ましくはジメチルエステルが使用される。エステルが使用される場合、反応は、エステルがアミドに変換されるまで、比較的低温（一般に 80 ~ 120 ）で実施しなければならない。次に混合物は重合温度まで加熱される。ポリ

10

20

30

40

50

カプロラクタムの場合、カプロラクタム又は6-アミノカプロン酸が出発物質として使用され、重合はアジピン酸/ヘキサメチレンジアミン塩の添加により触媒され、これはナイロン6/66コポリマーを与える。二酸-ジアミン複合体が使用される時、混合物は溶融するまで加熱され、平衡に達するまで攪拌される。

【0112】

分子量は二酸-ジアミン比により制御される。過剰のジアミンは、より高濃度の末端アミノ基を生成する。酸素排除組成物については、二酸-ジアミン比を調整して末端アミノ基の濃度を20ミリモル/kg又はそれ以下にすることが便利である。二酸-ジアミン複合体が別の工程で製造される場合、重合前に過剰のジアミンが加えられる。重合は大気圧又は高圧で行われる。

10

【0113】

満足できる透明性と低曇り価を示すために、典型的には不混和性配合物の第2成分と第1成分は典型的には、約0.006~約-0.0006異なる屈折率、すなわち屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約0.006~約-0.0006である。屈折率の絶対値の差の他の例は、約0.005~約-0.0006、約0.004~約-0.0006、約0.003~約-0.0006、約0.005~約-0.0005、及び約0.004~約-0.0005である。しかし許容される屈折率の差は、Biangardira、Die Angew. Makromole. Chemie, 183, 221 (1990)により記載されるように、配合物組成、粒子直径、屈折率、波長、及び粒子構造に依存することを当業者は理解するであろう。

20

【0114】

本発明の不混和性配合物は、優れた透明性と、ASTMメソッドD1003により測定すると少なくとも75%の透過%と10%又はそれ以下の曇り価を有する。この方法に従って曇り価%は、透過値%から計算される。透過%の他の例は、少なくとも77%、少なくとも80%、及び少なくとも85%である。本発明の配合物が示す曇り価のさらなる例は、9%又はそれ以下、7%又はそれ以下、5%又はそれ以下、及び3%又はそれ以下である。本発明の組成物について曇り価は、組成物を厚さ1/8インチ又はそれ以下を有するシート又はフィルムに成形又は鑄造して、実施例で記載される方法に従って曇りを測定することにより決定される。多層成形製品を含む成形製品について、曇りは、厚さが1/8インチ又はそれ以下を有する製品の小さい(すなわち、1×1cm)切片を切断し、実施例で記載される方法に従って曇りを測定することにより決定することができる。

30

【0115】

第1成分はまた、1つ又はそれ以上のポリマーの均一配合物を含む。例えば第1成分は、ポリカーボネートから選択される1つ又はそれ以上のポリマーを有する第1ポリエステル、第2ポリエステル、及びポリアリーレーートの均一配合物を含む。ポリエステルは、本明細書に記載の任意のポリエステルである。例えば第1成分は、ポリエステルとビスフェノールA残基を含むポリカーボネートの均一配合物を含む。

【0116】

ポリカーボネートは、ジオール残基の総モル数に基づき、約90~100モルパーセントのビスフェノールA残基、及び0~約10モルパーセントの、2~16個の炭素原子を有する1つ又はそれ以上の修飾脂肪族ジオール又は2価フェノールの残基を含む。代表例には、ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン; 2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン(「ビスフェノールA」); 2,2-ビス(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)プロパン; 4,4-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ヘプタン; 2,2-ビス(4-ヒドロキシ-3,5-ジクロロフェニル)プロパン; 2,2-ビス(4-ヒドロキシ-3,5-ジブromoフェニル)プロパン; 2価フェノール、例えばビス(4-ヒドロキシフェニル)エーテル; ビス(3,5-ジクロロ-4-ヒドロキシフェニル)エーテル; ジヒドロキシジフェニル、例えばp,p'-ジヒドロキシジフェニル、3,3'-ジクロロ-4,4'-ジヒドロキシジフェニル; ジヒドロキシアリールスルホン、例えばビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホン; ビス(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)スルホ

40

50

ン；ジヒドロキシベンゼン、例えばレソルシノール；ヒドロキノン；ハロ - 及びアルキル - 置換ジヒドロキシベンゼン、例えば 1, 4 - ジヒドロキシ - 2, 5 - ジクロロベンゼン；1, 4 - ジヒドロキシ - 3 - メチルベンゼン；及びジヒドロキシジフェニルスルホキシド、例えばビス（4 - ヒドロキシフェニル）スルホキシド；及びビス（3, 5 - ジブromo - 4 - ヒドロキシフェニル）スルホキシドがある。例えば米国特許第 2, 9 9 9, 8 3 5 号；同第 3, 0 2 8, 3 6 5 号、及び同第 3, 1 5 3, 0 0 8 号に開示されたような、種々の追加の 2 価フェノールも利用できる。また、2, 2 - ビス（3, 5 - ジクロロ - 4 - ヒドロキシフェニル）プロパン及び 2, 2 - ビス（3, 5 - ジブromo - 4 - ヒドロキシフェニル）プロパンのようなハロゲン含有 2 価フェノールと共重合した上記 2 価フェノールから製造される共重合体も適している。また、2 つ又はそれ以上の異なる 2 価フェノール、又は 2 価フェノールとグリコール、ヒドロキシもしくは酸末端ポリエステル、又は二塩基酸との共重合体、ならびに上記の任意の物質の配合物を使用することもできる。適切なジカルボン酸には、特に限定されないが、芳香族ジカルボン酸、例えばフタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、o - フタル酸、o - 、m - 、及び p - フェニレン二酢酸、及び多環式芳香族酸、例えばジフェン酸及び 1, 4 - ナフタレン酸がある。

【0117】

脂肪族ジオールの代表例には、エチレングリコール、プロパンジオール、ブタンジオール、ペンタンジオール、ヘキサジオール、ヘプタンジオール、オクタンジオール、ネオペンチルグリコール、アリール - アルキルグリコール（例えばスチレングリコール、キシレングリコール）、2 価フェノールのジヒドロキシアルキルエーテル（例えばビスフェノール A のジヒドロキシエチルエーテル）などがある。脂肪族ジオールの他の例は、高分子量脂肪族ジヒドロキシ化合物、例えばポリ（エチレングリコール）、ポリスチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリブチレングリコール、ポリチオグリコール、ポリ - アリールアルキルエーテルグリコール、及びコポリマーポリエーテルグリコールである。2 価フェノール及び脂肪族ジオールの追加の代表例は、米国特許第 3, 0 3 0, 3 3 5 号及び同第 3, 3 1 7, 4 6 6 号に記載されている。ポリカーボネートは、1 つ又はそれ以上の分岐物質、例えばテトラフェノールカルボン酸、トリ - （4 - ヒドロキシフェニル）エタン、ペンタエリトリートトリアクリレート、及び米国特許第 6, 1 6 0, 0 8 2 号；同第 6, 0 2 2, 9 4 1 号；同第 5, 2 6 2, 5 1 1 号；同第 4, 4 7 4, 9 9 9 号；及び同第 4, 2 8 6, 0 8 3 号に開示された他の化合物をさらに含む。他の適切な分岐物質は後述される。さらなる例においてポリカーボネートは、ジオール残基の総モル数に基づき、少なくとも 9 5 モルパーセントのビスフェノール A 残基を含む。

【0118】

本発明の配合物のポリカーボネート部分の固有粘度は、好ましくは少なくとも約 0.3 dL/g、さらに好ましくは少なくとも 0.5 dL/g である。本発明の配合物のポリカーボネート部分の溶融流れは、ASTM メソッド D 1 2 3 8 に従って 3 0 0 の温度で 1.2 kg の重量を使用して測定した時、好ましくは 1 ~ 2 0、さらに好ましくは 2 ~ 1 8 である。

【0119】

ポリカーボネートの製造法は当該分野で公知である。本発明で使用でき本明細書に開示される線状又は分岐ポリカーボネートは、ポリカーボネートのタイプ又はその製造法に限定又は拘束されない。一般に 2 価フェノール（例えばビスフェノール A）は、随時の 1 官能性化合物を鎖停止物質として使用して、又は 3 官能性又はより高官能性の化合物を分岐物質もしくは架橋物質として使用して、ホスゲンと反応される。1 官能性、2 官能性、及び 3 官能性の反応性ハロゲン化アシルはまた、停止化合物（1 官能性）、モノマー（2 官能性）、又は分岐物質（3 官能性又はそれ以上）としてポリカーボネートの製造で使用するができる。

【0120】

例えば本配合物のポリカーボネート部分は、溶融重合、溶液重合、又は当該分野で公知の界面重合法により製造することができる。適切な方法には、約 0 ~ 3 1 5 の温度で約 0.1 ~ 7 6 0 mmHg の圧力で、ポリカーボネートを生成するのに十分な時間、カー

10

20

30

40

50

ポネート源にジオールを反応させる工程がある。本発明で利用できる市販されているポリカーボネートは通常、芳香族ジオールにカーボネート源（例えば、ホスゲン、炭酸ジブチル、又は炭酸ジフェニル）を反応させて、100モルパーセントの炭酸塩単位を100モルパーセントのジオール単位とともにポリカーボネート中に取り込むことにより製造される。ポリカーボネートの製造法の他の代表例は、米国特許第5,498,688号；同第5,494,992号；及び同第5,489,665号に記載されている。

【0121】

ポリエステルとポリカーボネートの配合物は、ポリカーボネートとポリエステル部分を約25～350の温度で、透明な配合組成物を生成するのに十分な時間配合する工程を含む方法により製造することができる。適切な従来の配合法には、熔融法及び溶液製造法がある。他の適切な配合法には、乾燥配合及び／又は押出し法がある。

10

【0122】

本明細書に含まれる不混和性の均一配合物を含む本発明の組成物は、当該分野で公知の任意の方法により製造され、熱可塑性成形組成物として、かつフィルム及び単層及び多層製品の製造に有用である。配合物の種々の成分を物理的に配合する以外に、均一なポリエステル配合物は、ポリエステル成分のエステル交換により製造される。同様にポリアミドの均一配合物は、ポリアミド成分のアミド基転移により製造される。

【0123】

熔融配合法は、第1成分と第2成分部分を熔融するのに十分な温度でポリマーを配合し、次に透明な配合物を生成するのに十分な温度まで配合物を冷却することを含む。本明細書において用語「熔融」は、特に限定されないが、ポリマーを軟化することのみを意味する。熔融混合法の例は、一般にポリマーで公知であり、「ポリマーの混合と配合（Mixing and Compounding of Polymers）」（I. Manass-Zloczower & Z. Tadmor 編、カールハンザーフェラーク出版（Carl Hanser Verlag publisher）、N.Y. 1994）に記載されている。

20

【0124】

溶液製造法は、適切な重量／重量比の第1成分と第2成分を、適切な有機溶媒（例えば、塩化メチレン又は塩化メチレンとヘキサフルオロイソプロパノールの70／30混合物）に溶解し、溶液を混合し、配合物の沈殿により又は溶媒を留去して、配合組成物を溶液から分離することを含む。溶液製造配合法はポリマー分野で公知である。

30

【0125】

熔融配合法は、本発明の配合組成物を製造するための好適な方法である。熔融配合法は、揮発性溶媒の使用を必要とする溶液法より経済的で安全である。熔融配合法はまた、透明配合物を与えるのにより有効である。溶液配合により製造できる本発明の透明配合物はまた、熔融法でも製造することができる。しかし本発明の配合物には熔融法で製造できるが、溶液製造法では製造できないものがある。本発明の透明配合物を提供する任意の配合法が適している。当業者は、本発明の透明配合物を製造するための適切な配合法を決定することができるであろう。

【0126】

組成物のこれらの第1及び第2成分は、例えばスクリュウ押出し機又はツインスクリュウ押出し機を使用して熔融物中に配合される。これらはまた溶液中で配合して製造してもよい。追加の成分（例えば安定剤、難燃性物質、着色剤、滑沢剤、離形材、耐衝撃性改良剤など）も調製物中に取り込まれる。例えば第1成分と第2成分を他の組成物成分（例えば金属触媒、色素、トナー、増量剤など）と熔融押出し配合することにより製造することができる。組成物は、各熱可塑性ポリマーとポリアミド成分の固体粒子又はペレットと乾燥配合し、次に混合物を適切な混合手段（例えば押出し機、ローラーミキサーなど）で熔融配合することにより作成される。ポリアミドのアミド基転移均一配合物を含む第2成分をインサイチュ（すなわち第1成分の存在下で）製造したい場合は、ポリアミド間のアミド基転移を引き起こす温度で処理を行うことが有利である。典型的にはこれらの温度は約

40

50

270 ~ 約350 である。アミド基転移温度の他の例は、約280 ~ 約350 及び約290 ~ 約340 である。配合は、充分分散した不混和性配合物を与えるのに充分な時間行われる。これは当業者が容易に決定することができる。所望であれば組成物は冷却され、さらなる処理のためにペレットに切断される。これは押出されてフィルム、シート、異形製品、及び他の成形要素になるか、又は射出成形もしくは圧縮成形されて種々の成形製品を生成するか、又はフィルムに成形され、当該分野で公知の手段により随時一軸延伸又は二軸延伸される。

【0127】

不混和性配合物中の第1及び第2成分の量は大きく変動してもよい。例えば我々の新規組成物の不混和性配合物は、組成物の総重量に基づき約5 ~ 約99重量%の第1成分と約95 ~ 約1重量%の第2成分を含有する。第1及び第2成分の重量パーセントの他の代表的非限定例には、約50 ~ 約99重量%の第1成分と約50 ~ 約1重量%の第2成分、約60 ~ 約99重量%の第1成分と約40 ~ 約1重量%の第2成分、及び約70 ~ 約99重量%の第1成分と約30 ~ 約1重量%の第2成分がある。

【0128】

我々の発明はまた、

(i) ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物から選択される少なくとも1つの熱可塑性ポリマーを含む第1成分と；

(ii) 少なくとも2つのポリアミドの均一なアミド基転移配合物を含む第2成分とを、溶融配合することを含んでなる方法により製造されるポリマー組成物であって、第2成分(ii)と第1成分(i)は屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約0.006 ~ 約-0.0006であり、組成物は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下であることを特徴とする上記組成物を提供する。本発明のさらに別の態様において第1成分は、テレフタル酸、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、及び1,4-シクロヘキサンジメタノールの残基を含むポリエステルを含む。従って本発明はまた、

(i) (a) 総二酸残基に基づき約70 ~ 約100モルパーセントのテレフタル酸残基と；0 ~ 約30モルパーセントの、最大20個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾芳香族ジカルボン酸残基と；0 ~ 約10モルパーセントの、最大16個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基とを含む二酸残基と；

