

특 허 법 원

제 5 - 1 부

판 결

사 건	2022허5171	거절결정(특)
원 고	1. A(A)	
	태국	
	공동대표자 B, C	
	2. D(D)	
	태국	
	공동대표자 B, E	
	원고들 소송대리인 리앤목 특허법인(담당변리사 김하영, 박이주)	
피 고	특허청장	
	소송수행자 노석철	
변 론 종 결	2023. 7. 20.	
판 결 선 고	2023. 8. 31.	

주 문

1. 특허심판원이 2022. 7. 29. 2022원1102호 사건에 관하여 한 심결을 취소한다.
2. 소송비용은 피고가 부담한다.

청 구 취 지

주문과 같다.

이 유

1. 기초사실

가. 이 사건 출원발명(갑 제2, 5, 8호증)

- 1) 발명의 명칭: 용기 마개용 폴리머 조성물
- 2) 우선권 주장일/ 출원일/ 출원번호: 2016. 9. 12./ 2017. 9. 11./ 제10-2017-116076호
- 3) 청구범위(2021. 11. 1.자 보정에 의한 것)

【청구항 1】 에틸렌 호모폴리머 및 에틸렌 코폴리머를 포함하는 폴리머 조성물로써(이하 '구성요소 1'이라 한다), 상기 에틸렌 코폴리머는, 상기 에틸렌 코폴리머 중의 모노머의 총량을 기준으로 하여, 적어도 0.55mol%의 양으로 코모노머를 포함하고, 상기 에틸렌 코폴리머는 상기 에틸렌 호모폴리머보다 더 높은 중량평균 분자량을 갖고(이하 '구성요소 2'라 한다), 상기 폴리머 조성물은 0.950g/cm³ 내지 0.965g/cm³ 범위의 밀도, 적어도 0.3g/10분의 용융유량 MFR₂, 적어도 100,000g/mol의 중량평균 분자량, 적어도 20,000Pa·s의, 0.01[1/s]의 각주파수에서의 점도 $\eta_{0.01}$ 를 가지며, 상기 폴리머 조성물은: 123℃에서 10분 미만의 등온 결정화 하프타임(Isothermal Crystallization Half-Time); 및 적어도 60시간의 완전 노치 크리프 시험값(Full Notch Creep Test);을 갖는(이하 '구성요소 3'이라 한다), 폴리머 조성물(이하 '이 사건 제1항 발명'이라 하고, 나머지 청구항도 같은 방식으로 부른다).

【청구항 2 내지 13】 (각 기재 생략)

4) 발명의 주요 내용

가 기술 분야

[0001] 본 발명은 폴리머 조성물, 및 이 폴리머 조성물을 포함하는 용기 마개에 관한 것이다.

나 배경 기술

[0003] 폴리에틸렌은 마개 용도의 까다로운 요구 조건에 대한 모든 필수 성능들(높은 환경 응력 균열 저항성, CO₂에 대한 우수한 유지력, 우수한 강성 및 인성 균형, 빠른 사이클 시간, 우수한 개방 토크 및 우수한 관능 특성(organoleptic properties)을 포함)을 제공하는 재료로서 알려져 있다. 상이한 특성들을 갖는 캡 및 마개를 위한 다양한 폴리머 조성물들이 US 2013/0237652 A1, EP 2365995 B1, EP 2052026 B1 및 EP 1462378 A2에 개시되어 있다. 그러나, 환경 응력 균열 저항성(environmental stress cracking resistance: ESCR) 및 빠른 사이클 시간(fast cycle time) 특성들(이는 폴리에틸렌 캡이 마개 디자인의 차세대 경향 및 더 높은 생산 용량을 충족시키는 것을 가능하게 함)은, 최종 사용자 및 캡 제조자 둘 다에게 요구되는 특성들을 향상시키기 위한 한 여전히 흥미로운 문제이다.

다 기술적 과제

[0009] 본 발명의 목적은 종래 기술의 단점을 극복할 수 있는 용기 마개(container closure)를 제조하기에 적합한 폴리머 조성물을 제공하는 것이며, 특히, 결정화 속도와 우수한 균형을 이루면서 FNCT(Full Notch Creep Test: 완전 노치 크리프 시험)로 측정된 높은 응력 균열 저항성을 갖는 폴리머 조성물을 제공하는 것이며, 그에 따라, 캡(cap)에서의 높은 응력 균열 저항성, 빠른 사이클 시간, 및 사출 동안의 우수한 유동성을 달성할 수 있는 폴리머 조성물을 제공하는 것이다.

라 발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0023] 일반적으로, 캡 및 마개에 대한 ESCR은 병에 장착된 캡 상에서 직접 측정된다. 측정된 캡 ESCR은, 사출 조건(예를 들어, 사출 속도, 사출 온도 및 냉각 속도)에서의 잔류 응력의 영향을 받는다. 재료는 또한, 그것의 완화, 흐름 및 결정화 거동으로부터 잔류 응력에 어느 정도의 영향을 미친다.

[0029] 본 발명에 따른 폴리머 조성물은 123 °C에서 10 분 미만의 등온 결정화 하프 타임

(ICHT) 및 50 시간 내지 100 시간 범위의 완전 노치 크리프 시험(FNCT) 값을 갖는다. 바람직하게는, ICHT는 123 °C에서 1.5 분 내지 9.5 분의 범위, 더욱 바람직하게는 2 분 내지 9 분의 범위이다. 또한, 바람직하게는, FNCT는 적어도 60 시간이고, 바람직하게는 60 시간 내지 100 시간의 범위이다.

[0032,0033] 놀랍게도, 본 발명의 폴리머 조성물은 용기 마개를 제조하는데 유리하게 사용될 수 있음이 밝혀졌다. 본 발명의 폴리머 조성물은 높은 FNCT 및 낮은 등온 결정화 하프타임(ICHT)을 제공하고, 또한, 28 일 초과인 캡 ESCR(cap ESCR)을 제공한다.

[0036] 용어의 정의 및 측정 방법

[0037] MFR₂: 폴리머의 용융 유량은 ASTM D 1238에 따라 측정되었으며 g/10분 단위로 표시되었는데, 이는 하중 2.16 kg 및 190 °C의 시험 조건하에서 폴리머의 유동성을 결정한다.

[0038] 밀도: 폴리머의 밀도는, 밀도가 알려져 있는 표준시료와 비교하여, 액체 컬럼 구배 튜브에서 펠렛이 가라앉는 수준을 관찰함으로써 측정되었다. 이 방법은 ASTM D 1505에 따라 120 °C에서 어닐링 한 후의 고체 플라스틱에 대한 측정이다.

[0039] 코모노머 함량: 코모노머 함량은 고분해능 ¹³C-NMR에 의해 mol% 단위로 측정되었다. ...(생략).

[0040] 다분산 지수(polydispersity index: PDI): 중량평균 분자량(Mw), 수평균 분자량(Mn)이, g/mol 단위로, 겔 투과 크로마토그래피(GPC)에 의해 분석되었다. 다분산 지수는 Mw/Mn에 의해 계산되었다. ...(생략).

[0041] 각주파수 0.01 [1/s]에서의 점도(η_{0.01}): 유변학적 파라미터는 조절된 응력레오미터 모델 MCR-301(Anton-Paar)을 사용하여 결정된다.(생략).

[0042] 등온 결정화 하프타임(ICHT): ICHT는 123 °C에서 DSC에 의해 특정 조건하에서 측정되었으며, 이는 샘플의 결정화 속도를 결정한다. 샘플을 50 °C/min의 가열 속도로 30 °C로부터 200 °C까지 가열하고 5 분 동안 유지하였다. 그 다음, 샘플을 50 °C/min의 냉각 속도로 123 °C까지 냉각시키고 60 분 동안 유지하였다.

[0043] 완전 노치 크리프 시험(FNCT): ISO 16770에 따른 FNCT는 2% Arkopal 용액에서 50 °C에서 5.78 MPa의 일정한 하중에서 폴리머의 응력 균열 저항성을 측정하는 바람직한 방법이었다.

[0049] 실시예

[0051] 실시예 1 및 2(비교예)

[0052] 실시예 1 및 2는 지글러-나타 촉매로부터 제조된 바이모달 폴리에틸렌 조성물인 비교예 수지였다. 실시예 1은 상업용 바이모달 폴리에틸렌 ELTEX®Superstress CAP602(Ineos)이다. 실시예 2는 표 1의 조건에 따라 중합된 바이모달 폴리에틸렌 조성물이다.

[0053] 실시예 3 내지 5(본 발명)

[0054] 실시예 3 내지 5는 본 발명에 따른 바이모달 폴리머 조성물이다. 실시예 5는 100 ppm의 핵형성제(Hyperform HPN-20E®)를 포함한다. 비교예 1 및 2 및 실시예 3 내지 5에서 사용된 폴리에틸렌 조성물의 특성을 하기 표 2에 나타내었다.

[0055] 표 3에 주어진 결과는 본 발명의 샘플이 10 분 미만의 ICHT 값을 갖는다는 것을 나타낸다. 본 발명의 폴리에틸렌 조성물은, 비교예에 비하여, FNCT 및 ESCR(방법 B; F50)에 의해 측정된 바와 같은 더 빠른 결정화 속도 및 더 우수한 응력 균열 저항성을 제공한다.

