

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4807952号  
(P4807952)

(45) 発行日 平成23年11月2日 (2011. 11. 2)

(24) 登録日 平成23年8月26日 (2011. 8. 26)

(51) Int. Cl.

F I

C O 8 G 63/688 (2006. 01)

B 6 5 D 65/40 (2006. 01)

B 6 5 D 65/46 (2006. 01)

C O 8 K 3/00 (2006. 01)

C O 8 L 67/02 (2006. 01)

C O 8 G 63/688 Z B P

B 6 5 D 65/40 B R Q D

B 6 5 D 65/46 B S F

C O 8 K 3/00

C O 8 L 67/02

請求項の数 9 (全 110 頁)

(21) 出願番号 特願2004-547195 (P2004-547195)  
 (86) (22) 出願日 平成15年10月22日 (2003. 10. 22)  
 (65) 公表番号 特表2006-503963 (P2006-503963A)  
 (43) 公表日 平成18年2月2日 (2006. 2. 2)  
 (86) 国際出願番号 PCT/US2003/034004  
 (87) 国際公開番号 W02004/037888  
 (87) 国際公開日 平成16年5月6日 (2004. 5. 6)  
 審査請求日 平成18年9月12日 (2006. 9. 12)  
 (31) 優先権主張番号 10/279, 391  
 (32) 優先日 平成14年10月24日 (2002. 10. 24)  
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

前置審査

(73) 特許権者 390023674  
 イー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・  
 アンド・カンパニー  
 E. I. DU PONT DE NEMO  
 URS AND COMPANY  
 アメリカ合衆国、デラウェア州、ウイリミ  
 ントン、マーケット・ストリート 100  
 7  
 (74) 代理人 100082005  
 弁理士 熊倉 禎男  
 (74) 代理人 100084009  
 弁理士 小川 信夫  
 (74) 代理人 100084663  
 弁理士 箱田 篤

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 スルホン化脂肪族芳香族ポリエーテルエステルフィルム、コーティング、およびラミネート

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルから本質的になるフィルムであって、  
 前記フィルムは、ポリ（アルカノエート）、脂肪族ポリエステル、脂肪族芳香族ポリエ  
 ステル、脂肪族芳香族ポリエーテルエステル、脂肪族芳香族ポリアミドエステル、スルホ  
 ン化脂肪族芳香族ポリエステル、スルホン化脂肪族芳香族ポリエーテルエステル、熱可塑  
 性澱粉、およびそれらの混合物を含む 1 種またはそれ以上の生分解性材料であるポリマー  
 材料を含んでもよく、

前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルが、

ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計 1 0 0 モルパーセントに対して、芳香  
 族ジカルボン酸成分 8 0 . 0 から 2 0 . 0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分 2  
 0 . 0 から 8 0 . 0 モルパーセントと、スルホネート成分 0 . 1 から 1 0 . 0 モルパーセ  
 ントと、

グリコール成分と分枝剤の合計 1 0 0 モルパーセントに対して、エチレングリコール、  
 1 , 3 - プロパンジオール、および 1 . 4 - ブタンジオールからなる群から選択される第  
 1 のグリコール成分 9 9 . 9 から 9 1 モルパーセントと、第 2 のグリコール成分 0 から 5  
 . 0 モルパーセントと、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分 0 . 1 から 4 . 0 モ  
 ルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5 . 0 モルパーセントとを含み、

1 種または複数の無機フィラー、有機フィラー、および粘土フィラーを含んでもよく、  
 前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルの結晶融点が 2 0 3 . 5 以上 2 1

10

20

7.5 以下であることを特徴とするフィルム。

【請求項2】

スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを含む配向フィルムであって、  
前記フィルムは、ポリ（アルカノエート）、脂肪族ポリエステル、脂肪族芳香族ポリエステル、脂肪族芳香族ポリエーテルエステル、脂肪族芳香族ポリアミドエステル、スルホン化脂肪族芳香族ポリエステル、スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステル、熱可塑性澱粉、およびそれらの混合物を含む1種またはそれ以上の生分解性材料であるポリマー材料を含んでもよく、

前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルが、  
ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計100モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分80.0から20.0モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分20.0から80.0モルパーセントと、スルホネート成分0.1から10.0モルパーセントと、

グリコール成分と分枝剤の合計100モルパーセントに対して、エチレングリコール、1,3-プロパンジオール、および1,4-ブタンジオールからなる群から選択される第1のグリコール成分99.9から91モルパーセントと、第2のグリコール成分0から5.0モルパーセントと、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分0.1から4.0モルパーセントと、多官能性分枝剤0から5.0モルパーセントとを含み、

1種または複数の無機フィラー、有機フィラー、および粘土フィラーを含んでもよい、  
配向フィルム。

【請求項3】

少なくとも1層がスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを含み、かつ、少なくとも1層がポリマー材料を含む2から6層で構成された多層フィルムまたは多層配向フィルムであって、

前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルが、  
ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計100モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分80.0から20.0モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分20.0から80.0モルパーセントと、スルホネート成分0.1から10.0モルパーセントと、

グリコール成分と分枝剤の合計100モルパーセントに対して、エチレングリコール、1,3-プロパンジオール、および1,4-ブタンジオールからなる群から選択される第1のグリコール成分99.9から91モルパーセントと、第2のグリコール成分0から5.0モルパーセントと、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分0.1から4.0モルパーセントと、多官能性分枝剤0から5.0モルパーセントとを含み、

1種または複数の無機フィラー、有機フィラー、および粘土フィラーを含んでもよく、  
前記ポリマー材料が、ポリ（アルカノエート）、脂肪族ポリエステル、脂肪族芳香族ポリエステル、脂肪族芳香族ポリエーテルエステル、脂肪族芳香族ポリアミドエステル、スルホン化脂肪族芳香族ポリエステル、スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステル、熱可塑性澱粉、およびそれらの混合物を含む1種またはそれ以上の生分解性材料である、  
多層フィルムまたは多層配向フィルム。

【請求項4】

支持体とフィルムとを含む物品であって、支持体が、紙、板紙、無機発泡体、有機発泡体または無機有機発泡体を含み、フィルムが請求項1、2または3に記載のとおりであることを特徴とする物品。

【請求項5】

パッケージ製造プロセスであって、  
紙、板紙、無機発泡体、有機発泡体または無機有機発泡体である支持体を提供する工程と、

前記支持体を所望のパッケージ形態に形成する工程と、  
前記支持体に、スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルをラミネートまたはコ

10

20

30

40

50

ーティングし、さらにポリマー材料をラミネートまたはコーティングしてもよい工程とを含み、

前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルが、  
ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計 100 モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分 80.0 から 20.0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分 20.0 から 80.0 モルパーセントと、スルホネート成分 0.1 から 10.0 モルパーセントと、

グリコール成分と分枝剤の合計 100 モルパーセントに対して、エチレングリコール、1,3-プロパンジオール、および 1,4-ブタンジオールからなる群から選択される第 1 のグリコール成分 99.9 から 91 モルパーセントと、第 2 のグリコール成分 0 から 5.0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分 0.1 から 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5.0 モルパーセントとを含み、

1 種または複数の無機フィラー、有機フィラー、および粘土フィラーを含んでもよく、  
前記ポリマー材料が、ポリ(アルカノエート)、脂肪族ポリエステル、脂肪族芳香族ポリエステル、脂肪族芳香族ポリエーテルエステル、脂肪族芳香族ポリアミドエステル、スルホン化脂肪族芳香族ポリエステル、スルホン化脂肪族芳香族ポリエーテルエステル、熱可塑性澱粉、およびそれらの混合物を含む 1 種またはそれ以上の生分解性材料である、  
パッケージ製造プロセス。

#### 【請求項 6】

支持体とフィルムとを含むパッケージであって、前記パッケージが、包装体、ストレッチ包装用フィルム、袋、カップ、トレイ、カートン、箱、瓶、箱枠、包装用フィルム、ブリスターパック包装体、スキン包装材、ヒンジ付容器またはこれらの 2 以上の組み合わせであり、支持体が請求項 5 に記載のとおりであり、支持体には、一軸配向フィルムであっても二軸配向フィルムであってもよいフィルムがラミネートまたはコーティングされ、当該フィルムは請求項 1、2 または 3 に記載のとおりであることを特徴とするパッケージ。

#### 【請求項 7】

請求項 6 に記載のパッケージに食品を封入することを含むことを特徴とする食品包装方法。

#### 【請求項 8】

紙、板紙、無機発泡体、有機発泡体または無機有機発泡体である支持体を提供する工程と、

スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを提供する工程と、  
ラミネートまたはコーティングの施された支持体を所望のパッケージ形態に形成する工程と

を含むことを特徴とするパッケージ製造プロセスであって、

前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルが、  
ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計 100 モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分 80.0 から 20.0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分 20.0 から 80.0 モルパーセントと、スルホネート成分 0.1 から 10.0 モルパーセントと、

グリコール成分と分枝剤の合計 100 モルパーセントに対して、エチレングリコール、1,3-プロパンジオール、および 1,4-ブタンジオールからなる群から選択される第 1 のグリコール成分 99.9 から 91 モルパーセントと、第 2 のグリコール成分 0 から 5.0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分 0.1 から 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5.0 モルパーセントとを含み、

1 種または複数の無機フィラー、有機フィラー、および粘土フィラーを含んでもよい、  
パッケージ製造プロセス。

#### 【請求項 9】

スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステル組成物を溶融組成物になるまで加熱する工程と、

10

20

30

40

50

\_\_前記溶融組成物をダイで押出成形してフィルムを形成する工程と、

\_\_前記フィルムを冷却する工程と

を含むことを特徴とするフィルム製造プロセスであって、

\_\_前記フィルム製造プロセスは、組成物のガラス転移点を超え、かつこの組成物の軟化点未満の範囲でフィルムを加熱する工程を含んでもよく、さらにこのフィルムを縦方向にフィルムの未延伸長の1.5から10倍延伸する工程、又はこのフィルムを縦方向にフィルムの未延伸長の1.5から10倍延伸し横方向にフィルムの未延伸幅の1.5から10倍延伸する工程を含んでもよく、

\_\_前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルが、

ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計100モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分80.0から20.0モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分20.0から80.0モルパーセントと、スルホネート成分0.1から10.0モルパーセントと、

グリコール成分と分枝剤の合計100モルパーセントに対して、エチレングリコール、1,3-プロパンジオール、および1,4-ブタンジオールからなる群から選択される第1のグリコール成分99.9から91モルパーセントと、第2のグリコール成分0から5.0モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分0.1から4.0モルパーセントと、多官能性分枝剤0から5.0モルパーセントとを含み、

1種または複数の無機フィラー、有機フィラー、および粘土フィラーを含んでもよい、フィルム製造プロセス。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、ポリエーテルエステルフィルム、コーティング、ラミネートに関する。特に、本発明は、都合のよい熱的特性を有し、かつ生分解性であるスルホン化脂肪族芳香族ポリエーテルエステルに関する。

【背景技術】

【0002】

埋め立て地に送られている都市固体廃棄物は十分な処理がなされておらず、プラスチックをはじめとする非分解物が都市固体廃棄物の流れに加わる量が増えていることで、利用可能な埋め立て地の数が激減すると同時に、都市固体廃棄物の処分にかかるコストが増大している。多くの場合は廃棄物流のうち再利用可能な成分をリサイクルする方が望ましいが、リサイクルそのものと資材を再利用するのに必要な基幹施設のコストが極めて高くなることがままある。また、リサイクルの構造に合わせにくい製品もある。埋め立ておよび/または畑や庭を肥沃にする上で有用な製品を廃棄物から製造すべく固体廃棄物の体積を減らす目的で、次第に知られて広く用いられるようになっていく方法に、リサイクルできない固体廃棄物の堆肥化がある。このような堆肥を市場で販売していくにあたって制約となることのひとつに、フィルムや繊維の切れ端などの分解されないプラスチックが目に見えて混入することにある。

【0003】

使い捨て製品において有用であり、かつ廃棄物堆肥化プロセスに一般的な条件下で汚染性の低い形に分解される成分を提供することが望まれている。この条件では、温度70以下、平均55~60の範囲、湿度条件は相対湿度で最大100パーセント、数週間から数ヶ月の範囲にわたる曝露時間となり得る。堆肥化時に好氣的に/嫌氣的に分解するだけでなく、土壌または埋め立て地で継続して分解される使い捨て成分が得られると、さらに望ましい。このような成分は、水分が存在する限り分解して低分子量の画分になりつづけるが、この画分は木材のような天然有機物と同様に最終的には微生物が完全に生分解してバイオガスやバイオマス、浸出液に変えることの可能なものである。

【0004】

かつて、生分解性の物品および最終用途向けとしてポリエステルが検討されていた。こ

10

20

30

40

50

これらの生分解性ポリエステルは、大きく分けると脂肪族ポリエステル、脂肪族芳香族ポリエステル、スルホン化脂肪族芳香族ポリエステルの3つに分類されるといえる。

【0005】

【特許文献1】国際公開第02/16468 A1パンフレット

【特許文献2】米国特許第5,164,478号明細書

【特許文献3】米国特許第3,684,766号明細書

【特許文献4】米国特許第3,779,993号明細書

【特許文献5】米国特許第4,340,519号明細書

【特許文献6】米国特許第5,171,308号明細書

【特許文献7】米国特許第5,171,309号明細書

10

【特許文献8】米国特許第5,219,646号明細書

【特許文献9】米国特許第4,578,296号明細書

【特許文献10】米国特許第5,527,387号明細書

【特許文献11】米国特許第6,359,050号明細書

【特許文献12】米国特許第5,362,777号明細書

【特許文献13】米国特許第4,372,311号明細書

【特許文献14】米国特許第4,427,614号明細書

【特許文献15】米国特許第4,880,592号明細書

【特許文献16】米国特許第5,525,281号明細書

【特許文献17】カナダ特許第893,216号明細書

20

【特許文献18】米国特許第3,456,044号明細書

【特許文献19】米国特許第4,842,741号明細書

【特許文献20】米国特許第6,309,736号明細書

【特許文献21】米国特許第3,748,962号明細書

【特許文献22】米国特許第4,522,203号明細書

【特許文献23】米国特許第4,734,324号明細書

【特許文献24】米国特許第5,261,899号明細書

【特許文献25】米国特許第5,849,374号明細書

【特許文献26】米国特許第5,849,401号明細書

【特許文献27】米国特許第6,312,823号明細書

30

【特許文献28】米国特許第4,698,372号明細書

【特許文献29】米国特許第6,045,900号明細書

【特許文献30】国際公開第95/16562号パンフレット

【特許文献31】米国特許第4,626,252号明細書

【特許文献32】米国特許第5,073,316号明細書

【特許文献33】米国特許第3,303,628号明細書

【特許文献34】米国特許第3,674,626号明細書

【特許文献35】米国特許第5,011,735号明細書

【特許文献36】米国特許第3,835,618号明細書

【特許文献37】米国特許第3,950,919号明細書

40

【特許文献38】米国再発行特許第30,009号明細書

【特許文献39】米国特許第4,503,098号明細書

【特許文献40】米国特許第5,294,483号明細書

【特許文献41】米国特許第5,475,080号明細書

【特許文献42】米国特許第5,611,859号明細書

【特許文献43】米国特許第5,795,320号明細書

【特許文献44】米国特許第6,183,814号明細書

【特許文献45】米国特許第6,197,380号明細書

【特許文献46】米国特許第3,378,424号明細書

【特許文献47】米国特許第4,117,971号明細書

50

|            |                               |    |
|------------|-------------------------------|----|
| 【特許文献 4 8】 | 米国特許第 4 , 1 6 8 , 6 7 6 号明細書  |    |
| 【特許文献 4 9】 | 米国特許第 4 , 1 8 0 , 8 4 4 号明細書  |    |
| 【特許文献 5 0】 | 米国特許第 4 , 2 1 1 , 3 3 9 号明細書  |    |
| 【特許文献 5 1】 | 米国特許第 4 , 2 8 3 , 1 8 9 号明細書  |    |
| 【特許文献 5 2】 | 米国特許第 5 , 0 7 8 , 3 1 3 号明細書  |    |
| 【特許文献 5 3】 | 米国特許第 5 , 2 8 1 , 4 4 6 号明細書  |    |
| 【特許文献 5 4】 | 米国特許第 5 , 4 5 6 , 7 5 4 号明細書  |    |
| 【特許文献 5 5】 | 米国特許第 3 , 9 2 4 , 0 1 3 号明細書  |    |
| 【特許文献 5 6】 | 米国特許第 4 , 1 4 7 , 8 3 6 号明細書  |    |
| 【特許文献 5 7】 | 米国特許第 4 , 3 9 1 , 8 3 3 号明細書  | 10 |
| 【特許文献 5 8】 | 米国特許第 4 , 5 9 5 , 6 1 1 号明細書  |    |
| 【特許文献 5 9】 | 米国特許第 4 , 9 5 7 , 5 7 8 号明細書  |    |
| 【特許文献 6 0】 | 米国特許第 5 , 9 4 2 , 2 9 5 号明細書  |    |
| 【特許文献 6 1】 | 米国特許第 4 , 8 3 6 , 4 0 0 号明細書  |    |
| 【特許文献 6 2】 | 国際公開第 0 0 / 0 1 5 3 0 号パンフレット |    |
| 【特許文献 6 3】 | 米国特許第 3 , 1 3 7 , 5 9 2 号明細書  |    |
| 【特許文献 6 4】 | 米国特許第 4 , 6 7 3 , 4 3 8 号明細書  |    |
| 【特許文献 6 5】 | 米国特許第 4 , 8 6 3 , 6 5 5 号明細書  |    |
| 【特許文献 6 6】 | 米国特許第 5 , 0 3 5 , 9 3 0 号明細書  |    |
| 【特許文献 6 7】 | 米国特許第 5 , 0 4 3 , 1 9 6 号明細書  | 20 |
| 【特許文献 6 8】 | 米国特許第 5 , 0 9 5 , 0 5 4 号明細書  |    |
| 【特許文献 6 9】 | 米国特許第 5 , 3 0 0 , 3 3 3 号明細書  |    |
| 【特許文献 7 0】 | 米国特許第 5 , 4 1 3 , 8 5 5 号明細書  |    |
| 【特許文献 7 1】 | 米国特許第 5 , 5 1 2 , 0 9 0 号明細書  |    |
| 【特許文献 7 2】 | 米国特許第 6 , 1 0 6 , 7 5 3 号明細書  |    |
| 【特許文献 7 3】 | 米国特許第 6 , 0 3 0 , 6 7 3 号明細書  |    |
| 【特許文献 7 4】 | 米国特許第 5 , 1 0 8 , 6 7 7 号明細書  |    |
| 【特許文献 7 5】 | 米国特許第 5 , 2 3 4 , 9 7 7 号明細書  |    |
| 【特許文献 7 6】 | 米国特許第 5 , 2 5 8 , 4 3 0 号明細書  |    |
| 【特許文献 7 7】 | 米国特許第 5 , 2 6 2 , 4 5 8 号明細書  | 30 |
| 【特許文献 7 8】 | 米国特許第 5 , 2 9 2 , 7 8 2 号明細書  |    |
| 【特許文献 7 9】 | 米国特許第 5 , 3 7 6 , 3 2 0 号明細書  |    |
| 【特許文献 8 0】 | 米国特許第 5 , 3 8 2 , 6 1 1 号明細書  |    |
| 【特許文献 8 1】 | 米国特許第 5 , 4 0 5 , 5 6 4 号明細書  |    |
| 【特許文献 8 2】 | 米国特許第 5 , 4 1 2 , 0 0 5 号明細書  |    |
| 【特許文献 8 3】 | 米国特許第 5 , 4 6 2 , 9 8 0 号明細書  |    |
| 【特許文献 8 4】 | 米国特許第 5 , 4 6 2 , 9 8 2 号明細書  |    |
| 【特許文献 8 5】 | 米国特許第 5 , 5 1 2 , 3 7 8 号明細書  |    |
| 【特許文献 8 6】 | 米国特許第 5 , 5 1 4 , 4 3 0 号明細書  |    |
| 【特許文献 8 7】 | 米国特許第 5 , 5 4 9 , 8 5 9 号明細書  | 40 |
| 【特許文献 8 8】 | 米国特許第 5 , 5 6 9 , 5 1 4 号明細書  |    |
| 【特許文献 8 9】 | 米国特許第 5 , 5 6 9 , 6 9 2 号明細書  |    |
| 【特許文献 9 0】 | 米国特許第 5 , 5 7 6 , 0 4 9 号明細書  |    |
| 【特許文献 9 1】 | 米国特許第 5 , 5 8 0 , 4 0 9 号明細書  |    |
| 【特許文献 9 2】 | 米国特許第 5 , 5 8 0 , 6 2 4 号明細書  |    |
| 【特許文献 9 3】 | 米国特許第 5 , 5 8 2 , 6 7 0 号明細書  |    |
| 【特許文献 9 4】 | 米国特許第 5 , 6 1 4 , 3 0 7 号明細書  |    |
| 【特許文献 9 5】 | 米国特許第 5 , 6 1 8 , 3 4 1 号明細書  |    |
| 【特許文献 9 6】 | 米国特許第 5 , 6 2 6 , 9 5 4 号明細書  |    |
| 【特許文献 9 7】 | 米国特許第 5 , 6 3 1 , 0 5 3 号明細書  | 50 |

|              |                            |    |
|--------------|----------------------------|----|
| 【特許文献 9 8】   | 米国特許第 5, 6 5 8, 6 0 3 号明細書 |    |
| 【特許文献 9 9】   | 米国特許第 5, 6 5 8, 6 2 4 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 0 0】 | 米国特許第 5, 6 6 0, 9 0 0 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 0 1】 | 米国特許第 5, 6 6 0, 9 0 3 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 0 2】 | 米国特許第 5, 6 6 0, 9 0 4 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 0 3】 | 米国特許第 5, 6 6 5, 4 4 2 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 0 4】 | 米国特許第 5, 6 7 9, 1 4 5 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 0 5】 | 米国特許第 5, 6 8 3, 7 7 2 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 0 6】 | 米国特許第 5, 7 0 5, 2 3 8 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 0 7】 | 米国特許第 5, 7 0 5, 2 3 9 号明細書 | 10 |
| 【特許文献 1 0 8】 | 米国特許第 5, 7 0 9, 8 2 7 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 0 9】 | 米国特許第 5, 7 0 9, 9 1 3 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 1 0】 | 米国特許第 5, 7 5 3, 3 0 8 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 1 1】 | 米国特許第 5, 7 6 6, 5 2 5 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 1 2】 | 米国特許第 5, 7 7 0, 1 3 7 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 1 3】 | 米国特許第 5, 7 7 6, 3 8 8 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 1 4】 | 米国特許第 5, 7 8 3, 1 2 6 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 1 5】 | 米国特許第 5, 8 0 0, 6 4 7 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 1 6】 | 米国特許第 5, 8 1 0, 9 6 1 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 1 7】 | 米国特許第 5, 8 3 0, 3 0 5 号明細書 | 20 |
| 【特許文献 1 1 8】 | 米国特許第 5, 8 3 0, 5 4 8 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 1 9】 | 米国特許第 5, 8 4 3, 5 4 4 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 2 0】 | 米国特許第 5, 8 4 9, 1 5 5 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 2 1】 | 米国特許第 5, 8 6 8, 8 2 4 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 2 2】 | 米国特許第 5, 8 7 9, 7 2 2 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 2 3】 | 米国特許第 5, 8 9 7, 9 4 4 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 2 4】 | 米国特許第 5, 9 1 0, 3 5 0 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 2 5】 | 米国特許第 5, 9 2 8, 7 4 1 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 2 6】 | 米国特許第 5, 9 7 6, 2 3 5 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 2 7】 | 米国特許第 6, 0 8 3, 5 8 6 号明細書 | 30 |
| 【特許文献 1 2 8】 | 米国特許第 6, 0 9 0, 1 9 5 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 2 9】 | 米国特許第 6, 1 4 6, 5 7 3 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 3 0】 | 米国特許第 6, 1 6 8, 8 5 7 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 3 1】 | 米国特許第 6, 1 8 0, 0 3 7 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 3 2】 | 米国特許第 6, 2 0 0, 4 0 4 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 3 3】 | 米国特許第 6, 2 1 4, 9 0 7 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 3 4】 | 米国特許第 6, 2 3 1, 9 7 0 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 3 5】 | 米国特許第 6, 2 4 2, 1 0 2 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 3 6】 | 米国特許第 6, 3 4 7, 9 3 4 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 3 7】 | 米国特許第 6, 3 4 8, 5 2 4 号明細書 | 40 |
| 【特許文献 1 3 8】 | 米国特許第 6, 3 7 9, 4 4 6 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 3 9】 | 米国特許第 5, 8 6 8, 3 0 9 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 4 0】 | 米国特許第 4, 3 4 3, 8 5 8 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 4 1】 | 米国特許第 4, 4 5 5, 1 8 4 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 4 2】 | 米国特許第 4, 5 4 3, 2 8 0 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 4 3】 | 米国特許第 4, 9 0 0, 5 9 4 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 4 4】 | 米国特許第 6, 0 7 1, 5 7 7 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 4 5】 | 米国特許第 5, 6 7 9, 2 0 1 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 4 6】 | 米国特許第 3, 8 6 3, 8 3 2 号明細書 |    |
| 【特許文献 1 4 7】 | 米国特許第 3, 8 6 6, 8 1 6 号明細書 | 50 |

- 【特許文献 148】米国特許第 4,337,116 号明細書
- 【特許文献 149】米国特許第 4,456,164 号明細書
- 【特許文献 150】米国特許第 4,698,246 号明細書
- 【特許文献 151】米国特許第 4,701,360 号明細書
- 【特許文献 152】米国特許第 4,789,575 号明細書
- 【特許文献 153】米国特許第 4,806,399 号明細書
- 【特許文献 154】米国特許第 4,888,222 号明細書
- 【特許文献 155】米国特許第 5,002,833 号明細書
- 【特許文献 156】米国特許第 4,130,234 号明細書
- 【特許文献 157】米国特許第 2,590,221 号明細書 10
- 【特許文献 158】米国特許第 4,611,456 号明細書
- 【特許文献 159】米国特許第 4,862,671 号明細書
- 【特許文献 160】米国特許第 3,932,105 号明細書
- 【特許文献 161】米国特許第 3,957,558 号明細書
- 【特許文献 162】米国特許第 4,124,434 号明細書
- 【特許文献 163】米国特許第 4,200,481 号明細書
- 【特許文献 164】米国特許第 4,257,530 号明細書
- 【特許文献 165】米国特許第 3,657,044 号明細書
- 【特許文献 166】米国特許第 4,092,201 号明細書
- 【特許文献 167】米国特許第 2,183,869 号明細書 20
- 【特許文献 168】米国特許第 2,704,493 号明細書
- 【特許文献 169】米国特許第 3,185,370 号明細書
- 【特許文献 170】米国特許第 4,026,458 号明細書
- 【特許文献 171】米国特許第 2,434,106 号明細書
- 【特許文献 172】米国特許第 2,510,908 号明細書
- 【特許文献 173】米国特許第 2,628,180 号明細書
- 【特許文献 174】米国特許第 2,917,217 号明細書
- 【特許文献 175】米国特許第 2,975,093 号明細書
- 【特許文献 176】米国特許第 3,112,235 号明細書
- 【特許文献 177】米国特許第 3,135,648 号明細書 30
- 【特許文献 178】米国特許第 3,616,197 号明細書
- 【特許文献 179】米国特許第 3,697,369 号明細書
- 【特許文献 180】米国特許第 4,016,327 号明細書
- 【特許文献 181】米国特許第 4,352,925 号明細書
- 【特許文献 182】米国特許第 5,037,700 号明細書
- 【特許文献 183】米国特許第 5,132,391 号明細書
- 【特許文献 184】米国特許第 4,722,474 号明細書
- 【特許文献 185】米国特許第 5,110,390 号明細書
- 【特許文献 186】米国特許第 6,258,924 号明細書
- 【非特許文献 1】R. ストーベック (Storbeck) ら、J. Appl. Polymer Science、第 59 巻、第 1199 ~ 1202 ページ (1996)
- 【非特許文献 2】「Preparative Methods of Polymer Chemistry」、W. R. ソレンソン (Sorenson) および T. W. キャンベル (Campbell)、1961、第 35 ページ
- 【発明の開示】
- 【発明が解決しようとする課題】
- 【0006】

ポリ(アルキレンエーテル)グリコールの含有量が多すぎる材料では、フィルム、コーティングまたはラミネートなどの最終用途によっては所望の熱的特性が得られないことがある。これ以外の周知の材料は生分解速度が望ましくないほど低い。



## 【 0 0 0 7 】

( 特許文献 1 ) に開示されているようなブレンドを利用すれば、フィルム、コーティングまたはラミネートとして用いられる材料の物性をいくらか改善できる。しかしながら、ポリマーブレンドを用いると、フィルム、コーティングまたはラミネートを形成するのにステップを追加しなければならないおよび / またはステップが複雑化する場合がある。

## 【 0 0 0 8 】

本発明は、生分解性包装材に用いられている周知の材料の欠点を解決し、フィルム、コーティング、ラミネートなどの造形品としての用役に合わせて、良好な生分解速度と優れた熱的特性とを最適な組み合わせで兼ね備えるスルホン化脂肪族芳香族ポリエーテルエステル材料を提供するものである。

## 【 課題を解決するための手段 】

## 【 0 0 0 9 】

本発明は、包装材、特に生分解性包装材で一般に用いられている従来のポリマーと比較して、物性が改善されたスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを提供するものである。また、包装材の材料をはじめとしてスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルから製造される物品ならびに、このような物品を製造するためのプロセスも本発明の範囲に包含される。本発明のプロセスおよび組成物では、フィルム、コーティングまたはラミネートなどの物品を製造する際に用いるポリマーのブレンドを使用せずにおくことが可能であるが、2 種以上のスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルのブレンドまたは 1 種または複数のスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルと 1 種または複数の他のポリマーとのブレンドを含む組成物も、本発明の範囲に包含される。

## 【 0 0 1 0 】

本発明の一態様は、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分約 0 . 1 から 4 . 0 モルパーセントを含有するスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルで構成されるフィルムを含む。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、ジカルボン酸成分合計で 1 0 0 モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分 8 0 . 0 から 2 0 . 0 モルパーセントと脂肪族ジカルボン酸成分 2 0 . 0 から 8 0 . 0 モルパーセントと、グリコール成分、スルホネート成分、多官能性分枝剤の合計で 1 0 0 モルパーセントに対して、スルホネート成分 0 . 1 から 1 0 . 0 モルパーセントと、グリコール成分 9 9 . 9 から 7 6 . 0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分 0 . 1 から 4 . 0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5 . 0 モルパーセントとを含む。このスルホネート成分は、1 種、2 種またはそれ以上のスルホネート化合物を含み得る。また、「多官能性分枝剤」という用語は、本願明細書において使用する場合、多官能性分枝剤として機能する化合物を 1 種、2 種またはそれ以上含み得る。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、任意に、フィラーを含有するものであってもよい。本発明の前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルのフィルムは、従来技術におけるスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルのフィルムの場合よりも、強靱性、熱寸法安定性、防湿性などの物性が最適なバランスになっていることが見出されている。

## 【 0 0 1 1 】

本発明の別の態様は、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分 0 . 1 から 4 . 0 モルパーセントを含有するスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルで構成される一軸配向フィルムまたは二軸配向フィルムなどの配向フィルムを含む。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、本質的に、芳香族ジカルボン酸成分 8 0 . 0 から 2 0 . 0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分 2 0 . 0 から 8 0 . 0 モルパーセントと、スルホネート成分 0 . 1 から 1 0 . 0 モルパーセントと、グリコール成分 9 9 . 9 から 7 6 . 0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分 0 . 1 から 4 . 0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5 . 0 モルパーセントと、で構成される。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、任意に、フィラーを含有するものであってもよい。本発明の前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルの配向フィルムは、従来技術におけるスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルのフィル

10

20

30

40

50

ムの場合よりも、強靱性、熱寸法安定性、防湿性などの物性が最適なバランスになっていることが見出されている。

【 0 0 1 2 】

本発明の別の態様は、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分 0.1 から 4.0 モルパーセントを含有するスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルで構成される、支持体にラミネートされたフィルムを含む。前記支持体は、たとえば、紙、板紙、無機発泡体、有機発泡体、無機有機発泡体などを含み得る。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、本質的に、芳香族ジカルボン酸成分 80.0 から 20.0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分 20.0 から 80.0 モルパーセントと、スルホネート成分 0.1 から 10.0 モルパーセントと、グリコール成分 99.9 から 76.0 モルパーセントと、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分 0.1 から 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5.0 モルパーセントと、で構成される。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、任意に、フィラーを含有するものであってもよい。本発明の前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルのラミネートフィルムは、従来技術におけるスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルのフィルムの場合よりも、強靱性、熱寸法安定性、防湿性などの物性が最適なバランスになっていることが見出されている。

10

【 0 0 1 3 】

本発明の別の態様は、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分 0.1 から 4.0 モルパーセントを含有するスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルで構成される、支持体にコーティングされたフィルムを含む。前記支持体は、たとえば、紙、板紙、無機発泡体、有機発泡体、無機有機発泡体などを含み得る。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、本質的に、芳香族ジカルボン酸成分 80.0 から 20.0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分 20.0 から 80.0 モルパーセントと、スルホネート成分 0.1 から 10.0 モルパーセントと、グリコール成分 99.9 から 76.0 モルパーセントと、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分 0.1 から 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5.0 モルパーセントと、で構成される。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、任意に、フィラーを含有するものであってもよい。本発明の前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルのコートフィルムは、従来技術におけるスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルのフィルムの場合よりも、強靱性、熱寸法安定性、防湿性などの物性が最適なバランスになっていることが見出されている。

20

30

【 0 0 1 4 】

本発明の別の態様は、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分 0.1 から 4.0 モルパーセントを含有するスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルで構成されるフィルムを製造するプロセスを含む。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、本質的に、芳香族ジカルボン酸成分 80.0 から 20.0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分 20.0 から 80.0 モルパーセントと、スルホネート成分 0.1 から 10.0 モルパーセントと、グリコール成分 99.9 から 76.0 モルパーセントと、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分 0.1 から 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5.0 モルパーセントと、で構成される。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、任意に、フィラーを含有するものであってもよい。本発明の前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルのフィルムは、従来技術におけるスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルのフィルムの場合よりも、強靱性、熱寸法安定性、防湿性などの物性が最適なバランスになっていることが見出されている。

40

【 0 0 1 5 】

本発明の別の態様は、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分 0.1 から 4.0 モルパーセントを含有するスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルで構成される、一軸配向フィルムまたは二軸配向フィルムなどの配向フィルムを製造するプロセスならびに、これを製造するためのプロセスを含む。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテル

50

エステルは、本質的に、芳香族ジカルボン酸成分 80.0 から 20.0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分 20.0 から 80.0 モルパーセントと、スルホネート成分 0.1 から 10.0 モルパーセントと、グリコール成分 99.9 から 76.0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分 0.1 から 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5.0 モルパーセントと、で構成される。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、任意に、フィラーを含有するものであってもよい。本発明の前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルの配向フィルムは、従来技術におけるスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルのフィルムの場合よりも、強靱性、熱寸法安定性、防湿性などの物性が最適なバランスになっていることが見出されている。

10

#### 【0016】

本発明の別の態様は、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分 0.1 から 4.0 モルパーセントを含有するスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルで構成される、支持体にラミネートされたフィルムを製造するプロセスならびに、これを製造するプロセスを含む。前記支持体は、たとえば、紙、板紙、無機発泡体、有機発泡体、無機有機発泡体などを含み得る。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、本質的に、芳香族ジカルボン酸成分 80.0 から 20.0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分 20.0 から 80.0 モルパーセントと、スルホネート成分 0.1 から 10.0 モルパーセントと、グリコール成分 99.9 から 76.0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分 0.1 から 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5.0 モルパーセントと、で構成される。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、任意に、フィラーを含有するものであってもよい。本発明の前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルのラミネートフィルムは、従来技術におけるスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルのフィルムの場合よりも、強靱性、熱寸法安定性、防湿性などの物性が最適なバランスになっていることが見出されている。

20

#### 【0017】

本発明の別の態様は、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分 0.1 から 4.0 モルパーセントを含有するスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルで構成される、支持体にコーティングされたフィルムを製造するプロセスならびに、これを製造するプロセスを含む。前記支持体は、たとえば、紙、板紙、無機発泡体、有機発泡体、無機有機発泡体などを含み得る。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、本質的に、芳香族ジカルボン酸成分 80.0 から 20.0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分 20.0 から 80.0 モルパーセントと、スルホネート成分 0.1 から 10.0 モルパーセントと、グリコール成分 99.9 から 76.0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分 0.1 から 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5.0 モルパーセントと、で構成される。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、任意に、フィラーを含有するものであってもよい。本発明の前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルのコートフィルムは、従来技術におけるスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルのフィルムの場合よりも、強靱性、熱寸法安定性、防湿性などの物性が最適なバランスになっていることが見出されている。

30

40

#### 【0018】

本発明の別の態様は、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分 0.1 から 4.0 モルパーセントを含有するスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルで構成されるフィルムを、食品包装材の最終用途、特に、食品用のラップなど使い捨ての食品包装材の最終用途に使用することを含む。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、本質的に、芳香族ジカルボン酸成分 80.0 から 20.0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分 20.0 から 80.0 モルパーセントと、スルホネート成分 0.1 から 10.0 モルパーセントと、グリコール成分 99.9 から 76.0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分 0.1 から 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5.0 モルパーセントと、で構成される。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエ

50

ーテルエステルは、任意に、フィラーを含有するものであってもよい。本発明の前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルの食品包装用フィルムは、従来技術におけるスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルの食品包装用フィルムの場合よりも、強靱性、熱寸法安定性、防湿性などの物性が最適なバランスになっていることが見出されている。

#### 【 0 0 1 9 】

本発明の別の態様は、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分 0 . 1 から 4 . 0 モルパーセントを含有するスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルで構成される一軸配向フィルムまたは二軸配向フィルムなどの配向フィルムを、食品包装材の最終用途に使用することを含む。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、本質的に、芳香族ジカルボン酸成分 8 0 . 0 から 2 0 . 0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分 2 0 . 0 から 8 0 . 0 モルパーセントと、スルホネート成分 0 . 1 から 1 0 . 0 モルパーセントと、グリコール成分 9 9 . 9 から 7 6 . 0 モルパーセントと、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分 0 . 1 から 4 . 0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5 . 0 モルパーセントと、で構成される。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、任意に、フィラーを含有するものであってもよい。本発明の前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルの食品包装用配向フィルムは、従来技術におけるスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルの食品包装用フィルムの場合よりも、強靱性、熱寸法安定性、防湿性などの物性が最適なバランスになっていることが見出されている。

#### 【 0 0 2 0 】

本発明の別の態様は、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分 0 . 1 から 4 . 0 モルパーセントを含有するスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルで構成される支持体にラミネートされたフィルムを、食品包装または食品サービスでの最終用途に使用することを含む。前記支持体は、たとえば、紙、板紙、無機発泡体、有機発泡体、無機有機発泡体などを含み得る。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、本質的に、芳香族ジカルボン酸成分 8 0 . 0 から 2 0 . 0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分 2 0 . 0 から 8 0 . 0 モルパーセントと、スルホネート成分 0 . 1 から 1 0 . 0 モルパーセントと、グリコール成分 9 9 . 9 から 7 6 . 0 モルパーセントと、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分 0 . 1 から 4 . 0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5 . 0 モルパーセントと、で構成される。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、任意に、フィラーを含有するものであってもよい。本発明の前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルの食品包装または食品サービス用ラミネートフィルムは、従来技術におけるスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルの食品包装または食品サービス用ラミネートフィルムの場合よりも、強靱性、熱寸法安定性、防湿性などの物性が最適なバランスになっていることが見出されている。

#### 【 0 0 2 1 】

本発明の別の態様は、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分 0 . 1 から 4 . 0 モルパーセントを含有するスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルで構成される支持体にコーティングされたフィルムを、食品包装または食品サービスでの最終用途に使用することを含む。前記支持体は、たとえば、紙、板紙、無機発泡体、有機発泡体、無機有機発泡体などを含み得る。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、本質的に、芳香族ジカルボン酸成分 8 0 . 0 から 2 0 . 0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分 2 0 . 0 から 8 0 . 0 モルパーセントと、スルホネート成分 0 . 1 から 1 0 . 0 モルパーセントと、グリコール成分 9 9 . 9 から 7 6 . 0 モルパーセントと、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分 0 . 1 から 4 . 0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5 . 0 モルパーセントと、で構成される。前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、任意に、フィラーを含有するものであってもよい。本発明の前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルの食品包装または食品サービス用コートフィルムは、従来技術におけるスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルの食品包装または

食品サービス用コートフィルムの場合よりも、強靱性、熱寸法安定性、防湿性などの物性が最適なバランスになっていることが見出されている。

【発明を実施するための最良の形態】

【0022】

本発明は、特定のスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルからなるフィルム、コーティング、ラミネートなどの物品ならびに、このような物品を製造するプロセスを含む。本発明はさらに、フィルム、コーティング、ラミネートの使用方法も含む。このような使用方法としては、食品包装材の最終用途、特に、ラップ、カップ、ボール、プレート皿などの使い捨ての食品包装材の最終用途向けに、たとえば、紙、板紙、無機発泡体、有機発泡体、無機有機発泡体などの支持体に、フィルム、コーティング、ラミネートを蒸着または接着することがあげられる。このスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、芳香族ジカルボン酸成分と脂肪族ジカルボン酸成分との合計で100モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分80.0から20.0モルパーセントと脂肪族ジカルボン酸成分20.0から80.0モルパーセントと、第1のグリコール、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分、任意の第2のグリコール成分、任意の多官能性分枝剤の合計で100モルパーセントに対して、スルホネート成分0.1から10.0モルパーセントと、エチレングリコールと、1,3-プロパンジオールと、1,4-ブタンジオールとからなる群から選択される第1のグリコール99.9から76.0モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分0.1から4.0モルパーセントと、第2のグリコール成分0から5.0モルパーセントと、多官能性分枝剤0から5.0モルパーセントと、を含む。

【0023】

「成分」という用語は、ここに開示のスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルに含有されるジカルボン酸、スルホネート、グリコールを示す目的で本願明細書にて使用する場合、ジカルボン酸、スルホネートおよび/またはグリコールを単一の化学部分に限定することを意図したものではない。このため、たとえば、「ジカルボン酸成分」には、1種、2種またはそれ以上の異なるジカルボン酸を含み得る。しかしながら、第1のグリコール成分は、エチレングリコールと、1,3-プロパンジオールと、1,4-ブタンジオールとからなる群から選択される単一のグリコールからなるものであると好ましい。

【0024】

本願明細書では、説明を簡単にするために、本願明細書に開示のスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを「コポリエーテルエステル」または「スルホン化コポリエーテルエステル」と呼ぶ場合がある。特に明記しない限り、「コポリエーテルエステル」または「スルホン化コポリエーテルエステル」という用語は、本願明細書にて開示および権利請求しているスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを示すことを意図したものである。

【0025】

芳香族ジカルボン酸成分は、8から20個の炭素原子を有する未置換および置換の芳香族ジカルボン酸と芳香族ジカルボン酸の低級アルキルエステルとから選択される。望ましい二酸部分の例としては、テレフタレート、イソフタレート、ナフタレート、ピベンゾエート(bibenzotate)から誘導される二酸部分があげられる。望ましい芳香族ジカルボン酸成分の具体例としては、テレフタル酸、テレフタル酸ジメチル、イソフタル酸、イソフタル酸ジメチル、2,6-ナフタレンジカルボン酸、ジメチル-2,6-ナフタレート、2,7-ナフタレンジカルボン酸、ジメチル-2,7-ナフタレート、3,4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸、ジメチル-3,4'-ジフェニルエーテルジカルボキシレート、4,4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸、ジメチル-4,4'-ジフェニルエーテルジカルボキシレート、3,4'-ジフェニルスルフィドジカルボン酸、ジメチル-3,4'-ジフェニルスルフィドジカルボキシレート、4,4'-ジフェニルスルフィドジカルボン酸、ジメチル-4,4'-ジフェニルスルフィドジカルボキシレート、3,4'-ジフェニルスルホンジカルボン酸、ジメチル-3,4'-ジフェニルスルホンジ

