

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 3 部門第 3 区分

【発行日】平成 21 年 4 月 16 日 (2009.4.16)

【公表番号】特表 2008-531827 (P2008-531827A)

【公表日】平成 20 年 8 月 14 日 (2008.8.14)

【年通号数】公開・登録公報 2008-032

【出願番号】特願 2007-558234 (P2007-558234)

【国際特許分類】

C 08 L 67/00 (2006.01)

C 08 L 69/00 (2006.01)

C 08 L 77/00 (2006.01)

【F I】

C 08 L 67/00

C 08 L 69/00

C 08 L 77/00

【手続補正書】

【提出日】平成 21 年 2 月 25 日 (2009.2.25)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(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それらの均質ブレンドから選ばれた少なくとも 1 種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 種のポリアミドの均質なアミド交換ブレンドを含む第 2 成分

を溶融ブレンドし、前記第 1 成分 (i) と前記第 2 成分 (ii) は非混和性ブレンドを形成し、前記第 2 成分と前記第 1 成分の屈折率の差  $[RI(\text{第 2 成分}) - RI(\text{第 1 成分})]$  は  $0.006 \sim -0.0006$  であり、且つ前記非混和性ブレンドは少なくとも 75% のパーセント透過率及び 10% 又はそれ以下のヘイズを有する} ;

(B) 造形品を形成し ;

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

(D) 前記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生成し ;

(E) 場合によっては、前記スクラップポリマー組成物を乾燥させ ; そして

(F) 前記ポリマーリグラインドを工程 (A) の第 1 成分 (i) 及び第 2 成分 (ii) と合する

ことを含んでなる造形品の形成方法。

【請求項 2】

前記溶融ブレンドを 290 ~ 340 において実施する請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

前記の少なくとも 1 種の熱可塑性ポリマーが (a) 総二酸残基に基づき、少なくとも 80 モル% 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ばれた少なくとも 1 種のジカルボン酸の残基並びに 0 ~ 20 モル% の、少なくとも 1 種の炭素数 2 ~ 20 の改質用ジカルボン酸の残基を含む二酸残基並びに (b) ジオール残基の総モルに基づき、少なくとも 80 モル% 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ばれた少なくとも1種のジオールの残基並びに0~20モル%の、少なくとも1種の炭素数3~16の改質用ジオールの残基を含むジオール残基を含むポリエステルを含む請求項1に記載の方法。

【請求項4】

前記二酸残基がテレフタル酸、イソフタル酸又はそれらの組合せから選ばれた1種又はそれ以上のジカルボン酸の残基を含み、且つ前記ジオール残基が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、エチレングリコール及びそれらの組合せから選ばれた1種又はそれ以上のジオールの残基を含む請求項3に記載の方法。

【請求項5】

前記二酸残基が60~100モル%のテレフタル酸残基及び0~40モル%のイソフタル酸残基を含み且つ前記ジオール残基が100モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール残基を含む請求項3に記載の方法。

【請求項6】

前記二酸残基が100モル%のテレフタル酸残基を含む請求項3に記載の方法。

【請求項7】

前記二酸残基が80~100モル%のテレフタル酸残基を含み且つ前記ジオール残基が50~90モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール残基及び10~50モル%のネオペンチルグリコール残基を含む請求項3に記載の方法。

【請求項8】

前記二酸残基が100モル%のテレフタル酸残基を含み且つ前記ジオール残基が10~40モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール残基及び60~90モル%のエチレングリコール残基を含む請求項3に記載の方法。

【請求項9】

前記ジオール残基が10~99モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール残基、0~90モル%のエチレングリコール残基及び1~25モル%のジエチレングリコール残基を含む請求項6に記載の方法。

【請求項10】

前記ジオール残基が50~90モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール及び10~50モル%のエチレングリコールを含む請求項6に記載の方法。

【請求項11】

前記コポリアミドが、100モル%の総ジアミン残基含量に基づき、15~100モル%のm-キシリレンジアミン残基；並びに100モル%の総二酸残基含量に基づき15~85モル%のアジピン酸残基及び85~15モル%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-シクロヘキサジカルボン酸から選ばれた1種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む請求項3~10のいずれか1項に記載の方法。