[0056] 실시예 3 및 4 및 비교예 1에서, 스크류 캡의 전형적인 MFR₂ 및 밀도에 해당하는 폴리에틸렌 조성물을 합성하였다. 표 3에 나타낸 바와 같이, 실시예 3 및 4는 에틸렌 코폴리머의 더 높은 분자량(Mw), 다분산 지수(PDI)로 표시되는 더 넓은 분자량 분포, 및 각주파수 0.01 [1/s]에서의 더 높은 점도를 나타낸다. 등은 결정화 하프타임(ICHT), FNCT에 의해 측정된 응력 균열 저항성 및 나선형 흐름을 포함하는 특성들은 비교예보다 월등하게 우수하다. 캡 ESCR은 서로 동등하다

[0057] 실시예 5 및 비교예 2에서, HPN20E®라 불리는 핵형성제가 실시예 5에서 첨가되었다. 비교예 2는 폴리에틸렌 호모폴리머의 분자량을 증가시킴으로써 좁은 분자량 분포를 위해 조절되었다. 물리적 특성들, 특히 굴곡 탄성률은 양쪽 실시예 모두에서 동등하다. 그러나, 실시예 5는 결정화 하프타임에서 현저한 개선을 보였고, 훨씬 우수한 FNCT, ESCR F50 및 충격 강도를 나타낸다.

[표 2] 폴리머의 조성

특성	실시예 1 (비교예)	실시예 2 (비교예)	실시예 3	실시예 4	실시예 5
에틸렌 호모폴리머					
호모폴리머의 Mw(g/mol)	-	70,351	-	52,264	53,597

에틸렌 코폴리머					
MFR ₂ (g/10분)	0.77	0.89	0.78	0.74	0.72
밀도 (g/cm ³)	0.9563	0.9574	0.9555	0.9553	0.9560
코모노머	부텐	부텐	부텐	부텐	부텐
코모노머 함량(%mol)	0.46	0.44	0.60	0.63	0.65
코폴리머의 Mw(g/mol)	144,153	132,729	157,025	159,398	157,836
PDI	17	11	15	18	18
η _{0.01} (Pa.s)	18,184	19,322	22,371	22,964	24,420

[표 3] 폴리머의 특성

특성	실시에 1 (비교예)	실시에 2 (비교예)	실시에 3	실시에 4	실시에 5
ICTH (분)	11	4	9	8	2
FNCT @ 5.78 MPa, 50 °C(시간)	87	32	60	81	68
ESCR, F50 (시간)	240	96	216	364	>1000
캡 ESCR (일)	>28	없음	>28	>28	14
나선형 흐름 길이 @190 °C(mm)	183	270	262	241	238
굴곡 탄성률(kg/cm ²)	10,842	11,154	11,736	10,914	11,338
굴곡 강도(kg/cm ²)	334	349	357	330	348
Izod 충격 강도@23 °C(kg.cm/cm)	12	9	10	12	12

나. 선행발명들

1) 선행발명 1(갑 제9호증)

2008. 7. 25. 공고된 등록특허공보 제848526호에 기재된 '스크류 캡 조성물'에 관한 것으로, 그 주요내용 및 도면은 아래와 같다.

가 기술 분야

[0001] 본 발명은 다중 모드성 (multimodal) 에틸렌 중합체 기재 조성물을 함유하는 스크류 캡에 관한 것이다. 이는 또한 상기 캡을 제조하는 방법 및 병, 특히, 식품, 더욱 특히는 거품 음료 (fizzy drink)를 담는 병의 마개용으로서의 그 용도에 관한 것이다.

나 배경 기술

[0002] 캡의 제조를 위해서 폴리에틸렌, 더욱 특히는 2 모드성 (bimodal) 폴리에틸렌을 사용하는 것이 공지되어 있다. 따라서, 특허 출원 US 5981664 및 WO 00/71615는 상이한 분자량 분포를 갖는 2 개의 폴리에틸렌을 함유하는 조성물을 사출하여 수득되는 캡을 기술한다. 그러나, 상기 문헌에 기재된 조성물은 캡의 제조를 위한, 특히, 거품 음료를 담는 병의 마개로 의도되는 캡의 제조를 위한 최적 특성을 가지고 있지 않다.

다 해결하려는 과제

[0003] 본 출원인은 이제 전술한 결점을 갖지 않는 다중 모드성 에틸렌 중합체 기재 조성물을 함유하는 스크류 캡을 발견하였다.

라 발명의 주요 내용

[0004] 상기 목적에 대하여, 본 발명은 950 kg/m^3 초과와 표준 밀도 (SD) 및 10 g/10 분 미만의 용융 유동 지수 (melt flow index) MI_2 를 갖는 다중 모드성 에틸렌 중합체 기재 조성물을 함유하고, 상기 다중 모드성 에틸렌 중합체가 다중 모드성 에틸렌 중합체의 전체 중량에 대하여, 965 kg/m^3 초과와 SD (A) 및 10 g/10 분 이상의 용융 유동 지수 $MI_2(A)$ 를 갖는, 에틸렌 중합체 (A) 분획 35 내지 65 중량% 및 다중 모드성 에틸렌 중합체의 전체 중량에 대하여, 10 g/10 분 미만의 용융 유동 지수 $MI_2(B)$ 및 0.1 내지 5 몰%의 알파-올레핀(들) 함량을 갖는, 에틸렌과 하나 이상의 탄소수 3 내지 12 인 알파-올레핀의 공중합체 (B) 분획 65 내지 35 중량%를 함유하는 스크류 캡에 관한 것이다.

[0007] 본 발명에서 사용되는 다중 모드성 에틸렌 중합체는 일반적으로 965 kg/m^3 를 초과하지 않는 표준 밀도 (SD)를 갖는다. 본 발명의 범주 내에서, SD는 표준 ISO 1183-3 (1999)에 따라 측정된다. SD는 바람직하게는 960 kg/m^3 를 초과하지 않고, 더욱 특히는 958 kg/m^3 를 초과하지 않는다. SD는 바람직하게는 951 kg/m^3 이상이다.

[0008] 본 발명에서 사용되는 다중 모드성 에틸렌 중합체는 바람직하게는, 표준 ASTM D

1238 (1998) 에 따라 하중 2.16 kg 하에서 190 °C 에서 측정된, 4 g/10 분 미만의 용융 유동 지수 (MI_2)를 갖는다. 2 g/10 분 미만인 MI_2 값이 특히 바람직하다. 용융 유동 지수 MI_2 는 일반적으로 0.5 g/10 분 이상이고, 0.8 g/10 분 이상일 수 있고; 1.2 g/10 분 이상의 값이 특히 바람직하다. 1.4 내지 1.8 g/10 분의 용융 유동 지수가 특히 매우 바람직하다.

[0011] 일반적으로 본 발명에 사용되는 조성물은 95 중량% 이상, 바람직하게는 98 중량% 이상의 중합체 (A) 및 공중합체 (B) 의 전체를 함유한다. 주로 중합체 (A) 및 공중합체 (B) 로 이루어진 조성물이 특히 가장바람직하다.

[0012] 바람직하게는, 중합체 (A) 는 에틸렌 단독중합체이다. 본 발명의 목적을 위하여, 에틸렌 단독중합체 (A) 는 주로 에틸렌 단량체 단위체로 이루어지고 다른 올레핀으로부터 유래된 단량체 단위체가 실질적으로 배제된 에틸렌 중합체를 의미한다.

[0013] 하나 이상의 탄소수 3 내지 12 인 알파-올레핀을 갖는 에틸렌 공중합체 (공중합체 (B))는 에틸렌 유래 단량체 단위체 및 하나 이상의 탄소수 3 내지 12 인 알파-올레핀 유래 단량체 단위체를 함유하는 공중합체를 의미한다. 알파-올레핀은 부텐-1, 펜텐-1, 헥센-1, 옥텐-1과 같은 올레핀성 불포화 단량체 중에서 선택될 수 있다. 부텐-1 이 특히 바람직하다. 공중합체 (B) 중 알파-올레핀의 함량은 0.2 몰% 이상, 특히 0.3 몰% 이상이 유리하다. 공중합체 (B) 중 알파-올레핀 함량은 바람직하게는 4 몰% 이하, 더욱 정확하게는 3 몰%이하이다. 공중합체 (B) 내 알파-올레핀 함량이 0.5 내지 2 몰% 인 경우 특히 양호한 결과가 수득된다.

[0014] 중합체 (A) 의 SD ($SD(A)$)는 바람직하게는 968 kg/m³ 이상, 더욱 특히는 970 kg/m³ 이상이다. 유리하게는, 중합체 (A)는 30 g/10 분 이상, 더욱 특히는 50 g/10 분 이상의 $MI_2(A)$ 값을 특징으로 한다. 바람직하게는, MI_2 (A) 값은 500 g/10 분을 초과하지 않고, 400 g/10 분 미만의 값이 특히 바람직하다. 80 g/10 분 이상, 특히 80 내지 200 g/10 분의 용융 유동 지수 $MI_2(A)$ 가 양호한 결과를 제공하였다.