カルボキシレート、4,4'-ジフェニルスルホンジカルボン酸、ジメチル-4,4'-ジフェニルスルホンジカルボキシレート、3,4'-ベンゾフェノンジカルボン酸、ジメチル-3,4'-ベンゾフェノンジカルボキシレート、4,4'-ベンゾフェノンジカルボン酸、ジメチル-4,4'-ベンゾフェノンジカルボキシレート、1,4-ナフタレンジカルボン酸、ジメチル-1,4-ナフタレート、4,4'-メチレンビス(安息香酸)、ジメチル-4,4'-メチレンビス(ベンゾエート)などと、それらから誘導される混合物があげられる。好ましくは、芳香族ジカルボン酸成分は、テレフタル酸、テレフタル酸ジメチル、イソフタル酸、イソフタル酸ジメチル、2,6-ナフタレンジカルボン酸、ジメチル-2,6-ナフタレート、それらから誘導される混合物から誘導される。これは、限定として解釈されるべきものではない。本質的に、従来技術において周知のどのような芳香族ジカルボン酸であっても本発明での使い道がある可能性がある。好ましくは、本発明のスルホン化ポリエーテルエステル組成物は、前記芳香族ジカルボン酸成分を80から50モルパーセント含むものとする。

10

#### 【0026】

脂肪族ジカルボン酸成分は、2から36個の炭素原子を有する未置換、置換、線状、分枝状の脂肪族ジカルボン酸および脂肪族ジカルボン酸の低級アルキルエステルから選択される。望ましい脂肪族ジカルボン酸成分の具体例としては、シュウ酸、ジメチルオキサレート、マロン酸、ジメチルマロネート、コハク酸、コハク酸ジメチル、メチルコハク酸、グルタル酸、グルタル酸ジメチル、2-メチルグルタル酸、3-メチルグルタル酸、アジピン酸、アジピン酸ジメチル、3-メチルアジピン酸、2,2,5,5-テトラメチルヘキサン二酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、アゼライン酸ジメチル、セバシン酸、1,11-ウンデカンジカルボン酸、1,10-デカンジカルボン酸、ウンデカン二酸、1,12-ドデカンジカルボン酸、ヘキサデカン二酸、ドコサン二酸、テトラコサン二酸、ダイマー酸などと、それらから誘導される混合物があげられる。好ましくは、脂肪族ジカルボン酸成分は、コハク酸(succinic acid)と、コハク酸ジメチルと、グルタル酸と、グルタル酸ジメチルと、アジピン酸と、アジピン酸ジメチルと、それらの混合物とからなる群から選択される。これは、限定として解釈されるべきものではない。本質的に、従来技術において周知のどのような脂肪族ジカルボン酸であっても本発明での有用性があり得る。好ましくは、本発明のスルホン化ポリエーテルエステル組成物は、前記脂肪族ジカルボン酸成分を20から50モルパーセント含むものとする。

20

30

#### 【0027】

スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、好ましくはスルホ基を約0.1から10.0モルパーセント含む。前記スルホ基については、脂肪族または芳香族モノマーに導入してもよいし、末端基として導入してもよい。スルホ基を提供するモノマーまたは他の部分を、本願明細書では「スルホネート成分」と呼ぶ。脂肪族スルホネート(sulfonate)成分の一例として、スルホコハク酸の金属塩があげられる。末端基として有用な芳香族スルホネート成分の具体例としては、3-スルホ安息香酸、4-スルホ安息香酸、5-スルホサリチル酸の金属塩があげられる。好ましいのは、スルホネート塩基を芳香族ジカルボン酸に付加するスルホネート成分である。前記芳香族ジカルボン酸は、ベンゼン、ナフタレン、ジフェニル、オキシジフェニル、スルホニルジフェニル、メチレンジフェニルなどであればよい。好ましくは、スルホネートモノマーは、スルホネート置換フタル酸、テレフタル酸、イソフタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸の残基である。一層好ましくは、スルホネート成分は、5-スルホイソフタル酸の金属塩または5-スルホイソフタレートの低級アルキルエステルである。金属塩は、一価または多価アルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、他の金属イオンなどであればよい。好ましいアルカリ金属イオンとしては、たとえば、ナトリウム、カリウム、リチウムがあげられる。しかしながら、マグネシウムなどのアルカリ土類金属も有用である。他の有用な金属イオンとしては、亜鉛、コバルトまたは鉄などの遷移金属イオンがある。多価金属イオンは、スルホン化脂肪族芳香族コポリエステルの溶融粘度を高めることが望ましい場合に利用できるものである。このような溶融粘度を高くするとよいであろう最終用途の例としては、溶融

40

50

押出コーティング、メルトブローン容器またはフィルム、発泡体があげられる。わずか 0 . 1 モルパーセントのスルホ基が、得られるフィルムまたはコーティングの特性の特徴に対して大きく影響することが見出されている。好ましくは、本発明のスルホン化ポリエーテルエステル組成物中のスルホネート成分の量は約 0 . 1 から約 4 . 0 モルパーセントである。

#### 【 0 0 2 8 】

ポリ(アルキレンエーテル)グリコールは、分子量が約 5 0 0 から約 4 0 0 0 の範囲であると好ましい。本発明の範囲内で有用なポリ(アルキレンエーテル)グリコールの具体例としては、たとえば、ポリ(エチレングリコール)、ポリ(1, 3 - プロピレングリコール)、ポリ(1, 4 - ブチレングリコール)すなわちポリテトラヒドロフラン、ポリ(ペンタメチレングリコール)、ポリ(ヘキサメチレングリコール)、ポリ(ヘプタメチレングリコール)、ポリ(エチレングリコール) - ブロック - ポリ(プロピレングリコール) - ブロック - ポリ(エチレングリコール)、4, 4' - イソプロピリデンジフェノールエトキシレート(ビスフェノール A エトキシレート)、4, 4' - (1 - フェニルエチリデン)ビスフェノールエトキシレート(ビスフェノール A P エトキシレート)、4, 4' - エチリデンビスフェノールエトキシレート(ビスフェノール E エトキシレート)、ビス(4 - ヒドロキシフェニル)メタンエトキシレート(ビスフェノール F エトキシレート)、4, 4' - (1, 3 - フェニレンジイソプロピリデン)ビスフェノールエトキシレート(ビスフェノール M エトキシレート)、4, 4' - (1, 4 - フェニレンジイソプロピリデン)ビスフェノールエトキシレート(ビスフェノール P エトキシレート)、4, 4' スルホニルジフェノールエトキシレート(ビスフェノール S エトキシレート)、4, 4' - シクロヘキシリデンビスフェノールエトキシレート(ビスフェノール Z エトキシレート)などと、それらの混合物があげられる。これは、限定として解釈されるべきものではない。本質的に、従来技術において周知のどのようなポリ(アルキレンエーテル)グリコールであっても、本発明の組成物およびプロセスにおいて使い道がある可能性がある。

#### 【 0 0 2 9 】

任意の第 2 のグリコール成分は、炭素数 2 から炭素数 3 6 の未置換、置換、直鎖状、分枝状、環状の脂肪族、脂肪族芳香族および芳香族ジオールから選択される。好適な第 2 のグリコール成分の具体例としては、エチレングリコール、1, 3 - プロパンジオール、1, 4 - ブタンジオール、1, 6 - ヘキサジオール、1, 8 - オクタンジオール、1, 10 - デカンジオール、1, 12 - ドデカンジオール、1, 14 - テトラデカンジオール、1, 16 - ヘキサデカンジオール、ダイマージオール、4, 8 - ビス(ヒドロキシメチル) - トリシクロ(5 . 2 . 1 . 0 / 2 . 6)デカン、1, 4 - シクロヘキサジメタノール、イソソルビド、ジ(エチレングリコール)、トリ(エチレングリコール)などと、それらから誘導される混合物があげられる。これは、限定としてとられるべきものではない。本質的に、従来技術において周知の他のどのようなグリコールであっても、本発明の組成物およびプロセスにおいて使い道がある可能性がある。

#### 【 0 0 3 0 】

任意の多官能性分枝剤には、3 種以上のカルボン酸官能基、ヒドロキシ官能基またはこれらの混合物を有する因子であれば、どのようなものでも用いることが可能である。好適な多官能性分枝剤の具体例としては、1, 2, 4 - ベンゼントリカルボン酸、(トリメリット酸)、トリメチル - 1, 2, 4 - ベンゼントリカルボキシレート、1, 2, 4 - ベンゼントリカルボン酸無水物すなわちトリメリット酸無水物、1, 3, 5 - ベンゼントリカルボン酸、1, 2, 4, 5 - ベンゼンテトラカルボン酸すなわちピロメリット酸、1, 2, 4, 5 - ベンゼンテトラカルボン酸二無水物すなわちピロメリット酸無水物、3, 3', 4, 4' - ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、1, 4, 5, 8 - ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、クエン酸、テトラヒドロフラン - 2, 3, 4, 5 - テトラカルボン酸、1, 3, 5 - シクロヘキサントリカルボン酸、ペンタエリスリトール、グリセロール、2 - (ヒドロキシメチル) - 1, 3 - プロパンジオール、2, 2 - ビス(ヒドロキシメチル)プロピオン酸などと、それらの混合物があげられる。これは、限定として解釈される

べきものではない。本質的に、3種またはそれ以上のカルボン酸官能基またはヒドロキシル官能基を含むどのような多官能性材料であっても、本発明の範囲内で使い道がある可能性がある。前記多官能性分枝剤については、具体的な最終用途で樹脂溶融粘度を高くする方が望ましいときに含有するようにすればよい。前記最終用途の例には、溶融押出コーティング、メルトブローンフィルムまたは容器、発泡体などを含み得る。好ましくは、スルホン化ポリエーテルエステル組成物は、前記多官能性分枝剤を0から1.0モルパーセント含む。

#### 【0031】

スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、固有粘度が少なくとも0.15以上であると好ましい。用途によっては、前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルの固有粘度(IV)は、トリフルオロ酢酸：ジクロロメタンの50：50(重量)溶液中コポリエーテルの0.5パーセント(重量/容量)溶液で室温にて測定した場合で、好ましくは少なくとも0.35dL/gである。フィルム、瓶、シート、成形樹脂などの他の用途では、これよりも高い固有粘度が望ましい。重合条件を調節すれば、少なくとも約0.5まで、望ましくは0.65dL/gよりも高い所望の固有粘度を得ることができる。コポリエーテルをさらに処理することで、0.7、0.8、0.9、1.0、1.5、2.0dL/gならびに、これよりも高い固有粘度を達成できることがある。

#### 【0032】

固有粘度は、スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルの分子量を示す指標のひとつである。ポリマーの分子量を直接測定する代わりに、溶液中のポリマーの固有粘度または溶融粘度を、分子量を示す指標として利用する。固有粘度は、ポリ(エチレンテレフタレート)、ポリ(ブチレンテレフタレート)などの一ポリマーファミリー内の分子量を比較するのに役立つものであり、本願明細書ではこれを分子量を示す指標として利用する。

#### 【0033】

スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルについては、従来の重縮合手法で調製できる。生成物の組成は、使用する調製方法、特に、ポリマー内に含まれるジオールの量によっていくぶん違ってくることがある。これらの方法としては、ジオールモノマーと酸クロリドとの反応があげられる。たとえば、芳香族ジカルボン酸成分の酸クロリド、脂肪族ジカルボン酸成分の酸クロリド、スルホネート成分の酸クロリドを、塩酸が生成されたときにこれを中和するピリジンなどの塩基の存在下、トルエンなどの溶媒中のグリコール、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール、他のグリコール成分と併用することができる。このような手順については、たとえば、(非特許文献1)に開示されている。界面重合法などの酸クロリドを利用する他の周知のバリエーションを用いてもよく、あるいはモノマー同士を一緒にして加熱しながら攪拌するだけでもよい。

#### 【0034】

酸クロリドを用いてポリマーを生成する場合、生成物としてのポリマー中のモノマー単位の比は、反応するモノマーの比とほぼ同じである。このため、反応器に仕込むモノマーの比が、生成物における所望の比とほぼ同じになる。通常は、化学量論的等量のジオール成分と二酸成分とを用いて、望み通りに高分子量のポリマーを得る。

#### 【0035】

好ましくは、本発明のスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを溶融重合で生成する。溶融重合では、(酸、エステルまたはそれらの混合物のいずれかとしての)芳香族ジカルボン酸成分、(酸、エステルまたはそれらの混合物のいずれかとしての)脂肪族ジカルボン酸成分、スルホネート成分、グリコール、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール、他のグリコール成分、任意に多官能性分枝剤を、触媒の存在下にて、モノマー同士が一緒になってエステルおよびジエステルを形成し、続いてオリゴマー、最後にポリマーを形成できる程度に十分に高い温度と組み合わせる。重合プロセスの最後に得られるポリマー生成物は、溶融生成物である。通常は、他のジオール成分とエチレングリコールは揮発性物質であり、重合が進むにつれて反応器から蒸留される。このような手順は、通常は当業者間で周知である。



## 【 0 0 3 6 】

溶融加工条件、特にモノマーの使用量は、望ましいポリマー組成に左右される。エチレングリコール、第2のグリコール成分、芳香族ジカルボン酸成分、脂肪族酸成分、スルホネート化合物および分枝剤の量は、最終ポリマー生成物にさまざまなモノマー単位が所望の量で含有されるように選択される。いくつかの好ましい実施形態では、生成物には、それぞれのジオール成分と二酸成分から誘導された等モル量のモノマー単位が含有される。モノマー、特に第1および/または第2のグリコール成分の中には揮発性のものがあるため、反応器が密閉されているか否か（すなわち加圧下にあるか否か）、重合温度の傾斜率、ポリマーの合成に利用する蒸留カラムの効率などの変量によっては、重合反応の開始時にはいくつかのモノマーを過剰にし、反応が進むに従って余分なものを蒸留して除去する方が望ましいことがある。たとえば、第1のグリコール成分および/または第2のグリコール成分を重合開始時に過剰に提供すると好ましい場合がある。

10

## 【 0 0 3 7 】

特定の反応器に仕込むモノマーの厳密な量は、当業者であれば容易に求められるが、以下の範囲内におさまることが多い。過剰な二酸、第1のグリコールおよび/または第2のグリコール成分を仕込むと望ましいことが多く、重合反応が進むにつれて余分な二酸、第1のグリコールおよび/または第2のグリコールを蒸留または他の蒸発方法で除去すると望ましい。エチレングリコール、1, 3 - プロパンジオール、および1, 4 - ブタンジオールについては、最終ポリマーに望まれる濃度よりも10から100パーセント高い濃度で仕込むと望ましい。一層好ましくは、第1のグリコール成分は、最終ポリマーにおける所望の含有濃度よりも20から70パーセント高い濃度で仕込まれる。第2のグリコール成分については、最終生成物に望まれる所望の濃度よりも、第2のグリコール成分の揮発性に応じて0から100パーセント高い濃度で仕込むと望ましい。

20

## 【 0 0 3 8 】

蒸留カラムや他の種類の回収・再利用システムの効率次第で、重合時のモノマー損失にさまざまなばらつきが出ることから、各モノマーの量の範囲が変わることは、当業者であれば明らかであろう。特定の組成を達成するために特定の反応器に仕込まれるモノマーの厳密な量については、当業者が容易に判断する。

## 【 0 0 3 9 】

重合プロセスでは、モノマー同士を一緒にし、触媒または触媒混合物の存在下で混合しながら約230℃から約300℃の範囲、望ましくは250 から295 の温度まで徐々に加熱する。厳密な条件および触媒（単数または複数）の性質は、二酸が真の酸として重合されるかジメチルエステルとして重合されるかに左右される。触媒は、最初からモノマーと合わせておいてもよいし、および/または混合物の加熱時に、そこに1回または複数回添加してもよい。反応が進むにつれて使用する触媒を変えてもよい。加熱と攪拌を、通常は蒸留によって余分な反応物を除去しながら十分な時間十分な温度まで続け、製品の製造に適した分子量の溶融ポリマーを得る。

30

## 【 0 0 4 0 】

使用できる触媒としては、アセテート塩など、Li、Ca、Mg、Mn、Zn、Pb、Sb、Sn、Ge、Tiの塩ならびに、グリコールアダクトやTi アルコキシドを含む酸化物があげられる。これらは、従来技術において一般に知られており、使用する特定の触媒、あるいは触媒の組み合わせまたはシーケンス、当業者が容易に選択できるものである。好ましい触媒と好ましい条件は、たとえば、二酸モノマーが遊離二酸として重合されるかジメチルエステルとして重合されるかや、グリコール成分の厳密な化学同一性によって異なる。これは、限定として解釈されるべきものではない。本質的に、従来技術において周知のどのような触媒系であっても本発明での使い道があろう。

40

## 【 0 0 4 1 】

ポリマーのモノマー組成は、特定の用途と特定の特性の組とに応じて選択される。当業者であれば理解できるように、観察される厳密な熱的特性は、一部、コポリエステル組成物に用いられる各成分の化学的なアイデンティティと量によって決まる。

50

## 【 0 0 4 2 】

ポリマーは、多くの用途では適切な固有粘度の上記溶融縮合プロセスによって生成可能である。固体重合を利用してさらに高い固有粘度とさらに高い分子量を達成してもよい。

## 【 0 0 4 3 】

溶融重合で得られるポリマーは、押出成形、冷却、ペレット化の後、本質的に非結晶性になり得る。非結晶性材料は、これをガラス転移点よりも高い温度まで半結晶的に長時間加熱して生成可能なものである。これにより結晶化が誘導されるため、生成物をさらに高い温度まで加熱して分子量を上げることが可能である。このような手順は当業者間で周知である。また、ポリエステルに対して比較的弱い ( p o o r ) 溶媒で処理して固体重合の前にポリマーを結晶化し、結晶化を誘導してもよい。このような溶媒は、結晶化を可能にするガラス転移点 ( T g ) を下げる。溶媒により誘導される結晶化は、ポリエステルについて周知であり、米国特許公報 ( 特許文献 2 ) および米国特許公報 ( 特許文献 3 ) に記載されている。ポリマーの融解温度未満の高めの温度で長時間、ペレット化または粉末化形態のポリマーを窒素などの不活性ガスの流れに入れるか、あるいは 1 T o r r の真空下にて、半結晶性ポリマーを固体重合することが可能である。

10

## 【 0 0 4 4 】

本発明のスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、従来技術において周知の添加剤と併用できることを理解されたい。前記添加剤は非毒性、生分解性かつ生物良性 ( b i o b e n i g n ) であると好ましい。このような添加剤には、フェノール系酸化防止剤などの熱安定剤、チオエーテルや亜リン酸塩などのセカンダリー熱安定剤、ベンゾフェノン誘導体およびベンゾトリアゾール誘導体などの UV 吸収剤、ヒンダードアミン光安定剤 ( H A L S ) などの UV 安定剤などがあげられる。前記添加剤は、可塑剤、加工助剤、流動性改善 ( f l o w e n h a n c i n g ) 用添加剤、潤滑剤、色素、難燃剤、耐衝撃性改良剤、結晶性を高めるための成核剤、シリカなどの粘着防止剤、たとえば米国特許公報 ( 特許文献 4 ) 、米国特許公報 ( 特許文献 5 ) 、米国特許公報 ( 特許文献 6 ) 、米国特許公報 ( 特許文献 7 ) 、米国特許公報 ( 特許文献 8 ) および同特許に記載の引例に開示されているような酢酸ナトリウム、酢酸カリウム、水酸化テトラメチルアンモニウムなどの塩基緩衝液を、さらに含み得る。

20

## 【 0 0 4 5 】

好ましい可塑剤は、非毒性および生分解性および / または生物により誘導されるものである。添加すると処理を改善、特定の所望の最終機械特性を提供、あるいはポリマーから製造されるフィルム、コーティング、ラミネートのガタガタいう音またはサラサラいう音を低減できる可塑剤の具体例としては、ダイズ油、エポキシ化ダイズ油、とうもろこし油、ひまし油、あまに油、エポキシ化あまに油、鉱物油、アルキルリン酸エステル、T w e e n ( 登録商標 ) 2 0 可塑剤、T w e e n ( 登録商標 ) 4 0 可塑剤、T w e e n ( 登録商標 ) 6 0 可塑剤、T w e e n ( 登録商標 ) 8 0 可塑剤、T w e e n ( 登録商標 ) 8 5 可塑剤、ソルビタンモノラウレート、ソルビタンモノオレエート、ソルビタンモノパルミテート、ソルビタントリオレエート、ソルビタンモノステアレート、トリメチルシトレート、トリエチルシトレート ( 例、ノースカロライナ州グリーンズボロ ( G r e e n s b o r o ) のモルフレックスインコーポレイテッド ( M o r f l e x , I n c . ) 製 C i t r o f l e x ( 登録商標 ) 2 トリエチルシトレート ) 、トリブチルシトレート ( 例、ノースカロライナ州グリーンズボロ ( G r e e n s b o r o ) のモルフレックスインコーポレイテッド ( M o r f l e x , I n c . ) 製 C i t r o f l e x ( 登録商標 ) 4 トリブチルシトレート ) 、トリオクチルシトレート、アセチルトリ - n - ブチルシトレート ( 例、ノースカロライナ州グリーンズボロ ( G r e e n s b o r o ) のモルフレックスインコーポレイテッド ( M o r f l e x , I n c . ) 製 C i t r o f l e x ( 登録商標 ) A - 4 アセチルトリ - n - ブチルシトレート ) 、アセチルトリエチルシトレート ( 例、ノースカロライナ州グリーンズボロ ( G r e e n s b o r o ) のモルフレックスインコーポレイテッド ( M o r f l e x , I n c . ) 製 C i t r o f l e x ( 登録商標 ) A - 2 アセチルトリエチルシトレート ) 、アセチルトリ - n - ヘキシルシトレート ( 例、ノース

30

40

50

カロライナ州グリーンズボロ (Greensboro) のモルフレックスインコーポレイテッド (Morflex, Inc.) 製 Citroflex (登録商標) A-6 アセチルトリ-n-シトレート)、ブチルトリ-n-ヘキシルシトレート (例、ノースカロライナ州グリーンズボロ (Greensboro) のモルフレックスインコーポレイテッド (Morflex, Inc.) 製 Citroflex (登録商標) B-6 ブチルトリ-n-ヘキシルシトレート) などのシトレートエステル、ジメチルタータレート、ジエチルタータレート、ジブチルタータレート、ジオクチルタータレートなどのタータレート (tartarate) エステル、ポリ (エチレングリコール)、ポリ (エチレングリコール) の誘導体、パラフィン、6-O-ステリルグルコピラノシド、グリセリルモノステアレート、Myvaplex (登録商標) 600 濃縮グリセロールモノステアレート、Nyvaplex (登録商標) 濃縮グリセロールモノステアレート、硬化ダイズ油から生成された 90% 最低蒸留モノグリセリドであり、主にステアリン酸エステルで構成される)、変性脂肪の Myvacet (登録商標) 蒸留アセチル化モノグリセリド、Myvacet (登録商標) 507 (48.5 から 51.5 パーセントアセチル化)、Myvacet (登録商標) 707 (66.5 から 69.5 パーセントアセチル化)、Myvacet (登録商標) 908 (最低 96 パーセントアセチル化)、Myverol (登録商標) 濃縮グリセリルモノステアレート) などのモノアシル炭水化物、Acrawax (登録商標) N, N-エチレンビス-ステアルアミド、N, N-エチレンビス-オレイン酸アミド、ジオクチルアジペート、ジイソブチルアジペート、ジエチレングリコールジベンゾエート、ジブピレングリコールジベンゾエート、ポリ (1, 6-ヘキサメチレンアジペート)、ポリ (エチレンアジペート) などのポリマー系可塑剤、Rucoflex (登録商標) 可塑剤、他の相溶性低分子量ポリマーなどと、それらの混合物があげられる。

#### 【0046】

また、本発明の組成物には、たとえば、木粉、石膏、タルク、雲母、カーボンブラック、ウォラストナイト、モンモリロナイト鉱物、チョーク、珪藻土、砂、砂利、碎石、ボーキサイト、石灰岩、砂岩、エーロゲル、キセロゲル、ミクロスフェア、多孔性セラミック球、石膏二水和物、アルミン酸カルシウム、炭酸マグネシウム、セラミック材料、ポゾラン材料、ジルコニウム化合物、ゾノトライト (結晶性ケイ酸カルシウムゲル)、パーライト、バーミキュライト、水和または非水和水硬性セメント粒子、軽石、パーライト、ゼオライト、カオリン、天然および合成粘土とシランおよびステアリン酸で表面処理してコポリエステルマトリクスとの接着性を高めた有機粘土および粘土などの処理粘土および未処理粘土との両方を含む粘土フィラー、スメクタイト粘土、ケイ酸アルミニウムマグネシウム、ベントナイト粘土、ヘクトライト粘土、酸化ケイ素、テレフタル酸カルシウム、酸化アルミニウム、二酸化チタン、酸化鉄、リン酸カルシウム、硫酸バリウム、炭酸ナトリウム、硫酸マグネシウム、硫酸アルミニウム、炭酸マグネシウム、炭酸バリウム、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム、硫酸カルシウム、硫酸バリウム、フッ化リチウム、ポリマー粒子、粉末金属、パルプ粉末、セルロース、澱粉、化学変性澱粉、熱可塑性を有する澱粉、リグニン粉末、コムギ、キチン、キトサン、ケラチン、グルテン、くるみ殻粉、木粉、トウモロコシ穂軸粉、炭酸カルシウム、水酸化カルシウム、ガラスビーズ、中空ガラスビーズ、シーゲル、コルク、種、ゼラチン、木粉、おがくず、寒天ベースの材料、ガラス繊維、サイザルアサ、アサ、ワタ、ウール、木、フラックス、マニラアサ、サイザルアサ、カラムシ、バガス、セルロース繊維などの天然繊維、カーボンファイバ、グラファイト繊維、シリカ繊維、セラミック繊維、金属繊維、ステンレス鋼繊維、たとえば、再パルプ化作業で得られた再生紙繊維などの補強材などの無機フィラー、有機フィラーおよび/または粘土フィラーを充填してもよい。フィラーは、ヤング率を高め、デッドフォールド性を改善し、フィルム、コーティングまたはラミネートの張り剛性を改善し、コストを低減および/またはフィルム、コーティングまたはラミネートが処理時または使用時にブロックまたは自己接着する傾向を低減しやすくできるものである。また、フィラーを用いると、たとえば、ミヤザキ (Miyazaki) らに付与された米国特許公報 (特許文献 9) に開示されているように、テクスチャや手触りなど紙の持つ品質の多

10

20

30

40

50

くを有するプラスチック物品を製造できることも分かっている。

【0047】

粘土フィラーには、天然および合成粘土と、シランまたはステアリン酸で表面処理してコポリエステルマトリクスとの接着性を高めた有機粘土および粘土などの未処理粘土および処理粘土との両方を含む。利用可能な具体的な粘土材料としては、たとえば、カオリン、スメクタイト粘土、ケイ酸アルミニウムマグネシウム、ベントナイト粘土、モンモリロナイト粘土、ヘクトライト粘土などと、それらの混合物があげられる。この粘土を界面活性剤などの有機材料で処理し、親有機性にしておいても構わない。利用可能な市販粘土フィラーの具体例として、製造業者の資料には白色スメクタイト粘土（ケイ酸アルミニウムマグネシウム）と説明されている、サザンクレイカンパニー（Southern Clay Company）の市販品であるGelwhite（登録商標）MAS 100、製造業者の資料には親有機性スメクタイト粘土と説明されている、サザンクレイカンパニー（Southern Clay Company）の市販品であるClaytone（登録商標）2000、白色ベントナイト粘土から得られるモンモリロナイト粘土と定義されているサザンクレイカンパニー（Southern Clay Company）の市販品であるGelwhite（登録商標）L、ビス（2-ヒドロキシエチル）メチル獣脂第4級塩化アンモニウム塩を有する親有機性（organophilic）天然モンモリロナイト粘土と定義されているサザンクレイカンパニー（Southern Clay Company）の市販品であるCloisite（登録商標）30 B、製造業者の資料には天然モンモリロナイト粘土と説明されている、サザンクレイカンパニー（Southern Clay Company）の市販品であるCloisite（登録商標）Na、製造業者の資料には鉱物混合物と説明されている、サザンクレイカンパニー（Southern Clay Company）の市販品であるGaramite 1958、製造業者の資料には無機ポリホスフェートペプタイザーを有する合成層状ケイ酸塩と説明されているサザンクレイカンパニー（Southern Clay Company）の市販品であるLaponite（登録商標）RDS、製造業者の資料には合成コロイド状粘土と説明されているサザンクレイカンパニー（Southern Clay Company）の市販品であるLaponite（登録商標）RD、製造業者の資料には相溶化剤で処理したモンモリロナイト鉱物と説明されているナノカーカンパニー（Nanocor Company）の市販品であるNanomers（登録商標）、製造業者の資料にはアミノ酸で表面処理したモンモリロナイト鉱物と説明されているナノカーカンパニー（Nanocor Company）の市販品であるNanomer（登録商標）1.24 TL、製造業者の資料には表面変性モンモリロナイト鉱物と説明されているナノカーカンパニー（Nanocor Company）の市販品である「Pシリーズ」Nanomers（登録商標）、製造業者の資料には、フィロケイ酸塩とも呼ばれることがある高純度アルミノケイ酸塩鉱物と説明されているナノカーカンパニー（Nanocor Company）の市販品であるPolymer Grade（PG）モンモリロナイトPGW、製造業者の資料には、フィロケイ酸塩とも呼ばれることがある高純度アルミノケイ酸塩鉱物と説明されているナノカーカンパニー（Nanocor Company）の市販品であるPolymer Grade（PG）モンモリロナイトPGA、製造業者の資料には、フィロケイ酸塩とも呼ばれることがある高純度アルミノケイ酸塩鉱物と説明されているナノカーカンパニー（Nanocor Company）の市販品であるPolymer Grade（PG）モンモリロナイトPGV、製造業者の資料には、フィロケイ酸塩とも呼ばれることがある高純度アルミノケイ酸塩鉱物と説明されているナノカーカンパニー（Nanocor Company）の市販品であるPolymer Grade（PG）モンモリロナイトPGNなどと、それらの混合物があげられる。これは、限定として解釈されるべきものではない。本質的に、従来技術において周知のどのような粘土フィラーであっても本発明で使い道がある。

【0048】

本発明の望ましい粘土フィラーのなかには、剥離するとナノ複合体が得られるものがあ

10

20

30

40

50

る。これは特に、スメクタイト粘土、ケイ酸アルミニウムマグネシウム、ベントナイト粘土、モンモリロナイト粘土、ヘクトライト粘土などの層状ケイ酸塩粘土に多い。上述したように、このような粘土は、天然または合成で、処理したものでなくてもよい。これは、限定として解釈されるべきものではない。最終充填スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルでの粘土の粒度は、広い範囲にわたるであろう。

#### 【0049】

フィラーの粒度は可変であるが、当業者であれば明らかなように、ひとつには充填コポリエステル組成物の所望の用途に応じてフィラーの粒度を調節できる。通常、フィラーの平均粒径は約40ミクロン未満であるのが好ましい。フィラーの平均直径が約20ミクロン未満であるとさらに好ましい。しかしながら、これは、限定として解釈されるべきものではなく、特定の最終用途によっては、40ミクロンを超える粒度が適しているまたは望ましいことがある。フィラーについては、最大40メッシュ（米国標準）またはそれ以上の範囲の粒度とし得る。フィラーの粒度2種類以上が都合良く利用できることもある。たとえば、平均粒度約5ミクロンと約0.7ミクロンの炭酸カルシウムフィラー混合物を用いると、コポリエステルマトリクス内でフィラーによる空間充填性が高まることがある。2種類以上のフィラー粒度を用いることで、粒子充填性が改善される。粒子充填は、大きな粒子群間の空間が、これよりも小さなフィラー粒子からなる選択された群で実質的に占有されるように、フィラー粒度の2以上の範囲を選択するプロセスである。通常、特定の粒子の組を、その第1の群の粒子と比して粒度が少なくとも約2倍か約半分の粒子からなる別の組と混合すれば、粒子充填性は高くなる。この2粒子系の粒子充填密度は、特定の組の粒子のサイズに対する他の組の粒子のサイズが約3から10倍になると最大になる。同様に、3種またはそれ以上の組の粒子を利用して、粒子充填密度をさらに高めることもできる。個々の用途または組成物に最適な充填密度の程度は、たとえば、熱可塑性相と固体フィラー相の両方におけるさまざまな成分のタイプと濃度、使用するフィルム、コーティングまたはラミネーションプロセス、製造対象となる最終生成物の機械的、熱的および他の所望の性能特性をはじめとする、さまざまな要因によって決まる。アンダーセン（Anderson）ら、米国特許公報（特許文献10）には粒子充填手法が開示されている。上記の粒子充填手法に基づき、異なるフィラー粒度が混在したフィラー濃縮物が、シャルマンカンパニー（Shulman Company）からPapermatch（登録商標）という商標で市販されている。

#### 【0050】

フィラーをコポリエステルに加えるのは重合時または重合が終了した後のどの段階でもよい。たとえば、重合プロセスの開始時にコポリエステルモノマーと一緒にフィラーを加えることができる。これは、フィラーをポリエステルマトリクス内で適切に分散させる上で、たとえばシリカおよび二酸化チタンフィラーの場合に好ましい。あるいは、予備縮合物（precondensate）が形成され、この予備縮合物が重合容器を通るような場合などは、重合の中間段階でフィラーを加えてもよい。さらに別の形として、コポリエステルが重合装置を出た後でフィラーを加えても構わない。たとえば、スタティックミキサまたは一軸スクリュウ押出機または二軸スクリュウ押出機などの強混合オペレーションにコポリエステルを溶融供給し、フィラーと配合することができる。

#### 【0051】

充填コポリエステルを生成するさらに別の方法では、以後の後重合プロセスでコポリエステルをフィラーと組み合わせることができる。一般に、このようなプロセスでは、溶融コポリエステルをフィラーと一緒に強混合する必要がある。前記強混合を行うには、スタティックミキサ、ブラベンダーミキサー、一軸スクリュウ押出機、二軸スクリュウ押出機などを用いればよい。一般的なプロセスでは、コポリエステルを乾燥させた後、フィラーと混合する。あるいは、2つの異なるフィーダーからコポリエステルとフィラーを同時供給してもよい。押出プロセスでは、コポリエステルとフィラーは一般に、押出機の後ろ側の供給セクションに供給される。しかしながら、これは、限定として解釈されるべきものではない。コポリエステルとフィラーを押出機の2カ所に供給すると都合がよい場合もあ

る。たとえば、コポリエステルを押出機の後ろ側の供給セクションに加え、フィラーの方はダイプレート付近の押出機の前面に供給（「側面詰め込み」）することもできる。押出機の温度プロファイルを、処理条件下でコポリエステルが熔融できるように設定する。また、スクリュウは、熔融コポリエステルとフィラーとを混合する際に樹脂に応力を生じ、結果として熱を発生させる設計になっている。フィラーを熔融混合するためのプロセスは、たとえば、ドーラー（Dohrer）ら、米国特許公報（特許文献11）に開示されている。あるいは、後述するように、本発明のフィルムおよびコーティングの形成時にフィラーを本発明のポリエステル材料とブレンドしてもよい。

#### 【0052】

本願明細書にて開示するようなコポリエステル組成物中における有機フィラー、無機フィラーおよび/または粘土フィラーの使用量は、組成物の意図した最終用途に応じて当業者が判断できるものである。たとえば、コポリエステル組成物の総重量に対して0.01から95重量パーセントの量のフィラーを都合よく利用することができる。好ましくは、フィラーの量は約0.1から約80重量パーセントである。

#### 【0053】

前記添加剤、フィラーまたはブレンド材料は、重合プロセスの前、重合プロセスの最中におけるいずれかの段階、または後重合プロセスで加えることができるものである。本質的に、従来のどのようなフィラー材料であってもスルホン化脂肪族芳香族コポリエステルで使い道があろう。ポリマー材料に用いる従来技術において周知のあらゆる添加剤も、本発明の組成物およびプロセスで使い道があろう。

#### 【0054】

本発明のコポリエステルは他のポリマー材料とブレンドできるものである。このような1種または複数のコポリエステルとのブレンド用材料は、生分解性であっても生分解性でなくともよく、天然由来のものであっても変性天然由来のものであっても、合成のものであってもよい。

#### 【0055】

ブレンド可能な生分解性材料の例としては、本願出願人から商標Biomax（登録商標）で販売されているものなどのスルホン化脂肪族芳香族コポリエステル、イーストマンケミカルカンパニー（Eastman Chemical Company）から商標EaSTAR Bio（登録商標）で販売されているもの、BASF社から商標Ecoflex（登録商標）で販売されているもの、アイルケミカルカンパニー（Ire Chemical Company）から商標EnPol（登録商標）で販売されているものなどの脂肪族芳香族コポリエステル、ポリ（1,4-ブチレンスクシネート）などの脂肪族ポリエステル、（昭和高分子株式会社（Showa High Polymer Company）から入手可能なBionolle（登録商標）1001）、ポリ（エチレンスクシネート）、ポリ（1,4-ブチレンアジペート-コ-スクシネート）、（昭和高分子株式会社（Showa High Polymer Company）から入手可能なBionolle（登録商標）3001）、アイルケミカルカンパニー（Ire Chemical Company）から商標EnPol（登録商標）で販売されているもの、昭和高分子株式会社（Showa High Polymer Company）から商標Bionolle（登録商標）で販売されているもの、三井東圧株式会社（Mitsui Toatsu Company）から販売されているもの、株式会社日本触媒（Nippon Shokubai Company）から販売されているもの、チェイルシンセティクスカンパニー（Cheil Synthetics Company）から販売されているもの、イーストマンケミカルカンパニー（Eastman Chemical Company）から販売されているもの、サンキョンインダストリーズカンパニー（Sunkyon Industries Company）から販売されているものなどのポリ（1,4-ブチレンアジペート）、商標Bak（登録商標）でバイエルカンパニー（Bayer Company）から販売されているものなどのポリ（アミドエステル）、PAC ポリマーズカンパニー（Polymers Company）から販売され

10

20

30

40

50

ているポリ(炭酸エチレン)などのポリカーボネート、ポリ(ヒドロキシブチレート)などのポリ(ヒドロシアルカノエート)、ポリ(ヒドロキシバレエート)、モンサントカンパニー(Monsanto Company)から商標Biopol(登録商標)で販売されているものなどのポリ(ヒドロキシブチレート-コ-ヒドロキシバレエート)、三井化学株式会社(Mitsui Chemicals Company)からグレード表示H100J、S100、T100で販売されているものなどのポリ(ラクチド-コ-グリコライド-コ-カプロラクトン)、商標Tone(登録商標)でユニオンカーバイドカンパニー(Union Carbide Company)から販売されているものや、ダイセル化学工業株式会社(Daicel Chemical Company)およびソルベイカンパニー(Solvay Company)から販売されているものなどのポリ(カプロラクトン)、カーギルダウカンパニー(Cargill Dow Company)から商標EcoPLA(登録商標)で販売されているものや、ダイニッポンカンパニー(Dainippon Company)から販売されているものなどのポリ(ラクチド)、それらの混合物があげられる。

#### 【0056】

ブレンド可能な非生分解性ポリマー材料の例としては、ポリエチレン、高密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、線状低密度ポリエチレン、超低密度ポリエチレン、ポリオレフィン、ポリ(エチレン-コ-グリシジルメタクリレート)、ポリ(エチレン-コ-メチル(メタ)アクリレート-コ-グリシジルアクリレート)、ポリ(エチレン-コ-n-ブチルアクリレート-コ-グリシジルアクリレート)、ポリ(エチレン-コ-メチルアクリレート)、ポリ(エチレン-コ-エチルアクリレート)、ポリ(エチレン-コ-ブチルアクリレート)、ポリ(エチレン-コ-(メタ)アクリル酸)、ポリ(メチルメタクリレート)、ポリ(エチルメタクリレート)などのポリ(エチレン-コ-(メタ)アクリル酸)、ポリ((メタ)アクリレート)の金属塩、ポリ(エチレン-コ-一酸化炭素)、ポリ(ビニルアセテート)、ポリ(エチレン-コ-ビニルアセテート)、ポリ(ビニルアルコール)、ポリ(エチレン-コ-ビニルアルコール)、ポリプロピレン、ポリブチレン、ポリエステル、ポリ(エチレンテレフタレート)、ポリ(1,3-プロピルテレフタレート)、ポリ(1,4-ブチレンテレフタレート)、PETG、ポリ(エチレン-コ-1,4-シクロヘキサジメタノールテレフタレート)、ポリ(塩化ビニル)、PVC、ポリ(塩化ビニリデン)、ポリスチレン、シンジオタクチックポリスチレン、ポリ(4-ヒドロキシスチレン)、ノバラック、ポリ(クレゾール)、ポリアミド、ナイロン、ナイロン6、ナイロン46、ナイロン66、ナイロン612、ポリカーボネート、ポリ(ビスフェノールAカーボネート)、ポリスルフィド、ポリ(フェニレンスルフィド)、ポリエーテル、ポリ(2,6-ジメチルフェニレンオキシド)、ポリスルホンなどと、それらのコポリマーならびにそれらの混合物があげられる。

#### 【0057】

ブレンド可能な天然ポリマー材料の例としては、澱粉、澱粉誘導体、変性澱粉、熱可塑性を有する澱粉、カチオン澱粉、アニオン澱粉、澱粉アセテートや澱粉ヒドロキシエチルエーテルなどの澱粉エステル、アルキル澱粉、デキストリン、アミン澱粉、ホスフェート澱粉、ジアルデヒド澱粉、セルロース、セルロース誘導体、変性セルロース、セルロースアセテート、セルロースジアセテート、セルロースプロピオネート、セルロースブチレート、セルロースバレエート、セルローストリアセテート、セルローストリプロピオネート、セルローストリブチレートなどのセルロースエステル、セルロースアセテートプロピオネートおよびセルロースアセテートブチレートなどのセルロース混合エステル、メチルヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシメチルエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、メチルセルロース、エチルセルロース、ヒドロキシエチル(ethy)セルロース、ヒドロキシエチルプロピルセルロースなどのセルロースエーテル、多糖類、アルギン酸、アルギン酸塩、海藻コロイド、寒天、アラビアゴム、グアーガム、アカシアガム、カラギーナンガム、フルセラランガム、ガティガム、サイリウムガム、マルメロガム、タマリンドガム、ローカストビーンガム、カラヤガム、キサンタンガム、トラガカントガム、

10

20

30

40

50

タンパク質、Z e i n（登録商標）すなわちトウモロコシ由来のプロラミン、（動物の結合組織や骨から抽出される）コラーゲン、それらの誘導体（ゼラチンやグルーなど）、カゼインすなわち牛乳の主要なタンパク質、ヒマワリタンパク質、卵タンパク質、大豆タンパク質、野菜ゼラチン、グルテンなどと、それらの混合物があげられる。熱可塑性を有する澱粉については、たとえば、米国特許公報（特許文献12）に開示されているようにして生成できる。ここに開示の方法は、澱粉がほとんど結晶性ではないかまったく結晶性ではなく、低ガラス転移点で低含水量になるように、未加工澱粉または変性澱粉をグリセリンまたはソルビトールなどの高沸点可塑剤と一緒に混合加熱することを含む。これは、限定としてとられるべきものではない。本質的に、従来技術において周知のどのようなポリマー材料であっても、本発明のスルホン化ポリエーテルエステルとブレンドできる。

10

#### 【0058】

コポリエステルとのブレンド対象となる1種または複数種のポリマー材料をコポリエステルの形成に利用するモノマーに加えるのは、重合時または重合が終了した後のどの段階でもよい。たとえば、重合プロセスの開始時にコポリエステルモノマーと一緒にポリマー材料を加えることができる。あるいは、予備縮合物が重合容器を通るような場合などは、重合の中間段階でポリマー材料を加えてもよい。さらに別の形として、コポリエステルが重合装置を出た後でポリマー材料を加えても構わない。たとえば、スタティックミキサまたは一軸スクリュウ押出機または二軸スクリュウ押出機などの強混合オペレーションにコポリエステルとポリマー材料を溶融供給し、ポリマー材料と配合することができる。