(b) 総ジオール残基に基づき約1 ~ 約99モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と；約1 ~ 約99モルパーセントの1,4-シクロヘキサンジメタノール残基とを含むジオール残基とを、含む少なくとも1つのポリエステルを含む第1成分と；

(ii) 少なくとも2つのポリアミドの均一なアミド基転移配合物を含む第2成分とを溶融配合することを含む方法により製造されるポリマー組成物であって、第2成分(ii)と第1成分(i)は屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約0.006 ~ 約-0.0006であり、組成物は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下であることを特徴とする、上記組成物を提供する。この組成物は、上記のポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、均一配合物、及びポリアミド、及びこれらの任意の組合せの種々の実施態様を含む。例えば組成物の第2成分は少なくとも2つのポリアミドの均一なアミド基転移配合物を含み、ここでアミド基転移は、高温、典型的には約270 ~ 約350 にポリアミドを接触させることにより行われる。アミド基転移温度の他の例は、約280 ~ 約350、及び約290 ~ 約340 である。

【0129】

第2成分(ii)の均一配合物は、上記したように芳香族残基を含む第1ポリアミドと、脂肪族残基を含む第2ポリアミドとを含む。例えば第2ポリアミドとして使用できる典型的ポリアミドには、特に限定されないが、ナイロン4；ナイロン6；ナイロン9；ナイロン11；ナイロン12；ナイロン6,6；ナイロン5,10；ナイロン6,12；ナイロン

6, 1 1 ; ナイロン 1 0 , 1 2 ; 及びこれらの組合せがある。前述のポリエステル以外に第 1 成分は、ポリエステルとビスフェノール A の残基を含むポリカーボネートとの均一配合物を含んでよい。

【 0 1 3 0 】

本発明の他の態様は、透明ポリマー配合物の製造法であって、

(A) ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物から選択される少なくとも 1 つの熱可塑性ポリマーを含む第 1 成分を選択し；

(B) 第 1 成分の屈折率を決定し；

(C) (i) 以下の式：

【 数 2 】

10

$$0.006 \geq RI \text{ (第2成分)} - RI \text{ (第1成分)} \geq -0.0006$$

を満足する第 2 成分屈折率を与えるように脂肪族残基と芳香族残基のモル比が選択されることを特徴とする、あるモル比の脂肪族残基と芳香族残基を有するコポリアミド、又は；

(ii) 以下の式：

【 数 3 】

20

$$0.006 \geq RI \text{ (第2成分)} - RI \text{ (第1成分)} \geq -0.0006$$

(ここで R I は屈折率である) を満足する第 2 成分屈折率を与えるように第 1 及び第 2 ポリアミドの重量パーセントが選択されることを特徴とする、少なくとも 1 つのポリアミドが芳香族残基を有する、第 1 及び第 2 ポリアミドの均一なアミド基転移配合物、を含む第 2 成分を提供し；及び

(D) 第 1 及び第 2 成分を溶融配合して、透過パーセントが少なくとも 7 5 % で曇り価が 1 0 % 又はそれ以下である不混和性配合物を製造する、ことを含んでなる上記製造方法である。

30

さらに別の態様において第 1 成分は、テレフタル酸、2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール、及び 1, 4 - シクロヘキサジメタノールの残基を含むポリエステルを含んでなるポリエステルを含む。すなわち我々の発明はまた、透明ポリマー配合物の製造法であって、

(A) (a) 総二酸残基に基づき約 7 0 ~ 約 1 0 0 モルパーセントのテレフタル酸残基と；0 ~ 約 3 0 モルパーセントの、最大 2 0 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾芳香族ジカルボン酸残基と；0 ~ 約 1 0 モルパーセントの、最大 1 6 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基とを含む二酸残基と；

(b) 総ジオール残基に基づき約 1 ~ 約 9 9 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基と；約 1 ~ 約 9 9 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基とを含むジオール残基とを、含む少なくとも 1 つのポリエステルを含む第 1 成分を選択し；

40

(B) 第 1 成分の屈折率 (R I) を決定し；

(C) (i) 以下の式：

【 数 4 】

$$0.006 \geq RI \text{ (第2成分)} - RI \text{ (第1成分)} \geq -0.0006$$

を満足する第 2 成分屈折率を与えるように脂肪族残基と芳香族残基のモル比が選択され

50

ることを特徴とする、あるモル比の脂肪族残基と芳香族残基を有するコポリアミド、又は

(ii) 以下の式：

【数 5】

$$0.006 \geq RI \text{ (第 2 成分)} - RI \text{ (第 1 成分)} \geq -0.0006$$

(ここで RI は第 1 および第 2 成分の屈折率である) を満足する第 2 成分屈折率を与えるように第 1 及び第 2 ポリアミドの重量パーセントが選択されることを特徴とする、少なくとも 1 つのポリアミドが芳香族残基を有する、第 1 及び第 2 ポリアミドの均一なアミド基転移配合物、を含む第 2 成分を提供し；及び

10

(D) 第 1 及び第 2 成分を溶融配合して、透過パーセントが少なくとも 75 % で曇り価が 10 % 又はそれ以下である不混和性配合物を製造する、ことを含んでなる上記製造方法である。

我々の方法は、上記したポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、均一配合物、コポリアミド、及びポリアミド、及びこれらの任意の組合せを含んでなる種々の実施態様を含む。

【0131】

我々の方法は、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、又はこれらの均一配合物である第 1 成分を選択することを含む。第 1 成分の屈折率は、当業者に公知の方法を使用して決定される。単一のコポリアミド又は少なくとも 2 つのポリアミドのアミド基転移均一配合物を含んでよい第 2 成分は、コポリアミドの場合は芳香族モノマーと脂肪族モノマーの適切な混合物を選択することにより、又はポリアミドの均一配合物が使用される場合は、芳香族残基と脂肪族残基の所望の混合物を含有するポリアミドの混合物を選択することにより、第 1 成分の屈折率にほぼ一致するように調整される。ポリアミドのモノマーの正しい比率の選択は、例えば試行錯誤により、又は別の例では、種々のポリアミド又は種々の量の芳香族残基と脂肪族残基を含有するコポリアミドの屈折率をプロットし、目標とする屈折率を与えるポリアミドの芳香族残基：脂肪族残基のモル比もしくは重量パーセント比を選択することにより、決定することができる。第 1 及び第 2 成分は溶融配合される。第 2 成分が少なくとも 2 つのポリアミドのアミド基転移均一配合物を含む時は、アミド基転移プロセスに有効な温度で溶融配合工程を実施することが好ましい。典型的なアミド基転移温度範囲は、前記したようなものである。

20

30

【0132】

熱可塑性ポリマーはまた、第 2 成分の屈折率に一致するように選択される。すなわち本発明の別の態様は、透明ポリマー配合物の製造法であって、

(A) (i) あるモル比の脂肪族残基と芳香族残基を有するコポリアミド；又は

(ii) 少なくとも 1 つのポリアミドが芳香族残基を有する、第 1 及び第 2 ポリアミドの均一なアミド基転移配合物、を含む第 2 成分を選択し；

(B) 第 2 成分の屈折率を決定し；

40

(C) (i) 以下の式：

【数 6】

$$0.006 \geq RI \text{ (第 2 成分)} - RI \text{ (第 1 成分)} \geq -0.0006$$

(ここで RI は屈折率である) を満足する第 1 成分屈折率を与えるように、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、又はこれらの均一配合物が選択されることを特徴とする、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物から選択される少なくとも 1 つの熱可塑性ポリマーを含む第 1 成分を提供し；及び

50

(D) 第1及び第2成分を溶融配合して、透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下である不混和性配合物を製造する、ことを含んでなる上記製造方法である。上記したように第1成分は、テレフタル酸、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、及び1,4-シクロヘキサジメタノールの残基を含むポリエステルを含む。すなわち本発明はまた、透明ポリマー配合物の製造法であって、

(A) (i) あるモル比の脂肪族残基と芳香族残基を有するコポリアミド；又は

(ii) 少なくとも1つのポリアミドが芳香族残基を有する、第1及び第2ポリアミドの均一なアミド基転移配合物、を含む第2成分を選択し；

(B) 第2成分の屈折率を決定し；

(C) (a) 総二酸残基に基づき約70～約100モルパーセントのテレフタル酸残基と；0～約30モルパーセントの、最大20個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾芳香族ジカルボン酸残基と；0～約10モルパーセントの、最大16個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基とを含む二酸残基と；

(b) 総ジオール残基に基づき約1～約99モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と；約1～約99モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基とを含むジオール残基とを、含む少なくとも1つのポリエステルを含む第1成分を選択し

[ここで、ポリエステルは、以下の式：

【数7】

10

20

$$0.006 \geq RI \text{ (第2成分)} - RI \text{ (第1成分)} \geq -0.0006$$

(ここでRIは屈折率である)を満足する第1成分屈折率を与えるように選択される]；及び

(D) 第1及び第2成分を溶融配合して、透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下である不混和性配合物を製造する、ことを含んでなる上記製造方法を含む。

上記方法はまた、前述のポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、均一配合物、コポリアミド、ポリアミドの種々の実施態様の任意の組合せを含む。

30

【0133】

ある例では、屈折率の差が約0.006～約-0.0006である第2成分と第1成分を得るための熱可塑性ポリマーの配合が、ポリカーボネート/ポリエステル配合物について例示される。例えばビスフェノールAのポリカーボネートとPC TGの完全な混和性は、ポリカーボネート/PC TG比を調整することにより、ポリカーボネート/PC TG配合物の屈折率(RI)の調整を可能にする。ポリカーボネート比を調整することにより、本発明の第1成分の屈折率を、コポリアミド又はポリアミドの均一なアミド基転移配合物を含む第2成分の屈折率の約0.006～約-0.0006内に一致させられる。例えば、1)修飾ポリマーを、ポリカーボネートとポリエステル部分を含有する既存の配合物と配合することにより、又は2)修飾ポリマーをポリカーボネート部分と配合した後、ポリエステル部分を導入することにより、又は3)修飾ポリマーをポリエステル部分と配合した後、ポリカーボネート部分を導入することにより、又は4)修飾ポリマー、ポリカーボネート部分、及びポリエステル部分をすべて混合した後、配合することにより、透明配合物が作成される場合、ポリマーは、上記の均一ポリエステル/ポリカーボネート配合物の適切な修飾ポリマーであると決定される。

40

【0134】

本発明の透明配合物は、修飾ポリマーを取り込んで修飾して高性能配合物(これは必ずしも透明ではない)を製造することができる。例えばデュポン(DuPont)のナイロン6,6のようなポリアミド、ゼネラルエレクトリック(General Electric)のULTEMポリ(エーテル-イミド)のようなポリ(エーテル-イミド)、ポリ

50

(2,6-ジメチルフェニレンオキシド)のようなポリフェニレンオキシド、又はゼネラルエレクトリック(General Electric)のNORYL樹脂のようなポリ(フェニレンオキシド)/ポリスチレン配合物、ポリエステル、ポリフェニレンスフリフイド、ポリフェニレンスルフィド/スルホン、LEXAN 3250 ポリ(エステル-カーボネート)(ゼネラルエレクトリック(General Electric))のようなポリ(エステル-カーボネート)、ゼネラルエレクトリック(General Electric)のLEXANポリカーボネート以外のポリカーボネート、ARDEL D100 ポリアリレート(アモコ(Amoco))のようなポリアリレート、ポリスルホン、ポリスルホンエーテル、ポリ(エーテル-ケトン)、又は芳香族ジヒドロキシ化合物、を配合物修飾物質として使用して、性質を修飾するか又は可燃性を低下させることができる。これらのポリマーを製造するのに使用される芳香族ジヒドロキシ化合物の一部は、米国特許第3,030,335号、及び同第3,317,466号に開示されている。

10

20

30

40

50

【0135】

本発明の組成物のコポリアミド又はポリアミドの均一配合物はバリアポリマーとして機能し、従って組成物全体のバリア性を改善することができる。本明細書において用語「バリアポリマー」は、1つ又はそれ以上の以下の性質を有するポリマーを意味する：(1) ASTMメソッドNo. F1249により38 で測定すると、2グラム-ミル/100平方インチ/24時間又はそれ以下の水透過性；(2) ASTMメソッドNo. D3985により23 で測定すると、5cc(STP)-ミル/100平方インチ/24時間-圧又はそれ以下の酸素透過性；又は(3) ASTMメソッドNo. D1434により23 で測定すると、25cc(STP)-ミル/100平方インチ/24時間圧又はそれ以下の二酸化炭素透過性。

【0136】

酸素と組成物中の1つ又はそれ以上のポリアミドとの反応を触媒する、酸素排除組成物を産生する金属触媒を取り込むことにより、バリア性を増強することができる。従って我々の発明は、酸素排除組成物であって、

(A)(i)ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリレート、及びこれらの均一配合物から選択される少なくとも1つの熱可塑性ポリマーを含む第1成分と；

(ii)少なくとも2つのポリアミドの均一なアミド基転移均一配合物を含む第2成分とを、

含む不混和性配合物であって、第2成分(ii)と第1成分(i)は屈折率の差 $[RI(\text{第2成分}) - RI(\text{第1成分})]$ が約0.006~約-0.0006であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下であることを特徴とする不混和性配合物と；

(B)元素の周期表の3~12族で4~6周期から選択される少なくとも1つの金属とを

含む上記酸素排除組成物をさらに提供する。

不混和性配合物の第1成分は、テレフタル酸、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、1,4-シクロヘキサジメタノールの残基を含むポリエステルを含んでよい。すなわち本発明の別の実施態様は酸素排除組成物であって、

(A)(i)(a)総二酸残基に基づき約70~約100モルパーセントのテレフタル酸残基と；0~約30モルパーセントの、最大20個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾芳香族ジカルボン酸残基と；0~約10モルパーセントの、最大16個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基とを含む二酸残基と；

(b)総ジオール残基に基づき約1~約99モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と；約1~約99モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基とを含むジオール残基とを、含む少なくとも1つのポリエステルを含む第1成分と；

(ii)少なくとも2つのポリアミドの均一なアミド基転移配合物を含む第2成分とを含む不混和性配合物であって、第2成分(ii)と第1成分(i)は屈折率の差 $[RI(\text{第2成分}) - RI(\text{第1成分})]$

第 2 成分) - R I (第 1 成分)] が約 0.006 ~ 約 - 0.0006 であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも 75 % で曇り価が 10 % 又はそれ以下であることを特徴とする、不混和性配合物と；