[0015] 바람직하게는, 공중합체 (B)는 0.03 g/10 분 이상, 더욱 특히는 0.06 g/10 분 이상의 $MI_2(B)$ 값을 특징으로 한다. 특히, 0.08 g/10 분 이상의 $MI_2(B)$ 값이 가장 바람직하다. 바람직하게는, $MI_2(B)$ 값은 2 g/10 분을 초과하지 않고, 1 g/10 분 이하의 값이 특히 바람직하다. 가장 특히는 0.8 g/10 분 이하의 $MI_2(B)$ 값이 바람직하고, 더욱 바람직하게는 0.5 g/10 분 이하이다. 0.08 내지 0.8 g/10 분의 용융 유동 지수 $MI_2(B)$ 가 양호한 결과를 제공하였다.

[0021] 본 발명에 따른 스크류 캡은 이를 식품을 담는 병에 사용하는데 적합하게 하는 양호

한 관능적 특성(organoleptic property)을 갖는다. 또한, 이는 느린 크래킹 (cracking)에 대한 양호한 저항성을 갖는다.

2) 선행발명 2(갑 제10호증)

2007. 5. 30. 공개된 유럽 특허출원공개공보 EP 제1790580호에 게재된 'HDPE를 포함하는 스크류 캡'에 관한 것으로, 그 주요내용 및 도면은 아래와 같다.

가 기술 분야

[0001] 본 발명은 고밀도 폴리에틸렌(HDPE) 캡 또는 마개, 이의 제조 방법, 및 이의 제조에 유용한 특정 HDPE 조성물에 관한 것이다. 특히, 본 발명은 비탄산 및 탄산 음료 병용 캡 및 마개의 제조에 최적화된 특정 다중모드 고밀도 폴리머의 용도에 관한 것이다.

나 배경 기술

[0004] 캡의 중량이 더 가볍다는 것은, 또한 매우 중요한 것인, 사이클 시간의 감소를 의미한다. 중량이 더 가벼운 캡은 더 빨리 냉각되어 사출 성형 공정을 더 자주 실행할 수 있게 한다. 따라서 사이클 시간을 아주 조금이라도 줄일 수 있는 폴리머를 만들 수 있다면, 주어진 시간 동안 더 많은 캡을 생산할 수 있다.

[0005,0006] 안타깝게도, 통상의 기술자 또한 캡 중량을 쉽게 줄일 수 없다는 것을 알고 있다. 캡은 병에서 탈착했다가 병에 다시 장착할 때 변형되지 않을 만큼 충분히 단단해야 한다. 캡에는 병과의 적절한 밀봉이 이루어지도록 나사산이 충분해야 한다. 가장 중요한 것은 캡이 사용 중, 특히 탄산 음료를 포장할 때 반드시 상당한 내부 압력을 견딜 수 있어야 한다는 것이다. 탄산 음료를 포장할 때, 병에 존재하는 이산화탄소로 인해, 캡에 상당한 압력을 가해진다. 일반적으로 캡은 3-4 bar의 내부 압력을 견딜 수 있어야 하며 그렇지 않으면 파괴될 수 있다. 따라서 가벼우면서도 병 내부로부터의 상당한 내부 압력을 견딜 수 있는 새로운 캡을 제작할 필요가 있다.

다 해결하려는 과제

[0007] 본 발명자들은 특정 폴리머들이 현재 시장에 나와 있는 것보다 더 가벼운 캡의 제조를 가능하게 하면서도 여전히 비탄산 및 탄산 음료 용도 모두에 사용하기 위해 필요한 강성을 갖는다는 것을 발견하였다. 캡의 중량이 더 가볍다는 것은 캡의 가격이 더 저렴하고 사이

클 시간이 감소함을 의미한다. 음료수 병 제조업체의 요구 사항을 충족하는 경량 HDPE 캡이 이전에 개발된 적이 없다고 알려져 있다.

라 발명의 주요내용

[0008] 따라서, 일 측면에서 볼 때, 본 발명은 940 kg/m^3 을 초과하는 밀도, 1000 MPa을 초과하는 인장 탄성률 및 0.3 내지 15 g/10 min의 MFR_2 를 갖는 HDPE를 포함하는 스크류 캡을 제공하며, 여기서 캡의 중량(g)와 면적 πr^2 사이의 비는 0.32 g/cm^2 미만이며, r은 캡 내부의 반지름(cm)이다.

[0021] 본 발명에 따라 사용되는 HDPE의 코폴리머 성분(들)은 일반적으로 적어도 0.1 중량%, 바람직하게는 적어도 0.2 중량%의 비에틸렌 모노머 단위를 포함할 것인데, 예를 들어 그러한 코모노머 단위를 0.3 중량% 내지 2 중량%, 바람직하게는 0.4 중량% 내지 1 중량%로 함유할 것이다. 바람직한 에틸렌 코폴리머는 코모노머로서 α -올레핀(예를 들어, C_{3-12} α -올레핀)을 사용한다. 적합한 알파-올레핀의 예는 부트-1-엔(but-1-ene), 헥스-1-엔(hex-1-ene) 및 옥트-1-엔(oct-1-ene)을 포함한다. 하지만, 부트-1-엔(but-1-ene)이 특히 바람직한 코모노머이다.

[0024] 본 발명의 캡을 제조하는데 사용되는 HDPE는 바람직하게는 저분자량 성분 및 고분자량 성분을 갖는다.

[0025] 저분자량 성분: 저분자량 성분은 하기 특징 중 하나 이상을 가질 수 있다. 190°C 에서 그리고 2.16 kg 하중 하에서 ISO 1133에 따라 측정된 MFR_2 가 10-1000 g/10 min, 바람직하게는 50-800 g/10 min, 특히 50-600 g/10 min; 중량평균 분자량이 10-90 kD, 바람직하게는 20-80 kD, 특히 30-65kD임; 바람직하게는 밀도가 965 kg/m^3 보다 높은 호모폴리머 또는 코폴리머, 가장 바람직하게는 호모폴리머임; 조성물 내에 총 폴리에틸렌을 10 중량% 내지 90 중량%, 바람직하게는 35 중량% 내지 65 중량%, 특히 45 중량% 내지 55 중량%, 예를 들어 50 중량%으로 포함함.

[0026] 고분자량 성분: 고분자량 성분은 하기 특징 중 하나 이상을 가질 수 있다. 중량평균 분자량이 60-500 kD, 바람직하게는 100-400 kD임; 조성물 내에 총 폴리에틸렌을 10 중량% 내지 90 중량%, 바람직하게는 35 중량% 내지 65 중량%를 포함하고, 다시 말해, 저분자량 성분:고분자량 성분 중량비가 10:90 내지 90:10, 바람직하게는 35:65 내지 65:35이고, 특히

45 중량% 내지 55 중량%, 예를 들어 50 중량%임; 호모폴리머, 또는 바람직하게는 코폴리머로서, 특히 또 다른 α -올레핀과의 코폴리머, 특히 본원에 기재된 코폴리머와 같은 것들.

[0027] 최종 폴리머 조성물: 최종 HDPE 폴리머 조성물(단일모드이든 다중모드이든)은 하기 특징 중 하나 이상을 가질 수 있다:

190°C에서 그리고 2.16 kg 하중 하에서 ISO 1133 에 따라 측정된 MFR₂가 0.3-15 g/10분, 바람직하게는 1-10 g/10분, 특히 2-9 g/10분, 예를 들어 5-8 g/10 분임;

중량평균 분자량이 적어도 50 kD, 예를 들어 적어도 80 kD, 바람직하게는 80-200 kD, 더욱 바람직하게는 90-150 kD임;

분자량 분포(수평균 분자량에 대한 중량 평균 분자량의 비)가 3-20, 바람직하게는 5-15, 더욱 바람직하게는 6-10임;

C¹³ NMR로 측정된 코모노머 함량이 0.05-2.5 중량%, 바람직하게는 0.1-2 중량%, 더욱 바람직하게는 0.2 중량% 내지 1.5 중량%임;

DSC 분석에 의해 결정된 결정질 융점이 125-140°C임;

DSC 분석에 의해 결정된 결정도가 60%-85%, 보다 바람직하게는 65%-80%임;

FNCT가 적어도 15시간, 바람직하게는 적어도 16시간임.

다. 이 사건 심결의 경위

1) 원고들은 2017. 9. 11. '용기 마개용 폴리머 조성물'이라는 명칭의 이 사건 출원발명을 출원하였는데, 특허청 심사관은 2021. 9. 2. 원고들에게 "① 이 사건 출원발명의 청구항 제2항 내지 제13항은 특허법 제42조 제4항 제2호에 위배되고, ② 이 사건 출원발명의 청구항 제4항 내지 제8항, 제11항, 제13항은 특허법 제42조 제8항 및 특허법 시행령 제5조 제6항에 위배되고, ③ 이 사건 출원발명의 청구항 전항은 이 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자(이하 '통상의 기술자'라 한다)가 선행발명 1에 선행발명 2를 결합하여 쉽게 발명할 수 있는 것이어서 특허법 제29조 제2항에 위배된다."는 취지의 의견제출통지를 하였다.

2) 원고들은 2021. 11. 1. 이 사건 출원발명의 명세서를 보정하는 내용의 보정서를 제출하였으나, 특허청 심사관은 2022. 3. 21. '이 사건 출원발명의 청구항 전항은 특허법 제29조 제2항 위반의 거절이유가 해소되지 않았다.'는 이유로 이 사건 출원발명에 대하여 특허거절결정을 하였다.

