



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 602 21 013 T2** 2008.03.06

(12) **Übersetzung der europäischen Patentschrift**

(97) **EP 1 395 426 B1**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **602 21 013.5**

(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/GB02/01910**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **02 718 392.0**

(87) PCT-Veröffentlichungs-Nr.: **WO 2002/087873**

(86) PCT-Anmeldetag: **25.04.2002**

(87) Veröffentlichungstag
der PCT-Anmeldung: **07.11.2002**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **10.03.2004**

(97) Veröffentlichungstag
der Patenterteilung beim EPA: **04.07.2007**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **06.03.2008**

(51) Int Cl.⁸: **B32B 27/36** (2006.01)
B32B 27/20 (2006.01)

(30) Unionspriorität:

0110799 02.05.2001 GB

(84) Benannte Vertragsstaaten:

DE, FR, GB, IT

(73) Patentinhaber:

**DuPont Teijin Films U.S., Ltd. Partnership,
Wilmington, Del., US**

(72) Erfinder:

**MACKERRON, Duncan Henry, Stokesley, North
Yorkshire TS9 5NX, GB; FRIEND, Julia Elizabeth,
Stockton-on-Tees, Yorkshire TS16 9ET, GB**

(74) Vertreter:

**Patentanwälte von Kreisler, Selting, Werner et col.,
50667 Köln**

(54) Bezeichnung: **MEHRSCHICHTIGER POLYMERFILM**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

Beschreibung

[0001] Die vorliegende Erfindung bezieht sich auf opake polymere Mehrschichtenfolien.

[0002] Opake polymere Folien sind in der Technik wohlbekannt und haben eine breite Vielfalt von Anwendungen, einschließlich der allgemeinen Verwendung als Papierersatz (wie Folien für die Druckindustrie, Anzeigevorrichtungen, Etikette, Karten (einschließlich Personalausweise, Chipkarten und Kreditkarten) und die Bildaufzeichnung), als Druckplattenmedien, Verpackungsmaterial und Spulenbeschichtung. Opake Folien werden im Allgemeinen durch Einfügen von Füllstoffen und Pigmenten, insbesondere weißen Pigmenten, in ein folienbildendes Polymer hergestellt.

[0003] Die Herstellungskosten der polymeren Folie werden durch verschiedene Faktoren beeinflusst, einschließlich der Menge und des Preises des Additivs, des technischen Aufwandes des Einfügens des Additivs in die Folie und der Wirksamkeit des Herstellungsverfahrens. Die Herstellungskosten der opaken Folie sind wegen der Kosten der zusätzlichen Komponenten natürlich höher als die Herstellungskosten der ungefüllten Folie. Obwohl durch das Einfügen größerer Mengen an Füllstoff die Lichtundurchlässigkeit einer Folie proportional anwächst, ist es somit in konventionellen Herstellungsverfahren normal, dass ein Kompromiss oder ein Gleichgewicht zwischen Kosten und Lichtundurchlässigkeit erreicht wird.

[0004] Neben den erhöhten Kosten gibt es einen weiteren Nachteil beim Einfügen von Füllstoffen. Obwohl es ein zweckmäßiges Mittel zur Einstellung der Lichtdurchlässigkeitseigenschaften einer Folie darstellt, kann das Einfügen von Füllstoffen eine schädlich Auswirkung auf die mechanischen Eigenschaften der Folie haben. Das Einfügen von Füllstoff kann insbesondere die Reißfestigkeitseigenschaften der Folie negativ beeinflussen. Eine hohe Reißfestigkeit ist während des Herstellungsverfahrens vorteilhaft, um die Wirtschaftlichkeit, Effizienz und Produktivität zu verbessern. Eine hohe Reißfestigkeit ist auch bei der allgemeinen Handhabung der Folie und der Endanwendung der Folie vorteilhaft.

[0005] In konventionellen Herstellungsverfahren wurde eine größere Foliendicke verwendet, um die durch die Verwendung eines Füllstoffs verursachte negative Auswirkung auf die mechanischen Eigenschaften zu kompensieren. Eine größere Foliendicke, bezogen auf eine transparente Folie mit weniger oder keinem Füllstoff, ist auch notwendig, um genügend Füllstoff einzufügen, damit die erforderliche Lichtundurchlässigkeit erreicht wird. Eine dickere Folie erfordert die Verwendung größerer Mengen an folienbildendem Polymer, was wiederum die Herstellungskosten erhöht. Eine Folie mit geringerer Dicke, die die erforderliche Lichtundurchlässigkeit beibehält und eine gute Reißfestigkeit aufweist, wäre daher wegen der Wirtschaftlichkeit für preisempfindliche Märkte erwünscht.

[0006] Reißfeste Folien sind in der Technik bekannt. EP-0592284 offenbart eine reißfeste Mehrschichtenfolie, die abwechselnde Schichten aus steifen und biegsamen polymeren Materialien umfasst und als Laminat für ein bruchsicheres Verglasungsteil brauchbar sein kann. US-5759467 offenbart eine Mehrschichten-Polyesterfolie, die mehrere abwechselnde Schichten von Polyester auf Terephthalsäure-Basis und Polyester auf Naphthalindicarbonsäure-Basis umfasst. Die Folie hat eine erhöhte Zugfestigkeit, und es wird angegeben, dass sie unter anderem für Substrate magnetischer Medien brauchbar ist.

[0007] Die Herstellung von Mehrschichtenfolien kann auf vielfältige Weise erreicht werden. US-3647612 offenbart ein Verfahren zur Herstellung einer Mehrschichtenfolie, umfassend das Bereitstellen zweier oder mehrerer Ströme von thermoplastischem Material, das Anordnen der zwei oder mehr Ströme zu einem einzigen Strom, der mehrere im Allgemeinen parallele Schichten aufweist, das mechanische Handhaben des Stroms durch Aufteilen und Rekombinieren, um eine erhöhte Anzahl von Schichten bereitzustellen, und das anschließende Formen des Stroms zu einer dünnen Bahn oder Folie. Die Schichten bestehen aus harzigem Material, das sichtbares Licht durchlässt, wobei die Struktur der Mehrschichtenfolie ein schillerndes Aussehen hat. EP-0426636 offenbart auch coextrudierte, lichtreflektierende Mehrschichtenfolien, die mehrere im Allgemeinen parallele Schichten aus transparentem, thermoplastischen harzigem Material umfassen.

[0008] EP-0492894 offenbart ein Verfahren und eine Apparatur zur Herstellung einer Mehrschichtenfolie durch Bildung von Grenzflächen in einer fluiden Masse. Das Verfahren umfasst die Schritte des Aufteilens eines ersten Verbundstroms in wenigstens zwei Verzweigungsströme, das erneute Positionieren der Verzweigungsströme, das symmetrische Ausdehnen entlang einer Achse, das symmetrische Zusammenziehen entlang einer anderen Achse und das Rekombinieren der Verzweigungsströme zu einem zweiten Verbundstrom, der eine größere Anzahl an diskreten Schichten aus polymerem Material umfasst als der erste Verbundstrom, wobei die Schritte des Ausdehnens und des Zusammenziehens entweder mit den individuellen Verzweigungs-

strömen oder dem zweiten Verbundstrom durchgeführt werden.

[0009] WO-98/06587 offenbart eine Polyesterfolie, die eine opake, vorzugsweise schwarze Kernschicht mit einer optischen Dichte von mehr als 2,0 und auf beiden Oberflächen derselben eine weiße Außenschicht aufweist, zur Verwendung als photographische Folie oder für andere Bildaufzeichnungsanwendungen.

[0010] WO-A-97/37849 offenbart eine Mehrschichtenkarte, die für einen Personalausweis und Kreditkarten und dergleichen geeignet ist und ein opakes Substrat aufweist, das einen Polyester und einen Copolyesterether und auf einer Oberfläche des Substrats eine tintenaufnahmefähige Schicht umfasst und weiterhin eine Deckschicht entweder auf dem Substrat oder den tintenaufnahmefähigen Schichten oder beiden umfasst.

[0011] EP-A-0497483 umfasst eine nur als Polyester bestehende Verbundfolie, die eine opake Trägerkernschicht, eine klare Deckschicht und ein Paar farbstoffaufnehmende oder bedruckbare Empfängerfolien aufweist, die sandwichartig zwischen der Deckschicht und der Kernschicht angeordnet sind.

[0012] EP-A-0514098 offenbart opake Mehrschichtenfolien, umfassend eine mit Hohlräumen versehene Kernschicht, eine Zwischenschicht, die mit bis zu etwa 12 % TiO_2 gefüllt ist, und eine nicht mit Hohlräumen versehene TiO_2 -freie Hautschicht, wobei die Folie unter anderem für Verpackungszwecke geeignet ist.

[0013] EP-A-0933199 offenbart eine opake Mehrschichtenfolie, die Folgendes aufweist: wenigstens eine Polyesterschicht, die mehr als 5 Gew.-% Pigment enthält, und wenigstens eine Polyester-Schicht, die im Wesentlichen pigmentfrei ist, wobei das Verhältnis der entsprechenden Dicken der Schicht(en), die kein Pigment enthält (enthalten), zu der pigmentierten Schicht (den pigmentierten Schichten) wenigstens 1 ist. Es wird angegeben, dass in der Folie der Gesamtpigmentgehalt minimiert ist, während eine hohe Lichtundurchlässigkeit und gute mechanische Eigenschaften (Modul, Zugfestigkeit und Kraft bei 3 % Dehnung, 5 % Dehnung und Reißdehnung) bereitgestellt werden.

[0014] Eine allgemeine Aufgabe der Erfindung besteht darin, das Gleichgewicht zwischen der Herstellungseffizienz der Folie und den erwünschten Eigenschaften der Folie zu beeinflussen und zu verbessern. Somit besteht eine Aufgabe der Erfindung darin, die Herstellungskosten zu reduzieren, während die erwünschten Eigenschaften der Folie beibehalten oder verbessert werden. Eine weitere Aufgabe der Erfindung besteht darin, die Leistungsfähigkeit der Folie zu verstärken, ohne dass die Herstellungskosten erhöht werden. Insbesondere besteht eine Aufgabe der Erfindung darin, eine opake Folie bereitzustellen, die auf wirtschaftliche Weise herstellbar ist und eine verbesserte Reißfestigkeit aufweist. Eine andere Aufgabe der Erfindung besteht darin, die Dicke einer opaken Folie zu reduzieren, während die erforderliche Lichtundurchlässigkeit beibehalten wird und auch die Reißfestigkeit beibehalten oder verbessert wird. Eine weitere Aufgabe der Erfindung besteht darin, eine Folie bereitzustellen, die eine erhöhte Lichtundurchlässigkeit bei einer gegebenen Dicke hat, während die Reißfestigkeit und somit die Herstellungseffizienz beibehalten oder verbessert wird.

[0015] Gemäß der vorliegenden Erfindung wird eine opake, coextrudierte Mehrschichtenfolie bereitgestellt, die eine Reißfestigkeit in wenigstens einer Ausdehnung der Folie von wenigstens $0,3 \text{ kg/mm}^2$ aufweist, welche als Fläche unterhalb der Kurve in einer graphischen Darstellung der Spannung als Funktion der Dehnung gemäß ASTM D1004-94A gemessen wird, und die wenigstens zwei ungefüllte, orientierte, im Wesentlichen trübungsmittelfreie Polyesterschichten und wenigstens zwei gefüllte, orientierte Schichten aus einem polymeren Material umfasst, wobei die gefüllten Schichten wenigstens 5 Gew.-% Trübungsmittel umfassen und sich die gefüllten und die ungefüllten Schichten abwechseln.