#### 【0059】

20

本発明のコポリエステルとポリマー材料とのブレンドを生成するさらに別の方法として、以後の後重合プロセスでコポリエステルをポリマー材料と組み合わせることができる。一般に、このようなプロセスでは、溶融コポリエステルをポリマー材料と一緒に強混合する必要がある。前記強混合を行うには、スタティックミキサ、ブラベンダーミキサー、一軸スクリュウ押出機、二軸スクリュウ押出機などを用いればよい。一般的なプロセスでは、混合前にコポリエステルを乾燥させる。コポリエステルとのブレンド対象となるポリマー材料も乾燥させておいても構わない。続いて、この乾燥コポリエステルをポリマー材料と混合することができる。あるいは、2つの異なるフィーダーからコポリエステルとポリマー材料とを同時供給してもよい。押出プロセスでは、コポリエステルと、これとのブレンド対象となるポリマー材料は一般に、押出機の後ろ側の供給セクションに供給される。しかしながら、これは、限定として解釈されるべきものではない。コポリエステルとポリマー材料を押出機の2カ所に供給すると都合がよい場合もある。たとえば、コポリエステルを押出機の後ろ側の供給セクションに加え、ポリマー材料の方はダイブレード付近の押出機の前面に供給（「側面詰め込み」）することもできる。押出機の温度プロファイルを、処理条件下でコポリエステルが溶融できるように設定する。また、スクリュウは、溶融コポリエステルとポリマー材料とを混合する際に樹脂に応力を生じ、結果として熱を発生させる設計になっている。あるいは、後述するように、フィルムまたはコーティングの形成時にポリマー材料をコポリエステルとブレンドしてもよい。

30

#### 【0060】

本発明の一態様は、本発明のスルホン化脂肪族芳香族ポリエーテルエステルを含むフィルム、その製造プロセスならびに、そのフィルムから製造される物品に関する。ポリマーフィルムには、たとえば、包装材における用途、特に食品の包装材、接着テープ、絶縁体、コンデンサ、写真現像、X線現像、さらにはラミネートとしてなど、さまざまな用途がある。用途によっては、フィルムの耐熱性が重要な要素のひとつになる。したがって、生分解速度が望ましいレベルで速いのと同時に、耐熱性を良くし、電気的な特性を一層安定させるには、融点とガラス転移点も高い方が望ましい。さらに、フィルムの防湿性、酸素バリア、二酸化炭素バリアなどのバリア性が良好で、耐油性が良好で、引張強度が高く、破断点伸びが高いことが望まれている。

40

#### 【0061】

本発明のスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルは、食品包装材、ラベル、誘

50



電絶縁、水蒸気バリアなどの多くの異なる用途のいずれにも用いられるフィルムに形成できる。限定するわけではないが、コポリエーテルエステルポリマーのモノマー組成物は、フィルムの形成に望ましい部分結晶性ポリマーを得られるものであると好ましく、この結晶性によって強度と弾性が得られる。生成直後の状態では、ポリエステルは半結晶構造なのが普通である。フィルムの製造時に起こるようなポリマーの再加熱および/または延伸によって、結晶性が高くなる。

#### 【 0 0 6 2 】

フィルムは、当業者間で周知のプロセスを用いてコポリエステルから製造可能である。たとえば、米国特許公報（特許文献 1 3）に開示されているようなディップコーティング、米国特許公報（特許文献 1 4）に開示されているような圧縮成形、米国特許公報（特許文献 1 5）に開示されているような溶融押出、米国特許公報（特許文献 1 6）に開示されているようなメルトブロー、あるいは他のプロセスによって、薄膜を形成すればよい。フィルムとシートとの違いは厚さであるが、フィルムをシートと区別するのに必要な厚さに関して決まった業界標準があるわけではない。本願明細書において使用する場合、「フィルム」という用語は、厚さが約 0 . 2 5 mm（1 0 ミル）以下、好ましくは約 0 . 0 2 5 mm から 0 . 1 5 mm（1 ミルから 6 ミル）の物品を示す。しかしながら、たとえば厚さが約 0 . 5 0 mm（2 0 ミル）であるなど、上記の値よりも厚いフィルムを形成することも可能である。

#### 【 0 0 6 3 】

コポリエステルから作られるフィルムは、溶液流延または押出によって形成されると好ましい。連続した長い物として出てくるフィルムやシートなどの「エンドレス」製品の製造には押出が特に好ましい。押出では、ポリマー材料を、溶融ポリマーで得るかプラスチックペレットや顆粒状で得るかを問わず、流動化して均質にして混合物を形成する。上述したように、必要であれば、熱安定剤または UV 安定剤、可塑剤、フィラーおよび/またはブレンド可能なポリマー材料などの添加剤を混合物に含有させてもよい。続いて、この混合物を好適な形のダイに通し、所望のフィルム断面形状を形成する。押出力については、ピストンまたはラム（ラム押出）で加えてもよいし、シリンダ内で動作する回転スクリュウ（スクリュウ押出）で加えてもよい。シリンダは材料を加熱して可塑化する場であり、材料はこのシリンダからダイを通して連続した流れの形で押し出される。従来技術において周知のように、一軸スクリュウ押出機、二軸スクリュウ押出機、多軸スクリュウ押出機が利用できる。多種多様なダイを利用して、吹込成形フィルム（吹込押出用のブローヘッドで形成される）、シート、ストリップ（スロットダイ）、中空の部分と中実の部分（サーキュラーダイ）などの異なる製品が製造される。このようにして、幅と厚さの異なるフィルムを製造できる。押出後、ポリマーフィルムをロールに巻き取り、冷却し、取り外す。フィルムの取り外しは、好ましくは以後のフィルムの歪みを防ぐように設計された適当な装置を用いて行うことが可能である。

#### 【 0 0 6 4 】

従来技術において周知のような押出機を用いて、薄いポリマー層をチルドロールの上に押し出し、続いてテンションロールによってフィルムをさらに引き落として適切な大きさにし、フィルムを製造することが可能である。押出流延プロセスでは、押出機からスロットダイ（T 字形または「コートハンガー」ダイ）を介してポリマー溶融物を搬送する。前記ダイについては、幅 1 0 フィートと広くでき、一般には内圧からのリップの歪みを最小限にする目的でファイナルランド（f i n a l l a n d）に厚い壁部分が設けられている。ダイの開口は広範囲に設定できるが、0 . 0 1 5 インチから 0 . 0 3 0 インチが一般的である。押出によって、初期（n a s c e n t）流延フィルムが得られる。この初期流延フィルムを引き落とし、フィルムを巻き取るロールの速度に応じて大幅に薄くすることができる。続いて、結晶融点またはガラス転移点未満まで冷却することで、フィルムを固化させる。固化については、フィルムを水浴に通すか、芯が水冷用に設けられた 2 本以上のクロムメッキ付きチルドロールの上を通して行えばよい。続いて、流延フィルムをニップロールで搬送し、スリッターで縁を切り落としてから巻き取る。流延フィルムでは、条件

を調節することで、特に高い引落条件と巻取速度で縦方向に比較的大きく配向させ、横方向にはかなり低いレベルの配向にすることができる。あるいは、条件を調節し、配向レベルを最小限にし、縦方向と横方向で物性が本質的に等しいフィルムを得ることもできる。好ましくは、仕上がったフィルムの厚さが 0.25 mm 以下である。

#### 【0065】

通常は流延フィルムよりも強く耐久性があり、短時間で製造される吹込成形フィルムを、チューブの押出によって製造する。吹込成形フィルムの製造時、一般には熔融ポリマーを押出機から上方向にターンし、環状ダイを介して供給する。熔融物はマンドレルの周囲を流れ、環形の開口から筒状のフィルムとして出てくる。筒状のフィルムがダイを離れると、ダイのマンドレルを介して空気で内圧が導入され、これによって筒状のフィルムがダイの直径の約 1.5 から約 2.5 倍の直径に膨らむと同時に、フィルムが延伸され、結果として厚さが薄くなる。フィルムは、一端がダイで封止されて他端がニップ（またはピンチ）ロールで封止されたバブルの形であり、空気は逃げるできない。望ましくは、一定の空気圧を維持してフィルムバブルの厚さが均一になるようにする。空気をフィルムに送ることで、筒状のフィルムを内部的および/または外部的に冷却してもよい。吹込成形フィルム法では、膨張したフィルムをバブル内に位置する冷却したマンドレルのまわりに通すことで、さらに急冷することもできる。たとえば、冷却したマンドレルを用いるこのような方法のひとつが、ブンガ（Bunga）ら、（特許文献 17）に開示されている。吹込成形フィルムの製造に用いるポリマーが半結晶性の場合は、ポリマーの軟化点未満に冷却したときにバブルが曇る場合がある。押出物の引き落としは重要ではないが、好ましくは引き落とし比を 2 から 40 にする。引き落とし比は、冷却したフィルムの厚さと膨張比との積に対するダイギャップの比として定義される。引き落としはピンチロールからの張力によって導入できる。膨張比は、サーキュラーダイの直径に対する冷却したフィルムバブルの直径の比である。膨張比は 4 または 5 と大きくすることができるが、2.5 が一般的である。引き落としによって、フィルム内で縦方向（すなわち、押出物が流れる方向）に分子配向が誘導され、膨張比はフィルム内でフープ方向（縦方向に垂直）とも呼ばれる横方向に誘導される分子配向レベルを定義する。急冷されたバブルは案内装置によって上方向に移動して一組のピンチロールに入り、このロールがバブルを平らにしてスリーブを形成する。こうして得られたスリーブを一方の側に沿って裁断すれば、流延フィルム法によって都合よく製造できる幅よりも幅広のフィルムを得ることができる。裁断したフィルムをさらにインラインでガセットおよび/または表面処理してもよい。また、当業者間で周知のダブルバブル、テープバブルまたはインフレート法など、もっと手の込んだ手法で吹込成形フィルムを製造してもよい。ダブルバブル法は、ポリマー管をまず急冷した上で再加熱し、ポリマー管をポリエステルのガラス転移点（ $T_g$ ）を超えるが結晶融点（ $T_m$ ）未満まで膨張（ポリエステルが結晶性である場合）させて配向する手法である。ダブルバブル手法については、たとえば、パークル（Parkle）の米国特許公報（特許文献 18）に説明されている。

#### 【0066】

吹込成形フィルムの製造に用いられる条件は、ポリマーの化学組成、可塑剤などの添加剤の量とタイプ、ポリマー組成物の熱的特性などの要因によって決まる。しかしながら、吹込成形フィルムプロセスには、バブル内の空気の容量とスクリュウの速度を変えるだけで、フィルム幅と口径（caliber）を比較的簡単に変更でき、終端効果がなくなり、製造されたフィルムで二軸配向を行えるなどの利点がある。吹込成形フィルム作業を経た後の一般的な膜厚は約 0.004 から 0.008 インチの範囲になり、フラットフィルム幅はスリット後で最大 24 フィートまたはそれ以上になり得る。

#### 【0067】

大量のフィルムを製造するには、圧延カレンダーを利用すればよい。圧延カレンダーは、逆方向に回転する加熱可能な平行円筒ローラが複数本備えられ、ポリマーを塗布して所望の厚さまで延伸する機械である。荒フィルムをカレンダーのギャップの中にする。最後のローラが、こうして製造されるフィルムをなめらかにする。フィルムの表面を模様付き

にする必要がある場合は、最終ローラに適当なエンボスパターンを形成しておく。あるいは、フィルムを再加熱してエンボスカレンダーに通してもよい。カレンダーの後に1本または複数の冷却ドラムをおく。最後に、仕上がったフィルムをリールに巻き取る。

【0068】

押出フィルムを他製品の開始材料として利用してもよい。たとえば、このフィルムを小さく切って射出成形などの他の加工方法の供給材料として用いることができる。別の例として、後述するようにフィルムを支持体に積層してもよい。さらに別の例として、当業者間で周知の手法でフィルムを金属化してもよい。吹込成形フィルムオペレーションで得られるフィルムチューブを、たとえばヒートシールプロセスで袋にしてもよい。

【0069】

汎用性を高めるために、押出をさまざまな押出後オペレーションと組み合わせることが可能である。このような二次成形オペレーションとしては、当業者間で周知のように、丸形を楕円形に変える、フィルムを吹込成形して別の寸法にすることのほか、機械加工およびパンチング、二軸配向などがあげられる。

【0070】

あるいは、溶融押出で製造する場合よりも一貫してゲージが均一なフィルムを製造できる溶液流延によってフィルムを製造してもよい。溶液流延は、ポリマー顆粒、粉末などを、可塑剤または着色料などの所望の添加剤または加工助剤と一緒に好適な溶媒に溶解させることを含む。この溶液を濾過して汚染物または大きな粒子を除去し、スロットダイから好ましくはステンレス鋼製の移動ベルトに流延し、乾燥させ、この上でフィルムを冷却する。押出物の厚さは仕上がりフィルムの5から10倍である。このフィルムを押出フィルムの場合と同様に仕上げればよい。当業者であれば、ポリマーの組成とフィルムの形成に用いるプロセスに基づいて、適切なプロセスパラメータを特定できるであろう。さらに、溶液流延フィルムを押出流延フィルムで説明したものと同一後処理まで処理してもよい。

【0071】

二層、三層、多層フィルム構造など、本願明細書に記載の1層または複数のコポリエステル層を含む多層フィルムと、1層または複数の付加層とを製造してもよい。付加層は、本発明のポリエステルまたは生分解性であっても生分解性でなくてもよい他の材料を含み得る。前記材料は、天然由来であってもよいし、天然由来で変性したものであっても合成したものであってもよい。多層フィルムの利点のひとつに、特定の特性をフィルムに合わせて使用上の重要な要件に対応できるようにしつつ、コストのかかる成分を外層に出してより大きな需要を満たすようにできることがある。前記多層フィルム構造は、同時押出、吹込成形フィルム、ディップコーティング、溶液コーティング、ブレード、パドル、エアナイフ、プリンティング、ダールグレン、グラビア、粉体被覆、噴霧または他の従来技術のプロセスで形成できる。通常、多層フィルムは押出流延プロセスで製造される。たとえば、樹脂材料を一樣な方法で加熱する。溶融材料を同時押出アダプタに搬送し、ここで溶融材料同士を一緒にして多層同時押出構造を形成する。この多層同時押出構造は、開放された押出ダイを介して一般に約0.05インチ(0.13cm)から0.012インチ(0.03cm)の範囲である、あらかじめ定められたギャップに送られる。続いて、一般に約15から55°C(60~130°F)の範囲に維持した一次チルロールまたはキャストングロールによって、上記の材料を意図したゲージ厚まで引き落とす。典型的な引き落とし比の範囲は約5:1から約40:1である。多層フィルムの個々の層は、バリア層、接着剤層、粘着防止層として機能でき、あるいは他の目的で利用できる。さらに、たとえば、米国特許公報(特許文献19)および米国特許公報(特許文献20)に開示されているように、内層を充填して外層を未充填としてもよい。製造プロセスは、たとえば、米国特許公報(特許文献21)、米国特許公報(特許文献22)、米国特許公報(特許文献23)、米国特許公報(特許文献24)および米国特許公報(特許文献20)に開示されている。たとえば、E1-アフランディ(Afandi)ら、米国特許公報(特許文献25)、米国特許公報(特許文献26)および米国特許公報(特許文献27)には、芯のポリ(

10

20

30

40

50

ラクチド)層と、たとえば、脂肪族ポリエステルで構成される粘着低減層の内層および外層のある堆肥化可能な多層フィルムが開示されている。

【0072】

付加層として適した生分解性材料の一例には、本願明細書にて上述したブレンド用の代表的な生分解性材料がある。

【0073】

付加層として適した非生分解性ポリマー材料の一例には、スルホン化脂肪族芳香族コポリエステルとのブレンドに関して本願明細書にて上述した代表的な非生分解性ポリマー材料がある。

【0074】

付加層として適した天然ポリマー材料の一例には、本願明細書にて上述したスルホン化脂肪族芳香族コポリエステルとのブレンド用の天然ポリマーがある。

【0075】

フィルムをどのようにして形成するかとは関係なく、形成後に機械方向と横方向の両方に延伸して二軸配向することができる。縦方向への延伸は、フィルムを伸ばして巻き取るだけでフィルムの形成時に開始される。この過程で、繊維の一部が配向してフィルムは常に巻き取り方向に配向される。これによってフィルムは縦方向に補強されるが、繊維がすべて同じ方向に配向されるため、フィルムは直角方向に簡単に破れるようになる。二軸配向フィルムでは、引っ張りとして知られる過程でフィルムを縦方向にさらに配向できる。

【0076】

二軸延伸では、繊維をフィルム面に平行に配向させるが、フィルム面内での繊維のランダムな配向はそのまま維持されるため、たとえば非配向フィルムと比べて、引張強度、可撓性、強靱性、収縮性が高くなる。互いに直角の2本の軸に沿ってフィルムを延伸させると望ましい。これにより、延伸方向への引張強度と弾性係数が高くなる。それぞれの方向への延伸量を実質的に等しくすることで、どの方向から試験したときにもフィルム内で同様の特性および/または挙動を得るようにすると最も望ましい。しかしながら、ラベルまたは接着剤や磁気テープなど、特定の収縮量または一方向にだけ強度を高くしておく方が好ましい用途といった特定の用途では、凹凸が必要になったり、フィルム繊維の一軸配向が必要になってくる。

【0077】

二軸配向は、従来技術において周知のどのようなプロセスで行ってもよい。しかしながら、幅出しが好ましい。材料を幅出しするというのは、その材料を縦方向に加熱すると同時に、または縦方向に加熱した後に横方向に加熱しながら延伸することを意味する。この配向は市販の設備で行うことができる。たとえば、西ドイツのブルックナーマシェンボー(Bruckner Maschinenbau)から適した設備を入手できる。このような設備のひとつの例では、延伸対象となるシートの縁をつぶして、適切な温度で速度を制御してシートの縁を分離して作業が行われる。たとえば、温度制御したボックスにフィルムを供給し、そのガラス転移点よりも高い温度まで加熱し、どちらかの側をテンターフックで掴むと同時に、延伸張力(長手方向の延伸)と拡幅張力(横方向の延伸)を加えることができる。一般に、延伸比3:1から4:1が利用される。あるいは(業務目的ではこの方が好ましい)、異なる速度で加速しながら回転する複数の加熱ロール間で押出フィルム原料の延伸が一連のステップで行われる、ブルックナー(Bruckner)から入手できるものなどの多段ロール延伸設備で、高い生産速度にて二軸延伸プロセスを連続的に行う。延伸温度と延伸速度を適切な組み合わせで用いる場合、単軸延伸は好ましくは約4から約20、一層好ましくは約4から約10である。延伸比については、未延伸フィルムに対する延伸フィルムの寸法比として定義される。

【0078】

一軸配向は、上述した二軸プロセスでフィルムを一方向にしか延伸しないか、ロードアイランド州プロビデンス(Providence)のマーシャルアンドウィリアムズカンパニー(Marshall and Williams Company)などのベンダ

10

20

30

40

50

ーから市販されているような縦方向調整装置（「MDO」）にフィルムを送ることで行えばよい。前記MDO装置には、装置に送られるフィルムの移動方向であるフィルムの縦方向に、フィルムを順次延伸して薄くする複数の延伸ローラが設けられている。

【0079】

好ましくは、延伸プロセスは、延伸速度の度合いに応じて、フィルム材料のガラス転移点よりも少なくとも10 高い温度で、かつ、好ましくはフィルム材料のビカー軟化温度未満、特にビカー軟化点よりも少なくとも10 低い温度で行われる。

【0080】

ダイの直径に対するフィルムバブルの直径の比として定義される膨張比（BUR）を調節することで、吹込成形フィルムオペレーション内で配向を高めることができる。たとえば、袋やラップの製造では通常はBURが1から5であると好ましい。しかしながら、これを縦方向および横方向に望まれる所望の特性バランスに合わせて変更できる。バランスのとれたフィルムでは、通常はBUR約3：1が適している。「破れやすい」すなわち一方方向に簡単に破れるフィルムにすることが望まれる場合は、通常はBURを1：1から約1.5：1にするのが好ましい。

【0081】

フィルムを延伸位置に保持し、急冷前に数秒加熱することで、収縮を制御することが可能である。この熱によって配向フィルムが安定するため、熱安定化温度よりも高い温度でのみ強制的に収縮させることができる。さらに、フィルムに対して、ローリング、圧延処理、コーティング、エンボス加工、印刷または従来技術において周知の他の一般的な仕上げ処理をほどこしてもよい。

【0082】

従来技術において周知の方法でフィルムを形成する上での上述した加工条件とパラメータは、個々のポリマー組成と所望の用途とに応じて当業者が実現できるものである。

【0083】

フィルムの特性は、ポリマーの組成、ポリマーの生成方法、フィルムの製造方法、フィルムを延伸または二軸配向用に処理したか否かなどの、いくつかの要因に左右されることになる。これらの要因は、たとえば、収縮、引張強度、破断点伸び、衝撃強さ、誘電強度および誘電定数、引張弾性率、耐薬品性、融点、熱変形温度などのフィルムの特性に影響する。

【0084】

上述したように、着色料、染料、UV安定剤および熱安定剤、酸化防止剤、可塑剤、潤滑剤、粘着防止剤、スリッパ剤などの特定の添加剤やフィラーをポリマー組成物に加えて、フィルムの特性をさらに調節してもよい。あるいは、上述したように、本発明のスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを1種または複数の他のポリマー材料とブレンドし、特定の特徴を改善してもよい。

【0085】

モス（Moss）に付与された米国特許公報（特許文献28）、ハフナー（Haffner）らに付与された米国特許公報（特許文献29）、マコーマック（McCormack）の（特許文献30）に開示されているように、必要であれば、フィルム、特に充填フィルムを微孔性に形成してもよい。微孔性フィルムの形成に関する詳しい開示については、たとえば、米国特許公報（特許文献31）、米国特許公報（特許文献32）、米国特許公報（特許文献11）に見出すことができる。従来技術において周知のように、充填フィルムの延伸によって細孔を形成してもよい。このようにすることで、フィルムを空気と水蒸気は通すが液体や微粒子は遮断するバリアとして機能させることができる。

【0086】

印刷性、表面のインク着肉性、接着性または他の望ましい特徴を強化するために、本発明のフィルムを、コロナ放電、化学処理、火炎処理などの従来の周知の二次成形オペレーションで処理してもよい。

【0087】

スルホン化脂肪族芳香族コポリエステルから作られるフィルムは、さまざまなエリアで有用である。たとえば、このフィルムは、使い捨てオムツ、失禁用ブリーフ、おりもの用パッド、生理用ナプキン、タンポン、タンポン用アプリケーター、乗物酔い用の袋、オムツカバー、個人用吸収性製品などの個人用衛生品の構成要素として有用である。また、このフィルムは、漏れを防ぐ水バリア性と体に馴染んで使用時に体の動きに合わせて伸びる強靱性とを兼ね備えている。使用後は、汚れた物品は正しく廃棄処理すれば生物堆肥化される。

#### 【 0 0 8 8 】

別の例として、スルホン化脂肪族芳香族コポリエステルから作られるフィルムは、マルチフィルム、種子覆い、種子の含まれる農業用マット（「シードテープ」）、生ごみや芝屑用の袋などの農業用の保護フィルムとして有用である。スルホン化脂肪族芳香族ポリエステルから作られるフィルムの別の使用例としては、接着テープ支持体、袋、袋のクロージャー、シーツ、瓶、カートン、集塵袋、柔軟仕上剤シート、衣装袋、業務用袋、ごみ袋、ごみ入れ用ライナー、堆肥袋、ラベル、タグ、枕カバー、ベッドライナー、差し込み便器用ライナー、包帯、箱、ハンカチ、ポーチ、ふき取り布、保護服、手術衣、外科用シート、外科用スポンジ、仮囲い（temporary enclosure）、仮サイディング材、人形、ふき取り布、テーブルクロスなどがあげられる。

#### 【 0 0 8 9 】

スルホン化脂肪族芳香族コポリエステルを含むフィルムの特に好ましい用途は、食品包装材、特にファーストフードの包装材である。食品包装材用途の具体例として、食品包装体、ストレッチ包装用フィルム、密閉シール、食品用の袋、スナック菓子用の袋、食料雑貨用の袋、カップ、トレイ、カートン、箱、瓶、箱枠、食品包装用フィルム、プリスターバック包装体、スキン包装材などがあげられる。

#### 【 0 0 9 0 】

本発明のフィルムに特に好ましい最終用途としてラップ材があげられる。ラップ材は、肉類や他の腐りやすい品物、特に、サンドイッチ、ハンバーガー、デザートの商品などのファーストフード品をくるむのに利用できる。望ましくは、ラップ材として利用される本発明のフィルムは、紙のような曲げ剛性がありながら、たとえばサンドイッチを包むのに使用しても破れない十分な強靱性、一度折り曲げられたり、包まれたり所望の形状にされたりした後で、ラップ材が自己の形状を維持し、自然に開いたりほどけたりすることのないデッドフォールド性、さらに必要な場合は、耐油性と、水分が凝縮されてフィルムで包装した食品に付くことのないようにしつつ防湿性を持たせる一定バランスの防湿性も持つなど、さまざまな物性を一定のバランスで兼ね備える。ラップ材の製造に用いられるフィルムは、表面が滑らかであっても模様が付いていてもよく、フィルムに模様を付けるには、エンボス加工、牽縮、キルチングなどのプロセスを利用すればよい。ラップ材には、たとえば、無機粒子、澱粉などの有機粒子、フィラーの組み合わせなどが充填されていてもよい。

#### 【 0 0 9 1 】

上記のフィルムをさらに処理し、容器などの別の望ましい物品を製造することもできる。たとえば、米国特許公報（特許文献 33）、米国特許公報（特許文献 34）、米国特許公報（特許文献 35）などに関示されているようにして、フィルムを熱成形することができる。本発明のフィルムは、たとえば、米国特許公報（特許文献 36）、米国特許公報（特許文献 37）、米国特許公報（特許文献 38）、米国特許公報（特許文献 35）に関示されているような真空スキン包装法によって、肉類などの食品を包装する機能を果たすこともできるものである。これらのフィルムを、後述するようにさらに支持体にラミネートしてもよい。

#### 【 0 0 9 2 】

本発明の別の態様は、本発明によるスルホン化脂肪族芳香族コポリエステルを支持体にコーティングすること、その製造プロセスならびに、そのフィルムから製造される物品に関する。このコーティングは、本発明のコポリエステルのポリマー溶液、分散液、ラテッ

クス、エマルジョンを、ロール塗り、塗布、噴霧、はけ塗りまたは流し込みプロセスで支持体に被覆した後、乾燥、本発明のコポリエステルと他の材料との同時押出、予備成形した支持体への粉体被覆あるいは、予備成形した支持体を本発明のコポリエステルと一緒に溶融／押出コーティングすることで製造できる。本発明のポリマー組成物は支持体の片面にコーティングしても両面にコーティングしてもよい。前記ポリマーをコーティングした支持体には、包装材、特に食品用の包装材などにおいて、また、使い捨てカップ、プレート皿、ボール、カトラリーとして、さまざまな用途がある。これらの用途の多くでは、コーティングの耐熱性が重要な要素のひとつになる。このため、生分解速度が速いだけでなく、耐熱性を良くするために融点とガラス転移点が高い方が望ましい。さらに、これらのコーティングは、水分、油分、酸素、二酸化炭素に対するバリア性が得られ、かつ引張強度が良好で破断点伸びが高いことが望まれている。

10

#### 【0093】

コーティングは、従来技術において周知のプロセスで、スルホン化脂肪族芳香族コポリエステルから製造できる。たとえば、薄層コーティングは、米国特許公報（特許文献13）および米国特許公報（特許文献39）に開示されているようなディップコーティング、たとえば、米国特許公報（特許文献40）、米国特許公報（特許文献41）、米国特許公報（特許文献42）、米国特許公報（特許文献43）、米国特許公報（特許文献44）、米国特許公報（特許文献45）に開示されているような支持体への押出、ブレード、パドル、エアナイフ、プリンティング、ダールグレン、グラビア、粉体被覆、噴霧または他の従来技術のプロセスで形成できる。コーティングはどのような厚さであってもよい。好ましくは、ポリマーコーティングは厚さが0.25mm（10ミル）以下であり、一層好ましくは約0.025mmから0.15mm（1ミルから6ミル）である。しかしながら、最大で厚さ約0.50mm（20ミル）以上など、これよりも厚いコーティングを形成することも可能である。

20

#### 【0094】

さまざまな支持体にフィルムを直接コーティングすることができる。スルホン化脂肪族芳香族コポリエステルからのコーティングは、溶液、分散、ラテックスまたはエマルジョンの流延、粉体被覆または予備成形した支持体への押出で形成されるものであると好ましい。

#### 【0095】

溶融押出で製造する場合よりも一貫してゲージが均一なコーティングを製造できる支持体への溶液流延によってコーティングを製造してもよい。溶液流延は、ポリマー顆粒、粉末などを、可塑剤、フィラー、ブレンド可能なポリマー材料または着色料などの所望のフォーミュラント（formulant）を含む好適な溶媒に溶解させることを含む。この溶液を濾過して汚染物または大きな粒子を除去し、スロットダイから移動している予備成形支持体に流延して押出物を形成した後、乾燥させ、ここで押出物を冷却させる。押出物の厚さは仕上がりコーティングの5から10倍である。このコーティングを押出コーティングの場合と同様にして仕上げればよい。同様に、ポリマー分散液およびエマルジョンについても同等のプロセスで支持体にコーティングすることができる。塗布装置を連続的に稼働させることで、織物、不織布、箔、紙、板紙、他のシート材料にコーティングを適用できる。「ドクターナイフ」などのコーティングナイフを利用すると、ローラによって移動する支持体にコーティング材を（水または有機媒体に加えた溶液、エマルジョンまたは分散液の形で）均一に塗布することができる。続いて、このコーティングを乾燥させる。あるいは、ポリマー溶液、エマルジョンまたは分散液を、支持体に対して噴霧、はけ塗り、ロール塗りまたは流し込みしてもよい。

30

40

#### 【0096】

たとえば、ポット（Pots）に付与された米国特許公報（特許文献13）および米国特許公報（特許文献39）には、水溶性支持体に水不溶性材料の溶液をコーティングすることが開示されている。米国特許公報（特許文献46）には、繊維性の支持体にポリマーエマルジョン溶液をコーティングするためのプロセスが開示されている。

50

## 【 0 0 9 7 】

スルホン化脂肪族芳香族コポリエステルを含むコーティングを、粉体被覆プロセスで支持体に適用してもよい。粉体被覆プロセスでは、粒度の細かい粉末の状態でコポリエステルを支持体にコーティングする。コーティングの対象となる支持体をコポリエステルの融解温度よりも高い温度まで加熱してもよく、支持体については、多孔性プレートを通して空気を通すことで流動化したコポリエステル粉末床に浸漬する。流動床は一般に加熱しないしておく。コポリエステルの層は高温の支持体表面に密着し、熔融してコーティングとなる。コーティング厚は約 0 . 0 0 5 インチから 0 . 0 8 0 インチ、( 0 . 1 3 から 2 . 0 0 mm ) の範囲であればよい。他の粉体被覆プロセスに、コーティングをほどこすまで支持体を加熱しないスプレーコーティングや、静電コーティングがある。たとえば、米国特許公報 ( 特許文献 4 7 )、米国特許公報 ( 特許文献 4 8 )、米国特許公報 ( 特許文献 4 9 )、米国特許公報 ( 特許文献 5 0 )、米国特許公報 ( 特許文献 5 1 ) に開示されているように、板紙容器に対して熱可塑性ポリマー粉末を静電的にスプレーコーティングすることができる。コーティング後に板紙容器を加熱すれば、ポリマー粉末が熔融してラミネートポリマーコーティングが形成される。スルホン化脂肪族芳香族ポリエステルのコーティングは、熔融した噴霧コポリエステルを板紙などの支持体にスプレーして適用することもできる。このようなプロセスは、たとえば、米国特許公報 ( 特許文献 5 2 )、米国特許公報 ( 特許文献 5 3 )、米国特許公報 ( 特許文献 5 4 ) に、ワックスコーティングについて開示されている。

10

## 【 0 0 9 8 】

複雑な形状の金属物品に、旋回焼結 ( *whirl sintering* ) プロセスでスルホン化脂肪族芳香族ポリエステルのフィルムをコーティングすることも可能である。ポリエステルの融点よりも高い温度まで加熱した物品を、空気の上昇流によって懸濁液中に保持したポリエステル粒子粉の流動床に導入し、焼結によってコーティングを金属に堆積させる。

20

## 【 0 0 9 9 】

コーティングについては、熔融コーティングプロセスまたは押出コーティングプロセスで形成すると好ましい。連続した長い物として出てくるコーティングをほどこした紙や板紙などの「エンドレス」製品の製造には押出が特に好ましい。押出では、ポリマー材料を、熔融ポリマーで得るかプラスチックペレットや顆粒状で得るかを問わず、流動化して均質にする。熱安定剤または UV 安定剤、可塑剤、フィラーおよび / またはブレンド可能なポリマー材料などの添加剤を押出時にポリマーに添加し、混合物を形成してもよい。続いて、この混合物を好適な形のダイに通し、所望のフィルム断面形状を形成する。押出力については、ピストンまたはラム ( ラム押出 ) で加えてもよいし、シリンダ内で動作する回転スクリー ( スクリー押出 ) で加えてもよい。シリンダは材料を加熱して可塑化する場合であり、材料はこのシリンダからダイを通して連続した流れの形で押し出される。一軸スクリー押出機、二軸スクリー押出機、多軸スクリー押出機が利用できる。異なる製品の製造には種類の異なるダイを用いる。一般に、押出コーティングには T 字形または「コートハンガー」ダイなどのスロットダイが用いられる。このようにして、幅と厚さの異なるフィルムを製造し、コーティング対象となる物体に直接押し出すことができる。薄い熔融初期フィルムの状態で押し出されたポリマーをダイから支持体表面まで引き落とし、ダイの真下に設けられたチルロールと圧力ロールの間のニップに送る。一般に、ニップロールは互いに協働する軸方向に平行な一対のロールであり、片方は表面がゴム製の圧力ロール、他方がチルロールである。一般に、コーティング対象となる支持体のコーティングがほどこされていない側を圧力ロールと、同じ支持体のポリマーがコーティングされた側をチルロールと接触させる。この 2 本のロールの圧力によって、フィルムを支持体に押し付ける。同時に、支持体を押出フィルムよりも高速に移動させ、フィルムを所望の厚さまで引き落とす。押出コーティングでは、押し出されたポリマー溶融物と支持体 ( 紙、箔、布帛、ポリマーフィルムなど ) とを一緒に圧力ロールで圧縮し、ポリマーを支持体に染み込ませて最大限に密着させる。続いて、クロムメッキをした水冷チルロールで熔融フィ

30

40

50



ルムを冷却する。コーティングを終えたら、支持体をスリッターに通して縁をトリミングし、コーティング済みの支持体が後から変形するのを防ぐように設計された好適な装置で引き取ることができる。

#### 【0100】

板紙へのポリエステルの押出コーティングについては、たとえば、米国特許公報（特許文献55）、米国特許公報（特許文献56）、米国特許公報（特許文献57）、米国特許公報（特許文献58）、米国特許公報（特許文献59）、米国特許公報（特許文献60）に開示されている。たとえば、ケーン（Kane）に付与された米国特許公報（特許文献55）には、事前にポリエステルをラミネートしてある板紙から機械的に製造される、オープン加熱可能なトレーの製造について開示されている。たとえば、チャフィ（Chaffey）らに付与された米国特許公報（特許文献61）には、ポリマーが両面にコーティングされた紙原料から作られるカップの製造について開示され、ビーバーズ（Beavers）らに付与された米国特許公報（特許文献40）には、特定のポリエステルを紙の支持体に押出コーティングすることが開示されている。

#### 【0101】

押出コーティングのさらに別の例として、斜交ヘッドから押し出されたポリマーフィルムでワイヤやケーブルにシースを直接形成することができる。

#### 【0102】

圧延プロセスを利用してポリマーラミネートを支持体に付してもよい。カレンダーでは、2本、3本、4本または5本の中空ロールがスチーム加熱または水冷用に配置されていることがある。一般に、圧延対象となるポリマーは、たとえばパンバリーミキサーなどのリボンカレンダーで軟化される。可塑剤などの他の成分も混合できる。軟化したポリマー組成物をローラ設置部に送り、絞り出してフィルムの形にする。必要があれば、先に形成した層の上に別のポリマー層を1層設けて厚みのある部分を形成してもよい（ダブルブライ）。織物または不織布または紙などの支持体を、フィルムが支持体に押圧されるようにカレンダーの最後の2本のロールを介して供給する。ラミネートの厚さは、カレンダーの最後の2本のロール間のギャップによって決まる。表面を光沢のある状態や艶消し状態、あるいはエンボス加工した状態にしてもよい。こうして得られたラミネートを冷却し、さらにはロールに巻き取ることができる。

#### 【0103】

多層フィルムを利用して、上記にて開示した二層、三層、多層フィルム構造など、コーティングまたはラミネートを支持体に形成することが可能である。多層には、コポリエステルの層と、同一および/または異なるポリマー（単数または複数）からなる1層または複数の付加層とを含み得る。多層フィルムの利点のひとつに、特定の特性をフィルムに合わせて使用上の重要な要件に対応できるようにしつつ、コストのかかる成分を外層に出してより大きな需要を満たすようにできることがある。前記多層複合材料構造は、同時押出、ディップコーティング、溶液コーティング、ブレード、パドル、エアナイフ、プリンティング、ダールグレン、グラビア、粉体被覆、噴霧または他の従来技術のプロセスで形成できる。通常、多層フィルムは押出流延プロセスで製造される。たとえば、ポリマーと任意の添加剤とを一樣な方法で加熱し、熔融材料を生成する。この熔融材料を同時押出アダプタに搬送し、ここで熔融材料同士を一緒にして多層同時押出構造を形成する。層状のポリマー材料を、開放された押出ダイを介して一般に約0.05インチ（0.13cm）から0.012インチ（0.03cm）の範囲である、あらかじめ定められたギャップに送り、支持体表面まで引き落とし、ダイの真下にあるチルロールと圧力ロールの間のニップに送る。この材料を、支持体の速度に基づいて意図したゲージ厚まで引き落とす。一次チルロールまたはキャスチングロールは一般に約15から55°C（60～130°F）の範囲の温度に維持される。典型的な引き落とし比の範囲は約5：1から約40：1である。付加層は、バリア層、接着剤層、粘着防止層として機能でき、あるいは他の目的で利用できる。さらに、たとえば、米国特許公報（特許文献19）および米国特許公報（特許文献20）に開示されているように、内層を充填して外層を未充填としてもよい。製造プロセス

は従来技術において周知であり、たとえば、米国特許公報（特許文献21）、米国特許公報（特許文献22）、米国特許公報（特許文献23）、米国特許公報（特許文献24）、米国特許公報（特許文献20）に開示されている。たとえば、E1 - アフランドイ（Afandi）ら、米国特許公報（特許文献25）、米国特許公報（特許文献26）および米国特許公報（特許文献27）には、芯のポリ（ラクチド）層と、たとえば、脂肪族ポリエステルで構成される粘着低減層の内層および外層のある堆肥化可能な多層フィルムが開示されている。たとえば、クーシパロ（Kuusipalo）らの（特許文献62）には、ポリ（ラクチド）と脂肪族芳香族ポリエステルなどの生分解性接着剤層とがコーティングされた紙および板紙が開示されている。

【0104】

10

前記付加層は、スルホン化脂肪族芳香族ポリエーテルエステルまたは生分解性であっても非生分解性であってもよい他のポリマー材料を含み得る。前記材料は、天然由来であってもよいし、天然由来で変性したものであっても合成したものであってもよい。

【0105】

付加層として適した生分解性材料の一例は、ブレンドで用いるものとして上記に開示されている。

【0106】

付加層として適した非生分解性ポリマー材料の一例は、ブレンドで用いるもの、あるいは付加層の形成用として本願明細書にて開示する上述した代表的な非生分解性ポリマー材料である。

20

【0107】

付加層として適した天然ポリマー材料の一例は、ブレンドで用いるものとして上記に開示されている。

【0108】

通常は、コーティングは厚さ約0.2から1.5ミルで適用され、より一般的には0.5から2ミルの範囲で適用される。支持体の厚さはさまざまに設定できるが、0.5から2.4ミルを超える厚さまでの範囲が一般的である。

【0109】

コーティングとの併用に適しているものとして、紙、板紙、厚紙、段ボール紙、Cellulophane（登録商標）などのセルロース、澱粉、プラスチックポリスチレン発泡体、ガラス、アルミニウムまたはスズの缶、金属箔などの金属、ポリマー発泡体、有機発泡体、無機発泡体、有機無機発泡体、ポリマーフィルムなどで作られる物品があげられる。好ましいのは、紙、板紙、厚紙、セルロース、澱粉などの生分解性支持体、無機発泡体および無機有機発泡体などの生物良性の支持体である。

30

【0110】

本発明の範囲内で支持体として適したポリマーフィルムは、本発明のポリエステルまたは生分解性であっても非生分解性であってもよい材料で構成できる。前記材料は、天然由来であってもよいし、天然由来で変性したものであっても合成したものであってもよい。

【0111】

支持体として適した生分解性材料の一例には、本願明細書にて上述した多層組成物の付加層形成用の代表的な生分解性材料がある。

40

【0112】

支持体として適した非生分解性ポリマー材料の一例には、ブレンドで用いるもの、あるいは付加層の形成用として本願明細書にて開示する上述した代表的な非生分解性ポリマー材料がある。

【0113】

支持体として適した天然ポリマー材料の一例には、ブレンド用あるいは付加層の形成用として本願明細書にて開示する上述した代表的な天然ポリマー材料がある。

【0114】

膨張させた澱粉や穀粒由来のものなどの有機発泡体を本発明で利用することができる。

50

このような材料は、たとえば、米国特許公報（特許文献63）、米国特許公報（特許文献64）、米国特許公報（特許文献65）、米国特許公報（特許文献66）、米国特許公報（特許文献67）、米国特許公報（特許文献68）、米国特許公報（特許文献69）、米国特許公報（特許文献70）、米国特許公報（特許文献71）、米国特許公報（特許文献72）に開示されている。前記材料の具体例としては、ヒドロキシプロピル化澱粉製品である、ニュージャージー州ブリッジウォーター（Bridgewater）のNational Starch Companyの製品EcoFoam（登録商標）ならびに、EnPac Company、a DuPont - Con Agra Companyの製品EnviroFil（登録商標）があげられる。

#### 【0115】

特定の好ましい有機無機発泡体に、たとえばアンダーセン（Andersen）らに付与された米国特許公報（特許文献73）に開示されているような、炭酸カルシウム、粘土、セメントまたは石灰岩が極めて無機的に充填され、ジャガイモ澱粉、トウモロコシ澱粉、ワキシートウモロコシ澱粉、米澱粉、コムギ澱粉またはタピオカなどの澱粉を主成分とするバインダーと少量の繊維とを有する気泡発泡体がある。発泡体を製造するには、石灰岩、ジャガイモ澱粉、繊維などの成分を水と合わせて混合してバターを形成した後、このバターを加熱した2つの金型間でプレスする。加熱時、バターに含まれる水分が蒸気になり、金型内の圧力が上昇する。これによって発泡製品が生成される。このようなプロセスを経て作られた、支持体に適した製品は、アースシェルパッケージングカンパニー（Earth Shell Packaging Company）から市販されている。代表的な発泡製品として、9インチのプレート皿、12オンスのボール、ヒンジ付サンドイッチ用容器やサラダ用容器（「クラムシェル」）があげられる。

