

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-176067

(P2004-176067A)

(43) 公開日 平成16年6月24日(2004.6.24)

(51) Int.Cl.⁷

C08L 67/00

B29B 11/08

B29C 45/00

B29C 49/06

C08J 5/00

F I

C08L 67/00

B29B 11/08

B29C 45/00

B29C 49/06

C08J 5/00

C F D

テーマコード (参考)

4 F O 7 1

4 F 2 O 1

4 F 2 O 6

4 F 2 O 8

4 J O O 2

審査請求 未請求 請求項の数 18 O L (全 43 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2003-394027 (P2003-394027)

(22) 出願日 平成15年11月25日 (2003.11.25)

(31) 優先権主張番号 10/304227

(32) 優先日 平成14年11月26日 (2002.11.26)

(33) 優先権主張国 米国 (US)

(71) 出願人 594055158

イーストマン ケミカル カンパニー
アメリカ合衆国, テネシー 37660,
キングスポート, ノース イーストマン
ロード 100

(74) 代理人 100099759

弁理士 青木 篤

(74) 代理人 100077517

弁理士 石田 敬

(74) 代理人 100087413

弁理士 古賀 哲次

(74) 代理人 100082898

弁理士 西山 雅也

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ガラス状炭素熱可塑性組成物

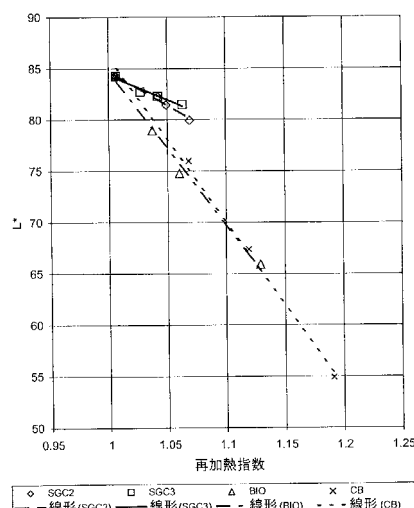
(57) 【要約】

【課題】 改良された L^* 及び b^* 等級と共に良好な再加熱速度を有する熱可塑性組成物、低い静止摩擦係数及び良好な再加熱速度を有する熱可塑性組成物、また、良好な再加熱速度及び低い側壁ボトルヘイズを有する熱可塑性組成物の提供。

【解決手段】 ガラス状炭素を含有するポリエチレンテレフタレートポリマーを含むポリエステル組成物並びにこれらの組成物から製造されたプリフォーム、ボトル、シート、棒、チューブ、フィルム及びその他の物品のような熱可塑性組成物が提供され、また低い静止摩擦係数、低い静止摩擦係数と低いヘイズ若しくは高い L^* 若しくは低い正 b^* 又はこれらの組合せを含む一定の個々の特性又は特性の組合せを有するポリエステル組成物並びに与えられた再加熱速度で低い L^* 及び低い b^* を有するポリエステル組成物も提供される。

【選択図】 図2

図2

ベースPET2中の種々の再加熱剤についての再加熱指数対 L^* 

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

25 及び 1 気圧で固体である熱可塑性ポリマー連続相中に分布されたガラス状炭素粒子を含んでなる熱可塑性ポリマー組成物。

【請求項 2】

ポリエステル組成物が球状ガラス状炭素を含む請求項 1 に記載の熱可塑性組成物。

【請求項 3】

前記ガラス状炭素粒子の平均粒子サイズが 0.1 ~ 40 ミクロンの範囲内である請求項 1 又は 2 に記載の熱可塑性組成物。

【請求項 4】

熱可塑性組成物が少なくとも 95 重量%のポリエステル組成物を含み、前記ポリエステル組成物がポリエチレンテレフタレートを含み、そして熱可塑性組成物が球状ガラス状炭素を含む請求項 1 に記載の熱可塑性組成物。

【請求項 5】

ガラス状炭素を、ポリエステル組成物又はポリエステル前駆体を含む組成物と組み合わせることを含んでなるポリエステルの製造方法。

【請求項 6】

ガラス状炭素及びポリエチレンテレフタレートを含む液状又は固体状コンцентレートを、バルクポリエチレンテレフタレートの熔融相重縮合の後で且つポリエステル組成物を射出成形する前又は射出成形する段階で、バルクポリエチレンテレフタレートに添加することを含んでなるポリエステルの製造方法。

【請求項 7】

それぞれコンцентレート組成物の重量基準で、0.05 重量% ~ 約 35 重量%の範囲の量のガラス状炭素及び 65 重量%以上 99.95 重量%以下の範囲内の量のポリマーを含んでなるコンцентレート組成物。

【請求項 8】

ポリマーがポリエチレンテレフタレートを含む請求項 7 に記載のコンцентレート組成物。

【請求項 9】

L^* 値及びポリエステル組成物中に存在する再加熱添加剤の増加する量と共に 0.95 と 1.15 との間で増加する再加熱指数を有し、y 軸上の L^* 測定値及び x 軸上の再加熱指数に対してプロットした、前記添加剤の増加する量を表す曲線の勾配が、少なくとも 0.03 単位の間隔を使用する再加熱指数値に関して 0.95 と 1.15 との間のどこか少なくとも 3 個のデータ点によって測定したときに、そして 3 個の積層された、それぞれ 67 ミルの厚さを有するディスクを使用して測定したときに、 $|80|$ 又はそれ以下であるポリエステル組成物。

【請求項 10】

5 以上の最終再加熱温度デルタ、70 又はそれ以上の L^* 等級及び 3.80 又はそれの b^* 等級を有するポリエステルプリフォーム。

【請求項 11】

前記プリフォームがポリエチレンテレフタレート及びガラス状炭素を含む請求項 10 に記載のポリエステルプリフォーム。

【請求項 12】

10 又はそれ以上の最終再加熱温度デルタ及び 70 より大きい L^* 等級を有するポリエステルプリフォーム。

【請求項 13】

5 又はそれ以上の最終再加熱温度デルタ及び 3.8 より小さい b^* 等級を有するプリフォームから製造され、そして 0.6 又はそれ以下の静止摩擦係数を有するポリエステル飲料ボトル。

【請求項 14】

10

20

30

40

50

5 又はそれ以上の最終再加熱温度デルタ及び少なくとも70のL*値を有するプリフォームから製造され、そして0.6又はそれ以下の静止摩擦係数を有するポリエステル飲料ボトル。

【請求項15】

ヘイズ%値及びポリエステル組成物中に存在する再加熱添加剤の増加量と共に0.95と1.15との間で増加する再加熱指数を有するポリエステル組成物であって、1%~40%の数字でのy軸上のヘイズ%及びx軸上の再加熱指数によって表される曲線の勾配が、少なくとも0.03単位の間隔を使用する再加熱指数値に関して1.00と1.15との間のいずれか少なくとも3個のデータ点によって測定したとき及び3個の積層された、それぞれ67ミルの厚さを有するディスクで測定したとき、75より小さく、そして前記 10
ポリエステルの組成物が0.5より小さい静止摩擦係数を有する組成物。

【請求項16】

50ppm~150ppmの範囲内の量で、それぞれ添加剤を含有しない組成物に対して、組成物の再加熱速度を、添加剤の最初の50ppmについて少なくとも2.5ほど増加させ、そして組成物の静止摩擦係数を添加剤の最初の50ppmについて少なくとも20%ほど減少させるように機能する添加剤を含み、組成剤が9%以下の側壁ボトルヘイズ値を有するポリエステル組成物。

【請求項17】

前記ポリエステル組成物がポリエチレンテレフタレートを含む請求項16に記載のポリエステル組成物。 20

【請求項18】

25及び1気圧で熱可塑性ポリマー連続相固体及び添加剤を含有しない組成物に対して組成物の静止摩擦係数を減少させる添加剤を含む熱可塑性組成物であって、前記組成物が、熱可塑性連続相の重量に対して50ppm~250ppmの添加剤範囲内の1点で測定したときに、0.2の静止摩擦係数を有する熱可塑性組成物。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明はガラス状炭素粒子を含む熱可塑性ポリマー組成物に関し、更に詳しくは良好な再加熱速度及び低い側壁ボトルヘイズを有する熱可塑性ポリマー組成物並びにポリエステル組成物の製造方法、コンセントレート組成物、ポリエステルプリフォーム及び飲料ボトルに関する。 30

【背景技術】

【0002】

ポリマー組成物、特に、ポリ(エチレンテレフタレート)又はそのコポリマー(以下、総称的に「PET」という)を含む組成物の、例えばフィルム、ボトル及びその他の容器の形態での使用はよく知られている。ボトル又はその他の容器(以下、総称的に「容器」という)が、液体、例えば水、ジュース及び炭酸入り飲料を含有させるために使用するとき、ポリマーチップ又はペレットの形態での容器形成性組成物が、通常、2段階方法で容器形状に成形される。最初に、チューブ形状のプリフォームが、射出成形される。第二に 40
、このプリフォームを、そのガラス転移温度よりも上に加熱し、そして高圧空気によって金型の中に吹込成形して、それをボトルに造形する。

【0003】

第二段階に於いて、プリフォームを「再加熱」するために、石英赤外線ランプが使用される。典型的なランプ温度は、500~2000nmの範囲内の広い発光スペクトルを有して、2000~3000Kである。石英ランプからの最大光発光は、約1100~1200nmの範囲内で起こる。しかしながら、PETは、500~2000nmの領域内でエネルギー吸収が劣っている。それ故、ランプからのエネルギー吸収を最大にし、そしてプリフォームの「再加熱」速度を増加させるために、赤外線吸収性化合物を場合によってPETに添加する。これらの物質は、残念ながら、PETボトルの視覚外観に負の影響を 50

有し、ボトルを黒ずませ、明るさが少なくなり、曇りが多くなる。400～700nmの範囲内で吸光度を有する化合物は、人の目には着色しているように見えるので、この範囲内で吸収する化合物は、ポリマーに色を与える。

【0004】

従来、石英ランプ下でのポリエステル加熱特性を改良するための再加熱剤として、種々の黒及びグレー体吸収化合物 (black and gray body absorbing compounds) が使用されてきた。プリフォームの再加熱速度を増加させるために、種々の赤外線吸収化合物をPETに添加することができる。このような再加熱添加剤には、カーボンブラック、グラファイト、アンチモン金属、黒色酸化鉄、赤色酸化鉄、不活性鉄化合物、スピネル顔料及び赤外線吸収性色素が含まれる。

10

【0005】

ポリマーに添加できる吸収性化合物の量はその透明度の尺度である明度及び色のような、ポリマーの視覚特性への影響によって制限される。

【0006】

全てではないが多くのこれらの再加熱添加剤は、ポリエチレンテレフタレートプリフォームの再加熱速度を顕著に改良する。これらの添加剤の欠点は、樹脂の明度及び/又は透明度に於ける顕著な損失を起こすことである。プリフォーム及び得られる吹込成形物品に於ける明度及び色の許容できるレベルを保持するために、再加熱添加剤の量は減少され、これは次いで再加熱速度を低下させる。それで、ポリエチレンテレフタレート樹脂に添加される再加熱添加剤の種類及び量は、再加熱速度を増加させることと許容できる明度及び色レベルを保持することとの間の所望のバランスを得るように調節される。

20

【0007】

従って、プリフォームの再加熱速度を増加させるための(又は、逆に、所定の温度での再加熱時間を短縮するための)継続するニーズが存在している。同時に、再加熱速度を増加させ、そして熱可塑性組成物中の再加熱添加剤の濃度が増加したときL*が劣化する速度を低下させることが理想的であろう。

【0008】

L*の許容できるレベルを維持しながら、プリフォームの再加熱速度を増加させるための努力とは独立に、このプリフォームから製造されたボトルの静止摩擦係数を減少させるための努力がなされてきた。ボトルに吹込成形されたポリエステル組成物は、平滑な表面を有し、そのためにコンベヤーやパレットで輸送するとき、ボトルが互いに粘着するようになる。ボトル間の静止摩擦係数は、ボトルが互いに粘着して、コンベヤーから落ちるように十分に高い。ヒュームドシリカ、無定形シリカ及びタルクのような添加剤の含有による、ボトルの粘着性を減少させるための努力は、粘着防止添加剤を含有しない対照と比較して静止摩擦係数を成功裡に減少させたが、幾つかの粘着防止添加剤は、プリフォームの明度を著しく減少させ及び/又はヘイズを顕著に増加させる傾向がある。

30

【0009】

本発明者等は、ボトル静止摩擦係数を減少させるのみならず、ボトルを製造するために使用されるプリフォームの再加熱速度を効率よく増加させる、1種の多機能性添加剤を含有するポリエステル組成物を提供することが有利であることを見出した。このようなプリフォーム並びに良好な明度及び良好な色を有する得られるボトルを製造することも非常に有利である。

40

【0010】

【特許文献1】米国特許第5,382,157号

【非特許文献1】ジョン・ウィリー・アンド・サンズ社(John Wiley & Sons)、ニューヨーク(1981年刊)による「カラー技術の原理(Principles of Color Technology)」、第22～66頁

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0011】

50

本発明者等は、改良された L^* 及び b^* 等級と共に良好な再加熱速度を有する熱可塑性組成物を見出した。本発明者等は、また、低い静止摩擦係数及び良好な再加熱速度を有する熱可塑性組成物を見出した。本発明者等は、また、良好な再加熱速度及び低い側壁ボトルヘイズを有する熱可塑性組成物を見出した。

【課題を解決するための手段】

【0012】

ポリエステル及びガラス状炭素を含む熱可塑性組成物が提供される。

また、ガラス状炭素を、ポリエステル組成物又はポリエステル前駆体を含む組成物と組み合わせることを含んでなるポリエステル組成物の製造方法が提供される。

【0013】

他の態様に於いて、ガラス状炭素及びポリエチレンテレフタレートを含む固体状又は液体状コンセントレートを、バルクポリエチレンテレフタレートの溶融相重合の後で且つポリエステル組成物を射出成形する前又は射出成形する際に、バルクポリエチレンテレフタレートに添加することを含んでなるポリエステル組成物の製造方法が提供される。

【0014】

本発明の更に他の態様に於いて、ガラス状炭素を、正味で又はコンセントレートとして又はキャリアー中で、ポリエチレンテレフタレートの製造のための溶融相に添加することを含んでなるポリエステル組成物の製造方法が提供される。

【0015】

別の態様に於いて、それぞれコンセントレート組成物の重量基準で、0.05重量%～約35重量%の範囲内の量のガラス状炭素及び少なくとも65重量%から99.95重量%までの範囲内の量のポリマーを含むコンセントレート組成物が提供される。

【0016】

本発明のなお更に他の態様に於いて、 L^* 値及びポリエステル組成物中に存在する添加剤の増加量と共に0.95と1.15との間で増加する再加熱指数を有し、 y 軸上の L^* 測定値及び x 軸上の再加熱指数に対してプロットされた、前記添加剤の増加量を表す曲線の勾配が、少なくとも0.03単位の間隔を使用する再加熱指数値に関して0.95と1.15との間のいずれか少なくとも3個のデータ点によって測定したときに、 $|80|$ よりも小さい、ポリエステル組成物が提供される。

【0017】

本発明の追加の態様に於いて、5 又はそれ以上の最終再加熱温度デルタ、70 又はそれ以上の L^* 等級及び3.8 又はそれ以下の b^* 等級を有するポリエステルプリフォームが提供される。

【0018】

本発明の更に他の態様に於いて、10 又はそれ以上の最終再加熱温度デルタ及び70 又はそれ以上の L^* 等級を有するポリエステルプリフォームが提供される。

【0019】

本発明者等は、驚くべきことに、ポリエステル組成物の再加熱速度を改良するのみならず、この組成物の静止摩擦係数（「COF」）を減少するように機能する添加剤を見出した。本発明の組成物で観察された別の予想外の結果は、ボトルの静止摩擦係数を、ポリエステル組成物の中に、添加剤を典型的な粘着性ボトル添加剤レベル（70～150 ppm）で添加することによって、再加熱添加剤としても機能し、更に、許容できる明度、側壁ボトルヘイズ及び色を維持しながら、減少させることができることである。カーボンブラック又は黑色酸化鉄のような従来の再加熱添加剤の量を、70～125 ppmの範囲内の典型的な粘着性ボトル添加剤レベルまで上昇させることは可能ではなかった。それは、このようなレベルで、プリフォーム及び得られる物品が、許容できないほど低い L^* 及び高いヘイズレベルを有するからである。

【0020】

それ故、本発明の他の態様は、プリフォームから製造されたポリエステル飲料ボトルであって、プリフォームが、5 又はそれ以上の最終再加熱温度デルタ、3.8 より小さい

10

20

30

40

50

b^{*}等級を有し、そしてプリフォームから製造されたボトルが0.6又はそれ以下の静止摩擦係数を有するボトルを提供する。

【0021】

更に、本発明は、プリフォームから製造されたポリエステル飲料ボトルであって、プリフォームが、5又はそれ以上の最終再加熱温度デルタ及び少なくとも70のL^{*}値を有し、そしてボトルが0.6又はそれ以下の静止摩擦係数を有するボトルを提供する。

【0022】

本発明の更に他の態様に於いて、プリフォームから製造されたポリエステル飲料ボトルであって、プリフォームが、1.05又はそれ以上の再加熱指数及び78又はそれ以上のL^{*}値を有するボトルが提供される。