[0016] Gemäß einem weiteren Aspekt der vorliegenden Erfindung wird die Verwendung einer mehrschichtigen Folienstruktur bereitgestellt, die wenigstens zwei ungefüllte, im Wesentlichen trübungsmittelfreie Schichten aus einem polymeren Material und wenigstens zwei gefüllte Schichten aus einem polymeren Material umfasst, wobei die gefüllten Schichten wenigstens 5 Gew.-% eines Trübungsmittels umfassen, um einer opaken, polymeren Folie eine verbesserte Reißfestigkeit zu verleihen, damit die Folie eine Reißzähigkeit in wenigstens einer Ausdehnung der Folie von wenigstens $0,3 \text{ kg/mm}^2$ aufweist, die als Fläche unterhalb der Kurve in einer graphischen Darstellung der Spannung als Funktion der Dehnung gemäß ASTM D1004-94A gemessen wird.

[0017] Der Kürze halber wird der Ausdruck "eine ungefüllte Schicht" hierin verwendet, um eine Schicht aus polymerem Material zu bezeichnen, die im Wesentlichen frei von einem Trübungsmittel (oder Füllstoff) ist, und der Ausdruck "eine gefüllte Schicht" wird hierin verwendet, um eine Schicht aus polymerem Material zu bezeichnen, die wenigstens 5 Gew.-% eines Trübungsmittels umfasst.

[0018] Wie hierin verwendet, ist eine Bezugnahme auf Gew.-% Füllstoff – falls nichts Anderweitiges angegeben ist – eine Bezugnahme auf das Gewicht des Füllstoffs bezogen auf das Gesamtgewicht der Folie oder bezogen auf das Gesamtgewicht einer gegebenen Schicht (d.h. das Gewicht des folien- oder schichtbildenden Materials plus Füllstoff).

[0019] Bei einer gegebenen Lichtundurchlässigkeit ermöglicht eine wie hierin beschriebene Mehrschichtenfolie eine Reduktion der Füllstoffmenge in der Folie als Ganzes, bezogen auf eine Folie, die keine Mehrschichtenstruktur aufweist. Somit ermöglicht eine wie hierin beschriebene Mehrschichtenfolie bei einer gegebenen Lichtundurchlässigkeit eine Reduktion der Füllstoffmenge, bezogen auf eine gefüllte Monoschichtfolie. Im Allgemeinen erzeugen unterschiedliche Füllstoffe unterschiedliche Lichtundurchlässigkeitsgrade bei einer gegebenen Füllstoff-Konzentration.

[0020] Die hierin beschriebene Folie hat eine gute Lichtundurchlässigkeit und unerwarteter Weise eine verbesserte Reißfestigkeit. Die Verwendung von weniger Füllstoff in der Folie ist möglich, während die Lichtundurchlässigkeit von konventionellen opaken Folien beibehalten wird, und dieselbe lässt sich wirtschaftlicher herstellen. Der unerwartete Vorteil der Reißfestigkeit bedeutet Folgendes:

- (i) bei einer gegebenen Lichtundurchlässigkeit und Reißfestigkeit können dünnere Folien hergestellt werden, oder
- (ii) bei einer gegebenen Lichtundurchlässigkeit und Foliendicke kann eine Folie mit verbesserter Reißfestigkeit hergestellt werden, wobei die Herstellungseffizienz erhöht ist, oder
- (iii) bei einer gegebenen Dicke und Reißfestigkeit kann die Lichtundurchlässigkeit erhöht werden, d.h. die Menge an Füllstoff in der Folie und daher die Lichtundurchlässigkeit können erhöht werden, ohne dass die Reißfestigkeit der Folie abnimmt oder die Effizienz der Herstellung negativ beeinflusst wird.

[0021] In einer Ausführungsform umfasst eine Mehrschichtenfolie vorzugsweise in der Folie als Ganzes, Füllstoff in einer Menge von weniger als etwa 90 %, vorzugsweise weniger als etwa 80 %, vorzugsweise weniger als etwa 70 % und vorzugsweise weniger als etwa 60 % der Menge an Füllstoff in einer Monoschichtfolie mit gleicher Lichtundurchlässigkeit. Wie oben festgestellt wurde, wird bei einer solchen Folie eine Reduktion der Foliendicke bei einer gegebenen Lichtundurchlässigkeit ermöglicht, ohne dass die Reißfestigkeit und die Herstellungseffizienz negativ beeinflusst werden. In dieser Ausführungsform ist die Gesamtmenge an Füllstoff in der Mehrschichtenfolie vorzugsweise geringer als etwa 18 Gew.-% Füllstoff der Folie, vorzugsweise geringer als etwa 16 Gew.-%, vorzugsweise geringer als etwa 12 Gew.-%, vorzugsweise geringer als etwa 8 Gew.-% und vorzugsweise geringer als etwa 4 Gew.-%. Wie oben festgestellt wurde, ergeben unterschiedliche Füllstoffe unterschiedliche Lichtundurchlässigkeitsgrade. In dieser Ausführungsform – und wenn der Füllstoff Bariumsulfat ist – ist die Gesamtmenge an Füllstoff in der Folie geringer als etwa 18 Gew.-%, vorzugsweise geringer als etwa 16 Gew.-% und vorzugsweise geringer als 12 Gew.-% der Folie. Wenn der Füllstoff z.B. Titandioxid oder Polypropylen ist, ist die Gesamtmenge an Füllstoff geringer als etwa 16 %, vorzugsweise geringer als 12 %, vorzugsweise geringer als 8 % und vorzugsweise geringer als etwa 4 %.

[0022] In einer alternativen Ausführungsform umfasst eine Mehrschichtenfolie in der Folie als Ganzes Füllstoff in einer Menge von wenigstens 110 %, vorzugsweise von wenigstens 120 %, vorzugsweise von wenigstens 130 % und vorzugsweise von wenigstens 140 % der Füllstoffmenge in einer Monoschichtfolie mit gleicher Reißfestigkeit. Wie oben festgestellt wurde, ermöglicht eine solche Folie ein Erhöhen der Lichtundurchlässigkeit bei einer gegebenen Foliendicke, ohne dass die Reißfestigkeit und die Herstellungseffizienz negativ beeinflusst werden. In dieser Ausführungsform kann die Gesamtmenge an Füllstoff in der Mehrschichtenfolie größer als etwa 15 Gew.-%, vorzugsweise größer als etwa 20 Gew.-%, vorzugsweise größer als etwa 22 Gew.-% und vorzugsweise größer als etwa 25 Gew.-% der Folie sein. Bei z.B. Bariumsulfat als Füllstoff kann die Gesamtmenge an Füllstoff in der Folie größer als etwa 22 Gew.-% und vorzugsweise 25 Gew.-% oder größer sein.

[0023] Das Trübungsmittel liegt in der gefüllten Schicht in einer Menge von wenigstens 5 Gew.-%, vorzugsweise von wenigstens 10 Gew.-% und besonders bevorzugt von wenigstens 15 Gew.-% des polymeren Materials der gefüllten Schicht vor. Vorzugsweise ist die Menge an Trübungsmittel in der gefüllten Schicht nicht größer als 30 Gew.-% und vorzugsweise nicht größer als 25 Gew.-% des polymeren Materials der gefüllten Schicht.

[0024] Die Reiß Eigenschaften der hierin beschriebenen Folien werden unter Verwendung zweier Parameter, nämlich der "maximalen Last" und der "Reißfestigkeit" charakterisiert.

[0025] Die maximale Last ist ein Maß der Kraft, die erforderlich ist, um das Reißen einer Folie einzuleiten, d.h. die Last zu Beginn des Reißens, und sie wird gemäß ASTM D1004-94A (Graves-Reißtest) gemessen. Dieser

Parameter wird in ASTM D1004-94A als anfängliche Reißfestigkeit bezeichnet und in Newton oder kgf ausgedrückt. Die maximale Last (die als anfängliche Reißfestigkeit im Graves-Reißtest bezeichnet wird) steigt im Allgemeinen bei einem Erhöhen der Foliendicke an. Somit ist es für einen angemessenen Vergleich wichtig, dass entweder eine Folie mit ähnlicher Dicke getestet wird, oder die quantitative Beziehung zwischen Dicke und maximaler Last zuerst für den in Betracht kommenden Folientyp bestimmt wird. In dieser Arbeit wurden Daten gesammelt, die zeigen, dass sich die maximale Last genau im Verhältnis zur Dicke ändert und der Reiß-Test auf zuverlässige Weise verwendet werden kann, um eine gefüllte Polyesterfolie zu vergleichen, deren Dicke in einem Bereich von 50–125 μm liegt. Somit wird die Messung der maximalen Last hierin nach der Normalisierung auf eine Referenzdicke von 80 μm angegeben. Vorzugsweise hat die Folie eine maximale Last von wenigstens 3,0 kgf, vorzugsweise von wenigstens 3,5 kgf und besonders bevorzugt von wenigstens 4,0 kgf bei einer Foliendicke von 80 μm .

[0026] Die Reißfestigkeit wird als die Graves-Fläche der Folie gemessen, wie in EP-A-0592284 beschrieben ist. Die Graves-Fläche wird durch mathematisches Integrieren der Fläche unterhalb der Kurve in einem graphischen Diagramm der Spannung gegen die Dehnung für eine Folie erhalten, die dem Graves-Reißtest (ASTM D1004-94A) unterzogen wurde, d.h. während eines Tests, in dem eine Folienprobe, die speziell für einen Graves-Reißtest geformt wurde, zwischen gegenüberliegenden Backen eingespannt wird, die mit konstanter Geschwindigkeit auseinander gezogen werden, um die Reißspannungen auf einer kleinen Fläche zu konzentrieren. Die Spannung ist als die aufgezeichnete Last, dividiert durch die anfängliche Querschnittsfläche der Folie gegenüber dem Kerbmerkmal der Testprobe definiert. Die Dehnung ist als das Verhältnis der während des Tests erfolgenden Änderung des Abstandes zwischen den Backen (Δl) zur anfänglichen Trennung der Backen (l) definiert, d.h. die Dehnung ist $\Delta l/l$.

[0027] Die Reißfestigkeit kann als ein Maß der Gesamtenergie angesehen werden, die erforderlich ist, um ein Versagen der Folie zu verursachen, d.h. die Fähigkeit der Folie zur Absorption von Energie vor dem Versagen. Man wird sich darüber im Klaren sein, dass eine Folie mit einem relativ hohen Reißfestigkeitswert eine größere Menge an Gesamtenergie benötigt, um ein Versagen zu verursachen, verglichen mit einer Folie mit einem relativ geringen Reißfestigkeitswert. Die Reißfestigkeit kann in Abhängigkeit davon variieren, ob der Test in der Maschinenrichtung oder der Querrichtung der Folie durchgeführt wird.

[0028] Die hierin beschriebenen Mehrschichtenfolien zeigen eine Reißfestigkeit in einer oder beiden Ausdehnungen der Folie von wenigstens 0,3 kg/mm², vorzugsweise wenigstens von 0,6 kg/mm² und ganz besonders bevorzugt von wenigstens 0,9 kg/mm².