#### 【0116】

有機発泡体、無機発泡体、有機無機発泡体の支持体に関してはさらに、たとえば、米国特許公報（特許文献68）、米国特許公報（特許文献74）、米国特許公報（特許文献75）、米国特許公報（特許文献76）、米国特許公報（特許文献77）、米国特許公報（特許文献78）、米国特許公報（特許文献79）、米国特許公報（特許文献80）、米国特許公報（特許文献81）、米国特許公報（特許文献82）、米国特許公報（特許文献83）、米国特許公報（特許文献84）、米国特許公報（特許文献85）、米国特許公報（特許文献86）、米国特許公報（特許文献87）、米国特許公報（特許文献88）、米国特許公報（特許文献89）、米国特許公報（特許文献90）、米国特許公報（特許文献91）、米国特許公報（特許文献92）、米国特許公報（特許文献93）、米国特許公報（特許文献94）、米国特許公報（特許文献95）、米国特許公報（特許文献96）、米国特許公報（特許文献97）、米国特許公報（特許文献98）、米国特許公報（特許文献99）、米国特許公報（特許文献100）、米国特許公報（特許文献101）、米国特許公報（特許文献102）、米国特許公報（特許文献103）、米国特許公報（特許文献104）、米国特許公報（特許文献105）、米国特許公報（特許文献106）、米国特許公報（特許文献107）、米国特許公報（特許文献108）、米国特許公報（特許文献109）、米国特許公報（特許文献110）、米国特許公報（特許文献111）、米国特許公報（特許文献112）、米国特許公報（特許文献113）、米国特許公報（特許文献114）、米国特許公報（特許文献115）、米国特許公報（特許文献116）、米国特許公報（特許文献117）、米国特許公報（特許文献118）、米国特許公報（特許文献119）、米国特許公報（特許文献120）、米国特許公報（特許文献121）、米国特許公報（特許文献122）、米国特許公報（特許文献123）、米国特許公報（特許文献124）、米国特許公報（特許文献125）、米国特許公報（特許文献126）、米国特許公報（特許文献127）、米国特許公報（特許文献128）、米国特許公報（特許文献129）、米国特許公報（特許文献130）、米国特許公報（特許文献131）、米国特許公報（特許文献132）、米国特許公報（特許文献133）、米国特許公報（特許文献134）、米国特許公報（特許文献135）、米国特許公報（特許文献136）、米国特許公報（特許文献137）、米国特許公報（特許文献138）にも開示されている。

10

20

30

40

50

## 【 0 1 1 7 】

コーティングプロセスを促進するために、コロナ放電、下塗剤などの化学処理、火炎処理、接着剤などを利用した従来の周知の二次成形オペレーションで支持体を処理していてもよい。支持体層にポリエチレンイミン (Adcote (登録商標) 313) またはスチレンアクリルラテックスの水溶液などで下塗り処理をほどこしてもよいし、米国特許公報 (特許文献59) および米国特許公報 (特許文献139) に開示されているように火炎処理してもよい。

## 【 0 1 1 8 】

支持体には、従来のコーティング技術または押出によって接着剤をコーティングしてもよい。好適な接着剤の具体例としては、糊、ゼラチン、カエシン (caesin)、澱粉、セルロースエステル、脂肪族ポリエステル、ポリ (アルカノエート)、脂肪族芳香族ポリエステル、スルホン化脂肪族芳香族ポリエステル、ポリアミドエステル、ロジン / ポリカプロラクトントリブロックコポリマー、ロジン / ポリ (エチレンアジペート) トリブロックコポリマー、ロジン / ポリ (エチレンスクシネート) トリブロックコポリマー、ポリ (ビニルアセテート)、ポリ (エチレン - コ - ビニルアセテート)、ポリ (エチレン - コ - エチルアクリレート)、ポリ (エチレン - コ - メチルアクリレート)、ポリ (エチレン - コ - プロピレン)、ポリ (エチレン - コ - 1 - ブテン)、ポリ (エチレン - コ - 1 - ペンテン)、ポリ (スチレン)、アクリル、Rhoplex (登録商標) N - 1031 (ロームアンドハースカンパニー (Rohm & Haas Company) から入手できるアクリルラテックス)、ポリウレタン、AS 390 (アドヒージャンシステムズインコーポレイテッド (Adhesion Systems, Inc.) 用の水性ポリウレタン接着剤ベース) と AS 316 (アドヒージャンシステムズインコーポレイテッド (Adhesion Systems, Inc.) から入手できる接着剤触媒)、Airflex (登録商標) 421 (架橋剤が配合された水を主成分とする酢酸ビニル接着剤)、スルホン化ポリエステルウレタン分散液 (バイエルコーポレーション (Bayer Corporation) から Dispercoll (登録商標) U - 54、Dispercoll (登録商標) U - 53、Dispercoll (登録商標) KA - 8756 として販売されているものなど)、非スルホン化ウレタン分散液 (レイコルドカンパニー (Reichold Company) の Aquathane (登録商標) 97949 および Aquathane (登録商標) 97959、エアプロダクツカンパニー (Air Products Company) の Flexthane (登録商標) 620 および Flexthane (登録商標) 630、BASF コーポレーション (BASF Corporation) の Luphen (登録商標) DDS 3418 および Luphen (登録商標) D 200A、ゼネカレジンズカンパニー (Zeneca Resins Company) の Neorez (登録商標) 9617 および Neorez (登録商標) 9437、マーキンサカンパニー (Merquinsa Company) の Quilastic (登録商標) DEP 170 および Quilastic (登録商標) 172、B.F. グッドリッチカンパニー (B.F. Goodrich Company) の Sancure (登録商標) 1601 および Sancure (登録商標) 815 など)、ウレタン - スチレンポリマー分散液 (エアプロダクツアンドケミカルズカンパニー (Air Products & Chemicals Company) の Flexthane (登録商標) 790 および Flexthane (登録商標) 791 など)、非イオン系ポリエステルウレタン分散液 (ゼネカレジンズカンパニー (Zeneca Resins Company) の Neorez (登録商標) 9249 など)、アクリル分散液 (ジャガーカンパニー (Jager Company) の Jagotex (登録商標) KEA - 5050 および Jagotex (登録商標) KEA 5040、B.F. グッドリッチカンパニー (B.F. Goodrich Company) の Hycar (登録商標) 26084、Hycar (登録商標) 26091、Hycar (登録商標) 26315、Hycar (登録商標) 26447、Hycar (登録商標) 26450 および Hycar (登録商標) 26373、ロームアンドハース

10

20

30

40

50

カンパニー (Rohm & Haas Company) の Rhoplex (登録商標) AC - 264、Rhoplex (登録商標) HA - 16、Rhoplex (登録商標) B - 60A、Rhoplex (登録商標) AC - 234、Rhoplex (登録商標) E - 358 および Rhoplex (登録商標) N - 619 など)、シラン化陰イオン系アクリレート - スチレンポリマー分散液 (BASF コーポレーション (BASF Corporation) の Acronal (登録商標) S - 710 およびスコットバーダーインコーポレイテッド (Scott Bader, Inc.) の Texigel (登録商標) 13 - 057)、陰イオン系アクリレート - スチレン分散液 (BASF コーポレーション (BASF Corporation) の Acronal (登録商標) 296D、Acronal (登録商標) NX 4786、Acronal (登録商標) S - 305D、Acronal (登録商標) S - 400、Acronal (登録商標) S - 610、Acronal (登録商標) S - 702、Acronal (登録商標) S - 714、Acronal (登録商標) S - 728 および Acronal (登録商標) S - 760、B.F. グッドリッチカンパニー (B.F. Goodrich Company) の Carbo-set (登録商標) CR - 760、ロームアンドハースカンパニー (Rohm & Haas Company) の Rhoplex (登録商標) P - 376、Rhoplex (登録商標) P - 308 および Rhoplex (登録商標) NW - 1715K、レイコルドケミカルズカンパニー (Reichold Chemicals Company) の Synthemul (登録商標) 40402 および Synthemul (登録商標) 40403、スコットバーダーインコーポレイテッド (Scott Bader Inc.) の Texigel (登録商標) 13 - 57 Texigel (登録商標) 13 - 034 および Texigel (登録商標) 13 - 031、エアプロダクツアンドケミカルズカンパニー (Air Products & Chemicals Company) の Vancryl (登録商標) 954、Vancryl (登録商標) 937 および Vancryl (登録商標) 989 など)、陰イオン系アクリレート - スチレン - アクリロニトリル分散液 (BASF コーポレーション (BASF Corporation) の Acronal (登録商標) S 886S、Acronal (登録商標) S 504 および Acronal (登録商標) DS 2285 X など)、アクリレート - アクリロニトリル分散液 (BASF コーポレーション (BASF Corporation) の Acronal (登録商標) 35D、Acronal (登録商標) 81D、Acronal (登録商標) B 37D、Acronal (登録商標) DS 3390 および Acronal (登録商標) V275 など)、塩化ビニル - エチレンエマルジョン (エアプロダクツアンドケミカルズインコーポレイテッド (Air Products and Chemicals Inc.) の Vancryl (登録商標) 600、Vancryl (登録商標) 605、Vancryl (登録商標) 610 および Vancryl (登録商標) 635 など)、ビニルピロリドン / スチレンコポリマーエマルジョン (ISP ケミカルズ (ISP Chemicals) の Pollectron (登録商標) 430 など)、カルボキシル化および非カルボキシル化酢酸ビニルエチレン分散液 (エアプロダクツアンドケミカルズインコーポレイテッド (Air Products and Chemicals Inc.) の Airflex (登録商標) 420、Airflex (登録商標) 421、Airflex (登録商標) 426、Airflex (登録商標) 7200 および Airflex (登録商標) A - 7216、ICI の Dur - o - set (登録商標) E150 および Dur - o - set (登録商標) E - 230 など)、酢酸ビニルホモポリマー分散液 (ICI の Resyn (登録商標) 68 - 5799 および Resyn (登録商標) 25 - 2828 など)、ポリ塩化ビニルエマルジョン (B.F. グッドリッチカンパニー (B.F. Goodrich Company) の Vycar (登録商標) 460x24、Vycar (登録商標) 460x6 および Vycar (登録商標) 460x58 など)、ポリフッ化ビニリデン分散液 (エルファトケム (Elf Atochem) の Kynar (登録商標) 32 など)、エチレンアクリル酸分散液 (モートンインターナショナル (M

orton International)のAdcote(登録商標) 50T4990およびAdcote(登録商標) 50T4983など)、ポリアミド分散液(ユニオンキャンプコーポレーション(Union Camp Corporation)のMicromid(登録商標) 121RC、Micromid(登録商標) 141L、Micromid(登録商標) 142LTL、Micromid(登録商標) 143LTL、Micromid(登録商標) 144LTL、Micromid(登録商標) 321RCおよびMicromid(登録商標) 632HPLなど)、陰イオン系カルボキシル化または非カルボキシル化アクリロニトリル-ブタジエン-スチレンエマルジョンおよびアクリロニトリルエマルジョン(B.F.グッドリッチ(B.F. Goodrich)のHycar(登録商標) 1552、Hycar(登録商標) 1562x107、Hycar(登録商標) 1562x117およびHycar(登録商標) 1572x64など)、スチレン由来の樹脂分散液(ヘラクレス(Hercules)のTacolyn(登録商標) 5001およびPiccotex(登録商標) LC-55WKなど)、脂肪族および/または芳香族炭化水素由来の樹脂分散液(エクソン(Exxon)のEscorez(登録商標) 9191、Escorez(登録商標) 9241およびEscorez(登録商標) 9271など)、スチレン-無水マレイン酸(アトケム(AttoChem)のSMA(登録商標) 1440 HおよびSMA(登録商標) 1000など)などと、それらの混合物があげられる。

#### 【0119】

いくつかの好ましい実施形態では、糊、ゼラチン、カゼインまたは澱粉などの生分解性接着バインダー層を支持体にコーティングすることができる。

#### 【0120】

これらの接着剤は、熔融プロセスあるいは、溶液、エマルジョン、分散液または他の周知のコーティングプロセスで適用できるものである。たとえば、米国特許公報(特許文献140)には、ポリエステルのトップフィルムと、アクリル酸、メタクリル酸またはエタクリル酸のエステルからなる中間層とを、板紙支持体上で同時押出することで製造したコーティング付き板紙が開示されている。米国特許公報(特許文献141)には、ポリエステル層とポリマー接着剤層とを板紙支持体上に同時押出するプロセスが開示されている。フジタ(Fujita)らに付与された米国特許公報(特許文献142)には、ポリエステルをオープン加熱可能な板紙に押出コーティングする際に接着剤を用いることが開示されている。ハフマン(Huffman)らに付与された米国特許公報(特許文献59)には、ポリエステル層をポリエチレンコート板紙の表面に押し出すことが開示されている。ポリエチレン層には、コロナ放電または火炎処理をほどこして接着性を高めるようにしてもよい。また、ハフマンらの特許には、ポリエチレン層の上にポリエステルを乗せ、ポリエチレン層とポリエステル層との間にBynel(登録商標)接着剤の同時押出結合層を挟んで、ポリエチレンと一緒に板紙に同時押出することで、コート構造を直接形成することも開示されている。

#### 【0121】

当業者であれば、ポリマーの組成とコーティングの形成に用いるプロセスに基づいて、適切なプロセスパラメータを特定できるであろう。従来技術において周知の方法でコーティングを形成する上での加工条件とパラメータは、特定のポリマー組成と所望の用途とに応じて当業者が容易に判断できるものである。

#### 【0122】

コーティングの特性は、ポリマーの組成、ポリマーの生成方法、コーティングの製造方法、製造時にコーティングを配向したか否かなどの、いくつかの要因に左右されることになる。これらの要因は、収縮、引張強度、破断点伸び、衝撃強さ、誘電強度および誘電定数、引張弾性率、耐薬品性、融点、熱変形温度などのコーティングの特性に影響する。

#### 【0123】

上述したように、着色料、染料、UV安定剤および熱安定剤、酸化防止剤、可塑剤、潤滑剤、粘着防止剤、スリッパ剤などの添加剤および/またはフィラーを加えて、コーティ

10

20

30

40

50

ングの特性をさらに調節してもよい。あるいは、上述したように、本発明のスルホン化脂肪酸族芳香族コポリエーテルエステルを１種または複数の他のポリマー材料とブレンドし、特定の特徴を改善してもよい。

【 0 1 2 4 】

支持体については、コーティングをほどこす前に特定の物品の形にしてもよいし、コーティング後に特定の物品の形にしてもよい。たとえば、プレス成形、真空成形または折り畳んで接着して所望の最終形状にする方法で、コーティング済みの平らな板紙から容器を製造できる。たとえば、米国特許公報（特許文献１４３）に開示されているように、コーティング済みの平らな板紙原料に熱と圧力を加えてトレーにすることができる。また、米国特許公報（特許文献４０）に開示されているように、上記のような板紙を真空成形して食品や飲料用の容器にすることもできる。コーティングの前または後で支持体から製造できる物品としては、たとえば、カトラリー、植木鉢、郵便用円筒、照明器具、灰皿、ゲーム板、食品容器、ファーストフード容器、カートン、箱、牛乳パック、果汁容器、飲料容器用キャリア、アイスクリーム容器、カップ、使い捨てコップ、ツーピースカップ、ひだ付きのワンピースカップ、コーンカップ、コーヒーカップ、蓋材、蓋、ストロー、カップの蓋、フライドポテト容器、ファーストフードの持ち帰り用の箱、包装材、支えの箱、菓子箱、化粧品箱、プレート皿、ボール、自動販売機用プレート皿、パイ皿、トレー、パンの受け皿、朝食用プレート皿、電子レンジ対応のディナー用トレー、「ＴＶ」ディナー用トレー、卵容器、食肉包装用大皿、カップまたは食品容器などの容器と一緒に１回使って捨てるタイプの使い捨てライナー、実質的に球形の物体、瓶、広口瓶、箱枠、皿、薬皿、仕切りなどの内側包装材、ライナー、アンカーパッド、隅の補強材、隅の保護材、クリアランスパッド、ヒンジ形のシート、トレー、漏斗、クッション材のほか、容器に入った物体を包装、保存、輸送、分配、取り分けまたは分注するのに用いられるその他の物体があげられる。

【 0 1 2 5 】

耐水性ポリマーをコーティングした紙や板紙は、食材用の包装材料に利用され、また使い捨て容器として利用されている。包装材で製品を保存する上で望ましい酸素、水蒸気、香気に対する気密性が得られる、コーティングポリマーならびにこれを含む多層膜コーティング構造が開発されている。

【 0 1 2 6 】

スルホン化脂肪酸族芳香族ポリエステルを含有するコーティングは、たとえば、使い捨てオムツ、失禁用ブリーフ、おりもの用パッド、生理用ナプキン、タンポン、タンポン用アプリケーションター、乗物酔い用の袋、オムツカバー、個人用吸収性製品などの個人用衛生品をはじめとする多種多様なエリアにおいて有用である。また、本発明のコーティングは、漏れを防ぐ優れた水バリア性と、簡単に体に馴染んで使用時に体の動きに合わせて伸びる高い強靱性とを兼ね備えている。使用後は、汚れた物品は正しく廃棄処理すればすみやかに生物堆肥化される。

【 0 1 2 7 】

別の例として、これらのコーティングは、マルチフィルム、種子覆い、種子の含まれる農業用マット（「シードテープ」）、生ごみや芝屑用の袋など、農業で用いられる保護フィルムとして有用である。さらに別の用途としては、接着テープ支持体、袋、袋のクロージャージャー、シート、瓶、カートン、集塵袋、柔軟仕上剤シート、衣装袋、業務用袋、ごみ袋、ごみ入れ用ライナー、堆肥袋、ラベル、タグ、枕カバー、ベッドライナー、差し込み便器用ライナー、包帯、箱、ハンカチ、ポーチ、ふき取り布、保護服、手術衣、外科用シート、外科用スポンジ、仮囲い、仮サイディング材、人形、ふき取り布、テーブルクロス用のコーティングがあげられる。

【 0 1 2 8 】

スルホン化脂肪酸族芳香族ポリエステルを含むコーティングの特に好ましい用途は、食品包装材、特にファーストフード用の包装材である。食品包装材用途の具体例として、ファーストフード包装体、ストレッチ包装用フィルム、密閉シール、食品用の袋、スナック菓

10

20

30

40

50

子用の袋、食料雑貨用の袋、カップ、トレー、カートン、箱、瓶、箱枠、食品包装用フィルム、プリスターパック包装体、スキン包装材、ヒンジ付サンドイッチ用容器やサラダ用容器（「クラムシェル」）などがあげられる。

#### 【0129】

スルホン化脂肪族芳香族ポリエステルを含むコーティングの特に好ましい最終用途のひとつに、ラップ材がある。ラップ材は、ポリマーコート紙から生成可能である。ラップ材は、肉類や他の腐りやすい品物、特に、サンドイッチ、ハンバーガー、デザートの商品などのファーストフード品をくるむのに利用できる。好ましくは、ラップ材として利用される本発明のコーティングは、紙のような曲げ剛性がありながら、食品を包むのに使用しても破れない十分な強靱性、一度折り曲げられたり、包まれたり所望の形状にされたりした後で、ラップ材が自己の形状を維持し、自然に開いたりほどけたりすることのない十分なデッドフォールド性、さらに必要な場合は耐油性と、包装した食品での水分の凝縮を回避する一定バランスの防湿性も持つなど、さまざまな物性を望ましいバランスで兼ね備える。ラップ材は表面が滑らかであっても模様が付いていてもよく、模様を付けるには、エンボス加工、牽縮、キルチングなどを利用すればよい。ラップ材には、たとえば、無機粒子、澱粉などの有機粒子、フィラーの組み合わせなどが充填されていてもよい。

10

#### 【0130】

本発明の範囲に包含されるのは、支持体上のスルホン化脂肪族芳香族ポリエステルのラミネート、その製造プロセスならびに、このラミネートから製造される物品である。上述したように調製される、スルホン化脂肪族芳香族ポリエステルを含むフィルムを、熱成形、真空熱成形、真空積層、加圧積層、メカニカル積層、スキン包装、接着積層などの周知のプロセスで、多種多様な支持体にラミネートすることができる。ラミネートは、ラミネーションの際に支持体に予備成形フィルムが付けられる点でコーティングと区別される。支持体にフィルムを加えてラミネート支持体を形成する前に、この支持体をプレート皿、カップ、ボール、トレーの形などの最終用途形材にしてもよいし、シートまたはフィルムなど、その後にもまだ成形される中間形材にしてもよい。フィルムを支持体に付けるには、たとえば加熱した結合ロールを利用して、熱および/または圧力を印加すればよい。一般的に言えば、温度および/または圧力を高くすればそれだけラミネートの結合強度または剥離強度を高めることができる。接着剤を用いる場合、この接着剤はホットメルト接着剤であっても溶剤ベースの接着剤であってもよい。上述したように、ラミネーションプロセスを促進するために、コロナ放電、下塗剤などの化学処理、火炎処理などを利用した従来の周知の二次成形オペレーションで本発明のフィルムおよび/または支持体を処理しておいてもよい。たとえば、米国特許公報（特許文献56）には、板紙にコロナ放電をほどこしてポリ（エチレンテレフタレート）フィルムのラミネーションプロセスを促進することが記載されている。クイック（Quick）らに付与された米国特許公報（特許文献143）には、紙原料への接着剤のラミネーションを助ける目的で、ポリエステルフィルムのコロナ処理を行うことが開示されている。たとえば、シルマー（Schirmer）に付与された米国特許公報（特許文献35）には、さまざまな吹込成形フィルム間の接着を助長するのにコロナ処理を利用することが開示されている。米国特許公報（特許文献144）および米国特許公報（特許文献145）には、ポリマーラミネーションプロセスでの接着を助ける目的で火炎処理を用いることが開示されている。サンドストーム（Sandstrom）らに付与された米国特許公報（特許文献139）には、特定のスチレン-アクリル材料からなる板紙支持体プライマーを利用して、ポリマーラミネートとの接着性を改善することが開示されている。

20

30

40

#### 【0131】

容器およびカートンとして利用される、ポリマーをコーティングまたはラミネートした紙や板紙の支持体を製造するプロセスは、たとえば、米国特許公報（特許文献146）、米国特許公報（特許文献147）、米国特許公報（特許文献148）、米国特許公報（特許文献149）、米国特許公報（特許文献150）、米国特許公報（特許文献151）、米国特許公報（特許文献152）、米国特許公報（特許文献153）、米国特許公報（特

50



許文献 154)、米国特許公報(特許文献 155)に開示されている。たとえば、ケーン(Kane)に付与された米国特許公報(特許文献 55)には、事前にポリエステルをラミネートしてある板紙から機械的に製造される、オープン加熱可能なトレーの製造について開示されている。たとえば、シュミット(Schmidt)に付与された米国特許公報(特許文献 156)には、紙カップにポリマーフィルムをラミネートすることが開示されている。たとえば、不織布にフィルムをラミネートすることが、米国特許公報(特許文献 29)および米国特許公報(特許文献 20)に開示されている。ポリエステルラミネート支持体の意図した用途に応じて、ラミネートを支持体の片面にほどこしてもよいし、両面にほどこしてもよい。

#### 【0132】

フィルムを平らな支持体にラミネートするには、加熱・加圧/ニップロールに通せばよい。プロセスによっては、熱成形から派生したプロセスを利用してフィルムを支持体にラミネートすることが可能である。それ自体、フィルムは真空積層、加圧積層、吹込積層、メカニカル積層などで支持体にラミネートできるものである。加熱するとフィルムは軟化し、特定形状の支持体の表面で延伸できるようになる。予備成形した支持体にポリマーフィルムを接着するためのプロセスは、たとえば、米国特許公報(特許文献 157)に開示されている。

#### 【0133】

真空積層では、フィルムを把持するか支持体に対して保持した上で、軟らかくなるまで加熱すればよい。続いて真空を印加し、軟化したフィルムが支持体の輪郭に沿って成形されて支持体にラミネートされるようにする。こうして形成されたラミネートを冷却する。冷却プロセスの間は、真空を維持しても維持しなくてもよい。真空積層は一般に、多孔性支持体のラミネーションに利用される。

#### 【0134】

カップ、深いボール、箱、カートンなど、深絞り成形が必要な支持体形材の場合は、プラグアシストを利用すればよい。このような支持体形材では、支持体形材の一番下すなわち底に達する前に軟化したフィルムが大幅に薄くなって、支持体形材の底には薄く弱いラミネートしか残らないことが多い。プラグアシストは、支持体形材のラミネーションが薄くなりすぎる部分にフィルム原料を多めに送る機械的な補助具である。プラグアシスト手法は、真空積層プロセスや加圧積層プロセスに適合できるものである。

#### 【0135】

予備成形した支持体にフィルムを積層するための真空積層プロセスが、たとえば、米国特許公報(特許文献 158)および米国特許公報(特許文献 159)に開示されている。たとえば、ノエル(Knoell)に付与された米国特許公報(特許文献 160)には、折り畳んだ板紙カートンへのフィルムの真空積層プロセスが開示されている。リー(Le)らに付与された米国特許公報(特許文献 161)には、プレート皿などの成形パルプ製品への熱可塑性フィルムの真空積層が開示されている。フォスター(Foster)らに付与された米国特許公報(特許文献 148)には、パルプの容器とフィルムとを予備加熱し、フィルムを押圧して支持体と接触させ、成形パルプ容器の支持体を介して真空を印加することで、予備成形した成形パルプ容器にポリ(エチレンテレフタレート)フィルムをラミネーションすることについて開示されている。プラグアシストを用いた真空積層プロセスも従来技術において周知である。ウーメルスドルフ(Wommelsdorf)らに付与された米国特許公報(特許文献 162)には、コーティングをほどこしたカップなど、このような深絞り成形ラミネート用のプロセスが開示されている。フォーラー(Faller)に付与された米国特許公報(特許文献 163)および米国特許公報(特許文献 164)には、このようなプロセスによる内張りをしたトレーの製造プロセスが開示されている。

#### 【0136】

真空積層とは対照的に、加圧積層では、ラミネーション時に負圧ではなく正圧をフィルムに印加することが含まれる。フィルムを把持し、軟らかくなるまで加熱した後、フィル

10

20

30

40

50

ムの支持体とは反対側から空気圧を印加してラミネート対象となる支持体の輪郭に合わせる。排気穴を設けて取り込まれた空気を逃がせるようにしておくか、より一層一般的には、空気を通す支持体にして支持体から空気が抜けるようにしておけばよい。ラミネートのほどこされた支持体が冷めてフィルムが固化したら、空気圧を開放して構わない。加圧積層を利用すると、真空積層の場合よりも製造サイクルを加速し、部品の輪郭をはっきりさせ、寸法制御をしやすくなることが多い。

【 0 1 3 7 】

予備成形支持体へのフィルムの加圧積層については、たとえば、米国特許公報（特許文献 1 6 5 ）および米国特許公報（特許文献 1 5 9 ）に開示されている。ウーメルスドルフ（Wommel s d o r f ）に付与された米国特許公報（特許文献 1 6 6 ）には、気体の温かな加圧流を利用して、紙カップなどの通気性容器に熱可塑性の箔を内張りするためのプロセスが開示されている。

10

【 0 1 3 8 】

メカニカル積層には、真空または空気圧を利用しないあらゆるラミネーション方法を含む。この方法では、本発明のフィルムを加熱した後、機械的に支持体に適用する。機械的な適用の例としては、金型または圧力ロールによるものがあげられる。

【 0 1 3 9 】

本発明に適した支持体としては、紙、板紙、厚紙、段ボール紙、C e l l o p h a n e（登録商標）などのセルロース、澱粉、プラスチックポリスチレン発泡体、ガラス、アルミニウムまたはスズの缶、金属箔などの金属、ポリマー発泡体、有機発泡体、無機発泡体、有機無機発泡体、ポリマーフィルムなどで作られる物品があげられる。好ましいのは、紙、板紙、厚紙、セルロース、澱粉などの生分解性支持体、無機発泡体および無機有機発泡体などの生物良性の支持体である。

20

【 0 1 4 0 】

支持体として適したポリマーフィルムは、本願明細書に開示のスルホン化脂肪族芳香族ポリエーテルエステルおよび／または生分解性であっても非生分解性であってもよい他のポリマー材料からなるものであるか、あるいはこれらを含むものであればよい。前記材料は、天然由来であってもよいし、天然由来で変性したものであっても合成したものであってもよい。

【 0 1 4 1 】

支持体として適した生分解性ポリマー材料と非生分解性ポリマー材料の一例については、コーティングに関して本願明細書にて上述されている。支持体として適した天然ポリマー材料の一例も、コーティングに関して本願明細書にて上述されている。

30

【 0 1 4 2 】

膨張させた澱粉や穀粒由来のものなどの有機発泡体を支持体として利用することができる。このような材料は、たとえば、米国特許公報（特許文献 6 3 ）、米国特許公報（特許文献 6 4 ）、米国特許公報（特許文献 6 5 ）、米国特許公報（特許文献 6 6 ）、米国特許公報（特許文献 6 7 ）、米国特許公報（特許文献 6 8 ）、米国特許公報（特許文献 6 9 ）、米国特許公報（特許文献 7 0 ）、米国特許公報（特許文献 7 1 ）、米国特許公報（特許文献 7 2 ）に開示されている。前記材料の具体例としては、ヒドロキシプロピル化澱粉製品である、ニュージャージー州ブリッジウォーター（B r i d g e w a t e r ）の N a t i o n a l S t a r c h C o m p a n y の製品 E c o F o a m（登録商標）ならびに、E n P a c C o m p a n y、a D u P o n t - C o n A g r a C o m p a n y の製品 E n v i r o F i l（登録商標）があげられる。

40

【 0 1 4 3 】

特に好ましい有機無機発泡体は、たとえばアンダーセン（A n d e r s e n ）らに付与された米国特許公報（特許文献 7 3 ）に開示されているような、炭酸カルシウム、粘土、セメントまたは石灰岩などの無機フィラーが充填され、ジャガイモ澱粉、トウモロコシ澱粉、ワキシートウモロコシ澱粉、米澱粉、コムギ澱粉、タピオカ澱粉などの澱粉を主成分とするバインダーと少量の繊維とを有する気泡発泡体である。これらの材料は、石灰岩、

50

ジャガイモ澱粉、繊維などの成分と水を合わせて混合し、バターを形成して製造される。支持体は、バターを加熱した2つの金型間でプレスして形成される。バターに含まれる水分が蒸気になり、金型内の圧力が上昇する。これによって発泡製品が生成される。前記プロセスで製造された製品は、アースシェルパッケージングカンパニー（Earth Shell Packaging Company）から市販されている。これらの製品としては、9インチのプレート皿、12オンスのボール、ヒンジ付サンドイッチ用容器やサラダ用容器（「クラムシェル」）があげられる。有機発泡体、無機発泡体および有機無機発泡体の支持体のさらに別の例は、上記にて開示されている。

#### 【0144】

ラミネーションの前に支持体を最終形状にすることができる。従来の成形プロセスのどれを利用してもよい。たとえば、成形パルプ支持体の場合、「精密成形」プロセス、「ダイ乾燥（die-drying）」プロセス、「クローズ乾燥（close-drying）」プロセスを利用できる。前記プロセスには、繊維状パルプを水性スラリーから金網を貼り付けた開口吸引金型に吸着させて実質的に仕上がり形状の輪郭形状に成形した後、水分を含むプリフォームを加熱したダイの逆型で圧着して乾燥させることが含まれる。このようなプロセスは、たとえば、米国特許公報（特許文献167）、米国特許公報（特許文献148）、米国特許公報（特許文献149）に開示されている。精密成形されたパルプ物品は、表面が極めて滑らかでアイロンをかけたような仕上がりであり、密度が高く硬質で硬いことが多い。このようなプロセスで製造される使い捨ての紙製プレート皿が、商標名Chinet（登録商標）でフタマキカンパニー（Huh tamaki Company）から販売されている。

#### 【0145】

成形パルプ支持体は、一般に知られている「自由乾燥（free-dried）」または「オープン乾燥（open-dried）」プロセスでも製造できる。自由乾燥プロセスには、繊維状パルプを水性スラリーから金網を貼り付けた開口吸引金型に吸着させて実質的に最終的な成形形状にした後、水分を含むプリフォームをコンベアに載せて加熱した乾燥オープン内をゆっくりと移動させるなど、水分を含むプリフォームを自由空間内で乾燥させることが含まれる。前記成形パルプ物品は、非圧密粘稠性、弾力のある柔らかさ、不揃いな繊維の手触りと見た目が特徴になることが多い。また、成形パルプ支持体は、たとえば米国特許公報（特許文献168）に開示されているように、自由乾燥プロセスすなわち何ら拘束や圧力のない状態で乾燥させて成形した後に「アフタープレス」することによっても製造できる。さらに、たとえば、米国特許公報（特許文献169）に記載されているような従来の他のプロセスでも製造できる。

#### 【0146】

ラミネート支持体については、プレス成形または折り畳みなどの周知の従来技術のプロセスで最終的な形状にすることができる。このようなプロセスは、たとえば、米国特許公報（特許文献55）、米国特許公報（特許文献170）、米国特許公報（特許文献149）に開示されている。たとえば、クイック（Quick）らに付与された米国特許公報（特許文献143）には、平らなポリエステルラミネート紙原料から圧力と熱を利用してトレイを製造することが開示されている。

#### 【0147】

ラミネートを形成するにあたって、コポリエーテルポリエステルフィルム、支持体またはフィルムと支持体に接着剤を塗布し、ラミネートの結合強度を高めるようにしてもよい。予備成形した支持体へのフィルムの接着剤ラミネーションについては、たとえば、米国特許公報（特許文献171）、米国特許公報（特許文献172）、米国特許公報（特許文献173）、米国特許公報（特許文献174）、米国特許公報（特許文献175）、米国特許公報（特許文献176）、米国特許公報（特許文献177）、米国特許公報（特許文献178）、米国特許公報（特許文献179）、米国特許公報（特許文献164）、米国特許公報（特許文献180）、米国特許公報（特許文献181）、米国特許公報（特許文献182）、米国特許公報（特許文献183）、米国特許公報（特許文献60）に開示さ

れている。シュミット (Schmidt) に付与された米国特許公報 (特許文献 156) には、紙カップへのポリマーフィルムのラミネーションにホットメルト接着剤を用いることが開示されている。ドロブシー (Dropsey) に付与された米国特許公報 (特許文献 184) には、プラスチックラミネート厚紙包装物品用の接着剤を用いることが開示されている。クイック (Quick) らに付与された米国特許公報 (特許文献 143) には、架橋可能な接着剤系で接着された平らなポリエステルラミネート板紙原料を圧力と熱で成形して板紙トレーを製造することが開示されている。マティーニ (Martini) らに付与された米国特許公報 (特許文献 185) には、同時押出した二層フィルムを接着剤で水溶性支持体にラミネーションすることについて開示されている。ガーディナー (Gardiner) に付与された米国特許公報 (特許文献 145) および米国特許公報 (特許文献 144) には、たとえばジュース容器を製造するためにポリエステルコート板紙とポリエチレンコート板紙との結合強度を高める目的で接着剤を用いることが開示されている。

10

#### 【0148】

フィルムに接着剤をコーティングするには、従来のコーティング技術または同時押出を利用すればよく、あるいは、支持体に接着剤をコーティングしたり、フィルムと支持体の両方に接着剤をコーティングしてもよい。

#### 【0149】

ラミネートを形成する上で有用な接着剤の具体例としては、コーティングを支持体に適用するためのものとして本願明細書にて上述した代表的な接着剤があげられる。

#### 【0150】

20

本発明のスルホン化脂肪族芳香族ポリエステルで構成されるラミネートは、さまざまなエリアで使い道がある。たとえば、このラミネートは、使い捨てオムツ、失禁用ブリーフ、おりもの用パッド、生理用ナプキン、タンポン、タンポン用アプリケーション、乗物酔い用の袋、オムツカバー、個人用吸収性製品などの個人用衛生品の構成要素として使い道がある。また、本発明のラミネートは、漏れを防ぐ優れた水バリア性と、簡単に体に馴染んで使用時に体の動きに合わせて伸びる高い強靱性とを兼ね備えている。使用後は、汚れた物品は正しく廃棄処理すればすみやかに生物堆肥化される。

#### 【0151】

別の例として、本発明のラミネートは、マルチフィルム、種子覆い、種子の含まれる農業用マット (「シードテープ」)、生ごみや芝屑用の袋など、農業で用いられる保護フィルムとして使い道がある。

30

#### 【0152】

本発明のラミネートの用途のさらに別の例としては、接着テープ支持体、袋、袋のクロージャー、シート、瓶、カートン、集塵袋、柔軟仕上剤シート、衣装袋、業務用袋、ごみ袋、ごみ入れ用ライナー、堆肥袋、ラベル、タグ、枕カバー、ベッドライナー、差し込み便器用ライナー、包帯、箱、ハンカチ、ポーチ、ふき取り布、保護服、手術衣、外科用シート、外科用スポンジ、仮囲い、仮サイディング材、人形、ふき取り布、テーブルクロス用のコーティングがあげられる。

#### 【0153】

スルホン化脂肪族芳香族ポリエステルを含むラミネートの特に好ましい用途としては、食品包装材、特にファーストフード用の包装材がある。食品包装材用途の具体例として、ファーストフード包装体、ストレッチ包装用フィルム、密閉シール、食品用の袋、スナック菓子用の袋、冷凍食品用容器、飲料カップまたはゴブレット、液状食材用のヒートシールをほどこしたカートン、使い捨て皿、使い捨て容器、食料雑貨用の袋、カップ、トレー、カートン、箱、瓶、箱枠、食品包装用フィルム、プリスターバック包装体、スキン包装材、ヒンジ付サンドイッチ用容器やサラダ用容器 (「クラムシェル」) などがあげられる。あたたかい飲み物用のカップでは、防水性ポリエステルを内面にだけコーティングしておくが好ましい。一方、冷たい飲み物用のカップでは、ポリエステルのカップの内面と外面の両方にコーティングして、カップの外面で水が凝縮するのを防ぐが好ましい。ヒートシールをほどこしたカートンでは、シール可能なポリエステルコーティングを容器の内面

40

50

と外面の両方に設けるのが好ましい。本発明のラミネートの特に好ましい最終用途にラップ材がある。このようなラップ材はポリマールミネート紙の形を取り得る。ラップ材は、肉類や他の腐りやすい品物、特に、サンドイッチ、ハンバーガー、デザートの商品などのファーストフード品をくるむのに利用できる。望ましくは、ラップ材として利用される本発明のラミネートは、紙のような曲げ剛性がありながら、たとえばサンドイッチを包むのに使用しても破れない十分な強靱性、一度折り曲げられたり、包まれたり所望の形状にされたりした後で、ラップ材が自己の形状を維持し、自然に開いたりほどけたりすることのないデッドフォールド性、さらに必要な場合は耐油性と、包装した食品での水分の凝縮を回避する一定バランスの防湿性も持つなど、望ましいバランスのとれた物性を提供する。ラップ材は表面が滑らかであっても模様が付いていてもよく、表面の模様はエンボス加工、牽縮、キルチングなどのプロセスで表面に付与できる。ラップ材には、たとえば、無機粒子、澱粉などの有機粒子、フィラーの組み合わせなどが充填されていてもよい。

10

#### 【0154】

##### 試験方法

特に明記しない限り、本願明細書に開示のすべての試験と測定に以下の方法を利用する。

#### 【0155】

示差走査熱量測定(DSC)をテューイーンスツルメント(TA Instruments)社の型番2920の装置で実施した。試料を窒素雰囲気にて20 /分の速度で300 まで加熱し、20 /分の速度でプログラム冷却して室温まで戻した後、20 /分の速度で300 まで再加熱した。後述する観察試料のガラス転移点(Tg)と結晶融点(Tm)は2回目の加熱時に得た。

20

#### 【0156】

固有粘度(IV)については、(非特許文献2)に定義されているとおりとした。IVは、50:50重量パーセントのトリフルオロ酢酸:ジクロロメタン酸溶媒系0.5g/100mLの濃度で、室温にてグッドイヤー(Goodyear) R-103B法を利用して求めた。

#### 【0157】

いずれも25 で毛細管粘度計にて測定した、硫酸80ppmを含有するヘキサフルオロイソプロパノール(HFIP)10mLにポリエステル試料0.6グラムを溶解した溶液の粘度と硫酸含有ヘキサフルオロイソプロパノール自体の粘度との比を、実験室相対粘度(LRV)とした。LRVは数字上IVと関連させることができる。この関係を利用する場合、「算出IV」が注目される。

30

#### 【0158】

生分解については、ISO 14855の方法「Determination of the ultimate aerobic biodegradability and disintegration of plastic materials under controlled composting conditions - Method by analysis of evolved carbon」に従って実施した。この試験には、バーミキュライトマトリクスで、都市固体廃棄物の有機画分から得られる安定した熟成堆肥からなる接種原に、試験対象となるポリマーの粉碎粉末を加え、標準条件下、58 + / - 2 に制御したインキュベーション温度で堆肥化することが含まれた。この試験を1種類のポリマー試料で行った。放出される二酸化炭素を利用して、生分解の程度を判断した。

40

#### 【0159】

(比較調製例CPE 1)

1.0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(508.48グラム)と、グルタル酸ジメチル(83.00グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(15.19グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(2.23グラム)と、酢酸ナトリウム(0.76グラム)と

50

、酢酸マンガン（ⅠⅠ）四水和物（0.2363グラム）と、三酸化アンチモン（ⅠⅠⅠ）（0.1902グラム）とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.5時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で1時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.5時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1時間攪拌した。無色の蒸留物77.2グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空（圧力100mTorr未満）下で3.4時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに54.6グラム回収し、固体生成物403.7グラムも回収した。

10

## 【0160】

試料の固有粘度を上述したようにして測定したところ、固有粘度（ⅠⅤ）が0.58dL/gであることが明らかになった。

## 【0161】

試料の示差走査熱量測定（DSC）分析を行った。ガラス転移点（T<sub>g</sub>）は開始温度47.6℃、中点温度50.4℃、終了温度53.1℃であることが明らかになった。結晶融点（T<sub>m</sub>）が214.9℃（28.0J/g）で観察された。

## 【0162】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。26.3日間の堆肥化の後、試料の7.5重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

20

## 【0163】

フィルムの特性を試験する前に、72F湿度50パーセントで40時間、フィルム試料の状態を調節した。エルメンドルフ引裂度をASTM 1922により求めた。グレース（Graves）引裂度をASTM D1004により求めた。破断時引張強度、引張弾性率、破断点伸び率パーセントをASTM D882により求めた。

## 【0164】

（比較調製例CPE 2）

1.0リットル容のガラスフラスコに、ビス（2-ヒドロキシエチル）テレフタレート（635.60グラム）と、グルタル酸ジメチル（2.05グラム）と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩（15.19グラム）と、トリス（2-ヒドロキシエチル）トリメリテート（2.23グラム）と、ポリエチレングリコール（平均分子量=1450、42.38グラム）と、酢酸ナトリウム（0.76グラム）と、酢酸マンガン（ⅠⅠ）四水和物（0.2363グラム）と、三酸化アンチモン（ⅠⅠⅠ）（0.1902グラム）とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.5時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で1.1時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.8時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1.0時間攪拌した。無色の蒸留物82.4グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空（圧力100mTorr未満）下で2.3時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに62.6グラム回収し、固体生成物423.6グラムも回収した。

30

40

## 【0165】

試料の固有粘度（ⅠⅤ）を上述したようにして測定したところ、ⅠⅤ0.61dL/gであることが明らかになった。

## 【0166】

試料の示差走査熱量測定（DSC）分析を行った。結晶融点（T<sub>m</sub>）が247.6℃（37.3J/g）で観察された。

50

## 【 0 1 6 7 】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。26.3日間の堆肥化の後、試料の9.8重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

## 【 0 1 6 8 】

(調製例 P E 1)

1.0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(508.48グラム)と、グルタル酸ジメチル(82.14グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(15.19グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(2.23グラム)と、ポリエチレングリコール(平均分子量 = 1450、42.38グラム)と、酢酸ナトリウム(0.76グラム)と、酢酸マンガ  
ン(II)四水和物(0.2363グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.1902グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180  
まで加熱した。180 に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌し  
ながら0.2時間かけて200 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ  
下で200 で1時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しな  
がら1.3時間かけて275 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ  
下で275 で1.2時間攪拌した。無色の蒸留物67.0グラムをこの加熱サイクルで  
集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275 で完全真空状態にした。得られた反  
応混合物を完全真空(圧力100 m t o r r 未満)下で3.2時間攪拌した。続いて、窒  
素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに68.2グラ  
ム回収し、固体生成物400.0グラムも回収した。

10

20

## 【 0 1 6 9 】

試料の実験室相対粘度(LRV)を上述したようにして測定したところ、LRV25.62であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.71 d L / gであった。

## 【 0 1 7 0 】

試料の示差走査熱量測定(DSC)分析を行った。ガラス転移点(Tg)は開始温度37.6、中点温度38.9、終了温度39.7 であることが明らかになった。広幅(b r o a d)結晶の融点(Tm)が206.6 (20.6 J / g)で観察された。

## 【 0 1 7 1 】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。26.5日間の堆肥化の後、試料の22.7重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