3) 원고들은 2022. 5. 11. 특허심판원에 위 거절결정의 취소를 구하는 심판을 청구하였으나, 특허심판원은 위 심판청구를 2022원1102호로 심리한 다음, 2022. 7. 29. 이 사건 제1항 발명은 통상의 기술자가 선행발명 1에 선행발명 2를 결합하여 쉽게 발명할 수 있어 진보성이 부정된다.'는 이유로 원고들의 위 심판청구를 기각하는 내용의 심결(이하 '이 사건 심결'이라 한다)을 하였다.

【인정 근거】 다툼 없는 사실, 갑 제1 내지 10호증의 각 기재, 변론 전체의 취지

2. 당사자 주장의 요지

가. 원고들 주장의 요지

이 사건 제1항 발명은 다음과 같은 이유로 선행발명 1에 선행발명 2를 결합하더라도 쉽게 발명할 수 없어 진보성이 부정된다고 볼 수 없으므로, 이와 결론을 달리한 이 사건 심결은 위법하다.

1) 이 사건 출원발명은 결정화 속도와 우수한 균형을 이루면서 완전 노치 크리프 시험으로 측정된 높은 응력 균열 저항성을 갖는 폴리머 조성물을 제공하는 것이므로, 선행발명 1 및 2와는 구체적인 목적과 효과가 다르다.

2) 이 사건 제1항 발명의 폴리머 조성물의 점도는 선행발명 1 및 2에 개시되어 있지 않은데, 폴리머 조성물의 점도는 중량평균 분자량, 분자량 분포, 장쇄 분지 함량 등 여러 인자들에 의해 결정되는 것이므로, 이 사건 제1항 발명과 선행발명 1 및 2의 폴리

며 조성물이 중량평균 분자량(또는 용융유량), 코모노머의 함량이 공통된다고 하여 점도까지 공통된다고 볼 수는 없다.

3) 이 사건 제1항 발명의 폴리머 조성물의 등은 결정화 하프타임 및 완전 노치 크리프 시험값은 선행발명 1 및 2에 개시되어 있지 않은데, 폴리머 조성물의 등은 결정화 하프타임은 주로 점도에 의해 결정되는 것이고, 완전 노치 크리프 시험으로 측정되는 환경 응력 균열 저항성(ESCR)은 중량평균 분자량, 분자량 분포, 코모노머의 함량과 분포, 장쇄 분지 함량 등 여러 인자에 의해 결정되는 것이므로, 이 사건 제1항 발명과 선행발명 1 및 2의 폴리머 조성물이 중량평균 분자량(또는 용융유량), 코모노머 함량이 공통된다고 하여 등은 결정화 하프타임 및 완전 노치 크리프 시험값까지 공통하다고 볼 수는 없다.

나. 피고 주장의 요지

이 사건 제1항 발명은 다음과 같은 이유로 선행발명 1에 선행발명 2를 결합하여 쉽게 발명할 수 있어 진보성이 부정되므로, 이와 결론을 같이한 이 사건 심결에 원고들 주장과 같은 위법이 없다.

1) 이 사건 제1항 발명과 선행발명 1 및 2는 에틸렌 단독중합체 및 에틸렌 공중합체를 포함하는 폴리머 조성물이란 점에서 기술분야가 공통되고, 용기 마개용으로 사용될 수 있는 적절한 재료적 특성을 가지는 폴리머 조성물을 제공한다는 점에서 목적이 동일하다.

2) 고분자의 점도는 주로 분자량에 의해 결정되는 것이고, 이 사건 제1항 발명과 선행발명 1의 폴리머 조성물의 용융유량, 코모노머의 함량이 공통되는 점에 비추어 보면, 선행발명 1의 폴리머 조성물에도 이 사건 제1항 발명과 동일한 중량평균 분자량, 점도

특성이 내재되어 있는 것이다.

3) 이 사건 제1항 발명의 폴리머 조성물의 등은 결정화 하프타임 및 완전 노치 크리프 시험값의 수치범위는 임계적 의의가 없는 단순한 수치한정으로, 통상의 기술자가 선행발명 1 및 2로부터 쉽게 도출할 수 있다.

3. 이 사건 심결의 위법 여부

가. 이 사건 제1항 발명의 진보성 부정 여부

1) 선행발명 1과의 구성요소 대비

구성 요소	이 사건 제1항 발명	선행발명 1
1	에틸렌 호모폴리머 및 에틸렌 코폴리머를 포함하는 폴리머 조성물로서,	○ <u>에틸렌 단독중합체(A) 및 에틸렌/알파-올레핀 공중합체(B)</u> 를 함유하는 다중 모드성 <u>에틸렌 중합체 조성물</u> (문단번호 [0011]~[0013]).
2	상기 에틸렌 코폴리머는, ① 상기 에틸렌 코폴리머 중의 모노머의 총량을 기준으로 하여, 적어도 0.55mol%의 양으로 코모노머를 포함하고, ② 상기 에틸렌 코폴리머는 상기 에틸렌 호모폴리머보다 더 높은 중량평균 분자량을 갖고	○ 상기 <u>에틸렌/알파-올레핀 공중합체(B)</u> 는 에틸렌 유래 단량체 단위 및 탄소수 3~12인 알파-올레핀 유래 단량체 단위를 함유하는 공중합체이고, 공중합체 내 <u>알파-올레핀 단위의 함량은 0.5~2 몰%인 경우</u> 특히 양호가 결과가 수득됨(문단번호 [0013]). ○ <u>에틸렌 단독중합체(A)의 용융유동지수(Melt Flow Index) MI_2가 80 내지 200g/10분인 경우</u> 양호한 결과를 제공하고, 상기 <u>에틸렌/알파-올레핀 공중합체(B)의 MI_2가 0.08 내지 0.8g/10분인 경우</u> 양호한 결과를 제공함(문단번호 [0014],[0015]).

3	<p>상기 폴리머 조성물은</p> <p>① 0.950g/cm³ 내지 0.965g/cm³ 범위의 밀도,</p> <p>② 적어도 0.3g/10분의 용융유량 MFR₂,</p> <p>③ 적어도 100,000g/mol의 중량평균 분자량,</p> <p>④ 적어도 20,000Pa·s의, 0.01[1/s]의 각 주파수에서의 점도 $\eta_{0.01}$를 가지며,</p> <p>⑤ 상기 폴리머 조성물은: 123°C에서 10분미만의 등온 결정화 하프타임(Isothermal Crystallization Half-Time); 및</p> <p>⑥ 적어도 60시간의 완전 노치 크리프 시험값(Full Notch Creep Test);을 갖는 폴리머 조성물.</p>	<p>○ 다중 모드성 에틸렌 중합체 조성물은</p> <p>① <u>표준밀도(SD)</u>는 일반적으로 965 kg/m³를 초과하지 않고, SD 는 바람직하게는 960 kg/m³를 초과하지 않고, 더욱 특히는 958 kg/m³을 초과하지 않는다. SD 는 바람직하게는 951 kg/m³ 이상이다 (문단번호 [0007]).</p> <p>② <u>1.4 내지 1.8 g/10분의 용융유동지수 MI₂</u>가 특히 매우 바람직하다(문단번호 [0008]).</p>
---	--	---

2) 공통점과 차이점

가) 구성요소 1

구성요소 1과 선행발명 1의 대응 구성요소는, 에틸렌 호모폴리머[에틸렌 단독중합체(A)]¹⁾ 및 에틸렌 코폴리머[에틸렌/알파-올레핀 공중합체(B)]를 포함하는 폴리머 조성물[다중 모드성 에틸렌 중합체 조성물]인 점에서 실질적으로 동일하다(당사자 사이에 별다른 다툼이 없다).

나) 구성요소 2

구성요소 2와 선행발명 1의 대응 구성요소는, 에틸렌 코폴리머[에틸렌/알파-올레핀 공중합체(B)] 중의 모노머의 총량을 기준으로 하여 적어도 0.55mol% [0.5~2 몰%]의 양

1) 괄호[] 안에 병기한 것은 이 사건 제1항 발명의 구성요소에 대응하는 선행발명 1의 구성요소이다. 이하 같다.

으로 코모노머[알파-올레핀 단량체 단위]를 포함한다는 점에서 실질적으로 동일하다.

다만, 구성요소 2는 에틸렌 코폴리머는 에틸렌 호모폴리머보다 더 높은 중량평균 분자량을 갖는 것인데 반해, 선행발명 1의 대응 구성요소는 에틸렌 단독중합체(A)의 용융유동지수(MI₂)가 80 내지 200g/10분인 경우와 에틸렌/알파-올레핀 공중합체(B)의 MI₂가 0.08 내지 0.8g/10분인 경우에 각 양호한 결과를 제공한다고 기재되어 있어 에틸렌/알파-올레핀 공중합체(B)는 에틸렌 단독중합체(A)보다 더 낮은 용융유동지수를 사용하고 있는 것으로 기재되어 있다. 그런데 고분자의 용융유동지수와 중량평균 분자량과의 관계에 있어서 용융유동지수가 낮으면 고분자의 분자량은 높은 것이 이 기술분야의 기술상식²⁾이므로, 선행발명 1의 대응 구성요소도 그 표현만 달리 기재하고 있을 뿐, 에틸렌/알파-올레핀 공중합체(B)는 에틸렌 단독중합체(A)보다 더 높은 중량평균 분자량을 갖는 것이므로, 양 대응구성은 실질적으로 동일하다(당사자 사이에 별다른 다툼이 없다).