[0029] Vorzugsweise umfasst die opake Mehrschichtenfolie wenigstens 5 Schichten, vorzugsweise wenigstens 6 Schichten und vorzugsweise 7 oder mehr Schichten. Die Gesamtzahl der Schichten in der Folie ist im Allgemeinen durch die erwünschte Foliendicke und die Leichtigkeit der Herstellung eingeschränkt. Typischerweise würde eine Folie weniger als 100 Schichten aufweisen. In einer Ausführungsform hat die Folie weniger als 50 Schichten. Die Anzahl der Schichten kann gemäß der angestrebten Dicke der Folie und der angestrebten Lichtundurchlässigkeit eingestellt werden. Bei einer gegebenen Foliendicke hängt die Anzahl der Schichten z.B. von der Dicke der einzelnen Schichten und der Teilchengröße des Füllstoffs ab. Bei einer z.B. 20 μm dicken Folie, die einen Füllstoff eines mittleren Teilchengrößendurchmessers von 1 μm umfasst, und einer individuellen Schichtdicke von 0,5 μm , sollte die Anzahl der Schichten etwa 40 nicht übersteigen.

[0030] Die im Anspruch 1 definierte Folie umfasst abwechselnd gefüllte und ungefüllte Schichten, d.h. eine gefüllte Schicht ist zwischen zwei ungefüllten Schichten angeordnet, und eine ungefüllte Schicht ist zwischen zwei gefüllten Schichten angeordnet.

[0031] In einer bevorzugten Ausführungsform weisen die zwei äußersten Schichten der Folie den gleichen Schichttyp auf, vorzugsweise eine gefüllte Schicht. Wenn die äußersten Schichten vom gleichen Typ sind, liegt vorzugsweise eine ungerade Anzahl von Schichten in der Folie vor, so dass in der gesamten Folie jede ungefüllte Schicht einer gefüllten Schicht benachbart ist.

[0032] Die Folie kann z.B. eine Mehrschichtenstruktur $(BA)_n$, $(BA)_nB$ oder $(AB)_nA$ aufweisen, wobei A eine ungefüllte Schicht bezeichnet, B eine gefüllte Schicht bezeichnet und n eine Zahl von wenigstens 2, vorzugsweise von wenigstens 3 und vorzugsweise von wenigstens 4 ist. Vorzugsweise hat die Folie die Struktur $(BA)_nB$, wobei n vorzugsweise wenigstens 3 und vorzugsweise wenigstens 4 ist.

[0033] Die Dicke jeder Schicht und die Gesamtdicke der Folie können über große Bereiche innerhalb des Umfangs der Erfindung variieren. Die praktische Dicke der Folie wird nur durch die erwünschten Handhabungsei-

enschaften eingeschränkt. Die untere in der Praxis brauchbare Grenze ist diejenige, bei der die Folie zu dünn wird, um eine leichte Handhabung zu ermöglichen, oder keine ausreichende Reißfestigkeit mehr aufweist, während die obere brauchbare Grenze diejenige ist, bei der die Folie übermäßig steif wird und zu schwierig zu verarbeiten ist.

[0034] Die Gesamtdicke der hierin beschriebenen Mehrschichtenfolie liegt vorzugsweise in einem Bereich von etwa 5 µm bis etwa 350 µm, vorzugsweise von etwa 5 µm bis etwa 200 µm. In einer Ausführungsform beträgt die Foliendicke vorzugsweise etwa 5 µm bis etwa 100 µm, besonders bevorzugt etwa 5 µm bis etwa 50 µm, besonders bevorzugt von etwa 5 µm bis etwa 20 µm und ganz besonders bevorzugt etwa 12 µm bis etwa 20 µm. In einer alternativen Ausführungsform liegt die Foliendicke in einem Bereich von etwa 50 µm bis etwa 125 µm. Die Dicke der einzelnen Schichten kann auch über einen breiten Bereich variieren, wobei klar sein sollte, dass, wenn die Anzahl der Schichten bei einer konstanten oder abnehmenden Foliendicke zunimmt, die Dicke jeder Schicht abnimmt. Eine individuelle gefüllte Schicht hat typischerweise eine mittlere Dicke von wenigstens 0,1 µm und in einer Ausführungsform von wenigstens 0,5 µm. Obwohl die Dicke jeder Schicht identisch sein kann, wird es bevorzugt, dass die gefüllten Schichten dicker sind als die ungefüllten Schichten, d.h. das Verhältnis der Dicke einer gefüllten Schicht zur Dicke einer ungefüllten Schicht ist größer als 1:1. Das Verhältnis der Dicke einer gefüllten Schicht zur Dicke einer ungefüllten Schicht liegt zweckmäßigerweise in einem Bereich von etwa 99:1 bis etwa 0,05:1, vorzugsweise von etwa 50:1 bis etwa 0,05:1 und beträgt vorzugsweise etwa 10:1 bis 1:1.

[0035] Jede der zwei Schichttypen, d.h. die ungefüllte Schicht und die gefüllte Schicht, hat einen Zugmodul, der innerhalb von $\pm 25\%$, vorzugsweise $\pm 15\%$, besonders bevorzugt $\pm 5\%$ des Zugmoduls des anderen Schichttyps liegt. In einer Ausführungsform haben die zwei Schichttypen im Wesentlichen die gleichen Zugmodule. Vorzugsweise hat das polymere Material jeder Schicht einen Zugmodul von größer als 1380 MPa, vorzugsweise von größer als 2000 MPa, vorzugsweise von größer als 2070 MPa, vorzugsweise von größer als 2760 MPa und vorzugsweise von größer als 3000 MPa.

[0036] Die entsprechenden Schichten der Mehrschichtenfolie können durch jedes folienbildende Material geformt werden, insbesondere einen Polyester, wie ein synthetischer linearer Polyester, der durch Kondensation einer oder mehrerer Dicarbonsäuren oder ihrer Niederalkylester (bis zu 6 Kohlenstoffatome), z.B. Terephthalsäure, Isophthalsäure, Phthalsäure, 2,5-, 2,6- oder 2,7-Naphthalindicarbonsäure, Bernsteinsäure, Sebacinsäure, Adipinsäure, Azelainsäure, 4,4'-Diphenyldicarbonsäure, Hexahydroterephthalsäure oder 1,2-Bis-p-Carboxyphenoxyethan (gegebenenfalls mit einer Monocarbonsäure wie Pivalinsäure) mit einem oder mehreren Glycolen, insbesondere einem aliphatischen oder cycloaliphatischen Glycol, z.B. Ethylenglycol, 1,3-Propandiol, 1,4-Butandiol, Neopentylglycol und 1,4-Cyclohexandimethanol, hergestellt wird. Ein aliphatisches Glycol wird bevorzugt. Polyethylenterephthalat oder Polyethylen-naphthalat ist der bevorzugte Polyester. Polyethylenterephthalat wird besonders bevorzugt.

[0037] In einer bevorzugten Ausführungsform der Erfindung umfasst jeder Schichttyp der Mehrschichtenfolie das gleiche Material, vorzugsweise den gleichen Polyester. Vorzugsweise sind die Materialien, die die verschiedenen Schichten umfassen, bei der gleichen Temperatur verarbeitbar und haben ähnliche Schmelzviskositäten, so dass ein Abbau eines bei einer niedrigeren Temperatur schmelzenden Materials vermieden wird. Demgemäß können die Verweilzeit und die Verarbeitungstemperaturen in Abhängigkeit von den Eigenschaften der Materialien jeder Schicht eingestellt werden. Die Schichten umfassen kristallines und/oder halbkristallines Polyestermaterial.

[0038] Die Bildung der Mehrschichtenfolie der vorliegenden Erfindung wird durch Coextrusion bewirkt, und zwar entweder durch gleichzeitige Coextrusion der entsprechenden folienbildenden Schichten durch unabhängige Öffnungen einer Düse mit mehreren Öffnungen und anschließendes Vereinigen der noch geschmolzenen Schichten, oder vorzugsweise durch eine Einkanal-Coextrusion, bei der geschmolzene Ströme der Materialien der entsprechenden folienbildenden Schichten zuerst in einem Kanal vereinigt werden, der zu einem Düsenverteiler führt, und danach aus der Düsenöffnung unter den Bedingungen eines ununterbrochenen Fließens ohne Vermischen zusammen extrudiert werden.

[0039] Eine solche Technik wird im US Patent Nr. 3,565,985 (Schrenk et al.) offenbart. Bei der Herstellung der Mehrschichtenfolien kann die Schmelz-Coextrusion entweder durch das Mehrfachverteilerdüsen- oder das Verteilerblock-Verfahren angewendet werden, bei dem individuelle Schichten unter laminaren Strömungsbedingungen aufeinander treffen, um eine integrale Mehrschichtenfolie bereitzustellen. Insbesondere werden separate Ströme der Materialien jeder Schicht im fließfähigen Zustand zu einer vorbestimmten Anzahl von kleineren Unterströmen aufgespalten. Diese kleineren Ströme werden dann in einem vorbestimmten Muster von

Schichten kombiniert, um eine Anordnung von Schichten dieser Materialien in einem fließfähigen Zustand zu bilden. Jede Schicht steht in innigem Kontakt mit den benachbarten Schichten in der Anordnung. Diese Anordnung umfasst im Allgemeinen einen großen Stapel von Schichten, der dann komprimiert wird, um seine Höhe zu verringern. In dem Mehrfachverteilerdüsen-Verfahren bleibt die Folienbreite während der Kompression des Stapels konstant, während beim Verteilerblock-Verfahren die Breite vergrößert wird. In beiden Fällen resultiert eine vergleichsweise dünne, breite Folie. Schicht-Vervielfacher, in denen die resultierende Folie in mehrere einzelne Unterfolien aufgespalten wird, die dann übereinander gestapelt werden, um die Anzahl der Schichten in der anschließenden Folie zu erhöhen, können auch verwendet werden.

[0040] In einer Ausführungsform wird die Herstellung der Mehrschichtenfolie gemäß der Arbeitsweise durchgeführt, die in US-3051453 (erneut veröffentlicht als Re. 28,072) beschrieben und in [Fig. 1](#) erläutert wird. Das Patent berichtet ein Verfahren, in dem ein coextrudierter Schmelzfluss, der drei diskrete Schichten von zwei Polymeren (BAB) umfasst, aufgespalten wird und anschließend als Stapel von fünf verschiedenen Schichten (BABAB) erneut kombiniert wird. Diese Arbeitsweise kann wiederholt werden, um einen einzigen Schmelzfluss zu erhalten, der höhere Ordnungen einer Schichtstruktur umfasst und dann zu einer geformten Gestalt wie einer Folie extrudiert werden kann. Neuere Berichte bestätigen tatsächlich, dass eine symmetrische Mehrschichtenstruktur hergestellt werden kann, nachdem eine so große Anzahl wie 7 schichtvervielfachende Einheiten in Reihe in einem coextrudierendem Schmelzverfahren eingebaut wurden (Nazarenko et al., SPE Inc., Tech. Paper Band 42, Seite 1587, 1996).

[0041] Die in den nachstehenden Beispielen beschriebenen Folien wurden durch Befolgen der in US-3051453 beschriebenen Arbeitsweise hergestellt. Die coextrudierte Schmelze, umfassend drei Schichten (BAB), wurde entweder durch zwei oder drei Schicht-Vervielfachereinheiten verarbeitet. Die sich ergebende Mehrschichten-Schmelze wurde dann durch eine Schlitzdüse geleitet, um als dünne Folie gegossen und abgeschreckt zu werden.