10

【0023】

本発明のなお別の態様に於いて、ヘイズ%値及びポリエステル組成物中に存在する添加剤の増加する量と共に0.95と1.15との間で増加する再加熱指数を有するポリエステル組成物であって、1%~40%の数字でのy軸上の、それぞれ67ミルの厚さを有し合計で201ミルの厚さである3層のディスクで測定したときのヘイズ%及びx軸上の再加熱指数によって表される曲線の勾配が、少なくとも0.03単位の間隔を使用する再加熱指数値に関して1.00と1.15との間のどこか少なくとも3個のデータ点によって測定されたとき、75より小さく、そして前記ポリエステル組成物が0.8より小さい静止摩擦係数を有する組成物が提供される。

【0024】

20

本発明にはまた、50ppm~150ppmの範囲内の量で、それぞれ添加剤を含有しない組成物に対して、組成物の再加熱速度を、添加剤の最初の50ppmについて少なくとも2.5ほど増加させ、そして組成物の静止摩擦係数を、添加剤の最初の50ppmについて少なくとも20%ほど減少させるように機能する添加剤からなり、組成物が、9%より小さいヘイズ値、好ましくは、5%又はそれ以下のボトル側壁ヘイズ値を有するポリエステル組成物が提供される態様が含まれる。

【0025】

また、25及び1気圧で熱可塑性ポリマー連続相固体及び添加剤を含有しない組成物に対して組成物の静止摩擦係数を減少させる添加剤からなる熱可塑性組成物であって、前記組成物が、熱可塑性連続相の重量に対して50ppm~250ppmの添加剤範囲内の1点で測定したとき、0.2の静止摩擦係数を有する熱可塑性組成物が提供される。

30

【0026】

これらの態様のそれぞれに於いて、それぞれの製造方法並びにプリフォーム及びこのプリフォームから吹込成形された物品、特にボトル並びにガラス状炭素を含有するこれらの組成物を包含する追加の態様が提供される。

【発明を実施するための最良の形態】

【0027】

本発明は、添付図面を参照し、かつ実施例を含む、以下の詳細な説明を参照することによって、一層容易に理解することができる。プラスチック物品を加工するための具体的な方法及び/又はプロセス条件は、勿論変化し得るので、本発明は、記載された具体的な方法及び条件に限定されないことが理解されるべきである。本明細書で使用する用語は、具体的な態様を説明する目的のみのためであり、限定されることを意図しないことも理解されるべきである。

40

【0028】

本明細書及び付属する特許請求の範囲で使用する、単数形には、文脈で明らかに他の方法で指示されていない限り、複数の指示物が含まれるものとする。例えば、熱可塑性の「プリフォーム」、「物品」、「容器」又は「ボトル」を加工するための参照は、複数の熱可塑性プリフォーム、物品、容器又はボトルの加工を含むことが意図される。

【0029】

範囲は、本明細書に於いて、「約」又は「ほぼ」一つの特定の値~「約」又は「ほぼ」

50

他の特定の値のように表現する。このような範囲が表されるとき、他の態様には、一つの特定の値から他の特定の値までが含まれる。

【0030】

「を含んでなる」又は「含有する」によって、少なくとも1種の名前を挙げられた化合物、要素、粒子等が組成物又は物品中に存在しなくてはならないが、他のこのような化合物、材料、粒子等が、名前を挙げたものと同じ機能を有する場合には、他の化合物、材料、粒子等の存在を排除しないことが意味される。

【0031】

「再加熱添加剤」によって、同一試験条件下で、適用が実際に組成物を再加熱することを必要とするか否かで、特定の添加剤が存在しない以外は同じ組成物に比較して、添加剤の最初の100ppm以内で少なくとも3 ほど組成物の最終温度を上昇させる能力を有する、ポリエステル又はポリエステル前駆体に添加するために適した化合物又は要素を製造するための任意の成分又は反応性成分の組合せが意味される。

10

【0032】

一つの態様に於いて、25 及び1気圧で固体である熱可塑性ポリマー連続相中に分布されたガラス状炭素粒子を含む熱可塑性ポリマー組成物が提供される。熱可塑性ポリマーは、熱可塑性ポリマーが、液体（溶融）相状態にある間に整列された構造を有しない点で、液晶ポリマーとは区別される。熱可塑性組成物は、任意に、そのようなものとして単離することができる。

【0033】

この態様に於いて、熱可塑性組成物中に含有される再加熱添加剤の少なくとも1種は、ガラス状炭素粒子であり、更に好ましくは、球状ガラス状炭素である。ガラス状炭素の意味は、炭素種類の当業者によく知られている。これは、一般的にガラス質炭素として知られている。炭素の種類は、グラファイト、カーボンブラック、活性炭及びガラス状炭素が、それらの構造、特性、製造方法及び用途の1個又はそれ以上によって識別することができる、炭素の別個の形態であることを認識している。

20

【0034】

ガラス状炭素の意味を限定することなく、一般的に製造されるガラス状炭素形態の1個又はそれ以上の特徴を例示するために、下記の説明を行う。ガラス状炭素を説明するために1個又はそれ以上の特徴を使用することができ、これらには、その外観、特性、構造、製造方法及び一般的用途が含まれる。ガラス状炭素の最も一般的な形態は、破壊したとき高い光沢及びガラス質又はガラス状外観を有する、黒色の稠密な脆性物質として記載することができる。ガラス状炭素は、通常、低い密度を有するが、その浸透性は、その極めて微細な細孔構造のために異常に低い。ガラス状炭素は、典型的に、0.05%未満の多孔度を有するが、合成過程に於いて細孔形成剤を使用することによって50%のように高い多孔度を有する幾つかのグレードを製造することができる。ガラス状炭素の構造は、長い範囲の整列を有しないリボン状分子のランダム配置として記載することができる。ガラス状炭素を製造するための合成方法は限定されないが、その製造のための一般的な公知の方法には、ポリフルフリルアルコール、フェノール-ホルムアルデヒド縮合ポリマー、ポリイミド及びポリアクリロニトリルのようなポリマー性炭素前駆体又は熱可塑性ポリマー（これは、通常、変化する程度まで三次元構造物に架橋され、次いで粉碎される）の形成、続く還元性雰囲気内又は真空若しくは不活性ガス（窒素を含む）中のような不活性雰囲気内で、72時間まで、典型的に48時間又はそれ以内で600 から約2800 まで、典型的に1000 から2000 までの範囲内の最高温度への制御された速度での、炭素前駆体の制御された熱分解（最終温度が得られると、2~5時間のみで熱分解することができる）が含まれる。熱分解の一般的な速度は、10 /分であるが、この速度は、より低い温度では、600~700 までの温度で約2 /時のようにもっと遅くすることができる。また、時間及び温度を変化させることによって、ガラス状炭素の電気抵抗率を、所望により調節することができる。ガラス質炭素を製造するための任意の他の方法も適している。

30

40

50

【 0 0 3 5 】

球の形状でのガラス状炭素の一つの製造方法には、ポリマー前駆体のエーロゾルを形成し、続いてこのエーロゾルを熱反応器内で熱分解することが含まれていた。その代わりに、熱硬化性樹脂ポリマーを、高速度遠心ミルのような任意の顆粒化方法によって粉碎し、スプレー乾燥又は懸濁させ、次いで熱分解炉内で焼結させることができる。最初に熱硬化性樹脂を粉末にまで小さくすることによって、熱分解時間を短縮させることができる。球を形成するための方法は限定されず、ポリエステルの中に含有させる時点で公知の任意の方法が含まれるが、ポリマー前駆体の熱分解によって形成された任意の炭素が、本発明で使用するための適切なガラス状炭素材料である。その高い純度及び顕著な耐薬品性に基づいて、化学的及び冶金学的処理用の容器として並びに触媒用の球状担体としての用途を見出してきた。 10

【 0 0 3 6 】

長範囲結晶性整列を殆ど又は実質的に有しないガラス状炭素とは反対に、グラファイトは一連の積み重ねられた平行面から構成されている。その結果、グラファイトは強い異方性特性を示す。ガラス状炭素及びグラファイトは高い光沢を有するが、グラファイトはガラス状炭素よりも柔らかい材料である。天然グラファイトは天然に生じる鉱物形であり、合成グラファイトは、コークス又はピッチを2500より高い温度に加熱することによって製造される。天然及び合成グラファイトの主な用途は、潤滑剤、耐火性材料及び電極としてである。

【 0 0 3 7 】

カーボンブラックは、不十分な空気中で炭化水素を燃焼させることによって形成される、炭素の無定形である。カーボンブラックは、ガラス状炭素の光沢及びガラス質外観に欠けている。カーボンブラックの構造は、互いにランダムに配向している、平行積層物中のグラファイト小板からなっている。カーボンブラックは、グラファイト中に見られる三次元結晶性整列に欠けている。これは、主として、ゴムの強化のために及び黒色顔料として使用される。 20

【 0 0 3 8 】

活性炭は、ガラス状炭素よりも、一層高度に発達した内部細孔構造及び大きい内部表面積を有する材料である。活性炭は、石炭、褐炭、木材、堅果の殻、ピッチ及びコークスのような炭素に富んだ有機材料から形成される。これは二段階方法によって製造される。第一段階に於いて、有機前駆体を炭化して、潜在細孔構造を有する材料を製造する。第二段階に於いて、炭を過熱スチーム又は二酸化炭素中で燃焼させて、細孔入口を閉鎖している炭素残渣を除去する。活性炭は、廃水処理、砂糖脱色及び種々の化学処理応用を含む、種々の精製方法に於いて吸着剤として使用される。 30

【 0 0 3 9 】

本発明に於いて使用されるガラス状炭素粒子の形状は限定されず、これには、球、小板、針、円柱及び炭素を粉末に粉碎することによって見出されるもののような不規則形状が含まれる。平均的ガラス状炭素粒子の形状は、好ましくは球である。球状粒子には、普通に球として理解されるもののみならず、卵形粒子、星形状及び何れか2個のx、y及びz粒子軸のそれぞれの組合せに沿って測定したとき、2又はそれ以下のアスペクト比を有する実質的三次元構造を有する任意の他の不規則形状粒子が含まれる。好ましくは、平均的球は平滑な湾曲した縁を有する。理論に限定されることなく、ガラス状炭素粒子の球形状は、L*明度及びb*色に見られる改良に寄与し、更に、ボトル仕上げに亘って一層均一な表面粗さを与えることによって、静止摩擦係数の減少を助ける。 40

【 0 0 4 0 】

本発明に於いて使用されるガラス状炭素の粒子サイズも、特に限定されない。しかしながら、粒子サイズを選択する際に、粒子サイズがプリフォームの明度及びヘイズ値に有する影響に考慮を払うべきである。ガラス状炭素の好ましい平均粒子サイズは、少なくとも0.1ミクロン、好ましくは少なくとも0.4ミクロン、更に好ましくは少なくとも1ミクロンであり、適切には、400ミクロン又はそれ以下、好ましくは100ミクロン又は 50

それ以下、更に好ましくは40ミクロン又はそれ以下、最も好ましくは20ミクロン又はそれ以下、更に12ミクロン又はそれ以下である。一般的に、球状ガラス状炭素球サイズは、どこかでこの範囲内の平均粒子サイズを有する粒子サイズの範囲を有する組成物として提供される。平均粒子サイズは、この範囲内の粒子サイズを有する粒子の最大数によって表される。所望により、粒子サイズは、レーザー回折型粒子サイズ分布計で測定できる。

【0041】

ポリエステル中に使用されるガラス状炭素の粒子サイズ分布は限定されない。狭い又は広い粒子サイズ分布を有するガラス状炭素粒子を使用することができる。例示するために、ガラス状炭素組成物は、任意的に、40ミクロン又はそれ以下又は20ミクロン又はそれ以下又は10ミクロン又はそれ以下又は5ミクロン又はそれ以下の、粒子の少なくとも5%を有する最低サイズ点と粒子の少なくとも5%を有する最高サイズ点との間の差の粒子サイズ分布を有する。粒子サイズ分布曲線は、単モード又は多モードであってよい。

10

【0042】

ポリエステル中の目に見える斑点の形成を回避するために、アグリゲートを含有しないガラス状炭素粒子を使用することが望ましい。また、ヘイズ及び L^* への影響を最小にするために、ガラス状炭素が灰分を含有しないことが好ましい。更に、使用される特別の製造方法又は輸送条件は、球状粒子の幾らかを破損及び破壊させるかもしれない。球状粒子を使用するとき、再加熱の与えられた速度での L^* を増強し、そして再加熱の速度を改良するために、粒子の25%又はそれ以下、更に好ましくは5%又はそれ以下が、破損、破壊又は粉砕される組成物を使用することが望ましい。

20

【0043】

所望により、下記の形態学的特性を有するガラス状炭素を、本発明の実施で 사용할ことができる。例えば、熱可塑性組成物中のガラス状炭素の有用な形態は、 $1.40 \sim 1.70 \text{ g/cm}^3$ の嵩密度、 $5 \times 10^5 \sim 10 \times 10^5$ / cmの抵抗率、 $0.01 \sim 0.2 \text{ cal/cm} \cdot \text{秒}$ の熱伝導度及び0%の開放多孔度を有する。しかしながら、所望により、これらの範囲外のガラス状炭素の他の形態も有用である。

【0044】

ガラス状炭素の多孔度も、特に限定されない。しかしながら、粒子の表面を横切る最大寸法内で1ミクロンを越えない小さい表面細孔を有するガラス状炭素粒子が適している。また、 $0.0 \sim 0.03\%$ の範囲内の多孔度を有するガラス状炭素組成物も適している。にもかかわらず、1ミクロンを越える表面細孔を有するガラス状炭素粒子及び 0.03% を越える非常に多孔質のものも、熱可塑性組成物中の再加熱添加剤として適している。

30

【0045】

ガラス状炭素の特別の利点は、ポリエステル組成物、特にポリエチレンテレフタレートが、高い明度を有し、ガラス状炭素の大きい含有量でも+4より小さい b^* 等級を有し、そうして、ガラス状炭素の量を、COF及び再加熱速度に於ける追加の改良を得るように調節することができる広い窓を提供することである。プリフォームの再加熱速度を改良するためにポリエステル組成物中に使用される他の黒色再加熱添加剤（グラファイト、カーボンブラック、黒色酸化鉄）は、吹込成形されたボトルのCOFを減少させるように機能せず又はCOFを減少させるために典型的に見られる量（例えば、 $60 \text{ ppm} \sim 150 \text{ ppm}$ ）で添加した場合には、ヘイズレベル及び L^* 等級は、目に見える暗色又は黒色で許容されないようになる。それで、使用することができるガラス状炭素の量は、カーボンブラック又はグラファイトの場合のように $10 \sim 30 \text{ ppm}$ の低いレベルに制限されない。

40

【0046】

ポリエステル中に使用されるガラス状炭素の量は、特定の応用、再加熱時間に於ける所望の短縮、所望されるCOFに於ける減少のレベル並びに100から離れる L^* 明度値の移動に伴うゼロから離れる a^* 及び b^* の減少に於ける容認レベルに依存するであろう。一つの態様に於いて、ガラス状炭素の量は、少なくとも 1 ppm 、更に好ましくは少なくとも 5 ppm 、最も好ましくは少なくとも 50 ppm である。多くの応用に於いて、球状ガ

50

ラス状炭素の量は、少なくとも50ppm、或る場合には少なくとも60ppm、更に少なくとも70ppmである。球状ガラス状炭素の最大量は、所望の再加熱速度、COFに於ける減少又は L^* 、 b^* 及びヘイズに於ける維持の何れか1個又はそれ以上によってのみ制限され、これは応用又は顧客要求の中で変化し得る。この量は、一般的に、500ppmを越えず、更に典型的に300ppmより少なく、殆どの場合に、この量は250ppmを越えない。色、ヘイズ及び明度が、応用のための重要な特徴ではないこれらの応用に於いて、使用されるガラス状炭素の量は、5,000ppm以下であり、更に10,000ppm以下である。下記のようにガラス状炭素でコンセントレートを配合するとき、この量は10,000ppmを越えることができる。

【0047】

10

熱可塑性ポリマーの連続相の中に含有させるのに使用されるガラス状炭素粒子は、変性されたガラス状炭素粒子であってもよい。それ故、25及び1気圧で熱可塑性ポリマー連続相固体中の、1ppm~500ppmの変性されたガラス状炭素粒子からなる熱可塑性ポリマー組成物も提供される。このガラス状炭素は、ガラス状炭素粒子の上に有機ポリマー鎖若しくは有機ポリマー皮膜を付加することにより又はこの粒子の表面を化学的に若しくは物理的に処理することにより変性することができる。

【0048】

ガラス状炭素粒子をポリエステル組成物の中に含有させる方法は特に限定されない。ガラス状炭素粒子は、重合中若しくは重合後にポリマー反応剤系に、ポリマー溶融物に又はそれからボトルプリフォームが製造される、射出成形機内の成形中の粉末若しくはペレット又は溶融バルクポリエステルに添加することができる。ガラス状炭素は、ポリエステルポリマー、好ましくはポリエチレンテレフタレートに添加することができ、そしてガラス状炭素を射出成形機内の溶融ポリマーに供給すること又はガラス状炭素を射出成形機へのポリエチレンテレフタレートの供給物と、溶融ブレンドすること若しくはペレットをドライブレンドすることにより一緒にすることを含む、任意の方法で射出成形機に供給することができる。また、ガラス状炭素を、例えば任意的にリン酸と一緒にされたエチレングリコール供給物と共に、そしてそれによりエステル化反応装置に、プリポリマー反応装置に、重縮合反応装置に若しくは固相化のための反応装置内の固体ペレットに又はこれらの段階の中間の任意の点で添加することができる。これらの場合のそれぞれに於いて、ガラス状炭素は、ポリエチレンテレフタレート若しくはその前駆体正味と、ポリエチレンテレフタレートを含むコンセントレートとして組み合わせることができ又はキャリアーで希釈することができる。このキャリアーはポリエチレンテレフタレートと反応性で又は非反応性であってもよい。ガラス状炭素（正味又はコンセントレート中又はキャリアー中であるかに関係ない）及びバルクポリエステルは、一緒に混合する前に乾燥される。これらは、乾燥した空気又は窒素のような不活性ガスの雰囲気中で、そして所望により大気圧より低い圧力で乾燥させることができる。