(B) 元素の周期表の 3 ~ 12 族で 4 ~ 6 周期から選択される少なくとも 1 つの金属とを

含む上記酸素排除組成物を提供する。

【 0 1 3 7 】

1 つ又はそれ以上のポリアミドの均一配合物以外に、本発明の酸素排除組成物はまた、本発明の他の実施態様のための上記した単一のコポリアミドを含んでよい。すなわち本発明はまた酸素排除組成物であって、

(A) (i) ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一混合物から選択される少なくとも 1 つの熱可塑性ポリマーを含む第 1 成分と；

(ii) コポリアミドを含む第 2 成分とを

含む不混和性配合物であって、第 2 成分 (ii) と第 1 成分 (i) は屈折率の差 [R I (第 2 成分) - R I (第 1 成分)] が約 0.006 ~ 約 - 0.0006 であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも 75 % で曇り価が 10 % 又はそれ以下であることを特徴とする、不混和性配合物と；

(B) 元素の周期表の 3 ~ 12 族で 4 ~ 6 周期から選択される少なくとも 1 つの金属とを

含む酸素排除組成物を提供する。

上記したように、不混和性配合物の第 1 成分は、テレフタル酸、2,2,4,4 - テトラメチル - 1,3 - シクロブタンジオール、及び 1,4 - シクロヘキサジメタノールの残基を含むポリエステルを含んでよい。すなわち本発明の別の実施態様は、酸素排除組成物であって、

(A) (i) (a) 総二酸残基に基づき約 70 ~ 約 100 モルパーセントのテレフタル酸残基と；0 ~ 約 30 モルパーセントの、最大 20 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾芳香族ジカルボン酸残基と；0 ~ 約 10 モルパーセントの、最大 16 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基とを含む二酸残基と；

(b) 総ジオール残基に基づき約 1 ~ 約 99 モルパーセントの 2,2,4,4 - テトラメチル - 1,3 - シクロブタンジオール残基と；約 1 ~ 約 99 モルパーセントの 1,4 - シクロヘキサジメタノール残基とを含むジオール残基とを、含む少なくとも 1 つのポリエステルを含む第 1 成分と；

(ii) コポリアミドを含む第 2 成分とを

含む不混和性配合物であって、第 2 成分 (ii) と第 1 成分 (i) は屈折率の差 [R I (第 2 成分) - R I (第 1 成分)] が約 0.006 ~ 約 - 0.0006 であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも 75 % で曇り価が 10 % 又はそれ以下であることを特徴とする、不混和性配合物と；

(B) 元素の周期表の 3 ~ 12 族で 4 ~ 6 周期から選択される少なくとも 1 つの金属とを

を含む上記酸素排除組成物である。

酸素排除組成物は、上記した第 1 及び第 2 成分、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、均一配合物、コポリアミド、及びポリアミドの種々の実施態様の任意の組合せを含むことを、さらに理解されたい。

【 0 1 3 8 】

同様に本発明の他の実施態様は、酸素排除組成物であって、

(A) (i) ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物から選択される少なくとも 1 つの熱可塑性ポリマーから基本的になる第 1 成分と；

(ii) コポリアミド、又は少なくとも 2 つのポリアミドのアミド基転移均一配合物から基本的になる第 2 成分と、

から本質的に (基本的に) なる不混和性配合物であって、第 2 成分 (ii) と第 1 成分 (

i) は屈折率の差 $[RI(\text{第2成分}) - RI(\text{第1成分})]$ が約 $0.006 \sim$ 約 -0.0006 であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも 75% で曇り価が 10% 又はそれ以下であることを特徴とする、不混和性配合物と；

(B) 元素の周期表の $3 \sim 12$ 族で $4 \sim 6$ 周期から選択される少なくとも 1 つの金属と

から基本的になる酸素排除組成物であって、第1成分と第2成分は、絶対値が 0.008 又はそれ以下の差である屈折率を有し、成形製品は透過パーセントが少なくとも 75% で曇り価が 10% 又はそれ以下であることを特徴とする、上記酸素排除組成物である。別の例では本発明は、酸素排除組成物であって、

(A) (i) (a) 総二酸残基に基づき約 $70 \sim$ 約 100 モルパーセントのテレフタル酸残基と； $0 \sim$ 約 30 モルパーセントの、最大 20 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾芳香族ジカルボン酸残基と； $0 \sim$ 約 10 モルパーセントの、最大 16 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾脂肪族ジカルボン酸の残基から基本的になる二酸残基と；

(b) 総ジオール残基に基づき約 $1 \sim$ 約 99 モルパーセントの $2, 2, 4, 4$ -テトラメチル- $1, 3$ -シクロブタンジオールの残基と；約 $1 \sim$ 約 99 モルパーセントの $1, 4$ -シクロヘキサジメタノールの残基とから基本的になるジオール残基とを、含む少なくとも 1 つのポリエステルから基本的になる第1成分と；

(ii) 少なくとも 2 つのポリアミドの均一なアミド基転移化配合物から基本的になる第2成分と

から本質的に(基本的に)なる不混和性配合物であって、第2成分(ii)と第1成分(i)は屈折率の差 $[RI(\text{第2成分}) - RI(\text{第1成分})]$ が約 $0.006 \sim$ 約 -0.0006 であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも 75% で曇り価が 10% 又はそれ以下であることを特徴とする、不混和性配合物と；

(B) 元素の周期表の $3 \sim 12$ 族で $4 \sim 6$ 周期から選択される少なくとも 1 つの金属と、から基本的になる上記酸素排除組成物を提供する。

これらの実施態様において組成物は、成分の屈折率、不混和性配合物の曇り%、透過%、第1及び第2成分の混和性、又は組成物の酸素排除性のような用語が意味する組成物の基本的性質を大きく変化させる要素を除外すると理解される。例えばコポリアミド又はポリアミドのアミド基転移配合物の以外の酸素排除成分(例えば、ジエン、ポリエーテル、又は請求項に記載された成分以外の任意の容易に酸素可能な有機化合物)の添加は除外される。

【0139】

本発明の酸素排除組成物は、国際純正及び応用化学連合(International Union for Pure and Applied Chemistry)による周期表の 1984 年改訂に記載された元素の周期表の $3 \sim 12$ 族で $4 \sim 6$ 周期から選択される 1 つの金属を含むことができる。典型的な酸化触媒には、少なくとも 2 つの酸化状態を容易に相互転換できる遷移金属触媒がある。使用可能な金属の例には、銅、ニッケル、コバルト、鉄、マンガン、及びこれらの組合せがある。酸素排除を触媒するのに有効な触媒の任意の量が使用できるが、典型的には金属は約 $5 \text{ ppm} \sim$ 約 $1,000 \text{ ppm}$ の量で使用される。金属濃度の他の範囲には、酸素排除組成物の総重量に基づき約 $50 \text{ ppm} \sim$ 約 750 ppm 、約 $5 \sim$ 約 600 ppm 、約 $10 \sim$ 約 500 重量、約 $50 \text{ ppm} \sim$ 約 500 ppm 、及び約 $50 \sim$ 約 300 ppm がある。金属は典型的には、元素金属自体として、有機リガンドを含有する金属錯体として、酸化物として、又は金属塩として使用される。金属塩の対イオンの例には、特に限定されないが、塩酸塩、酢酸塩、アセチルアセトネート、ステアリン酸塩、パルミチン酸塩、 2 -エチルヘキサン酸塩、ネオデカン酸塩、オクタン酸塩、又はナフテン酸塩、及びこれらの混合物がある。金属塩はまた、ポリマー性対イオンが使用されるイオノマーでもよい。このようなイオノマーは当該分野で周知である。

【0140】

ある例において金属触媒は、コバルト又はコバルトを含有する化合物(例えばコバルト

塩)である。コバルトは+2又は+3酸化状態でもよい。金属触媒の他の例は、+2酸化状態のロジウムと+2酸化状態の銅である。金属は塩の形で加えてもよく、例えばオクタン酸コバルト、酢酸コバルト、ネオデカン酸コバルトのようなカルボン酸塩が便利である。報告された量は、ポリマー配合物の重量に基づき、組成物に加えられる化合物の重量ではなく金属に基づいて測定される。金属としてのコバルトの場合、典型的な量は少なくとも50ppm、又は少なくとも60ppm、又は少なくとも75ppm、又は少なくとも100ppm、又は少なくとも125ppmである。触媒はそのまま又は担体(例えば液体又は蠟)中で押し出し機又は製品を作成するための他の装置に入れられるか、又はポリアミドポリマーとの濃縮物として、ポリエステルポリマーとの濃縮物として、又は不混和性配合物との濃縮物として加えることができる。担体は、第1及び第2成分と反応性でも非反応性でもよく、揮発性又は非揮発性担体液を使用してもよい。金属触媒は、酸素排除組成物の製造中に種々の時点で及び種々の配合プロトコールにより加えられる。特に有用なアプローチは、最終配合組成物の製造の後期(製品を成形する前の最終溶融工程という遅い時期)にポリアミドと遷移金属と一緒にして、ポリアミドの酸素排除活性の開始が早すぎないようにすることである。ある場合には、例えばコバルトが遷移金属として提供される場合、コバルトは、例えば熱可塑性ポリマーの製造中の代わりに第1及び第2成分の配合中に、コバルトを加えることが好ましい。

10

20

30

40

50

【0141】

ある実施態様において、例えば酸素排除組成物の第1成分は、前記モノマー残基の任意の組合せを有するポリエステルを含むことができる。例えばポリエステルは、(a)総二酸残基に基づき少なくとも80モルパーセントの、テレフタル酸、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、及び1,4-シクロヘキサジカルボン酸から選択される少なくとも1つのジカルボン酸の残基、及び0~約20モルパーセントの、2~20個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾ジカルボン酸の残基；及び(b)ジオール残基の総モル数に基づき少なくとも80モルパーセントの、エチレングリコール、1,4-シクロヘキサジメタノール；ネオペンチルグリコール、ジエチレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、及び2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオールから選択される少なくとも1つのジオール残基；及び0~約20モルパーセントの、3~16個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾ジオールの残基を含むことができる。別の例では二酸残基は、約60~100モルパーセントのテレフタル酸残基、0~約40モルパーセントのイソフタル酸残基を含み、ジオール残基は約100モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基を含む。別の例では二酸残基は、二酸残基の総モル数に基づき、約100モルパーセントのテレフタル酸残基を含む。第1成分で使用されるポリエステルの他の具体例は、以下を含んでなるポリエステルがある：(i)約80~約100モルパーセントのテレフタル酸残基、及び約50~約90モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基、及び約10~約50モルパーセントのネオペンチルグリコール；(ii)約100モルパーセントのテレフタル酸残基、及び約10~約40モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基、及び60~約90モルパーセントのエチレングリコール残基；及び(iii)約100モルパーセントのテレフタル酸残基、及び約10~約99モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基、及び0~約90モルパーセントのエチレングリコール残基、及び約1~約25モルパーセントのジエチレングリコール残基。ポリエステルのさらなる例は、総二酸残基に基づき約70~約100モルパーセントのテレフタル酸残基と；総ジオール残基に基づき、以下のジオール残基組成の任意の1つを含むものである：(i)約5~約60モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と約40~約95モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基；(ii)約15~約40モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と約60~約85モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基；(iii)約20~約30モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と約70~約80モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基；及び(iv)約

20 ~ 約25モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と約75 ~ 約80モルパーセントの1,4-シクロヘキサンジメタノール残基。ポリエステルはまた、総二酸残基に基づき、約0.1 ~ 約1モル%の、前述のトリメリト酸、無水トリメリト酸、及びピロメリト酸二無水物、グリセロール、ソルビトール、1,2,6-ヘキサントリオール、ペンタエリトリール、酒石酸、クエン酸、トリメチロールエタン、及びトリメシン酸から選択される少なくとも1つの分岐物質の残基をさらに含む。

【0142】

ポリエステルのさらなる例は、総二酸残基に基づき約100モルパーセントのテレフタル酸残基を含有し、総ジオール残基に基づき以下のジオール残基組成の任意の1つを含むものである：(i)約1 ~ 約5モルパーセントの1,4-シクロヘキサンジメタノール残基と約99 ~ 約95モルパーセントのエチレングリコール残基；(ii)約29 ~ 約33モルパーセントの1,4-シクロヘキサンジメタノール残基と約71 ~ 約67モルパーセントのエチレングリコール残基；(iii)約45 ~ 約55モルパーセントの1,4-シクロヘキサンジメタノール残基と約55 ~ 約45モルパーセントのエチレングリコール残基；(iv)約60 ~ 約65モルパーセントの1,4-シクロヘキサンジメタノール残基と約40 ~ 約35モルパーセントのエチレングリコール残基；(v)約79 ~ 約83モルパーセントの1,4-シクロヘキサンジメタノール残基と約21 ~ 約17モルパーセントのエチレングリコール残基；(vi)約100モルパーセントの1,4-シクロヘキサンジメタノール残基；(vii)約5 ~ 約60モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と約40 ~ 約95モルパーセントの1,4-シクロヘキサンジメタノール残基；(viii)約15 ~ 約40モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と約60 ~ 約85モルパーセントの1,4-シクロヘキサンジメタノール残基；(ix)約20 ~ 約30モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と約70 ~ 約80モルパーセントの1,4-シクロヘキサンジメタノール残基；(x)約20 ~ 約25モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と約75 ~ 約80モルパーセントの1,4-シクロヘキサンジメタノール残基。

【0143】

第1成分はまた、少なくとも1つのポリエステルと少なくとも1つのポリカーボネートとの均一配合物を含んでよい。これらの均一配合物で利用できるポリカーボネートは既に記載されている。

【0144】

アミド基転移均一配合物又はコポリアミドは、上記した任意のポリアミド（例えば種々のナイロン）を含む。しかし、コポリアミド又は酸素排除組成物のポリアミドの均一配合物は、m-キシレンジアミン残基、p-キシレンジアミン残基、又はこれらの組合せを含むことが有利である。例えば第2成分は、m-キシレンジアミン残基とアジピン酸残基を含む第1ポリアミドと、ナイロン6、ナイロン6,6、又はこれらの配合物を含む第2ポリアミドとの均一配合物を含む。さらなる例としてこの均一配合物は、ポリエステルとビスフェノールA残基を含むポリカーボネートとの均一配合物を含む第1成分との不混和性配合物中に一緒にされる。またコポリアミド又はポリアミドの均一配合物は、20ミリモル/kg又はそれ以下の遊離アミノ基を含有することが、最適な酸素排除性にとって好ましい。遊離アミノ基の濃度は、当業者に周知の方法（例えば滴定）を使用して決定することができる。

【0145】

別の例では酸素排除組成物は、アジピン酸m-キシレンジアミンのコポリアミドを含む。アジピン酸残基の一部又はm-キシレンジアミンの一部、又はこれらの両方の残基が他の残基で置換された修飾アジピン酸m-キシレンジアミンの使用は、アジピン酸m-キシレンジアミンホモポリマーのみを含有する組成物と比較した時、改良された酸素排除性を有する酸素排除組成物を与えることができる。上記した他のポリアミドバリアポリマーもまた、酸素排除組成物の一部として使用される。