[0042] In einer weiteren Ausführungsform kann die Herstellung der Mehrschichtenfolien unter Verwendung von Schichtvervielfachern in einem Verbundstrom, der diskrete Schichten von coextrudiertem polymeren Material umfasst – wie nachstehend und in [Fig. 2](#) beschrieben ist –, bewirkt werden, wobei die z-Achse die Strömungsrichtung des ersten Verbundstroms ist, die x-Achse sich quer zum ersten Verbundstrom entlang der quer verlaufenden Ausdehnung der Schichtgrenzfläche erstreckt, und die y-Achse sich senkrecht von der Schichtgrenzfläche weg in Richtung der Dicke der Schichten des ersten Verbundstroms erstreckt:

- (1) Ausdehnung in der x-Richtung eines ersten Verbundstroms, umfassend coextrudierte diskrete Schichten aus polymerem Material, wobei die Grenzfläche zwischen den Schichten in der x-z-Ebene liegt;
- (2) Aufteilen des ersten Verbundstroms entlang der x-Achse zu mehreren Verzweigungsströmen;
- (3) erneute Orientierung der Verzweigungsströme, wenn sie entlang der z-Achse strömen, so dass sie entlang der y-Achse gestapelt werden;
- (4) erneute Kombination der Verzweigungsströme unter Bildung eines zweiten Verbundstroms und
- (5) Zusammenziehen des zweiten Verbundstroms entlang der y-Achse.

[0043] Die Schicht-Vervielfachungsapparatur wird positioniert, nachdem die unterschiedlichen Polymere in einem Coextrusionsblock vereinigt sind. Nachdem die Schmelze den Schicht-Vervielfacher verlassen hat, geht sie durch eine Düse und wird dann zu einer Folie der erwünschten Kristallinität verarbeitet. Das Verfahren kann nötigenfalls unter Verwendung einer beliebigen Anzahl von Extrudern durchgeführt werden, um einen ersten Verbundstrom bereitzustellen. Der erste Verbundstrom kann auch einer Schicht-Vervielfachung unterzogen werden, indem man mehr als einen Schicht-Vervielfacher verwendet, die in Reihe oder parallel angeordnet sind.

[0044] Die Schichten jedes Typs in der Mehrschichtenfolie können uniaxial orientiert werden, vorzugsweise werden sie aber durch Verstrecken in zwei zueinander senkrechten Richtungen in der Ebene der Folie biaxial orientiert, um eine befriedigende Kombination von mechanischen und physikalischen Eigenschaften zu erreichen. Die Orientierung kann durch jedes Verfahren bewirkt werden, das in der Technik zur Herstellung einer orientierten Folie bekannt ist, z.B. ein Schlauch- oder Flachfolienverfahren.

[0045] In dem Schlauchverfahren kann eine gleichzeitige biaxiale Orientierung bewirkt werden, indem ein thermoplastischer Polyesterschlauch extrudiert wird, der anschließend abgeschreckt, erneut erwärmt und dann durch den Innengasdruck gedehnt wird, um eine Querorientierung einzuleiten, und mit einer Geschwindigkeit entnommen wird, die eine Orientierung in der Längsrichtung induziert.

[0046] In dem bevorzugten Flachfolienverfahren wird das schichtbildende Polymer durch eine Schlitzdüse ex-

trudiert und schnell auf einer gekühlten Gießtrommel abgeschreckt, um zu gewährleisten, dass das Polymer zu einem amorphen Zustand abgeschreckt wird. Die Orientierung wird dann durch Strecken des abgeschreckten Extrudats in wenigstens einer Richtung bei einer Temperatur oberhalb der Glasübergangstemperatur des Polymers bewirkt. Eine nacheinander erfolgende Orientierung kann durch Strecken eines flachen, abgeschreckten Extrudats zuerst in einer Richtung, üblicherweise der Längsrichtung, d.h. der Vorwärtsrichtung durch die Folienstreckapparatur und dann in der Querrichtung bewirkt werden. Das vorwärts gerichtete Strecken des Extrudats wird zweckmäßigerweise durch eine Reihe von rotierenden Walzen oder zwischen zwei Paaren von Abquetschwalzen bewirkt, und das Strecken in der Querrichtung wird dann in einer Spannrahmenapparatur bewirkt. Das Strecken wird bis zu einem Grad bewirkt, der durch die Art des Polyesters bestimmt ist; z.B. wird Polyethylenterephthalat üblicherweise so gestreckt, dass die Größe der orientierten Folie das 2-Fache bis 5-Fache, besonders bevorzugt das 2,5-Fache bis 4,5-Fache ihrer ursprüngliche Größe in der oder jeder Streckrichtung ausmacht. Größere Streckverhältnisse (z.B. das bis zu 8-Fache) können verwendet werden, wenn die Orientierung nur in einer Richtung erforderlich ist. Es ist nicht notwendig, gleich stark in der Maschinen- und Querrichtung zu strecken, obwohl dies bevorzugt wird, wenn ausgeglichene Eigenschaften erwünscht sind.

[0047] Eine verstreckte Folie kann und wird vorzugsweise durch Wärmehärten unter Dimensionszwang bei einer Temperatur oberhalb der Glasübergangstemperatur des Polyesters, aber unterhalb seiner Schmelztemperatur dimensionsstabilisiert, um eine Kristallisation des Polyesters einzuleiten. Bei Anwendungen, in denen eine Schrumpfung der Folie nicht von signifikanter Bedeutung ist, kann die Folie bei relativ niedrigen Temperaturen oder überhaupt nicht wärmegehärtet werden. Wenn die Temperatur, bei der die Folie wärmegehärtet wird, andererseits erhöht ist, kann sich die Reißfestigkeit der Folie ändern. Somit variieren die tatsächliche Wärmehärtungstemperatur und -zeit abhängig von der Zusammensetzung der Folie und der beabsichtigten Anwendung derselben, sie sollten aber nicht so ausgewählt werden, dass sich die Reißfestigkeitseigenschaften der Folie wesentlich verschlechtern. Innerhalb dieser Abhängigkeitsverhältnisse ist eine Wärmehärtungstemperatur von etwa 135°C bis 235°C, vorzugsweise von etwa 180–235°C im Allgemeinen wünschenswert.

[0048] Die opake Mehrschichtenfolie der vorliegenden Erfindung ist in hohem Maße gefüllt und weist vorzugsweise eine optische Dichte (Transmission Optical Density, TOD) von wenigstens 0,25, besonders bevorzugt von wenigstens 0,5, ganz besonders bevorzugt von wenigstens 0,75 und idealer Weise von wenigstens 1,0 auf. In einer Ausführungsform liegt die TOD in einem Bereich von 0,1 bis 3,0, besonders bevorzugt von 0,25 bis 2,5, besonders bevorzugt von 0,5 bis 2,0 und ganz besonders bevorzugt von 0,75 bis 1,25. Die Folie wird durch Einfügen einer wirksamen Menge eines Trübungsmittels in das Polymerblend der gefüllten Schicht opak. Geeignete Trübungsmittel umfassen einen inkompatiblen Harzfüllstoff, einen teilchenförmigen anorganischen Füllstoff oder ein Gemisch von zwei oder mehr solcher Füllstoffe, wie nachstehend beschrieben wird.

[0049] Die Oberfläche der opaken Folie weist vorzugsweise einen Weißgehalt – wie er hierin gemessen wird – in einem Bereich von 60 bis 120, besonders bevorzugt von 80 bis 110, ganz besonders bevorzugt von 90 bis 105 und insbesondere von 95 bis 100 Einheiten auf.

[0050] Ein besonders verbessertes ästhetisches Aussehen ergibt sich, wenn die Außenfläche einer Folie matt ist, vorzugsweise einen 60°-Glanzwert – wie er hierin gemessen wird – von weniger als 60 %, besonders bevorzugt im Bereich von 5 % bis 55 %, ganz besonders bevorzugt von 20 % bis 50 % und insbesondere von 35 bis 45 % aufweist.

[0051] Unter "inkompatiblen Harz" versteht man ein Harz, das bei der höchsten Temperatur, die während der Extrusion und Herstellung der Folie angetroffen wird, entweder nicht schmilzt oder im Wesentlichen mit dem Polymer nicht mischbar ist. Das Vorliegen eines inkompatiblen Harzes ergibt üblicherweise eine Schicht mit Hohlräumen, worunter verstanden wird, dass die Schicht eine zelluläre Struktur umfasst, die wenigstens einen Anteil an diskreten geschlossenen Zellen enthält. Geeignete inkompatible Harze umfassen Polyamide und Olefin-Polymere, insbesondere ein Homo- oder Copolymer eines Mono- α -Olefins, das bis zu 6 Kohlenstoffatome in seinem Molekül enthält. Bevorzugte Materialien umfassen ein Olefin-Homopolymer niedriger oder hoher Dichte, insbesondere Polyethylen, Polypropylen oder Poly-4-methylpenten-1, ein Olefin-Copolymer, insbesondere ein Ethylen-Propylen-Copolymer oder ein Gemisch aus zwei oder mehr derselben. Statistische, Block- oder Pfropfcopolymere können verwendet werden.

[0052] Teilchenförmige anorganische Füllstoffe umfassen konventionelle anorganische Füllstoffe und insbesondere Metall- oder Metalloxyde, wie Aluminiumoxid, Siliciumdioxid (insbesondere ausgefälltes Siliciumdioxid oder Diatomeenerde und Silicagele) und Titanoxid, calcinierte Tonerde und Alkalimetallsalze, wie Carbonate und Sulfate von Calcium und Barium. Die teilchenförmigen anorganischen Füllstoffe können vom Hohl-

raum-bildenden Typ oder Nichthohlraum-bildenden Typ sein. Geeignete teilchenförmige anorganische Füllstoffe können homogen sein und im Wesentlichen aus einem einzigen Füllstoffmaterial oder -Compound bestehen, wie Titandioxid oder Bariumsulfat allein. Alternativ dazu kann wenigstens ein Teil des Füllstoffs heterogen sein, wobei das primäre Füllstoffmaterial mit einer zusätzlichen modifizierenden Komponente assoziiert ist. Z.B. kann das primäre Füllstoffteilchen mit einem Oberflächenmodifizierungsmittel, wie einem Pigment, einer Seife, einem Tensid-Kupplungsmittel oder einem anderen Modifizierungsmittel, behandelt werden, um den Kompatibilitätsgrad des Füllstoffs mit dem Polyester zu verbessern oder zu verändern.

[0053] Bevorzugte teilchenförmige anorganische Füllstoffe schließen Bariumsulfat, Titandioxid und Siliciumdioxid ein, insbesondere Bariumsulfat und Titandioxid.

[0054] Die Bariumsulfat-Teilchen können direkt vom natürlichen Erz (Bargt) oder von einer synthetischen Ausfällung herkommen (Handbook of Fillers for Plastics, H.S.

[0055] Katz, J.V. Milewski, Van Nostrand Publishers, New York (1987)), z.B. von der Aufällungsreaktion zwischen Bariumsalzen und Natriumsulfat-Lösungen. Synthetisches BaSO_4 hat im Allgemeinen eine höhere Reinheit als dasjenige, das von dem natürlichen Erz herkommt, das selbst üblicherweise eine Reinheit von >98,5 aufweist. Das Bariumsulfat sollte fein zerteilt sein. Bargt ist üblicherweise mit einem mittleren Durchmesser von etwa 11 μm , 6 μm oder 3 μm erhältlich. Der mittlere Durchmesser von synthetischem BaSO_4 ist üblicherweise geringer, wobei die Werte üblicherweise etwa 3 μm , 1 μm oder 0,7 μm betragen.