다) 구성요소 3

구성요소 3은 폴리머 조성물이 ① 0.950g/cm³ 내지 0.965g/cm³ 범위의 밀도, ② 적어도 0.3g/10분의 용융유량 MFR₂, ③ 적어도 100,000g/mol의 중량평균 분자량, ④ 적어도 20,000Pa·s의, 0.01[1/s]의 각주파수에서의 점도 η 0.01를 가지며, ⑤ 123℃에서 10분 미만의 등온 결정화 하프타임(Isothermal Crystallization Half-Time) 및 ⑥ 적어도 60시간의 완전 노치 크리프 시험값(Full Notch Creep Test)을 갖는 것으로 한정하고 있다. 이와 관련하여, 이 사건 출원발명의 명세서에는 그 측정방법이 다음과 같이

2) 용융지수(MI, Melt Index)는 용융흐름지수(MFI), 용융흐름속도(MFR)라고도 한다. 정해진 일정 조건하에서 용융물을 피스톤에서 압출하였을 때의 유량으로, 용융물의 흐름의 용이성을 나타내는 지수([g/10min])이다(화학용어사전). 당연히 분자량이 작은 물질일수록 용융지수는 크다(두산백과).

기재되어 있다.

○(문단번호 [0036]~[0043]) **용어의 정의 및 측정 방법**

MFR₂: 폴리머의 용융 유량은 ASTM D 1238에 따라 측정되었으며 g/10분 단위로 표시되었는데, 이는 하중 2.16 kg 및 190 °C의 시험 조건하에서 폴리머의 유동성을 결정한다.

밀도: 폴리머의 밀도는, 밀도가 알려져 있는 표준시료와 비교하여, 액체 컬럼 구배 튜브에서 펠렛이 가라앉는 수준을 관찰함으로써 측정되었다. 이 방법은 ASTM D 1505에 따라 120 °C에서 어닐링 한 후의 고체 플라스틱에 대한 측정이다.

각주파수 0.01 [1/s]에서의 점도($\eta_{0.01}$): 유변학적 파라미터는 조절된 응력 레오미터 모델 MCR-301(Anton-Paar)을 사용하여 결정된다. 그 형상은 측정 갭이 1 mm인 25 mm 직경의 플레이트-플레이트(Plate-Plate)이다. 동적 진동 전단(dynamic oscillatory shear)은 질소 분위기 하에서 190 °C에서, 0.01 rad/s 내지 600 rad/s의 각주파수(ω)에서 수행된다. 샘플 준비는 190 °C에서의 압축 성형에 의해 25 mm의 원형 디스크가 되도록 수행된다. 0.01 [1/s]에서의 점도($\eta_{0.01}$)는 특정한 전단속도 0.01 [1/s]에서의 복소점도로부터 얻어진다.

등온 결정화 하프타임(ICH_T): ICH_T는 123 °C에서 DSC에 의해 특정 조건하에서 측정되었으며, 이는 샘플의 결정화 속도를 결정한다. 샘플을 50 °C/min의 가열 속도로 30 °C로부터 200 °C까지 가열하고 5 분 동안 유지하였다. 그 다음, 샘플을 50 °C/min의 냉각 속도로 123 °C까지 냉각시키고 60 분 동안 유지하였다.

완전 노치 크리프 시험(FNCT): ISO 16770에 따른 FNCT는 2% Arkopal 용액에서 50 °C에서 5.78 MPa의 일정한 하중에서 폴리머의 응력 균열 저항성을 측정하는 바람직한 방법이었다.

이에 대하여, 선행발명 1의 대응 구성요소는 다중 모드성 에틸렌 중합체 조성물이 표준 ISO 1183-3 (1999)에 따라 측정되는 951 kg/m³ 이상, 965kg/m³ 이하(단위 환산: 0.951g/cm³ 이상, 0.965g/cm³ 이하)의 표준밀도 및 표준 ASTM D 1238 (1998)에 따라 하중 2.16kg 하에서 190°C에서 측정되는 1.4g/10분 내지 1.8g/10분의 용융유동지수 (MI₂)를 갖는 것으로 기재되어 있다(문단번호 [0007], [0008]).

따라서, 구성요소 3과 선행발명 1의 대응 구성요소는, 폴리머 조성물[다중 모드성

에틸렌 중합체 조성물]이 0.950g/cm^3 내지 0.965g/cm^3 [0.951g/cm^3 이상, 0.965g/cm^3 이하] 범위의 밀도, 적어도 0.3g/10분 [1.4g 내지 1.8g/10분]의 용융유량 MFR₂[용융유동지수 MI₂]를 갖는 다는 점에서 실질적으로 동일하다.

다만, 구성요소 3은 폴리머 조성물이 적어도 $100,000\text{g/mol}$ 의 중량평균 분자량, 적어도 $20,000\text{Pa}\cdot\text{s}$ 의, $0.01[1/\text{s}]$ 의 각주파수에서의 점도 $\eta_{0.01}$ 를 가지며, 123°C 에서 10분 미만의 등온 결정화 하프타임(Isothermal Crystallization Half-Time) 및 적어도 60시간의 완전 노치 크리프 시험값(Full Notch Creep Test)을 갖는 것인데 반해, 선행발명 1에는 이에 대하여 개시하고 있지 않은 점에 차이가 있다(이하 '차이점'이라 한다).

3) 차이점에 대한 검토

그런데 갑 제8 내지 12, 15호증, 을 제2호증의 각 기재와 변론 전체의 취지에 의하여 알 수 있는 아래와 같은 사실 및 사정을 종합하여 보면, 통상의 기술자는 이 사건 제1항 발명과 선행발명 1 사이에 존재하는 차이점에서, (i) '적어도 $100,000\text{g/mol}$ 의 중량평균 분자량'인 부분은 선행발명 1에 선행발명 2를 결합하여 쉽게 극복할 수 있으나, (ii) '적어도 $20,000\text{Pa}\cdot\text{s}$ 의 점도', ' 123°C 에서 10분 미만의 등온 결정화 하프타임' 및 '적어도 60시간의 완전 노치 크리프 시험값'의 부분은 선행발명 1에 선행발명 2를 결합하더라도 쉽게 극복할 수 있을 것으로 보기 어렵다.

가) 중량평균 분자량 관련 부분

(1) 먼저, 이 사건 출원발명의 명세서에는 '더욱 바람직하게는, 상기 폴리머 조성물은 $100,000\text{ g/mol}$ 내지 $300,000\text{ g/mol}$ 의, 바람직하게는 $150,000\text{ g/mol}$ 내지 $200,000\text{ g/mol}$ 의 중량평균 분자량을 갖는다.'(문단번호 [0012])라고 기재되어 있을 뿐, 이 사건 제1항 발명에서 폴리머 조성물의 중량평균 분자량을 ' $100,000\text{g/mol}$ '으로 한정

것에 대해 특별한 기술적 의의나 임계적 의의가 기재되어 있지 않다.

(2) '고밀도 폴리에틸렌(HDPE)을 포함하는 스크류 캡'에 관한 선행발명 2(갑 제10호증)의 명세서에는 다음과 같이 기재하고 있다.

○(문단번호[0007]) 본 발명자들은 특정 폴리머들이 현재 시장에 나와 있는 것보다 더 가벼운 캡의 제조를 가능하게 하면서도 여전히 비탄산 및 탄산 음료 용도 모두에 사용하기 위해 필요한 강성을 갖는다는 것을 발견하였다. 캡의 중량이 더 가볍다는 것은 캡의 가격이 더 저렴하고 사이클 시간이 감소함을 의미한다.

○(문단번호 [0012]~[0015]) 그러나 바람직하게는, 본 발명의 HDPE는 상이한 분자량 분포를 갖는 적어도 2개의 성분을 포함해야 한다. 즉 상기 HDPE는 다중모드, 바람직하게는 이중모드이다. 상기 상이한 성분은 둘 다 에틸렌 코폴리머 또는 에틸렌 호모폴리머일 수 있지만, 바람직하게는, 이 성분들 중 적어도 하나는 에틸렌 코폴리머이다. 바람직하게는, HDPE는 에틸렌 호모폴리머 및 에틸렌 코폴리머 성분을 포함한다. 성분 중 하나가 에틸렌 호모폴리머인 경우, 이는 바람직하게는 중량 평균 분자량(M_w)이 더 낮은 성분이다.

○(문단번호 [0017]) HDPE 는 밀도가 940 kg/m^3 초과, 예를 들어 940 내지 980 kg/m^3 , 바람직하게는, 945 kg/m^3 초과, 특히 950 kg/m^3 초과, 예를 들어 950 내지 975 kg/m^3 , 특히 965 kg/m^3 초과, 특히 966 kg/m^3 초과인 폴리에틸렌을 의미한다.