【 0 1 4 6 】

上記した本発明の組成物は、成形製品（例えば、シート、フィルム、チューブ、予備成形物、ビン、又は異形製品）を作成するのに使用される。このような製品は、当業者に公知の任意の手段、例えば押出し、カレンダー加工、熱成形、吹込み成形、押出し吹込成形、射出成形、圧縮成形、鋳造、ドラフティング、幅出し、又は吹込みにより製造される。

【 0 1 4 7 】

例えば本発明の組成物は、当該分野で知られた任意の方法により成形製品（例えばフィルム）に作成される。フィルムの作成は、溶融押出し（例えば米国特許第 4, 8 8 0, 5 9 2 号に記載されている）又は圧縮成形（例えば米国特許第 4, 4 2 7, 6 1 4 号に記載されている）、又は任意の他の適切な方法により行われる。例えばフィルムは、キャストフィルム法、吹込フィルム法、及び押出しコーティング法（後者は基質上への押出しを含む）により製造される。このような基質はまた、つなぎ層を含有してもよい。溶融鋳造又は吹込法により製造したフィルムは、接着剤を使用して基質に熱結合又は密封される。組成物は当該分野で公知の任意の方法を使用して単層又は多層フィルムに作成することができる。例えば単層又は多層フィルムは、公知のキャストフィルム法、吹込フィルム法、及び押出しコーティング法（後者は基質上への押出しを含む）により製造される。代表的基質には、フィルム、シート、及び織布や不織布がある。溶融鋳造又は吹込法により製造した単層又は多層フィルムは、接着剤を使用して基質に熱結合又は密封される。

【 0 1 4 8 】

例えば組成物は、従来の吹込フィルム装置を使用してフィルムに形成することができる。フィルム形成装置は、当該分野で「吹込フィルム」装置と呼ばれるものであり、バブル吹込フィルム用の円形ダイヘッドを含み、ここを介して組成物が押し出され、フィルム「バブル」に押し出される。「バブル」は最終的につぶれ、フィルムに成形される。

【 0 1 4 9 】

組成物はまた、押出し吹込成形及び射出延伸吹き込み成形により成形製品に成形される。射出成形法は、加熱シリンダー中のコポリアミド又は均一ポリアミド配合物を軟化させ、これを溶けている間に高圧で密閉鋳型中に射出し、鋳型を冷却して固化を誘導し、成形した予備成形物を鋳型から排出させる。成形組成物は、予備成形物の製造、及びこれらの予備成形物から所望の性質を有する最終的なビンの形への以後の再加熱延伸吹き込み成形に適している。射出成形された予備成形物は、100 ~ 150 範囲の適切な延伸温度まで加熱され、次に延伸吹き込み成形される。後者の方法は、まず機械的手段（例えばコアロッドインサートを用いて押し出す）により熱い予備成形物を軸方向に延伸し、次に高圧空気（最大 500 psi）を吹き込み、円周方向に延伸する。こうして二軸延伸吹き込みビンが作成される。典型的な引伸ばし比は 5 / 1 ~ 15 / 1 の範囲である。

【 0 1 5 0 】

本発明の組成物の優れた透明性と低曇り価は、多量のスクラップポリマー又は「リグラインド」を取り込んだ透明の成形製品の製造を可能にする。本明細書において用語「リグラインド」は、当該分野で一般的に受け入れられている意味を有し、すなわち製品製造プロセスから回収され、より小さい粒子に粉砕されるスクラップポリマーである。リグラインドはしばしば、その応用にとって製品の透明性があまり重要ではない成形製品中に取り込まれる。いくつかの成形製品（例えば、パッケージング用途で使用されるビン及びフィルム）にとって、低曇り価や高透明性は好ましい特徴である。これらの製品（特に多層製品）の製造は、本質的に多量のスクラップポリマーを産生し、これは、許容されないレベルの曇りを生成するために製品形成プロセスに戻すことができないことがしばしばである。第 1 及び第 2 成分の屈折率がほぼ一致するため、リグラインドを含む本発明の組成物から、低曇り価で透明の成形製品が製造される。

【 0 1 5 1 】

従って我々の本発明の他の態様は、成形製品を作成する方法であって、

（A）（i）ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物から選択される少なくとも 1 つの熱可塑性ポリマーを含む第 1 成分と；

(ii) コポリアミド、又は少なくとも2つのポリアミドの均一なアミド基転移配合物を含む第2成分とを、溶融配合し

(ここで、第1成分(i)と第2成分(ii)とは不混和性配合物を生成し、第2成分と第1成分は屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約0.006~約-0.0006であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下である)；

(B) 成形製品を作成し；

(C) 配合された第1及び第2成分(i)と(ii)を含むスクラップポリマー組成物を回収し；

(D) スクラップポリマー組成物を粉砕してポリマーリグラインドを作成し；

(E) 場合により、スクラップポリマー組成物を乾燥させ；そして

(F) ポリマーリグラインドと工程(A)の第1及び第2成分(i)と(ii)とを一緒にする、ことを含んでなる上記方法である。

別の例において第1成分は、テレフタル酸、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、及び1,4-シクロヘキサジメタノールの残基を含むポリエステルを含むことができる。すなわち本発明はまた、成形製品を作成する方法であって、

(A)(i)(a) 総二酸残基に基づき約70~約100モルパーセントのテレフタル酸残基と；0~約30モルパーセントの、最大20個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾芳香族ジカルボン酸残基と；0~約10モルパーセントの、最大16個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基とを含む二酸残基と；

(b) 総ジオール残基に基づき約1~約99モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と；約1~約99モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基とを含むジオール残基とを、含む少なくとも1つの熱可塑性ポリマーを含む第1成分と；

(ii) コポリアミド、又は少なくとも2つのポリアミドの均一なアミド基転移配合物を含む第2成分とを、溶融配合し

(ここで、第1成分(i)と第2成分(ii)とは不混和性配合物を生成し、第2成分と第1成分は屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約0.006~約-0.0006であり、不混和性配合物は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下である)；

(B) 成形製品を作成し；

(C) 配合された第1及び第2成分(i)と(ii)を含むスクラップポリマー組成物を回収し；

(D) スクラップポリマー組成物を粉砕してポリマーリグラインドを作成し；

(E) 場合により、スクラップポリマー組成物を乾燥させ；そして

(F) ポリマーリグラインドと、工程(A)の第1及び第2成分(i)と(ii)とを一緒にする、

ことを含んでなる、上記方法である。

すなわち我々の方法は、低曇り価と高透明性を保持した成形製品へのスクラップポリマーリグラインドの取り込みを可能にする。上記方法は、上記した第1及び第2成分、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、均一配合物、コポリアミド、ポリアミド、酸素排除組成物の種々の実施態様の任意の組合せを含むことを、さらに理解されたい。

【0152】

例えば上記したように、第1及び第2成分から作成される不混和性配合物は、元素の周期表の3~12族で4~6周期から選択される少なくとも1つの金属をさらに含むことができる。金属の例には、特に限定されないが、銅、ニッケル、コバルト、鉄、マンガン、及びこれらの組合せがある。典型的には金属は、成形製品の総重量に基づき、約5~約600重量ppmの量で存在する。好適な金属はコバルトである。

【0153】

10

20

30

40

50

我々の発明の方法の成形製品は、当該分野で知られた上記した任意の方法により製造される。例えば成形製品は、押出し、カレンダー加工、熱成形、吹込み成形、押出し吹込成形、射出成形、圧縮成形、鋳造、ドラフティング、幅出し、又は吹込みにより製造される。

【0154】

本発明の方法は任意の成形製品を製造するのに使用されるが、製造される代表的製品は、シート、フィルム、予備成形物、チューブ、及びピンである。これらの製品は、単一の層を有するか又は2～約7層を含む。これらのリグラインドは典型的には、1つ又はそれ以上の層の重量に基づき約50～100重量パーセントのリグラインドを含む1つまたはそれ以上のこれらの層に取り込まれる。成形製品中に存在できるリグラインドレベルの他の例は、1つ又はそれ以上の層の総重量に基づき、5～95重量パーセント、約10～約60重量パーセント、約15～約50重量パーセント、及び約20～約30重量パーセントである。

10

【0155】

成形製品は、1つ又はそれ以上の層が第1及び第2成分を不混和性配合物として含むか、又は第1成分と第2成分が別の層に存在する多層を含有してもよい。すなわち本発明の別の態様は、多層成形製品であって、

(i) ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物から選択される少なくとも1つの熱可塑性ポリマーを含む第1層と；

(ii) 少なくとも2つのポリアミドのアミド基転移均一配合物を含む第2層とを、含んでなり、

20

第2層(ii)と第1層(i)は屈折率の差 $[RI(第2層) - RI(第1層)]$ が約0.006～約-0.0006であり、成形製品は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下であることを特徴とする、上記成形製品である。

別の実施態様において第1層は、テレフタル酸、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、及び1,4-シクロヘキサジメタノールの残基を含むポリエステルを含むことができる。すなわち本発明の別の実施態様は多層成形製品であって、

(i) (a) 総二酸残基に基づき約70～約100モルパーセントのテレフタル酸残基と；0～約30モルパーセントの、最大20個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾芳香族ジカルボン酸残基と；0～約10モルパーセントの、最大16個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基とを含む二酸残基と；

30

(b) 総ジオール残基に基づき約1～約99モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と；約1～約99モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基とを含むジオール残基と含む少なくとも1つのポリエステルとを含む、第1層と；

(ii) 少なくとも2つのポリアミドのアミド基転移均一配合物を含む第2層とを、含んでなり、

ここで第2層(ii)と第1層(i)は屈折率の差 $[RI(第2層) - RI(第1層)]$ が約0.006～約-0.0006であり、成形製品は透過パーセントが少なくとも75%で曇り価が10%又はそれ以下であることを特徴とする、上記成形製品である。成形製品は、上記した第1及び第2成分、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、均一配合物、コポリアミド、ポリアミド、酸素排除組成物、成形製品、及びこれらの任意の組合せの種々の実施態様を含む。

40

【0156】

多層成形製品は、押出し、カレンダー加工、熱成形、吹込み成形、押出し吹込成形、射出成形、圧縮成形、鋳造、ドラフティング、幅出し、又は吹込みにより製造される。第1及び第2層の屈折率がほぼ一致するため、多層製品は、第1及び第2層の混合物を含むリグラインドをさらに含んでよく、これは第1層、第2層、又は第1及び第2層の組合せ中に取り込まれる。典型的にはリグラインドは、製品の総重量に基づき多層製品の約5～60重量パーセントである。成形製品中のリグラインドの重量パーセントの他の例は、製品

50

の総重量の約 10 ~ 約 40 重量パーセント、及び約 20 ~ 約 30 重量パーセントである。

【0157】

多層製品は、目的の用途に依存して 2 ~ 約 7 層を有してもよい。例えば上記したように成形製品は、シート、フィルム、チューブ、ピン、又は予備成形物でもよい。複合層構造も可能である。例えば成形製品は、A B A、A B A B A、A B C B A、又は A C B C A で示される層構造を有することができる（ここで、A 層は第 1 層 (i) を含み、B 層は第 2 層 (ii) を含み、C 層は、スクラップ第 1 及び第 2 層 (i) と (ii)、消費者使用後のリサイクルにより得られるポリエステルもしくはポリカーボネート、又はこれらの混合物を含むリグラインドを含む）。リグラインドの組成に依存して、B 層と C 層は、製品の透明性及びリグラインドを取り込む能力を維持するために、その屈折率の差 ($(RI(B \text{ 層}) - RI(C \text{ 層}))$) が約 0.006 ~ 約 - 0.0006 であることが有利である。

10

【0158】

別の例では A 層は第 2 層 (ii) を含み、B 層は第 1 層 (i) を含み、C 層は、スクラップ第 1 及び第 2 層 (i) と (ii)、消費者使用後のリサイクルにより得られるポリエステルもしくはポリカーボネート、又はこれらの組合せを含む。

【0159】

さらに我々の新規多層製品の第 2 層 (ii) は、元素の周期表の 3 ~ 12 族で 4 ~ 6 周期から選択される少なくとも 1 つの金属をさらに含むことができる。金属の例には、銅、ニッケル、コバルト、鉄、マンガン、及びこれらの組合せがある。典型的には金属は、成形製品の総重量に基づき、約 10 ~ 約 500 重量 ppm の量で存在する。金属濃度の他の例は、成形製品の総重量に基づき、約 5 ppm ~ 約 600 ppm、及び 10 ppm ~ 約 750 ppm である。好適な金属はコバルトである。

20

【0160】

さらに別の実施態様において本発明の多層成形製品は、層の総重量に基づき約 50 ~ 約 100 重量パーセントのリグラインドを含む少なくとも 1 つの追加の層を含むことができる。リグラインドを含有する追加の層は、元素の周期表の 3 ~ 12 族で 4 ~ 6 周期から選択される少なくとも 1 つの金属をさらに含むことができる。金属の例には、銅、ニッケル、コバルト、鉄、マンガン、及びこれらの組合せがある。典型的には金属は、成形製品の総重量に基づき、約 10 ~ 約 500 重量 ppm の量で存在する。金属濃度の他の例は、成形製品の総重量に基づき、約 5 ppm ~ 約 600 ppm、及び 10 ppm ~ 約 750 ppm である。好適な金属はコバルトである。

30

【0161】

上記したように多層成形製品は、上記したように成形製品、熱可塑性ポリマー、ポリアミド、不混和性配合物、均一配合物、及び酸素排除組成物の種々の実施態様を含む。例えば少なくとも 1 つの熱可塑性ポリマーは、総二酸残基に基づき少なくとも 80 モルパーセントの、テレフタル酸、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、及び 1,4 - シクロヘキサンジカルボン酸から選択される少なくとも 1 つのジカルボン酸の残基、及び 0 ~ 約 20 モルパーセントの、2 ~ 20 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾ジカルボン酸の残基；及び (b) ジオール残基の総モル数に基づき少なくとも 80 モルパーセントの、エチレングリコール、1,4 - シクロヘキサジメタノール；ネオペンチルグリコール、ジエチレングリコール、1,3 - プロパンジオール、1,4 - ブタンジオール、及び 2,2,4,4 - テトラメチル - 1,3 - シクロブタンジオールから選択される少なくとも 1 つのジオール残基；及び 0 ~ 約 20 モルパーセントの、3 ~ 16 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾ジオールの残基を含む、線状又は分岐ポリエステルを含み得る；1 つ又はそれ以上のバリアポリマーは、m - キシレンジアミンとアジピン酸の残基を含む第 1 ポリアミドと、ナイロン 6、ナイロン 6,6、又はこれらの配合物を含む第 2 ポリアミドの均一配合物を含む。ポリエステルのさらなる例は、総二酸残基に基づき、約 70 ~ 約 100 モルパーセントのテレフタル酸残基；0 ~ 約 30 モルパーセントの、最大 20 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾芳香族ジカルボン酸の残基；及び 0 ~ 約 10 モルパーセントの、最大 16 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾芳香族ジカルボン酸の残基；