30

## 【 0 1 7 2 】

(調製例 P E 2)

250ミリリットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(99.15グラム)と、グルタル酸ジメチル(16.02グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(2.96グラム)と、ポリエチレングリコール(平均分子量 = 1000)(8.14グラム)と、酢酸マンガ  
ン(II)四水和物(0.042グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.034グラム)とを入れた。反  
応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180 まで加熱した。180 に達  
した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.4時間かけて20  
0 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200 で1.1時間  
攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら1.6時間かけて  
275 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275 で1.2  
時間攪拌した。無色の蒸留物9.67グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反  
応混合物を攪拌しながら275 で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空  
(圧力100 m t o r r 未満)下で4.0時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解  
除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに7.12グラム回収し、固体生成物  
100.54グラムも回収した。

40

## 【 0 1 7 3 】

50

試料の実験室相対粘度 (LRV) を上述したようにして測定したところ、LRV 26.32 であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.72 dL / g であった。

【0174】

試料の示差走査熱量測定 (DSC) 分析を行った。広幅結晶の融点 (Tm) が 169.0 (14.1 J / g) で観察された。

【0175】

(調製例 PE 3)

250ミリリットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(99.15グラム)と、グルタル酸ジメチル(16.02グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(2.96グラム)と、ポリ(エチレングリコール)(平均分子量=2000)(8.14グラム)と、酢酸マンガン(II)四水和物(0.042グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.034グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.3時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で1.1時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら1.3時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1.0時間攪拌した。無色の蒸留物7.60グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100 mtorr未満)下で1.8時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに12.08グラム回収し、固体生成物80.89グラムも回収した。

【0176】

試料の実験室相対粘度 (LRV) を上述したようにして測定したところ、LRV 34.54 であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.87 dL / g であった。

【0177】

試料の示差走査熱量測定 (DSC) 分析を行った。広幅結晶の融点 (Tm) が 190.0 (19.7 J / g) で観察された。

【0178】

(調製例 PE 4)

250ミリリットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(99.15グラム)と、グルタル酸ジメチル(16.02グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(2.96グラム)と、ポリ(エチレングリコール)-ブロック-ポリ(プロピレングリコール)-ブロック-ポリ(エチレングリコール)(ポリ(エチレングリコール)含有量10重量パーセント、CAS番号9003-11-6、平均分子量=1100)(8.14グラム)と、酢酸マンガン(II)四水和物(0.042グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.034グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.3時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で1.0時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら1.3時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1.0時間攪拌した。無色の蒸留物23.88グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100 mtorr未満)下で4.2時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに2.87グラム回収し、固体生成物81.78グラムも回収した。

【0179】



試料の実験室相対粘度 (LRV) を上述したようにして測定したところ、LRV 17.25 であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.56 dL/g であった。

【0180】

試料の示差走査熱量測定 (DSC) 分析を行った。広幅結晶の融点 (Tm) が 207.1 (27.0 J/g) で観察された。

【0181】

(調製例 PE 5)

250ミリリットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(99.15グラム)と、グルタル酸ジメチル(16.02グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(2.96グラム)と、ポリ(エチレングリコール)-ブロック-ポリ(プロピレングリコール)-ブロック-ポリ(エチレングリコール)(ポリ(エチレングリコール)含有量10重量パーセント、CAS番号9003-11-6、平均分子量=2000)(8.14グラム)と、酢酸マンガン(II)四水和物(0.042グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.034グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら1.0時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で1.0時間攪拌した。わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.5時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1.0時間攪拌した。無色の蒸留物10.93グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100m Torr未満)下で2.3時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに8.31グラム回収し、固体生成物87.70グラムも回収した。

【0182】

試料の実験室相対粘度 (LRV) を上述したようにして測定したところ、LRV 26.27 であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.72 dL/g であった。

【0183】

試料の示差走査熱量測定 (DSC) 分析を行った。広幅結晶の融点 (Tm) が 185.6 (6.5 J/g) で観察された。

【0184】

(調製例 PE 6)

1.0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(508.48グラム)と、グルタル酸ジメチル(82.14グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(15.19グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(2.23グラム)と、ポリエチレングリコール(平均分子量=1450、42.38グラム)と、酢酸ナトリウム(0.76グラム)と、酢酸マンガン(II)四水和物(0.2363グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.1902グラム)と、フジ(Fuji)シリカ310 P(27.88グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら1.1時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で1時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら1.5時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1時間攪拌した。無色の蒸留物68.40グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100m Torr未満)下で3.2時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに56.7グラム回収し、固体生成物48.2

． 9 グラムも回収した。

【 0 1 8 5 】

試料の実験室相対粘度 ( L R V ) を上述したようにして測定したところ、 L R V 1 2 . 8 5 であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、 0 . 4 8 d L / g であった。

【 0 1 8 6 】

試料の示差走査熱量測定 ( D S C ) 分析を行った。ガラス転移点 ( T g ) は開始温度 1 0 5 . 6 、中点温度 1 0 6 . 4 、終了温度 1 0 7 . 2 であることが明らかになった。結晶融点 ( T m ) が 2 0 3 . 9 ( 2 1 . 2 J / g ) で観察された。

【 0 1 8 7 】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。 2 6 . 5 日間の堆肥化の後、試料の 1 3 . 1 重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

【 0 1 8 8 】

( 調製例 P E 7 )

1 . 0 リットル容のガラスフラスコに、ビス ( 2 - ヒドロキシエチル ) テレフタレート ( 5 0 8 . 4 8 グラム ) と、グルタル酸ジメチル ( 8 2 . 1 4 グラム ) と、ジメチル 5 - スルホイソフタレートと、ナトリウム塩 ( 1 5 . 1 9 グラム ) と、トリス ( 2 - ヒドロキシエチル ) トリメリテート ( 2 . 2 3 グラム ) と、ポリエチレングリコール ( 平均分子量 = 1 4 5 0 、 4 2 . 3 8 グラム ) と、酢酸ナトリウム ( 0 . 7 6 グラム ) と、酢酸マンガ ( I I ) 四水和物 ( 0 . 2 3 6 3 グラム ) と、三酸化アンチモン ( I I I ) ( 0 . 1 9 0 2 グラム ) と、カオリン ( 2 7 . 8 8 グラム ) とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で 1 8 0 まで加熱した。 1 8 0 に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0 . 3 時間かけて 2 0 0 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 2 0 0 で 0 . 9 時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 2 . 0 時間かけて 2 7 5 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 2 7 5 で 0 . 8 時間攪拌した。無色の蒸留物 8 1 . 7 グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら 2 7 5 で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空 ( 圧力 1 0 0 m t o r r 未満 ) 下で 2 . 4 時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに 5 4 . 6 グラム回収し、固体生成物 4 7 3 . 3 グラムも回収した。

【 0 1 8 9 】

試料の実験室相対粘度 ( L R V ) を上述したようにして測定したところ、 L R V 2 3 . 2 6 であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、 0 . 6 7 d L / g であった。

【 0 1 9 0 】

試料の示差走査熱量測定 ( D S C ) 分析を行った。ガラス転移点 ( T g ) は開始温度 4 1 . 1 、中点温度 4 5 . 3 、終了温度 4 8 . 9 であることが明らかになった。結晶融点 ( T m ) が 2 0 3 . 5 ( 2 2 . 9 J / g ) で観察された。

【 0 1 9 1 】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。 2 6 . 5 日間の堆肥化の後、試料の 2 2 . 1 重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

【 0 1 9 2 】

( 調製例 P E 8 )

1 . 0 リットル容のガラスフラスコに、ビス ( 2 - ヒドロキシエチル ) テレフタレート ( 5 0 8 . 4 8 グラム ) と、グルタル酸ジメチル ( 8 2 . 1 4 グラム ) と、ジメチル 5 - スルホイソフタレートと、ナトリウム塩 ( 1 5 . 1 9 グラム ) と、トリス ( 2 - ヒドロキシエチル ) トリメリテート ( 2 . 2 3 グラム ) と、ポリエチレングリコール ( 平均分子量 = 1 4 5 0 、 4 2 . 3 8 グラム ) と、酢酸ナトリウム ( 0 . 7 6 グラム ) と、酢酸マンガ ( I I ) 四水和物 ( 0 . 2 3 6 3 グラム ) と、三酸化アンチモン ( I I I ) ( 0 . 1 9

10

20

30

40

50

0.2グラム)と、Cloisite 30B(27.88グラム、サザンクレイインコーポレイテッド(Southern Clay, Inc.)から入手、第4級アンモニウム獣脂誘導体(ビス(2-ヒドロキシエチル)-メチル-獣脂塩化アンモニウムでコーティングした天然モンモリロナイト粘土))とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら1.1時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で1時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら1.2時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1時間攪拌した。無色の蒸留物83.2グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100mtorr未満)下で2.8時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに51.4グラム回収し、固体生成物454.3グラムも回収した。

10

## 【0193】

試料の実験室相対粘度(LRV)を上記したようにして測定したところ、LRV24.42であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.69dL/gであった。

## 【0194】

試料の示差走査熱量測定(DSC)分析を行った。ガラス転移点(Tg)は開始温度35.3℃、中点温度35.5℃、終了温度35.9℃であることが明らかになった。結晶融点(Tm)が188.3℃(20.9J/g)で観察された。

20

## 【0195】

この試料に対して、上記したような生分解試験を行った。26.5日間の堆肥化の後、試料の24.2重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

## 【0196】

(調製例PE 9)

1.0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(508.48グラム)と、グルタル酸ジメチル(82.14グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(15.19グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(2.23グラム)と、ポリエチレングリコール(平均分子量=1450、42.38グラム)と、酢酸ナトリウム(0.76グラム)と、酢酸マンガン(II)四水和物(0.2363グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.1902グラム)と、Cloisite Na(27.88グラム、天然モンモリロナイト(montomorillonite)粘土であるサザンクレイ(Southern Clay)の製品)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.8時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で0.9時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.7時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で0.9時間攪拌した。無色の蒸留物91.8グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100mtorr未満)下で2.3時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに56.6グラム回収し、固体生成物445.1グラムも回収した。

30

40

## 【0197】

試料の実験室相対粘度(LRV)を上記したようにして測定したところ、LRV24.39であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.69dL/gであった。

## 【0198】

試料の示差走査熱量測定(DSC)分析を行った。第1の加熱サイクルでは、ガラス転

50

移点 (T<sub>g</sub>) は開始温度 46.0、中点温度 50.6、終了温度 53.2 であることが明らかになった。このガラス転移点は、DSC 実験の第 2 の加熱サイクルでは観察されなかった。DSC 実験の第 2 の加熱サイクルでは、結晶融点 (T<sub>m</sub>) が 209.8 (25.4 J/g) で観察された。

【0199】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。26.5 日間の堆肥化の後、試料の 22.7 重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

【0200】

(調製例 PE 10)

1.0 リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート (508.48 グラム) と、グルタル酸ジメチル (82.14 グラム) と、ジメチル 5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩 (15.19 グラム) と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート (2.23 グラム) と、ポリエチレングリコール (平均分子量 = 1450、42.38 グラム) と、酢酸ナトリウム (0.76 グラム) と、酢酸マンガ (II) 四水和物 (0.2363 グラム) と、三酸化アンチモン (III) (0.1902 グラム) と、Claytone 2000 (27.88 グラム、サザンクレイインコーポレイテッド (Southern Clay, Inc.))、親有機性スメクタイト粘土である製品) とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で 180 まで加熱した。180 に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0.6 時間かけて 200 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 200 で 0.9 時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 1.5 時間かけて 275 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 275 で 1.1 時間攪拌した。無色の蒸留物 62.6 グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら 275 で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空 (圧力 100 mtorr 未満) 下で 1.3 時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに 53.7 グラム回収し、固体生成物 509.2 グラムも回収した。

【0201】

試料の実験室相対粘度 (LRV) を上述したようにして測定したところ、LRV 28.59 であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.76 dL/g であった。

【0202】

試料の示差走査熱量測定 (DSC) 分析を行った。ガラス転移点 (T<sub>g</sub>) は開始温度 26.0、中点温度 28.2、終了温度 30.1 であることが明らかになった。結晶融点 (T<sub>m</sub>) が 181.2 (18.9 J/g) で観察された。

【0203】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。26.5 日間の堆肥化の後、試料の 26.5 重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

【0204】

(調製例 PE 11)

1.0 リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート (508.48 グラム) と、グルタル酸ジメチル (82.14 グラム) と、ジメチル 5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩 (15.19 グラム) と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート (2.23 グラム) と、ポリエチレングリコール (平均分子量 = 1450、42.38 グラム) と、酢酸ナトリウム (0.76 グラム) と、酢酸マンガ (II) 四水和物 (0.2363 グラム) と、三酸化アンチモン (III) (0.1902 グラム) と、Garamite 1958 (27.88 グラム、サザンクレイインコーポレイテッド (Southern Clay, Inc.))、鉱物混合物である製品) とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で 180 まで加熱した。180 に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 1.0

時間かけて200 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200 で1.0時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.67時間かけて275 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275 で1.0時間攪拌した。無色の蒸留物88.5グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275 で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100 m t o r r 未満)下で2.3時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに56.7グラム回収し、固体生成物436.6グラムも回収した。

【0205】

試料の実験室相対粘度(LRV)を上述したようにして測定したところ、LRV24.97であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.70 d L / gであった。

【0206】

試料の示差走査熱量測定(DSC)分析を行った。結晶融点(Tm)が208.6 (22.3 J / g)で観察された。

【0207】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。22.9日間の堆肥化の後、試料の13.6重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

【0208】

(調製例PE 12)

1.0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(508.48グラム)と、グルタル酸ジメチル(82.14グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(15.19グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(2.23グラム)と、ポリエチレングリコール(平均分子量=1450、42.38グラム)と、酢酸ナトリウム(0.76グラム)と、酢酸マンガン(II)四水和物(0.2363グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.1902グラム)と、Laponite RD(27.88グラム、サザンクレイインコーポレイテッド(Southern Clay, Inc.))、合成コロイド状粘土である製品)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180 まで加熱した。180 に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.4時間かけて200 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200 で0.8時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.9時間かけて275 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275 で1.3時間攪拌した。無色の蒸留物112.4グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275 で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100 m t o r r 未満)下で2.8時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに36.1グラム回収し、固体生成物425.0グラムも回収した。

【0209】

試料の実験室相対粘度(LRV)を上述したようにして測定したところ、LRV21.35であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.63 d L / gであった。

【0210】

試料の示差走査熱量測定(DSC)分析を行った。結晶融点(Tm)が217.5 (27.2 J / g)で観察された。

【0211】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。22.9日間の堆肥化の後、試料の10.0重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

【0212】

(調製例PE 13)

1.0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(508.48グラム)と、グルタル酸ジメチル(82.14グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(15.19グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(2.23グラム)と、ポリエチレングリコール(平均分子量=1450、42.38グラム)と、酢酸ナトリウム(0.76グラム)と、酢酸マンガン(II)四水和物(0.2363グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.1902グラム)と、Laponite RDS(27.88グラム、サザンクレイインコーポレイテッド(Southern Clay, Inc.))、無機ポリホスフェートペプタイザーを有する合成層状ケイ酸塩である製品)。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.2時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で1.1時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.8時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1.0時間攪拌した。無色の蒸留物111.3グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100mtorr未満)下で2.9時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに38.9グラム回収し、固体生成物450.6グラムも回収した。

10

## 【0213】

試料の実験室相対粘度(LRV)を上記したようにして測定したところ、LRV22.40であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.65dL/gであった。

20

## 【0214】

試料の示差走査熱量測定(DSC)分析を行った。結晶融点(Tm)が216.3(26.5J/g)で観察された。

## 【0215】

この試料に対して、上記したような生分解試験を行った。22.9日間の堆肥化の後、試料の10.1重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

## 【0216】

(調製例PE 14)

30

1.0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(508.48グラム)と、グルタル酸ジメチル(82.14グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(15.19グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(2.23グラム)と、ポリエチレングリコール(平均分子量=1450、42.38グラム)と、酢酸ナトリウム(0.76グラム)と、酢酸マンガン(II)四水和物(0.2363グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.1902グラム)と、Gelwhite L(27.88グラム、サザンクレイインコーポレイテッド(Southern Clay, Inc.))、白色ベントナイトから得たモンモリロナイト粘土である製品)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.8時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で1.1時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら1.7時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1.0時間攪拌した。無色の蒸留物57.1グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100mtorr未満)下で3.4時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに63.5グラム回収し、固体生成物522.0グラムも回収した。

40

## 【0217】

試料の固有粘度(IV)を上記したようにして測定したところ、固有粘度0.58dL

50

/ g であることが明らかになった。

【 0 2 1 8 】

試料の示差走査熱量測定 ( D S C ) 分析を行った。結晶融点 ( T m ) が 1 8 1 . 6 ( 1 7 . 2 J / g ) で観察された。

【 0 2 1 9 】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。22 . 9 日間の堆肥化の後、試料の 1 6 . 4 重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

【 0 2 2 0 】

( 調製例 P E 1 5 )

1 . 0 リットル容のガラスフラスコに、ビス ( 2 - ヒドロキシエチル ) テレフタレート ( 5 0 8 . 4 8 グラム ) と、グルタル酸ジメチル ( 8 2 . 1 4 グラム ) と、ジメチル 5 - スルホイソフタレートと、ナトリウム塩 ( 1 5 . 1 9 グラム ) と、トリス ( 2 - ヒドロキシエチル ) トリメリテート ( 2 . 2 3 グラム ) と、ポリエチレングリコール ( 平均分子量 = 1 4 5 0 、 4 2 . 3 8 グラム ) と、酢酸ナトリウム ( 0 . 7 6 グラム ) と、酢酸マンガ ( I I ) 四水和物 ( 0 . 2 3 6 3 グラム ) と、三酸化アンチモン ( I I I ) ( 0 . 1 9 0 2 グラム ) と、G e l w h i t e M A S 1 0 0 ( 2 7 . 8 8 グラム、サザンクレイインコーポレイテッド ( S o u t h e r n C l a y , I n c . ) 、白色スメクタイト粘土 ( ケイ酸アルミニウムマグネシウム ) である製品 ) 。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で 1 8 0 まで加熱した。1 8 0 に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0 . 3 時間かけて 2 0 0 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 2 0 0 で 1 . 1 時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0 . 7 時間かけて 2 7 5 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 2 7 5 で 1 . 1 時間攪拌した。無色の蒸留物 8 7 . 5 グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら 2 7 5 で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空 ( 圧力 1 0 0 m t o r r 未満 ) 下で 1 . 8 時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに 2 7 . 3 グラム回収し、固体生成物 5 2 4 . 3 グラムも回収した。

【 0 2 2 1 】

試料の実験室相対粘度 ( L R V ) を上述したようにして測定したところ、L R V 3 2 . 8 7 であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0 . 8 4 d L / g であった。

【 0 2 2 2 】

試料の示差走査熱量測定 ( D S C ) 分析を行った。ガラス転移点 ( T g ) は開始温度 2 6 . 0 、中点温度 2 8 . 2 、終了温度 3 0 . 1 であることが明らかになった。結晶融点 ( T m ) が 1 7 1 . 1 ( 1 . 2 J / g ) で観察された。

【 0 2 2 3 】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。22 . 9 日間の堆肥化の後、試料の 1 2 . 2 重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

【 0 2 2 4 】

( 調製例 P E 1 6 )

1 . 0 リットル容のガラスフラスコに、ビス ( 2 - ヒドロキシエチル ) テレフタレート ( 5 0 8 . 4 8 グラム ) と、グルタル酸ジメチル ( 8 2 . 1 4 グラム ) と、ジメチル 5 - スルホイソフタレートと、ナトリウム塩 ( 1 5 . 1 9 グラム ) と、トリス ( 2 - ヒドロキシエチル ) トリメリテート ( 2 . 2 3 グラム ) と、ポリエチレングリコール ( 平均分子量 = 1 4 5 0 、 4 2 . 3 8 グラム ) と、酢酸ナトリウム ( 0 . 7 6 グラム ) と、酢酸マンガ ( I I ) 四水和物 ( 0 . 2 3 6 3 グラム ) と、三酸化アンチモン ( I I I ) ( 0 . 1 9 0 2 グラム ) と、タルク ( 2 7 . 8 8 グラム ) とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で 1 8 0 まで加熱した。1 8 0 に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0 . 2 時間かけて 2 0 0 まで加熱した。得られ

た反応混合物をわずかな窒素パージ下で200 で0.9時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.7時間かけて275 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275 で1.0時間攪拌した。無色の蒸留物91.0グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275 で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空（圧力100 m t o r r 未満）下で3.2時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに49.6グラム回収し、固体生成物442.8グラムも回収した。

#### 【0225】

試料の実験室相対粘度（LRV）を上述したようにして測定したところ、LRV25.72であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.71 d L / gであった。

10

#### 【0226】

試料の示差走査熱量測定（DSC）分析を行った。結晶融点（Tm）が207.0 （19.2 J / g）で観察された。

#### 【0227】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。23.6日間の堆肥化の後、試料の26.6重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

#### 【0228】

（調製例PE 17）

20

1.0リットル容のガラスフラスコに、ビス（2-ヒドロキシエチル）テレフタレート（508.48グラム）と、グルタル酸ジメチル（82.14グラム）と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩（15.19グラム）と、トリス（2-ヒドロキシエチル）トリメリテート（2.23グラム）と、ポリエチレングリコール（平均分子量=1450、42.38グラム）と、酢酸ナトリウム（0.76グラム）と、酢酸マンガン（II）四水和物（0.2363グラム）と、三酸化アンチモン（III）（0.1902グラム）と、雲母（27.88グラム）とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180 まで加熱した。180 に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.5時間かけて200 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200 で1.1時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.8時間かけて275 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275 で1.2時間攪拌した。無色の蒸留物91.0グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275 で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空（圧力100 m t o r r 未満）下で2.4時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに53.1グラム回収し、固体生成物446.1グラムも回収した。

30

#### 【0229】

試料の実験室相対粘度（LRV）を上述したようにして測定したところ、LRV24.07であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.68 d L / gであった。

40

#### 【0230】

試料の示差走査熱量測定（DSC）分析を行った。ガラス転移点（Tg）は開始温度37.4 、中点温度38.1 、終了温度38.3 であることが明らかになった。結晶融点（Tm）が207.2 （19.9 J / g）で観察された。

#### 【0231】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。23.6日間の堆肥化の後、試料の18.0重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

#### 【0232】

（調製例PE 18）

50



1. 0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(508.48グラム)と、グルタル酸ジメチル(82.14グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(15.19グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(2.23グラム)と、ポリエチレングリコール(平均分子量=1450、42.38グラム)と、酢酸ナトリウム(0.76グラム)と、酢酸マンガン(II)四水和物(0.2363グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.1902グラム)と、エチレングリコール中炭酸カルシウムの50重量パーセントスラリー(55.76グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.2時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で0.9時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.8時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1.8時間攪拌した。無色の蒸留物100.6グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100m Torr未満)下で2.4時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに60.8グラム回収し、固体生成物455.0グラムも回収した。

#### 【0233】

試料の実験室相対粘度(LRV)を上記したようにして測定したところ、LRV25.13であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.70dL/gであった。

#### 【0234】

試料の示差走査熱量測定(DSC)分析を行った。結晶融点(T<sub>m</sub>)が209.1(23.4J/g)で観察された。

#### 【0235】

この試料に対して、上記したような生分解試験を行った。23.6日間の堆肥化の後、試料の18.3重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

#### 【0236】

(調製例PE 19)

1. 0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(508.48グラム)と、グルタル酸ジメチル(82.14グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(15.19グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(2.23グラム)と、ポリエチレングリコール(平均分子量=1450、66.46グラム)と、酢酸ナトリウム(0.76グラム)と、酢酸マンガン(II)四水和物(0.2363グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.1902グラム)と、エチレングリコール中炭酸カルシウムの50重量パーセントスラリー(58.31グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.6時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で0.8時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.8時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1.3時間攪拌した。無色の蒸留物95.9グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100m Torr未満)下で2.8時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに64.7グラム回収し、固体生成物484.1グラムも回収した。

#### 【0237】

試料の実験室相対粘度(LRV)を上記したようにして測定したところ、LRV19.97であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.61dL/gであった。

## 【 0 2 3 8 】

試料の示差走査熱量測定 ( D S C ) 分析を行った。結晶融点 ( T m ) が 2 0 6 . 9 ( 2 2 . 3 J / g ) で観察された。

## 【 0 2 3 9 】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。2 3 . 6 日間の堆肥化の後、試料の 1 7 . 4 重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

## 【 0 2 4 0 】

( 調製例 P E 2 0 )

1 . 0 リットル容のガラスフラスコに、ビス ( 2 - ヒドロキシエチル ) テレフタレート ( 4 0 6 . 7 8 グラム ) と、グルタル酸ジメチル ( 6 5 . 7 1 グラム ) と、ジメチル 5 - スルホイソフタレートと、ナトリウム塩 ( 1 2 . 1 5 グラム ) と、トリス ( 2 - ヒドロキシエチル ) トリメリテート ( 1 . 7 8 グラム ) と、ポリエチレングリコール ( 平均分子量 = 1 4 5 0 、 7 4 . 2 7 グラム ) と、酢酸ナトリウム ( 0 . 6 1 グラム ) と、酢酸マンガ ( I I ) 四水和物 ( 0 . 1 8 9 0 グラム ) と、三酸化アンチモン ( I I I ) ( 0 . 1 5 2 2 グラム ) と、エチレングリコール中炭酸カルシウムの 5 0 重量パーセントスラリー ( 4 8 . 8 6 グラム ) とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で 1 8 0 まで加熱した。1 8 0 に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0 . 3 時間かけて 2 0 0 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 2 0 0 で 1 . 0 時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0 . 8 時間かけて 2 7 5 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 2 7 5 で 1 . 1 時間攪拌した。無色の蒸留物 7 7 . 5 グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら 2 7 5 で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空 ( 圧力 1 0 0 m t o r r 未満 ) 下で 2 . 8 時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに 5 6 . 2 グラム回収し、固体生成物 4 2 5 . 0 グラムも回収した。

## 【 0 2 4 1 】

試料の実験室相対粘度 ( L R V ) を上述したようにして測定したところ、L R V 3 0 . 9 8 であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0 . 8 1 d L / g であった。

## 【 0 2 4 2 】

試料の示差走査熱量測定 ( D S C ) 分析を行った。結晶融点 ( T m ) が 2 0 4 . 9 ( 2 1 . 6 J / g ) で観察された。

## 【 0 2 4 3 】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。2 3 . 6 日間の堆肥化の後、試料の 9 . 6 重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

## 【 0 2 4 4 】

( 調製例 P E 2 1 )

1 . 0 リットル容のガラスフラスコに、ビス ( 2 - ヒドロキシエチル ) テレフタレート ( 5 0 8 . 4 8 グラム ) と、グルタル酸ジメチル ( 8 2 . 1 4 グラム ) と、ジメチル 5 - スルホイソフタレートと、ナトリウム塩 ( 1 5 . 1 9 グラム ) と、トリス ( 2 - ヒドロキシエチル ) トリメリテート ( 2 . 2 3 グラム ) と、ポリエチレングリコール ( 平均分子量 = 1 4 5 0 、 4 2 . 3 8 グラム ) と、酢酸ナトリウム ( 0 . 7 6 グラム ) と、酢酸マンガ ( I I ) 四水和物 ( 0 . 2 3 6 3 グラム ) と、三酸化アンチモン ( I I I ) ( 0 . 1 9 0 2 グラム ) と、水酸化カルシウム ( 2 . 6 6 グラム ) とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で 1 8 0 まで加熱した。1 8 0 に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0 . 2 時間かけて 2 0 0 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 2 0 0 で 1 . 3 時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 1 . 3 時間かけて 2 7 5 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 2 7 5 で 1 . 3 時間攪拌した。無色の蒸留物 7 0 . 0 グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しな

から 275 で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空（圧力 100 m t o r r 未満）下で 2.7 時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに 60.5 グラム回収し、固体生成物 404.7 グラムも回収した。

【0245】

試料の実験室相対粘度（LRV）を上記したようにして測定したところ、LRV 23.36 であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.67 d L / g であった。

【0246】

試料の示差走査熱量測定（DSC）分析を行った。結晶融点（Tm）が 206.5 （ 10 22.9 J / g ）で観察された。

【0247】

この試料に対して、上記したような生分解試験を行った。22.9 日間の堆肥化の後、試料の 17.6 重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

【0248】

（調製例 P E 22）

1.0 リットル容のガラスフラスコに、ビス（2-ヒドロキシエチル）テレフタレート（475.89 グラム）と、グルタル酸ジメチル（102.67 グラム）と、ジメチル 5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩（15.19 グラム）と、トリス（2-ヒドロキシエチル）トリメリテート（2.21 グラム）と、ポリエチレングリコール（平均分子 20 量 = 1450、42.16 グラム）と、酢酸ナトリウム（0.75 グラム）と、酢酸マンガ（I I）四水和物（0.2351 グラム）と、三酸化アンチモン（I I I）（0.1893 グラム）とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で 180 まで加熱した。180 に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0.2 時間かけて 200 まで加熱した。得られた反応混合物わずかな窒素パージ下で 200 で 1 時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 1.3 時間かけて 275 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 275 で 1 時間攪拌した。無色の蒸留物 72.5 グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら 275 で完全真空状態にした。得られた反応 30 混合物を完全真空（圧力 100 m t o r r 未満）下で 3.3 時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに 56.4 グラム回収し、固体生成物 413.7 グラムも回収した。

【0249】

試料の実験室相対粘度（LRV）を上記したようにして測定したところ、LRV 24.35 であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.69 d L / g であった。

【0250】

試料の示差走査熱量測定（DSC）分析を行った。ガラス転移点（Tg）は開始温度 3 1.1、中点温度 32.7、終了温度 34.2 であることが明らかになった。広幅 40 結晶の融点（Tm）が 196.0 （17.7 J / g）で観察された。

【0251】

この試料に対して、上記したような生分解試験を行った。26.5 日間の堆肥化の後、試料の 26.4 重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

【0252】

（調製例 P E 23）

1.0 リットル容のガラスフラスコに、ビス（2-ヒドロキシエチル）テレフタレート（380.71 グラム）と、グルタル酸ジメチル（82.14 グラム）と、ジメチル 5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩（12.16 グラム）と、トリス（2-ヒドロキシエチル）トリメリテート（1.77 グラム）と、ポリエチレングリコール（平均分子 50 量 = 1450、33.73 グラム）と、酢酸ナトリウム（0.60 グラム）と、酢酸マンガ

ン(ⅠⅠ)四水和物(0.1881グラム)と、三酸化アンチモン(ⅠⅠⅠ)(0.1514グラム)と、エチレングリコール中炭酸カルシウムの50重量パーセントスラリー(210.81グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.2時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物わずかな窒素パージ下で200℃で1時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら1.6時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1時間攪拌した。無色の蒸留物138.4グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100m Torr未満)下で2.1時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに60.3グラム回収し、固体生成物446.3グラムも回収した。

10

## 【0253】

試料の実験室相対粘度(LRV)を上記したようにして測定したところ、LRV23.09であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.66dL/gであった。

## 【0254】

試料の示差走査熱量測定(DSC)分析を行った。ガラス転移点(Tg)は開始温度99.3℃、中点温度101.5℃、終了温度103.7℃であることが明らかになった。結晶融点(Tm)が182.3℃(13.7J/g)で観察された。

20

## 【0255】

この試料に対して、上記したような生分解試験を行った。26.5日間の堆肥化の後、試料の21.2重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

## 【0256】

(調製例PE 24)

1.0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(443.27グラム)と、グルタル酸ジメチル(123.20グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(15.19グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(1.52グラム)と、ポリエチレングリコール(平均分子量=1450、41.94グラム)と、酢酸ナトリウム(0.75グラム)と、酢酸マンガ

ン(ⅠⅠ)四水和物(0.2339グラム)と、三酸化アンチモン(ⅠⅠⅠ)(0.1883グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.2時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物わずかな窒素パージ下で200℃で1時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら1.2時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1時間攪拌した。無色の蒸留物71.8グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100m Torr未満)下で4.1時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに55.7グラム回収し、固体生成物445.6グラムも回収した。

30

40

## 【0257】

試料の実験室相対粘度(LRV)を上記したようにして測定したところ、LRV19.91であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.61dL/gであった。

## 【0258】

試料の示差走査熱量測定(DSC)分析を行った。ガラス転移点(Tg)は開始温度27.2℃、中点温度28.2℃、終了温度28.3℃であることが明らかになった。広幅結晶の融点(Tm)が187.5℃(16.1J/g)で観察された。

## 【0259】

50

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。26.5日間の堆肥化の後、試料の29.9重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

【0260】

(調製例PE 25)

1.0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(310.29グラム)と、グルタル酸ジメチル(86.24グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(10.63グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(1.06グラム)と、ポリエチレングリコール(平均分子量=1450、29.36グラム)と、酢酸ナトリウム(0.53グラム)と、酢酸マンガ  
ン(II)四水和物(0.1637グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.1318グラム)と、エチレングリコール中炭酸カルシウムの50重量パーセントスラリー(38.63グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.4時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で1.0時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.6時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1.0時間攪拌した。無色の蒸留物60.4グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100mTorr未満)下で2.8時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに41.9グラム回収し、固体生成物308.9グラムも回収した。

【0261】

試料の実験室相対粘度(LRV)を上述したようにして測定したところ、LRV43.99であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、1.04dL/gであった。

【0262】

試料の示差走査熱量測定(DSC)分析を行った。広幅結晶の融点(T<sub>m</sub>)が184.4(17.3J/g)で観察された。

【0263】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。31日間の堆肥化の後、試料の10.8重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

【0264】

(調製例PE 26)

1.0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(310.29グラム)と、グルタル酸ジメチル(86.24グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(10.63グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(1.06グラム)と、ポリエチレングリコール(平均分子量=1450、29.36グラム)と、酢酸ナトリウム(0.53グラム)と、酢酸マンガ  
ン(II)四水和物(tetrahydrate)(0.1637グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.1318グラム)と、エチレングリコール中炭酸カルシウムの50重量パーセントスラリー(81.55グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.3時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で0.9時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.9時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1.3時間攪拌した。無色の蒸留物74.3グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100mTorr未満)下で2.2時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに47.0グラム回収し、固体生成物351.0グラムも回収

した。

【0265】

試料の実験室相対粘度 (LRV) を上述したようにして測定したところ、LRV 38.48 であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.94 dL / g であった。

【0266】

試料の示差走査熱量測定 (DSC) 分析を行った。第1の加熱サイクルでは、ガラス転移点 (T<sub>g</sub>) は開始温度 64.7、中点温度 71.0、終了温度 77.4 であることが明らかになった。このガラス転移点は、DSC 実験の第2の加熱サイクルでは観察されなかった。DSC 実験の第2の加熱サイクルでは、広幅結晶の融点 (T<sub>m</sub>) が 177.5 (16.2 J / g) で観察された。

10

【0267】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。31日間の堆肥化の後、試料の9.6重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

【0268】

(調製例 P E 27)

1.0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(310.29グラム)と、グルタル酸ジメチル(86.24グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(10.63グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(1.06グラム)と、ポリエチレングリコール(平均分子量 = 1450、29.36グラム)と、酢酸ナトリウム(0.53グラム)と、酢酸マンガン(II)四水和物(0.1637グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.1318グラム)と、エチレングリコール中炭酸カルシウムの50重量パーセントスラリー(183.48グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.2時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で0.9時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.9時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1.4時間攪拌した。無色の蒸留物118.3グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100 m t o r r 未満)下で1.3時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに50.3グラム回収し、固体生成物404.5グラムも回収した。

20

30

【0269】

試料の実験室相対粘度 (LRV) を上述したようにして測定したところ、LRV 23.80 であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.68 dL / g であった。

【0270】

試料の示差走査熱量測定 (DSC) 分析を行った。広幅結晶の融点 (T<sub>m</sub>) が 167.0 (11.0 J / g) で観察された。

40

【0271】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。31日間の堆肥化の後、試料の14.8重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

【0272】

(比較調製例 C P E 3)

1.0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(443.27グラム)と、DBE二塩基性エステル(コハク酸ジメチル:グルタル酸ジメチル:アジピン酸ジメチルを20:60:20モルパーセント)(123.20グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(15.19グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(0.20グラム)と、酢酸ナトリウム(

50

0.75グラム)と、酢酸マンガン(II)四水和物(0.2339グラム)と、TYZOR(登録商標)PC42有機チタン酸塩(チタン6.3重量パーセント、水50重量パーセントと、有機チタン酸塩複合体38.5重量パーセントと、無機亜リン酸化合物11.5重量パーセントとで構成される本願出願人の製品)(0.1248グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.2時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で1.1時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.8時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1.1時間攪拌した。無色の蒸留物77.3グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100m Torr未満)下で2.5時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに47.6グラム回収し、固体生成物415.2グラムも回収した。

10

#### 【0273】

試料の実験室相対粘度(LRV)を上記のようにして測定したところ、LRV19.64であることが明らかになった。この試料の固有粘度(IV)を計算したところ、0.60dL/gであった。

#### 【0274】

試料の示差走査熱量測定(DSC)分析を行った。広幅結晶の融点(T<sub>m</sub>)が186.9℃(8.9J/g)で観察された。

20

#### 【0275】

この試料に対して、上記のような生分解試験を行った。26.3日間の堆肥化の後、試料の13.0重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

#### 【0276】

(調製例PE 28)

1.0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(443.27グラム)と、DBE二塩基性エステル(コハク酸ジメチル:グルタル酸ジメチル:アジピン酸ジメチルを20:60:20モルパーセント)(123.20グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(15.19グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(0.20グラム)と、ポリ(エチレングリコール)(平均分子量1500)(41.94グラム)と、酢酸ナトリウム(0.75グラム)と、酢酸マンガン(II)四水和物(0.2339グラム)と、TYZOR(登録商標)PC42有機チタン酸塩(チタン6.3重量パーセント、水50重量パーセントと、有機チタン酸塩複合体38.5重量パーセントと、無機亜リン酸化合物11.5重量パーセントとで構成される本願出願人の製品)(0.1248グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.3時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で1.0時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.8時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1.0時間攪拌した。無色の蒸留物70.8グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100m Torr未満)下で2.9時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに49.3グラム回収し、固体生成物470.5グラムも回収した。

30

40

#### 【0277】

試料の実験室相対粘度(LRV)を上記のようにして測定したところ、LRV21.79であることが明らかになった。この試料の固有粘度(IV)を計算したところ、0.64dL/gであった。

50

## 【0278】

試料の示差走査熱量測定(DSC)分析を行った。広幅結晶の融点(T<sub>m</sub>)が182.5 (17.9 J/g)で観察された。

## 【0279】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。26.3日間の堆肥化の後、試料の31.6重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

## 【0280】

(調製例PE 29)

1.0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(443.27グラム)と、DBE二塩基性エステル(コハク酸ジメチル：グルタル酸ジメチル：アジピン酸ジメチルを20：60：20モルパーセント)(123.20グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(15.19グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(0.20グラム)と、ポリ(エチレングリコール)(平均分子量3400)(41.94グラム)と、酢酸ナトリウム(0.75グラム)と、酢酸マンガン(II)四水和物(0.2339グラム)と、TYZOR(登録商標) PC42有機チタン酸塩(チタン6.3重量パーセント、水50重量パーセントと、有機チタン酸塩複合体38.5重量パーセントと、無機亜リン酸化合物11.5重量パーセントとで構成される本願出願人の製品)(0.1248グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.2時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で1.0時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.9時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1.0時間攪拌した。無色の蒸留物67.3グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100m Torr未満)下で3.2時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに50.9グラム回収し、固体生成物466.1グラムも回収した。

## 【0281】

試料の実験室相対粘度(LRV)を上述したようにして測定したところ、LRV27.16であることが明らかになった。この試料の固有粘度(IV)を計算したところ、0.74dL/gであった。

## 【0282】

試料の示差走査熱量測定(DSC)分析を行った。広幅結晶の融点(T<sub>m</sub>)が178.0 (14.9 J/g)で観察された。

## 【0283】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。26.3日間の堆肥化の後、試料の36.7重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

## 【0284】

(調製例PE 30)

1.0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(443.27グラム)と、アジピン酸ジメチル(134.0グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(15.19グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(0.20グラム)と、ポリ(エチレングリコール)(平均分子量1500)(41.94グラム)と、酢酸ナトリウム(0.75グラム)と、酢酸マンガン(II)四水和物(0.2339グラム)と、TYZOR(登録商標) PC42有機チタン酸塩(チタン6.3重量パーセント、水50重量パーセントと、有機チタン酸塩複合体38.5重量パーセントと、無機亜リン酸化合物11.5重量パーセントとで構成される本願出願人の製品)(0.1248グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっく



りとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0.3 時間かけて 200 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 200 で 0.6 時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0.8 時間かけて 275 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 275 で 1.0 時間攪拌した。無色の蒸留物 96.2 グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら 275 で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空（圧力 100 m t o r r 未満）下で 3.3 時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに 37.5 グラム回収し、固体生成物 448.9 グラムも回収した。

#### 【0285】

10

試料の実験室相対粘度（LRV）を上述したようにして測定したところ、LRV 14.85 であることが明らかになった。この試料の固有粘度（IV）を計算したところ、0.51 d L / g であった。

#### 【0286】

試料の示差走査熱量測定（DSC）分析を行った。広幅結晶の融点（Tm）が 193.2（23.1 J / g）で観察された。

#### 【0287】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。26.3 日間の堆肥化の後、試料の 28.0 重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

#### 【0288】

20

（調製例 P E 31）

250 ミリリットル容のガラスフラスコに、ビス（2-ヒドロキシエチル）テレフタレート（114.03 グラム）と、DBA 二塩基酸（コハク酸：グルタル酸：アジピン酸の 20：60：20 モルパーセント混合物）（25.43 グラム）と、ジメチル 5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩（0.19 グラム）と、ポリ（エチレングリコール）（平均分子量 1500）（10.60 グラム）と、酢酸マンガン（II）四水和物（0.0591 グラム）と、酸化アンチモン（III）（0.0476 グラム）と、エチレングリコール中炭酸カルシウムの 50 重量パーセントスラリー（29.42 グラム）とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で 180 まで加熱した。180 に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0.5 時間かけて 200 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 200 で 1.3 時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 1.7 時間かけて 275 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 275 で 0.9 時間攪拌した。無色の蒸留物 21.8 グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら 275 で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空（圧力 100 m t o r r 未満）下で 2.8 時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに 13.8 グラム回収し、固体生成物 125.4 グラムも回収した。

30

#### 【0289】

試料の実験室相対粘度（LRV）を上述したようにして測定したところ、LRV 17.92 であることが明らかになった。この試料の固有粘度（IV）を計算したところ、0.57 d L / g であった。

40

#### 【0290】

試料の示差走査熱量測定（DSC）分析を行った。広幅結晶の融点（Tm）が 178.9（14.8 J / g）で観察された。

#### 【0291】

（調製例 P E 32）

1.0 リットル容のガラスフラスコに、ビス（2-ヒドロキシエチル）テレフタレート（287.48 グラム）と、グルタル酸ジメチル（100.62 グラム）と、ジメチル 5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩（10.63 グラム）と、トリス（2-ヒドロ

50

キシエチル)トリメリテート(1.06グラム)と、ポリエチレングリコール(平均分子量=1450、28.44グラム)と、酢酸ナトリウム(0.53グラム)と、酢酸マンガ(II)四水和物(0.1637グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.1318グラム)と、エチレングリコール中炭酸カルシウムの50重量パーセントスラリー(177.73グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素バージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素バージ下で反応混合物を攪拌しながら0.3時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物わずかな窒素バージ下で200℃で1時間攪拌した。続いて、わずかな窒素バージ下で反応混合物を攪拌しながら1.2時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素バージ下で275℃で1.4時間攪拌した。無色の蒸留物101.9グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100mtorr未満)下で1.5時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに54.7グラム回収し、固体生成物412.0グラムも回収した。

10

## 【0292】

試料の実験室相対粘度(LRV)を上記したようにして測定したところ、LRV31.44であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.82dL/gであった。