【請求項12】

前記均質ブレンドがm-キシリレンジアミン及びアジピン酸の残基を含む第1ポリアミドを含み、そしてアジピン酸、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、11-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ばれた少なくとも1種の脂肪族又は脂環式モノマーの残基を含む第2ポリアミドを含む請求項3~10のいずれか1項に記載の方法。

【請求項13】

前記第2ポリアミドが、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6,11；ナイロン10,12及びそれらの組合せから選ばれた少なくとも1種のポリアミドを含む請求項12に記載の方法。

【請求項14】

前記リグラインドが、前記組成物の総重量に基づき、前記組成物の 10 ~ 40 重量%である請求項 1 に記載の方法。

【請求項 15】

前記の少なくとも 1 種の熱可塑性ポリマーが前記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質ブレンドを更に含む請求項 11 ~ 13 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 16】

前記非混和性ブレンドが元素周期表の第 3 族 ~ 第 12 族、第 4 列 ~ 第 6 列から選ばれた少なくとも 1 種の金属を更に含む請求項 11 ~ 13 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 17】

前記造形品を、押出、カレンダーリング、熱成形、ブロー成形、射出成形、圧縮成形、押出ブロー成形、キャスト、ドラフト、幅出し又はフリーブロー成形によって、形成する請求項 1 ~ 16 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 18】

前記造形品が 2 ~ 7 層を有する請求項 17 に記載の方法。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0167

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0167】

【表 12】

表VIII

例	材料	” B ” 層熔融温度	平均剥離強さ
C-57	C/MXD6/C	270℃	g/mm 1.74
		280℃	1.7
		285℃	1.88
58	C/X/C	270℃	4.33
		280℃	4.42
		285℃	7.14

以下に、本発明の態様を列挙する。

態様 1. (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それらの均質ブレンドから選ばれた少なくとも 1 種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 種のポリアミドの均質なアミド交換ブレンドを含む第 2 成分

を溶融ブレンドし { 前記第 1 成分 (i) と前記第 2 成分 (ii) は非混和性ブレンドを形成し、前記第 2 成分と前記第 1 成分の屈折率の差 [ RI (第 2 成分) - RI (第 1 成分) ] は 0.006 ~ -0.0006 であり、且つ前記非混和性ブレンドは少なくとも 75 % のパーセント透過率及び 10 % 又はそれ以下のヘイズを有する } ;

(B) 造形品を形成し ;

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

(D) 前記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生成し ;

(E) 場合によっては、前記スクラップポリマー組成物を乾燥させ ; そして

(F) 前記ポリマーリグラインドを工程(A)の第1成分(i)及び第2成分(ii)と合する

ことを含んでなる造形品の形成方法。

態様2．前記溶融ブレンドを290～340において実施する態様1に記載の方法。

態様3．前記のブレンドされた第1成分(i)及び第2成分(ii)が、前記のブレンドされた成分の総重量に基づき、5～99重量%の前記第1成分及び95～1重量%の前記第2成分を含む態様2に記載の方法。

態様4．前記のブレンドされた第1成分(i)及び第2成分(ii)が50～99重量%の前記第1成分及び50～1重量%の前記第2成分を含む態様3に記載の方法。

態様5．前記のブレンドされた第1成分(i)及び第2成分(ii)が70～99重量%の前記第1成分及び30～1重量%の前記第2成分を含む態様4に記載の方法。

態様6．前記第2成分(ii)と前記第1成分(i)の屈折率の差[R<sub>I</sub>(第2成分)-R<sub>I</sub>(第1成分)]が0.005～-0.0006である態様1に記載の方法。