○(문단번호 [0021]) 본 발명에 따라 사용되는 HDPE의 코폴리머 성분(들)은 일반적으로 적어도 0.1 중량%, 바람직하게는 적어도 0.2 중량%의 비에틸렌 모노머 단위를 포함할 것인데, 예를 들어 그러한 코모노머 단위를 0.3 중량% 내지 2 중량%, 바람직하게는 0.4 중량% 내지 1 중량%로 함유할 것이다. 바람직한 에틸렌 코폴리머는 코모노머로서 α -올레핀(예를 들어, C_{3-12} α -올레핀)을 사용한다.

○(문단번호 [0027]) 최종 폴리머 조성물: 최종 HDPE 폴리머 조성물(단일모드이든 다중모드이든)은 하기 특징 중 하나 이상을 가질 수 있다:

190°C 에서 그리고 2.16 kg 하중 하에서 ISO 1133 에 따라 측정된 MFR_2 가 $0.3\text{-}15 \text{ g/10분}$, 바람직하게는 $1\text{-}10 \text{ g/10분}$, 특히 $2\text{-}9 \text{ g/10분}$, 예를 들어 $5\text{-}8 \text{ g/10분}$ 임;

중량평균 분자량이 적어도 50 kD , 예를 들어 적어도 80 kD , 바람직하게는 $80\text{-}200 \text{ kD}$, 더욱 바람직하게는 $90\text{-}150 \text{ kD}$ 임;

C^{13} NMR로 측정된 코모노머 함량이 0.05-2.5 중량%, 바람직하게는 0.1-2 중량%, 더욱 바람직하게는 0.2 중량% 내지 1.5 중량%임;

위 기재에 의하면, 선행발명 2는 에틸렌 호모폴리머 및 에틸렌 코폴리머를 포함하는 다중모드성 HDPE 조성물을 개시하고 있는데, 이때 에틸렌 호모폴리머의 중량평균 분자량(M_w)은 에틸렌 코폴리머의 M_w 보다 낮고, 에틸렌 코폴리머는 0.05~2.5 중량%의 코모노머 함량을 포함하는 것이며, 또한 이러한 HDPE 조성물은 적어도 940kg/m^3 (단위 환산: 0.940g/cm^3)의 밀도를 가지며, ISO 1133에 따라 하중 2.16kg 하에서 190°C 에서 측정된 $0.3\sim 15\text{g}/10\text{분}$ 의 MFR_2 및 더욱 바람직하게는 $90\sim 150\text{ kD}$ (단위 환산: $90,000\sim 150,000\text{g/mol}$)의 중량평균 분자량(실시예 1의 M_w 는 $100,000$ 이상)을 갖는다고 개시하고 있다. 이러한 선행발명 2의 HDPE 조성물의 성분 및 특성은 이 사건 제1항 발명의 폴리머 조성물의 성분 및 특성과 공통되거나 유사하다.

(3) 한편, 선행발명 2는 캡의 제조에 적합한 특성을 갖는 다중모드성 HDPE 조성물이라는 점에서 선행발명 1과는 그 기술분야가 공통되고, 선행발명 2의 명세서에는 위와 같은 HDPE 조성물이 더 가벼운(사이클 시간이 감소된) 캡의 제조를 가능하게 하고, 높은 강성과 우수한 유연학적 특성을 나타낸다고 기재되어 있다(갑 제10호증, 문단 번호 [0007], [0028], [0032]~[0033]).

따라서 선행발명 2의 이러한 내용을 접합 통상의 기술자라면, 선행발명 2의 HDPE 조성물과 그 용융유동지수가 공통되는 선행발명 1의 다중모드성 폴리머 조성물에 있어서도 캡의 제조를 위한 최적 특성을 발현할 수 있도록 중량평균 분자량을 '적어도 $100,000\text{g/mol}$ '으로 한정하는 정도는 쉽게 도출할 수 있다고 봄이 타당하다.

나) 점도 관련 부분

(1) 이 사건 출원발명의 명세서에는 다음과 같은 기재가 있다.

- (문단번호 [0009]) 본 발명의 목적은 종래 기술의 단점을 극복할 수 있는 용기 마감(container closure)를 제조하기에 적합한 폴리머 조성물을 제공하는 것이며, 특히, 결정화 속도와 우수한 균형을 이루면서 FNCT(Full Notch Creep Test: 완전 노치 크리프 시험)로 측정된 높은 응력 균열 저항성을 갖는 폴리머 조성물을 제공하는 것이며, ...(생략).
- (문단번호 [0056]) 실시예 3 및 4 및 비교예 1에서, 스크류 캡의 전형적인 MFR₂ 및 밀도에 해당하는 폴리에틸렌 조성물을 합성하였다. 표 3에 나타난 바와 같이, 실시예 3 및 4는 에틸렌 코폴리머의 더 높은 분자량(Mw), 다분산 지수(PDI)로 표시되는 더 넓은 분자량 분포, 및 각주파수 0.01 [1/s]에서의 더 높은 점도를 나타낸다. 등온 결정화 하프타임(ICT), FNCT에 의해 측정된 응력 균열 저항성 및 나선형 흐름을 포함하는 특성들은 비교예보다 월등하게 우수하다.

위 기재에 의하면, 이 사건 제1항 발명에서 폴리머 조성물의 점도($\eta_{0.01}$)를 '적어도 20,000Pa·s'인 것으로 한정된 이유는, 높은 분자량과 넓은 분자량 분포를 갖는 폴리머 조성물에 있어서 위와 같은 높은 점도 값을 부여하기 위한 것으로써 이들 구성을 채택함으로써 폴리머 조성물은 등온 결정화 하프타임, 완전 노치 크리프 시험에 의해 측정된 응력 균열 저항성 등에서 우수한 특성을 갖는 것임을 알 수 있다.

(2) 한편, 선행발명 1 및 2는 모두 캡의 제조를 위한 폴리머 조성물에 관한 것으로, 선행발명 1에는 폴리머 조성물이 1.4g 내지 1.8g/10분의 용융유동지수 MI₂를 갖는 것이 개시되어 있고(갑 제9호증, 문단번호[0008]), 선행발명 2에는 폴리머 조성물이 0.3~15g/10분의 용융유량 MFR₂ 및 90~150 kD의 중량평균 분자량을 갖는 것이 개시되어 있으나(갑 제10호증, 문단번호 [0027]), 선행발명 1 및 2의 어디에도 폴리머 조성물이 이 사건 제1항 발명과 같은 '적어도 20,000Pa·s'의 점도($\eta_{0.01}$)를 갖는 것에 대하여는 개시되어 있지 않다.

(3) 그런데 갑 제11, 12호증, 을 제2호증의 각 기재에 의하면, 고분자의 점도는 중량평균 분자량(Mw)뿐 아니라 분자량 분포(MWD), 고분자 사슬의 장쇄 분지(Long Chain Branching: LCB) 함량 등 여러 인자에 의해 영향 받아 결정되는 것임을 알 수 있다. 따라서 이 사건 제1항 발명과 선행발명 1 및 2의 폴리머 조성물이 중량평균 분자량(또는 용융유량)이 공통된다고 하여 그 점도까지 공통된다고 볼 수는 없다.

갑 제11호증("고밀도 폴리에틸렌(HDPE)의 유변학 및 가공"에 관한 논문, 2012. 공개)

○(41면) Wasserman과 Graessley[43]는 제로 전단 점도가 Mw의 함수일 뿐만 아니라 다양한 다분산도 측정의 함수가 되도록 하는 선형 폴리머의 제로 전단 점도에 대한 보다 일반적인 상관 관계를 제시했다. 제안된 상관 관계는 다음과 같다.

$$\eta_0 = K Mw^a (Mw/Mn)^b (Mz/Mw)^c \quad (5.5)$$

○(89면) 선형 점탄성 측정에서, 매우 넓은 분자량 분포를 가진 m-HDPE의 경우 제로 전단 점도는 분자량의 멍급수 법칙 함수일 뿐만 아니라 분자량 분포(Mz/Mw)의 함수이기도 하다.

갑 제12호증("고밀도 폴리에틸렌의 기계적 및 화학적 성질: 크리프 특성에 대한 마이크로구조의 영향"에 관한 논문, 2008. 공개)

○(117면) **5. 3. 2. 장쇄 분지 효과**

일반적으로 표 5.3의 유변학적 특성은 수지의 MW 차이를 반영한다(표 5.2). MW가 높은 수지는 η_0 및 G 값이 더 높고; J0 및 Me 값이 더 낮다. 이 관찰은 유변학적 이론에 대한 현재의 이해를 따릅니다(27). 그러나 PE8은 예상 추세와 다르게 동작한다. PE7은 PE8보다 MW가 더 높다(표 5.2, Mw 및 Mz 값 참조). 그러나 PE8은 PE7보다 더 높은 제로 전단 점도와 더 낮은 Me를 나타낸다. 폴리머의 η_0 에 영향을 미치는 다른 특성은 MWD 및 장쇄 분지(LCB)이다(27). 이 두 수지를 더 비교하면, 이들은 유사한 폭의 MWD를 나타낸다(그림 5.3c 참조). 따라서 η_0 값의 차이는 MWD가 아닌 다른 요인에 기인해야 한다.