## 【0293】

試料の示差走査熱量測定(DSC)分析を行った。広幅結晶の融点(Tm)が155.5(13.4J/g)で観察された。この試料に対して、上記したような生分解試験を行った。31日間の堆肥化の後、試料の14.6重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

20

## 【0294】

(調製例PE 33)

1.0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(378.09グラム)と、グルタル酸ジメチル(164.27グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(15.19グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(0.67グラム)と、エチレングリコール(70.03グラム)と、ポリエチレングリコール(平均分子量=1450、41.94グラム)と、酢酸ナトリウム(0.75グラム)と、酢酸マンガ(II)四水和物(0.2339グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.1883グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素バージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素バージ下で反応混合物を攪拌しながら0.3時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素バージ下で200℃で0.9時間攪拌した。続いて、わずかな窒素バージ下で反応混合物を攪拌しながら1.8時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素バージ下で275℃で1.0時間攪拌した。無色の蒸留物104.5グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100mtorr未満)下で5.6時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに74.8グラム回収し、固体生成物454.0グラムも回収した。

30

40

## 【0295】

試料の実験室相対粘度(LRV)を上記したようにして測定したところ、LRV21.82であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.64dL/gであった。

## 【0296】

試料の示差走査熱量測定(DSC)分析を行った。広幅結晶の融点(Tm)が157.6(0.3J/g)で観察された。

## 【0297】

50

## (調製例 P E 34)

1. 0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(264.66グラム)と、グルタル酸ジメチル(114.99グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(10.63グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(1.06グラム)と、ポリエチレングリコール(平均分子量=1450、28.17グラム)と、酢酸ナトリウム(0.53グラム)と、酢酸マンガ(II)四水和物(0.1637グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.1318グラム)と、エチレングリコール中炭酸カルシウムの50重量パーセントスラリー(176.08グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.4時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で0.9時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.8時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1.1時間攪拌した。無色の蒸留物105.6グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100m Torr未満)下で1.5時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに51.5グラム回収し、固体生成物384.7グラムも回収した。

10

## 【0298】

試料の実験室相対粘度(LRV)を上記したようにして測定したところ、LRV27.73であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.75dL/gであった。

20

## 【0299】

試料の示差走査熱量測定(DSC)分析を行った。第1の加熱サイクルでは、ガラス転移点(Tg)は開始温度42.8℃、中点温度45.7℃、終了温度48.5℃であることが明らかになった。このTgは、DSC実験の第2の加熱サイクルでは観察されなかった。第2の加熱サイクルでは、広幅結晶の融点(Tm)が151.8℃(1.8J/g)で観察された。

## 【0300】

この試料に対して、上記したような生分解試験を行った。31日間の堆肥化の後、試料の19.5重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

30

## 【0301】

## (調製例 P E 35)

1. 0リットル容のガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(219.03グラム)と、グルタル酸ジメチル(143.74グラム)と、ジメチル5-スルホイソフタレートと、ナトリウム塩(10.63グラム)と、トリス(2-ヒドロキシエチル)トリメリテート(1.06グラム)と、ポリエチレングリコール(平均分子量=1450、27.64グラム)と、酢酸ナトリウム(0.53グラム)と、酢酸マンガ(II)四水和物(0.1637グラム)と、三酸化アンチモン(III)(0.1318グラム)と、エチレングリコール中炭酸カルシウムの50重量パーセントスラリー(172.78グラム)とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で180℃まで加熱した。180℃に達した後、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.6時間かけて200℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で200℃で1.0時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら0.8時間かけて275℃まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で275℃で1.4時間攪拌した。無色の蒸留物90.1グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら275℃で完全真空状態にした。得られた反応混合物を完全真空(圧力100m Torr未満)下で1.9時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに48.9グラム回収し、固体生成物384.7グラムも回収した。

40

50

## 【0302】

試料の実験室相対粘度 (LRV) を上述したようにして測定したところ、LRV 37.71 であることが明らかになった。この試料の固有粘度を計算したところ、0.93 dL / g であった。

## 【0303】

試料の示差走査熱量測定 (DSC) 分析を行った。第1の加熱サイクルでは、ガラス転移点 (Tg) は開始温度 46.6、中点温度 48.7、終了温度 50.9 であることが明らかになった。この Tg は、DSC 実験の第2の加熱サイクルでは観察されなかった。第2の加熱サイクルでは、小 (small) 結晶の融点 (Tm) が 138.5 (0.1 J / g) で観察された。

10

## 【0304】

この試料に対して、上述したような生分解試験を行った。31日間の堆肥化の後、試料の 28.3 重量パーセントが生分解されていることが明らかになった。

## 【0305】

(調製例 PE 36)

250ミリリットル容のガラスフラスコに、テレフタル酸ジメチル (66.02グラム) と、DBE 二塩基性エステル (コハク酸ジメチル: グルタル酸ジメチル: アジピン酸ジメチルを 20: 60: 20 モルパーセント) (24.03グラム) と、ジメチル 5 - スルホイソフタレートと、ナトリウム塩 (2.96グラム) と、1, 3 - プロパンジオール (60.88グラム) と、ポリ (テトラメチレングリコール) (平均分子量 2000) (5.00グラム) と、チタン (IV) イソプロポキシド (0.058グラム) とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で 180 まで加熱した。180 に達した後、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0.5 時間かけて 190 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 190 で 1.0 時間攪拌した。続いて、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0.4 時間かけて 200 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 200 で 1.0 時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 1.9 時間かけて 255 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 255 で 0.4 時間攪拌した。無色の蒸留物 28.5 グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら 255 で完全真空にした。得られた反応混合物を完全真空 (圧力 100 mtorr 未満) 下で 2.8 時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに 17.7 グラム回収し、固体生成物 95.9 グラムも回収した。

20

30

## 【0306】

試料の実験室相対粘度 (LRV) を上述したようにして測定したところ、LRV 30.23 であることが明らかになった。この試料の固有粘度 (IV) を計算したところ、0.79 dL / g であった。

## 【0307】

試料の示差走査熱量測定 (DSC) 分析を行った。結晶融点 (Tm) が 167.6 (29.9 J / g) で観察された。

40

## 【0308】

(調製例 PE 37)

250ミリリットル容のガラスフラスコに、テレフタル酸ジメチル (47.58グラム) と、DBE 二塩基性エステル (コハク酸ジメチル: グルタル酸ジメチル: アジピン酸ジメチルを 20: 60: 20 モルパーセント) (40.04グラム) と、ジメチル 5 - スルホイソフタレートと、ナトリウム塩 (1.48グラム) と、1, 3 - プロパンジオール (60.88グラム) と、ポリ (テトラメチレングリコール) (平均分子量 2000) (20.08グラム) と、カオリン (12.04グラム) と、チタン (IV) イソプロポキシド (0.062グラム) とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で 180 まで加熱した。180 に達した後、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪

50

拌しながら 0.4 時間かけて 190 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 190 で 1.0 時間攪拌した。続いて、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0.4 時間かけて 200 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 200 で 0.9 時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 2.0 時間かけて 255 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 255 で 0.6 時間攪拌した。無色の蒸留物 34.1 グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら 255 で完全真空にした。得られた反応混合物を完全真空（圧力 100 m t o r r 未満）下で 1.5 時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに 1.4 グラム回収し、固体生成物 85.5 グラムも回収した。

10

## 【0309】

試料の実験室相対粘度（LRV）を上述したようにして測定したところ、LRV 3.99 であることが明らかになった。この試料の固有粘度（IV）を計算したところ、0.32 d L / g であった。

## 【0310】

（調製例 P E 38）

250 ミリリットル容のガラスフラスコに、テレフタル酸ジメチル（66.70 グラム）と、アジピン酸ジメチル（25.61 グラム）と、ジメチル 5 - スルホイソフタレートと、ナトリウム塩（2.52 グラム）と、1, 2, 4, 5 - ベンゼンテトラカルボン酸二無水物（ピロメリト酸二無水物、PMDA）（0.22 グラム）と、1, 4 - ブタンジオール（72.10 グラム）と、ポリ（エチレングリコール）（平均分子量 1500）（15.00 グラム）と、チタン（IV）イソプロポキシド（0.062 グラム）とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で 180 まで加熱した。180

20

に達した後、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0.4 時間かけて 190 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 190 で 1.0 時間攪拌した。続いて、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0.6 時間かけて 200 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 200 で 1.0 時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 1.6 時間かけて 255 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 255 で 0.9 時間攪拌した。無色の蒸留物 44.0 グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら 255 で完全真空にした。得られた反応混合物を完全真空（圧力 100 m t o r r 未満）下で 2.0 時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに 2.8 グラム回収し、固体生成物 113.4 グラムも回収した。

30

## 【0311】

試料の実験室相対粘度（LRV）を上述したようにして測定したところ、LRV 45.69 であることが明らかになった。この試料の固有粘度（IV）を計算したところ、1.07 d L / g であった。

## 【0312】

試料の示差走査熱量測定（DSC）分析を行った。結晶融点（Tm）が 167.8 （20.9 J / g）で観察された。

40

## 【0313】

（調製例 P E 39）

250 ミリリットル容のガラスフラスコに、テレフタル酸ジメチル（66.02 グラム）と、DBE 二塩基性エステル（コハク酸ジメチル：グルタル酸ジメチル：アジピン酸ジメチルを 20：60：20 モルパーセント）（24.03 グラム）と、ジメチル 5 - スルホイソフタレートと、ナトリウム塩（3.40 グラム）と、1, 4 - ブタンジオール（72.10 グラム）と、ポリ（テトラメチレングリコール）（平均分子量 2000）（2.08 グラム）と、チタン（IV）イソプロポキシド（0.062 グラム）とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で 180 まで加熱した。180 に達

50

した後、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0.3 時間かけて 190 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 190 で 1.0 時間攪拌した。続いて、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0.4 時間かけて 200 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 200 で 1.1 時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 1.8 時間かけて 255 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 255 で 0.5 時間攪拌した。無色の蒸留物 49.9 グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら 255 で完全真空にした。得られた反応混合物を完全真空（圧力 100 m t o r r 未満）下で 3.1 時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに 0.4 グラム回収し、固体生成物 99.9 グラムも回収した。

10

#### 【0314】

試料の実験室相対粘度（LRV）を上述したようにして測定したところ、LRV 9.50 であることが明らかになった。この試料の固有粘度（IV）を計算したところ、0.42 d L / g であった。

#### 【0315】

試料の示差走査熱量測定（DSC）分析を行った。結晶融点（Tm）が 171.9 （27.6 J / g）で観察された。

#### 【0316】

（調製例 P E 40）

20

250 ミリリットル容のガラスフラスコに、テレフタル酸ジメチル（47.58 グラム）と、DBE 二塩基性エステル（コハク酸ジメチル：グルタル酸ジメチル：アジピン酸ジメチルを 20：60：20 モルパーセント）（40.04 グラム）と、ジメチル 5 - スルホイソフタレートと、ナトリウム塩（1.48 グラム）と、1,4 - ブタンジオール（72.10 グラム）と、ポリ（テトラメチレングリコール）（平均分子量 2000）（20.08 グラム）と、シリカ（12.04 グラム）と、チタン（IV）イソプロポキシド（0.062 グラム）とを入れた。反応混合物を攪拌し、ゆっくりとした窒素パージ下で 180 まで加熱した。180 に達した後、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0.3 時間かけて 190 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 190 で 1.0 時間攪拌した。続いて、ゆっくりとした窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0.1 時間かけて 200 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 200 で 1.1 時間攪拌した。続いて、わずかな窒素パージ下で反応混合物を攪拌しながら 0.6 時間かけて 255 まで加熱した。得られた反応混合物をわずかな窒素パージ下で 255 で 0.5 時間攪拌した。無色の蒸留物 37.9 グラムをこの加熱サイクルで集めた。続いて、反応混合物を攪拌しながら 255 で完全真空にした。得られた反応混合物を完全真空（圧力 100 m t o r r 未満）下で 3.6 時間攪拌した。続いて、窒素を供給して真空を解除し、反応マスを室温まで冷ました。蒸留物をさらに 13.6 グラム回収し、固体生成物 120.1 グラムも回収した。

30

#### 【0317】

試料の実験室相対粘度（LRV）を上述したようにして測定したところ、LRV 13.98 であることが明らかになった。この試料の固有粘度（IV）を計算したところ、0.50 d L / g であった。

40

#### 【0318】

試料の示差走査熱量測定（DSC）分析を行った。結晶融点（Tm）が 115.9 （12.1 J / g）で観察された。

#### 【0319】

比較例 C E 1

B i o m a x （登録商標） 6926（本願出願人の市販品）を、100 C にて 8 時間、-40 の露点までホッパードライヤーで乾燥させた。続いて、この材料を 1 時間あたり 20 ポンドの速度でデービススタンダード（D a v i s S t a n d a r d）社の 1.

50

5 インチ径単軸押出機（スクリュウの L / D 2 4 : 1、型番 D S - 1 5 H）の供給セクションに供給した。押出機の条件と温度プロファイルを以下に示す。次に、キリオン社（K i l l i o n）の 3 本ロールスタック式シートラインに、以下に示す条件と温度プロファイルで溶融ポリマーを供給した。

【 0 3 2 0 】

押出機ゾーン 1 の温度（供給セクション）：4 1 0 ° F

押出機ゾーン 2 の温度：4 4 5 ° F

押出機ゾーン 3 の温度：4 4 5 ° F

押出機ゾーン 4（フロント）の温度：4 3 0 ° F

フランジ：4 4 5 ° F

パイプ：4 4 5 ° F

フランジ：4 4 5 ° F

金型温度：4 3 0 ° F

金型リップ：4 3 0 ° F

融点：4 4 7 ° F

押出機アンペア（A m p s）：3 . 4

押出機 R P M：5 0

チルロール頂部温度：7 0 ° F

チルロール中部温度：7 0 ° F

チルロール底部温度：7 0 ° F

フィルム引取速度：2 7 5 インチ / 分

【 0 3 2 1 】

幅 8 インチ、厚さ 0 . 0 0 3 インチ（3 ミル）のフィルムを生成した。生成時のままのフィルムの状態を、7 2 F、湿度 5 0 % で 4 0 時間、調節した。状態調節後のフィルムのエルメンドルフ引裂度を A S T M 試験法 1 9 2 2 により試験したところ、縦方向（M D）に 1 4 g / ミル、横方向（T D）に 1 4 g / ミルであることが分かった。この状態調節後のフィルムのグレース引裂度を A S T M 試験法 D 1 0 0 4 により試験した（クロスヘッド引裂速度 0 . 5 インチ / 分）ところ、縦方向に 0 . 7 8 ポンド / ミル、横方向に 0 . 8 1 ポンド / ミルであることが分かった。また、状態調節後のフィルムの引張弾性率を A S T M 試験法 D 8 8 2 により試験したところ、縦方向に 2 4 8 , 7 6 8 p s i、横方向に 2 8 2 , 7 8 2 p s i であることが分かった。状態調節後のフィルムの破断時引張強度を A S T M 試験法 D 8 8 2 で試験した（クロスヘッド速度 2 0 インチ / 分）ところ、縦方向に 3 2 9 1 p s i、横方向に 5 6 3 4 p s i であることが分かった。状態調節後のフィルムの破断点伸び率パーセントを A S T M 試験法 D 8 8 2 により試験したところ、縦方向に 4 0 4 パーセントであることが分かった。横方向の伸び率パーセントについては、測定を試みたが破断してしまい、測定不能であった。フィルムの水蒸気透過率（M V T R）を、3 2 C、相対湿度（R H）1 0 0 パーセントで試験したところ、7 . 3 グラム / 1 0 0 インチ<sup>2</sup> / 日の結果が得られた。

【 0 3 2 2 】

（実施例 1）

上述したものと同様に生成した材料を、1 0 0 ° にて 8 時間、- 4 0 ° の露点までホッパードライヤーで乾燥させた。この材料は、エチレングリコール 9 5 . 6 モルパーセントと、ジエチレングリコール 2 . 1 モルパーセントと、平均分子量 1 0 0 0 のポリ（エチレングリコール）2 . 3 モルパーセントと、テレフタル酸ジメチル 7 5 . 7 モルパーセントと、グルタル酸ジメチル 2 3 . 0 モルパーセントと、ジメチル 5 - スルホイソフタレート 1 . 3 モルパーセントと、ナトリウム塩とで構成されるスルホン化脂肪族芳香族ポリエーテルエステルであった。続いて、この材料を 1 時間あたり 2 0 ポンドの速度でデービススタンダード（D a v i s S t a n d a r d）社の 1 . 5 インチ径単軸押出機（スクリュウの L / D 2 4 : 1、型番 D S - 1 5 H）の供給セクションに供給した。押出機の条件と温度プロファイルを以下に示す。次に、キリオン社（K i l l i o n）の 3 本ロール

スタック式シートラインに、以下に示す条件と温度プロファイルで溶融ポリマーを供給した。

【 0 3 2 3 】

押出機ゾーン 1 の温度（供給セクション）： 3 9 5 ° F

押出機ゾーン 2 の温度： 4 2 5 ° F

押出機ゾーン 3 の温度： 4 1 0 ° F

押出機ゾーン 4（フロント）の温度： 4 1 0 ° F

フランジ： 4 1 0 ° F

パイプ： 4 1 0 ° F

フランジ： 4 1 0 ° F

金型温度： 4 1 0 ° F

金型リップ： 4 1 0 ° F

融点： 4 2 6 ° F

押出機アンペア： 5 °

押出機 R P M： 5 0 °

チルロール頂部温度： 7 0 ° F

チルロール中部温度： 7 0 ° F

チルロール底部温度： 7 0 ° F

フィルム引取速度： 2 3 5 インチ / 分

【 0 3 2 4 】

幅 8 インチ、厚さ 0 . 0 0 3 インチ（ 3 ミル）のフィルムを生成した。生成時のままのフィルムの状態を、 7 2 ° F、湿度 5 0 % で 4 0 時間、調節した。状態調節後のフィルムのエルメンドルフ引裂度を A S T M 試験法 1 9 2 2 により試験したところ、縦方向（ M D ）に 2 3 g / ミル、横方向（ T D ）に 2 3 g / ミルであることが分かった。この状態調節後のフィルムのグレース引裂度を A S T M 試験法 D 1 0 0 4 により試験した（クロスヘッド引裂速度 0 . 5 インチ / 分）ところ、縦方向に 0 . 6 2 ポンド / ミル、横方向に 0 . 6 4 ポンド / ミルであることが分かった。また、状態調節後のフィルムの引張弾性率を A S T M 試験法 D 8 8 2 により試験したところ、縦方向に 6 1 , 1 1 9 p s i、横方向に 6 6 , 2 3 0 p s i であることが分かった。状態調節後のフィルムの破断時引張強度を A S T M 試験法 D 8 8 2 により試験した（クロスヘッド速度 2 0 インチ / 分）ところ、縦方向に 4 , 2 7 8 p s i、横方向に 4 , 3 2 6 p s i であることが分かった。状態調節後のフィルムの伸び率パーセントを A S T M 試験法 D 8 8 2 により試験したところ、縦方向に 5 9 9 パーセント、横方向に 6 0 8 パーセントであることが分かった。フィルムの水蒸気透過率（ M V T R ）を、 3 2 C、相対湿度（ R H ） 1 0 0 パーセントで試験したところ、 8 . 7 グラム / 1 0 0 インチ<sup>2</sup> / 日の結果が得られた。

【 0 3 2 5 】

このフィルムを、ファーストフードサンドイッチのラップ包装材として試験したところ、優れたデッドフォールド性能を持つことが分かった。

【 0 3 2 6 】

（実施例 2）

大規模に行ったこと以外は調製例 P E 1 で説明したものと同様にして調製したポリマーを、 1 0 0 にて 8 時間、 - 4 0 の露点までホッパードライヤーで乾燥させる。続いて、この材料を 1 時間あたり 2 0 ポンドの速度でデービススタンダード（ D a v i s S t a n d a r d ）社の 1 . 5 インチ径単軸押出機（スクリューの L / D 2 4 : 1、型番 D S - 1 5 H）の供給セクションに供給する。押出機の条件と温度プロファイルを以下に示す。次に、キリオン社（ K i l l i o n ）の 3 本ロールスタック式シートラインに、以下に示す条件と温度プロファイルで溶融ポリマーを供給する。

【 0 3 2 7 】

押出機ゾーン 1 の温度（供給セクション）： 4 1 0 ° F

押出機ゾーン 2 の温度： 4 4 5 ° F



押出機ゾーン3の温度：445 ° F  
 押出機ゾーン4（フロント）の温度：430 ° F  
 フランジ：445 ° F  
 パイプ：445 ° F  
 フランジ：445 ° F  
 金型温度：430 ° F  
 金型リップ：430 ° F  
 融点：447 ° F  
 押出機アンペア：3 . 4  
 押出機RPM：50  
 チルロール頂部温度：70 ° F  
 チルロール中部温度：70 ° F  
 チルロール底部温度：70 ° F  
 フィルム引取速度：275インチ/分

【0328】

幅8インチ、厚さ0.003インチ（3ミル）のフィルムを生成した。

【0329】

このフィルムを、ファーストフードサンドイッチのラップ包装材として試験すると、優れたデッドフォールド性能を持つことが分かる。

【0330】

（実施例3）

上記にて生成したフィルム2平方インチを50 まで4分間（ホットスポットを避けるために、高温の空気が直接フィルムに当たらないよう慎重に）予備加熱し、幅出機であるT.M. ロング二軸延伸機で二軸配向する。延伸機の延伸比を3×3に設定し、延伸速度を5インチ/秒（12.7cm/秒）にする。この二軸延伸フィルムは、未延伸のフィルムの場合に比して縦方向（MD）と横方向（TD）の両方に引張強度が少なくとも10パーセント高いことが分かる。

【0331】

この二軸延伸フィルムをファーストフードサンドイッチのラップ包装材として試験すると、優れたデッドフォールド性能を持つことが分かる。

【0332】

（実施例4～37および比較例CE 2およびCE 3）

大規模に行ったこと以外は調製例PE 2で説明したものと同様にして調製したポリマーを、60 にて8時間、-40 の露点までホッパードライヤーで乾燥させる。これらの材料を一軸スクリー容量供給装置（K-tron型番7）のホッパーに入れる。材料は、10インチ幅のフィルムダイに約0.010インチのギャップをあけて取り付けられた真空室（house vacuum）に真空孔を維持した状態で、このホッパーから28mmワーナーアンドフレイダー（Werner and Pfleider）二軸スクリー押出機の入口まで自由落下する。押出機の供給ホッパーと供給口ではドライ窒素パージを維持する。この押出機を、表1に示すヒータープロファイルで、スクリー速度150 RPMで動作させる。

【0333】

10

20

30

40

【表 1】

|      |       | 表 1           |               |               |               |               |            |            |    |
|------|-------|---------------|---------------|---------------|---------------|---------------|------------|------------|----|
| 調製例  | 実施例   | 押出機ヒータープロファイル |               |               |               |               |            |            |    |
|      |       | ゾーン 1<br>(°C) | ゾーン 2<br>(°C) | ゾーン 3<br>(°C) | ゾーン 4<br>(°C) | ゾーン 5<br>(°C) | ダイ<br>(°C) | 溶融<br>(°C) |    |
| CE 2 | CPE 1 | 205           | 225           | 235           | 235           | 235           | 240        | 235        | 10 |
| CE 3 | CPE 2 | 240           | 260           | 270           | 270           | 270           | 275        | 270        |    |
| 4    | PE 1  | 195           | 215           | 225           | 225           | 225           | 230        | 225        |    |
| 5    | PE 3  | 170           | 195           | 205           | 205           | 205           | 210        | 215        |    |
| 6    | PE 4  | 180           | 215           | 225           | 225           | 225           | 230        | 235        |    |
| 7    | PE 5  | 170           | 190           | 200           | 200           | 200           | 205        | 210        |    |
| 8    | PE 6  | 180           | 210           | 215           | 215           | 215           | 220        | 225        |    |
| 9    | PE 7  | 180           | 210           | 215           | 215           | 215           | 220        | 225        |    |
| 10   | PE 8  | 175           | 200           | 210           | 210           | 210           | 215        | 220        |    |
| 11   | PE 9  | 195           | 215           | 225           | 225           | 225           | 230        | 235        |    |
| 12   | PE 10 | 165           | 190           | 195           | 195           | 195           | 200        | 205        | 20 |
| 13   | PE 11 | 195           | 215           | 225           | 225           | 225           | 230        | 235        |    |
| 14   | PE 12 | 205           | 225           | 235           | 235           | 235           | 240        | 245        |    |
| 15   | PE 13 | 200           | 220           | 230           | 230           | 230           | 235        | 240        |    |
| 16   | PE 14 | 160           | 185           | 195           | 195           | 195           | 200        | 205        |    |
| 17   | PE 15 | 150           | 175           | 185           | 185           | 185           | 190        | 195        |    |
| 18   | PE 16 | 190           | 215           | 225           | 225           | 225           | 230        | 235        |    |
| 19   | PE 17 | 190           | 215           | 225           | 225           | 225           | 230        | 235        |    |
| 20   | PE 18 | 190           | 215           | 225           | 225           | 225           | 230        | 235        |    |
| 21   | PE 19 | 185           | 210           | 220           | 220           | 220           | 225        | 230        |    |
| 22   | PE 20 | 185           | 210           | 220           | 220           | 220           | 225        | 230        |    |
| 23   | PE 21 | 185           | 210           | 220           | 220           | 220           | 225        | 230        |    |
| 24   | PE 22 | 175           | 200           | 210           | 210           | 210           | 215        | 220        |    |
| 25   | PE 23 | 160           | 185           | 190           | 190           | 190           | 195        | 200        |    |
| 26   | PE 24 | 165           | 190           | 205           | 205           | 205           | 210        | 215        |    |
| 27   | PE 25 | 165           | 190           | 200           | 200           | 200           | 205        | 210        |    |
| 28   | PE 26 | 160           | 185           | 190           | 190           | 190           | 195        | 200        |    |
| 29   | PE 27 | 150           | 175           | 180           | 180           | 180           | 185        | 190        |    |
| 30   | PE 28 | 160           | 190           | 200           | 200           | 200           | 205        | 210        | 40 |
| 31   | PE 29 | 160           | 185           | 195           | 195           | 195           | 200        | 205        |    |
| 32   | PE 30 | 170           | 195           | 205           | 205           | 205           | 210        | 215        |    |
| 33   | PE 31 | 160           | 185           | 195           | 195           | 195           | 200        | 205        |    |
| 34   | PE 32 | 140           | 160           | 175           | 175           | 175           | 180        | 185        |    |
| 35   | PE 33 | 140           | 160           | 175           | 175           | 175           | 180        | 185        |    |
| 36   | PE 34 | 135           | 155           | 170           | 170           | 170           | 175        | 180        |    |
| 37   | PE 35 | 120           | 145           | 160           | 160           | 160           | 165        | 170        |    |

【 0 3 3 4 】

押出成形したポリマーフィルムを、冷水で温度 26 °C に維持した直径 12 インチの滑らかな急冷ドラムに静電的に固定し、標準的なテンションロールを利用して剥離紙の上に集める。急冷ドラムの速度を 1 分あたり 5 から 15 フィートに調節し、厚さ約 8 ミルから約

1.5ミルのフィルム試料を得る。

【0335】

これらのフィルムを、ファーストフードサンドイッチのラップ材として試験すると、優れたデッドフォールド性能を持つことが分かる。

【0336】

比較例CE 2およびCE 3ならびに実施例4の上記フィルムの切片(8インチ×8インチ四方)を、混合都市固体廃棄物(ガラス、缶、軽量プラスチックおよび紙の大半を除去済み)約0.5立方ヤード平方(square d)と下水汚泥とが約2:1の比で入った回転式コンポスターに入れる。コンポスターを週に1度回転させ、温度と水分量を監視する。実施例4のフィルムの方が、比較例CE 2およびCE 3のフィルムで見られるよりも少なくとも10パーセント速く分解されることが分かる。

【0337】

(実施例38)

大規模に行ったこと以外は調製例PE 36で説明したものと同様にして調製したポリマーを、90℃にて8時間、-40℃の露点までホッパードライヤーで乾燥させる。この材料を一軸スクリー容量供給装置(K-tron型番7)のホッパーに入れる。材料は、10インチ幅のフィルムダイに約0.010インチのギャップをあけて取り付けられた真空室(house vacuum)に真空孔を維持した状態で、このホッパーから28mmワナーアンドフレイダー(Werner and Pfleider)二軸スクリー押出機の入口まで自由落下する。押出機の供給ホッパーと供給口ではドライ室素パーズを維持する。この押出機を、以下のヒータープロファイルで、スクリー速度150RPMで動作させる。

【0338】

【表2】

| ゾーン1 | ゾーン2 | ゾーン3 | ゾーン4 | ゾーン5 | ダイ   | 熔融   |
|------|------|------|------|------|------|------|
| (°C) | (°C) | (°C) | (°C) | (°C) | (°C) | (°C) |
| 145  | 175  | 185  | 185  | 185  | 190  | 195  |

【0339】

押出成形したポリマーフィルムを、冷水で温度26℃に維持した直径12インチの滑らかな急冷ドラムに静電的に固定し、標準的なテンションロールを利用して剥離紙の上に集める。急冷ドラムの速度を1分あたり5から15フィートに調節し、厚さ約8ミルから約1.5ミルのフィルム試料を得る。

【0340】

比較例CE 4

大規模に行ったこと以外は実質的に米国特許公報(特許文献186)の実施例3に開示されているようにして調製したコポリエステルを、60℃にて8時間、-40℃の露点までホッパードライヤーで乾燥させる。このコポリエステルは、1,4-ブタンジオール80モルパーセントと、平均分子量1500のポリ(エチレングリコール)20モルパーセントと、テレフタル酸68.7モルパーセントと、アジピン酸29.4モルパーセントと、ジメチル5-スルホイソフタル酸ナトリウム1.7モルパーセントと、ピロメリト酸二無水物0.2モルパーセントとからなるものとして開示されている。このポリマーはさらに、結晶融点が107.8℃であるとして開示されている。続いて、この材料を1時間あたり20ポンドの速度でデービススタンダード(Davis Standard)社の1.5インチ径単軸押出機(スクリーのL/D24:1、型番DS-15H)の供給セクションに供給する。押出機の条件と温度プロファイルを以下に示す。次に、キリオン社(Killion)の3本ロールスタック式シートラインに、以下に示す条件と温度プロファイルで熔融ポリマーを供給する。

【0341】

押出機ゾーン1の温度(供給セクション): 275 °F

押出機ゾーン2の温度: 310 °F

押出機ゾーン3の温度: 310 °F

押出機ゾーン4(フロント)の温度: 295 °F

フランジ: 310 °F

パイプ: 310 °F

フランジ: 310 °F

金型温度: 295 °F

金型リップ: 295 °F

融点: 310 °F

10

押出機アンペア: 3.4

押出機RPM: 50

チルロール頂部温度: 70 °F

チルロール中部温度: 70 °F

チルロール底部温度: 70 °F

フィルム引取速度: 275インチ/分

#### 【0342】

幅8インチ、厚さ0.003インチ(3ミル)のフィルムを生成する。加工中とフィルム形成時におけるフィルムの粘着(ブロッキング)がゆえに、収率が低いことが証明される。

20

#### 【0343】

フィルムから8インチ×16インチの矩形を切り取り、サイズを正確に測定する。この矩形フィルムを、1時間で60℃まで加熱したフィッシャーサイエンティフィック(Fisher Scientific)社のアイソテンプレインキュベータ(Isotemp Incubator)型番625Dに入れる。続いて、矩形フィルムを正確に再計測する。

#### 【0344】

(実施例39)

大規模に行ったこと以外は調製例PE 38で上述したものと同様に生成した材料を、90℃にて8時間、-40℃の露点までホッパードライヤーで乾燥させる。続いて、この材料を1時間あたり20ポンドの速度でデービススタンダード(Davis Standard)社の1.5インチ径単軸押出機(スクリーンのL/D24:1、型番DS-15H)の供給セクションに供給する。押出機の条件と温度プロファイルを以下に示す。次に、キリオン社(Killion)の3本ロールスタック式シートラインに、以下に示す条件と温度プロファイルで溶融ポリマーを供給する。

30

#### 【0345】

押出機ゾーン1の温度(供給セクション): 365 °F

押出機ゾーン2の温度: 395 °F

押出機ゾーン3の温度: 380 °F

押出機ゾーン4(フロント)の温度: 380 °F

40

フランジ: 380 °F

パイプ: 380 °F

フランジ: 380 °F

金型温度: 380 °F

金型リップ: 380 °F

融点: 395 °F

押出機アンペア: 5

押出機RPM: 50

チルロール頂部温度: 70 °F

チルロール中部温度: 70 °F

50

チルロール底部温度：70 ° F

フィルム引取速度：235 インチ / 分

【0346】

幅8インチ、厚さ0.003インチ(3ミル)のフィルムを生成する。このプロセスではフィルム収率が高いことが証明される。フィルムから8インチ×16インチの矩形を切り取り、サイズを正確に測定する。この矩形フィルムを、1時間で60 まで加熱したフィッシャーサイエンティフィック (Fisher Scientific) 社のアイソテンプインキュベータ (Iso temp Incubator) 型番625Dに入れる。続いて、矩形フィルムを正確に再計測する。実施例39の矩形フィルムは比較例CE 4の矩形フィルムよりも収縮が少なくとも10パーセント少ないことが分かる。

10

【0347】

このフィルムを、ファーストフードサンドイッチのラップ包装材として試験すると、優れたデッドフォールド性能を持つことが分かる。

【0348】

(実施例40)

大規模に行ったこと以外は調製例PE 39で説明したものと同様にして調製したポリマーを、100 にて8時間、-40 の露点までホッパードライヤーで乾燥させる。この材料を一軸スクリー容量供給装置 (K - tron型番7) のホッパーに入れる。材料は、10インチ幅のフィルムダイに約0.010インチのギャップをあけて取り付けられた真空室 (house vacuum) に真空孔を維持した状態で、このホッパーから28m mワナーアンドフレイダー (Werner and Pfleider) 二軸スクリー押出機の入口まで自由落下する。押出機の供給ホッパーと供給口ではドライ窒素パージを維持する。この押出機を、以下のヒータープロファイルで、スクリー速度150RPMで動作させる。

20

【0349】

【表3】

| ゾーン1 | ゾーン2 | ゾーン3 | ゾーン4 | ゾーン5 | ダイ   | 熔融   |
|------|------|------|------|------|------|------|
| (°C) | (°C) | (°C) | (°C) | (°C) | (°C) | (°C) |
| 150  | 180  | 190  | 190  | 190  | 195  | 200  |

30

【0350】

押出成形したポリマーフィルムを、冷水で温度26 に維持した直径12インチの滑らかな急冷ドラムに静電的に固定し、標準的なテンションロールを利用して剥離紙の上に集める。急冷ドラムの速度を1分あたり5から15フィートに調節し、厚さ約8ミルから約1.5ミルのフィルム試料を得る。

【0351】

(実施例41~61)

以下の表2に示す実施例で生成した、厚さ約1.5ミルから8ミルのフィルムを、ロードアイランド州プロビデンス (Providence) のマーシャルアンドウィリアムズカンパニー (Marshall and Williams Company) の縦方向調整装置 (MDO) 型番7200で搬送する。MDOユニットを以下の表2に示す温度まで予備加熱した。フィルムをその温度で以下の表2に示すように延伸する。たとえば、「延伸3×」とは、長さ1メートルのフィルムを長さ3メートルになるまで延伸することを意味する。

40

【0352】

【表 4】

表 2

| 実施例 | 流延フィルム<br>実施例 | MDO<br>温度<br>(°C) | MDO<br>延伸 |    |
|-----|---------------|-------------------|-----------|----|
| 41  | 4             | 50                | 3×        |    |
| 42  | 5             | 50                | 3.5×      |    |
| 43  | 6             | 60                | 3.5×      |    |
| 44  | 7             | 50                | 4×        | 10 |
| 45  | 8             | 80                | 3×        |    |
| 46  | 9             | 60                | 3.5×      |    |
| 47  | 10            | 50                | 4.5×      |    |
| 48  | 21            | 60                | 4×        |    |
| 49  | 22            | 60                | 4×        |    |
| 50  | 24            | 50                | 4×        |    |
| 51  | 25            | 70                | 3.5×      |    |
| 52  | 26            | 40                | 4×        | 20 |
| 53  | 27            | 50                | 3.5×      |    |
| 54  | 28            | 70                | 3.5×      |    |
| 55  | 29            | 70                | 3.5×      |    |
| 56  | 34            | 50                | 3.5×      |    |
| 57  | 35            | 40                | 4×        |    |
| 58  | 36            | 40                | 4×        |    |
| 59  | 37            | 40                | 4×        |    |
| 60  | 38            | 40                | 3.5×      |    |
| 61  | 40            | 40                | 3.5×      | 30 |

## 【 0 3 5 3 】

これらの一軸延伸フィルムは、対応する未延伸のフィルムの場合よりも縦方向（MD）での引張強度が少なくとも 10 パーセント高いことが分かる。

## 【 0 3 5 4 】

また、これらの一軸延伸フィルムをファーストフードサンドイッチのラップ包装材として試験すると、優れたデッドフォールド性能を持つことが分かる。

## 【 0 3 5 5 】

（実施例 62～73）

上記にて生成し、詳細を以下の表 3 に示すフィルム 2 平方インチを、以下の表 3 に示す温度まで 4 分間（ホットスポットを避けるために、高温の空気が直接フィルムに当たらないよう慎重に）予備加熱し、幅出機である T・M・ロング二軸延伸機で二軸配向する。延伸機の延伸比を 3×3 に設定し、延伸速度を 5 インチ / 秒（12.7 cm / 秒）にする。

## 【 0 3 5 6 】

40

## 【表 5】

表 3

| 流延フィルム<br>実施例 | 二軸延伸<br>実施例 | 温度<br>(°C) |
|---------------|-------------|------------|
| 62            | 11          | 75         |
| 63            | 12          | 50         |
| 64            | 18          | 60         |
| 65            | 22          | 70         |
| 66            | 24          | 60         |
| 67            | 26          | 50         |
| 68            | 29          | 80         |
| 69            | 34          | 60         |
| 70            | 35          | 50         |
| 71            | 37          | 40         |
| 72            | 38          | 50         |
| 73            | 40          | 50         |

10

20

## 【0357】

これらの二軸延伸フィルムは、未延伸のフィルムの場合に比して縦方向（MD）と横方向（TD）の両方に引張強度が少なくとも10パーセント高いことが分かる。これらの二軸延伸フィルムをファーストフードサンドイッチのラップ包装材として試験すると、優れたデッドフォールド性能を持つことが分かる。

## 【0358】

（実施例74～78）

大規模に行ったこと以外は調製例PE 3で説明したものと同様にして調製したポリマーを、100 にて8時間、-40 の露点までホッパードライヤーで乾燥させる。これらの材料を、Irganox-1010すなわちチバカンパニー（Ciba Company）から入手したヒンダードフェノール系酸化防止剤（antioxidant）0.10重量パーセント（ポリマー重量基準）と粉末配合する。この材料を一軸スクリュウ容量供給装置（K-tron型番7）のホッパーに入れる。材料は、10インチ幅のフィルムダイに約0.010インチのギャップをあけて取り付けられた真空室（house vacuum）に真空孔を維持した状態で、このホッパーから28mmワーナーアンドフレイダー（Werner and Pfleiderer）二軸スクリュウ押出機の入口まで自由落下する。押出機の供給ホッパーと供給口ではドライ窒素パージを維持する。この押出機を、以下のヒータープロファイルで、スクリュウ速度150RPMで動作させる。

30

## 【0359】

## 【表 6】

| ゾーン1<br>(°C) | ゾーン2<br>(°C) | ゾーン3<br>(°C) | ゾーン4<br>(°C) | ゾーン5<br>(°C) | ダイ<br>(°C) |
|--------------|--------------|--------------|--------------|--------------|------------|
| 160          | 195          | 205          | 205          | 205          | 210        |

40

## 【0360】

Accurate（登録商標）フィーダーを利用して、モルフレックスインコーポレイテッド（Morflex, Inc.）から入手した可塑剤であるアセチルトリ-n-ブチルシトレート、以下の表4に列挙する組成物が得られる速度でゾーン2に注入する。表4に示す可塑剤濃度は組成物全体の重量を基準にしたものである。

50

【 0 3 6 1 】

【 表 7 】

表 4

| 実施例 | 可塑剤濃度<br>(wt.%) |
|-----|-----------------|
| 0   |                 |
| 75  | 5               |
| 76  | 10              |
| 77  | 15              |
| 78  | 20              |

10

【 0 3 6 2 】

押出成形したポリマーフィルムを、冷水で温度 26 に維持した直径 12 インチの滑らかな急冷ドラムに静電的に固定し、標準的なテンションロールを利用して剥離紙の上に集める。急冷ドラムの速度を 1 分あたり 5 から 15 フィートに調節し、厚さ約 8 ミルから約 1.5 ミルのフィルム試料を得る。

【 0 3 6 3 】

これらのフィルムを、ファーストフードサンドイッチのラップ包装材として試験すると、優れたデッドフォールド性能を持つことが分かる。

20

【 0 3 6 4 】

(調製例 P E 41 ~ 46)

大規模に行ったこと以外は上記の調製例 P E 33 で説明したものと同様にして調製したポリマーを、水分量が 0.04 パーセント未満になるまで、大型トレー乾燥機にて高温の乾燥空気を循環させながら 60 で一晩乾燥させる。トウモロコシ澱粉 (C P C インターナショナルインコーポレイテッド (International, Inc.) から入手した Corn Products 3005) と、米澱粉 (シグマケミカルズ (Sigma Chemicals) 社のカタログ番号 S7260) とを、大型トレー真空オーブンにて 90 C かつ 1 mm Hg 真空未満で、水分量が 1 パーセント未満になるまで乾燥させ、使用するまで密閉容器で保管する。アジピン酸ポリエチレン (Rucoflex (登録商標) S-101-55、見かけ上の分子量 2000、ルコポリマーコーポレーション (Ruco Polymer Corporation) から入手) を、前処理せずに入手時のままの状態直接使用する。

30

【 0 3 6 5 】

材料をビニール袋に入れて手作業でかき混ぜ、ポリマーと澱粉とのブレンドを生成する。乾燥機から出した温かいポリマーに乾燥澱粉を加え、まだ温かい混合物を押出機に供給する。アジピン酸ポリエチレン (Rucoflex (登録商標)) を用いる場合は、Rucoflex (登録商標) を熔融させ、計量型ポンプを使って押出機の第 2 のヒーターゾーンに液体注入する。以下の表 5 に示す最終組成物を調製する。

【 0 3 6 6 】

40



## 【表 8】

表 5

| 調製例   | ポリマー<br>(wt.%) | トウモロコシ澱粉<br>(wt.%) | 米澱粉<br>(wt.%) | Rucoflex®<br>(wt.%) |
|-------|----------------|--------------------|---------------|---------------------|
| PE 41 | 80             | 20                 |               |                     |
| PE 42 | 60             | 40                 |               |                     |
| PE 43 | 55             | 40                 |               | 5                   |
| PE 44 | 45             | 35                 |               | 20                  |
| PE 45 | 60             |                    | 40            |                     |
| PE 46 | 45             | 35                 |               | 20                  |

10

## 【0367】

これらのブレンドをK t r o n二軸スクリュウフィーダー（型番T - 35、190 6300コントローラ付き）の供給ホッパー（窒素パージあり）に入れ、計量してワーナーアンドフレイダー（W e r n e r   a n d   P f l e i d e r）社のZSK 30mm二軸スクリュウ押出機に供給する。この押出機はL/Dが30/1で、真空孔と緩混合スクリュウ（m i l d   m i x i n g   s c r e w）が設けられている。押出機バレルの温度は、押出機の供給端の140℃から排出端の180℃まで電气的に加熱される。この押出機を150RPMで稼動し、真空孔を真空室に接続してプロセス条件を変えられるようにする。一穴ダイ（s i n g l e   h o l e   d i e）（直径1/8インチ）を排出端に利用する。得られるストランドを長さ6フィートの水槽の中で急冷し、エアナイフで脱水し、コーネア（C o n a i r）カッター（型番304）で切断してペレットを得る。個々の組成物の具体的な動作条件については以下にあげておく。