態様7．前記の少なくとも1種の熱可塑性ポリマーが(a)総二酸残基に基づき、少なくとも80モル%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ばれた少なくとも1種のジカルボン酸の残基並びに0～20モル%の、少なくとも1種の炭素数2～20の改質用ジカルボン酸の残基を含む二酸残基並びに(b)ジオール残基の総モルに基づき、少なくとも80モル%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ばれた少なくとも1種のジオールの残基並びに0～20モル%の、少なくとも1種の炭素数3～16の改質用ジオールの残基を含むジオール残基を含むポリエステルを含む態様1に記載の方法。

態様8．前記改質用ジカルボン酸が4,4'-ビフェニルジカルボン酸、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、トランス-4,4'-スチルベンジカルボン酸、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から選ばれ；且つ前記改質用ジオールが、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-ヘキサジジオール、1,4-シクロヘキサジメタノール、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、ジエチレングリコール、ポリテトラメチレングリコール及び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ばれる態様7に記載の方法。

態様9．前記二酸残基がテレフタル酸、イソフタル酸又はそれらの組合せから選ばれた1種又はそれ以上のジカルボン酸の残基を含み、且つ前記ジオール残基が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、エチレングリコール及びそれらの組合せから選ばれた1種又はそれ以上のジオールの残基を含む態様7に記載の方法。

態様10．前記ポリエステルが、総二酸残基に基づき、0.1～2モル%の、トリメリット酸、トリメリット酸無水物及びピロメリット酸二無水物から選ばれた少なくとも1種の分岐剤の残基を更に含む態様7に記載の方法。

態様11．前記二酸残基が60～100モル%のテレフタル酸残基及び0～40モル%のイソフタル酸残基を含み且つ前記ジオール残基が100モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール残基を含む態様7に記載の方法。

態様12．前記二酸残基が100モル%のテレフタル酸残基を含む態様7に記載の方法。

態様13．前記二酸残基が80～100モル%のテレフタル酸残基を含み且つ前記ジオール残基が50～90モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール残基及び10～50モル%のネオペンチルグリコール残基を含む態様7に記載の方法。

態様14．前記二酸残基が100モル%のテレフタル酸残基を含み且つ前記ジオール残基が10～40モル%の1,4-シクロヘキサジメタノール残基及び60～90モル%

のエチレングリコール残基を含む態様 7 に記載の方法。

態様 15 . 前記ジオール残基が 10 ~ 99 モル% の 1 , 4 - シクロヘキサンジメタノール残基、0 ~ 90 モル% のエチレングリコール残基及び 1 ~ 25 モル% のジエチレングリコール残基を含む態様 12 に記載の方法。

態様 16 . 前記ジオール残基が 50 ~ 90 モル% の 1 , 4 - シクロヘキサンジメタノール及び 10 ~ 50 モル% のエチレングリコールを含む態様 12 に記載の方法。

態様 17 . 前記第 2 成分が m - キシリレンジアミン、p - キシリレンジアミン又はそれらの組合せの残基；並びにテレフタル酸、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、ウンデカン二酸、ドデカン二酸、カプロラクタム、ブチロラクタム、11 - アミノ - ウンデカン二酸、イソフタル酸及び 1 , 6 - ヘキサメチレンジアミンから選ばれた少なくとも 1 種のモノマーの残基を含むコポリアミドを含む態様 1 に記載の方法。

態様 18 . 前記コポリアミドが、100 モル% の総ジアミン残基含量に基づき、15 ~ 100 モル% の m - キシリレンジアミン残基；並びに 100 モル% の総二酸残基含量に基づき 15 ~ 85 モル% のアジピン酸残基及び 85 ~ 15 モル% 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 - シクロヘキサジカルボン酸から選ばれた 1 種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む態様 17 に記載の方法。

態様 19 . 前記第 2 成分 ( i i ) が芳香族残基を含む第 1 ポリアミド及び脂肪族残基を含む第 2 ポリアミドを含む均質ブレンドを含む態様 1 に記載の方法。

態様 20 . 前記均質ブレンドが m - キシリレンジアミン及びアジピン酸の残基を含む第 1 ポリアミドを含み、且つ前記第 2 ポリアミドがアジピン酸、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、11 - 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ばれた少なくとも 1 種の脂肪族又は脂環式モノマーの残基を含む態様 19 に記載の方法。