40

50

及び総ジオール残基に基づき、以下のジオール残基組成の任意の 1 つを含むものである：
 (i) 約 5 ～ 約 60 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタン
 ジオール残基と約 40 ～ 約 95 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残
 基； (ii) 約 15 ～ 約 40 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロ
 ブタンジオール残基と約 60 ～ 約 85 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノ
 ール残基； (iii) 約 20 ～ 約 30 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3
 - シクロブタンジオール残基と約 70 ～ 約 80 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサ
 ジメタノール残基；及び (iv) 約 20 ～ 約 25 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメ
 チル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基と約 75 ～ 約 80 モルパーセントの 1, 4 - シク
 ロヘキサジメタノール残基。ポリエステルはまた、総二酸残基に基づき、約 0.1 ～ 1
 モル%の、前述のトリメリット酸、無水トリメリット酸、及びピロメリット酸二無水物、グリセ
 ロール、ソルビトール、1, 2, 6 - ヘキサントリオール、ペンタエリトリトール、酒石酸
 、クエン酸、トリメチロールエタン、及びトリメシン酸から選択される少なくとも 1 つの
 分岐物質の残基をさらに含む。

【 0 1 6 2 】

例えば熱可塑性ポリマーは分岐ポリエステルを含有する。さらなる例において熱可塑性
 ポリマーは、ポリエステルとビスフェノール A 残基を含むポリカーボネートとの均一配合
 物をさらに含む。

【 0 1 6 3 】

本発明の多層成形製品は、当業者に知られた任意の方法により製造される。例えば成形
 製品は、フィルムを作成するための任意の従来法（積層、押出し積層、同時射出、延伸吹
 込み成形、及び同時押出し吹込成形を含む）により作成することができ、同時押出しによ
 り多層フィルムを製造する典型的な方法が特に参照される。例えば第 1 及び第 2 成分ならび
 に任意の随時の層は、同様の数の押出し機の送り込みホッパーに供給される（各押出し機
 は 1 つ又はそれ以上の層の材料を扱う）。典型的には本発明の組成物について第 1 及び第
 2 成分はそれぞれ、押出し前及びその最中に約 $T_g + 100$ ～ 約 $T_g + 300$ の温度
 まで加熱される（ここで T_g は、示差走査熱分析で測定した第 1 及び第 2 成分のガラス転
 移温度である）。個々の押出し機からの熔融流が、単一マンニトール同時押出し金型に供
 給される。金型の中にある時、層は並置及び組合わされ、次に金型からポリマー材料の単
 一の多層フィルムとして現れる。金型を出た後、フィルムは、第 1 の温度制御キャスト
 イングロール上で鑄造され、第 1 ロールを通過し、次に第 2 の温度制御キャスト
 イングロール（これは通常第 1 ロールより低温である）に行く。温度制御ロールは、主にフィルムが
 金型を出た後のフィルムの冷却速度を制御する。別の方法ではフィルム製造装置は、当該
 分野で吹込フィルム装置と呼ばれるものであり、バブル吹込フィルム用の円形ダイヘッド
 を含み、ここを介してフィルム組成物が押し出され、フィルムバブルに押し出される（こ
 れは最終的につぶれ、フィルムに成形される）。フィルムやシート積層物を製造するた
 めの同時押出し法は一般に知られている。あるいは個々の層がまずシートに作成され、次
 に加熱及び加圧下で中間の接着層有り又は無しで一緒に積層される。

【 0 1 6 4 】

本発明の組成物の透明性と低曇り価はまた、多量のスクラップポリマー又は「リグライ
 ンド(regrind)」を取り込んだ多層透明成形製品の製造を可能にする。従って我々の発明
 は多層成形製品の製造方法であって、

(i) ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、及びこれらの均一配合物
 から選択される少なくとも 1 つの熱可塑性ポリマーを含む第 1 成分を、第 1 成分の約 T_g
 $+ 100$ ～ 約 $T_g + 300$ の温度に加熱し；

(ii) コポリアミド、又は少なくとも 2 つのポリアミドのアミド基転移均一配合物を含
 む第 2 成分を、第 2 成分の約 $T_g + 100$ ～ 約 $T_g + 300$ の温度に加熱し；

(iii) 第 1 成分と第 2 成分を別の層に有する成形製品を作成し；

(iv) スクラップ第 1 及び第 2 成分を回収し；

(v) スクラップ第 1 及び第 2 成分を粉砕してリグラインドを作成し；

(vi) 場合により、リグラインドを乾燥させ；そして

(vii) リグラインドと、工程 (i) と (ii) の第 1 成分、第 2 成分、又はこれらの組合せとを一緒にすることを含んでなり、

ここで、工程 (ii) の第 2 成分と工程 (i) の第 1 成分は屈折率の差 $[RI(\text{第 2 成分}) - RI(\text{第 1 成分})]$ が約 $0.006 \sim$ 約 -0.0006 であり、成形製品は透過パーセントが少なくとも 75% で曇り価が 10% 又はそれ以下であることを特徴とする、上記方法を提供する。別の例において第 1 成分は、テレフタル酸、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、及び 1,4-シクロヘキサジメタノールの残基を含むポリエステルを含んでよい。従って本発明の別の態様は多層成形製品の製造方法であって、

10

(i) 第 1 成分を、第 1 成分の約 $T_g + 100 \sim$ 約 $T_g + 300$ の温度に加熱し [ここで第 1 成分は以下を含む少なくとも 1 つのポリエステルを含む；

(a) 総二酸残基に基づき約 $70 \sim$ 約 100 モルパーセントのテレフタル酸残基と；
 $0 \sim$ 約 30 モルパーセントの、最大 20 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾芳香族ジカルボン酸残基と；
 $0 \sim$ 約 10 モルパーセントの、最大 16 個の炭素原子を有する少なくとも 1 つの修飾脂肪族ジカルボン酸残基とを含む二酸残基；及び

(b) 総ジオール残基に基づき約 $1 \sim$ 約 99 モルパーセントの 2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と；約 $1 \sim$ 約 99 モルパーセントの 1,4-シクロヘキサジメタノール残基とを含むジオール残基]；

(ii) コポリアミド、又は少なくとも 2 つのポリアミドのアミド基転移均一配合物を含む第 2 成分を、第 2 成分の約 $T_g + 100 \sim$ 約 $T_g + 300$ の温度に加熱し；

20

(iii) 第 1 成分と第 2 成分を別の層に有する成形製品を作成し；

(iv) スクラップ第 1 及び第 2 成分を回収し；

(v) スクラップ第 1 及び第 2 成分を粉碎してリグラインドを作成し；

(vi) 場合により、リグラインドを乾燥させ；そして

(vii) リグラインドと、工程 (i) と (ii) の第 1 成分、第 2 成分、又はこれらの組合せとを一緒にすることを含んでなり、

ここで、工程 (ii) の第 2 成分と工程 (i) の第 1 成分は屈折率の差 $[RI(\text{第 2 成分}) - RI(\text{第 1 成分})]$ が約 $0.006 \sim$ 約 -0.0006 であり、成形製品は透過パーセントが少なくとも 75% で曇り価が 10% 又はそれ以下であることを特徴とする、上記方法を提供する。上記方法は、上記した第 1 及び第 2 成分、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、均一配合物、コポリアミド、ポリアミド、酸素排除組成物、成形製品、製品製造方法、及びこれらの任意の組合せの種々の実施態様を含む。

30

【0165】

我々の方法は、低曇り価と高透明性を維持しながら、多量のリグラインドを成形製品中に取り込むことを可能にする。リグラインドは典型的には、製品製造方法中にスクラップとして産生される工程 (i) と (ii) の第 1 及び第 2 成分の混合物を含むが、第 2 成分とのその屈折率の差が約 $0.006 \sim$ 約 -0.0006 なら、任意のポリマー物質を使用することができる。本方法のリグラインド物質は、工程 (i) の第 1 成分、工程 (ii) の第 2 成分、及び第 1 及び第 2 成分の組合せと一緒にすることができる。リグラインドは、第 1 及び第 2 層に取り込むことができ、成形製品の総重量に基づき成形製品の約 5 重量パーセント \sim 約 60 重量パーセントでもよい。本発明の方法の成形製品のためのリグラインド含量の他の代表例は、成形製品の約 10 重量パーセント \sim 約 40 重量パーセント、及び約 20 重量パーセント \sim 約 30 重量パーセントである。

40

【0166】

我々の方法の多層製品は、目的の用途に依存して $2 \sim$ 約 7 層を有してもよい。例えば上記したように多層成形製品は、シート、フィルム、チューブ、ビン、又は予備成形物でもよい。複合層構造も可能である。例えば成形製品は、A B A、A B A B A、A B C B A、又は A C B C A で示される層構造を有することができる (ここで、A 層は工程 (i) の第 1 成分を含み、B 層は工程 (ii) の第 2 成分を含み、C 層は、工程 (i) と (ii) のスク

50

ラップ第1及び第2成分、消費者使用後のリサイクルにより得られるポリエステルもしくはポリカーボネート、又はこれらの混合物である)。リグラインドの組成に依存して、B層とC層は、製品の透明性及びリグラインドを取り込む能力を維持するために、その屈折率の差($RI(B層) - RI(C層)$)が約0.006~約-0.0006であることが有利である。

【0167】

別の例ではA層は工程(ii)の第2成分を含み、B層は工程(i)の第1成分を含み、C層は、工程(i)と(ii)のスクラップ第1及び第2成分、消費者使用後のリサイクルにより得られるポリエステルもしくはポリカーボネート、又はこれらの組合せである。

【0168】

さらに我々の新規多層製品の工程(ii)の第2成分は、元素の周期表の3~12族で4~6周期から選択される少なくとも1つの金属をさらに含むことができる。金属の例には、銅、ニッケル、コバルト、鉄、マンガン、及びこれらの組合せがある。典型的には金属は、成形製品の総重量に基づき、約10~約500重量ppmの金属量で存在する。金属濃度の他の例は、成形製品の総重量に基づき、約5ppm~約600ppm、及び10ppm~約750ppmである。好適な金属はコバルトである。金属が存在する時は、二酸-ジアミン比を調整して末端アミン基の濃度を20ミリモル/kg又はそれ以下にすることが便利である。

【0169】

さらに別の実施態様において本発明の方法の工程(iii)は、層の総重量に基づき約50~約100重量パーセントのリグラインドを含む少なくとも1つの追加の層を作成することをさらに含むことができる。リグラインドを含有する追加の層は、元素の周期表の3~12族で4~6周期から選択される少なくとも1つの金属をさらに含むことができる。金属の例には、銅、ニッケル、コバルト、鉄、マンガン、及びこれらの組合せがある。典型的には金属は、成形製品の総重量に基づき、約10~約500重量ppmの金属量で存在する。金属濃度の他の例は、成形製品の総重量に基づき、約5ppm~約600ppm、及び10ppm~約750ppmである。好適な金属はコバルトである。

【0170】

上記したように多層成形製品は、上記したように成形製品、熱可塑性ポリマー、ポリアミド、不混和性配合物、均一配合物、及び酸素排除組成物の種々の実施態様を含む。例えば少なくとも1つの熱可塑性ポリマーは、総二酸残基に基づき少なくとも80モルパーセントの、テレフタル酸、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、及び1,4-シクロヘキサレンジカルボン酸から選択される少なくとも1つのジカルボン酸の残基、及び0~約20モルパーセントの、2~20個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾ジカルボン酸の残基；及び(b)ジオール残基の総モル数に基づき少なくとも80モルパーセントの、エチレングリコール、1,4-シクロヘキサジメタノール；ネオペンチルグリコール、ジエチレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、及び2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオールから選択される少なくとも1つのジオール残基；及び0~約20モルパーセントの、3~16個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾ジオールの残基を含む、ポリエステルを含み得る；1つ又はそれ以上のバリアポリマーはm-キシレンジアミンとアジピン酸の残基を含む第1ポリアミドと、ナイロン6、ナイロン6,6、又はこれらの配合物を含む第2ポリアミドとの均一配合物を含む。ポリエステルのさらなる例は、総二酸残基に基づき、約70~約100モルパーセントのテレフタル酸残基；0~約30モルパーセントの、最大20個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾芳香族ジカルボン酸の残基；及び0~約10モルパーセントの、最大16個の炭素原子を有する少なくとも1つの修飾芳香族ジカルボン酸の残基；及び総ジオール残基に基づき、以下のジオール残基組成の任意の1つを含むものである：(i)約5~約60モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基と約40~約95モルパーセントの1,4-シクロヘキサジメタノール残基；(ii)約15~約40モルパーセントの2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオー

10

20

30

40

50

ル残基と約 60 ~ 約 85 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基 ; (i ii) 約 20 ~ 約 30 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基と約 70 ~ 約 80 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基 ; 及び (iv) 約 20 ~ 約 25 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基と約 75 ~ 約 80 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基。ポリエステルはまた、総二酸残基に基づき、約 0.1 ~ 約 1 モル % の、前述のトリメリット酸、無水トリメリット酸、及びピロメリット酸二無水物、グリセロール、ソルビトール、1, 2, 6 - ヘキサントリオール、ペンタエリトリトール、酒石酸、クエン酸、トリメチロールエタン、及びトリメシ酸から選択される少なくとも 1 つの分岐物質の残基をさらに含む。

10

【 0 1 7 1 】

例えば熱可塑性ポリマーは分岐ポリエステルを含有する。さらなる例において熱可塑性ポリマーは、ポリエステルとビスフェノール A 残基を含むポリカーボネートとの均一配合物をさらに含む。

【 0 1 7 2 】

我々の発明の別の実施態様は多層成形製品の製造方法であって、

(A) (i) (a) 総二酸残基に基づき、少なくとも約 95 モルパーセントのテレフタル酸の残基を含む二酸残基と ; (b) ジオール残基の総モル数に基づき、少なくとも 95 モルパーセントの、エチレングリコールと 1, 4 - シクロヘキサジメタノールから選択される少なくとも 1 つのジオール残基を含むジオール残基とを、含む少なくとも 1 つのポリエステルと ; (ii) ビスフェノール A 残基を含む少なくとも 1 つのポリカーボネート ; 又は (iii) これらの均一配合物とを、含む第 1 成分を、第 1 成分の約 $T_g + 100$ ~ 約 $T_g + 300$ の温度に加熱し ;