20

30

【0049】

一つの態様に於いて、それぞれコンセントレート組成物の重量基準で、少なくとも0.05重量%、好ましくは少なくとも2重量%で、約35重量%以下、好ましくは20重量%以下の量のガラス状炭素及び少なくとも65重量%、好ましくは少なくとも80重量%で、99重量%以下、好ましくは98重量%以下の量の、ポリエステル、ポリオレフィン又はポリカーボネートのような、25及び1気圧で通常固体である熱可塑性ポリマーからなるコンセントレート組成物が提供される。このコンセントレートは、液体形又は固体形であってもよい。プリフォームへのポリマーの転換業者は、射出成形段階で、連続的に又は間欠的に、液体溶融形で又は固体ブレンドとして、ガラス状炭素をバルクポリエステルに添加すること並びに最終用途応用及び顧客要求に適合するようにコンセントレートの量を計量することによって、プリフォーム中に含有されるガラス状炭素の量を注文通り調節する柔軟性を有する。

40

【0050】

コンセントレートは、ガラス状炭素を、ポリカーボネート、ポリエステル又はポリオレ

50

フィンのようなポリマーと、単軸又は二軸スクリュウ押出機内で混合し、そして任意的に他の再加熱添加剤と配合することによって製造することができる。好ましいポリカーボネートは、ビスフェノール A ポリカーボネートである。好ましいポリオレフィン、ポリエチレン及びポリプロピレンである。熔融温度は、少なくともポリマーの融点と同じように高くなくてはならない。ポリエチレンテレフタレートのようなポリエステルについて、熔融温度は、典型的に 260 ~ 310 の範囲内である。好ましくは、熔融配合温度は、できるだけ低く維持される。押出物は、ストランド形のような任意の形状で引き取ることができる、切断のような普通の方法により回収することができる。

【0051】

コンセントレートは、好ましくは、最終物品中に使用されるのと同様のポリエステル中で製造される。しかしながら、或る場合には、コンセントレート中で、ポリオレフィンのような他のポリマーを使用することが有利であるかもしれない。ポリオレフィン/ガラス状炭素コンセントレートをポリエステルとブレンドする場合に、ポリオレフィンはバルクポリエステルのための核生成添加剤として含有される。

10

【0052】

一つの態様に於いて、コンセントレートは、バルクポリエステルに又はコンセントレートがバルクポリエステル若しくはその前駆体と最も相溶性であるような方法で、ポリエチレンテレフタレートを製造するための異なった段階に沿ったどこかで添加される。例えば、コンセントレートの添加の点又は I t V は、ポリエチレンテレフタレートの I t V とコンセントレートの I t V とが類似である、例えば、60 / 40 重量 / 重量フェノール / テトラクロロエタン溶液中で 25 で測定したときに、+ / - 0.2 I t V であるように選択することができる。コンセントレートは、重縮合段階中で製造中であるポリエチレンテレフタレートの典型的な I t V に適合するように、0.3 ~ 0.65 の範囲内の I t V で製造することができる。また、コンセントレートは、射出成形段階で使用される固相ペレットのものと類似の I t V (例えば、0.6 ~ 1.1 の I t V) で製造することができる。

20

【0053】

多くの他の成分を、コンセントレートに添加することができる。例えば、結晶化助剤、耐衝撃性改良剤、表面滑剤、嵌め外し剤 (denesting agent)、安定剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、金属失活剤、二酸化チタン及びカーボンブラックのような着色剤、ポリエチレン及びポリプロピレンのような核生成剤、燐酸塩安定剤、充填材等をこれに含めることができる。任意のこれらの添加剤及びその使用は当該技術分野で公知である。

30

【0054】

本発明の組成物中の熱可塑性ポリマーは、25 及び 1 気圧で固体である限り、任意の熱可塑性ホモポリマー又はコポリマーであってよい。この熱可塑性ポリマーは、その中にガラス状炭素が分散されている連続相を形成する。連続相「の中に」分散されていることによって、ガラス状炭素が、通常、皮膜内であると予想されるような表面上に配置されているのとは反対に、少なくとも、熱可塑性組成物の断面切り口の一部の中に含有されていることが意味される。ガラス状炭素は、粒子がポリマーの表面以外の領域内に存在している限り、熱可塑性ポリマーの表面上に配置されていてよい。ガラス状炭素は、熱可塑性ポリマー内にランダムに分布されていてよく、全体にランダムに分布されていてよく、別個の領域内に分布されていてよく又は熱可塑性ポリマーの部分内にのみ分布されていてよい。好ましくは、ガラス状炭素は、熱可塑性連続相中にランダムに分布されており、更に好ましくは分布は均一であり、最も好ましくは分布は、更に熱可塑性ポリマーの連続相全体に亘っている。

40

【0055】

適当な熱可塑性ポリマーの例には、ポリエチレンテレフタレート (PET)、ポリエチレンナフタレート (PEN)、ポリカーボネート (PC) 及びそれぞれのコポリエステル並びに PET と PEN とのような、それぞれのブレンドが含まれる。本発明で使用する熱可塑性ポリマーは、最も有用に、ポリエステル組成物、特に部分的に芳香族のポリエス

50

テル、特に少なくとも主として芳香族二酸及び脂肪族ジオールから誘導されるポリエステルからなる。好ましいポリエステルは、ポリエチレンテレフタレートである。本明細書に於いて使用する、ポリエチレンテレフタレートは、ポリマー中の単位の全モル数基準で少なくとも60モル%の量で、エチレンテレフタレート単位を有するポリマーを意味する。好ましくは、このポリマーには、少なくとも85モル%の量でエチレンテレフタレート単位が含まれる。それで、ポリエチレンテレフタレートポリマーは、エチレンテレフタレート単位と、アルキレングリコール又はアリアルグリコールと脂肪族ジカルボン酸又はアリアルジカルボン酸とから誘導される他の単位とのコポリエステルからなっていてよい。

【0056】

例えば、ポリエチレンテレフタレートは、少なくとも60モル%、好ましくは少なくとも70モル%、更に好ましくは少なくとも85モル%、なお更に好ましくは少なくとも90モル%、多くの応用のために少なくとも95モル%の、テレフタル酸又はテレフタル酸C₁~C₄ジアルキルエステルからなる二酸又はジエステル成分と、少なくとも60モル%、好ましくは少なくとも70モル%、更に好ましくは少なくとも85モル%、なお更に好ましくは少なくとも90モル%、多くの応用のために少なくとも95モル%の、エチレングリコールからなるジオール成分との反応によって製造することができる。また、二酸成分がテレフタル酸であり、そしてジオール成分がエチレングリコールであることが好ましい。二酸成分の全てについてのモルパーセントは合計100モル%であり、そしてジオール成分の全てについてのモルパーセントは合計100モル%である。

【0057】

一つの態様に於いて、熱可塑性組成物は、大部分のポリエステル組成物からなり、好ましくは、ポリエステル組成物は、組成物の連続相を形成する熱可塑性組成物中のポリマーの重量（充填材、繊維、耐衝撃性改良剤又は不連続相を形成する他のポリマーを除く）基準で、少なくとも80重量%、更に好ましくは少なくとも95重量%、最も好ましくは少なくとも98重量%の量で存在する。ポリエステル組成物は、好ましくは、少なくとも60重量%のポリエチレンテレフタレート、更に好ましくは少なくとも90重量%のポリエチレンテレフタレート、最も好ましくは100重量%のポリエチレンテレフタレートからなる。前記のように、ポリエチレンテレフタレートポリマーには、少なくとも60モル%のエチレンテレフタレート単位が含有される。この態様に於いて、ポリエチレンテレフタレートは、少なくとも90モル%のテレフタル酸及び少なくとも90モル%のエチレングリコールから製造されることが好ましい。

【0058】

典型的には、ポリエチレンテレフタレートポリマーのようなポリエステルは、グリコールを遊離酸又はそのジメチルエステルとしてのジカルボン酸と反応させてプリポリマー化合物を製造し、次いでこれを重縮合してポリエステルの分子量を、固相重合によって更に増加させることができる。溶融及び/又は固相重縮合の後で、ポリエステルは、好ましくは、60/40重量比のフェノール/テトラクロロエタン中で25で測定した、少なくとも0.60 dL/g、更に好ましくは少なくとも0.70 dL/gの極限粘度数（ $\eta_{\text{sp}}/\text{c}$ ）を有する。

【0059】

テレフタル酸から誘導される単位に加えて、本発明のポリエステルの酸成分は、1種又はそれ以上の追加のジカルボン酸から誘導される単位で変性することができる。このような追加のジカルボン酸には、好ましくは炭素数8~14の芳香族ジカルボン酸、好ましくは炭素数4~12の脂肪族ジカルボン酸又は好ましくは炭素数8~12のシクロ脂肪族ジカルボン酸が含まれる。酸成分を変性するために有用なジカルボン酸単位の例は、フタル酸、イソフタル酸、ナフタレン-2,6-ジカルボン酸、シクロヘキサンジカルボン酸、シクロヘキサン二酢酸、ジフェニル-4,4'-ジカルボン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸等からの単位であり、イソフタル酸、ナフタレン-2,6-ジカルボン酸及びシクロヘキサンジカルボン酸が最も好ましい。これらの酸の

対応する酸無水物、エステル及び酸クロリドの使用が、用語「ジカルボン酸」に含まれることが理解されるべきである。

【0060】

エチレングリコールから誘導される単位に加えて、本発明のポリエステルのジオール成分は、好ましくは炭素数6～20のシクロ脂肪族ジオール及び好ましくは炭素数3～20の脂肪族ジオールを含む追加のジオールからの単位で変性することができる。このようなジオールの例には、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、1,4-シクロヘキサジメタノール、プロパン-1,3-ジオール、ブタン-1,4-ジオール、ペンタン-1,5-ジオール、ヘキサン-1,6-ジオール、3-メチルペンタンジオール-(2,4)、2-メチルペンタンジオール-(1,4)、2,2,4-トリメチルペンタンジオール-(1,3)、2,5-エチルヘキサジジオール-(1,3)、2,2-ジエチルプロパンジオール-(1,3)、ヘキサジジオール-(1,3)、1,4-ジ-(ヒドロキシエトキシ)-ベンゼン、2,2-ビス-(4-ヒドロキシシクロヘキシル)-プロパン、2,4-ジヒドロキシ-1,1,3,3-テトラメチル-シクロブタン、2,2-ビス-(3-ヒドロキシエトキシフェニル)-プロパン及び2,2-ビス-(4-ヒドロキシプロポキシフェニル)-プロパンが含まれる。

10

【0061】

ポリエステルは、エステル化及び重縮合を実施するために十分な、当該技術分野で公知の一般的な重合方法によって製造することができる。ポリエステル重縮合方法には、ジカルボン酸とジオールとの直接縮合、エステル交換反応及び固相重合方法が含まれる。使用することができる典型的なポリエステル化触媒には、チタンアルコキシド、ジブチル錫ジラウレート並びに別々に又は任意的に、亜鉛、マンガン若しくはマグネシウムの酢酸塩若しくは安息香酸塩及び/若しくは当業者に公知であるような他の触媒物質と組み合わせて使用される、酸化アンチモン又は三酢酸アンチモンが含まれる。任意的に、リン及びコバルト化合物が存在してもよい。

20

【0062】

例えば、1種又はそれ以上のジカルボン酸、好ましくは芳香族ジカルボン酸又はそのエステル形成性誘導体と、1種又はそれ以上のジオールとの混合物を、エステル化及び/又はエステル交換触媒の存在下で、エステル化ゾーン中で、任意に重縮合触媒と共に、約150～約300、好ましくは約200～約300、そして一般的な反応に於いて典型的に約260～約300の範囲内の温度で、大気圧から約0.2mmHgの範囲内の圧力で加熱することができる。通常、ジカルボン酸は、高い圧力でそして約240～約270の温度で、ジオール(群)によりエステル化される。重縮合反応は、予備重合帯域で溶融相で開始され、継続され、そして仕上げゾーンで溶融相で仕上げられ、その後、重縮合反応が固相化ゾーンで固相で継続される。予備重合ゾーンに於いて、分子量増加は、温度を約260から約280以下まで上昇させることにより、そして圧力を低下させること(その間に、過剰のジオールが混合物から除去される)により達成される。重縮合は、約0.70以下のI t Vが達成されるまで、より高い温度の方に勾配が付けられた一連の仕上げ容器内にある仕上げゾーン内で継続し得る。酸化アンチモン又は三酢酸アンチモンのような触媒材料を、リン、コバルト化合物及び着色剤(これらは、任意に仕上げゾーンに添加することができる)と共に予備重合ゾーンに添加することができる。典型的なDMTベース方法に於いて、当業者は、他の触媒材料並びに触媒材料及び他の成分の添加点が、典型的な直接エステル化方法から変化することを認識している。ガラス状炭素は、エステル化を含む溶融相にある全ての段階、プリポリマー及び/又はペレット化の前の全ての段階を含む仕上げ段階で添加することができる。溶融相で重縮合が完結した後、ポリエステルはペレット化され、そして固相重合容器に、任意に、ペレットが固相化ゾーン内で一緒に粘着することを防止するための結晶化器を通して輸送され、重縮合分子量増加を継続し、最終の所望のI t Vを有するペレットを製造する。

30

40

【0063】

ポリエステル組成物の性能特性を増強するために、他の成分を本発明の組成物に添加す

50

ることができる。例えば結晶化助剤、耐衝撃性改良剤、表面滑剤、嵌め外し剤、安定剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、金属失活剤、着色剤、核生成剤、アセトアルデヒド減少化合物、他の再加熱減少助剤、充填材等が含まれてよい。また、樹脂には、少量の、トリメリト酸無水物、トリメチロールプロパン、ピロメリト酸二無水物、ペンタエリスリトール及び当該技術分野で一般的に知られている他のポリエステル形成性ポリ酸又はポリオールのような三官能性又は四官能性モノマーのような分枝剤が含有されていてよい。これらの添加剤及び多くの他のものの全て並びにこれらの使用は当該技術分野で公知であり、詳細に説明する必要はない。これらの化合物の何れも、本発明の組成物に使用することができる。本発明の組成物は、変性量の他の成分が存在するのみで、本質的に、熱可塑性ポリマーとガラス状炭素とのブレンドからなる。

10

【0064】

本発明のポリエステル組成物は、試験管形状で、一般的に射出成形又は熱成形された物品である、パリソンとしても知られているボトルプリフォームを成形するために使用することができる。無定形プリフォームを、典型的に、プリフォームを石英赤外線加熱ランプの列を通過させることにより、ポリマー組成物のガラス転移温度よりも約20℃以上に加熱し、プリフォームをボトル金型の中に配置し、次いで、金型の開口端を通して加圧空気を吹き込み、幾つかの場合に、プリフォームを延伸吹込成形する。

【0065】

本発明の熱可塑性組成物、好ましくはポリエステル組成物から、種々の物品を製造することができる。物品には、シート、フィルム、ボトル、トレイ、他の包装材料、棒、チューブ、蓋及び射出成形物品が含まれる。任意の種類のボトルを、本発明のポリエステル組成物から製造することができる。一つの態様に於いて、水を保持するために適している、ポリエチレンテレフタレートから製造された飲料ボトルが提供される。他の態様に於いて、ボトルの中に熱時充填される飲料を保持するために適しているヒートセット飲料ボトルが提供される。

20

【0066】

プリフォーム完成品の結晶化は、(ヨシノ(Yoshino)方法に於けるような)プリフォームに対して、(特許文献1に概説されているサイデル(Sidel)SRCF方法に於けるような)プリボトルに対して又は実際のヒートセットボトルに対して実施することができる。例えば、ヒートセットボトルは、プリフォームを暖かい又は熱い金型の中に入れ、容器に延伸することによって製造することができる。これらのボトルは、典型的に、約1体積%より大きく収縮することなく、熱時充填に耐えるように設計されている。必要ではないが、ボトルの熱時充填の際の熱変形に耐えるために、ボトル側壁に於いて大きい球晶結晶化度を達成することが望ましい。

30

【0067】

例えば、プリフォームを形成した後、プリフォームを結晶化機械に輸送する。プリフォームは、好ましくは、プリフォームの本体を結晶加熱への曝露に対して保護するが、完成品を曝露させるキャリアーの中に載せられる。プリフォームを含むこのキャリアーは、結晶化機械を通過させられ、結晶化機械で、プリフォーム完成品は、完成品を結晶化させるために十分な時間、赤外線エネルギーに曝露される。この段階には、好ましくは、プリフォームの本体を保護しながら、プリフォーム完成品の少なくとも一部を、(IR範囲を含んでよいスペクトルに亘る)オープン列内のランプからの放射熱に曝露することが含まれる。完成品は、選択されたポリエステルが迅速に結晶化する温度(PETについて、約150℃～約180℃)に加熱される。これにより、高度に結晶性の完成品、即ち最小の重量%での球晶結晶化度レベルになる。これらの高いレベルの結晶化度は、得られる容器を、完成領域内の熱変形を受けることなく熱時充填できるようにする、完成品への寸法安定性を与える。