[0056] Titandioxid-Teilchen können die Anatas- oder Rutil-Kristallform aufweisen. Die Titandioxid-Teilchen umfassen vorzugsweise als Hauptanteil Rutil, besonders bevorzugt wenigstens 60 Gew.-%, insbesondere wenigstens 80 Gew.-% und insbesondere etwa 100 Gew.-% Rutil. Die Teilchen können durch Standard-Arbeitsweisen wie Chlorid-Verfahren oder Sulfat-Verfahren hergestellt werden. Die Titandioxid-Teilchen können beschichtet sein, vorzugsweise mit anorganischen Oxiden, wie von Aluminium, Silicium, Zink, Magnesium oder Mischungen derselben. Vorzugsweise umfasst die Beschichtung zusätzlich dazu eine organische Verbindung (organische Verbindungen), wie Fettsäuren und vorzugsweise Alkanole, die zweckmäßigerweise 8–30, vorzugsweise 12–24 Kohlenstoffatome aufweisen. Polydiorganosiloxane oder Polyorganohydrogensiloxane, wie Polydimethylsiloxan oder Polymethylhydrogensiloxan, sind geeignete organische Verbindungen. Die Beschichtung wird zweckmäßigerweise in einer wässrigen Suspension auf die Titandioxid-Teilchen aufgetragen. Die anorganischen Oxide werden in wässriger Suspension aus wasserlöslichen Verbindungen, wie Natriumaluminat, Aluminiumsulfat, Aluminiumhydroxid, Aluminiumnitrat, Kieselsäure oder Natriumsilicat, ausgefällt. Die Überzugsschicht auf den Titandioxid-Teilchen umfasst vorzugsweise einen Bereich von 1 bis 12 Gew.-% an anorganischen Oxiden und vorzugsweise einen Bereich von 0,5 bis 3 Gew.-% an organischer Verbindung, bezogen auf das Gewicht an Titandioxid.

[0057] Der anorganische Füllstoff sollte fein zerteilt sein, und der mediane Teilchendurchmesser der Volumenverteilung (äquivalenter sphärischer Durchmesser, der 50 % des Volumens aller Teilchen entspricht und auf der kumulativen Verteilungskurve abgelesen wird, die Vol.-% zum Durchmesser der Teilchen in Beziehung setzt – oft als "D(v,0,5)"-Wert bezeichnet) desselben liegt vorzugsweise in einem Bereich von 0,01 bis 5 μm , besonders bevorzugt von 0,05 bis 5 μm , besonders bevorzugt von 0,05 bis 1,5 μm , besonders bevorzugt von 0,15 bis 1,2 μm und insbesondere von 0,15 bis 0,5 μm .

[0058] Idealerweise sollte das größte Teilchen keine Größe haben, die größer als die Dicke einer gefüllten Schicht ist. Das Vorliegen von übermäßig großen Teilchen kann ergeben, dass die Folie hässliche "Flecken" aufweist, d.h. das Vorliegen einzelner Füllstoffteilchen in der Folie mit dem bloßen Auge wahrgenommen werden kann. Teilchen, die eine solche Größe übertreffen, können durch in der Technik bekannte Siebverfahren entfernt werden. In einer bevorzugten Ausführungsform wird die Teilchengröße als Funktion der Größenverteilung der anorganischen Füllstoffteilchen geregelt. Vorzugsweise ist die Größenverteilung derart, dass die Standardabweichung nicht das Vierfache des D(v,0,5)-Werts, vorzugsweise nicht das Dreifache des D(v,0,5)-Werts und am meisten bevorzugt nicht das Zweifache des D(v,0,5)-Werts übersteigt. Zur Erläuterung: wenn die anorganischen Füllstoffteilchen einen gemessenen D(v,0,5)-Wert von 0,5 μm haben, dann wird es – auf der Basis, dass 99 % der Teilchen innerhalb von 3 Standardabweichungen des D(v,0,5)-Werts liegen – bevorzugt, dass 99 % der Füllstoffteilchen 6,5 μm nicht überschreiten (diese Zahl wird wie folgt berechnet: $0,5 \mu\text{m} + 3 \times \text{SD}$, wobei $\text{SD} = 4 \times 0,5 \mu\text{m}$), vorzugsweise dass 99 % der Füllstoffteilchen 5,0 μm nicht überschreiten ($0,5 \mu\text{m} + 3 \times \text{SD}$, wobei $\text{SD} = 3 \times 0,5 \mu\text{m}$), und am meisten bevorzugt, dass 99 % der Füllstoffteilchen 3,5 μm nicht überschreiten ($0,5 \mu\text{m} + 3 \times \text{SD}$, wobei $\text{SD} = 2 \times 0,5 \mu\text{m}$).

[0059] Die Teilchengröße der Füllstoffteilchen kann durch ein Elektronenmikroskop, einen Coulter-Zähler, Se-

dimentationsanalyse und statische oder dynamische Lichtstreuung gemessen werden. Techniken, die auf der Laserlichtstreuung basieren, werden bevorzugt. Die mediane Teilchengröße kann durch Auftragen einer kumulativen Verteilungskurve, die den Prozentgehalt an Teilchenvolumen unter ausgewählten Teilchengrößen darstellt, und Messen des 50. Perzentil-Werts bestimmt werden.

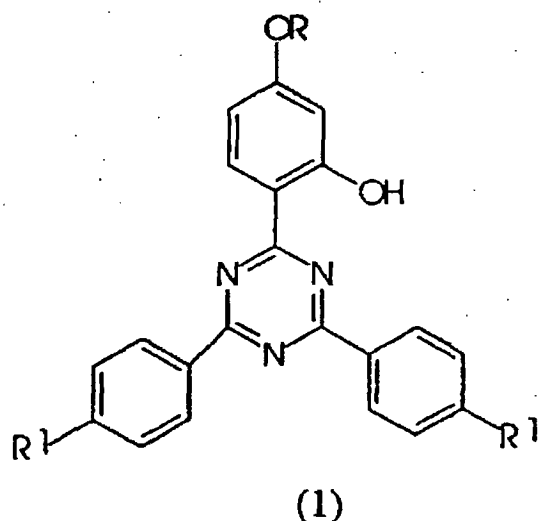
[0060] Die Schichten der Polyesterfolie können – falls es erwünscht ist – auch irgendeines der anderen Additive enthalten, die herkömmlicher Weise bei der Herstellung polymerer Folien verwendet werden. Somit können Mittel, wie Farbstoffe, Pigmente, hohlraumbildende Mittel, Gleitmittel, Antioxidationsmittel, Antiblockiermittel, oberflächenaktive Mittel, Gleithilfsmittel, Glanzverbesserer, Abbaubeschleuniger, Flammverzögerungsmittel, Ultraviolettstabilisatoren, Viskositätsregler und Dispersionsstabilisatoren, nach Bedarf eingefügt werden.

[0061] In einer bevorzugten Ausführungsform umfasst wenigstens eine und umfassen vorzugsweise wenigstens die äußeren Schichten der Mehrschichtenfolie einen oder mehrere UV-Absorber. Der UV-Absorber kann ein beliebiger der dem Fachmann bekannten sein (die UV-Absorber können beliebige der dem Fachmann bekannten sein), die mit den anderen bei der Herstellung der Mehrschichtenfolie der vorliegenden Erfindung verwendeten Materialien kompatibel sind.

[0062] Im Prinzip kann jeder organische oder anorganische UV-Absorber, insbesondere ein solcher der zur Verwendung mit Polyester geeignet ist, in der vorliegenden Erfindung verwendet werden. Geeignete Beispiele dafür umfassen die organischen UV-Absorber, die in Encyclopaedia of Chemical Technology, Kirk-Othmer, dritte Auflage, John Wiley & Sons, Band 23, Seite 615 bis 627 offenbart werden. Spezielle Beispiele für UV-Absorber umfassen Benzophenone, Benzotriazole (US-4684679, US-4812498 und US-4681905), Benzoxazinone (US-4446262, US-5251064 und US-5264539) und Triazine (US-3244708, US-3843371, US-4619956, US-5288778 und WO 94/05645). Vorzugsweise ist der UV-Absorber nicht flüchtig und verursacht keine übermäßige Vergilbung des Produkts.

[0063] In einer Ausführungsform kann ein UV-Absorber auf chemische Weise in die Kette eines schichtbildenden Polyesters eingefügt werden. Bevorzugte UV-stabile Absorber werden durch Einbauen von Benzophenonen in den Polyester hergestellt, wie z.B. in EP-A-0006686, EP-A-0031202, EP-A-0031203 und EP-A-0076582 beschrieben ist.

[0064] In einer bevorzugten Ausführungsform der Erfindung umfasst der UV-Absorber ein oder mehrere Triazine, besonders bevorzugt Hydroxyphenyltriazine und ganz besonders bevorzugt Hydroxyphenyltriazin-Verbindungen der Formel 1:



wobei R Wasserstoff, C₁-C₁₈-Alkyl, C₂-C₆-Alkyl, das mit Halogen oder C₁-C₁₂-Alkoxy substituiert ist, oder Benzyl ist, und R¹ Wasserstoff oder Methyl ist. R ist vorzugsweise C₁-C₁₂-Alkyl oder Benzyl, besonders bevorzugt C₃-C₆-Alkyl und insbesondere Hexyl. R¹ ist vorzugsweise Wasserstoff. Ein besonders bevorzugter UV-Absorber ist 2-(4,6-Diphenyl-1,3,5-triazin-2-yl)-5-(hexyl)oxyphenol, der im Handel als Tinuvin™ 1577 FF von Ciba-Additives erhältlich ist. Weitere Beispiele für einen bevorzugten UV-Absorber sind Benzylidenmalonatester (im Handel als Sanduvor™ PR-25 von Sandoz erhältlich) und Benzoxazinon (im Handel als Cyasorb™ 3638 von Cytec erhältlich).

[0065] Geeignete anorganische UV-Absorber schließen Metalloxid-Teilchen ein, wie Zinkoxid oder Titandioxid. Titandioxid-Teilchen, wie die oben beschriebenen, werden besonders bevorzugt.

[0066] Die Menge an UV-Absorber, die in einer Schicht eingefügt wird, liegt im Allgemeinen im Bereich von 0,1 Gew.-% bis 10 Gew.-%, besonders bevorzugt von 0,5 Gew.-% bis 9 Gew.-%, besonders bevorzugt von 1,2 Gew.-% bis 8 Gew.-%, ganz besonders bevorzugt von 2 Gew.-% bis 6 Gew.-% und insbesondere von 3,2 Gew.-% bis 5,5 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht des Polymers dieser Schicht. In einer Ausführungsform der Erfindung liegen sowohl ein organischer UV-Absorber, vorzugsweise ein Triazin, als auch ein anorganischer UV-Absorber, vorzugsweise Titandioxid, vor. Das Gewichtsverhältnis von anorganischem zu organischen UV-Absorber liegt vorzugsweise in einem Bereich von 0,5 bis 10:1, besonders bevorzugt von 1 bis 5:1 und ganz besonders bevorzugt von 1,5 bis 2,5:1.