態様 21 . 前記第 2 ポリアミドが、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 , 11 ; ナイロン 10 , 12 及びそれらの組合せから選ばれた少なくとも 1 種のポリアミドを含む態様 19 に記載の方法。

態様 22 . 前記第 2 ポリアミドがナイロン 6、ナイロン 6 , 6 又はそれらのブレンドを含む態様 21 に記載の方法。

態様 23 . 前記リグラインドが、前記組成物の総重量に基づき、前記組成物の 5 ~ 60 重量% である態様 1 に記載の方法。

態様 24 . 前記リグラインドが、前記組成物の総重量に基づき、前記組成物の 10 ~ 40 重量% である態様 23 に記載の方法。

態様 25 . 前記リグラインドが、前記組成物の総重量に基づき、前記組成物の 20 ~ 30 重量% である態様 24 に記載の方法。

態様 26 . 前記の少なくとも 1 種の熱可塑性ポリマーが ( a ) 総二酸残基に基づき、少なくとも 80 モル% 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ばれた少なくとも 1 種のジカルボン酸の残基並びに 0 ~ 20 モル% の、少なくとも 1 種の炭素数 2 ~ 20 の改質用ジカルボン酸の残基を含む二酸残基並びに ( b ) ジオール残基の総モルに基づき、少なくとも 80 モル% の、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ばれた少なくとも 1 種のジオールの残基並びに 0 ~ 20 モル% の、少なくとも 1 種の炭素数 3 ~ 16 の改質用ジオールの残基を含むジオール残基を含むポリエステルを含む態様 22 に記載の方法。

態様 27 . 前記二酸残基がテレフタル酸、イソフタル酸又はそれらの組合せから選ばれた 1 種又はそれ以上のジカルボン酸の残基を含み、且つ前記ジオール残基が 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及びそれらの組

合せから選ばれた 1 種又はそれ以上のジオールの残基を含む態様 2 6 に記載の方法。

態様 2 8 . 前記二酸残基が 6 0 ~ 1 0 0 モル % のテレフタル酸残基及び 0 ~ 4 0 モル % のイソフタル酸残基を含み且つ前記ジオール残基が 1 0 0 モル % の 1 , 4 - シクロヘキサンジメタノール残基を含む態様 2 6 に記載の方法。

態様 2 9 . 前記二酸残基が 1 0 0 モル % のテレフタル酸残基を含む態様 2 6 に記載の方法。

態様 3 0 . 前記二酸残基が 8 0 ~ 1 0 0 モル % のテレフタル酸を含み且つ前記ジオール残基が 5 0 ~ 9 0 モル % の 1 , 4 - シクロヘキサンジメタノール及び 1 0 ~ 5 0 モル % のネオペンチルグリコールを含む態様 2 6 に記載の方法。

態様 3 1 . 前記二酸残基が 1 0 0 モル % のテレフタル酸を含み且つ前記ジオール残基が 1 0 ~ 4 0 モル % の 1 , 4 - シクロヘキサンジメタノール及び 6 0 ~ 9 0 モル % のエチレングリコールを含む態様 2 6 に記載の方法。

態様 3 2 . 前記ジオール残基が 1 0 ~ 9 9 モル % の 1 , 4 - シクロヘキサンジメタノール、 0 ~ 9 0 モル % のエチレングリコール及び 1 ~ 2 5 モル % のジエチレングリコールを含む態様 2 6 に記載の方法。

態様 3 3 . 前記ジオール残基が 5 0 ~ 9 0 モル % の 1 , 4 - シクロヘキサンジメタノール及び 1 0 ~ 5 0 モル % のエチレングリコールを含む態様 2 6 に記載の方法。

態様 3 4 . 前記ポリエステルが、総二酸残基に基づき、 0 . 1 ~ 2 モル % の、トリメリット酸、トリメリット酸無水物及びピロメリット酸二無水物から選ばれた少なくとも 1 種の分岐剤の残基を更に含む態様 3 3 に記載の方法。