40

【0068】

本発明で使用するガラス状炭素再加熱添加剤は、プリフォームの再加熱速度、明度及び色並びにこれらのプリフォームから製造されたボトルのヘイズ値及び静止摩擦係数に影響

50

響を与える。これらのプリフォーム特徴の何れか1個又はそれ以上は、単に使用する再加熱添加剤の量を変化させることによって調節することができる。

【0069】

再加熱速度は、下記の例に記載された試験方法に従って測定される。再加熱速度に於ける改良は、 T_f の項目で表すことができるのみならず、再加熱分析で得られた結果を得、

【0070】

$RHI = \text{サンプル } T / \text{対照 } T$

(式中、 T は、 $T_f - T_i$ である)

のようにして再加熱指数を計算することによって再加熱指数の項目で表すことができる。

この式からわかるように、再加熱指数は、対照に対するサンプルの性能を迅速に示す便利な値である。 10

【0071】

ガラス状炭素を含む任意の再加熱添加剤の、樹脂の色への影響は、CIEカラー標準 L^* 、 a^* 及び b^* 値を使用して判断することができる。 L^* 値は、明度の尺度であり、 a^* 値は、赤(+)及び緑(-)の尺度であり、そして b^* 値は、黄(+)及び青(-)の尺度である。これらの値は、ASTM D-2244-93に従って測定される。色測定理論及び実施は、非特許文献1で、Fred W. Billmeyer, Jr.により非常に詳細に検討されている。明度は、CIE 1976対比-カラースケールで L^* として測定され、ここで、100%は、全ての波長で100%反射する完全白色対象物又は全ての波長で100%透過する無色サンプルを表す。無色サンプルでの100の L^* は、完全に透明であり、他方、無色サンプルでの0の L^* は、不透明である。 L^* は、人の目が応答するとき応答するように校正されるので、参照は見掛け透明度に対してなされる。一般的に、可視スペクトルで暗い再加熱剤は、 L^* へのそれらの負の影響のために、非常に少量のみで添加される。それで、大量(例えば、65ppmより多い)の、目に対して黒であるガラス状炭素粒子を、プリフォーム中の許容できる L^* 明度を維持しながら、ポリエステル組成物に添加できることは予想されなかった。 20

【0072】

本明細書で検討したボトルプリフォーム上で測定したときのポリエステル組成物についての L^* 値は、一般的に、(約154ミルの側壁断面厚さを有するプリフォームサンプル上で測定したとき)65.0より大きく、更に好ましくは少なくとも70.0、最も好ましくは少なくとも75.0でなくてはならない。特別の L^* 明度を特定することは、特別の側壁断面厚さを有するプリフォームが実際に使用されることを意味せず、 L^* が測定される場合に、実際に使用されるポリエステル組成物が、組成物の L^* を試験しそして評価する目的のために、154ミルの厚さを有するプリフォームを製造するように射出成形されることのみを意味する。これと同じことが、特別の壁厚さを特定する全ての試験方法について真実である。 30

【0073】

154ミルの公称側壁断面厚さを有するプリフォームで測定するとき、熱可塑性組成物の色は、一般的に、好ましくは約マイナス2.0~約プラス1.0、更に好ましくは約マイナス1.5~約プラス0.5の範囲内の a^* 座標値によって示される。 b^* 座標値に関して、154ミルの側壁断面厚さを有するサンプルで測定したとき、-3.0から+5.0より小さい、更に好ましくは+4.0より小さい、最も好ましくは+3.8より小さい正值までの範囲内の b^* 値座標を有するボトルプリフォームを製造することが、一般的に望ましい。 40

【0074】

許容できるボトル側壁ヘイズを有するポリエステルは、一般的に、約12.5ミルの断面厚さを有するサンプルで測定したとき、6.0%より小さい、好ましくは5.0%より小さい、更に好ましくは4.0%より小さい、最も好ましくは3.0%以下のヘイズ値を有する。しかしながら、比較的高いヘイズ値を有するボトルに吹き込み成形された明るいプリフォーム(高い L^* 値)は、それにも拘わらず目には透明に見えるであろうことが、 50

注目されるべきである。ヘイズ窓は、高い明度を有するプリフォームによって補償される場合拡大させることができる。

【0075】

それで、ガラス状炭素を含有する熱可塑性組成物、好ましくはポリエステル組成物によって与えられる有利な特徴は、これらの組成物及びこれらの組成物から製造されたチューブ形状プリフォームが、再加熱添加剤を有しない対照に対して改良された再加熱速度を有することである。一つの態様に於いて、ガラス状炭素を含有するポリエステル組成物の最終再加熱温度は、112.5、好ましくは115、更に好ましくは120.0であり、このポリエステル組成物は、好ましくは、100%ポリエチレンテレフタレートであり、このポリエチレンテレフタレートは少なくとも95重量%のエチレンテレフタレート単位を有する。

10

【0076】

独立に、ガラス状炭素を含有する熱可塑性組成物、好ましくはポリエステル組成物によって提供される有利な特徴は、これらの組成物及びこれらの組成物から製造されたチューブ形状プリフォームが、100ppm~200ppmの範囲内の高い含有量でも、4.0より小さい、好ましくは3.8より小さい、更に好ましくは3.7より小さい、そしてそれぞれの場合に好ましくは-3.0より大きいb*色を有するように製造できることである。

【0077】

独立に、ガラス状炭素を含有する熱可塑性組成物、好ましくはポリエステル組成物によって提供される有利な特徴は、これらの組成物及びこれらの組成物から製造されたチューブ形状プリフォームのL*明度が、ガラス状炭素のより高い含有量（例えば、100ppm~200ppm）でも、ガラス状炭素含有量に対して高度に感受性でないことである。一つの態様に於いて、少なくとも70.0、好ましくは少なくとも75.0、更に好ましくは少なくとも80.0のL*を有する、ガラス状炭素を含有する熱可塑性組成物、好ましくはポリエステル組成物並びにこれらの組成物から製造されたプリフォーム及びボトルが提供される。

20

【0078】

独立に、ガラス状炭素を含有する熱可塑性組成物、好ましくはポリエステル組成物によって提供される有利な特徴は、これらの組成物から製造されたボトルの静止摩擦係数が低いことである。一つの態様に於いて、ガラス状炭素、好ましくは球状ガラス状炭素を含有する熱可塑性組成物、好ましくはポリエステル組成物が、0.6又はそれ以下、好ましくは0.40又はそれ以下、更に好ましくは0.20又はそれ以下の静止摩擦係数を有するボトルの形状で提供される。更に好ましい態様に於いて、球状ガラス状炭素粒子は、0.1ミクロン~20ミクロンの範囲内のいずれかの平均粒子サイズを有する。

30

【0079】

独立に、ガラス状炭素を含有する熱可塑性組成物、好ましくはポリエステル組成物によって提供される有利な特徴は、ボトル側壁ヘイズパーセントに於ける増加が、再加熱添加剤の同じレベルで、他の種類の黒色再加熱添加剤を含有する組成物よりも遙かに小さいことである。一つの態様に於いて、6.0%又はそれ以下、好ましくは5.0%又はそれ以下、更に好ましくは4.0%又はそれ以下の、12.5ミル(+/-0.4)の厚さで測定した側壁ボトルヘイズ値を有する、ガラス状炭素を含有する熱可塑性組成物、好ましくはポリエステル組成物が提供される。

40

【0080】

物理的特性の特別の組合せを有する、ポリエチレンテレフタレートのようなポリエステル組成物及びこの組成物から製造されたプリフォーム、シート、トレイ、ボトル又は他の物品も提供される。

【0081】

それで、一つの態様に於いて、5.0又はそれ以上の（サイデル2/3SBO、84%の全工率、ゾーン工率設定：Z1=90、Z2=50、Z3=50、Z4=80、Z5

50

= 80、Z6 = 65、Z7 = 55、Z8 = 50；ランプ設定：列1：ランプ1 - 8オン；列2：ランプ1、6、7オン；列3：ランプ1 - 7オン；換気 = 70%、プリブローカム設定は28であり、ハイブローカム設定は93であり、プリブロー圧力は10バールであり、ハイブロー圧力は40バールであり、速度は2400個ボトル/時であり、2リットルプリフォームで154ミルの厚さで、金型に入る直前の最終側壁プリフォーム温度を測定、から得られたプリフォーム側壁スキン温度により測定したときの)最終再加熱温度デルタ、70.0又はそれ以上の L^* 等級及び3.80より小さい b^* 等級を有する、プリフォーム形状ポリエステル組成物が提供される。最終再加熱温度デルタによって、ポリエステルサンプル組成物の最終再加熱温度と、ポリエステル組成物の再加熱速度を上昇させるためのエネルギーを吸収する任意の添加剤又は添加剤の組合せも含有しない同じ組成物の最終再加熱温度との間の、上記の試験方法によって測定されたときの差が意味される。また、この特性のセットを有するポリエステル組成物及びこれらのプリフォームから製造された又は熱成形された物品から製造されたボトル並びにこれらのポリエステル組成物から製造されたシート、フィルム包装材料、棒、チューブ、射出成形物品及び任意の他の物品も提供される。このポリエステル組成物には、好ましくは、再加熱添加剤としてのガラス状炭素、更に好ましくは球状ガラス状炭素が含有されている。

10

【0082】

10.0より高い、更に好ましくは15.0又はそれ以上の最終再加熱温度及び70.0又はそれ以上の L^* 等級を有するプリフォーム形状ポリエステル組成物も提供される。非常に高い再加熱速度及び高い明度のこの独特の組成物は利点を提供するのみならず、これはポリエステル組成物の明度に於ける更なる改良を得るための広い加工窓内で再加熱添加剤の量を変化させる柔軟性を有する。 L^* は好ましくは75又はそれ以上である。また、この特性のセットを有するポリエステル組成物及びこれらのプリフォームから製造された又は熱成形された物品から製造されたボトル並びにこれらのポリエステル組成物から製造されたシート、フィルム包装材料、棒、チューブ、射出成形物品及び任意の他の物品も提供される。このポリエステル組成物には、好ましくは、再加熱添加剤としてのガラス状炭素、更に好ましくは球状ガラス状炭素が含有されている。

20

【0083】

また、ポリエステル組成物、好ましくはプリフォーム又は熱成形されたシートから製造された飲料ボトル(但し、このプリフォーム又はシートは、5.0又はそれ以上の最終再加熱温度デルタ、3.8又はそれ以下、更に好ましくは3.7又はそれ以下の b^* 等級を有し、ボトルは、0.6又はそれ以下、更に好ましくは0.5又はそれ以下、最も好ましくは0.4又はそれ以下の静止摩擦係数を有する)も提供される。任意的に、この態様での L^* 等級は、65又はそれ以上、更に好ましくは70又はそれ以上、最も好ましくは75又はそれ以上である。また、この特性のセットを有するポリエステル組成物及びこれらのプリフォームから製造された又は熱成形された物品から製造されたボトル並びにこれらのポリエステル組成物から製造されたシート、フィルム包装材料、棒、チューブ、射出成形物品及び任意の他の物品も提供される。このポリエステル組成物には、好ましくは、再加熱添加剤としてのガラス状炭素、更に好ましくは球状ガラス状炭素が含有されている。

30

40

【0084】

また、ポリエステル組成物、好ましくはプリフォーム又は熱成形されたシートから製造されたポリエステル飲料ボトル(但し、このプリフォームは、5.0又はそれ以上、好ましくは10又はそれ以上、更に好ましくは15又はそれ以上の最終再加熱温度及び少なくとも70、更に好ましくは少なくとも75の L^* 値を有し、ボトルは、0.6又はそれ以下、更に好ましくは0.5又はそれ以下、最も好ましくは0.4又はそれ以下の静止摩擦係数を有する)も提供される。また、この特性のセットを有するポリエステル組成物及びこれらのプリフォームから製造された又は熱成形された物品から製造されたボトル並びにこれらのポリエステル組成物から製造されたシート、フィルム包装材料、棒、チューブ、射出成形物品及び任意の他の物品も提供される。このポリエステル組成物には、好

50

ましくは、再加熱添加剤としてのガラス状炭素、更に好ましくは球状ガラス状炭素が含有されている。

【0085】

更に、プリフォームから製造されたポリエステル飲料ボトルからなるポリエステル組成物（但し、このポリエステル組成物から製造された成形されたディスク（67ミル厚さ及び3cm直径）は、1.05又はそれ以上の再加熱指数及び78以上の L^* 値（このディスク3枚を積み重ねることによって測定したとき）を有する）が提供される。

【0086】

本発明の更に他の態様に於いて、50ppm~150ppmの範囲内の量の再加熱添加剤（これは、それぞれ前記添加剤を含有しない組成物に対して、組成物の再加熱速度を、添加剤の最初の50ppmについて少なくとも2.5ほど増加させ、そして組成物の静止摩擦係数を、添加剤の最初の50ppmについて少なくとも20%ほど減少させる）からなるポリエステル組成物であって、12.5ミルの厚さで測定した、9%又はそれ以下、好ましくは8%又はそれ以下、更に好ましくは5%又はそれ以下の側壁ボトルヘイズ値を有する組成物が提供される。再加熱添加剤は、好ましくはガラス状炭素、更に好ましくは球状ガラス状炭素からなる。

10

【0087】

また、少なくとも50ppm、好ましくは少なくとも60ppmの量で再加熱添加剤からなる飲料ボトルの製造のために適したポリエステル組成物であって、前記組成物が8%より小さい、好ましくは5.5又はそれ以下の、12.5ミルの厚さでの側壁ボトル試験により測定されたボトル側壁ヘイズ値を有し、前記添加剤が、前記ポリエステル組成物のヘイズ値が、50ppm~200ppmの範囲内の再加熱添加剤濃度を通して、8%より少なく、好ましくは5.5%又はそれ以下で残留するように選択される組成物も提供される。この態様に於いて、再加熱添加剤は、好ましくは球状ガラス状炭素であり、ポリエステル組成物はポリエチレンテレフタレートからなる。

20

【0088】

また、 L^* 値及びポリエステル組成物中に存在する任意の再加熱添加剤の増加する量と共に、0.95と1.15との間で増加する再加熱指数を有するポリエステル組成物であって、y軸上の L^* 測定値及びx軸上の再加熱指数に対してプロットされた添加剤の増加量を表す曲線の勾配が、少なくとも0.03単位の間隔を使用して、再加熱指数値に関して0.95と1.15との間のどこか少なくとも3個のデータ点により測定したとき、|80|以下である組成物も提供される。この態様の更に好ましい面に於いて、ポリエステル組成物は少なくとも75の L^* を有する。曲線の勾配は、好ましくは|50|より小さい。この態様には、また、プリフォーム及びボトルの形状にあるこれらのポリエステル組成物が含まれる。好ましい再加熱添加剤は、ガラス状炭素、更に好ましくは球状ガラス状炭素、最も好ましくは、0.1ミクロン~40ミクロン、更に好ましくは0.5~20ミクロンの範囲内の平均粒子サイズを有する球状ガラス状炭素である。

30

【0089】

本発明の他の態様に於いて、ヘイズ%値及びポリエステル組成物中に存在する再加熱添加剤の増加量と共に、0.95と1.15との間で増加する再加熱指数を有するポリエステル組成物であって、1%から40%までの数字でy軸上のヘイズ%及びx軸上の再加熱指数によって表される曲線の勾配が、少なくとも0.03単位の間隔を使用して、再加熱指数値に関して1.00と1.15との間のどこか少なくとも3個のデータ点により測定したとき、75より小さい、更に好ましくは50より小さく、そして前記ポリエステル組成物が、0.5以下、好ましくは0.4以下の静摩擦係数を有するポリエステル組成物が提供される。この態様に於けるヘイズ測定値は、合計厚さが201ミルであった3個のポリマーの成形ディスク上で決定される。

40

【0090】

ボトルが互いに粘着する傾向があるという問題点を克服するために、ボトルメーカーは、或る程度の潤滑性を与えるためにボトルの上に水スプレーを使用する。過去に於ける解

50

決方法は、ボトルの間の静止摩擦係数を減少する上で適度の成功を与えたが、この減少は、水スプレー無しで完全な解決を与えるために十分に大きくはなかった。0.20以下の静止摩擦係数が、水スプレーによってもたらされるのとはほぼ同等の利点をもたらすと信じられる。ここで、添加剤を含有しない組成物に対して組成物の静止摩擦係数を減少する添加剤を含有する熱可塑性組成物、好ましくはポリエチレンテレフタレートボトルであって、熱可塑性組成物が、熱可塑性連続相の重量に対して50ppm~250ppmの添加剤範囲内の1点で測定したとき0.2の静止摩擦係数を有する組成物が提供される。好ましくは、この熱可塑性組成物は、熱可塑性連続相の重量に対して50ppm~250ppmの範囲内の量で添加剤を含む。また、この特性のセットを有するポリエステル組成物及びこれらのプリフォームから製造された又は熱成形された物品から製造されたボトル並びにこれらのポリエステル組成物から製造されたシート、フィルム包装材料、棒、チューブ、射出成形物品及び任意の他の物品も提供される。このポリエステル組成物には、好ましくは、再加熱添加剤としてのガラス状炭素、更に好ましくは球状ガラス状炭素が含有されている。