[0067] Die Komponenten der Zusammensetzung einer Schicht können auf konventionelle Weise miteinander vermischt werden. Z.B. durch Mischen mit den monomeren Reaktionsteilnehmern, aus denen sich das Schichtpolymer ableitet, oder die Komponenten können mit dem Polymer durch Taumel- oder Trockenmischer oder durch Compoundierung in einem Extruder vermischt werden, gefolgt von einem Kühlen und üblicherweise einer Zerkleinerung zu Körnchen oder Chips. Die Masterbatch-Technologie kann auch verwendet werden.

[0068] Das Vorliegen des teilchenförmigen Füllstoffs verbessert auch im Allgemeinen die Aufwickelbarkeit der Folie während der Herstellung. Zum Erhöhen der Aufwickelbarkeit kann die Folie jedoch auch eine "Gleitbeschichtung" umfassen. Eine geeignete Gleitbeschichtung kann z.B. eine diskontinuierliche Schicht eines acrylischen und/oder methacrylischen Polymerharzes sein, das gegebenenfalls weiterhin ein Vernetzungsmittel umfasst, wie in EP-A-0408197 beschrieben ist. Eine alternative Gleitbeschichtung kann eine Kaliumsilicat-Beschichtung umfassen, wie z.B. in den US Patenten Nr. 5925428 und 5882798 beschrieben ist.

[0069] Die Mehrschichtenfolien können auch eine tintenaufnehmende Beschichtung umfassen. Die tintenaufnehmende Beschichtung verbessert die Haftung von Tinte an der Folie und erhöht den Bereich von Tinten, die leicht auf die Oberfläche aufgetragen werden können. Die tintenaufnehmende Beschichtung kann jede derartige Beschichtung sein, die dem Fachmann wohlbekannt ist. Z.B. kann die tintenaufnehmende Beschichtung eine Acryl-Komponente und eine vernetzende Komponente (z.B. Melamin-Formaldehyd) umfassen, wie die in EP-A-0429179 offenbarte Beschichtung.

[0070] Gemäß einem weiteren Aspekt der Erfindung wird ein Verfahren zur Herstellung einer opaken, reißfesten Folie bereitgestellt, die eine Reißfestigkeit in wenigstens einer Ausdehnung der Folie von wenigstens 0,3 kg/mm², gemessen als Fläche unterhalb der Kurve in einer graphischen Darstellung der Spannung als Funktion der Dehnung gemäß ASTM D1004-94A, aufweist, wobei das Verfahren die folgenden Schritte umfasst: die Bereitstellung mehrerer Schichten aus polymerem Material, wobei die mehreren Schichten wenigstens zwei Schichten aus einem gefüllten polymeren Material, die darin wenigstens 5 Gew.-% eines Trübungsmittels enthalten, und wenigstens zwei Schichten aus einem ungefüllten, im Wesentlichen trübungsmittelfreien Polyestermaterial umfassen, die durch ein Coextrudieren erfolgende Bildung einer Verbundfolie aus diesen mehreren Schichten, wobei sich die gefüllten und die ungefüllten Schichten abwechseln, und die Orientierung der gefüllten und ungefüllten Schichten.

[0071] Somit verbessert die Verwendung von zwei oder mehr Schichten aus ungefülltem, polymerem, im Wesentlichen trübungsmittelfreien Material die Reißfestigkeit einer opaken Mehrschichtenfolie, die wenigstens zwei gefüllte Schichten aus polymerem Material umfasst, wobei die gefüllten Schichten wenigstens 5 Gew.-% Trübungsmittel umfassen.

[0072] Die opaken polymeren Folien der vorliegenden Erfindung haben eine große Vielfalt von Anwendungen, einschließlich der allgemeinen Verwendung als Papierersatz (wie Folien für die Druckindustrie, Anzeigevorrichtungen, Etikette, Karten (einschließlich Personalausweise, Chipkarten und Kreditkarten) und die Bildaufzeichnung), als Druckplattenmedien, Verpackungsmaterial und Spulenbeschichtung. Die Folie wäre auch für die Laminierung der Innenwände einer Metalldose, insbesondere einer Zinddose brauchbar. Die Folien sind insbesondere bei Anwendungen brauchbar, die geringere Dicken einer opaken reißfesten Folie erfordern, insbesondere Etikette und Verpackungsanwendungen. Wie oben festgestellt wurde, kann eine geringere Dicke Kosteneinsparungen auf preisempfindlichen Märkten gewähren, und dies ist bei Verpackungsanwendungen besonders wichtig. Die Folien sind auch insbesondere bei Anwendungen nützlich, bei denen ein Folienprodukt mit einer hohen Reißfestigkeit erforderlich ist. Die Erfindung wird unter Bezugnahme auf die folgenden Figuren erläutert, in denen:

[0073] [Fig. 1](#) eine schematische Darstellung einer schichtvervielfachenden Anordnung ist, wie sie in US-3051453 offenbart wird, die zur Herstellung der Mehrschichtenfolien verwendet wurde. Der 3-Schichten-Schmelzstrom tritt von der linken Seite her in die Apparatur ein und verlässt die Apparatur auf der rechten Seite, wie in [Fig. 1](#) gezeigt ist. Querschnitte des Schmelzstroms sind als Beilagen (a) bis (e) dargestellt. Die Position der gestrichelten Linie A-A in der Beilage (a) wird in der schematischen Darstellung der Apparatur gezeigt. Ähnliche Abschnitte sind als B-B, C-C und D-D für die Beilagen (b), (c) bzw. (d) aufgeführt. Somit erläutern die Beilagen (a) bis (e) Querschnittsansichten der Struktur des mehrschichtigen, coextrudierten Schmelzstroms in verschiedenen Stadien während der Schicht-Vervielfachungsbehandlung. In Beilage (a) liegt ein Dreischichtenverbund-Schmelzstrom vor, der einer Schichtvervielfachung unterzogen werden soll, wie vor dem Eintreten in die erste Vervielfachungsvorrichtung gezeigt wird. Der Schmelzstrom wird dann in den Stadien (a), (b) bzw. (c) nacheinander aufgeteilt, komprimiert und erneut vereinigt. Es wird eine Wiederholungsbehandlung erläutert, die einen Neunschichten-Verbundstrom ergibt, der dann zur Düse transportiert wird. Eine weitere Wiederholungsbehandlung würde eine Struktur ergeben, die 17 Schichten umfasst.

[0074] [Fig. 2](#) ist eine schematische Erläuterung einer Schichtvervielfachungs-Anordnung, die zur Herstellung der Mehrschichtenfolien verwendet werden kann.

[0075] In der [Fig. 2](#) wird ein Zweischichtenverbund-Schmelzstrom (1) zu einem Coextrusionsblock (2) geführt und dann durch einen vierspurigen Schicht-Vervielfacher (3) geführt. Das polymere Material wird dann zur Düse (4) geführt, um einen Achtschichten-Verbundstrom (5) bereitzustellen.

[0076] Die [Fig. 3B](#) bis [Fig. 3D](#) und die [Fig. 4A](#) bis [Fig. 4D](#) sind graphische Darstellungen der Testdaten, die durch Analyse der Folien erhalten wurden, wie in den folgenden Beispielen beschrieben wird. Eine weitere Diskussion der [Fig. 3B](#) bis [Fig. 3D](#) und [Fig. 4A](#) bis [Fig. 4D](#) erfolgt nachstehend. Die folgenden Testmethoden können zur Bestimmung bestimmter Eigenschaften der Folie verwendet werden:

- (i) Die optische Dichte (Transmission Optical Density, TOD) der Folie wird gemäß ASTM D1003-97 unter Verwendung eines BYK Gardner Inc. Hazegard Systems im Transmissionsmodus gemessen.
- (ii) Die L^* -, a^* - und b^* -Farb-Koordinierungswerte (CIE (1976)) und der Weißgehalt der Außenfläche der weißen Schicht werden unter Verwendung des Colorgard System 2000, Modell/45 (hergestellt von Pacific Scientific) auf der Basis der in ASTM D313 beschriebenen Prinzipien gemessen.
- (iii) Der 60°-Glanzwert der Folienoberfläche wird unter Verwendung des Dr. Lange-Reflektometers REFO 3 (das von Dr. Bruno Lange GmbH, Düsseldorf, Deutschland erhalten wird) gemäß DIN 67530 gemessen.
- (iv) Die maximale Last und Reißfestigkeit der Folie sowohl in der Maschinenrichtung als auch der Querrichtung wurden unter Verwendung des Graves-Reißtests (ASTM D1004-94A) – und wie darin beschrieben ist – gemessen.
- (v) Der Zugmodul und die Zugdehnung wurden gemäß ASTM D882-88 gemessen.

[0077] Die Erfindung wird weiterhin unter Bezugnahme auf die folgenden Beispiele erläutert.

Beispiele

[0078] Die Folien wurden unter Verwendung einer Standard-Flachfolienextrusion und eines Spannrahmen-Verfahrens mit den folgenden Materialien hergestellt.

Polymer "A": Poly(ethylterephthalat) (PET) mit einer Grenzviskositätszahl (IV) von $0,63 \pm 0,002$

Polymer "B": PET, das 20 Gew.-% Bariumsulfat-Füllstoff enthält, mit einer IV von $0,63 \pm 0,002$

Elend 1: 100 % Polymer B

Elend 2: 80 % Polymer B, 20 % Polymer A

Elend 3: 70 % Polymer B, 30 % Polymer A

Elend 4: 60 % Polymer B, 40 % Polymer A

Elend 5: 50 % Polymer B, 50 % Polymer A

[0079] Die Polymere A und B wurden verwendet, um die ungefüllten bzw. gefüllten Schichten einer Mehrschichtenfolie zu bilden. Die Elends 1 bis 5 wurden verwendet, um Monoschichtfolien zu bilden, die für Vergleichszwecke mit dem Mehrschichtenfolien hergestellt wurden.

[0080] Ein Schmelze-Coextrusionssystem wurde verwendet, in dem zwei separate Extruder Polymer im geschmolzenen Zustand durch einen Coextrusions-Einspritzblock zu einem üblichen Schmelzekanal führten. Das Merkmal des Einspritzblocks besteht darin, dass die zwei Ströme der Polymerschmelze in ein übliches Schmelzerohr eingeführt werden und in demselben diskrete Schichten bleiben.

[0081] Die Coextrusionsschmelze wurde durch ein System geleitet, das befähigt ist, den Strom so aufzuspalten und erneut zu kombinieren, dass die Anzahl der diskreten Schichten einer Polymerschmelze in dem Schmelzekanal erhöht wurde. Das Verfahren zum Erzeugen mehrerer Polymer-Schichten aus einem anfänglichen Strom, der aus 3 Schichten besteht, war den Techniken ähnlich, die in dem oben diskutierten US Patent 3051453 beschrieben sind. Falls identisches Polymer durch jeden Extruder in das Schmelzesystem eingegeben wurde, um Vergleichsbeispiele bereitzustellen, wurde eine einzige oder Monoschicht des Polymers verarbeitet.