20

(B) ジアミンと二酸残基を含むポリアミド (ポリアミドは、総ジアミン残基に基づき、100 モルパーセントの m - キシレンジアミン残基と、総二酸残基に基づき、約 100 モルパーセントのアジピン酸残基を含有し、少なくとも 1 つのポリアミドはナイロン 6 及びナイロン 6, 6 から選択される) のアミド基転移均一配合物を含む第 2 成分を約 290 の温度に加熱し ;

(C) 第 1 及び第 2 ポリマー組成物を別の層に有する成形製品を作成し ;

(D) スクラップ第 1 及び第 2 成分を回収し ;

30

(E) スクラップ第 1 及び第 2 成分を粉砕してリグラインドを作成し ;

(F) 場合により、リグラインドを乾燥させ ; そして

(G) リグラインドと、工程 (A) と (B) の第 1 成分、第 2 成分、又はこれらの組合せとを一緒にすることを含んでなり、

ここで、工程 (B) の第 2 成分と工程 (B) の第 1 成分は屈折率の差 $[RI(第2成分) - RI(第1成分)]$ が約 0.006 ~ 約 - 0.0006 であり、成形製品は透過パーセントが少なくとも 75 % で曇り価が 10 % 又はそれ以下であることを特徴とする、上記方法である。別の例では第 1 成分は、テレフタル酸、2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール、及び 1, 4 - シクロヘキサジメタノールの残基を含むポリエステルを含み得る。従って本発明の別の実施態様は多層成形製品の製造方法であって、

40

(A) 第 1 成分を、第 1 成分の約 $T_g + 100$ ~ 約 $T_g + 300$ の温度に加熱し [第 1 成分は、(a) 総二酸残基に基づき、約 95 ~ 100 モルパーセントのテレフタル酸の残基を含む二酸残基 ; 及び (b) 総ジオール残基に基づき、約 15 ~ 40 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基 ; 及び約 60 ~ 約 85 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基、を含む少なくとも 1 つのポリエステルを含み、

ここでポリエステルは固有粘度が約 0.55 ~ 約 0.75 dL/g である] ;

(B) 第 2 成分を約 290 ~ 約 310 の温度に加熱し [第 2 成分は、(a) 総ジアミン残基に基づき、100 モルパーセントの m - キシレンジアミン残基と、総二酸残基に基づき、約 100 モルパーセントのアジピン酸残基とを含有するポリアミド ; 及び (b)

50

ナイロン 6 及びナイロン 6, 6 から選択される少なくとも 1 つのポリアミド、のアミド基転移均一配合物を含む] ;

(C) 第 1 及び第 2 ポリマー組成物を別の層に有する成形製品を作成し ;

(D) スクラップ第 1 及び第 2 成分を回収し ;

(E) スクラップ第 1 及び第 2 成分を粉砕してリグラインドを作成し ;

(F) 場合により、リグラインドを乾燥させ ; そして

(G) リグラインドと、工程 (A) と (B) の第 1 成分、第 2 成分、又はこれらの組合せと一緒にすることを含んでなり、

ここで、工程 (B) の第 2 成分と工程 (B) の第 1 成分は屈折率の差 [R I (第 2 成分) - R I (第 1 成分)] が約 0.006 ~ 約 - 0.0006 であり、成形製品は透過パーセントが少なくとも 75 % で曇り価が 10 % 又はそれ以下であることを特徴とする、上記方法である。

上記方法は、上記した第 1 及び第 2 成分、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレート、均一配合物、コポリアミド、ポリアミド、酸素排除組成物、成形製品、製品製造方法、及びこれらの任意の組合せの種々の実施態様を含む。

【 0 1 7 3 】

上記したようにリグラインドは第 1 及び第 2 成分 (i) と (ii) の混合物を含み、第 1 成分 (i)、第 2 成分 (ii)、又はこれらの組合せと一緒にすることができる。リグラインドは、成形製品の総重量に基づき、成形製品の約 5 重量パーセント ~ 約 60 重量パーセントである。本発明の方法の成形製品のリグラインド含量の他の代表例は、成形製品の約 10 重量パーセント ~ 約 40 重量パーセント、及び成形製品の約 20 重量パーセント ~ 約 30 重量パーセントである。本方法のポリエステルは、少なくとも約 95 モルパーセントのテレフタル酸残基を含む二酸残基を含み、ある範囲のジオール組成物を有することができる。例えばポリエステルは、約 1 ~ 約 5 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基と約 99 ~ 約 95 モルパーセントのエチレングリコール残基を含むジオール残基を含み得る。我々の方法のポリエステルのジオール組成物の他の例は、特に限定されないが、以下である : (i) 約 29 ~ 約 33 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基と約 71 ~ 約 67 モルパーセントのエチレングリコールの残基 ; (b) 約 45 ~ 約 55 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基と約 55 ~ 約 45 モルパーセントのエチレングリコール残基を含むジオール残基 ; (iii) 約 60 ~ 約 65 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基と約 40 ~ 約 35 モルパーセントのエチレングリコール残基を含む残基 ; (iv) 約 79 ~ 約 83 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基と約 21 ~ 約 17 モルパーセントのエチレングリコール残基を含むジオール残基 ; (v) 約 100 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基を含むジオール残基。ポリエステルの追加の例は、総二酸残基に基づき、約 95 ~ 約 100 モルパーセントのテレフタル酸残基、及び総ジオール残基に基づき、以下のジオール残基組成の任意の 1 つを有するものである : (i) 約 5 ~ 約 60 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基と約 40 ~ 約 95 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基 ; (ii) 約 15 ~ 約 40 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基と約 60 ~ 約 85 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基 ; (iii) 約 20 ~ 約 30 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基と約 70 ~ 約 80 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基 ; 及び (iv) 約 20 ~ 約 25 モルパーセントの 2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール残基と約 75 ~ 約 80 モルパーセントの 1, 4 - シクロヘキサジメタノール残基。ポリエステルはさらに、総二酸残基に基づき、約 0.01 ~ 1 モル % の、トリメリット酸、無水トリメリット酸、及びピロメリット酸二無水物、グリセロール、ソルビトール、1, 2, 6 - ヘキサントリオール、ペンタエリトリトール、酒石酸、クエン酸、トリメチロールエタン、及びトリメシン酸から選択される少なくとも 1 つの分岐物質の残基をさらに含む。

【 0 1 7 4 】

さらなる例では熱可塑性ポリマーは、ポリエステルとビスフェノール A 残基を含むポリカーボネートの均一配合物をさらに含む。ポリエステルとポリカーボネートのそれぞれは線状又は分岐していてもよい。

【0175】

さらに我々の新規方法の工程 (ii) の第 2 成分は、元素の周期表の 3 ~ 12 族で 4 ~ 6 周期から選択される少なくとも 1 つの金属をさらに含むことができる。使用できる金属の例には、銅、ニッケル、コバルト、鉄、マンガン、及びこれらの組合せがある。典型的には金属は、成形製品の総重量に基づき、約 10 ~ 約 500 重量 ppm の金属量で存在する。金属濃度の他の例は、成形製品の総重量に基づき、約 5 ppm ~ 約 600 ppm、及び 10 ppm ~ 約 750 ppm である。好適な金属はコバルトである。金属が存在する時は、二酸 - ジアミン比を調整して末端アミン基の濃度を 20 ミリモル / kg 又はそれ以下にすることが有利である。

10

【0176】

さらに別の実施態様において本発明の方法の工程 (C) は、層の総重量に基づき約 50 ~ 約 100 重量パーセントのリグラインドを含む少なくとも 1 つの追加の層をさらに含むことができる。リグラインドを含有する追加の層は、元素の周期表の 3 ~ 12 族で 4 ~ 6 周期から選択される少なくとも 1 つの金属をさらに含むことができる。金属の例には、銅、ニッケル、コバルト、鉄、マンガン、及びこれらの組合せがある。典型的には金属は、成形製品の総重量に基づき、約 10 ~ 約 500 重量 ppm の量で存在する。金属濃度の他の例は、成形製品の総重量に基づき、約 5 ppm ~ 約 600 ppm、及び 10 ppm ~ 約 750 ppm である。好適な金属はコバルトである。

20

【0177】

本発明の成形製品は、引き延ばすことによりさらに向きがそろえられ、これは製品のバリア性を改善させる。上記したように、本発明のポリマー組成物に他の従来の添加物又は修飾ポリマーを取り込むことが好ましい。例えば、抗酸化剤、熱及び光安定剤、色素、帯電防止剤、滑沢剤、保存剤、加工補助剤、スリップ剤、抗ブロッキング剤、顔料、難燃性物質、発泡剤などを加えてもよい。2 つ以上の添加剤を使用してもよい。添加剤は任意の所望の量で存在してもよいが、典型的には成形製品の総重量の、約 20 重量パーセント以上では存在せず、好ましくは 10 重量パーセント以下である。

30

【0178】

ポリマー組成物、酸素排除組成物、及びこれらから製造される成形製品はまた、そのバリア性を改良するために少なくとも 1 つの積層ケイ酸塩物質から得られる、最大約 30 重量パーセント、好ましくは約 20 重量パーセント未満の小板を含有してもよい。小板粒子は、少なくとも 1 つのアンモニウム化合物を用いて改質することができる。小板粒子の量は、ASTM D5630 - 94 に従って処理した時ポリマー - 小板粒子の残存する灰を測定することにより決定される。ガスバリア改良は典型的には、複合体中の小板粒子の濃度の上昇とともに上昇する。約 0.01 パーセントという少ない量の小板粒子でもバリア性が改良される (特に分散され整列された時) が、少なくとも約 0.5 重量パーセントの小板粒子を有する組成物が、ガス透過性の好適な改善を示すため好ましい。

40

【0179】

一般に積層されたケイ酸塩物質は、トランプカードのように密に重なった小板粒子の密な凝集物である。本発明の小板粒子は典型的には、厚さが約 2 nm 未満で直径が約 10 ~ 約 5000 nm の範囲である。本発明の目的において測定値は小板粒子についてのみであって、使用されるかも知れないアンモニウム化合物又は任意の追加の補助物質や処理化合物についてではない。適切な小板粒子は、約 0.2 ~ 約 3 meq / g、好ましくは約 0.8 ~ 約 1.5 meq / g の陽イオン交換能力を有する典型的には易流動性の粉末である積層ケイ酸塩物質から得られる。適切な積層ケイ酸塩物質の例には、マイカ型の積層フィロケイ酸塩があり、粘土、スメクタイト粘土、モンモリロナイトナトリウム、ヘクトライトナトリウム、ベントナイト、ノントロナイト、バイデル石、ボロンスロイト (volonsloite)、サボナイト、ソーコナイト、マガダイト (magadite)、ケニヤイ

50

ト (k e n y a i t e)、合成ヘクトライトナトリウムなどがある。この性質の粘土は、いろいろな会社 (サザンクレイプロダクツアンドナノコア社 (S o u t h e r n C l a y P r o d u c t s a n d N a n o c o r , I n c .) を含む) から入手できる。最も好ましい小板粒子は、ベントナイトナトリウム又はモンモリロナイトナトリウムから得られる。かかる粘土は、米国 (ワイオミング型モンモリロナイトとして知られている) や他の地域 (クニミネインダストリーズ社 (K u n i m i n e I n d u s t r i e s , I n c .) から入手できるクニピア (K u n i p i a) 粘土を含む) から容易に入手できる。

【 0 1 8 0 】

積層ケイ酸塩物質は典型的には、ポリマー組成物への分散を改良するために使用される。当該分野において多くの有用な粘土処理が知られており、これらの処理も、本発明の範囲を逸脱することなく、本発明の複合体中への積層ケイ酸塩物質の取り込みの前、後、又はその最中に使用してもよい。有用な処理の例には、特に限定されないが、シラン化合物、膨張剤、ポリマー及びオリゴマー、分散補助物質、有機陽イオン塩、及びこれらの組合せがある。

10

【 0 1 8 1 】

シラン化合物による有用な処理の例には、国際特許公報 W O 9 3 / 1 1 1 9 0 に開示されたものがある。有用なシラン化合物の例には、(3 - グリシドキシプロピル) トリメトキシシラン、2 - メトキシ (ポリエチレンオキシ) プロピルヘプタメチルトリシロキサン、オクタデシルジメチル (3 - トリメトキシシリルプロピル) アンモニウムクロリドなど

20

【 0 1 8 2 】

膨張剤による有用な処理の例は、当該分野で公知のオリゴマー性ポリマーを含む。粘土を処理するための代表的ポリマー及びオリゴマーには、米国特許第 5, 5 5 2, 4 6 9 号及び同第 5, 5 7 8, 6 7 2 号に開示されたものがある。多くの分散補助物質が公知であり、広範囲の物質 (水、アルコール、ケトン、アルデヒド、塩素化溶媒、炭化水素溶媒、芳香族溶媒など、又はこれらの組合せを含む) を包含する。

【 実施例 】

【 0 1 8 3 】

実施例

30

全般：本発明は以下の実施例によりさらに例示される。ポリエステル、ポリアミド、及び配合物のガラス転移温度 (T g) は、A S T M メソッド D 3 4 1 8 によりティーエーインストルメンツ (T A I n s t r u m e n t s) 2 9 2 0 示差走査熱分析計 (D S C) を使用してスキャン速度 2 0 / 分で測定した。加熱撓み温度は A S T M メソッド D 6 4 8 により測定し、ノッチ付アイゾッド衝撃強さ (N o t c h e d I z o d I m p a c t S t r e n g t h) は A S T M メソッド D 2 5 6 に従って測定した。曲げ特性は A S T M メソッド D 7 9 0 に従って測定した。配合物の引張特性は A S T M メソッド D 6 3 8 に従って 2 3 で測定した。ポリエステルの固有粘度は 6 0 / 4 0 (w t / w t) のフェノール / テトラクロロエタン中で 0. 5 g / 1 0 0 m l の濃度で 2 5 で測定した。これらの配合物のポリエステル部分のジオール含量は、陽子核磁気共鳴スペクトル法 (¹ H N M R) により測定した。配合物の混和性は、加圧フィルムと成形物の示差走査熱分析により測定した。

40

【 0 1 8 4 】

曇り価 (H a z e v a l u e s) は A S T M メソッド D 1 0 0 3 (曇り価 % = 1 0 0 * 拡散透過 / 総透過) によりハンターアソシエーツラボラトリー社 (H u n t e r A s s o c i a t e s L a b o r a t o r y , I n c .) (レストン、バージニア州) により製造されたハンターラボウルトラスキャンスフィア (H u n t e r L a b U l t r a S c a n S p h e r e) 8 0 0 0 を使用して、H u n t e r ユニバーサルソフトウェア (バージョン 3. 8) を使用して測定した。装置の較正と操作はハンターラボ (H u n t e r L a b) ユーザーマニュアルを使用して行った。拡散透過 (透過 %) は、積分球の試料ポートから