10

【0091】

上記の態様のそれぞれに於いて、ポリエステル組成物は、好ましくは再加熱添加剤、更に好ましくはガラス状炭素、最も好ましくは球状ガラス状炭素からなる。

【0092】

本発明を、下記の実施例によって例示する。しかしながら、この実施例は、本発明への限定として解釈されるべきではない。

20

【実施例】

【0093】

再加熱速度測定は、下記の試験方法に従って行った。ポリマーサンプルを、67ミルの厚さで直径3cmのディスク又は150ミルの厚さで3インチ×3インチのブラックに射出成形した。このディスク又はブラックを、24時間放置して、環境温度に平衡化させた。対照のディスク/ブラック及び再加熱添加剤のそれぞれのレベルでの3種のサンプルディスク/ブラックの一組の両方を、それぞれ下記のようにして処理した。ディスク/ブラックを、その縁に沿ってのみ成形した物品を接触させて支持体の上に置いた。次いで、アクチュエーターにより、ディスク/ブラックは高温計の下に自動的に移動され、初期温度(T_i)を測定した。次いで、ディスク/ブラックを、60Vで作動する電球(GE DYH投光電球、250W、120V)を取り付けたランプの下に一定距離まで移動させ、そしてブラックの場合に30秒間又はディスクの場合に20秒間、放射光に露光させた。ランプの色温度は約2200であった。2200での理想的黒体放射体の発光スペクトルを、下記の図1に示す。加熱した後、ブラック/ディスクは、自動的に、高温計の方に戻り、そこでランプに面した側(前側)の中心領域の表面温度が、ランプが切られた2秒後に記録された(T_f)。連続した試験の間に90秒冷却サイクルが使用され、その間に、次のサンプルを装着する前にファンによってランプケースが冷却された。このサンプルの再加熱指数を、下記の式：

30

【0094】

再加熱指数 = $(T_f - T_i)_{\text{サンプル}} / (T_f - T_i)_{\text{対照}}$ によって計算した。ここで、実施例で使用した対照材料は、イーストマン・ケミカル社(Eastman Chemical Company)から市販されているベースPET2であり、サンプルディスク/ブラックと正確に同じ方法で試験した。

40

【0095】

L^* 、 a^* 及び b^* の測定は、下記の方法に従って行った。色は、成形したディスク(67ミルの厚さで3cm直径)、成形したブラック(150ミルの厚さで3インチ×3インチ)又は成形したプリフォームで測定した。使用したプリフォームスタイルは、154ミルの単一壁厚さ及び54グラムの重量を有する、長さが約6インチで直径が1.25インチの円筒からなる、標準2リットルボトル射出成形プリフォームであった。このプリフォームには、開口端でカラー及びねじ首が含まれていた。

50

【 0 0 9 6 】

ディスクの場合に、一緒に重ねた3個のディスク(厚さ約200ミル)上で、 L^* 、 a^* 及び b^* を測定するために、ハンターラボ・ウルトラスキャン(HunterLabUltraScan)分光比色計を使用した。この装置は、10°観察角度及び積層球形状でD65発光体光源を使用して操作した。色測定は、サンプルを直接的に透過する光と拡散的に散乱する光との両方を測定する、全透過(TTRAN)モードで行った。3個のチップを、光源の前で特別のホルダーを使用し、光源に対して垂直に置いた最大表面積の領域で、一緒に積み重ねた。

【 0 0 9 7 】

ブラックの場合に、 L^* 、 a^* 及び b^* 色座標を測定するために、全透過(TTRAN)モードで標準化したハンターラボ・ウルトラスキャンXE拡散/8°分光光度計を使用した。光源はD65発光体であり、観察角度は10°であった。2個の3インチ×3インチ×1/8インチのブラックと一緒に置き、カスタムサンプルホルダーを使用して光源の方に向けた。ブラックは、光源に対して垂直の3インチ×3インチ側面によって形成された平面で示された。

10

【 0 0 9 8 】

プリフォームの場合に、 L^* 、 a^* 及び b^* 色座標を測定するために、普通透過(RTRAN)モードで標準化したハンターラボ・ウルトラスキャンXE拡散/8°分光光度計を使用した。普通透過は、サンプルを直接通過する光を測定する。光源はD65発光体であり、観察角度は10°であった。プリフォームを、直接、測定のためのレンズの前で、特別のホルダーベースの上に置いた。

20

【 0 0 9 9 】

ヘイズは、成形したディスク及びボトル側壁試験片の両方で測定した。成形したディスクの場合に、ヘイズを測定するためにハンターラボ・ウルトラスキャン分光比色計を使用した。3個のディスクを、直接光源の前で、光源に対して垂直に置いた最大表面積で、一緒に積み重ねた。この装置は、D65発光体及び10°観察器を使用して、TTRANモードで操作した。透過ヘイズ測定値は、拡散光の、試験片により透過された全光に対する比である。ヘイズは、下記：

$$\text{ヘイズ} = (Y_{\text{拡散透過}} / Y_{\text{全透過}}) \times 100$$

のように計算される。

30

【 0 1 0 0 】

ボトル側壁ヘイズの測定は、下記の方法に従って行った。ヘイズ測定は、ASTM D1003、方法Aを使用し、発光体Cを有するヘイズガード・プラス・モデル(Hazegard Plus Model)4752を使用して、ボトル側壁の4インチ×4インチ部分上で、ASTM D-1003-00に従って行った。ボトル側壁の断面厚さは12.5ミルであった。破壊ヘイズ試験に付したボトル及び静止摩擦係数試験に付したボトルの製造のために使用した同じ樹脂配合物を、また、 L^* 、 a^* 及び b^* 色試験について試験するために付したプリフォームの製造のために使用した。

【 0 1 0 1 】

静止摩擦係数のための測定値は、下記の試験方法に従って決定した。この試験方法は、円筒形又は複雑な形状を有するプラスチックボトル又は表面の摩擦特性を測定することができる、速度及びトルク感受性デバイスを提供する。静止摩擦係数は、2リットルボトルを、ボトル中心を横切ってお互いに垂直で且つ接触状態で装着し、そして1個のボトルを静止ボトルに対して回転させることによって測定した。装着したボトルのそれぞれを、吹込成形し、金型から取り出して1時間以内に試験した。試験すべき第一の回転可能なボトルを、モーター軸に取り付けられているねじキャップの中に回してはめ込む。第二のボトルを、支柱に蝶番で取り付けられ、連結されているねじキャップの中に回してはめ込む。第二の蝶番付きボトルを、第一の回転可能なボトルに対して直角90°角度で第一のボトルの上部側壁と接触させる。500グラムの重りを取り付けたコードを、ボトルが支柱に取り付けられている転心から遠い第二の蝶番付きボトルの端部の周りに吊り下げる。コン

40

50

コンピュータコマンドを入力して、停止から 10 r p m の固定速度 (fixed speed) まで、モーター軸に取り付けられた第一の回転可能なボトルの転がり回転を起動させる。コンピュータは、モーター出力が、一定速度 (10 r p m) に達し、これを維持するために増加したとき、モデル番号 1602 - 100、リバウ・プロダクツ社 (Lebow Products Inc.) のようなトルク感受性モーターからの出力電圧を記録する。この出力電圧は、ボトルが、類似のものと接触しながら一定速度で回転するとき、ボトルが受けるトルクに比例する。このモードで、トルク感受性モーターに付随するタコ発電機は、ボトルが接触状態で停止から運動に設定されるとき一定速度を維持するように、トルクを自動的に調節する。静止摩擦係数は、式 $\mu = (\text{トルク} / R) / F_2$ (式中、トルクは、トルク感受性デバイスの出力であり、R は、ボトル半径であり、そして $F_2 = F_1 (L_1 / L_2)$ である) を使用してコンピュータプログラムによって計算される。ここで、 F_2 は、それらの接触点でボトルによって受けられる荷重であり、 F_1 は、蝶番付きボトルに適用される荷重又は重り (500 g) であり、 L_1 は、蝶番付きボトル転心から重りが適用される点までの距離 (12.25 インチ) であり、そして L_2 は、ボトル転心からボトル間の接触点までの距離 (6.25 インチ) である。

10

【0102】

ベース P E T 1 は、イーストマン・ケミカル社から、 $0.87 + / - 0.02$ の極限粘度数を有するヒートウェーブ (Heatwave) (商標) ポリマー C F 7 4 6 として市販されているポリエチレンテレフタレートポリマーである。

【0103】

20

ベース P E T 2 は、イーストマン・ケミカル社から 9921 W として市販されているポリエチレンテレフタレートポリマーである。この製品は、約 $0.80 + / - 0.02$ の極限粘度数を有する。

【0104】

ベース P E T 3 は、イーストマン・ケミカル社から、増強再加熱特性及び $0.84 + / - 0.02$ の極限粘度数を有する C B 1 2 として市販されているポリエチレンテレフタレートポリマーである。

【0105】

ベース P E T 4 は、 $0.80 + / - 0.02$ の極限粘度数を有する、イーストマン・ケミカル社から市販されているポリエチレンテレフタレートポリマー 9921 である。

30

【0106】

S G C は、任意の粒子サイズの球状ガラス状炭素についての一般名称である。

S G C 1 は、アルファ・アエサル社 (Alfa Aesal) から市販されている、 $0.4 \sim 1.2$ ミクロンの範囲内の粒子サイズを有する球状ガラス状炭素である。

【0107】

S G C 2 は、アルドリッチ・ケミカル社 (Aldrich Chemical Company) から市販されている、 $2 \sim 1.2$ ミクロンの範囲内の粒子サイズを有する球状ガラス状炭素である。

【0108】

S G C 3 は、アルドリッチ・ケミカル社から市販されている、 $1.0 \sim 4.0$ ミクロンの範囲内の粒子サイズを有する球状ガラス状炭素である。

40

【0109】

B I O は、フェロ社 (Ferro Corporation) から市販されている、約 1 ミクロンの平均粒子サイズを有する黒色酸化鉄である。

【0110】

C B は、デグッサ社 (DeGussa Corporation) から得られたカーボンブラックスペシャル・ブラック (Special Black) 4 である。

【0111】

G R は、アルドリッチ・ケミカル社から入手できる合成グラファイト粉末 ($1 \sim 2$ ミクロン粒子サイズ) である。

【0112】

50

R A は、三酸化アンチモンを含有するポリエチレンテレフタレートへの、リン酸還元剤のその場で (in situ) の添加により形成された、還元されたアンチモンである。

【 0 1 1 3 】

実施例 1

この実施例に於いて、S G C 2 再加熱添加剤を B I O 対照に対して比較する。再加熱添加剤は、下記の方法によって、表 1 に示した量でベース P E T 4 と一緒にした。任意の混合の前に、ベース P E T 4 ペレットを粉末にまで粉碎し、コンエアー (Conair) (商標) 除湿乾燥機内で 1 5 0 で 8 時間乾燥させた。それぞれの次のサンプルを、ベース P E T 4 の粉末を、適切なレベルの再加熱添加剤とドライブレンドし、続いてポリエチレン袋内で手混合することにより製造した。次いで、この混合物を一組の高剪断混合スクリュウが取り付けられた、二軸スクリュウ押出機の供給物ホッパーに添加した。押出機のベントに栓をし、窒素を連続的に供給物ホッパー及び押出機スロートの方に供給して、空気を排除した。押出機を、2 0 0 r p m のスクリュウ速度及び約 2 8 2 の温度で運転した。これらの条件下で、押出機バレル内のポリマー滞留時間は、ほぼ 3 分間であった。押出物を氷水浴内で急冷し、そして小さい円柱状ペレットに切断した。得られた無定形ペレット化材料を乾燥させ、1 7 5 で 4 5 分間結晶化させた。最終結晶性生成物を、1 7 0 で 8 時間更に乾燥させ、その後、色、ヘイズ及び再加熱試験のための 3 インチ × 3 インチ × 1 / 8 インチのプラーク (plaque) に射出成形した。

10

【 0 1 1 4 】

このプラークの再加熱速度及び明度 (L^*) を、前記の手順を使用して測定した。それぞれの組のプラークについての再加熱指数及び L^* を、表 I に報告する。

20

【 0 1 1 5 】

【表 1】

表 I

プラークサンプル	添加剤の量 (ppm)	再加熱指数 (プラークの)	L^* 色 (ダブルプラーク上で)
ベース P E T 4	0	0.97	83.0
w / S G C 2	80	1.06	77.0
w / B I O	21	1.07	69.3

30

【 0 1 1 6 】

表 I のデータからわかるように、S G C 2 添加剤は、如何なる添加剤も含有しないベース P E T 4 に対する、S G C 2 を含有するサンプルのより高い再加熱指数によって示されるように、再加熱速度を有効に増加する。更に、この結果は、S G C 2 を含有するポリマーが、B I O を含有する同じ再加熱指数のポリマーよりも明るい (即ち、より高い L^*) ことを示している。S G C 2 を含有ポリエチレンテレフタレートポリマーは、ポリマー中の S G C 2 の量が、B I O を含有するポリマーの殆ど 4 倍高いにも拘わらず、B I O を含有するポリエチレンテレフタレートポリマーよりも明るい。この結果は、他の要因無しで、高濃度の再加熱添加剤又は元素状材料を含有するポリマーは、より少ない再加熱添加剤又は元素を含有するポリマーのようには明るくないと予想されるので、特に驚くべきことである。

40

【 0 1 1 7 】

実施例 2

この実施例の目的は、B I O 及び C B 再加熱添加剤に対して S G C 2 及び S G C 3 再加

50

熱添加剤を比較することである。ベース P E T 2 中のこれらの添加剤のブレンドを、下記の方法で製造した。それぞれの添加剤を、ガラスボトル内で、3 mm 直径の円形穴を有する篩を通過するために十分に小さい粒子サイズにまで極低温的に粉碎したベース P E T 2 とドライブレンドした。このコンセントレート混合物中の再加熱添加剤含有量は、0.2 重量%であった。この混合物を、30 インチ水よりも低い圧力での真空オープン内で、110 で一夜乾燥させた。この乾燥混合物を、D A C A (商標) マイクロ配合機 / マイクロインゼクター内で、290 のスクリュウ温度及び 120 r p m のスクリュウ速度を使用して溶融ブレンドした。この混合物を器械内で 2 分間循環させ、次いで押し出した。得られた押出物をウィリー (Wiley) ミル内で極低温的に粉碎して、3 mm 直径の穴を有する篩を通過するために十分に小さい粉末を製造した。次いでこの最終溶融コンセントレート

10

を、一連のガラスジャー内で追加のベース P E T 2 とドライブレンドして、最終ポリマーセット中の再加熱添加剤の所望のコンセントレートを製造した。典型的に、これらの最終コンセントレートは、ベース P E T 2 中の再加熱添加剤の 5 ~ 200 p p m 範囲内であった。この最終混合物を、ディスクの最終製造の前に、110 で一夜乾燥させた。

【0118】

一連の3個の3 cm 直径、67 ミル厚さの透明なディスクを、上記の最終混合物のそれぞれから製造した。ディスク製造は、それぞれの混合物を、290 の温度及び 120 r p m のスクリュウ速度で、器械のマイクロインゼクターバレルの中に押し出すことによって行った。全てのディスクを成形することを試みる前に、バレルを材料でパージした。最終ディスクは、射出ピストンへの 80 ~ 120 p s i のインゼクター圧力を使用して製造

20

した。ディスク金型は、冷却水の循環により 10 ~ 25 の温度範囲で維持した。再加熱、色及びヘイズを、ディスクについて前記した方法に従って評価した。試験の結果を、表 II 及び図 2 に示す。

【0119】

【表 2】

表II：ディスク製造の結果

ディスクサンプル	添加剤の量 (ppm)	再加熱指数 (ディスク上)	L* (3枚の 積み重ねた ディスク上)	ヘイズ (3枚の 積み重ねた ディスク上)
ベースPET2(ブランク)	0	1.00	84.27	8.9
w/SGC2	10	1.042	82.23	7.1
w/SGC2	20	1.048	81.43	7.6
w/SGC2	60	1.068	79.92	9.0
w/SGC3	10	1.042	82.29	7.2
w/SGC3	20	1.026	82.72	6.7
w/SGC3	60	1.063	81.45	7.5
w/BIO	15	1.037	78.94	12.3
w/BIO	30	1.060	74.74	21.1
w/BIO	60	1.129	65.90	31.1
w/CB	5	1.068	75.95	6.6
w/CB	10	1.119	67.35	7.0
w/CB	20	1.191	54.9	7.6

10

20

【0120】

この結果は、SGC含有ディスクの再加熱速度が、添加された再加熱剤を含有しないブランクのベースPET2樹脂のディスクよりも良かったことを示している。この結果は、また、与えられた再加熱指数で、SGC2又はSGC3を含有するディスクのL*が、BIO又はCBを含有するディスクのL*よりも優れていたことを示している。また、これを図2にグラフで示す。

30

【0121】

図2は、再加熱指数とディスクL*との間の関係を示す。再加熱指数が増加するとき、ディスク明度は減少する(即ち、負の勾配)。それで、この関係のために、再加熱指数の増加(樹脂の望ましい特性)は、また、樹脂の望ましくない特性、即ち、明度の減少になる。しかしながら、図2から気づかれるように、ポリマー配合物の全ては、再加熱指数/L*プロットと同じ勾配を有しない。再加熱添加剤としてのSGCによって表される曲線の勾配は、BIO又はCBを含有する同じベースポリマーによって表される曲線の勾配のように急ではない。BIO又はCBを含有するベースポリマーのL*は、SGCを含有する同じベースポリマーに比較して顕著により高い速度で落ちている。それで、本発明の配合物は、同じ再加熱性能のレベルで、CB及びBIOのような公知の再加熱添加剤に比較して優れた明度を有する。

40

【0122】

SGC2によって表される曲線の勾配は、約-70であると計算され、そしてSGC3によって表される曲線の勾配は約-30であると計算され、一方、CB及びBIOについての勾配は、約-100を越えていると計算された。図2に示す結果は、L*値及びポリエステル組成物中に存在する任意の再加熱添加剤の増加する量と共に0.95~1.15

50

の間で増加する再加熱指数を有し、y 軸上の L^* 測定値及び x 軸上の再加熱指数に対してプロットされた、再加熱添加剤の増加する量を表す曲線の勾配が、少なくとも 0.03 単位の間隔を使用する再加熱指数値に関して 0.95 と 1.15 との間のどこか少なくとも 3 個のデータ点によって測定されたとき、| 80 | 又はそれ以下、好ましくは | 75 | 又はそれ以下、更に好ましくは | 50 | 又はそれ以下であるポリエステル組成物を得ることが可能であることを示している。