○(121면) LCB의 존재는 폴리머의 유변학적 거동에 영향을 미치는 것으로 알려져 있다. 여러 연구에 따르면 LCB의 저농도 존재는 고밀도 폴리에틸렌의 η_0 을 증가시키는 것으로 나타났다(41, 55-57). PE7은 MW 값이 더 높지만(표 5.2 참조) PE8의 LCB 함량이 더 높아 그 결과

PE7보다 제로 전단 점도가 더 높다.
을 제2호증(고분자 과학과 기술 제5권 4호, 1994년 8월)
<p>○(382면) 2. 1 분자량 및 분자량 분포</p> <p>무게 평균 분자량이 서로 비슷한 고분자 재료라도 분자량 분포에 따라서 유변 특성이 매우 달라진다. ...(중략)... 즉 분자량 분포가 넓은 시료의 경우 shear rate가 증가함에 따라 점도가 빠르게 감소한다.</p> <p>○(383~384면) 2. 3 분지(Branching)</p> <p>선형 고분자의 측쇄에 비교적 길이가 긴 치환기가 도입된 분지형 고분자의 경우는, 분지의 길이가 아주 크지 않는 한 동일한 분자량의 선형 고분자와 비교할 때 chain dimension이 작아지고 점도와 steady state compliance가 모두 작아진다. 그러나 branch가 갈어지고 그 수도 많아지면 분지로 인해서 chain mobility가 감소하고 entanglement 영향이 강해져서 오히려 점도와 steady state compliance가 모두 동일 분자량의 선형 고분자보다 훨씬 증가하게 된다.</p>

(4) 나아가 다음과 같은 이 사건 출원발명의 폴리머 조성에 관한 [표 2]를 참조하더라도, 실시예 3, 4와 비교예 1의 경우 폴리머 조성물의 용융유량(MFR₂)에서 아무런 차이가 없음에도 실시예 3, 4가 비교예 1에 비해 더 높은 점도($\eta_{0.01}$) 값을 나타내고 있고, 또한 실시예 1 내지 5의 경우 폴리머 조성물의 분자량(Mw) 및 점도($\eta_{0.01}$)가 비례하는 것도 아니므로³⁾, 이 사건 제1항 발명에서 폴리머 조성물의 점도가 반드시 중량평균 분자량(또는 용융유량)에 의해 결정된다고 보기는 어렵다.

- (문단번호 [0054]) 실시예 3 내지 5는 본 발명에 따른 바이모달 폴리머 조성물이다. 실시예 5는 100 ppm의 핵형성제(Hyperform HPN-20E®)를 포함한다. 비교예 1 및 2 및 실시예 3 내지 5에서 사용된 폴리에틸렌 조성물의 특성을 하기 표 2에 나타내었다.

[표 2] 폴리머 조성(발체)

3) [표 2]에서 폴리머 조성물의 분자량(Mw)은 실시예(2 → 1 → 3 → 5 → 4) 순으로 증가하는 데 비해, 폴리머 조성물의 점도($\eta_{0.01}$)는 실시예(1 → 2 → 3 → 4 → 5) 순으로 증가한다.

특성	실시예 1 (비교예)	실시예 2 (비교예)	실시예 3	실시예 4	실시예 5
MFR ₂ (g/10분)	0.77	0.89	0.78	0.74	0.72
밀도 (g/cm ³)	0.9563	0.9574	0.9555	0.9553	0.9560
코모노머 함량(%mol)	0.46	0.44	0.60	0.63	0.65
코폴리머의 ⁴⁾ Mw(g/mol)	144,153	132,729	157,025	159,398	157,836
PDI	17	11	15	18	18
$\eta_{0.01}$ (Pa.s)	18,184	19,322	22,371	22,964	24,420

(5) 이에 더하여 이 사건 제1항 발명과 같은 에틸렌 호모폴리머 및 에틸렌 코폴리머를 포함하는 폴리머 조성물에 있어서, 폴리머 조성물의 점도($\eta_{0.01}$)가 '적어도 20,000Pa·s'인 것이 이 기술분야에서 폴리머 조성물의 통상적인 점도 범위라고 볼 만한 증거도 없다.

(6) 이에 대하여, 피고는 위 '[표 2] 폴리머 조성'에 의하면 코모노머 함량이 0.55 몰% 이상일 때 점도($\eta_{0.01}$)가 20,000Pa·s 이상이 되는 것을 알 수 있으므로, 이 사건 제1항 발명과 공통되는 코모노머 함량을 갖는 선행발명 1의 폴리머 조성물에도 이 사건 제1항 발명의 점도 특성이 내재되어 있다고 주장한다.

그러나 피고의 이 부분 주장은 다음과 같은 이유로 받아들이기 어렵다.

(가) 앞서 본 바와 같이, 고분자의 점도는 중량평균 분자량(Mw), 분자량 분포(MWD), 고분자 사슬의 장쇄 분지(LCB) 함량 등 여러 인자에 의해 결정되는 것이므로, 이 사건 제1항 발명과 선행발명 1의 코모노머 함량이 공통된다고 하여 선행발명 1에

4) [표 2]에는 '코폴리머의 Mw'라고 기재되어 있으나, 이 사건 출원발명의 명세서의 전체적인 내용 및 [표 2]가 폴리머 조성물의 특성을 나타내는 것인 점을 고려할 때, 이는 '폴리머 조성물의 Mw'의 오키로 봄이 타당하다.

이 사건 제1항 발명과 같은 점도 특성이 내재되어 있다고 볼 수는 없다.

(나) 위 '[표 2] 폴리머 조성'을 살펴보면, 실시예 1의 코모노머 함량은 실시예 2의 코모노머 함량보다 더 높음에도 실시예 1의 점도는 실시예 2의 점도보다 오히려 낮으므로, 폴리머 조성물의 점도가 코모노머의 함량에 비례하는 것도 아니다,

(다) 더욱이, 다음과 같은 갑 제15호의 기재에 의하면, 폴리머 조성물의 점도가 반드시 코모노머의 함량에 의해 영향을 받는다고 볼 수도 없으므로, 이 사건 제1항 발명과 선행발명 1이 코모노머 함량이 공통된다고 하여 선행발명 1에 이 사건 제1항 발명과 같은 점도 특성이 내재되어 있다고 보기도 어렵다.

갑 제15호증("선형 및 장쇄 분지 에텐/알파-올레핀 코폴리머의 분자 구조 및 유변학적 특성"에 관한 논문, 2007. 공개)

- (49면) Schlund와 Utracki는 ZN-LLPDE의 점성 및 탄성 특성이 코모노머의 종류나 함량에 영향을 받지 않는다는 사실을 발견했다. 그러나, 그들은 밀도가 최하 0.918 g/cm^3 인 등급까지만 조사하였다. 이는 코모노머 함량 약 5 몰%에 해당한다. 좀 더 최근 논문에서, Kim et al.은 코모노머 함량이 높은 mLLDPE의 유변학적 특성들을 조사하였는데 결과는 동일하였다. Wood-Adams는 코모노머 함량(부텐)이 심지어 최대 21 wt% (12 mol%)까지 높아도 동적 점도에 영향을 주지 않는다고 하였다.
- 제로-전단율 점도 η_0 를 LLDPE의 몰 질량의 함수로 도 6-7에 나타내었다. HDPE의 상관관계로부터의 편차가 통계적으로 SEC의 오차 범위 내에 있는 것을 보면, η_0 가 코모노머 함량에 의존하지 않음을 알 수 있다. 체계적 편차가 존재한다면, 더 높은 제로-전단율 점도 방향이지 더 낮은 영-전단율 점도 방향이 아닌데, 후자는 예상되는 발산의 반대이다.

다) 등은 결정화 하프타임(ICHT) 및 완전 노치 크리프 시험값(FNCT) 관련 부분

(1) 이 사건 출원발명의 명세서에는 다음과 같은 기재가 있다.

- (문단번호[0008]) 상이한 특성들을 갖는 캡 및 마개를 위한 다양한 폴리머 조성물들이 US

2013/0237652 A1, EP 2365995 B1, EP 2052026 B1 및 EP 1462378 A2에 개시되어 있다. 그러나, 환경 응력 균열 저항성(environmental stress cracking resistance: ESCR) 및 빠른 사이클 시간(fast cycle time) 특성들(이는 폴리에틸렌 캡이 마개 디자인의 차세대 경향 및 더 높은 생산 용량을 충족시키는 것을 가능하게 함)은, 최종 사용자 및 캡 제조자 둘 다에게 요구되는 특성들을 향상시키기 위한 여전히 흥미로운 문제이다.

- (문단번호 [0009]) 본 발명의 목적은 종래 기술의 단점을 극복할 수 있는 용기 마개(container closure)를 제조하기에 적합한 폴리머 조성물을 제공하는 것이며, 특히, 결정화 속도와 우수한 균형을 이루면서 FNCT(Full Notch Creep Test: 완전 노치 크리프 시험)로 측정된 높은 응력 균열 저항성을 갖는 폴리머 조성물을 제공하는 것이며, 그에 따라, 캡(cap)에서의 높은 응력 균열 저항성, 빠른 사이클 시간, 및 사출 동안의 우수한 유동성을 달성할 수 있는 폴리머 조성물을 제공하는 것이다.

위 기재에 의하면 종래 캡 및 마개를 위한 폴리머 조성물은 최종 사용자 및 캡 제조자 모두의 요구를 만족시킬 만큼 환경 응력 균열 저항성 및 빠른 사이클 시간 특성이 충분하지 못하였다. 따라서 이 사건 제1항 발명은 위와 같은 종래 기술의 문제점을 개선하기 위하여, 결정화 속도와 우수한 균형을 이루면서 완전 노치 크리프 시험으로 측정된 높은 응력 균열 저항성을 갖는 폴리머 조성물을 제공하는 것을 그 기술적 과제로 삼고 있다.