20

## 【0368】

## 【表 9】

表 6

| 調製例番号 | 供給速度<br>(pph) | スクリュートルク<br>(%最大) | ダイ圧力<br>(psig) | 熔融温度<br>(°C) | 真空<br>(インチ Hg) |
|-------|---------------|-------------------|----------------|--------------|----------------|
| PE 41 | 34            | 58                | 800            | 190          | 13             |
| PE 42 | 32            | 60                | 800            | 210          | 13             |
| PE 43 | 31            | 50                | 750            | 205          | 12             |
| PE 44 | 32            | 35                | 600            | 185          | 12             |
| PE 45 | 33            | 60                | 800            | 210          | 13             |
| PE 46 | 32            | 35                | 600            | 185          | 13             |

30

40

## 【0369】

（実施例 79～84）

上記調製例PE 41～46（表7参照）にて調製したポリマー澱粉ブレンドを、100にて8時間、-40℃の露点までホッパードライヤーで乾燥させる。この材料を一軸スクリュウ容量供給装置（K - t r o n型番7）のホッパーに入れる。材料は、10インチ幅のフィルムダイに約0.010インチのギャップをあけて取り付けられた真空室に真空孔を維持した状態で、このホッパーから28mmワーナーアンドフレイダー（W e r n e r   a n d   P f l e i d e r）二軸スクリュウ押出機の入口まで自由落下する。押出機の供給ホッパーと供給口ではドライ窒素パージを維持する。この押出機を、以下のヒータープロファイルで、スクリュウ速度150RPMで動作させる。

50

【 0 3 7 0 】

【表 1 0】

| ゾーン 1 | ゾーン 2 | ゾーン 3 | ゾーン 4 | ゾーン 5 | ダイ   | 溶融   |
|-------|-------|-------|-------|-------|------|------|
| (°C)  | (°C)  | (°C)  | (°C)  | (°C)  | (°C) | (°C) |
| 145   | 170   | 190   | 190   | 190   | 195  | 200  |

【 0 3 7 1 】

押出成形したポリマーフィルムを、冷水で温度 26 に維持した直径 12 インチの滑らかな急冷ドラムに静電的に固定し、標準的なテンションロールを利用して剥離紙の上に集める。急冷ドラムの速度を 1 分あたり 5 から 15 フィートに調節し、厚さ約 8 ミルから約 1.5 ミルのフィルム試料を得る。

10

【 0 3 7 2 】

【表 1 1】

表 7

| 調製例 | 実施例   |
|-----|-------|
| 79  | PE 41 |
| 80  | PE 42 |
| 81  | PE 43 |
| 82  | PE 44 |
| 83  | PE 45 |
| 84  | PE 46 |

20

【 0 3 7 3 】

これらのフィルムを、ファーストフードサンドイッチの包装材として試験すると、優れたデッドフォールド性能を持つことが分かる。

【 0 3 7 4 】

( 調製例 P E 47 ~ 53 )

30

大規模に行ったこと以外は上記の調製例 P E 24 で説明したものと同様にして調製したポリマーを、水分量が 0.04 パーセント未満になるまで、大型トレイ乾燥機にて高温の乾燥空気を循環させながら 60 で一晩乾燥させる。タルク (コロラド州エンゲルウッド (Englewood) に所在するルゼナック (Luzenac) から入手、粒度 3.8 ミクロン) と、二酸化チタン (オクラホマ州オクラホマシティ (Oklahoma City) に所在するカーマクギーケミカルエルエルピー (Kerr-McGee Chemical, LLC) が提供、グレード Tronox (登録商標) 470、粒度 0.17 ミクロン) と、炭酸カルシウム (アラバマ州シラカウガ (Sylacauga) の ECCA カルシウムプロダクツインコーポレイテッド (Calcium Products, Inc.) から入手、平均粒度 1 ミクロンの ECC Supercoat (T) グレード) とを、大型トレイ真空オーブンにて 90 かつ 1 mmHg 真空未満で、水分量が 1 パーセント未満になるまで乾燥させ、使用するまで密閉容器で保管する。

40

【 0 3 7 5 】

材料をビニール袋に入れて手作業でかき混ぜ、ポリマーと無機フィラーとのブレンドを生成する。乾燥機から出した温かいポリマーに乾燥無機フィラーを加え、まだ温かい混合物を押出機に供給する。以下の表 8 に示す最終組成物を調製する。

【 0 3 7 6 】

【表 1 2】

| 調製例   | 表 8            |               |                |               |
|-------|----------------|---------------|----------------|---------------|
|       | ポリマー<br>(wt.%) | タルク<br>(wt.%) | 二酸化物<br>(wt.%) | 炭酸塩<br>(wt.%) |
| PE 47 | 85             | 2.5           | 5              | 7.5           |
| PE 48 | 70             | 5             | 5              | 20            |
| PE 49 | 70             | 5             | 10             | 15            |
| PE 50 | 30             | 10            | 15             | 45            |
| PE 51 | 95             | 5             |                |               |
| PE 52 | 95             |               | 5              |               |
| PE 53 | 70             |               |                | 30            |

10

## 【0377】

これらのブレンドをK t r o n二軸スクリュウフィーダー（型番T - 35、190 6300コントローラ付き）の供給ホッパー（窒素パージあり）に入れ、計量してワーナーアンドフレイダー（W e r n e r a n d P f l e i d e r）社のZ S K 30mm二軸スクリュウ押出機に供給する。この押出機はL / Dが30 / 1で、真空孔と強混合スクリュウが設けられている。押出機バレルの温度は、押出機の供給端の170 から排出端の215 まで電氣的に加熱される。この押出機を150RPMで稼動し、真空孔を真空室に接続してプロセス条件を変えられるようにする。一穴ダイ（s i n g l e h o l e d i e）（直径1 / 8インチ）を排出端に利用する。得られるストランドを長さ6フィートの水槽の中で急冷し、エアナイフで脱水し、コーネア（C o n a i r）カッター（型番304）で切断してペレットを得る。個々の組成物の具体的な動作条件については以下の表9にあげておく。

20

## 【0378】

【表 1 3】

| 調製例番号 | 供給速度<br>(pph) | スクリュートルク<br>(%最大) | ダイ圧力<br>(psig) | 熔融温度<br>(°C) | 真空<br>(インチ Hg) |
|-------|---------------|-------------------|----------------|--------------|----------------|
| 47    | 34            | 58                | 800            | 210          | 13             |
| 48    | 30            | 70                | 800            | 230          | 13             |
| 49    | 31            | 70                | 800            | 230          | 12             |
| 50    | 32            | 80                | 800            | 240          | 12             |
| 51    | 33            | 50                | 600            | 210          | 13             |
| 52    | 32            | 50                | 600            | 210          | 13             |
| 53    | 30            | 70                | 800            | 230          | 12             |

30

40

## 【0379】

（実施例 85 ~ 90）

大規模に行ったこと以外は、上記調製例47 ~ 53で調製したポリマー無機フィラーブレンドと、上記調製例24で説明したものと同様にして調製したポリマーを、100 にて8時間、-40 の露点までホッパードライヤーで乾燥させる。この材料を一軸スクリュウ容量供給装置（K - t r o n型番7）のホッパーに入れる。材料は、10インチ幅のフィルムダイに約0 . 010インチのギャップをあけて取り付けられた真空室に真空孔を維持した状態で、このホッパーから28mmワーナーアンドフレイダー（W e r n e r a n d P f l e i d e r）二軸スクリュウ押出機の入口まで自由落下する。実施例88は、

50

調製例 P E 24 を 50 重量パーセントと調製例 P E 50 を 50 重量パーセントとをかき混ぜたブレンドで構成される。押出機の供給ホッパーと供給口ではドライ窒素パージを維持する。この押出機を、以下のヒータープロファイルで、スクリー速度 150 R P M で動作させる。

【 0 3 8 0 】

【表 1 4】

| ゾーン 1 | ゾーン 2 | ゾーン 3 | ゾーン 4 | ゾーン 5 | ダイ   | 熔融   |
|-------|-------|-------|-------|-------|------|------|
| (°C)  | (°C)  | (°C)  | (°C)  | (°C)  | (°C) | (°C) |
| 170   | 195   | 210   | 210   | 210   | 215  | 220  |

10

【 0 3 8 1 】

押出成形したポリマーフィルムを冷水で温度 26 に維持した直径 12 インチの滑らかな急冷ドラムに静電的に固定し、標準的なテンションロールを利用して剥離紙の上に集める。急冷ドラムの速度を 1 分あたり 5 から 15 フィートに調節し、厚さ約 8 ミルから約 1.5 ミルのフィルム試料を得る。

【 0 3 8 2 】

【表 1 5】

表 10

20

| 調製例 | 実施例                                         |
|-----|---------------------------------------------|
| 85  | PE 47                                       |
| 86  | PE 48                                       |
| 87  | PE 49                                       |
| 88  | 調製例 PE 50 のポリマー50wt.%、調製例 PE 24 のポリマー50wt.% |
| 89  | PE 51                                       |
| 90  | PE 52                                       |

【 0 3 8 3 】

30

これらのフィルムをファーストフードサンドイッチの包装材として試験すると、優れたデッドフォールド性能を持つことが分かる。また、これらのフィルムは手触りと見た目の両方が紙に似ていることも分かる。

【 0 3 8 4 】

( 実施例 9 1 ~ 9 6 )

大規模に行ったこと以外は、以下の表 1 1 に示す調製例で説明したものと同様にして調製したポリマーを、除湿空気乾燥機にて 60 で一晩乾燥させる。乾燥させたポリマーを、15 : 1 減速歯車装置を取り付けたキリオン社 ( K i l l i o n ) 社の 1.25 インチ径押出機からなる実験室規模の吹込成形フィルムラインに供給する。押出機のヒーターゾーンを以下の表 1 1 に示す温度前後に設定する。スクリーは L / D 2.4 対 1 のマッドドック ( M a d d o c k ) 混合タイプである。混合スクリーの圧縮比は 3.5 : 1 である。スクリー速度は 25 から 30 R P M である。直径 1.21 インチのダイをダイギャップ 2.5 ミルで利用する。空冷環はキリオン社 ( K i l l i o n ) のシングルリップ No. 2 のタイプである。吹込条件は、ダイ径に対するバブル径の比であり、かつフープ方向すなわち横方向 ( T D ) の延伸を示す指標である膨張比 ( B U R ) あるいは、軸方向すなわち機械方向 ( M D ) の延伸を示す指標である引き落とし比 ( D D R ) で特徴付けることが可能である。延伸レベルが高くなればなるほど、フィルム内での配向のレベルも高くなる。

40

【 0 3 8 5 】

## 【表 16】

表 11

| 調製例番号 | 押出機<br>実施例番号 | ヒーター<br>ゾーン<br>(°C) | フィルム厚<br>(ミル) | BUR | DDR |
|-------|--------------|---------------------|---------------|-----|-----|
| 91    | PE 3         | 220                 | 2.5           | 3.2 | 3.9 |
| 92    | PE 24        | 220                 | 2.0           | 2.6 | 4.6 |
| 93    | PE 33        | 180                 | 1.2           | 3.1 | 8.0 |
| 94    | PE 36        | 190                 | 2.0           | 2.5 | 5.0 |
| 95    | PE 40        | 135                 | 1.5           | 3.0 | 7.0 |
| 96    | PE 49        | 220                 | 2.3           | 2.0 | 2.0 |

10

## 【0386】

筒状のフィルムを切り開き、ファーストフードサンドイッチ包装材として試験すると、優れたデッドフォールド性能を持つことが分かる。

## 【0387】

(実施例 97 ~ 99)

ブランプトンエンジニアリング (Brampton Engineering) 製の吹込成形フィルムダイである、10 インチの二層ストリームライン同時押出ダイ (SCD) で二層フィルムを生成する。ダイの層構成はダイの外側の層から内側の層への順 (A/B) で以下のとおりである。3.5 インチのデビッドスタンダード (David Standard) 社の押出機 2 機で A 層と B 層を供給した。このプロセスラインではさらに、ブランプトンエンジニアリング (Brampton Engineering) 社の回転空冷環をポリマーの冷却に利用する。層 A は、大規模に行ったこと以外は調製例 PE 5 で説明したものと同様にして調製したポリマーを含有する。層 B は、大規模に行ったこと以外は調製例 PE 33 で説明したものと同様にして調製したポリマーを含有する。どちらのポリマーも、除湿乾燥機にて 60 で乾燥させる。フィルム構造全体で以下の表 12 に示すフィルムの層比率になるように、オペレーションを調節した。フィルムの厚さは約 2.25 ミル (0.00225 インチ) である。フィルムの加工条件を以下の表 13 にあげておく。

20

30

## 【0388】

## 【表 17】

表 12

| 実施例 | 層 A<br>(wt.%) | 層 B<br>(wt.%) |
|-----|---------------|---------------|
| 97  | 25            | 75            |
| 98  | 50            | 50            |
| 99  | 75            | 25            |

40

## 【0389】

## 【表 18】

表 13

|             | 押出機 A      | 押出機 B |    |
|-------------|------------|-------|----|
| ゾーン 1       | 165°C      | 145°C |    |
| ゾーン 2       | 190°C      | 165°C |    |
| ゾーン 3       | 205°C      | 180°C |    |
| ゾーン 4       | 205°C      | 180°C |    |
| ゾーン 5       | 210°C      | 185°C | 10 |
| スクリーンチェンジャー | 205°C      | 180°C |    |
| アダプター1      | 205°C      | 180°C |    |
| アダプター2      | 205°C      | 180°C |    |
| アダプター4      | 205°C      | 180°C |    |
| ダイ 1        | 205°C      | 205°C |    |
| ダイ 2        | 205°C      | 205°C |    |
| ダイ 3        | 205°C      | 205°C |    |
| ライン速度       | 122 フィート／分 |       |    |
| 注記          | PE 5       | PE 33 | 20 |

## 【0390】

押出ラインニップの下流でバッテンフェルドグロセスターエンジニアリングカンパニーインコーポレイテッド (Battenfeld Gloucester Engineering Co., Inc.) 製のインライン製袋機を利用して、上記にて調製した多層フィルムを袋に仕立てる。

## 【0391】

これらのスリット状のフィルムを、ファーストフードサンドイッチのラップ材として試験すると、優れたデッドフォールド性能を持つことが分かる。

30

## 【0392】

(実施例 100 ~ 102)

ブランプトンエンジニアリング (Brampton Engineering) 製の吹込成形フィルムダイである、10 インチの二層ストリームライン同時押出ダイ (SCD) で二層フィルムを生成する。ダイの層構成はダイの外側の層から内側の層への順 (A/B) で以下のとおりである。3.5 インチのデビッドスタンダード (David Standard) 社の押出機 2 機で A 層と B 層を供給した。このプロセスラインではさらに、ブランプトンエンジニアリング (Brampton Engineering) 社の回転空冷環をポリマーの冷却に利用する。層 A は、大規模に行ったこと以外は調製例 PE 23 で説明したものと同様にして調製したポリマーを含有する。層 B は、大規模に行ったこと  
 以外は調製例 PE 35 で説明したものと同様にして調製したポリマーを含有する。どちらのポリマーも、除湿乾燥機にて 60 で乾燥させる。フィルム構造全体で以下の表 14 に示すフィルムの層比率になるように、オペレーションを調節した。フィルムの厚さは約 2.25 ミル (0.00225 インチ) である。フィルムの加工条件を以下の表 15 にあげておく。

40

## 【0393】

## 【表 19】

表 14

| 実施例 | 層 A<br>(wt.%) | 層 B<br>(wt.%) |
|-----|---------------|---------------|
| 100 | 25            | 75            |
| 101 | 50            | 50            |
| 102 | 75            | 25            |

10

## 【0394】

## 【表 20】

表 15

|             | 押出機 A      | 押出機 B |
|-------------|------------|-------|
| ゾーン 1       | 165°C      | 135°C |
| ゾーン 2       | 190°C      | 145°C |
| ゾーン 3       | 205°C      | 160°C |
| ゾーン 4       | 205°C      | 160°C |
| ゾーン 5       | 210°C      | 165°C |
| スクリーンチェンジャー | 205°C      | 160°C |
| アダプター1      | 205°C      | 160°C |
| アダプター2      | 205°C      | 160°C |
| アダプター4      | 205°C      | 160°C |
| ダイ 1        | 205°C      | 205°C |
| ダイ 2        | 205°C      | 205°C |
| ダイ 3        | 205°C      | 205°C |
| ライン速度       | 122 フィート/分 |       |
| 注記          | PE 23      | PE 35 |

20

30

## 【0395】

押出ラインニップの下流でバッテンフェルドグロセスターエンジニアリングカンパニーインコーポレイテッド (Battenfeld Gloucester Engineering Co., Inc.) 製のインライン製袋機を利用して、上記にて調製した多層フィルムを袋に仕立てる。

## 【0396】

これらのスリット状のフィルムを、ファーストフードサンドイッチのラップ材として試験すると、優れたデッドフォールド性能を持つことが分かる。

40

## 【0397】

(実施例 103 ~ 105)

ブランプトンエンジニアリング (Brampton Engineering) 製の吹込成形フィルムダイである、10 インチの二層ストリームライン同時押出ダイ (SCD) で二層フィルムを生成する。ダイの層構成はダイの外側の層から内側の層への順 (A/B) で以下のとおりである。3.5 インチのデビッドスタンダード (David Standard) 社の押出機 2 機で A 層と B 層を供給した。このプロセスラインではさらに、ブランプトンエンジニアリング (Brampton Engineering) 社の回転空冷環をポリマーの冷却に利用する。層 A は、調製例 PE 42 で説明したものと同様にし

50

て調製した澱粉充填ポリマーを含有する。層 B は、イーストマンケミカルカンパニー (E a s t m a n C h e m i c a l C o m p a n y) から入手した、上述したような E a s t a r (登録商標) B i o を含有する。どちらのポリマーも、除湿乾燥機にて 60 で乾燥させる。フィルム構造全体で以下の表 16 に示すフィルムの層比率になるように、オペレーションを調節した。フィルムの厚さは約 2.25 ミル (0.00225 インチ) である。フィルムの加工条件を以下の表 17 にあげておく。

【0398】

【表 21】

表 16

10

| 実施例 | 層 A    | 層 B    |
|-----|--------|--------|
|     | (wt.%) | (wt.%) |
| 103 | 25     | 75     |
| 104 | 50     | 50     |
| 105 | 75     | 25     |

【0399】

【表 22】

表 17

20

|             | 押出機 A      | 押出機 B       |
|-------------|------------|-------------|
| ゾーン 1       | 155°C      | 100°C       |
| ゾーン 2       | 190°C      | 115°C       |
| ゾーン 3       | 205°C      | 130°C       |
| ゾーン 4       | 205°C      | 130°C       |
| ゾーン 5       | 210°C      | 135°C       |
| スクリーンチェンジャー | 205°C      | 130°C       |
| アダプター 1     | 205°C      | 130°C       |
| アダプター 2     | 205°C      | 130°C       |
| アダプター 4     | 205°C      | 130°C       |
| ダイ 1        | 205°C      | 205°C       |
| ダイ 2        | 205°C      | 205°C       |
| ダイ 3        | 205°C      | 205°C       |
| ライン速度       | 122 フィート/分 |             |
| 注記          | PE 42      | Eastar® Bio |

30

【0400】

押出ラインニップの下流でバッテンフェルドグロセスターエンジニアリングカンパニーインコーポレイテッド (B a t t e n f e l d G l o u c e s t e r E n g i n e e r i n g C o . , I n c .) 製のインライン製袋機を利用して、上記にて調製した多層フィルムを袋に仕立てる。

【0401】

これらのスリット状のフィルムを、ファーストフードサンドイッチのラップ材として試験すると、優れたデッドフォールド性能を持つことが分かる。

【0402】

( 実施例 106 ~ 144 および比較例 C E 5 および C E 6 )

40

50



大規模に行ったこと以外は以下の表 18 に示す調製例で説明したものと同様にして調製したポリエステル樹脂を、空気循環乾燥機にて露点 - 40 で一晩、60 の温度で乾燥させる。乾燥させたペレットをバレル長対直径比が 28 : 1 の市販の 2.5 インチ押出機に供給し、上記ポリエステル樹脂を板紙原紙に押出コーティングする。押出機の 5 つのゾーンを以下の表 18 に示す範囲の温度に維持する。圧縮ねじ 8 本、計量ねじ (metering flight) 4 本、ねじ混合セクション 2 カ所、計量ねじ 6 本のある一条ねじスクリーを押出機で利用する。スクリー速度を 1 分あたり 180 回転 (RPM) に維持する。熔融ポリエステル樹脂を 3 つの 24 × 24 メッシュのスクリーンに通す。ポリマーを、36 インチ × 0.02 インチのダイ出口が設けられた 0.75 インチのランドのある中央供給ダイ (center fed die) に通す。押出供給速度を 1 時間あたり 460 ポンドの一定値に保つ。得られる押出物を、5 インチのギャップに通し、ゴムで覆った圧力ロールとチルロールで構成されるニップに送る。同時に、以下の表 18 に示す幅 32 インチの板紙原紙を、ロールをフィルムに接触させた状態でニップに供給する。1 線インチあたり 100 ポンドのニップ圧力を印加する。押出実験の間は 24 インチ径の鏡面仕上げチルロールを 19 C の温度に維持する。圧力ロールとチルロールで構成されるニップから 180 ° の地点でコート板紙をチルロールから引き取る。チルロールを 1 分あたり線速度 300 フィートで稼動する。このコーティング速度で、ポリエステル樹脂厚 1.25 ミルが得られる。このポリエステル樹脂厚は、作業条件を変えることで変更できるものである。

【 0 4 0 3 】

【 表 2 3 】

表 18

| 調製例  | 押出機<br>実施例 | 紙／板紙       |                                  |
|------|------------|------------|----------------------------------|
|      |            | 温度<br>(°C) | 原紙                               |
| CE 5 | CPE 1      | 250        | 羊皮紙                              |
| CE 6 | CPE 2      | 280        | 羊皮紙                              |
| 106  | PE 1       | 240        | 羊皮紙                              |
| 107  | PE 6       | 235        | 坪量 15 ポンドのクラフト紙                  |
| 108  | PE 9       | 250        | 坪量 18 ポンドの天然紙                    |
| 109  | PE 17      | 250        | 坪量 18 ポンドの漂白紙                    |
| 110  | PE 20      | 245        | 坪量 5 ポンドの漂白クラフト紙                 |
| 111  | PE 22      | 240        | 坪量 35 ポンドの天然クラフト紙                |
| 112  | PE 24      | 230        | 羊皮紙                              |
| 113  | PE 27      | 210        | 坪量 15 ポンドのクラフト紙                  |
| 114  | PE 30      | 230        | 坪量 18 ポンドの漂白紙                    |
| 115  | PE 33      | 200        | 坪量 18 ポンドの天然紙                    |
| 116  | PE 36      | 210        | 坪量 25 ポンドの漂白クラフト紙                |
| 117  | PE 39      | 210        | 坪量 35 ポンドの天然クラフト紙                |
| 118  | PE 42      | 230        | 羊皮紙                              |
| 119  | PE 47      | 230        | 坪量 18 ポンドの天然紙                    |
| 120  | PE 3       | 230        | 三層カップ板紙 (210g/m <sup>2</sup> 坪量) |

【 0 4 0 4 】

## 【表 2 4】

|     |       |     |                                 |    |
|-----|-------|-----|---------------------------------|----|
| 121 | PE 7  | 240 | 三層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 坪量) |    |
| 122 | PE 10 | 210 | 三層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 坪量) |    |
| 123 | PE 18 | 250 | 三層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 坪量) |    |
| 124 | PE 23 | 220 | 三層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 坪量) |    |
| 125 | PE 25 | 225 | 三層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 坪量) |    |
| 126 | PE 28 | 220 | 三層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 坪量) |    |
| 127 | PE 31 | 220 | 三層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 坪量) | 10 |
| 128 | PE 34 | 190 | 三層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 坪量) |    |
| 129 | PE 37 | 160 | 三層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 坪量) |    |
| 130 | PE 40 | 155 | 三層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 坪量) |    |
| 131 | PE 44 | 210 | 三層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 坪量) |    |
| 132 | PE 48 | 250 | 三層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 坪量) |    |
| 133 | PE 5  | 230 | 18 ポイント板紙                       |    |
| 134 | PE 11 | 250 | 12 ポイント板紙                       |    |
| 135 | PE 16 | 250 | 18 ポイント板紙                       | 20 |
| 136 | PE 19 | 245 | 12 ポイント板紙                       |    |
| 137 | PE 22 | 250 | 18 ポイント板紙                       |    |
| 138 | PE 26 | 220 | 12 ポイント板紙                       |    |
| 139 | PE 29 | 220 | 18 ポイント板紙                       |    |
| 140 | PE 32 | 195 | 12 ポイント板紙                       |    |
| 141 | PE 35 | 180 | 18 ポイント板紙                       |    |
| 142 | PE 38 | 210 | 12 ポイント板紙                       |    |
| 143 | PE 46 | 210 | 18 ポイント板紙                       |    |
| 144 | PE 49 | 250 | 12 ポイント板紙                       | 30 |

## 【0 4 0 5】

実施例 1 0 6 ~ 1 1 9 をファーストフードサンドイッチのラップ包装材として試験すると、優れたデッドフォールド性能を持つことが分かる。

## 【0 4 0 6】

実施例 1 0 6 ~ 1 1 9 を形成し、従来のプロセスで封筒や袋（たとえば、廃棄物用の袋、ごみ袋、葉を入れる袋、飛行機酔い用の袋、食料雑貨用の袋などを含む）の形にヒートシールする。

## 【0 4 0 7】

実施例 1 2 0 ~ 1 3 2 については、従来のプロセスで、カップ、グラス、ボール、トレイ、液体用容器やカートン（たとえば、牛乳、ジュース、水、ワイン、ヨーグルト、クリーム、ソーダ水用のものを含む）などの形にする。

40

## 【0 4 0 8】

実施例 1 3 3 ~ 1 4 4 については、従来のプロセスで、トレイ、箱、蓋付きのサンドイッチ容器、蓋付きのサラダ容器、ヒンジ付サンドイッチ容器、ヒンジ付サラダ容器などの形にする。

## 【0 4 0 9】

上記比較例 C E 5 および C E 6 ならびに実施例 1 0 6 のラミネートの切片（8 インチ×8 インチ四方）を、混合都市固体廃棄物（ガラス、缶、軽量プラスチックおよび紙の大半を除去済み）約 0 . 5 立方ヤード平方と下水汚泥とが約 2 : 1 の比で入った回転式コ

50

ンポスターに入れる。コンポスターを週に1度回転させ、温度と水分量を監視する。実施例106のラミネートの方が、比較例CE 5およびCE 6のラミネートで見られるよりも少なくとも10パーセント速く分解されることが分かる。

#### 【0410】

(実施例145)

押出コート紙ラミネートを後述するように調製する。大規模に行ったこと以外は上記調製例PE 37で説明したものと同様にして生成した樹脂を、60で一晩乾燥させる。続いて、この樹脂を、幅18インチのフィルムダイをギャップ0.007インチで設けた1インチ(2.5cm)の押出機(エクリンマニュファクチャリングカンパニー(Echlin Manufacturing Company)シリアル番号0717)の入口の上にあるホッパーに入れる。幅18インチの不織布を、バーモント州セントアルバンス(St. Albans)のパーテックインコーポレイテッド(Ber tek Inc.)製の押出コーティング機に47~106フィート/分の速度で連続して送る。コーティング対象となる紙(幅11インチ、18ポンドの原紙)を上記支持材布帛上に供給し、この組み合わせに対してコロナ処理(インターコン(Intercon)製)をほどこし、150~260°Fに加熱したトウの4インチ径のロール間のS経系を経て、ポリテトラフルオロエチレンをコーティングした直径12インチ(30cm)のマット仕上げチルロールに、100~200°Fで、この直径12インチのロールの円周300度前後送る一方、チルロールとニップロールとの間でチルロールにできるだけ近い(約0.25~0.50インチ)位置で、所望の厚さのコーティングを得るのに適切であることが分かっている送達速度で樹脂をダイから押し出す。押出機内のポリマー温度は315°F、ダイ内のポリマー温度は320°Fである。ポリマー温度を調節して、フローのばらつきを最小限に抑えるようにしてもよい。厚さ0.5ミルのフィルムを紙に適用する。

#### 【0411】

この紙ラミネートを、ファーストフードサンドイッチのラップ包装材として試験すると、優れたデッドフォールド性能を持つことが分かる。

#### 【0412】

上記ラミネートの切片(8インチ×8インチ四方)を、混合都市固体廃棄物(ガラス、缶、軽量プラスチックおよび紙の大半を除去済み)約0.5立方ヤード平方と下水汚泥とが約2:1の比で入った回転式コンポスターに入れる。コンポスターを週に1度回転させ、温度と水分量を監視する。本発明のラミネートは、すみやかに分解されることが分かる。

#### 【0413】

(実施例146)

押出コート紙ラミネートを後述するように調製する。大規模に行ったこと以外は上記調製例PE 40で説明したものと同様にして生成した樹脂を、60で一晩乾燥させる。続いて、この樹脂を、幅18インチのフィルムダイをギャップ0.007インチで設けた1インチ(2.5cm)の押出機(エクリンマニュファクチャリングカンパニー(Echlin Manufacturing Company)シリアル番号0717)の入口の上にあるホッパーに入れる。幅18インチの不織布を、バーモント州セントアルバンス(St. Albans)のパーテックインコーポレイテッド(Ber tek Inc.)製の押出コーティング機に47~106フィート/分の速度で連続して送る。コーティング対象となる紙(幅11インチ、坪量18ポンドの漂白クラフト原紙)を上記支持材布帛上に供給し、この組み合わせに対してコロナ処理(インターコン(Intercon)製)をほどこし、150~260°Fに加熱したトウの4インチ径のロール間のS経系を経て、ポリテトラフルオロエチレンをコーティングした直径12インチ(30cm)のマット仕上げチルロールに、100~200°Fで、この直径12インチのロールの円周300度前後送る一方、チルロールとニップロールとの間でチルロールにできるだけ近い(約0.25~0.50インチ)位置で、所望の厚さのコーティングを得るのに適切であることが分かっている送達速度で樹脂をダイから押し出す。押出機内のポリマー温度は315

° F、ダイ内のポリマー温度は 320 ° F である。ポリマー温度を調節して、フローのばらつきを最小限に抑えるようにしてもよい。厚さ 0.5 ミルのフィルムを紙に適用する。

#### 【0414】

この紙ラミネートを、ファーストフードサンドイッチのラップ包装材として試験すると、優れたデッドフォールド性能を持つことが分かる。

#### 【0415】

上記ラミネートの切片（8 インチ×8 インチ四方）を、混合都市固体廃棄物（ガラス、缶、軽量プラスチックおよび紙の大半を除去済み）約 0.5 立方ヤード平方と下水汚泥とが約 2：1 の比で入った回転式コンポスターに入れる。コンポスターを週に 1 度回転させ、温度と水分量を監視する。本発明のラミネートは、すみやかに分解されることが分かる。

#### 【0416】

##### （実施例 147）

大規模に行ったこと以外は調製例 33 で説明したものと同様にして調製したポリマーと、ポリ（ラクチド）（カーギルダウカンパニー（Cargill Dow Company）から入手）を、60 にて一晚、-40 の露点までホッパードライヤーで乾燥させる。坪量 210 グラム/メートル<sup>2</sup> の三層板紙に、フォワード速度 150 メートル/分で、前記調製例 33 のポリマーとポリ（ラクチド）を重量比 1：3 で同時押出する。調製例 33 のポリマーの融点は 210 であり、ポリ（ラクチド）の融点は 240 °C である。外層を構成するポリ（ラクチド）の重量比が 75 重量パーセント、板紙に密着した内層を構成する調製例 33 のポリマーが 25 重量パーセントでポリマーコーティングの総重量が 19.4 グラム/メートル<sup>2</sup> のコート板紙を得る。

#### 【0417】

上記にて調製した板紙については、従来のプロセスで、カップ、グラス、ボール、トレイ、液体用容器やカートン（たとえば、牛乳、ジュース、水、ワイン、ヨーグルト、クリーム、ソーダ水用のものを含む）などの形にする。

#### 【0418】

##### （実施例 148 ~ 153）

以下の表 19 に示す実施例で上述したようにして生成したフィルムを剥離紙にコーティングしたものを、コーティング対象となる同様の大きさの紙シートと接触させてアセンブリを作り、このアセンブリを加熱した研磨金属トップロールと未加熱の弾力性（シルク）ロールとの間のニップで、表面速度 5 ヤード/分、温度 200 ° F、10 トンの圧力下でプレスして、カレンダー紙ラミネートを調製する。

#### 【0419】

本発明のラミネート紙製品のさまざまな紙支持体の詳細を以下の表 19 にあげておく。

#### 【0420】

#### 【表 25】

表 19

| フィルム<br>実施例 | 紙<br>実施例 | 紙の坪量/支持体厚<br>(オンス/ヤード <sup>2</sup> /ミル) |
|-------------|----------|-----------------------------------------|
| 148         | 4        | タオル(スコット、ビバ(Viva)) 1.2/6                |
| 149         | 8        | タオル(G.P.、スパークル(Sparkle)) 1.3/10         |
| 150         | 25       | トイレットペーパー(チャーミン(Charmin)) 0.9/6         |
| 151         | 30       | 包装用薄紙(白) 0.5/2                          |
| 152         | 35       | 新聞印刷用紙 1.5/4                            |
| 153         | 83       | クラフト紙(再生) 2.8/6                         |

## 【 0 4 2 1 】

上記ラミネートの切片（ 8 インチ × 8 インチ四方）を、混合都市固体廃棄物（ガラス、缶、軽量プラスチックおよび紙の大半を除去済み）約 0 . 5 立方ヤード平方と下水汚泥とが約 2 : 1 の比で入った回転式コンポスターに入れる。コンポスターを週に 1 度回転させ、温度と水分量を監視する。本発明のラミネートは、すみやかに分解されることが分かる。

## 【 0 4 2 2 】

（実施例 1 5 4 ）

2 種類の水性アクリル接着剤組成物を組み合わせたものを利用して、板紙とコロナ処理したポリエステルフィルムとを組み合わせたものからラミネートストックを生成する。板紙の原紙は、一般に solid bleached sulfate ( S B S ) 板紙と呼ばれるタイプの漂白した白色板紙であり、食品包装材用原紙として周知である。ここで利用した個々の板紙は、厚さ 0 . 0 2 3 5 インチ、3 , 0 0 0 平方フィートあたりの秤量 2 8 2 ポンドの未コート牛乳パック原紙である。上記実施例 2 4 で説明したようにしてフィルムを生成し、従来の手法で片面にコロナ放電処理をほどこして、接着剤の結合性を良くする。ラミネーションプロセスは、接着剤ステーションで接着剤を板紙とフィルムの両方に塗布するようにして従来のウェットボンドラミネート加工機で行う。板紙 1 , 0 0 0 平方フィートあたり約 3 ポンドの液状接着剤を塗布できる 1 1 0 ラインのグラビアロールアプリケーションで接着剤を板紙に塗布する。板紙に塗布される接着剤は、ロームアンドハースカンパニー ( R o h m & H a a s C o m p a n y ) から入手した R h o p l e x ( 登録商標 ) N - 1 0 3 1 アクリルラテックス 2 0 0 ポンドと、ダイヤモンドシャムロックケミカルカンパニー ( D i a m o n d S h a m r o c k C h e m i c a l C o m p a n y ) から入手した F o a m a s t e r N X Z 消泡剤（あらかじめ同容量の水を加えておく）1 . 5 オンスとで構成される。ポリエステルフィルムのコロナ処理した側に接着剤を塗布する。塗布する接着剤は、ロームアンドハースカンパニー ( R o h m & H a a s C o m p a n y ) から入手した R h o p l e x ( 登録商標 ) N - 1 0 3 1 アクリルラテックス 3 7 5 ポンドと、C y m e l ( 登録商標 ) 3 2 5 メラミン - ホルムアルデヒド架橋剤 1 1 . 5 ポンドと、イソプロピルアルコール 1 1 . 5 ポンドと、水 2 3 ポンドと、ダイヤモンドシャムロックケミカルカンパニー ( D i a m o n d S h a m r o c k C h e m i c a l C o m p a n y ) から入手した F o a m a s t e r N X Z 消泡剤（あらかじめ同容量の水を加えておく）3 オンスとで構成される。

## 【 0 4 2 3 】

それぞれの接着剤塗布ステーションを同時に移動する板紙とフィルムに対してラミネートプロセスを実施した後、板紙とフィルムを両方ともラミネーションニップに送り、それぞれの表面でまだ湿っている接着剤で 2 つの接着剤コート表面を結合する。ラミネート加工機については、1 分あたり 3 0 0 から 3 5 0 フィートで稼働させる。ラミネートストックをラミネーションニップに送って空気温度 4 0 0 ° F の高温の空気オープンに入れる。ラミネートストックのオープン内の滞留時間は約 5 秒である。このラミネートストックをチルロールの上に通し、仕上げロールに巻き取り直す。

## 【 0 4 2 4 】

上記にて調製したラミネートストックについては、従来のプロセスで、カップ、グラス、ボール、トレイ、液体用容器やカートン（たとえば、牛乳、ジュース、水、ワイン、ヨーグルト、クリーム、ソーダ水用のものを含む）などの形にする。

## 【 0 4 2 5 】

（実施例 1 5 5 ~ 1 8 8 および比較例 C E 7 および C E 8 ）

これらの実施例は、本発明のフィルムを予備成形支持体にラミネーションすることについて示すものである。1 0 × 1 0 インチのプラテンを備えたラブフォームインコーポレイテッド ( L a b F o r m I n c . ) の成形機でオペレーションを実施する。予備成形支持体をプラテンで往復させる。フィルムを巻き出し、以下の表 2 0 に示す時間、赤外線タイプのヒーターを用いて「ブラックボックスヒーティング」で予備加熱する。予備加熱

したフィルムを予備成形支持体上に位置決めし、予備成形支持体まで引き下ろす。実施例 155 ~ 165 と比較例 C E 7 および C E 8 では、予備成形支持体を介して真空を作り出し、これによってフィルムを予備成形支持体の輪郭に合わせる真空積層を利用する。実施例 166 ~ 177 では、上述した真空に加えて、プラグによって予備加熱フィルムを予備成形支持体とは反対側から押しやすくし、深絞り成形予備成形支持体に付されるフィルムが薄くなってしまふのを低減するプラグアシスト真空積層を利用する。実施例 178 ~ 188 では、予備成形支持体とは反対の予備加熱フィルム側に空気圧を印加し、これによってフィルムを予備成形支持体の輪郭に合わせる加圧積層を利用する。ラミネーションプロセスには一般に 5 から 100 秒かかり、この時点で余分なフィルムをラミネート支持体から切り落とし、ラミネート支持体を取り出して冷却する。

10

## 【0426】

本発明のこれらの実施例で利用する予備成形支持体は以下のとおりである。従来のプロセスで製造した 9 インチの成形「パルププレート」。従来のプロセスで製造した成形冷凍ディナー用板紙「トレイ」。従来のプロセスで製造した高さ 3.5 インチの成形板紙コーヒー「カップ」。従来のプロセスで製造した高さ 3 インチ、直径 4 インチの成形板紙「ボール」。アースシェルカンパニー (Earth Shell Company) から入手した市販のプレート皿 (ストック番号 P L 9 V 0 0 0 0 1) からバリアフィルムを慎重に剥がして得た 9 インチの「発泡体プレート」。アースシェルカンパニー (Earth Shell Company) から入手した市販のボール (ストック番号 B L 1 2 V 0 0 0 0 1) からバリアフィルムを慎重に剥がして得た 12 オンスの「発泡体ボール」。アースシェ

20

## 【0427】

比較例 C E 7 および C E 8 ならびに実施例 155 のラミネートパルププレートを、混合都市固体廃棄物 (ガラス、缶、軽量プラスチックおよび紙の大半を除去済み) 約 0.5 立方ヤード平方と下水汚泥とが約 2 : 1 の比で入った回転式コンポスターに入れる。コンポスターを週に 1 度回転させ、温度と水分量を監視する。実施例 155 のラミネートパルププレートの方が、比較例 C E 7 および C E 8 のラミネートパルププレートで見られるよりも少なくとも 10 パーセント速く分解されることが分かる。

30

## 【0428】

## 【表 2 6】

表 20

| 実施例  | フィルム<br>実施例 | フィルム<br>予備加熱時間<br>(秒) | 予備成形支持体  |    |
|------|-------------|-----------------------|----------|----|
| CE 7 | CE 2        | 40                    | パルププレート皿 |    |
| CE 8 | CE 3        | 60                    | パルププレート皿 |    |
| 155  | 4           | 30                    | パルププレート皿 |    |
| 156  | 8           | 40                    | トレー      | 10 |
| 157  | 18          | 40                    | カップ      |    |
| 158  | 24          | 30                    | ボール      |    |
| 159  | 29          | 15                    | 発泡体プレート皿 |    |
| 160  | 32          | 30                    | 発泡体ボール   |    |
| 161  | 35          | 15                    | 発泡体容器    |    |
| 162  | 38          | 20                    | パルププレート皿 |    |
| 163  | 45          | 50                    | トレー      |    |
| 164  | 76          | 20                    | 発泡体プレート皿 | 20 |
| 165  | 79          | 20                    | 発泡体容器    |    |
| 166  | 5           | 40                    | カップ      |    |
| 167  | 9           | 40                    | ボール      |    |
| 168  | 21          | 40                    | 発泡体ボール   |    |
| 169  | 25          | 30                    | 発泡体容器    |    |
| 170  | 30          | 20                    | カップ      |    |
| 171  | 33          | 20                    | ボール      |    |
| 172  | 36          | 10                    | 発泡体ボール   |    |
| 173  | 40          | 20                    | 発泡体容器    | 30 |
| 174  | 51          | 40                    | カップ      |    |
| 175  | 77          | 15                    | ボール      |    |
| 176  | 80          | 30                    | 発泡体ボール   |    |

## 【 0 4 2 9 】

【表 27】

|     |    |    |          |
|-----|----|----|----------|
| 177 | 86 | 40 | 発泡体容器    |
| 178 | 6  | 40 | パルププレート皿 |
| 179 | 10 | 30 | トレー      |
| 180 | 22 | 40 | カップ      |
| 181 | 26 | 25 | ボール      |
| 182 | 30 | 25 | 発泡体プレート皿 |
| 183 | 34 | 20 | 発泡体ボール   |
| 184 | 37 | 10 | 発泡体容器    |
| 185 | 59 | 20 | パルププレート皿 |
| 186 | 78 | 10 | トレー      |
| 187 | 82 | 20 | 発泡体プレート皿 |
| 188 | 87 | 40 | パルププレート皿 |

10

次に、本発明の好ましい態様を示す。

1. ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計 100 モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約 80.0 から約 20.0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分約 20.0 から約 80.0 モルパーセントと、スルホネート成分約 0.1 から約 10.0 モルパーセントと；グリコール成分と分枝剤の合計 100 モルパーセントに対して、エチレングリコールと、1,3-プロパンジオールと、1,4-ブタンジオールとからなる群から選択される第 1 のグリコール成分約 99.9 から約 76.0 モルパーセントと、第 2 のグリコール成分 0 から約 5.0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分約 0.1 から約 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5.0 モルパーセントとを含むスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを含むことを特徴とする、フィルム。

20

2. 少なくとも 1 種のフィラーをさらに含むことを特徴とする、上記 1 に記載のフィルム。

30

3. 前記フィラーが、第 1 の組の粒子と第 2 の組の粒子とからなる空間充填混合物を含み、前記第 1 の組の粒子は平均粒径が約 5 ミクロン以上であり、前記第 2 の組の粒子は平均粒径が約 0.7 ミクロン以下であることを特徴とする、上記 2 に記載のフィルム。

4. フィラーが、無機フィラーと、有機フィラーと、粘土フィラーとからなる群から選択されることを特徴とする、上記 2 に記載のフィルム。

5. 前記無機フィラーが、炭酸カルシウムと、二酸化チタンと、シリカと、タルクと、硫酸バリウムと、ガラスビーズと、ガラス繊維と、カーボンブラックと、セラミックと、チョークと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 4 に記載のフィルム。

6. 前記有機フィラーが、天然澱粉と、変性澱粉と、化学変性澱粉と、米澱粉と、トウモロコシ澱粉と、木粉と、セルロースと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 4 に記載のフィルム。