【 0 1 2 3 】

図 3 は、B I O を含有するベース P E T 2 ポリマーに対して比較した、S G C 2 又は S G C 3 を含有するベース P E T 2 ポリマーについてのヘイズに於ける改良をグラフで示している。再加熱指数が増加するとき、B I O を再加熱添加剤として使用するときディスクのヘイズ性も顕著に増加する。しかしながら、再加熱添加剤として S G C を含有するディスクのヘイズに於ける大きい増加は存在しない。それで、添加剤として S G C と共に配合されたポリエチレンテレフタレートポリマーから製造されたボトルは、同様の又は等価の再加熱指数値で B I O と共に配合されたものよりも明るく、ヘイズが少ない。

10

【 0 1 2 4 】

表 I I I は、また、S G C 2 又は S G C 3 を含有する幾つかの実施例により示されるように、1.05 又はそれ以上、好ましくは 1.060 又はそれ以上の再加熱指数及び 78 又はそれ以上の L^* 値を有するポリエステルプリフォームを製造することが可能であることを示している。

【 0 1 2 5 】

20

実施例 3

温度及び圧力の典型的な P E T 製造条件に対する S G C 添加剤の長期間曝露の影響を評価するために、研究所規模のポリマー製造を行った。一般的な製造手順を、ベース P E T 5 の製造について、以下に説明する。この実施例は、また、仕上げ段階での重縮合の前の、製造のプリポリマー段階で、熔融相にあるポリエチレンテレフタレート方法への再加熱添加剤の添加を示している。この経路によって製造されたポリマーは、色、再加熱及びヘイズ値の評価のためのディスクを製造するために使用される。この方式で評価した再加熱添加剤は、S G C 1 (0 ~ 150 p p m)、S G C 2 (0 ~ 200 p p m)、C B (0 ~ 10 p p m)、G R (0 ~ 150 p p m) 及び R A であった。R A は、リン酸還元剤の添加によってその場 (in situ) で形成される。

30

【 0 1 2 6 】

5 リットル三つ口丸底フラスコへの反応剤の典型的な装入を、下記の表に示す。

【 0 1 2 7 】

【表 3】

反応剤	量 (グラム)
テレフタル酸ジメチル	1941.9
エチレングリコール	1230.23
1, 4-シクロヘキサンジメタノール	25.96
酢酸マンガン (四水和物)	0.475
三酸化アンチモン	0.522
チタンイソプロポキシド	0.2757

40

【 0 1 2 8 】

この反応混合物を加熱し、攪拌し、充填塔によりメタノールを除去した。反応混合物の

50

温度を、除去されたメタノールの質量が、ほぼ、装入したDMTの100%転化のために予想されるレベルに達するまで上昇させた。反応が完結したと思われるとき、加熱源を取り去り、この混合物を、EGの沸点よりも下の温度まで冷却させ、その時点で、混合物をステンレススチールパンの中に注ぎ、冷却させ、固化させた。

【0129】

132gの反応生成物を、数個の500mL丸底フラスコのそれぞれに装入した。次いで、それぞれのフラスコに、ステンレススチール攪拌装置の軸の挿入用の準備がなされている凝縮物取り出しヘッドを取り付けた。このヘッドには、窒素ガスの導入を可能にするホース連結部が含まれていた。窒素パージを開始し、フラスコを、反応のための熱源として機能する溶融金属浴の中に浸漬させた。金属浴は、反応フラスコを挿入する前に225
10
の温度まで予熱した。重合は、下記に示す反応プロフィールに従って行った。適切な再加熱剤を、段階3で表IIIに示す量で添加した。再加熱剤は、典型的に、エチレングリコール中のスラリーとして添加した。リンの適切な量も、エチレングリコール中のリン酸として、段階3で添加した。一般的に、再加熱剤は、リンとは別に添加したが、このことは必要ではない。反応を、表に示す設定点に従って継続した。この手順及び触媒系を使用して、0.71の生成物極限粘度数が、典型的に得られた。

【0130】

【表4】

段階	時間 (分)	温度設定点 (°C)	圧力 (mmHg)	攪拌速度 (軸rpm)
1	0.1	275	ATM	0
2	10	275	ATM	100
3	2	275	165	100
4	5	275	165	100
5	30	275	165	100
6	10	292	3.8	100
7	35	292	3.8	100
8	3	298	0.8	100
9	22	298	0.8	100
10	1	298	150	0

【0131】

反応が完結したとき、反応フラスコを溶融金属浴から取り出し、ポリマーを冷却させた
40
。冷却すると、ポリマーは結晶化した。この最終結晶性ポリマー生成物をウィリーミル内で粉碎して、3mm直径の穴を有するミルの篩を通過するために十分に小さい粉末を製造した。このポリマーを使用して、前記実施例2に於けるようにしてDAC A押出機でディスクを製造した。次いで、L^{*}色、ヘイズ及び再加熱指数を含む種々の特性を、このディスクで測定した。

【0132】

【表 5】

表III

ディスクサンプル	添加剤の量 (ppm)	再加熱指数	L* (3枚の 積み重ねた ディスク上)	ヘイズ (3枚の 積み重ねた ディスク上)
ベースPET5	0	0.987	84.11	4.8
w/SGC1	75	1.121	75.65	17.5
w/SGC1	150	1.268	66.29	29.3
w/SGC1	300	1.483	49.39	48.2
w/SGC2	25	1.023	80.75	5.8
w/SGC2	50	1.036	83.29	5.3
w/SGC2	100	1.059	80.40	7.8
w/SGC2	175	1.114	76.60	9.9
w/SGC2	200	1.128	74.83	12.7
w/BIO	11	1.041	79.94	9.7
w/BIO	28	1.066	78.12	14.3
w/BIO	32	1.086	75.40	18.0
w/CB	2.5	1.000	81.38	3.8
w/CB	5	1.048	73.53	4.5
w/CB	10	1.089	67.39	6.7
w/GR	8	1.002	83.72	6.4
w/GR	32	1.075	76.01	9.9
w/GR	50	1.091	75.49	11.5
w/GR	100	1.234	62.21	22.1
w/GR	150	1.356	50.27	30.9
w/RA	na	1.013	75.79	6.2
w/RA	na	1.061	70.60	7.9

【0133】

表IIIに於けるデータは、ベース樹脂に対して比較したより高い再加熱指数によって示されるように、SGC1及びSGC2の両方が、ベースPET5中で有効な再加熱剤であることを示している。この結果は、また、SGC1及びSGC2と共に製造されたディスクのL*が、同じ又は同様の再加熱指数で、BIO、CB、RA及びGRと共に製造されたディスクのL*よりも優れていることを示している。任意の与えられた再加熱指数で、SGCを含有するディスクのL*は、BIO、CB、RA及びGRよりも顕著に高い。

【0134】

表IIIに於ける結果は、また、ヘイズが、同様の再加熱指数でBIO含有ディスクについてよりも、SGC含有ディスクについて低いことを示している。表IIIに於ける結果は

10

20

30

40

50

、ガラス状炭素を含有するポリエチレンテレフタレートボトルが、201ミルの厚さで測定したとき、8.0%又はそれ以下、好ましくは6.0%又はそれ以下のディスクヘイズ値を有し得ることを示している。

【0135】

図4は、ベースPET5中でガラス状炭素SGC1及びSGC2で製造されたサンプルのL*が、カーボンブラック、BIO及びGRのような他の一般的な再加熱剤で製造されたサンプルのL*のように急激に減少しなかったことを示している。与えられた任意の再加熱指数で、SGC1及びSGC2で製造されたサンプルのL*は、カーボンブラック、BIO及びGRで製造されたものに対して高かった。

【0136】

10

実施例4

SGC2及びSGC3添加剤を、回分式パイロットプラント規模の施設でポリマーを製造し、ボトルプリフォームを射出成形し、そして最後に2リットルサイズのボトルを吹込成形することによって評価した。コンセントレート、射出成形したプリフォーム及び吹込成形仕上げをしたボトルを製造するために、下記の手順を使用した。

【0137】

60ポンドの、ベースPET6中のSGC2及びSGC3の1重量%コンセントレートを、18ガロンの攪拌したポット反応器システム内で、テレフタル酸ジメチル(DMT)、エチレングリコール(EG)及びイソフタル酸ジメチル(DMI)を反応させることによって製造した。DMT、DMI、EG、55ppmのマンガン(酢酸塩として)、20ppmのチタン(イソプロポキシドとして)及びSGC再加熱剤を、反応器システムに装入した。次いで、反応器内容物の温度を上昇させて、DMT、DMI及びEGの反応を実施した。メタノールを、反応器から副生物として除去した。理論量のメタノールが除去されたとき、反応器の温度設定点を200 から220 に上昇させた。220 の設定点到達したとき、80ppmのコバルト(酢酸塩として)、110ppmのリン(リン酸エステルとして)及び220ppmのアンチモン(酸化物として)を、反応混合物に装入した。次いで、反応器の設定点を220 から285 に上昇させた。反応器内の圧力を、加熱期間の過程に亘って大気圧から1mmHgまで低下させた。攪拌機モーターのアンペア数消費が、溶融ポリエステルが所望の粘度に到達したことを示したとき、反応器の内容物を冷却した水トラフの中にギヤーポンプを経て押し出した。得られたポリエステルのストランドを、円柱状ペレットに切断した。このペレットを乾燥させ、結晶化させ、その後、静止床固相化装置内で固相重合させた。固相重合は、215 で、一定流量の乾燥窒素をペレット床に貫通させながら実施した。これらの条件下で、溶融相反応器内で製造されたポリマーは、0.81の目標極限粘度数に達するまでに約12時間を必要とした。

20

30

【0138】

上記の方法によって合成された生成物ポリエステルを、次いで、ベースPET2とブレンドして、添付する表に示されるSGC濃度を有する混合物を、約30ポンド製造した。次いで、このブレンド物を使用して、2リットルボトルプリフォームを製造した。プリフォーム製造は、8キャピティ金型を有するハスキー(Husky)モデルXL-160を使用して行った。ボトルに吹込成形するために、製造されたプリフォームのセンターカットから、50個のプリフォームをランダムに選択した。次のブレンドによる汚染を防止するために、50個のそれぞれの組の前及び後に製造されたプリフォームを廃棄した。

40

【0139】

ボトル吹込成形は、サイデルモデルSB02/3吹込成形装置を使用して行った。SGC添加剤を含有するもの及び市販の再加熱樹脂、CB12(ベースPET3)に対する、ベースPET2の相対再加熱速度を評価するために、予備実験を実施した。石英ヒーターへの電力出力を84%に設定した。それぞれの樹脂配合物の一連の3個のプリフォームを、石英ヒーターの前に通過させ、プリフォームスキン温度を測定した。プリフォームスキン温度が高くなるほど、樹脂の再加熱指数は高くなる。この予備再加熱実験に基づいて、電力出力を、それぞれの樹脂について、約110 の一定のプリフォームスキン温度をボ

50

トル製造工程に於いて得ることができるように選択した。例えば、高い再加熱指数を有するSGC樹脂配合物について、110のプリフォームスキン温度を達成するために、より低いオープン電力が必要であった。再加熱添加剤を含有しないベースPET2樹脂のために、より高いオープン電力が必要であった。一定のプリフォームスキン温度でボトルを吹込成形することによって、異なった温度で吹込成形することによって起こされるボトル特性に於ける差異が最小になる。

【0140】

それぞれの配合物の11個のプリフォームを、選択されたオープン電力で加熱し、そして次のボトル静止摩擦係数及びボトル側壁ヘイズ試験のためにボトルに吹込成形した。色及び側壁ヘイズを、典型的な2リットルPET飲料ボトルの、中央パネル、即ち先細りの首部分の下から切断したボトルの部分及び足で測定した。次いで、ボトルの主側パンのそれぞれの円筒部分を、金型ラインに沿った2個の部分に切断して、11個のボトルのそれぞれから2個の凸面壁部分を作った。ヘイズ及び色を測定するための手順は、前に記載した。

10

【0141】

【表 6】

表 IV

参照	プリフォーム温度 (°C)				COF				プリフォーム色			ボトル側壁 ヘイズ% (12.5ミル)	
	#1	#2	#3	平均	1	2	3	4	平均	L*	a*		b*
ベースPET2ブランク	109.2	110	110.3	109.8	1.183	1.039	1.144	1.085	1.113	84.82	-1.01	3.69	0.93
ベースPET2 w/50ppm SGC3	112.2	113.1	112.8	112.7	0.365	0.541	0.406	0.636	0.487	83.21	-0.97	3.69	1.83
ベースPET2 w/100ppm SGC3	113.9	113.3	113.2	113.5	0.329	0.156	0.186	0.206	0.219	81.90	-0.99	3.74	1.66
ベースPET2 w/200ppm SGC3	117	117.6	117.3	117.3	0.112	0.118	0.118	0.137	0.121	80.02	-1.01	3.76	2.05
ベースPET2 w/50ppm SGC2	115.4	115.7	116.2	115.8	0.38	0.261	0.209	0.203	0.263	81.19	-1.05	3.56	1.75
ベースPET2 w/100ppm SGC2	121	121.2	120.5	120.9	0.132	0.142	0.126	0.152	0.138	77.30	-1.08	3.32	3.41
ベースPET2 w/200ppm SGC2	129.2	128	129.1	128.8	0.134	0.139	0.129	0.121	0.131	71.01	-1.10	2.93	4.87
ベースPET3(市販のCB12再加熱樹脂)	127.2			127.2						68.54	-0.91	4.05	

10

20

30

40

【0142】

表IVに記載した結果は、商業的増強再加熱樹脂イーストマンCB12から製造したプリフォームよりも明るい（即ち、より高いL*）、ガラス状炭素を含有するプリフォームを

50

製造できることを示している。(ベースPET2w/200ppmSGC2をベースPET3と比較されたい)。更に、この結果は、ボトルの一緒に粘着することに対する抵抗性が、ベースPET2及びベースPET3のポリマーから製造されたボトルに比較して、ガラス状炭素を含有するポリマーから製造されたボトルで遙かに良いことを示している。それで、SGCを含有するポリマーから製造されたプリフォームは、再加熱添加剤を含有しない対照(ベースPET2)に比較して改良された再加熱速度を有し、ベースPET3に於いて使用されているもののような多くの一般的に使用されている再加熱添加剤と実質的に等価であるか又はこれよりも良い再加熱速度を有し、そして実質的に等価の再加熱速度で、優れた明度(L^*)を有する。更に、SGCは、同時に、粘着性ボトル添加剤として機能し、他方、殆どの他の再加熱添加剤は、この機能を欠くか又は顕著でない量でのみこの機能を示す。有効な粘着防止ボトル添加剤として機能するために、使用される添加剤の量は、かなり多く、例えば、60ppmを超える。これらのレベルで、CB、RA及びBIOのような一般的に知られている再加熱速度添加剤は、プリフォーム及びボトルを黒くし、許容できないほど高いヘイズ及び極めて低い L^* 値にする。これらの添加剤は粘着防止ボトル添加剤として機能することは知られていないけれども、これらの量を60ppmよりも大きく増加させることによって、 L^* が減少し、ヘイズ値が、許容できないと肉眼で容易に見えるような大きい程度まで増加するであろう。

10

【0143】

この試験の結果は、また、等価の再加熱速度で、SGCを含有するベースPET2の b^* 値が、ベースPET3樹脂よりも良かった(より少ない黄色)ことを示している。それで、SGCは、等価の再加熱速度で、 L^* 、 b^* 及び後で検討するようなCOFに於いて、ベースPET3よりも性能が優れている。驚くべきことに、ベースPET2及び200ppmのSGC2で製造されたプリフォームは、SGCを有さず、他の再加熱添加剤を有しないブランクよりも少ない黄色であった。SGCの添加は、 b^* に感知できるほどの負の影響を与えなかったか又は実際に b^* を改良した。また、小さいサイズのSGCのより大量の添加は、 b^* を増加させる代わりにそれをゼロの方に減少させたことが、この結果から明らかである。

20

【0144】

この結果は、また、より小さい粒子サイズ添加剤、即ち、SGC2が、同じ含有量で比較したとき、より大きい粒子サイズ添加剤(SGC3)よりも高いスキン温度を有するプリフォームを与えたことを示している。それで、より小さいサイズのSGCは、最も好ましい態様である。

30

【0145】

従って、好ましい態様としてのポリエチレンテレフタレート中のSGC及び特に最も好ましい態様としての比較的小さい平均粒子サイズを有するSGCは、任意の所望の特性、即ち、低いCOF、低い側壁ヘイズ、高い再加熱、高い L^* 及び低い正の b^* 値(少ない黄色)の優れた組合せを与えることがわかる。

【0146】

表IVに於ける結果は、また、ガラス状炭素を含有するポリエチレンテレフタレートボトルが、12.5ミルの厚さで測定したとき、8.0%又はそれ以下、好ましくは6.0%又はそれ以下、更に好ましくは5.0%又はそれ以下の側壁ボトルヘイズ値を有し得ることを示している。4%より低いヘイズ値及び0.30より低い、更に0.20又はそれ以下のCOFを有し、3.80より低い b^* 及び70又はそれ以上の L^* で4.0の再加熱速度改良を有する、ボトルを含むポリエステル組成物が、達成可能である。