50

反対側に遮光装置を置いて（こうして直線的な光路を排除して）得た。2.5度より大きく拡散した光のみが測定された。総透過は、試料をまっすぐ通過する光と試料によりセンサーに拡散された光軸外の光とを含む。完全に球の内部からの光軸外の光を散乱に利用できるように、試料を球の出口ポートに置く。透明性は視覚的に測定し、曇り価を測定して決定する。本発明の配合物と種々の組成物について、組成物を厚さが1/8インチ又はそれ以下のシート、フィルム、又はブランクに成形し、曇り価と透過パーセントを上記方法に従って測定することにより、曇り価と透過パーセントを決定した。成形製品（多層成形製品を含む）については、曇り価と透過パーセントは、製品を厚さが1/8インチ又はそれ以下の小さい（すなわち1×1cm）切片に切断し、上記方法に従って測定することにより決定した。

10

【0185】

屈折率(Refractive index)は、メトリコンプリズムカプラー(Metricon Prism Coupler)（登録商標）モデル2010屈折率測定器（メトリコン社(Metricon Inc.)から入手できる）を使用して633nmの波長で測定し、3直交方向（押出し又は延伸、横断、及び厚さ方向）で測定した屈折率の平均として報告される。延伸フィルムは、加圧、吹込み、又は押出しフィルムの試料を一軸延伸又は二軸延伸するTMロングフィルム伸張機（製造者のために命名された）で製造した。フィルム伸張機の操作は、液圧駆動ロッドで互いに直角の2つのけん引棒の動きに基づく。各作動けん引棒の反対側に固定けん引棒があった。これらの対の反対の作動けん引棒と固定けん引棒（ここにフィルム試料の4つの角が固定される）は、互いに直角に2つの軸を形成し、これに沿って試料は、使用される機械により元のサイズの4～7倍の大きさまで延伸される。試料を機械のグリップ中に置き、所望であれば延伸前に加熱する。装置からの出力は、実験フィルムと延伸フィルムの温度でのストレス対伸長データ（所望であれば）である。

20

【0186】

フィルムの酸素透過性は、モコン社(MOCON, Inc.)（ミネアポリス、ミネソタ州）により製造されたオクストラン(Ox-Trans)酸素透過装置を使用して測定した。酸素透過性は、試験フィルムの既知の面積、フィルムの厚さ、フィルムを介する酸素の分圧の差、及び測定された定常状態透過速度から計算した。活性の酸素排除を示す試料の場合は、酸素排除反応の効率が経時的に変化すると透過速度はゆっくり変化するため、測定されたフラックスは真の定常状態のものではない。しかしこれらの例において酸素透過は、透過測定中はしばしば擬定常状態と見なすことができる。以下の実施例に含まれる活性酸素排除試料では、測定の間、ほとんど～全く排除効率の変化が無く、透過は測定された擬定常状態透過速度から計算した。

30

【0187】

比較例1～12：表1に列記したコポリエステルは、ポリエステルGを除いて、テレフタル酸、エチレングリコール、及び1,4-シクロヘキサジメタノール(CHDM)から製造した。ポリエステル中のCHDMの量を表1に示す。実施例Fは10%のCHDM(0%エチレングリコール)を示すが、酸部分の26%はテレフタル酸ではなくイソフタル酸である。ポリエステルGは以下のように製造した：21.24ポンド(49.71グラム-モル)のテレフタル酸ジメチル、12.61ポンド(39.77グラム-モル)の1,4-シクロヘキサジメタノール、及び6.30ポンド(19.88グラム-モル)の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオールを、200ppmの触媒ブチルスズトリス(2-エチルヘキサノエート)の存在下で反応させた。2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオールのシス/トランス比は約50/50であった。1,4-シクロヘキサジメタノールのシス/トランス比は約30/70であった。反応は、凝縮カラム、真空装置、及びヘリコン(HELICON)型攪拌器を取り付けた18ガロンのステンレス鋼圧力容器中の窒素ガスパージで行った。攪拌器を25rpmで作動させ、反応混合物の温度を250に上げ、圧力を20psigに上げた。反応混合物を250、20psig圧に2時間維持した。次に圧力を3psig/分の速度で0psig

40

50

gまで低下させた。次に反応混合物の温度を270℃まで上げ、圧力を90mmHgまで低下させた。270℃、90mmHgに1時間維持した後、攪拌速度を15rpmに低下させ、反応混合物温度を290℃まで上げ、圧力を<1mmHgまで低下させた。反応混合物を290℃、<1mmHgの圧力で12分維持した。次に圧力容器の圧力を窒素ガスを使用して1気圧まで上げた。溶融ポリマーを圧力容器から押し出した。冷却した押し出しポリマーを粉砕して6mmスクリーンを通過させた。ポリマーは固有粘度が0.590dL/gでTgが106℃であった。NMR分析は、ポリマーが77.1モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール残基と22.9モル%の2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール残基からなることを示した。このポリマーは色値がL* = 83.27、a* = -1.34、そしてb* = 5.08であった。

10

【0188】

【表1】

表1

ポリエステル	ポリエステル中 CHDM (モル%)	Tg	ポリエステルの 屈折率
A	1.5	81	1.5708
B	31	83	1.5644
C	50	84	1.5593
D	62	86	1.5573
E	80	91	1.5547
F	100	88	1.5519
G	77	106	1.5470

20

【0189】

コポリエステルとMXD66121ポリアミド(100モル%のm-キシレンと100モル%のアジピン酸を含有する、ミツビシコーポレーション(Mitsubishi Corporation)から入手できる)を70℃で一晩乾燥させた。これらのコポリエステルのそれぞれを1、3、及び5重量%のMXD6とバッグ配合し、スターリング(Sterling)1.5インチ単一スクリュウ押し出し機に90rpmで以下の温度設定()で供給して配合物を作成した：

30

【0190】

【表2】

ゾーン1	ゾーン2	ゾーン3	ゾーン4	ゾーン5
240	250	260	260	260

40

【0191】

配合物を70℃で一晩乾燥させ、次にトーヨー(Toyo)90射出成形機で270℃の1/8インチ厚の4"平方プラーク中に射出成形した。MXD6の屈折率は1.5824と測定された。得られた曇り値と、ナイロンの屈折率からポリエステルの屈折率を引いた結果を表2に示す：

【0192】

【表 3】

表 2

例	ポリエステル のタイプ	ポリエステル (wt%)	MXD6 (wt%)	%ヘーズ	合計透過 (%)	RI (ナイロン) - RI (ポリエステル)
C-1	A	99	1	5.2	82.8	0.0116
C-2	A	97	3	14.3	81.6	0.0116
C-3	A	95	5	29.8	82.0	0.0116
C-4	B	99	1	5.1	79.5	0.0180
C-5	B	97	3	22.4	70.7	0.0180
C-6	B	95	5	42.9	62.4	0.0180
C-7	C	99	1	8.5	80.7	0.0231
C-8	C	97	3	31.0	70.4	0.0231
C-9	C	95	5	50.7	62.6	0.0231
C-10	D	99	1	11.5	77.6	0.0251
C-11	D	97	3	59.0	63.3	0.0231
C-12	D	95	5	81.6	53.5	0.0231

10

20

【0193】

実施例 13 ~ 24、27 ~ 29、31 ~ 32、34 ~ 36、及び比較例 25 ~ 26、30、33、36 ~ 37、及び 39：ナイロン 6（デュボン（DuPont）からザイテル（Zytel）（登録商標）7335Fとして入手できる）とMXD6（グレード 6121）を 120 で 48 時間乾燥させ、種々の比率でバッグ配合した。次にポリアミドバッグ配合物を、スターリング（Sterling）1.5 インチ単一スクリュウ押出し機に 90 rpm で以下の温度条件（ ）で供給して、均一なアミド基転移配合物を作成した（各配合物について単一の組成物依存性 Tg 値の存在により示される）。Tg 値を表 3 に示す。

【0194】

30

【表 4】

ゾーン 1	ゾーン 2	ゾーン 3	ゾーン 4	ゾーン 5
250	270	300	300	300

【0195】

アミド基転移ナイロン配合物又はMXD6の一部を 120 で一晩乾燥させ、次にトーヨー（Toyo）90 射出成形機で 1 / 8 インチ厚試料中に 240 で射出成形したか、又は 1.5 ミル厚のフィルムに 240 で押出した。フィルムは以下の押出し法により製造した：使用した押出し機は通常の 2.54 cm 直径のキリアン（Killian）押出し機（24 : 1 の L : D（長さ : 直径））であり、3 : 1 の圧縮比を有するフィードスクリュウとねじれマドック（maddock）混合部品が取り付けられていた。熔融を通常の 1.524 cm コートハンガーダイに運搬するのに、通常のフィードブロックを使用した。熔融を冷却するために 2 ロールキャストフィルムダウスタック（downstack）配置を使用した。これらのフィルムを TMRong で 95 で各方向に 4 x 延伸した。延伸前のこれらのフィルムの性質を表 3 に示し、延伸後の性質を表 3 A に示す。表 3 A 中の酸素透過性は、30 ~ 50 % 相対湿度で 100 % の O₂ を試験ガスとして測定したことに注意されたい。

40

【0196】

50

【表 5】

表 3－延伸前のフィルム特性

例	MXD6 (wt%)	ナイロン 6 (wt%)	Tg (°C)	酸素透過性 (cc* mil/ 100in ² * day* atm)	厚さ (mil)	屈折率
13	100	0	88	0.533	15.003	1.5824
14	95	5	87	0.440	15.000	1.5772
15	90	10	83	0.100	14.465	1.5739
16	87	13	83	0.063	14.498	1.5724
17	85	15	81	0.413	14.065	1.5717
18	75	25	77	1.266	15.260	1.5655
19	73	27	76	1.060	14.065	1.5641
20	70	30	75	1.317	14.535	1.5617
21	65	35	72	1.334	14.755	1.5599
22	62	38	72	0.740	16.385	1.5575
23	60	40	70	0.709	14.630	1.5536
24	0	100	44			1.5318

【0197】

【表 6】

表 3 A－延伸後のフィルム特性

例	MXD6 (wt%)	ナイロン 6 (wt%)	酸素透過性 (cc* mil/100in ² * day* atm)	厚さ (mil)
13	100	0	0.230	0.900
14	95	5	0.238	0.930
15	90	10	0.263	0.850
16	87	13	0.340	0.860
17	85	15	0.325	0.820
18	75	25	0.499	0.900
19	73	27	1.402	0.885
20	70	30	0.622	0.880
21	65	35	0.215	0.970
22	62	38	0.847	1.095
23	60	40	0.982	0.995
24	0	100		

【0198】

表 4 に示す実施例と比較例を作成するために、アミド基転移配合物と M X D 6 の一部を 70 ～ 120 で一晚乾燥し、次に表 1 のポリエステルと混合した。ポリエステルは 70 ～ 120 で一晚乾燥した。表 1 のこれらのポリエステルのそれぞれを表 3 の 10 重量%の選択されたアミド基転移配合物又は M X D 6 とバッグ配合し、スターリング (S t e r l i n g) 1.5 インチ単スクリュー押出し機に 90 r p m で以下の温度設定 () で供給して不混和性配合物を作成した :

10

20

30

40

50

【 0 1 9 9 】

【 表 7 】

ゾーン1	ゾーン2	ゾーン3	ゾーン4	ゾーン5
240	260	280	280	280

配合物を70 で一晩乾燥し、次にトーヨー（T o y o）90射出成形機で270 で1 / 8インチ厚の4 " 平方ブランク中に射出成形した。得られた曇り価と、ナイロンの屈折率からポリエステル屈折率を引いた結果を表4に示す：

【 0 2 0 0 】

実施例38と比較例C - 39を作成するために、表3の実施例20のアミド基転移配合物を70 で一晩乾燥し、次に表1のポリエステルA又はCのいずれかとバッグ配合した。またポリエステルを70 ~ 120 で一晩乾燥した。バッグ配合物をトーヨー（T o y o）90射出成形機で270 で1 / 8インチ厚の4 " 平方ブランク中に射出成形した。得られた曇り価と、MXD6又はナイロン配合物の屈折率からポリエステルの屈折率を引いた結果を表4に示す。

【 0 2 0 1 】

【 表 8 】

表4ー均質MXD6／ナイロン6ブレンドとのポリエステル・ブレンド

例	ポリエステル のタイプ	表-3の ブレンド例	ポリエステル中 CHDM (モル%)	ブレンド MXD6 (wt%)	ブレンド ナイロン6 (wt%)	ヘーズ %	合計 %透過	RI (ナイロン)- RI (ポリエステル)
C-25	A	13	1.5	100	0	28.1	71.1	0.0116
C-26	A	14	1.5	95	5	13.5	76.0	0.0064
27	A	15	1.5	90	10	6.3	77.8	0.0031
28	A	16	1.5	87	13	6.9	78.1	0.0016
29	A	17	1.5	85	15	7.7	77.9	0.0009
C-30	B	17	31	85	15	21.3	81.8	0.0073
31	B	18	31	75	25	5.0	86.5	0.0011
32	B	19	31	73	27	8.5	85.4	-0.0003
C-33	B	20	31	70	30	16.2	84.1	-0.0027
34	C	20	50	70	30	4.1	86.8	0.0024
35	C	21	50	65	35	8.3	84.5	0.0006
C-36	C	22	50	62	38	13.6	82.8	-0.0018
C-37	C	23	50	60	40	19.3	80.2	-0.0057
38	C	20	50	70	30	3.7	86.3	0.0024
C-39	A	20	3.5	70	30	33.0	69.9	-0.0091

【 0 2 0 2 】

実施例40：この予言的例では、上記実施例13～24のように2つのポリアミドを配合する代わりに、適切な屈折率を有するポリアミドへの合成経路を使用した。当該分野で公知の任意の方法を使用して、これらの合成ポリアミドを直接製造することができる。ポリアミドは一般に、インサイチュ又は別の工程で製造された二酸 - ジアミン複合体から溶融相重合により製造される。いずれの方法でも、二酸とジアミンは出発物質として使用される。あるいは二酸のエステル型、好ましくはジメチルエステルが使用される。エステル

が使用される場合、反応は、エステルがアミドに変換されるまで、比較的低温（一般に 80 ~ 120 ）で実施しなければならない。次に混合物は重合温度まで加熱される。この予言的例では合成されるポリアミドはポリ（m - キシレンジピメラミド）であり、これはジアミン m - キシレンジアミンと二酸ピメリン酸から合成される。このポリアミドは次に、実施例 25 ~ 39 に開示された方法に従って表 1 の 90 重量 % のコポリエステル A と配合される。これらのコポリエステル A とポリ（m - キシレンジピメラミド）との屈折率の差は 0.0034 であると予測され、透明であると予測される。得られる配合物は、曇り価が 10 % 未満で透過率が 75 % より大きいと予測される。