[0082] Das geschmolzene Polymer wurde anschließend durch eine Flachfoliendüse extrudiert und als Schmelzevorhang auf eine kalte, rotierende Kühlwalze gegossen. Danach wurde die gegossene Folie mehreren weiteren Verarbeitungsschritten unterzogen. Die Folie wurde durch einen Streckschritt geführt, in dem ein Streckverhältnis zwischen 2,9 und 3,1 in der Vorwärts- oder Maschinenrichtung bei 90°C dem Material auferlegt wurde. Dann wurde ein Seiten- oder Querstrecken eines Verhältnisses von 3,2 durch ein Spannrahmen-Verfahren bei einer Temperatur von 110°C angewendet, und schließlich wurde die biaxial orientierte Folie in einem Wärmehärtungsschritt bei Temperaturen um 220°C kristallisiert.

[0083] Tabelle 1 zeigt die Verfahrensbedingungen der Folienherstellung und die Eigenschaften der erzeugten Folien. Um die Eigenschaften der Mehrschichtenfolien der Erfindung zu bewerten, wurde auch eine Reihe von Monoschichtfolien mit entsprechender Dicke für Vergleichszwecke hergestellt. Die Daten der optischen Dichte und der maximalen Last wurden für eine Folie von 80 µm normalisiert.

[0084] Die in Tabelle 1 gezeigten Daten der optischen Dichte und der Reißfestigkeit sind auch in den [Fig. 3B](#) bis [Fig. 3D](#) und in den [Fig. 4A](#) bis [Fig. 4D](#) dargestellt. In den [Fig. 3B](#) bis [Fig. 3D](#) ist die optische Dichte als Funktion der Füllstoff-Konzentration aufgetragen. In den [Fig. 4A](#) bis [Fig. 4D](#) ist die Reißfestigkeit gegen die Füllstoff-Konzentration aufgetragen.

[0085] [Fig. 4A](#) zeigt die Reißfestigkeitsdaten für Mehrschichtenfolien der Vergleichsbeispiele 1 bis 4 und die Daten für die Monoschicht-Vergleichsbeispiele 5 bis 7.

[0086] Die [Fig. 3B](#) und [Fig. 4B](#) zeigen die Lichtundurchlässigkeits- und Reißfestigkeitsdaten für die Beispiele 1 bis 5 (9 Schichten) und die Monoschicht-Vergleichsbeispiele 8 bis 11.

[0087] Die [Fig. 3C](#) und [Fig. 4C](#) zeigen die Lichtundurchlässigkeits- und Reißfestigkeitsdaten für die Beispiele 6 bis 9 (17 Schichten) und die Monoschicht-Vergleichsbeispiele 12 bis 14.

[0088] Die [Fig. 3D](#) und [Fig. 4D](#) zeigen die Lichtundurchlässigkeits- und Reißfestigkeitsdaten für die Beispiele 10 bis 13 (17 Schichten) und die Monoschicht-Vergleichsbeispiele 15 bis 17.

[0089] Die [Fig. 3B](#) bis [Fig. 3D](#) demonstrieren, dass bei einer gegebenen Füllstoff-Beladung eine Mehrschichtenfolie gemäß der Erfindung eine verbesserte optische Dichte aufweist, verglichen mit einer Monoschichtfolie, die die entsprechende Füllstoff-Beladung aufweist.

[0090] Die [Fig. 4B](#) bis [Fig. 4D](#) demonstrieren, dass bei einer gegebenen Füllstoff-Beladung eine Mehrschichtenfolie gemäß der Erfindung unerwarteter Weise eine größere Reißfestigkeit aufweist, verglichen mit einer Monoschichtfolie, die die entsprechende Füllstoff-Beladung aufweist. Die [Fig. 4A](#) demonstriert, dass dieser Effekt nicht bei einer Dreischichtenfolie aufgezeigt wird, die auf ähnliche Weise wie die Monoschichtfolie arbeitet.

[0091] Andere Vorteile der Folien der vorliegenden Erfindung sind durch weitere Analyse dieser Daten ersichtlich.

[0092] Aus der [Fig. 3B](#) ist klar ersichtlich, dass, um die Lichtundurchlässigkeit der am stärksten gefüllten Monoschichtfolie zu erreichen, eine Mehrschichtenfolie eine optische Dichte von etwa 1,02 haben muss. Die Füllstoff-Beladung, die notwendig ist, um dies in einer Monoschichtfolie zu erreichen, beträgt etwa 19 %, während bei einer Mehrschichtenfolie gemäß der Erfindung diese optische Dichte unter Verwendung von nur etwa 16 % Füllstoff erreicht werden kann.

[0093] Somit sind bei einer gegebenen optischen Dichte die Mehrschichtenfolien der vorliegenden Erfindung auf wirtschaftlichere Weise herstellbar als die Monoschichtfolien des Standes der Technik.

[0094] Wenn man zudem die Reißfestigkeit dieser beiden Folien vergleicht, deren Lichtundurchlässigkeit

übereinstimmt (siehe [Fig. 4B](#)), weist die Mehrschichtenfolie (etwa 16 % Füllstoff) eine Reißfestigkeit von etwa 0,42 kg/mm² auf, was fast das Doppelte derjenigen der Monoschichtfolie mit äquivalenter Lichtundurchlässigkeit (etwa 19 % Füllstoff) darstellt, die eine Reißfestigkeit von 0,26 kg/mm² aufweist.

Tabelle 1

Folie	Anzahl der Schichten	Folienstruktur und -zusammensetzung	Zugaberate*		Streckverhältnis (FDxSD)	Folien Dicke (µm)	Gesamt- füllstoff (%)	optische Dichte (normalisiert)	Graves-Reißtest		
			Strom 1 kg/h	Strom 2 kg/h					max. Last (kgf)		Reißfestigkeit (kg/mm ²)
									MD	TD	
Vgl.-Bsp. 1	3	BAB	93	40	2,9 x 3,2	81	12,9	-	3,52	0,466	-
Vgl.-Bsp. 2	3	BAB	72	48	2,9 x 3,2	76	11,3	-	3,78	0,497	-
Vgl.-Bsp. 3	3	BAB	60	60	2,9 x 3,2	86	9,6	-	3,85	0,611	-
Vgl.-Bsp. 4	3	BAB	50	75	2,9 x 3,2	92	7,9	-	3,99	0,657	-
Vgl.-Bsp. 5	1	Mono; Blend 5	72	48	2,9 x 3,2	61	10,5	-	3,94	0,542	-
Vgl.-Bsp. 6	1	Mono; Blend 2	72	48	2,9 x 3,2	90	16,2	-	3,76	0,411	-
Vgl.-Bsp. 7	1	Mono; Blend 1	72	48	2,9 x 3,2	76	19,6	-	3,11	0,24	-
Bsp. 1	9	(BA) ₄ B	149	40	3,1 x 3,2	79,9	16,1	1,05	----	----	-
Bsp. 2	9	(BA) ₄ B	93	40	3,1 x 3,2	75,7	15,7	0,95	3,602	0,418	-
Bsp. 3	9	(BA) ₄ B	71	48	3,1 x 3,2	78,8	13,1	0,85	4,019	0,615	-
Bsp. 4	9	(BA) ₄ B	59	60	3,1 x 3,2	85,5	11,1	0,76	3,873	0,687	-
Bsp. 5	9	(BA) ₄ B	50	75	3,1 x 3,2	75,1	8,6	0,75	3,937	0,937	-
Vgl.-Bsp. 8	1	Mono; Blend 5	72	48	3,1 x 3,2	76,9	9,4	0,55	3,661	0,536	-
Vgl.-Bsp. 9	1	Mono; Blend 4	72	48	3,1 x 3,2	75,4	11,1	0,65	3,522	0,494	-
Vgl.-Bsp. 10	1	Mono; Blend 2	72	48	3,1 x 3,2	81,1	14,7	0,71	3,399	0,382	-
Vgl.-Bsp. 11	1	Mono; Blend 1	72	48	3,1 x 3,2	81,1	18,7	1,02	3,264	0,262	-
Bsp. 6	17	(BA) ₈ B	109	50	3,1 x 3,2	95,33	19,3	0,99	3,022	0,257	0,291
Bsp. 7	17	(BA) ₈ B	90	56	3,1 x 3,2	81,3	17,9	1,07	3,354	0,294	0,321
Bsp. 8	17	(BA) ₈ B	80	60	3,1 x 3,2	100,8	17,2	0,88	2,935	0,353	0,35
Bsp. 9	17	(BA) ₈ B	70	65	3,1 x 3,2	83,7	11,6	0,86	3,329	0,508	0,401
Vgl.-Bsp. 12	1	Mono; Blend 5	72	48	3,1 x 3,2	79,7	10,9	0,62	3,537	0,344	0,377
Vgl.-Bsp. 13	1	Mono; Blend 3	72	48	3,1 x 3,2	87,8	15,4	0,86	3,248	0,244	0,25
Vgl.-Bsp. 14	1	Mono; Blend 1	72	48	3,1 x 3,2	81,3	21,4	1,13	2,872	0,177	0,179
Bsp. 10	17	(BA) ₈ B	109	50	2,9 x 3,2	93,2	19,3	0,90	3,588	0,311	0,329
Bsp. 11	17	(BA) ₈ B	90	56	2,9 x 3,2	83,7	17,9	0,96	3,558	0,327	0,339
Bsp. 12	17	(BA) ₈ B	80	60	2,9 x 3,2	107,1	17,2	0,77	3,838	0,435	0,402
Bsp. 13	17	(BA) ₈ B	70	65	2,9 x 3,2	87,8	11,6	0,77	3,688	0,662	0,57
Vgl.-Bsp. 15	1	Mono; Blend 5	72	48	2,9 x 3,2	81,9	10,9	0,49	4,053	0,538	0,419
Vgl.-Bsp. 16	1	Mono; Blend 3	72	48	2,9 x 3,2	86,5	15,4	0,74	3,794	0,36	0,296
Vgl.-Bsp. 17	1	Mono; Blend 1	72	48	2,9 x 3,2	76,2	21,4	1,07	3,521	0,237	0,208

*Strom 1 und Strom 2 tragen die Polymere A bzw. B. Wenn eine Monoschichtfolie hergestellt wird, tragen die Ströme 1 und 2 das gleiche Polymer.