40

【0147】

表IVに於ける結果は、また、5.0又はそれ以上の最終再加熱温度デルタ、約70.0又はそれ以上の L^* 等級及び3.8より低い b^* 等級を有するプリフォーム形状ポリエステル組成物を得ることが可能であることを示している。PET2w/200ppmSGC3、及び50、100及び200ppmSGC2に対応する実施例を参照されたい。

【0148】

50

表IVに於ける結果は、また、10.0より高い、更に好ましくは15.0又はそれ以上の最終再加熱温度デルタ及び70又はそれ以上のL^{*}を有するプリフォーム形状ポリエステル組成物を得ることが可能であることを示している。例えば、100及び200 ppmのSGC2を含有するベースPET2についての結果は、それぞれ10.0及び15.0より高い最終再加熱温度デルタを有し、それぞれ70.0又はそれ以上のL^{*}等級を有していた。

【0149】

実施例 5

実施例4に於ける全ての実験操作を繰り返し、更に、タルクを含有するベースPET2配合物は、また、COFを減少させるための文献で公知の添加剤に対する、SGCを含有するベースPET2のCOF性能特性及び他の性能特性を決定するために評価した。使用したタルクは、ポラー・ミネラルス社(Polar Minerals)「マイクロ・タフ(Micro-Tuff)AG-609」であった。分析の結果を表Vに記載する。

【0150】

【表 7】

表 V

参照	総オープン 電力 (%)	スキン 温度 (°C)	プリフォームスキン温度				ボトルCOF試験結果				プリフォーム色			ボトル 側壁 ヘイズ %	側壁 ボトル 厚さ、 平均、 ミル
			#1	#2	#3	平均	1	2	3	4	L*	a*	b*		
対照	84	109	108.2	109.8	109.5	109.2	1.246	1.148	1.232	1.209	84.59	-1.04	3.93	1.19	
ベースPET2 w/50ppm SGC3	84	112	111.8	112	112	111.9	0.549	0.49	0.768	0.402	82.81	-1.02	3.95	1.73	12.47
ベースPET2 w/100ppm SGC3	80	111	113	113.7	113.5	113.4	0.406	0.218	0.34	0.312	82.09	-1.03	3.93	1.55	12.72
ベースPET2 w/200ppm SGC3	78	112	116.2	117	116.7	116.6	0.178	0.167	0.163	0.2	79.8	-1	3.79	2.47	12.57
ベースPET2 w/50ppm SGC2	78	112	115.5	116.3	116.3	116.0	0.609	0.332	0.378	0.256	80.73	-1.06	3.62	2.38	12.49
ベースPET2 w/100ppm SGC2	74	112	120.9	121	118.8	120.2	0.182	0.174	0.186	0.175	77.28	-1.07	3.4	2.78	12.52
ベースPET2 w/200ppm SGC2	66	111	128.2	127.9	128.1	128.1	0.192	0.148	0.14	0.144	69.83	-1.12	2.89	4.96	12.51
ベースPET2 w/50ppm talc*	84	110	111.2	110.2	110.2	110.5	0.412	0.423	0.312	0.429	83.7	-0.99	4.4	2.5	12.76
ベースPET2 w/100ppm talc*	84	110	109.8	109.9	109.8	109.8	0.269	0.271	0.235	0.337	83.3	-0.98	4.77	3.64	12.61
ベースPET2 w/200ppm talc*	84	110	110	110.2	110.3	110.2	0.216	0.265	0.268	0.257	82.02	-0.87	5.86	5.92	12.81
ベースPET3 (市販のDBI2再加熱樹脂)	84	124	124	124	124	124.0	1.226	1.312	1.272	1.270	68.54	-0.91	4.05	1.5**	12.50

* マイクロタフ（登録商標）AG-609として市販

**典型的、これらの試験操作で実験的に測定されなかった。

10

20

30

40

【0151】

表 V に於ける結果は、タルクはベース PET2 に対して COF を低下させたが、これは、樹脂のプリフォームスキン温度を顕著に上昇させなかった、即ち、これは再加熱剤とし

50

て機能しなかったことを示している。このことは、タルクと共に製造されたサンプルの最終スキンプリフォーム温度が顕著に上昇せず、曲線が、SGCと共に製造されたサンプルと比較して、実質的に水平のままであったことをグラフで示している図5に示されている。図5は、また、SGC2（より小さい粒子サイズ）についての再加熱に於ける上昇の速度が、SGC3（より大きい粒子サイズ）についての再加熱に於ける上昇の速度よりも優れていたもので、より小さいサイズのガラス状炭素粒子を使用することの方が好ましいことを示している。しかしながら、SGC3は、再加熱添加剤としてタルクよりも明らかに優れている。

【0152】

表Vは、0.2又はそれ以下であるCOFを、ポリエチレンテレフタレート組成物中で得ることができることを示している。本発明者等の実験に於いて、このCOF値は、幾つかのメーカーが、ボトルと一緒に粘着する問題点に対する解決法として使用している、ボトルへの水スプレーと等価であることが見出された。ポリエステル組成物に於けるCOFを減少させるための一般的な試薬であるタルクを含有する組成物の何れも、試験した量でCOFを0.2より下に減少させることはできなかった。一方、ガラス状炭素を含有する組成物の多くは、組成物のCOFを0.2より下に成功裡に減少させた。

10

【0153】

図6は、表Vで得られたデータから、SGC2、SGC3及びタルク添加剤の、ボトル静止摩擦係数(COF)への影響をグラフで示す。図6は、SGC添加剤のみが0.2又はそれ以下の係数を達成できることを示している。更に、これは、より小さいサイズの粘着性ボトル添加剤であるSGC2が、SGC3によって表されるガラス状炭素のより大きいサイズ粒子よりも、COFを減少させる上で一層有効であることを示している。

20

【0154】

図7は、表V中のデータから取られた、添加剤濃度とボトル側壁ヘイズとの間の関係を示す。ボトルの視覚外観を決定するための尺度の一つは、側壁ボトルヘイズである。現在、ボトル工業は、高い透明性を与えるために、約4%又はそれ以下の側壁ヘイズを有するボトルを製造することを望んでいる。特に、プリフォームの明度が高い場合、この尺度は柔軟であるけれども、それにも拘わらず、4.0%又はそれ以下のヘイズ値を有するボトルを提供することが望ましいであろう。低いヘイズを有するボトルを製造するために、粘着性ボトル添加剤が4.0%より大きい側壁ヘイズを与えないことが好ましい。試験した全ての添加剤は、図7に示されるようにボトル側壁ヘイズを増加させた。しかしながら、ヘイズに於ける増加の速度は、タルクと比較してSGC2及びSGC3で遙かに低い。4%ヘイズ限界は、タルクについて約110ppmの添加レベルで、SGC2について約150ppmの添加レベルで、そしてSGC3について200ppmよりも大きい添加レベルで到達される。

30

【0155】

図8は、表Vから取られたSGC2についてのCOF及びボトルヘイズを、4%の限界(threshold)ヘイズ限界及び0.20以下の望ましいCOF値と共に、グラフ的にプロットする。この図8は、0.20の所望のCOFが100ppm付近で得られ、ボトル側壁ヘイズが、4%の許容できる限界値よりも十分に下の約2.8%であることを示している。

40

【0156】

図9は、表VからのSGC3についてのCOF及びボトルヘイズデータをグラフ的にプロットする。所望のCOF0.2又はそれ以下を達成するために、ほぼ200ppmの添加剤が必要である。しかしながら、添加剤のこのレベルでも、側壁ヘイズは、4%の限界値よりもなお十分に下である。SGC2についての結果とSGC3についての結果との比較によって、より小さい平均サイズ粒子とより大きい平均サイズ粒子との間で、低いCOF及び低いヘイズのために最も好ましい添加剤は、所望のCOFに達するためにより少ない添加剤が必要とされるので、より大きい粒子サイズ(10~40ミクロンの平均粒子サイズであるSGC3)に比較して、より小さい粒子サイズ(2~12ミクロンの平均粒子

50

サイズであるSGC2)であることが示される。

【0157】

図10は、表VからのCOF及びボトルヘイズデータをグラフ的にプロットする。このプロットは、0.2以下の所望のCOFが、タルクでは、200ppm以下の濃度でも達成できないことを示している。約100ppmのタルクレベルでタルクを使用して0.2のCOFに近づくが、到達せず、このレベルで、ヘイズは4.0%の天井に非常に近づく、この天井は約110ppmのタルクで越えられる。それで、この実施例に於けるこれらの結果は、SGC添加剤が、低いボトル側壁ヘイズでボトル静止摩擦係数を低下させ、プリフォーム再加熱速度を増加させる点で、タルクよりも優れて性能を有することを示す。更に、これらは、本発明の好ましい態様が、より大きい粒子サイズの方法に対して、その一層有効なCOFの低下及び再加熱速度の増加のために、より小さい粒子サイズのSGCであることを示す。

10

【0158】

表IV及び表Vからの結果は、また、5.0又はそれ以上の最終再加熱温度、3.8又はそれ以下、更に好ましくは3.7又はそれ以下のb*等級及び0.6又はそれ以下、更に好ましくは0.5又はそれ以下、最も好ましくは0.4又はそれ以下の静止摩擦係数を有するポリエステル組成物を提供することが可能であることを示している。例えば、SGC2を含有するベースPET2は、これらの規準の全てに適合している。

【0159】

表IV及び表Vからの結果は、また、5.0又はそれ以上の最終再加熱温度デルタ、少なくとも70、更に好ましくは少なくとも75のL*値及び0.6又はそれ以下、更に好ましくは0.5又はそれ以下、最も好ましくは0.4又はそれ以下の静止摩擦係数を有するポリエステル組成物を製造することが可能であることを示している。これは、両方の表に於いて、200ppmのSGC3を含有するベースPET2の実施例及びSGC2を含有する全ての実施例によって示される。

20

【0160】

表IV及び表Vからの結果は、また、50ppm~150ppmの範囲内の量で、それぞれ前記添加剤を含有しない組成物に対して、組成物の再加熱速度を、添加剤の最初の50ppmについて少なくとも2.5ほど増加させ、そして組成物の静止摩擦係数を、添加剤の最初の50ppmについて少なくとも20%ほど減少させる再加熱添加剤を有するポリエステル組成物であって、組成物が、12.5ミル又はそれ以下の厚さで測定された9%以下、好ましくは8%又はそれ以下、更に好ましくは5%又はそれ以下の側壁ボトルヘイズ値、最も好ましくは12.5ミルの厚さを有するボトル側壁を使用して決定されたそれぞれの値を有する組成物を得ることが可能であることを示している。

30

【0161】

表IV及び表Vからの結果は、また、少なくとも50ppmの量の再加熱添加剤からなり、8%より小さい、好ましくは5.5%又はそれ以下のボトル側壁ヘイズ値を有し、そして選択された添加剤が、(実際に使用された添加剤の量が200ppm又はそれ以下であろうと無かろうと)50ppm~200ppmの範囲内の再加熱添加剤濃度を通して測定されたとき、組成物のヘイズ値を8%より多く、好ましくは5.5%より多く上昇させないようなポリエステル組成物、好ましくは飲料ボトルを得ることが可能であることを示している。試験したSGCを含有するポリエステル組成物の全ては、50ppm~200ppmの範囲を通して5.5%又はそれ以下のボトル側壁ヘイズレベルを維持した。

40

【0162】

以下に本発明の態様を記載する。

1. 25及び1気圧で固体である熱可塑性ポリマー連続相中に分布されたガラス状炭素粒子からなる熱可塑性ポリマー組成物。

2. 熱可塑性組成物がポリエステルポリマー組成物からなる態様1に記載の熱可塑性組成物。

3. ポリエステル組成物が飲料ボトルの形態である態様2に記載の熱可塑性組成物。

50

4. ポリエステル組成物が球状ガラス状炭素からなる態様3に記載の熱可塑性組成物。

5. ポリエステル組成物が0.1~400ミクロンの範囲内の平均粒子サイズを有する球状ガラス状炭素からなる態様1に記載の熱可塑性組成物。

6. 平均粒子サイズが0.1~40ミクロンの範囲内である態様5に記載の熱可塑性組成物。

7. 平均粒子サイズが0.1~12ミクロンの範囲内である態様6に記載の熱可塑性組成物。

8. ポリエステル組成物が、計算された基準で少なくとも85モル%のポリエチレンテレフタレート単位を含有するポリマーからなり、そしてプリフォームの形態である態様6に記載の熱可塑性組成物。

9. 4.0より小さい b^* 色及び少なくとも70の L^* 色を有するプリフォームからなる態様1に記載の熱可塑性組成物。

10. ポリエステルがポリエチレンテレフタレートからなり、そしてガラス状炭素が球状ガラス状炭素からなる態様1に記載の熱可塑性組成物。

11. ポリエステル組成物中の球状ガラス状炭素の量がポリエチレンテレフタレートの重量基準で60ppm~250ppmの範囲内である態様9に記載の熱可塑性組成物。

12. ポリエステル組成物中のガラス状炭素の量がポリエステルの重量基準で5~300ppmの範囲内である態様1に記載の熱可塑性組成物。

13. 熱可塑性組成物が少なくとも95重量%のポリエステル組成物からなり、前記ポリエステル組成物がポリエチレンテレフタレートからなり、そして熱可塑性組成物が球状ガラス状炭素からなる態様1に記載の熱可塑性組成物。

14. ガラス状炭素が、球、小板、針又は円柱の形状である態様2に記載の熱可塑性組成物。

15. ガラス状炭素が、何れか2個のx、y及びz粒子軸のそれぞれの組合せに沿って測定したときに、2以下のアスペクト比を有する球の形状である態様13に記載の熱可塑性組成物。

16. 0.1~40ミクロンの平均粒子サイズを有する球状ガラス状炭素からなる態様2に記載の熱可塑性組成物。

17. 40ミクロン以下の平均粒子サイズを有する球状ガラス状炭素からなる態様2に記載の熱可塑性組成物。

18. 12ミクロン以下の平均粒子サイズを有する球状ガラス状炭素からなる態様2に記載の熱可塑性組成物。

19. 少なくとも0.1ミクロンの平均粒子サイズを有する球状ガラス状炭素からなる態様2に記載の熱可塑性組成物。

20. 0.1~40ミクロンの平均粒子サイズを有する球状ガラス状炭素からなる態様2に記載の熱可塑性組成物。

21. 40ミクロン以下の、粒子の少なくとも5%の最小サイズ粒子を表す低い点と粒子の少なくとも5%の最大サイズ粒子を表す高い点との間の差の粒子サイズ分布を有する球状ガラス状炭素からなる態様2に記載の熱可塑性組成物。

22. 差が20ミクロン以下である態様20に記載の熱可塑性組成物。

23. 差が10ミクロン以下である態様21に記載の熱可塑性組成物。

24. 差が5ミクロン以下である態様22に記載の熱可塑性組成物。

25. ガラス状炭素がアグリゲート及び破壊された又は破損された球状粒子を実質的に含有しない球状ガラス状炭素粒子からなる態様1に記載の熱可塑性組成物。

26. 25及び1気圧で固体である熱可塑性ポリマー連続相中で1ppm~500ppmの変性されたガラス状炭素粒子からなる熱可塑性ポリマー組成物。

27. 変性されたガラス状炭素が有機ポリマーによって被覆されている態様25に記載のポリマー組成物。

28. 変性されたガラス状炭素の量が5ppm~250ppmの範囲内である態様25に記載のポリマー組成物。

10

20

30

40

50

29. ガラス状炭素を、ポリエステル組成物又はポリエステル前駆体からなる組成物と組み合わせることからなるポリエステルの製造方法。

30. ガラス状炭素が球状ガラス状炭素からなる態様29に記載の方法。

31. ポリエステルがポリエチレンテレフタレートからなり、そして球状ガラス状炭素が0.5~40ミクロンの範囲内のいずれかの平均粒子サイズを有する態様30に記載の方法。

32. ポリエステル組成物を飲料ボトルに製造することからなる態様29に記載の方法。

33. ガラス状炭素及びポリエチレンテレフタレートからなる液体又は固体コンセントレートを、バルクポリエチレンテレフタレートの溶融相重縮合の後で且つポリエステル組成物を射出成形する段階の前又は射出成形する段階で、バルクポリエチレンテレフタレートに添加することからなるポリエステルの製造方法。 10

34. ガラス状炭素が本質的に球状ガラス状炭素からなる態様32に記載の方法。

35. コンセントレートを、液体として、バルクポリエチレンテレフタレートの溶融物に添加する態様32に記載の方法。

36. コンセントレートを、射出成形機内のバルクポリエチレンテレフタレートの溶融物に供給する態様32に記載の方法。

37. コンセントレートを、射出成形機内のバルクポリエチレンテレフタレートの供給物に添加する態様32に記載の方法。

38. ガラス状炭素を、正味で又はコンセントレートとして又はキャリアー中で、ポリエチレンテレフタレートの製造のための溶融相に添加することからなるポリエステルの製造方法。 20

39. ガラス状炭素を、ポリエチレンテレフタレートの溶融相製造中のプリポリマー帯域又は仕上げ帯域に添加する態様37に記載の方法。

40. それぞれコンセントレート組成物の重量基準で、0.05重量%~約35重量%の範囲内の量のガラス状炭素及び少なくとも65重量%から99.95重量%までの範囲内の量のポリマーからなるコンセントレート組成物。

41. ガラス状炭素が球状ガラス状炭素からなる態様39に記載のコンセントレート組成物。

42. それぞれコンセントレート組成物の重量基準で、球状ガラス状炭素が2重量%~20重量%の範囲内の量で存在し、そしてポリマーが少なくとも80重量%から98重量%までの範囲内の量の、ポリエステル、ポリオレフィン、ポリカーボネート又はこれらの混合物からなる態様40に記載のコンセントレート組成物。 30