40

7. 前記粘土フィラーが、天然粘土と、合成粘土と、処理粘土と、未処理粘土と、有機粘土と、スメクタイト粘土と、ベントナイト粘土と、ヘクトライト粘土と、ウォラストナイト粘土と、モンモリロナイト粘土と、カオリンと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 4 に記載のフィルム。

8. ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計 100 モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約 80.0 から約 20.0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分約 20.0 から約 80.0 モルパーセントと、スルホネート成分約 0.1 から約 10.0 モルパーセントと；

50



グリコール成分と分枝剤の合計 100 モルパーセントに対して、エチレングリコールと、1,3-プロパンジオールと、1,4-ブタンジオールとからなる群から選択される第 1 のグリコール成分約 99.9 から約 76.0 モルパーセントと、第 2 のグリコール成分 0 から約 5.0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分約 0.1 から約 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5.0 モルパーセントとを含むスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステル約 95.0 から約 5.0 重量パーセントと、ポリマー材料約 5.0 から約 95.0 重量パーセントとを含むブレンドを含むことを特徴とする、フィルム。

9. ポリマー材料が、生分解性材料と、非生分解性材料と、天然由来の材料と、変性させた天然由来の材料と、合成材料と、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 8 に記載のフィルム。

10

10. 前記ポリマー材料が生分解性材料であることを特徴とする、上記 9 に記載のフィルム。

11. 前記生分解性材料が、ポリ(アルカノエート)と、脂肪族ポリエステルと、脂肪族芳香族ポリエステルと、脂肪族芳香族ポリエーテルエステルと、脂肪族芳香族ポリアミドエステルと、スルホン化脂肪族芳香族ポリエステルと、スルホン化脂肪族芳香族ポリエーテルエステルと、熱可塑性を有する澱粉と、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 10 に記載のフィルム。

12. 前記ポリマー材料が非生分解性材料であることを特徴とする、上記 9 に記載のフィルム。

20

13. フィラーをさらに含むことを特徴とする、上記 8 に記載のフィルム。

14. 前記フィラーが、第 1 の組の粒子と第 2 の組の粒子とからなる空間充填混合物を含み、前記第 1 の組の粒子は平均粒径が約 5 ミクロン以上であり、前記第 2 の組の粒子は平均粒径が約 0.7 ミクロン以下であることを特徴とする、上記 13 に記載のフィルム。

15. フィラーが、無機フィラーと、有機フィラーと、粘土フィラーとからなる群から選択されることを特徴とする、上記 13 に記載のフィルム。

16. 前記無機フィラーが、炭酸カルシウムと、二酸化チタンと、シリカと、タルクと、硫酸バリウムと、ガラスビーズと、ガラス繊維と、カーボンブラックと、セラミックと、チョークと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 15 に記載のフィルム。

30

17. 前記有機フィラーが、天然澱粉と、変性澱粉と、化学変性澱粉と、米澱粉と、トウモロコシ澱粉と、木粉と、セルロースと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 15 に記載のフィルム。

18. 前記粘土フィラーが、天然粘土と、合成粘土と、処理粘土と、未処理粘土と、有機粘土と、スメクタイト粘土と、ベントナイト粘土と、ヘクトライト粘土と、ウォラストナイト粘土と、モンモリロナイト粘土と、カオリンと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 15 に記載のフィルム。

19. ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計 100 モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約 80.0 から約 50.0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分約 20.0 から約 50.0 モルパーセントと、スルホネート成分約 0.1 から約 4.0 モルパーセントと、

40

グリコール成分と分枝剤の合計 100 モルパーセントに対して、エチレングリコールと、1,3-プロパンジオールと、1,4-ブタンジオールとからなる群から選択される第 1 のグリコール成分約 99.9 から約 91.0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分約 0.1 から約 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 1.0 モルパーセントと、を含むスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを含むことを特徴とする、フィルム。

20. ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計 100 モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約 80.0 から約 50.0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボ

50

ン酸成分約 20.0 から約 50.0 モルパーセントと、スルホネート成分約 0.1 から約 4.0 モルパーセントと；

グリコール成分と分枝剤の合計 100 モルパーセントに対して、エチレングリコールと、1,3-プロパンジオールと、1,4-ブタンジオールとからなる群から選択される第 1 のグリコール成分約 99.9 から約 91.0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分約 0.1 から約 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 1.0 モルパーセントと

を含むスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステル約 95.0 から約 5.0 重量パーセントと、ポリマー材料約 5.0 から約 95.0 重量パーセントとを含むブレンドを含むことを特徴とする、フィルム。

10

21. ポリマー材料が、生分解性材料と、非生分解性材料と、天然由来の材料と、変性させた天然由来の材料と、合成材料と、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 20 に記載のフィルム。

22. 前記ポリマー材料が生分解性材料であることを特徴とする、上記 21 に記載のフィルム。

23. 前記生分解性材料が、ポリ(アルカノエート)と、脂肪族ポリエステルと、脂肪族芳香族ポリエステルと、脂肪族芳香族ポリエーテルエステルと、脂肪族芳香族ポリアミドエステルと、スルホン化脂肪族芳香族ポリエステルと、スルホン化脂肪族芳香族ポリエーテルエステルと、熱可塑性を有する澱粉と、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 22 に記載のフィルム。

20

24. 前記ポリマー材料が非生分解性材料であることを特徴とする、上記 22 に記載のフィルム。

25. 少なくとも 1 種のフィラーをさらに含むことを特徴とする、上記 20 に記載のフィルム。

26. 前記フィラーが、第 1 の組の粒子と第 2 の組の粒子とからなる空間充填混合物を含み、前記第 1 の組の粒子は平均粒径が約 5 ミクロン以上であり、前記第 2 の組の粒子は平均粒径が約 0.7 ミクロン以下であることを特徴とする、上記 25 に記載のフィルム。

27. フィラーが、無機フィラーと、有機フィラーと、粘土フィラーとからなる群から選択されることを特徴とする、上記 25 に記載のフィルム。

28. 前記無機フィラーが、炭酸カルシウムと、二酸化チタンと、シリカと、タルクと、硫酸バリウムと、ガラスビーズと、ガラス繊維と、カーボンブラックと、セラミックと、チョークと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 27 に記載のフィルム。

30

29. 前記有機フィラーが、天然澱粉と、変性澱粉と、化学変性澱粉と、米澱粉と、トウモロコシ澱粉と、木粉と、セルロースと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 27 に記載のフィルム。

30. 前記粘土フィラーが、天然粘土と、合成粘土と、処理粘土と、未処理粘土と、有機粘土と、スメクタイト粘土と、ベントナイト粘土と、ヘクトライト粘土と、ウォラストナイト粘土と、モンモリロナイト粘土と、カオリンと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 27 に記載のフィルム。

40

31. ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計 100 モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約 80.0 から約 20.0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分約 20.0 から約 80.0 モルパーセントと、スルホネート成分約 0.1 から約 10.0 モルパーセントと；

グリコール成分と分枝剤の合計 100 モルパーセントに対して、エチレングリコールと、1,3-プロパンジオールと、1,4-ブタンジオールとからなる群から選択される第 1 のグリコール成分約 99.9 から約 76.0 モルパーセントと、第 2 のグリコール成分 0 から約 5.0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分約 0.1 から約 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5.0 モルパーセントと

を含むスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを含む少なくとも 1 つの層と、ポ

50

リマー材料を含む少なくとも１つの層とを有する２から６層を含むことを特徴とする、多層フィルム。

３２．ポリマー材料が、生分解性材料と、非生分解性材料と、天然由来の材料と、変性させた天然由来の材料と、合成材料と、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記３１に記載の多層フィルム。

３３．前記ポリマー材料が生分解性材料であることを特徴とする、上記３１に記載の多層フィルム。

３４．前記生分解性材料が、ポリ（アルカノエート）と、脂肪族ポリエステルと、脂肪族芳香族ポリエステルと、脂肪族芳香族ポリエーテルエステルと、脂肪族芳香族ポリアミドエステルと、スルホン化脂肪族芳香族ポリエステルと、スルホン化脂肪族芳香族ポリエーテルエステルと、熱可塑性を有する澱粉と、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記３３に記載の多層フィルム。

３５．前記ポリマーが非生分解性材料であることを特徴とする、上記２８に記載の多層フィルム。

３６．少なくとも１種のフィラーをさらに含むことを特徴とする、上記３１に記載の多層フィルム。

３７．前記フィラーが、第１の組の粒子と第２の組の粒子とからなる空間充填混合物を含み、前記第１の組の粒子は平均粒径が約５ミクロン以上であり、前記第２の組の粒子は平均粒径が約０．７ミクロン以下であることを特徴とする、上記３６に記載の多層フィルム。

３８．フィラーが、無機フィラーと、有機フィラーと、粘土フィラーとからなる群から選択されることを特徴とする、上記３６に記載の多層フィルム。

３９．前記無機フィラーが、炭酸カルシウムと、二酸化チタンと、シリカと、タルクと、硫酸バリウムと、ガラスビーズと、ガラス繊維と、カーボンブラックと、セラミックと、チョークと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記３８に記載の多層フィルム。

４０．前記有機フィラーが、天然澱粉と、変性澱粉と、化学変性澱粉と、米澱粉と、トウモロコシ澱粉と、木粉と、セルロースと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記３８に記載の多層フィルム。

４１．前記粘土フィラーが、天然粘土と、合成粘土と、処理粘土と、未処理粘土と、有機粘土と、スメクタイト粘土と、ベントナイト粘土と、ヘクトライト粘土と、ウォラストナイト粘土と、モンモリロナイト粘土と、カオリンと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記３８に記載の多層フィルム。

４２．２から６層を含む多層フィルムであって、少なくとも１層が、ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計１００モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約８０．０から約５０．０モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分約２０．０から約５０．０モルパーセントと、スルホネート成分約０．１から約４．０モルパーセントと、

グリコール成分と分枝剤の合計１００モルパーセントに対して、エチレングリコールと、１，３－プロパンジオールと、１，４－ブタンジオールとからなる群から選択される第１のグリコール成分約９９．９から約９１．０モルパーセントと、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分約０．１から約４．０モルパーセントと、多官能性分枝剤０から１．０モルパーセントと、

を含むスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを含み、

少なくとも１層がポリマー材料を含むことを特徴とする、多層フィルム。

４３．ポリマー材料が、生分解性材料と、非生分解性材料と、天然由来の材料と、変性させた天然由来の材料と、合成材料と、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記４２に記載の多層フィルム。

４４．前記ポリマー材料が生分解性材料であることを特徴とする、上記４３に記載の多層フィルム。

10

20

30

40

50

45. 前記生分解性材料が、ポリ(アルカノエート)と、脂肪族ポリエステルと、脂肪族芳香族ポリエステルと、脂肪族芳香族ポリエーテルエステルと、脂肪族芳香族ポリアミドエステルと、スルホン化脂肪族芳香族ポリエステルと、スルホン化脂肪族芳香族ポリエーテルエステルと、熱可塑性を有する澱粉と、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記44に記載の多層フィルム。

46. 前記ポリマー材料が非生分解性材料であることを特徴とする、上記43に記載の多層フィルム。

47. 少なくとも1種のフィラーをさらに含むことを特徴とする、上記42に記載の多層フィルム。

48. 前記フィラーが、第1の組の粒子と第2の組の粒子とからなる空間充填混合物を含み、前記第1の組の粒子は平均粒径が約5ミクロン以上であり、前記第2の組の粒子は平均粒径が約0.7ミクロン以下であることを特徴とする、上記47に記載の多層フィルム。

49. フィラーが、無機フィラーと、有機フィラーと、粘土フィラーとからなる群から選択されることを特徴とする、上記47に記載の多層フィルム。

50. 前記無機フィラーが、炭酸カルシウムと、二酸化チタンと、シリカと、タルクと、硫酸バリウムと、ガラスビーズと、ガラス繊維と、カーボンブラックと、セラミックと、チョークと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記49に記載の多層フィルム。

51. 前記有機フィラーが、天然澱粉と、変性澱粉と、化学変性澱粉と、米澱粉と、トウモロコシ澱粉と、木粉と、セルロースと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記49に記載の多層フィルム。

52. 前記粘土フィラーが、天然粘土と、合成粘土と、処理粘土と、未処理粘土と、有機粘土と、スメクタイト粘土と、ベントナイト粘土と、ヘクトライト粘土と、ウォラストナイト粘土と、モンモリロナイト粘土と、カオリンと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記49に記載の多層フィルム。

53. ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計100モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約80.0から約20.0モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分約20.0から約80.0モルパーセントと、スルホネート成分約0.1から約10.0モルパーセントと、

グリコール成分と分枝剤の合計100モルパーセントに対して、エチレングリコールと、1,3-プロパンジオールと、1,4-ブタンジオールとからなる群から選択される第1のグリコール成分約99.9から約76.0モルパーセントと、第2のグリコール成分0から約5.0モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分約0.1から約4.0モルパーセントと、多官能性分枝剤0から5.0モルパーセントと、を含むスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを含むことを特徴とする、配向フィルム。

54. フィラーをさらに含むことを特徴とする、上記53に記載の配向フィルム。

55. 前記フィラーが、第1の組の粒子と第2の組の粒子とからなる空間充填混合物を含み、前記第1の組の粒子は平均粒径が約5ミクロン以上であり、前記第2の組の粒子は平均粒径が約0.7ミクロン以下であることを特徴とする、上記54に記載の配向フィルム。

56. フィラーが、無機フィラーと、有機フィラーと、粘土フィラーとからなる群から選択されることを特徴とする、上記54に記載の配向フィルム。

57. 前記無機フィラーが、炭酸カルシウムと、二酸化チタンと、シリカと、カオリンと、硫酸バリウムと、ガラスビーズと、ガラス繊維と、カーボンブラックと、セラミックと、チョークと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記56に記載の配向フィルム。

58. 前記有機フィラーが、天然澱粉と、変性澱粉と、化学変性澱粉と、米澱粉と、トウモロコシ澱粉と、木粉と、セルロースと、それらの混合物とからなる群から選択される

10

20

30

40

50

ことを特徴とする、上記 5 6 に記載の配向フィルム。

5 9 . 前記粘土フィラーが、天然粘土と、合成粘土と、処理粘土と、未処理粘土と、有機粘土と、スメクタイト粘土と、ベントナイト粘土と、ヘクトライト粘土と、ウォラストナイト粘土と、モンモリロナイト粘土と、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 5 6 に記載の配向フィルム。

6 0 . ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計 1 0 0 モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約 8 0 . 0 から約 2 0 . 0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分約 2 0 . 0 から約 8 0 . 0 モルパーセントと、スルホネート成分約 0 . 1 から約 1 0 . 0 モルパーセントと；

グリコール成分と分枝剤の合計 1 0 0 モルパーセントに対して、エチレングリコールと、1, 3 - プロパンジオールと、1, 4 - ブタンジオールとからなる群から選択される第 1 のグリコール成分約 9 9 . 9 から約 7 6 . 0 モルパーセントと、第 2 のグリコール成分 0 から約 5 . 0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分約 0 . 1 から約 4 . 0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5 . 0 モルパーセントとを含むスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステル約 9 5 . 0 から約 5 . 0 重量パーセントと、ポリマー材料約 5 . 0 から約 9 5 . 0 重量パーセントとを含むブレンドを含むことを特徴とする、配向フィルム。

6 1 . ポリマー材料が、生分解性材料と、非生分解性材料と、天然由来の材料と、変性させた天然由来の材料と、合成材料と、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 6 0 に記載の配向フィルム。

6 2 . 前記ポリマー材料が生分解性材料であることを特徴とする、上記 6 1 に記載の配向フィルム。

6 3 . 前記生分解性材料が、ポリ(アルカノエート)と、脂肪族ポリエステルと、脂肪族芳香族ポリエステルと、脂肪族芳香族ポリエーテルエステルと、脂肪族芳香族ポリアミドエステルと、スルホン化脂肪族芳香族ポリエステルと、スルホン化脂肪族芳香族ポリエーテルエステルと、熱可塑性を有する澱粉と、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 6 2 に記載の配向フィルム。

6 4 . 前記ポリマーが非生分解性材料であることを特徴とする、上記 6 0 に記載の配向フィルム。

6 5 . 少なくとも 1 種のフィラーをさらに含むことを特徴とする、上記 6 0 に記載の配向フィルム。

6 6 . 前記フィラーが、第 1 の組の粒子と第 2 の組の粒子とからなる空間充填混合物を含み、前記第 1 の組の粒子は平均粒径が約 5 ミクロン以上であり、前記第 2 の組の粒子は平均粒径が約 0 . 7 ミクロン以下であることを特徴とする、上記 6 5 に記載の配向フィルム。

6 7 . フィラーが、無機フィラーと、有機フィラーと、粘土フィラーとからなる群から選択されることを特徴とする、上記 6 5 に記載の配向フィルム。

6 8 . 前記無機フィラーが、炭酸カルシウムと、二酸化チタンと、シリカと、タルクと、硫酸バリウムと、ガラスビーズと、ガラス繊維と、カーボンブラックと、セラミックと、チョークと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 6 7 に記載の配向フィルム。

6 9 . 前記有機フィラーが、天然澱粉と、変性澱粉と、化学変性澱粉と、米澱粉と、トウモロコシ澱粉と、木粉と、セルロースと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 6 7 に記載の配向フィルム。

7 0 . 前記粘土フィラーが、天然粘土と、合成粘土と、処理粘土と、未処理粘土と、有機粘土と、スメクタイト粘土と、ベントナイト粘土と、ヘクトライト粘土と、ウォラストナイト粘土と、モンモリロナイト粘土と、カオリンと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 6 7 に記載の配向フィルム。

7 1 . ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計 1 0 0 モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約 8 0 . 0 から約 5 0 . 0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボ

10

20

30

40

50

ン酸成分約 20.0 から約 50.0 モルパーセントと、スルホネート成分約 0.1 から約 4.0 モルパーセントと；

グリコール成分と分枝剤の合計 100 モルパーセントに対して、エチレングリコールと、1,3-プロパンジオールと、1,4-ブタンジオールとからなる群から選択される第 1 のグリコール成分約 99.9 から約 91.0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分約 0.1 から約 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 1.0 モルパーセントと

を含むスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを含むことを特徴とする、配向フィルム。

72. フィラーをさらに含むことを特徴とする、上記 71 に記載の配向フィルム。

73. 前記フィラーが、第 1 の組の粒子と第 2 の組の粒子とからなる空間充填混合物を含み、前記第 1 の組の粒子は平均粒径が約 5 ミクロン以上であり、前記第 2 の組の粒子は平均粒径が約 0.7 ミクロン以下であることを特徴とする、上記 71 に記載の配向フィルム。

74. フィラーが、無機フィラーと、有機フィラーと、粘土フィラーとからなる群から選択されることを特徴とする、上記 71 に記載の配向フィルム。

75. 前記無機フィラーが、炭酸カルシウムと、二酸化チタンと、シリカと、タルクと、硫酸バリウムと、ガラスビーズと、ガラス繊維と、カーボンブラックと、セラミックと、チョークと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 74 に記載の配向フィルム。

76. 前記有機フィラーが、天然澱粉と、変性澱粉と、化学変性澱粉と、米澱粉と、トウモロコシ澱粉と、木粉と、セルロースと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 74 に記載の配向フィルム。

77. 前記粘土フィラーが、天然粘土と、合成粘土と、処理粘土と、未処理粘土と、有機粘土と、スメクタイト粘土と、ベントナイト粘土と、ヘクトライト粘土と、ウォラストナイト粘土と、モンモリロナイト粘土と、カオリンと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 74 に記載の配向フィルム。

78. ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計 100 モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約 80.0 から約 50.0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分約 20.0 から約 50.0 モルパーセントと、スルホネート成分約 0.1 から約 4.0 モルパーセントと；

グリコール成分と分枝剤の合計 100 モルパーセントに対して、エチレングリコールと、1,3-プロパンジオールと、1,4-ブタンジオールとからなる群から選択される第 1 のグリコール成分約 99.9 から約 91.0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分約 0.1 から約 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 1.0 モルパーセントと

を含むスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステル約 95.0 から約 5.0 重量パーセントと、ポリマー材料約 5.0 から約 95.0 重量パーセントとを含むブレンドを含むことを特徴とする、配向フィルム。

79. ポリマー材料が、生分解性材料と、非生分解性材料と、天然由来の材料と、変性させた天然由来の材料と、合成材料と、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 78 に記載の配向フィルム。

80. 前記ポリマー材料が生分解性材料であることを特徴とする、上記 79 に記載の配向フィルム。

81. 前記生分解性材料が、ポリ(アルカノエート)と、脂肪族ポリエステルと、脂肪族芳香族ポリエステルと、脂肪族芳香族ポリエーテルエステルと、脂肪族芳香族ポリアミドエステルと、スルホン化脂肪族芳香族ポリエステルと、スルホン化脂肪族芳香族ポリエーテルエステルと、熱可塑性を有する澱粉と、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 80 に記載の配向フィルム。

82. 前記ポリマー材料が非生分解性材料であることを特徴とする、上記 79 に記載の

10

20

30

40

50

配向フィルム。

83. 少なくとも1種のフィラーをさらに含むことを特徴とする、上記78に記載の配向フィルム。

84. 前記フィラーが、第1の組の粒子と第2の組の粒子とからなる空間充填混合物を含み、前記第1の組の粒子は平均粒径が約5ミクロン以上であり、前記第2の組の粒子は平均粒径が約0.7ミクロン以下であることを特徴とする、上記83に記載の配向フィルム。

85. フィラーが、無機フィラーと、有機フィラーと、粘土フィラーとからなる群から選択されることを特徴とする、上記83に記載の配向フィルム。

86. 前記無機フィラーが、炭酸カルシウムと、二酸化チタンと、シリカと、タルクと、硫酸バリウムと、ガラスビーズと、ガラス繊維と、カーボンブラックと、セラミックと、チョークと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記85に記載の配向フィルム。

87. 前記有機フィラーが、天然澱粉と、変性澱粉と、化学変性澱粉と、米澱粉と、トウモロコシ澱粉と、木粉と、セルロースと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記85に記載の配向フィルム。

88. 前記粘土フィラーが、天然粘土と、合成粘土と、処理粘土と、未処理粘土と、有機粘土と、スメクタイト粘土と、ベントナイト粘土と、ヘクトライト粘土と、ウォラストナイト粘土と、モンモリロナイト粘土と、カオリンと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記85に記載の配向フィルム。

89. 2から6層を含む配向多層フィルムであって、少なくとも1層がスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを含み、該スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルが：

ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計100モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約80.0から約20.0モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分約20.0から約80.0モルパーセントと、スルホネート成分約0.1から約10.0モルパーセントと；

グリコール成分と分枝剤の合計100モルパーセントに対して、エチレングリコールと、1,3-プロパンジオールと、1,4-ブタンジオールとからなる群から選択される第1のグリコール成分約99.9から約76.0モルパーセントと、第2のグリコール成分0から約5.0モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分約0.1から約4.0モルパーセントと、多官能性分枝剤0から5.0モルパーセントとを含む、

少なくとも1つの層がポリマー材料を含むことを特徴とする、配向多層フィルム。

90. ポリマー材料が、生分解性材料と、非生分解性材料と、天然由来の材料と、変性させた天然由来の材料と、合成材料と、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記89に記載の配向多層フィルム。

91. 前記ポリマー材料が生分解性材料であることを特徴とする、上記90に記載の配向多層フィルム。

92. 前記生分解性材料が、ポリ(アルカノエート)と、脂肪族ポリエステルと、脂肪族芳香族ポリエステルと、脂肪族芳香族ポリエーテルエステルと、脂肪族芳香族ポリアミドエステルと、スルホン化脂肪族芳香族ポリエステルと、スルホン化脂肪族芳香族ポリエーテルエステルと、熱可塑性を有する澱粉と、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記91に記載の配向多層フィルム。

93. 前記ポリマーが非生分解性材料であることを特徴とする、上記90に記載の配向多層フィルム。

94. 少なくとも1種のフィラーをさらに含むことを特徴とする、上記89に記載の配向多層フィルム。

95. 前記フィラーが、第1の組の粒子と第2の組の粒子とからなる空間充填混合物を含み、前記第1の組の粒子は平均粒径が約5ミクロン以上であり、前記第2の組の粒子は

10

20

30

40

50

平均粒径が約 0.7 ミクロン以下であることを特徴とする、上記 94 に記載の配向フィルム。

96. フィラーが、無機フィラーと、有機フィラーと、粘土フィラーとからなる群から選択されることを特徴とする、上記 2 に記載のフィルム。

97. 前記無機フィラーが、炭酸カルシウムと、二酸化チタンと、シリカと、タルクと、硫酸バリウムと、ガラスビーズと、ガラス繊維と、カーボンブラックと、セラミックと、チョークと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 96 に記載の配向フィルム。

98. 前記有機フィラーが、天然澱粉と、変性澱粉と、化学変性澱粉と、米澱粉と、トウモロコシ澱粉と、木粉と、セルロースと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 96 に記載の配向フィルム。

10

99. 前記粘土フィラーが、天然粘土と、合成粘土と、処理粘土と、未処理粘土と、有機粘土と、スメクタイト粘土と、ベントナイト粘土と、ヘクトライト粘土と、ウォラストナイト粘土と、モンモリロナイト粘土と、カオリンと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 96 に記載の配向フィルム。

100. ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計 100 モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約 80.0 から約 50.0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分約 20.0 から約 50.0 モルパーセントと、スルホネート成分約 0.1 から約 4.0 モルパーセントと；

グリコール成分と分枝剤の合計 100 モルパーセントに対して、エチレングリコールと、1,3-プロパンジオールと、1,4-ブタンジオールとからなる群から選択される第 1 のグリコール成分約 99.9 から約 91.0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分約 0.1 から約 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 1.0 モルパーセントと

20

を含むスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを含む少なくとも 1 つの層と、ポリマー材料を含む少なくとも 1 層とを有する 2 から 6 層を含むことを特徴とする、配向多層フィルム。

101. ポリマー材料が、生分解性材料と、非生分解性材料と、天然由来の材料と、変性させた天然由来の材料と、合成材料と、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 100 に記載の配向多層フィルム。

30

102. 前記ポリマー材料が生分解性材料であることを特徴とする、上記 101 に記載の配向多層フィルム。

103. 前記生分解性材料が、ポリ(アルカノエート)と、脂肪族ポリエステルと、脂肪族芳香族ポリエステルと、脂肪族芳香族ポリエーテルエステルと、脂肪族芳香族ポリアミドエステルと、スルホン化脂肪族芳香族ポリエステルと、スルホン化脂肪族芳香族ポリエーテルエステルと、熱可塑性を有する澱粉と、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 102 に記載の配向多層フィルム。

104. 前記ポリマー材料が非生分解性材料であることを特徴とする、上記 101 に記載の配向多層フィルム。

105. 少なくとも 1 種のフィラーをさらに含むことを特徴とする、上記 100 に記載の配向フィルム。

40

106. 前記フィラーが、第 1 の組の粒子と第 2 の組の粒子とからなる空間充填混合物を含み、前記第 1 の組の粒子は平均粒径が約 5 ミクロン以上であり、前記第 2 の組の粒子は平均粒径が約 0.7 ミクロン以下であることを特徴とする、上記 105 に記載の配向フィルム。

107. フィラーが、無機フィラーと、有機フィラーと、粘土フィラーとからなる群から選択されることを特徴とする、上記 105 に記載の配向フィルム。

108. 前記無機フィラーが、炭酸カルシウムと、二酸化チタンと、シリカと、タルクと、硫酸バリウムと、ガラスビーズと、ガラス繊維と、カーボンブラックと、セラミックと、チョークと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1

50



07に記載の配向フィルム。

109. 前記有機フィラーが、天然澱粉と、変性澱粉と、化学変性澱粉と、米澱粉と、トウモロコシ澱粉と、木粉と、セルロースと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記107に記載の配向フィルム。

110. 前記粘土フィラーが、天然粘土と、合成粘土と、処理粘土と、未処理粘土と、有機粘土と、スメクタイト粘土と、ベントナイト粘土と、ヘクトライト粘土と、ウォラストナイト粘土と、モンモリロナイト粘土と、カオリンと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記107に記載の配向フィルム。

111. ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計100モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約80.0から約20.0モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分約20.0から約80.0モルパーセントと、スルホネート成分約0.1から約10.0モルパーセントと；

グリコール成分と分枝剤の合計100モルパーセントに対して、エチレングリコールと、1,3-プロパンジオールと、1,4-ブタンジオールとからなる群から選択される第1のグリコール成分約99.9から約76.0モルパーセントと、第2のグリコール成分0から約5.0モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分約0.1から約4.0モルパーセントと、多官能性分枝剤0から5.0モルパーセントと、を含むスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを含有するフィルムと、

支持体と

を含むことを特徴とする、物品。

112. 前記支持体が、紙と、板紙と、無機発泡体と、有機発泡体と、無機有機発泡体とからなる群から選択されることを特徴とする、上記111に記載の物品。

113. 前記フィルムがフィラーをさらに含むことを特徴とする、上記111に記載の物品。

114. 前記フィラーが、第1の組の粒子と第2の組の粒子とからなる空間充填混合物を含み、前記第1の組の粒子は平均粒径が約5ミクロン以上であり、前記第2の組の粒子は平均粒径が約0.7ミクロン以下であることを特徴とする、上記113に記載の物品。

115. フィラーが、無機フィラーと、有機フィラーと、粘土フィラーとからなる群から選択されることを特徴とする、上記105に記載の配向フィルム。

116. 前記無機フィラーが、炭酸カルシウムと、二酸化チタンと、シリカと、タルクと、硫酸バリウムと、ガラスビーズと、ガラス繊維と、カーボンブラックと、セラミックと、チョークと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記107に記載の配向フィルム。

117. 前記有機フィラーが、天然澱粉と、変性澱粉と、化学変性澱粉と、米澱粉と、トウモロコシ澱粉と、木粉と、セルロースと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記107に記載の配向フィルム。

118. 前記粘土フィラーが、天然粘土と、合成粘土と、処理粘土と、未処理粘土と、有機粘土と、スメクタイト粘土と、ベントナイト粘土と、ヘクトライト粘土と、ウォラストナイト粘土と、モンモリロナイト粘土と、カオリンと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記107に記載の配向フィルム。

119. パッケージ製造プロセスであって：

支持体を提供する工程と；

前記支持体を所望のパッケージ形態に成形する工程と；

ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計100モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約80.0から約20.0モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分約20.0から約80.0モルパーセントと、スルホネート成分約0.1から約10.0モルパーセントと；

グリコール成分と分枝剤の合計100モルパーセントに対して、エチレングリコールと、1,3-プロパンジオールと、1,4-ブタンジオールとからなる群から選択される第1のグリコール成分約99.9から約76.0モルパーセントと、第2のグリコール成分

10

20

30

40

50

0 から約 5 . 0 モルパーセントと、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分約 0 . 1 から約 4 . 0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5 . 0 モルパーセントと、を含むスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを提供する工程と；

前記支持体に前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルをラミネートまたはコーティングして前記パッケージを形成する工程とを含むことを特徴とする、パッケージ製造プロセス。

1 2 0 . 前記支持体が、紙と、板紙と、無機発泡体と、有機発泡体と、無機有機発泡体とからなる群から選択される材料を含むことを特徴とする、上記 1 1 9 に記載のプロセス。

1 2 1 . 前記パッケージ形態が、包装体と、ストレッチ包装用フィルムと、袋と、カップと、トレイと、カートンと、箱と、瓶と、箱枠と、包装用フィルムと、プリスターパック包装体と、スキン包装材と、ヒンジ付容器とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1 1 9 に記載のプロセス。

1 2 2 . ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計 1 0 0 モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約 8 0 . 0 から約 2 0 . 0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分約 2 0 . 0 から約 8 0 . 0 モルパーセントと、スルホネート成分約 0 . 1 から約 1 0 . 0 モルパーセントと；

グリコール成分と分枝剤の合計 1 0 0 モルパーセントに対して、エチレングリコールと、1 , 3 - プロパンジオールと、1 , 4 - ブタンジオールとからなる群から選択される第 1 のグリコール成分約 9 9 . 9 から約 7 6 . 0 モルパーセントと、第 2 のグリコール成分 0 から約 5 . 0 モルパーセントと、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分約 0 . 1 から約 4 . 0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5 . 0 モルパーセントとを含むスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを含有するフィルムと、支持体とを含むことを特徴とする、パッケージ。

1 2 3 . 前記パッケージが、包装体と、ストレッチ包装用フィルムと、袋と、カップと、トレイと、カートンと、箱と、瓶と、箱枠と、包装用フィルムと、プリスターパック包装体と、スキン包装材と、ヒンジ付容器とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1 2 2 に記載のパッケージ。

1 2 4 . 前記パッケージが支持体を含み、前記フィルムが前記支持体にラミネートされていることを特徴とする、上記 1 2 2 に記載のパッケージ。

1 2 5 . 前記支持体が、紙と、板紙と、無機発泡体と、有機発泡体と、無機有機発泡体とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1 2 4 に記載のパッケージ。

1 2 6 . 前記パッケージが、前記フィルムでコーティングされた支持体を含むことを特徴とする、上記 1 2 2 に記載のパッケージ。

1 2 7 . 前記支持体が、紙と、板紙と、無機発泡体と、有機発泡体と、無機有機発泡体とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1 2 6 に記載のパッケージ。

1 2 8 . 前記フィルムが一軸配向されたものであることを特徴とする、上記 1 2 2 に記載のパッケージ。

1 2 9 . 前記フィルムが二軸配向されたものであることを特徴とする、上記 1 2 2 に記載のパッケージ。

1 3 0 . 前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルがフィラーを含有することを特徴とする、上記 1 2 2 に記載のパッケージ。

1 3 1 . 前記フィラーが第 1 の組の粒子と第 2 の組の粒子との混合物を含み、前記第 1 の組の粒子は平均粒径が約 5 ミクロン以上であり、前記第 2 の組の粒子は平均粒径が約 0 . 7 ミクロン以下であることを特徴とする、上記 1 3 0 に記載のパッケージ。

1 3 2 . フィラーが、無機フィラーと、有機フィラーと、粘土フィラーとからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1 3 0 に記載のパッケージ。

1 3 3 . 前記無機フィラーが、炭酸カルシウムと、二酸化チタンと、シリカと、タルクと、硫酸バリウムと、ガラスビーズと、ガラス繊維と、カーボンブラックと、セラミックと、チョークと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1

10

20

30

40

50

3 2 に記載のパッケージ。

1 3 4 . 前記有機フィラーが、天然澱粉と、変性澱粉と、化学変性澱粉と、米澱粉と、トウモロコシ澱粉と、木粉と、セルロースと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1 3 2 に記載のパッケージ。

1 3 5 . 前記粘土フィラーが、天然粘土と、合成粘土と、処理粘土と、未処理粘土と、有機粘土と、スメクタイト粘土と、ベントナイト粘土と、ヘクトライト粘土と、ウォラストナイト粘土と、モンモリロナイト粘土と、カオリンと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1 3 2 に記載のパッケージ。

1 3 6 . 食品包装方法であって、

ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計 1 0 0 モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約 8 0 . 0 から約 2 0 . 0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分約 2 0 . 0 から約 8 0 . 0 モルパーセントと、スルホネート成分約 0 . 1 から約 1 0 . 0 モルパーセントと；

グリコール成分と分枝剤の合計 1 0 0 モルパーセントに対して、エチレングリコールと、1, 3 - プロパンジオールと、1, 4 - ブタンジオールとからなる群から選択される第 1 のグリコール成分約 9 9 . 9 から約 7 6 . 0 モルパーセントと、第 2 のグリコール成分 0 から約 5 . 0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分約 0 . 1 から約 4 . 0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5 . 0 モルパーセントとを含むスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを含むパッケージに前記食品を封入する工程を含むことを特徴とする、食品包装方法。

1 3 7 . 前記パッケージが支持体をさらに含み、前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルが前記支持体にラミネートまたはコーティングされていることを特徴とする、上記 1 3 6 に記載の方法。

1 3 8 . 前記支持体が、紙と、板紙と、無機発泡体と、有機発泡体と、無機有機発泡体とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1 3 7 に記載の方法。

1 3 9 . 前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルがフィラーを含有することを特徴とする、上記 1 3 6 に記載の方法。

1 4 0 . 前記フィラーが第 1 の組の粒子と第 2 の組の粒子との混合物を含み、前記第 1 の組の粒子は平均粒径が約 5 ミクロン以上であり、前記第 2 の組の粒子は平均粒径が約 0 . 7 ミクロン以下であることを特徴とする、上記 1 3 9 に記載の方法。

1 4 1 . フィラーが、無機フィラーと、有機フィラーと、粘土フィラーとからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1 3 9 に記載の方法。

1 4 2 . 前記無機フィラーが、炭酸カルシウムと、二酸化チタンと、シリカと、タルクと、硫酸バリウムと、ガラスビーズと、ガラス繊維と、カーボンブラックと、セラミックと、チョークと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1 4 1 に記載の方法。

1 4 3 . 前記有機フィラーが、天然澱粉と、変性澱粉と、化学変性澱粉と、米澱粉と、トウモロコシ澱粉と、木粉と、セルロースと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1 4 1 に記載の方法。

1 4 4 . 前記粘土フィラーが、天然粘土と、合成粘土と、処理粘土と、未処理粘土と、有機粘土と、スメクタイト粘土と、ベントナイト粘土と、ヘクトライト粘土と、ウォラストナイト粘土と、モンモリロナイト粘土と、カオリンと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1 4 1 に記載の方法。

1 4 5 . パッケージ製造方法であって：

支持体を提供する工程と；

ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計 1 0 0 モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約 8 0 . 0 から約 2 0 . 0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分約 2 0 . 0 から約 8 0 . 0 モルパーセントと、スルホネート成分約 0 . 1 から約 1 0 . 0 モルパーセントと、

グリコール成分と分枝剤の合計 1 0 0 モルパーセントに対して、エチレングリコールと

10

20

30

40

50

、 1, 3 - プロパンジオールと、 1, 4 - ブタンジオールとからなる群から選択される第 1 のグリコール成分約 99.9 から約 76.0 モルパーセントと、第 2 のグリコール成分 0 から約 5.0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分約 0.1 から約 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5.0 モルパーセントとを含むスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを提供する工程と；

前記支持体に前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルをラミネートまたはコーティングする工程と；

前記ラミネートまたはコーティングの施された支持体を所望のパッケージ形態に成形して前記パッケージを形成する工程と

を含むことを特徴とする、パッケージ製造方法。

10

146. 前記支持体が、紙と、板紙と、無機発泡体と、有機発泡体と、無機有機発泡体とからなる群から選択される材料を含むことを特徴とする、上記 139 に記載のプロセス

147. 前記パッケージ形態が、包装体と、ストレッチ包装用フィルムと、袋と、カップと、トレイと、カートンと、箱と、瓶と、箱枠と、包装用フィルムと、プリスターパック包装体と、スキン包装材と、ヒンジ付容器とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 139 に記載のプロセス。

148. スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステル組成物を溶融状態まで加熱する工程と、前記溶融したスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルをダイで押出成形する工程と、前記フィルムを冷却する工程とを含むフィルム製造プロセスであって、前記フィルムが、

20

ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計 100 モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約 80.0 から約 20.0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分約 20.0 から約 80.0 モルパーセントと、スルホネート成分約 0.1 から約 10.0 モルパーセントと；

グリコール成分と分枝剤の合計 100 モルパーセントに対して、エチレングリコールと、 1, 3 - プロパンジオールと、 1, 4 - ブタンジオールとからなる群から選択される第 1 のグリコール成分約 99.9 から約 76.0 モルパーセントと、第 2 のグリコール成分 0 から約 5.0 モルパーセントと、ポリ(アルキレンエーテル)グリコール成分約 0.1 から約 4.0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5.0 モルパーセントとを含むスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを含むことを特徴とする、フィルム製造プロセス。

30

149. 任意選択的に、スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステル組成物のガラス転移点を超え、かつ、スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルの軟化点未満の範囲でフィルムを加熱する工程と、このフィルムを、縦方向に元のフィルムの未延伸長の 1.5 から 10 倍に延伸する工程とをさらに含むことを特徴とする、上記 142 に記載のプロセス。

150. 任意選択的に、スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステル組成物のガラス転移点を超え、かつ、スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルの軟化点未満の範囲でフィルムを加熱する工程と、このフィルムを、縦方向に元のフィルムの未延伸長の 1.5 から 10 倍延伸する工程と、このフィルムを、横方向に元のフィルムの未延伸幅の 1.5 から 10 倍延伸する工程とをさらに含むことを特徴とする、上記 142 に記載のプロセス。

40

151. ジカルボン酸成分とスルホネート成分全体の合計 100 モルパーセントに対して、芳香族ジカルボン酸成分約 80.0 から約 20.0 モルパーセントと、脂肪族ジカルボン酸成分約 20.0 から約 80.0 モルパーセントと、スルホネート成分約 0.1 から約 10.0 モルパーセントと；

グリコール成分と分枝剤の合計 100 モルパーセントに対して、エチレングリコールと、 1, 3 - プロパンジオールと、 1, 4 - ブタンジオールとからなる群から選択される第 1 のグリコール成分約 99.9 から約 76.0 モルパーセントと、第 2 のグリコール成分

50

0 から約 5 . 0 モルパーセントと、ポリ（アルキレンエーテル）グリコール成分約 0 . 1 から約 4 . 0 モルパーセントと、多官能性分枝剤 0 から 5 . 0 モルパーセントとを含むスルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルを含有するフィルムを含むことを特徴とする、パッケージ。

1 5 2 . 前記パッケージが、包装体と、ストレッチ包装用フィルムと、袋包装用フィルムと、ブリスターパック包装体と、スキン包装材とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1 4 5 に記載のパッケージ。

1 5 3 . 前記フィルムが一軸配向されたものであることを特徴とする、上記 1 4 5 に記載のパッケージ。

1 5 4 . 前記フィルムが二軸配向されたものであることを特徴とする、上記 1 4 5 に記載のパッケージ。

1 5 5 . 前記スルホン化脂肪族芳香族コポリエーテルエステルがフィラーを含有することを特徴とする、上記 1 4 5 に記載のパッケージ。

1 5 6 . 前記フィラーが第 1 の組の粒子と第 2 の組の粒子との混合物を含み、前記第 1 の組の粒子は平均粒径が約 5 ミクロン以上であり、前記第 2 の組の粒子は平均粒径が約 0 . 7 ミクロン以下であることを特徴とする、上記 1 4 9 に記載のパッケージ。

1 5 7 . フィラーが、無機フィラーと、有機フィラーと、粘土フィラーとからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1 4 9 に記載のパッケージ。

1 5 8 . 前記無機フィラーが、炭酸カルシウムと、二酸化チタンと、シリカと、タルクと、硫酸バリウムと、ガラスビーズと、ガラス繊維と、カーボンブラックと、セラミックと、チョークと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1 5 7 に記載のパッケージ。

1 5 9 . 前記有機フィラーが、天然澱粉と、変性澱粉と、化学変性澱粉と、米澱粉と、トウモロコシ澱粉と、木粉と、セルロースと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1 5 7 に記載のパッケージ。

1 6 0 . 前記粘土フィラーが、天然粘土と、合成粘土と、処理粘土と、未処理粘土と、有機粘土と、スメクタイト粘土と、ベントナイト粘土と、ヘクトライト粘土と、ウォラストナイト粘土と、モンモリロナイト粘土と、カオリンと、それらの混合物とからなる群から選択されることを特徴とする、上記 1 5 7 に記載のパッケージ。

10

20

---

フロントページの続き

(74)代理人 100093300

弁理士 浅井 賢治

(74)代理人 100119013

弁理士 山崎 一夫

(72)発明者 リチャード アレン ヘイエス

アメリカ合衆国 37027 テネシー州 ブレントウッド ミルブルック プールバード 6309

(72)発明者 ローリ ジェイ . パイク

アメリカ合衆国 19711 デラウェア州 ニューアーク バード ウェイ 7

(72)発明者 ジェニファー エム . シュナイダー

アメリカ合衆国 19707 デラウェア州 ホッケシン リッジビュー ロード 607

審査官 佐々木 秀次

(56)参考文献 特開2001-205768(JP,A)

特表平09-500677(JP,A)

特表平11-500468(JP,A)

特開2001-088263(JP,A)

特開2001-071411(JP,A)

特開2000-289024(JP,A)

特開2002-119153(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C08G63/00-64/42

C08L67/02