態様 3 5 . 前記の少なくとも 1 種の熱可塑性ポリマーが前記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質ブレンドを更に含む態様 2 6 に記載の方法。

態様 3 6 . 前記ポリエステル及び前記ポリカーボネートが分岐している態様 3 5 に記載の方法。

態様 3 7 . 前記ポリエステルが、総二酸残基に基づき、 0 . 1 ~ 2 モル % の、トリメリット酸、トリメリット酸無水物及びピロメリット酸二無水物から選ばれた少なくとも 1 種の分岐剤の残基を更に含む態様 3 5 に記載の方法。

態様 3 8 . 前記二酸残基がテレフタル酸、イソフタル酸又はそれらの組合せから選ばれた 1 種又はそれ以上のジカルボン酸の残基を含み、且つ前記ジオール残基が 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及びそれらの組合せから選ばれた 1 種又はそれ以上のジオールの残基を含む態様 3 5 に記載の方法。

態様 3 9 . 前記二酸残基が 6 0 ~ 1 0 0 モル % のテレフタル酸残基及び 0 ~ 4 0 モル % のイソフタル酸残基を含み且つ前記ジオール残基が 1 0 0 モル % の 1 , 4 - シクロヘキサンジメタノール残基を含む態様 3 5 に記載の方法。

態様 4 0 . 前記二酸残基が 1 0 0 モル % のテレフタル酸を含む態様 3 5 に記載の方法。

態様 4 1 . 前記二酸残基が 8 0 ~ 1 0 0 モル % のテレフタル酸を含み且つ前記ジオール残基が 5 0 ~ 9 0 モル % の 1 , 4 - シクロヘキサンジメタノール及び 1 0 ~ 5 0 モル % のネオペンチルグリコールを含む態様 3 5 に記載の方法。

態様 4 2 . 前記二酸残基が 1 0 0 モル % のテレフタル酸を含み且つ前記ジオール残基が 1 0 ~ 4 0 モル % の 1 , 4 - シクロヘキサンジメタノール及び 6 0 ~ 9 0 モル % のエチレングリコールを含む態様 3 5 に記載の方法。

態様 4 3 . 前記ジオール残基が 1 0 ~ 9 9 モル % の 1 , 4 - シクロヘキサンジメタノール、 0 ~ 9 0 モル % のエチレングリコール及び 1 ~ 2 5 モル % のジエチレングリコールを含む態様 3 5 に記載の方法。

態様 4 4 . 前記ジオール残基が 5 0 ~ 9 0 モル % の 1 , 4 - シクロヘキサンジメタノール及び 1 0 ~ 5 0 モル % のエチレングリコールを含む態様 3 5 に記載の方法。

態様 4 5 . 前記非混和性ブレンドが元素周期表の第 3 族 ~ 第 1 2 族、第 4 列 ~ 第 6 列から選ばれた少なくとも 1 種の金属を更に含む態様 2 0 に記載の方法。

態様 4 6 . 前記金属が銅、ニッケル、コバルト、鉄、マンガン及びそれらの組合せから

選ばれる態様 4 5 に記載の方法。

態様 4 7 . 前記造形品の総重量に基づき、1 0 ~ 5 0 0 重量百万分率の前記金属を含む態様 4 6 に記載の方法。

態様 4 8 . 前記金属がコバルトである態様 4 7 に記載の方法。

態様 4 9 . 前記造形品を、押出、カレンダーリング、熱成形、ブロー成形、射出成形、圧縮成形、押出ブロー成形、キャスト、ドラフト、幅出し又はフリーブロー成形によって、形成する態様 1 に記載の方法。

態様 5 0 . 前記造形品がシート、フィルム、プレフォーム、チューブ又はボトルである態様 4 9 に記載の方法。

態様 5 1 . 前記造形品が 2 ~ 7 層を有する態様 5 0 に記載の方法。

態様 5 2 . 前記の 2 ~ 7 層のうち 1 層又はそれ以上が、前記層の総重量に基づき、5 0 ~ 1 0 0 重量 % の前記リグラインドを含む態様 5 1 に記載の方法。