43. ポリマーがポリエチレンテレフタレートからなる態様39に記載のコンセントレート組成物。

44. L^* 値及びポリエステル組成物中に存在する再加熱添加剤の増加する量と共に0.95と1.15との間で増加する再加熱指数を有し、y軸上の L^* 測定値及びx軸上の再加熱指数に対してプロットされた、前記添加剤の増加する量を表す曲線の勾配が、少なくとも0.03単位の間隔を使用する再加熱指数値に関して0.95と1.15との間のどこか少なくとも3個のデータ点によって測定されたとき、そして3個の積層された、それぞれ67ミルの厚さを有するディスクを使用して測定されたとき、|80|以下である、ポリエステル組成物。 40

45. ポリエステル組成物が少なくとも75の L^* を有する態様43に記載のポリエステル組成物。

46. 勾配が|50|より小さい態様43に記載のポリエステル組成物。

47. 5以上の最終再加熱温度デルタ、70以上の L^* 等級及び3.80以下の b^* 等級を有するポリエステルプリフォーム。

48. 前記プリフォームがポリエチレンテレフタレート及びガラス状炭素からなる態様46に記載のポリエステルプリフォーム。

49. 前記ガラス状炭素が球状ガラス状炭素からなる態様47に記載のポリエステルプ 50

リフォーム。

50．態様48に記載のプリフォームから製造されたポリエステルボトル。

51．態様46に記載のプリフォームから製造されたポリエステルボトル。

52．10 以上の最終再加熱温度デルタ及び70より大きい L^* 等級を有するポリエステルプリフォーム。

53．プリフォームがポリエチレンテレフタレート及びガラス状炭素からなる態様51に記載のポリエステルプリフォーム。

54．ガラス状炭素が球状ガラス状炭素からなる態様52に記載のポリエステルプリフォーム。

55．態様51に記載のプリフォームから製造されたポリエステル飲料ボトル。

56．最終再加熱温度デルタが15 以上である態様51に記載のポリエステルプリフォーム。

57．プリフォームが75以上の L^* 等級を有する態様52に記載のポリエステル飲料ボトル。

58．プリフォームが5 以上の最終再加熱温度デルタ及び3.8より小さい b^* 等級を有し、そしてボトルが0.6以下の静止摩擦係数を有するプリフォームから製造されたポリエステル飲料ボトル。

59．さらに、プリフォームが70以上の L^* 値を有する態様57に記載のポリエステルボトル。

60． b^* が3.7以下であり、そしてボトルが0.4以下の静止摩擦係数を有する態様57に記載のポリエステルボトル。

61．プリフォームの L^* が75以上である態様59に記載のポリエステルボトル。

62．ポリエステルがガラス状炭素からなる添加剤からなる態様60に記載のポリエステルボトル。

63．ガラス状炭素が球状ガラス状炭素である態様61に記載のポリエステルボトル。

64．プリフォームが5 以上の最終再加熱温度デルタ及び少なくとも70の L^* 値を有し、そしてボトルが0.6以下の静止摩擦係数を有するプリフォームから製造されたポリエステル飲料ボトル。

65．再加熱温度デルタが10 以上であり、静止摩擦係数が0.4以下であり、そして75以上の L^* を有する態様63に記載のポリエステルボトル。

66．再加熱温度デルタが15 以上である態様64に記載のポリエステルボトル。

67．プリフォームが1.05以上の再加熱指数及び78以上の L^* 値を有するプリフォームから製造されたポリエステル飲料ボトル。

68．ヘイズ%値及びポリエステル組成物中に存在する再加熱添加剤の増加する量と共に0.95と1.15との間で増加する再加熱指数を有するポリエステル組成物であって、1%~40%の数字でのy軸上のヘイズ%及びx軸上の再加熱指数によって表される曲線の勾配が、少なくとも0.03単位の間隔を使用する再加熱指数値に関して1.00と1.15との間のどこか少なくとも3個のデータ点によって測定されたとき及び3個の積層された、それぞれ67ミルの厚さを有するディスクで測定したときに、75より小さく、そして前記ポリエステル組成物が0.5より小さい静止摩擦係数を有する組成物。

69．勾配が50以下である態様67に記載のポリエステル組成物。

70．ポリエステル組成物が0.4以下の静止摩擦係数を有する態様67に記載のポリエステル組成物。

71．50ppm~150ppmの範囲内の量で、それぞれ添加剤を含有しない組成物に対して、組成物の再加熱速度を、添加剤の最初の50ppmについて少なくとも2.5ほど増加させ、そして組成物の静止摩擦係数を、添加剤の最初の50ppmについて少なくとも20%ほど減少させるように機能する添加剤からなり、組成物が、9%以下の側壁ボトルヘイズ値を有するポリエステル組成物。

72．ヘイズ値が5.0%以下である態様70に記載のポリエステル組成物。

73．前記ポリエステル組成物がポリエチレンテレフタレートからなる態様71に記載

10

20

30

40

50

のポリエステル組成物。

74.25 及び1気圧で熱可塑性ポリマー連続相固体及び添加剤を含有しない組成物に対して組成物の静止摩擦係数を減少させる添加剤からなる熱可塑性組成物であって、前記組成物が、熱可塑性連続相の重量に対して50ppm～250ppmの添加剤範囲内の1点で測定したとき、0.2の静止摩擦係数を有する熱可塑性組成物。

75. 熱可塑性ポリマーがポリエチレンテレフタレートからなる態様74に記載の熱可塑性組成物。

76. 前記組成物から製造されたボトル又はプリフォームからなる態様75に記載の熱可塑性組成物。

77. 前記組成物から製造されたシート、フィルム、包装材料、棒、チューブ又は射出成形物品からなる態様76に記載の熱可塑性組成物。 10

78. 前記添加剤が球状ガラス状炭素からなる態様74に記載の熱可塑性組成物。

79. 球状ガラス状炭素の量が50ppm～250ppmの範囲内である態様78に記載の熱可塑性組成物。

80. 熱可塑性組成物がポリエチレンテレフタレートからなるポリエステル組成物である態様79に記載の熱可塑性組成物。

【図面の簡単な説明】

【0163】

【図1】2200での理想的黒体放射体の発光スペクトルを示すグラフ。

【図2】増加する濃度で第一ベースポリエチレンテレフタレート中に含有されている種々の再加熱剤についての、再加熱指数対 L^* を示すグラフ。 20

【図3】種々の再加熱剤についての、再加熱指数対ヘイズを示すグラフ。

【図4】第一ベースポリエチレンテレフタレート中の種々の再加熱剤についての、再加熱指数対 L^* を示すグラフ。

【図5】種々の再加熱添加剤を含有する組成物の、添加剤レベル対再加熱温度を示すグラフ。

【図6】種々の再加熱添加剤を含有する組成物の、添加剤レベル対静止摩擦係数を示すグラフ。

【図7】種々の再加熱添加剤を含有する組成物の、添加剤レベル対ヘイズを示すグラフ。

【図8】SGC2添加剤を含有する組成物の、添加剤レベル対ヘイズを示すグラフ。 30

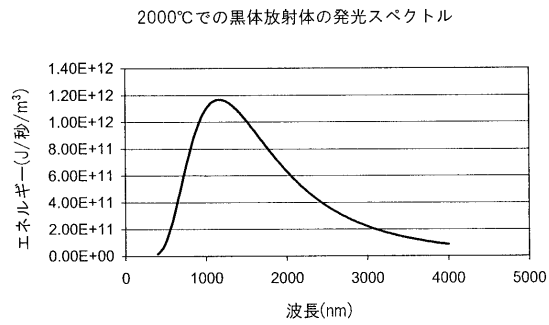
【図9】SGC3添加剤を含有する組成物の、添加剤レベル対ヘイズを示すグラフ。

【図10】添加剤としてタルクの、添加剤レベル対ヘイズ及び静止摩擦係数を示すグラフ。

。

【図 1】

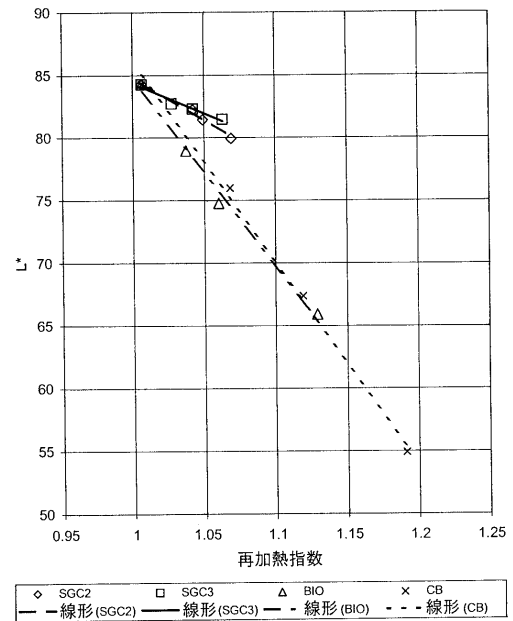
図 1



【図 2】

図 2

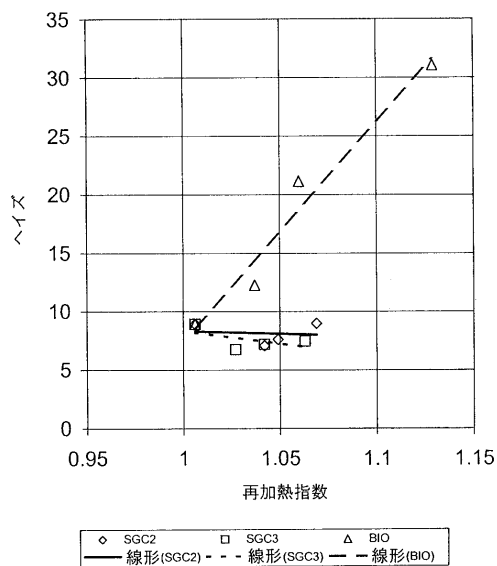
ベースPET2中の種々の再加熱剤についての再加熱指数対L*



【図 3】

図 3

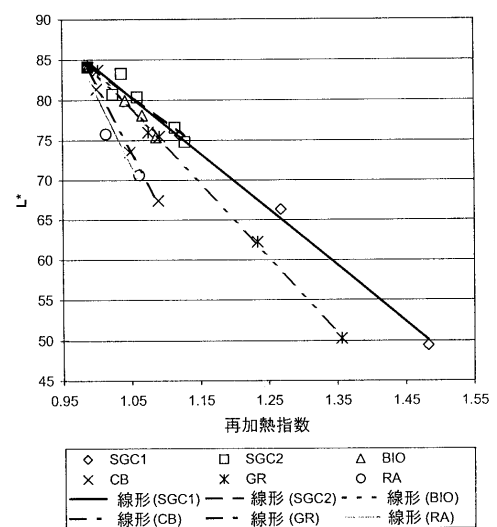
ベースPET2中の種々の再加熱剤についての再加熱剤対ヘイズ



【図 4】

図 4

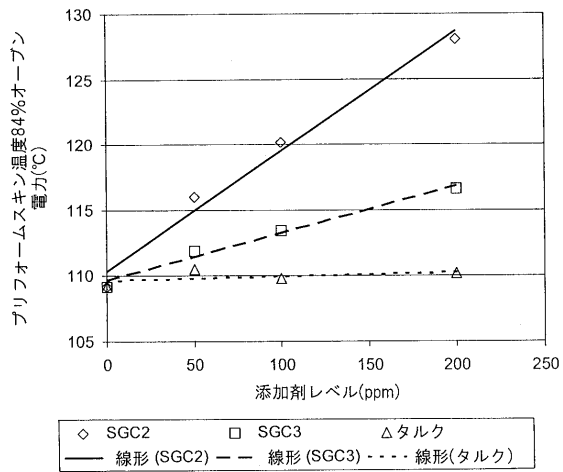
ベースPET5中の種々の再加熱剤についての再加熱指数対L*



【図 5】

図 5

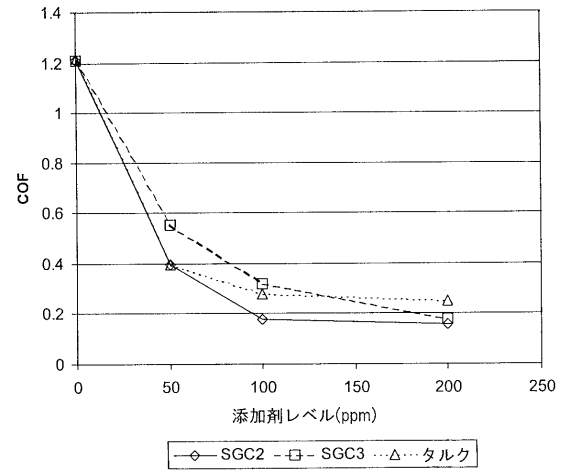
添加剤レベル対プリフォームスキン温度



【図 6】

図 6

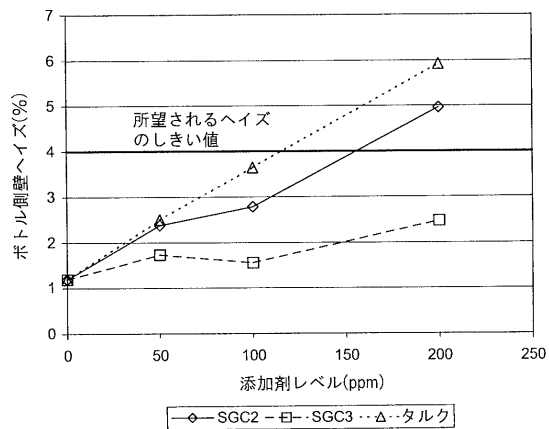
添加剤レベル対静止摩擦係数(COF)



【図 7】

図 7

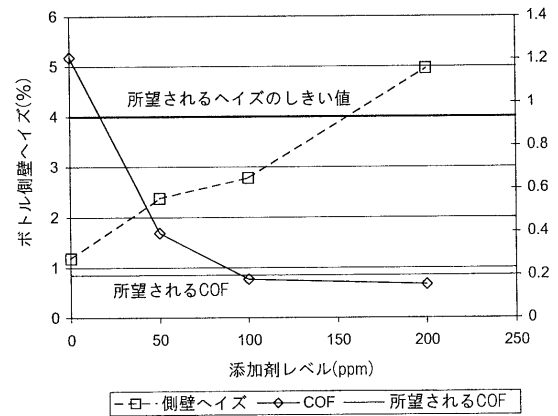
添加剤レベル対ボトル側壁ヘイズ



【図 8】

図 8

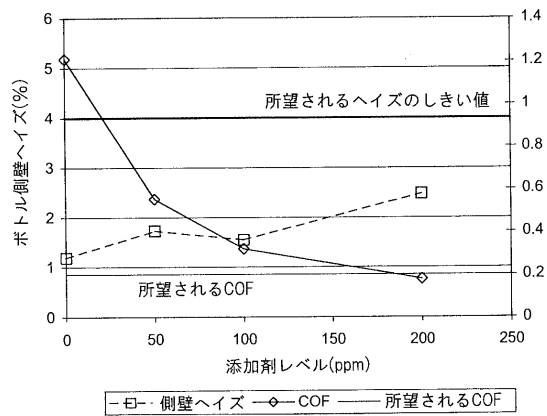
SGC2についての添加剤レベル対ボトル側壁ヘイズ及びCOF



【図 9】

図 9

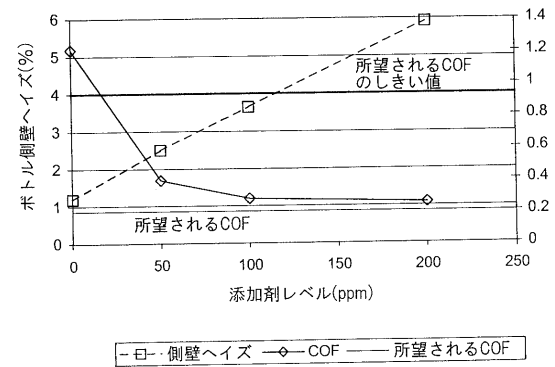
SGC3についての添加剤レベル対ボトル側壁ヘイズ及びCOF



【図 10】

図 10

タルクについての添加剤レベル対ボトル側壁ヘイズ及びCOF



フロントページの続き

(51)Int.Cl. ⁷	F I	テーマコード(参考)
C 0 8 K 3/04	C 0 8 K 3/04	
C 0 8 K 7/18	C 0 8 K 7/18	
// B 2 9 K 67:00	B 2 9 K 67:00	
B 2 9 L 22:00	B 2 9 L 22:00	

(72)発明者 ドナ ライス キレン

アメリカ合衆国, テネシー 3 7 6 6 0, キングスポート, サセックス ドライブ 1 1 0 5

(72)発明者 アール エドモンドソン ハウエル, ジュニア

アメリカ合衆国, テネシー 3 7 6 6 4, キングスポート, メモリアル ブールバード 3 8 1 2
, エー - 8

(72)発明者 スティーブン リー スタッフォード

アメリカ合衆国, テネシー 3 7 6 1 5, グレイ, スタッフォード ロード 1 6 1

F ターム(参考) 4F071 AA46 AB03 AD02 AD06 AF13 AF30Y AH05 BA01 BB13 BC01
BC04 BC05 BC06

4F201 AA24 AB11 AB18 AB23 AB26 AB28 AG07 AH55 BA03 BC01
BC02 BC15 BC37 BD04 BM05 BM14

4F206 AA24 AB18 AB23 AB26 AB28 AG07 AH55 JA06 JA07 JF02

4F208 AA24 AB18 AB23 AB26 AB28 AG07 AH55 LA02 LA04 LA08
LB01 LG28

4J002 CF061 DA016 FA086 GG01