【0203】

実施例 42、47 ~ 49、及び 56 と比較例 41、43 ~ 46、及び 50 ~ 55。配合物と酸素排除組成物の単層フィルム：いくつかの MXD6 / N6 アミド基転移配合物を、実施例 13 ~ 24 と表 5 に上記した方法で製造した。表 5 に示した屈折率値は、実施例 13 ~ 24 について上記した方法でこれらのアミド基転移配合物の 15 ミルフィルムについて測定した。3 重量 % 又は 5 重量 % のこれらのアミド基転移 MXD6 / N6 プレ配合物又は MXD6 を、表 6 に従って表 1 からいくつかのコポリエステルとバッグ配合した。次にこれらのペレット配合物を 60 ~ 70 で一晩乾燥し、次にキリアン（K i l l i a n）1.0 インチ単スクリュー押出し機に 95 r p m で、表 6 に示した温度で供給して、不混和性配合物から名目上 30 ミル厚のフィルムを作成した。純粋な MXD6 を含有するすべてのフィルムは曇り価が 10 % より大きかった。ナイロン配合物の屈折率に対応するポリエステル屈折率と約 0.006 ~ 約 - 0.0006 の範囲で一致したフィルムは透明であった（曇り価 10 %）。

【0204】

【表 9】

表 5 - 均質 MXD6 - ナイロン 6 ブレンド

ナイロン	組成	屈折率	Tg (°C)
W-	トランスアミド化MXD6/23wt%ナイロン6プレブレンド	1.5650	78
X-	トランスアミド化MXD6/30wt%ナイロン6プレブレンド	1.5617	75
Y-	トランスアミド化MXD6/41wt%ナイロン6プレブレンド	1.5528	70
Z-	トランスアミド化MXD6/50wt%ナイロン6プレブレンド	1.5472	66
MXD6	MXD6	1.5824	88

【0205】

酸素排除組成物を製造するために、ネオデカン酸コバルトを含有する濃縮物を 2 つのフィルムに加えた。濃縮物は以下のように調製した。ポリエステル C 型とネオデカン酸コバルト [トローチ型でコバルトテンセム（T e n - C e m）（登録商標）22.5 % として供給された、オーエムジー社（O M G C o r p .）から入手できる] の別々の供給物を 57 mm のツインスクリュー押出し機に供給し、バレル設定温度を約 235 で溶融配合した。溶融ポリマーは約 0.08 " 直径のひもの形で押出し機から出て、これを水で冷却し、約 0.125 " の長さのペレットに切断した。ポリエステル対ポリアミド対濃縮物の比率（重量）は 93.5 対 5 対 1.5 であり、濃縮物中のコバルト金属の濃度は、この比率が最終的に配合フィルム中で約 140 ~ 150 p p m のコバルトを与えるものであった。コバルトを含有する試料は、優れた酸素排除能力を示した。押出し後 1 週間にオクストラン（O x - T r a n）透過装置にのせたこれらの試料は、これらの条件下で平均の見かけの透過性は、6 ヶ月以上の間 0.15 c c（S T P）* ミル / 100 i n² / 日 / 気圧未満であった。

【0206】

【表 10】

表 6-30mil 単層フィルムの結果

例	ポリエステル	ナイロン	溶融 温度	% ヘーズ	合計 透過 (%)	RI (ナイロン) - RI (ポリエステル)	酵素 透過性*
C-41	B	3% MXD6	250℃	22.72	88.1	0.0180	
42	B	3% W	250℃	1.13	90.5	0.0006	
C-43	C		250℃	0.47	90.8	n/a	25.06
C-44	C	3% MXD6	250℃	35.90	87.8	0.0231	
C-45	C	5% MXD6	280℃	53.57	87.7	0.0231	13.62
C-46	C	5% MXD6 +Co	280℃	34.12	86.2	0.0231	0.20
47	C	3% X	250℃	1.00	90.7	0.0024	
48	C	5% X	280℃	0.98	90.6	0.0024	20.70
49	C	5% X+ Co	280℃	1.10	90.4	0.0024	0.09
C-50	E	3% MXD6	290℃	27.12	85.6	0.0277	
C-51	E	3% Y	290℃	2.99	90.8	-0.0019	
C-52	F	3% MXD6	250℃	64.06	87.9	0.0305	
C-53	F	3% Z	250℃	2.28	92.3	-0.0047	
C-54	G		280℃	0.74	90.9	n/a	
C-55	G	3% MXD6	280℃	82.57	81.0	0.0354	
56	G	3% Z	280℃	2.09	90.8	0.0002	

* 上流テストガスとして空気を用いて23℃約60~80%相対湿度で計測した装置上にマウントしてから15日後の見かけ透過性（組成物当り2つのフィルム及びフィルム当り3つの透過性計測値の平均）

【0207】

実施例59と62及び比較例57~58と60~61 - 多層フィルムのリグラインド：MXD6又はアミド基転移MXD6/30重量%N6配合物「X」の4ミル厚の層の周りの2つの15ミル層のポリエステルCを同時押出しして、多層フィルムを製造した。これを「ABA」構造と呼び、ここで「A」層は外層であり、「B」層は内層である。キリアン（Killian）1"押出し機を使用してポリエステルCから外層を265の温度で押出した。0.75"キリアン（Killian）押出し機を使用して、MXD6について285の温度で、アミド基転移MXD6/30重量%N6配合物「X」について275の温度で、内層を押出した。単層構造中のリグラインドとしてこれらの多層フィルムの再使用をシミュレートするために、これらの多層フィルムを次に粉碎し、追加のポリエステルCペレットと50/50比で乾燥配合した。次にこの乾燥配合物を70で乾燥し、キリアン（Killian）1"押出し機を使用して240の温度で20ミルフィルムに押出した。曇り価を表7に示す。同時押出ししたフィルムはすべて曇り価が2%未満であった。しかしこれらのフィルムを再粉碎し、ポリエステル「C」と配合すると、C/MXD6リグラインド配合物を含有するフィルムはこの値が10%を超えて上昇した。「C/X」リグラインドを含有するフィルムは透明なままであった。

【0208】

同様にMXD6又はアミド基転移MXD6/30重量%N6配合物「Z」の5ミル厚の層の周りの、2つの15ミル層のポリエステルGを同時押出しして、多層フィルムを製造した。これを「ABA」構造と呼び、ここで「A」層は外層であり、「B」層は内層であ

る。キリアン (K i l l i a n) 1 " 押出し機を使用してポリエステル G から外層を 2 8 5 の温度で押出した。0.75 " キリアン (K i l l i a n) 押出し機を使用して、M X D 6 又はアミド基転移 M X D 6 / 5 0 重量 % N 6 配合物「Z」を 2 8 5 の温度で内層を押出した。これらの多層フィルムを単層構造中のリグラインドとしての再使用をシミュレートするために、これらの多層フィルムを次に粉碎し、追加のポリエステル G ペレットと 5 0 / 5 0 比で乾燥配合した。次にこの乾燥配合物を 1 0 0 で乾燥し、キリアン (K i l l i a n) 1 " 押出し機を使用して 2 8 0 の温度で 2 0 ミルフィルムに押出した。曇り価を表 7 に示す。同時押出したフィルムはすべて曇り価が 2.5 % 未満であった。しかしこれらのフィルムを再粉碎し、ポリエステル「G」と配合すると、G / M X D 6 リグラインド配合物を含有するフィルムはこの値が 1 0 % を超えて上昇した。「G / X」リグラインドを含有するフィルムは透明なままであった。

【 0 2 0 9 】

【 表 1 1 】

表 7

例	材料	30mil ABAコエクスト ルード・フィルム (4mil B層)		50% "C" 又は "G" ペレッ トと50%磨耗コエク ストルード・フィルムの 混合物から製造した 20mil単層フィルム		RI (ナイロン) - RI (ポリエステル)
		ヘーズ (%)	合計透過 (%)	ヘーズ (%)	合計透過 (%)	
C-57	C	0.12	91.5	0.09	91.5	n/a
C-58	C/MXD6/C	1.49	91.1	16.44	87.3	0.0231
59	C/X/C	0.62	91.2	0.37	91.5	0.0022
C-60	G	0.74	90.9	0.24	91.1	n/a
C-61	G/MXD6/G	2.15	91.1	87.34	82.5	0.0354
62	G/Z/G	0.74	90.9	1.88	90.6	0.0002

【 0 2 1 0 】

実施例 6 4 及び比較例 6 3 - 多層フィルムの接着 : M X D 6 又はアミド基転移 M X D 6 / 3 0 重量 % N 6 配合物「X」の 4 ミル厚の層の周りの、2つの 1 5 ミル層のポリエステル C を同時押出しして、A B A フィルムを製造した。この例でアミド基転移配合物で使用したナイロン 6 はザイテル (Z y t e l) 7 3 0 1 である。キリアン (K i l l i a n) 1 " 押出し機を使用して 2 6 5 の温度で外層ポリエステル C を押出した。0.75 " キリアン (K i l l i a n) 押出し機を使用して、表 8 に示した温度で内層を押出した。アミド基転移 M X D 6 / 3 0 重量 % N 6 配合物「X」は、ポリエステル C に対して M X D 6 より優れた接着を示す。さらに、はアミド基転移 M X D 6 / 3 0 重量 % N 6 配合物のポリエステル C への改良された接着は、内層溶融温度を 2 8 0 から 2 8 5 に上げた時に得られた。M X D 6 接着は温度依存性を示さなかった。

【 0 2 1 1 】

【表 1 2】

表 8

例	材料	"B"層溶融温度	平均剥離強さ
C-63	C/MXD6/C	270℃	g/mm 1.74
		280℃	1.7
		285℃	1.88
64	C/X/C	270℃	4.33
		280℃	4.42
		285℃	7.14

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/US2006/011928

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER INV. B32B27/00 C08L67/02 C08L77/06		
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) C08L B32B		
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		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 01/09245 A (EASTMAN CHEMICAL COMPANY) 8 February 2001 (2001-02-08) the whole document	1-24
A	US 6 043 322 A (SCOTT CHRISTOPHER EDWARD [US] ET AL) 28 March 2000 (2000-03-28) the whole document	1-24
A	GB 962 913 A (KODAK LTD) 8 July 1964 (1964-07-08) the whole document	1-24
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents : "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier 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. "g" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report
26 October 2006		03/11/2006
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 Sperry, Pasca1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/US2006/011928

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 0109245	A	08-02-2001	AU 6505000 A	19-02-2001
			BR 0012815 A	07-05-2002
			CN 1505661 A	16-06-2004
			DE 60010470 D1	09-06-2004
			DE 60010470 T2	02-09-2004
			EP 1200522 A1	02-05-2002
			JP 2003527457 T	16-09-2003
US 6043322	A	28-03-2000	NONE	
GB 962913	A	08-07-1964	DE 1495559 A1	10-04-1969
			US 3313777 A	11-04-1967

フロントページの続き

(31)優先権主張番号 60/738,869
 (32)優先日 平成17年11月22日(2005.11.22)
 (33)優先権主張国 米国(US)
 (31)優先権主張番号 60/739,058
 (32)優先日 平成17年11月22日(2005.11.22)
 (33)優先権主張国 米国(US)
 (31)優先権主張番号 60/750,547
 (32)優先日 平成17年12月15日(2005.12.15)
 (33)優先権主張国 米国(US)
 (31)優先権主張番号 60/750,682
 (32)優先日 平成17年12月15日(2005.12.15)
 (33)優先権主張国 米国(US)
 (31)優先権主張番号 60/750,692
 (32)優先日 平成17年12月15日(2005.12.15)
 (33)優先権主張国 米国(US)
 (31)優先権主張番号 60/750,693
 (32)優先日 平成17年12月15日(2005.12.15)
 (33)優先権主張国 米国(US)
 (31)優先権主張番号 11/363,417
 (32)優先日 平成18年2月27日(2006.2.27)
 (33)優先権主張国 米国(US)
 (31)優先権主張番号 11/363,374
 (32)優先日 平成18年2月27日(2006.2.27)
 (33)優先権主張国 米国(US)
 (31)優先権主張番号 11/363,375
 (32)優先日 平成18年2月27日(2006.2.27)
 (33)優先権主張国 米国(US)
 (31)優先権主張番号 11/363,418
 (32)優先日 平成18年2月27日(2006.2.27)
 (33)優先権主張国 米国(US)
 (31)優先権主張番号 11/363,481
 (32)優先日 平成18年2月27日(2006.2.27)
 (33)優先権主張国 米国(US)

(81)指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LS,MW,MZ,NA,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM),EP(AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,NL,PL,PT,RO,SE,SI,SK,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KM,KN,KP,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,LY,MA,MD,MG,MK,MN,MW,MX,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PG,PH,PL,PT,RO,RU,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,SY,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,UZ,VC,VN,YU,ZA,ZM,ZW

(74)代理人 100093665

弁理士 蛸谷 厚志

(72)発明者 ヘール, ウェスリー レイモンド

アメリカ合衆国, テネシー 37663, キングスポート, ウッド コート 801

(72)発明者 ペコリーニ, トーマス ジョセフ

アメリカ合衆国, テネシー 37663, キングスポート, レミントン コート 208

(72)発明者 スチュアート, マーク エドワード

- アメリカ合衆国, テネシー 3 7 6 6 4, キングスポート, ドーバー ドライブ 1 1 0 4
(72)発明者 ロジャース, マーティン エマーソン
アメリカ合衆国, バージニア 2 4 0 6 0, ブラックスバーグ, ビレッジ ウェイ サウス 1 2
2 2
(72)発明者 ギリアム, スペンサー アレン
アメリカ合衆国, テネシー 3 7 6 6 0, キングスポート, レーン ドライブ 9 0 5
(72)発明者 クリフトン, マイケル デュアン
アメリカ合衆国, テネシー 3 7 6 6 3, キングスポート, ヒドゥン バレー ロード 1 0 8 0
(72)発明者 クローフォード, エメット ダッドリー
アメリカ合衆国, テネシー 3 7 6 6 3, キングスポート, ウッドリーフ レーン 3 8 1 8
(72)発明者 ポーター, デイビッド スコット
アメリカ合衆国, テネシー 3 7 6 1 7, ブラウントビル, グラスゴー レーン 3 6 5
(72)発明者 コネル, ゲーリー, ウェイン
アメリカ合衆国, テネシー 3 7 6 4 2, チャーチ ヒル, ギルダ アベニュー 2 1 2
F ターム(参考) 4F100 AK41A AK45A AK46B AL05B BA02 BA03 BA04 BA05 BA07 GB16
JA05A JN18B YY00A YY00B