- (문단번호 [0029]) 본 발명에 따른 폴리머 조성물은 123 °C에서 10 분 미만의 등온 결정화 하프 타임(ICHT) 및 50 시간 내지 100 시간 범위의 완전 노치 크리프 시험(FNCT) 값을 갖는다. 바람직하게는, ICHT는 123 °C에서 1.5 분 내지 9.5 분의 범위, 더욱 바람직하게는 2 분 내지 9 분의 범위이다. 또한, 바람직하게는, FNCT는 적어도 60 시간이고, 바람직하게는 60 시간 내지 100 시간의 범위이다.
- (문단번호 [0032]) 놀랍게도, 본 발명의 폴리머 조성물은 용기 마개를 제조하는데 유리하게 사용될 수 있음이 밝혀졌다. 본 발명의 폴리머 조성물은 높은 FNCT 및 낮은 등온 결

정화 하프타임(IHT)을 제공하고, 또한, 28 일 초과인 캡 ESCR(cap ESCR)을 제공한다. 또한, 본 발명의 조성물은 나선형 유동 시험(spiral flow test)에 의해 측정된 바와 같은 우수한 유동성을 나타낸다.

(2) 한편, 이 사건 출원발명의 명세서에는 위 과제의 해결수단이 구성요소 3에 기재된 바와 같이, 폴리머 조성물이 123℃에서 10분 미만의 등온 결정화 하프타임(IHT) 및 적어도 60시간의 완전 노치 크리프 시험값(FNCT)을 갖는 것에 있고, 이로써 캡(cap)에서의 높은 응력 균열 저항성, 빠른 사이클 시간 및 우수한 유동성을 달성할 수 있다고 기재되어 있다.

요컨대, 이 사건 제1항 발명에서 폴리머 조성물의 등온 결정화 하프타임 및 완전 노치 크리프 시험값에 대한 수치범위는 서로 균형을 이루면서, 캡에서의 높은 응력 균열 저항성, 빠른 사이클 시간 및 우수한 유동성을 달성케 하는 기술적 의의를 갖는 것임을 알 수 있다.

(3) 선행발명 1에는 폴리머 조성물이 1.4g 내지 1.8g/10분의 용융유동지수 MI₂를 갖는다고 개시되어 있고(갑 제9호증, 문단번호[0008]), 선행발명 2에는 폴리머 조성물이 0.3~15g/10분의 용융유량 MFR₂ 및 90-150 kD의 중량평균 분자량을 가지며, 적어도 15시간의 FNCT를 갖는다고 개시되어 있으나(갑 제10호증, 문단번호 [0027]), 선행발명 1 및 2의 어디에도 폴리머 조성물이 이 사건 제1항 발명과 같은 '123℃에서 10분 미만의 등온 결정화 하프타임' 및 '적어도 60시간의 완전 노치 크리프 시험값'을 동시에 갖는 것에 대하여는 개시되어 있지 않다.

(4) 다음과 같은 갑 제12, 13, 14호증의 각 기재에 의하면 고분자의 등온 결정화 하프타임은 주로 점도에 영향을 받는 것이고, 완전 노치 크리프 시험으로 측정되는 환

갑 제13호증(Macromolecules 2004., 37, 4845-4859)

- (4851~4852면) 도 7은 선택된 실험 조건(전단 속도 = 60 s^{-1} , 전단 시간 = 5 s, $T = 120^\circ\text{C}$)에서 다양한 블렌드의 MB-250K 성분에 대한 결정화 하프타임($t_{1/2}$)를 보여준다. ...(중략)... 또한, 결정화 하프타임은 MB-250K 농도가 증가함에 따라 감소하였다. (MB-100K/MB-250K의 $t_{1/2}$ 감소는 특히 중요하다.) 이러한 결과는 매질의 점도(분자량 및 농도의 함수로서)가 MB-250K의 결정화를 촉진하는 데 중요한 역할을 한다는 것을 나타낸다.
- (4858면) 대조적으로, 매트릭스의 점도가 높을 때, 결정화 고분자량 성분의 점도가 더 높아져, 유동 하에서 유도된 더 높은 핵 형성 밀도의 발달에 유리하다(예를 들어, MB-250K의 10 wt% 조성은 MB-100K/MB-250K 블렌드에서 가장 빠른 결정화 속도를 나타내었다).

갑 제12호증("고밀도 폴리에틸렌의 기계적 및 화학적 성질: 크리프 특성에 대한 마이크로구조의 영향"에 관한 논문, 2008. 공개)

○(214~215면) **8.2. ESCR 휴리스틱**

MW 및 SCB 외에도, 분자량 분포(MWD), 단쇄 분지 분포(SCBD) 및 장쇄 분지(LCB) 영향도 표시된다. 이러한 모든 (미세)분자/(미세)구조적 특성은 폴리에틸렌의 층간 연결 형성에 영향을 미치며, 이는 궁극적으로 폴리머의 ESCR에 영향을 미치는 핵심 요소이다. 층간 링크 수의 증가에 기여하는 재료 특성의 변화는 폴리에틸렌의 ESCR을 향상시킨다.

[표 8.1] HDPE의 분자 특성 및 ESCR 관계

	속성변 화	효과	ESCR
분자량(Mw)	↑	<ul style="list-style-type: none"> • 체인 얽힘 증가 • 결합 분자 농도 증가 • 라멜라 측면 표면적 증가 • 결정도 및 강도 증가 	↑
분자량 분포 (MWD)	↑	<ul style="list-style-type: none"> • 가공성 향상 • 체인 얽힘 증가 	↑
단쇄 분지(SCB)	↑	<ul style="list-style-type: none"> • 체인 얽힘 증가 	↑

단쇄 분지 분포 (SCBD)	SCB 관련	<ul style="list-style-type: none"> • 체인 미끄러짐 감소 • MWD의 높은 MW 말단에서의 더 높은 SCB 함량은 측간 링크 형성을 증가 시킴 	↑
장쇄 분지(LCB)	↑	<ul style="list-style-type: none"> • 체인 얽힘 증가 • HDPE는 일반적으로 ESCR의 영향을 미칠 만큼 충분히 높은 수준의 LCB를 가지고 있지 않는다. 	↑

갑 제14호증(Oil & Gas Science and Technology-Rev. IFP, Vol. 61, 2006., 735-742)

○(738면) **2.2. 환경 응력 균열 저항성**

도 1은 결정도를 직접 반영하는 밀도에 대한 ESCR 의존성을 도시한다. 모든 시리즈에 대해, ESCR은 밀도가 감소함에 따라 꾸준히 증가한다. 이는 아래에서 논의할 결정화 고려 사항으로 인해, 결합 사슬의 발생을 촉진하는 높은 몰 중량 측에서의 코-유닛 단위 함량의 증가 또는 MWD의 확장과 관련이 있다.

경 응력 균열 저항성(ESCR)은 중량평균 분자량(Mw)뿐 아니라 분자량 분포(MWD), 코모노머의 함량과 분포, 고분자 사슬의 장쇄 분지(LCB) 함량 등 여러 인자에 의해 영향 받아 결정되는 것임을 알 수 있다. 따라서 이 사건 제1항 발명과 선행발명 1 및 2의 폴리머 조성물이 중량평균 분자량(또는 용융유량), 코모노머의 함량이 공통된다고 하여 그 등은 결정화 하프타임(ICHT) 및 완전 노치 크리프 시험값(FNCT)까지 공통된다고는 볼 수는 없다.

(5) 이에 더하여 이 사건 제1항 발명과 같은 에틸렌 호모폴리머 및 에틸렌 코폴리머를 포함하는 폴리머 조성물에 있어서, '123℃에서 10분 미만의 등은 결정화 하프타

임' 및 '적어도 60시간의 완전 노치 크리프 시험값'을 동시에 갖는 것이 이 기술분야에서 폴리머 조성물의 통상적인 물리적 특성이라고 볼 만한 증거도 없다.

(6) 결국 앞서 본 선행발명 1 및 2에는 개별적으로 공지된 구성요소를 결합하여 이 사건 제1항 발명의 기술적 특징인 '123℃에서 10분미만의 등온 결정화 하프타임' 및 '적어도 60시간의 완전 노치 크리프 시험값'의 구성을 도출할 만한 개시나 암시가 없다.

4) 검토 결과의 정리

앞서 검토한 결과를 종합하면, 이 사건 제1항 발명은 통상의 기술자가 선행발명 1에 선행발명 2를 결합하더라도 쉽게 발명할 수 있다고 볼 수 없어 그 진보성이 부정되지 않는다.

나. 소결

이상 살펴본 바와 같이, 이 사건 제1항 발명은 선행발명 1과 선행발명 2의 결합에 의해 진보성이 부정되지 않으므로, 이와 결론을 달리한 이 사건 심결은 위법하다.

4. 결 론

그렇다면, 이 사건 심결의 취소를 구하는 원고들의 청구는 이유 있으므로 이를 인용하기로 하여, 주문과 같이 판결한다.

재판장 판사 임영우

판사 우성엽

판사 김기수