Patentansprüche

1. Opake, coextrudierte, mehrschichtige Folie mit einer Reißzähigkeit in wenigstens einer Richtung der Folie von wenigstens $0,3 \text{ kg/mm}^2$, gemessen als Fläche unterhalb der Kurve in einer graphischen Darstellung der Spannung als Funktion der Dehnung gemäß ASTM D1004-94A, und umfassend wenigstens zwei ungefüllte, orientierte, im Wesentlichen trübungsmittelfreie Polyesterschichten und wenigstens zwei gefüllte, orientierte Schichten aus einem polymeren Material, wobei die gefüllten Schichten wenigstens 5 Gew.-% Trübungsmittel umfassen, wobei sich die gefüllten und die ungefüllten Schichten abwechseln.
2. Folie nach Anspruch 1, wobei das polymere Material der gefüllten Schichten Polyester ist.
3. Folie nach Anspruch 1, wobei das polymere Material der im Wesentlichen trübungsmittelfreien Schichten dasselbe wie das polymere Material der Schichten ist, die wenigstens 5 Gew.-% Trübungsmittel umfassen.
4. Folie nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei das polymere Material einer Schicht Poly(ethylenterephthalat) ist.
5. Folie nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei das Trübungsmittel ein anorganischer, teilchenförmiger Füllstoff ist.
6. Folie nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei das Trübungsmittel Bariumsulfat ist.
7. Folie nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die gefüllten Schichten ein Trübungsmittel im Bereich von 10 bis 30 Gew.-%, bezogen auf das polymere Material der gefüllten Schicht, umfassen.
8. Folie nach einem der vorhergehenden Ansprüche mit einer mehrschichtigen Struktur $(BA)_nB$, wobei A eine ungefüllte Schicht darstellt, B eine gefüllte Schicht darstellt und n wenigstens 2 ist.
9. Folie nach Anspruch 8, wobei n wenigstens 3 ist.
10. Folie nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Gesamtzahl der Schichten 7 oder mehr ist.
11. Folie nach einem der vorhergehenden Ansprüche mit einer optischen Transmissionsdichte von wenigstens 0,5.
12. Verfahren zur Herstellung einer opaken, reißfesten Folie mit einer Reißzähigkeit in wenigstens einer Richtung der Folie von wenigstens $0,3 \text{ kg/mm}^2$, gemessen als Fläche unterhalb der Kurve in einer graphischen Darstellung der Spannung als Funktion der Dehnung gemäß ASTM D1004-94A, wobei das Verfahren die Schritte der Bereitstellung einer Mehrzahl von Schichten aus polymerem Material, wobei die Mehrzahl von Schichten wenigstens zwei Schichten aus einem gefüllten polymeren Material, die darin wenigstens 5 Gew.-% eines Trübungsmittels enthalten, und wenigstens zwei Schichten aus einem ungefüllten, im Wesentlichen trübungsmittelfreien Polyester material umfasst, die durch ein Coextrudieren erfolgende Bildung einer Verbundfolie aus dieser Mehrzahl von Schichten, wobei sich die gefüllten und die ungefüllten Schichten abwechseln, und der Orientierung der gefüllten und ungefüllten Schichten umfasst.
13. Verwendung einer mehrschichtigen Folienstruktur, die wenigstens zwei ungefüllte, im Wesentlichen trübungsmittelfreie Schichten aus einem polymeren Material und wenigstens zwei gefüllte Schichten aus einem polymeren Material umfasst, wobei die gefüllten Schichten wenigstens 5 Gew.-% eines Trübungsmittels umfassen, um in einer opaken, polymeren Folie eine verbesserte Reißfestigkeit so zu erhalten, dass die Folie eine Reißzähigkeit in wenigstens einer Richtung der Folie von wenigstens $0,3 \text{ kg/mm}^2$, gemessen als Fläche unterhalb der Kurve in einer graphischen Darstellung der Spannung als Funktion der Dehnung gemäß ASTM D1004-94A, aufweist.
14. Verwendung oder Verfahren nach Anspruch 12 oder 13, wobei die mehrschichtige Folie in einem der Ansprüche 1 bis 11 definiert ist.

Es folgen 9 Blatt Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

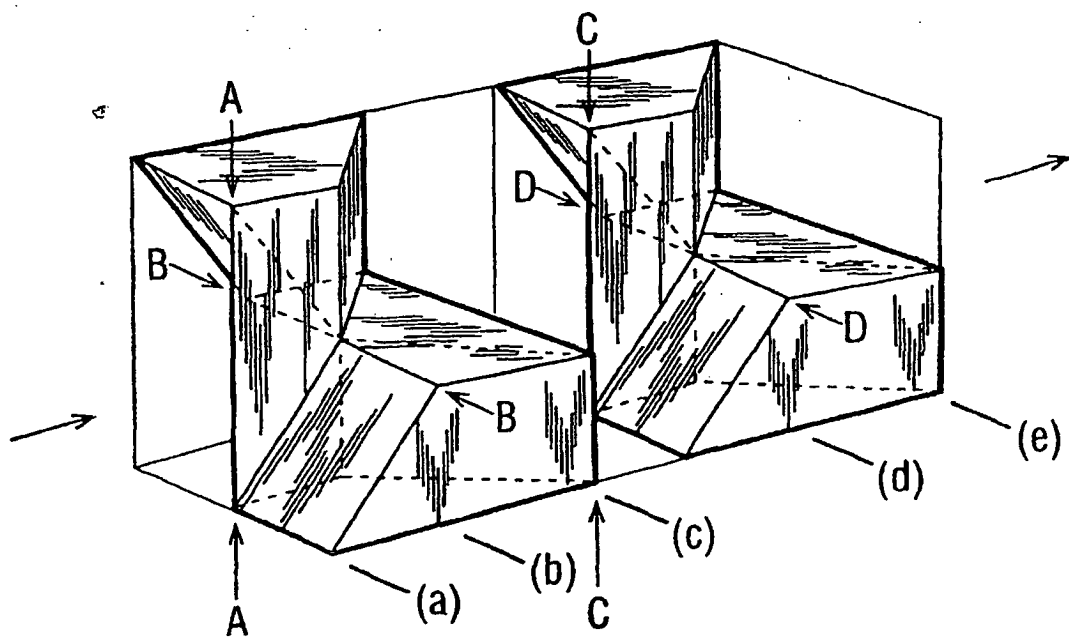
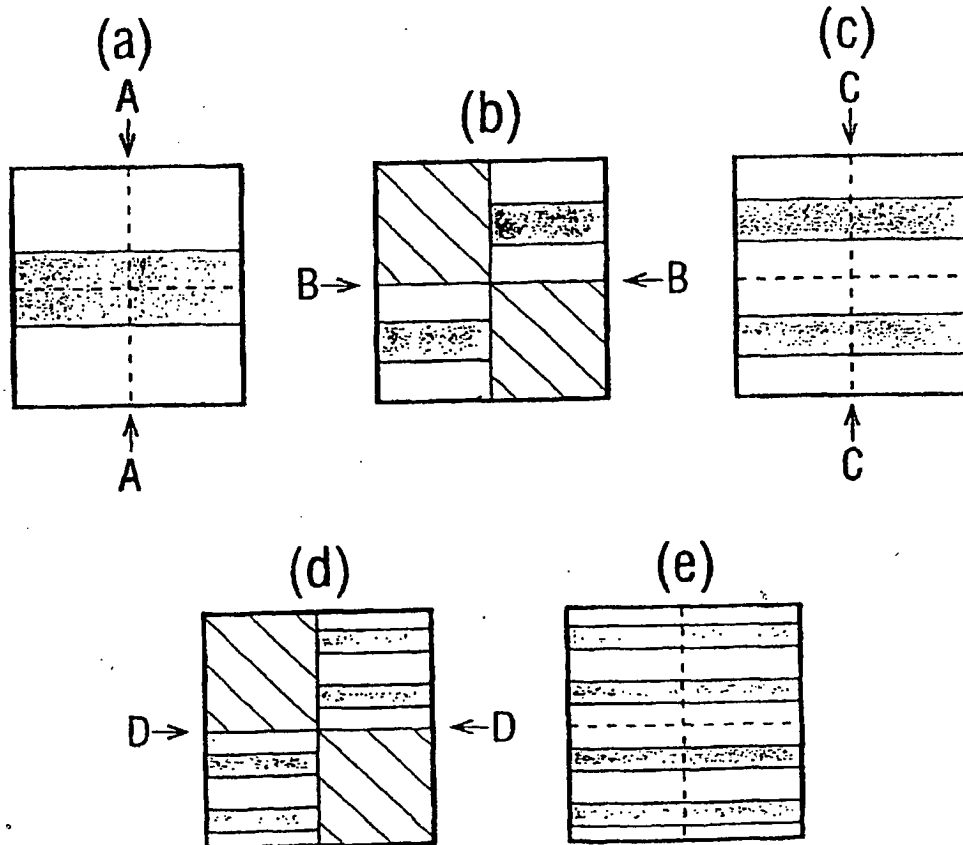


FIG. 1



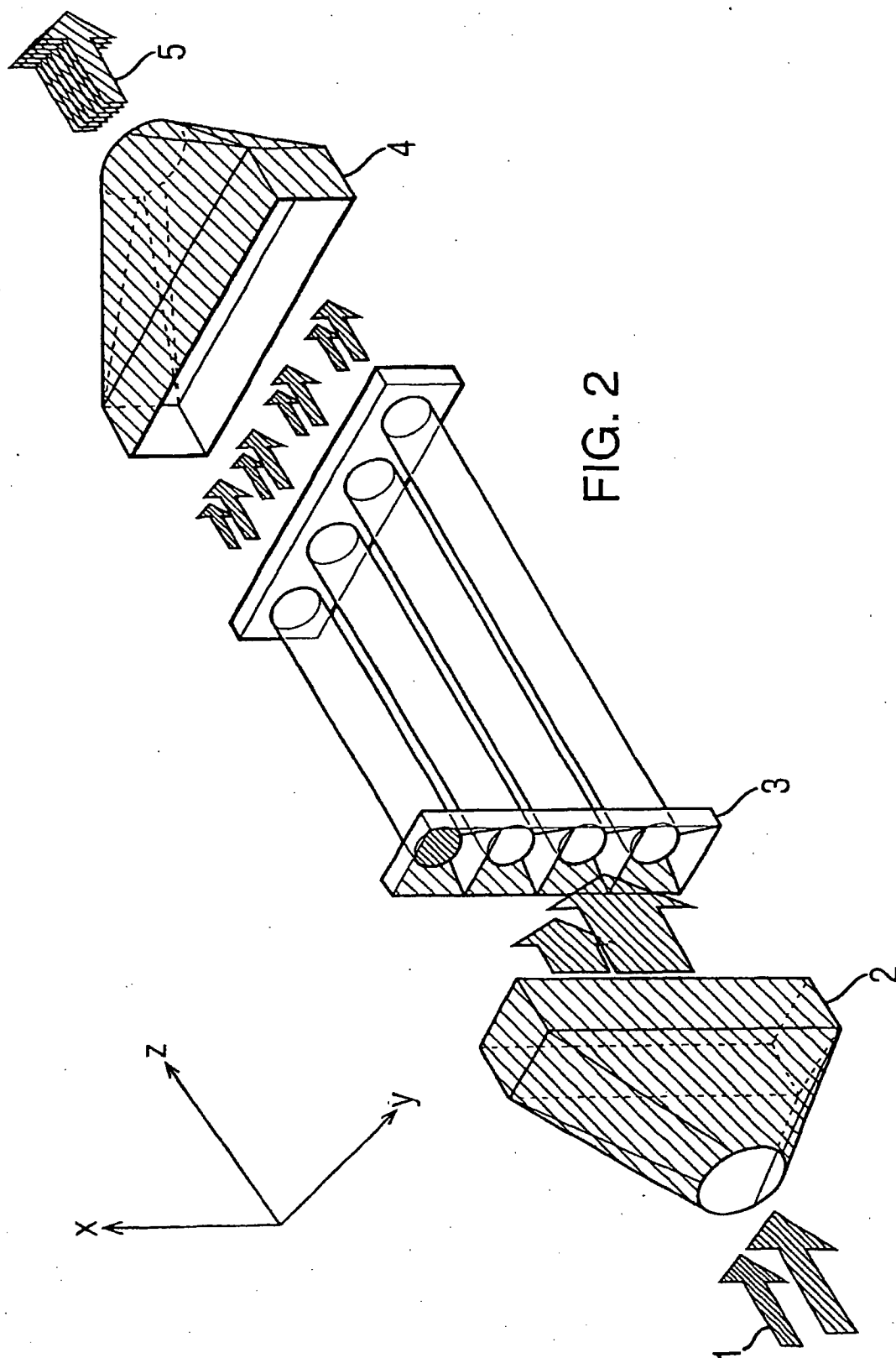


FIG. 3B

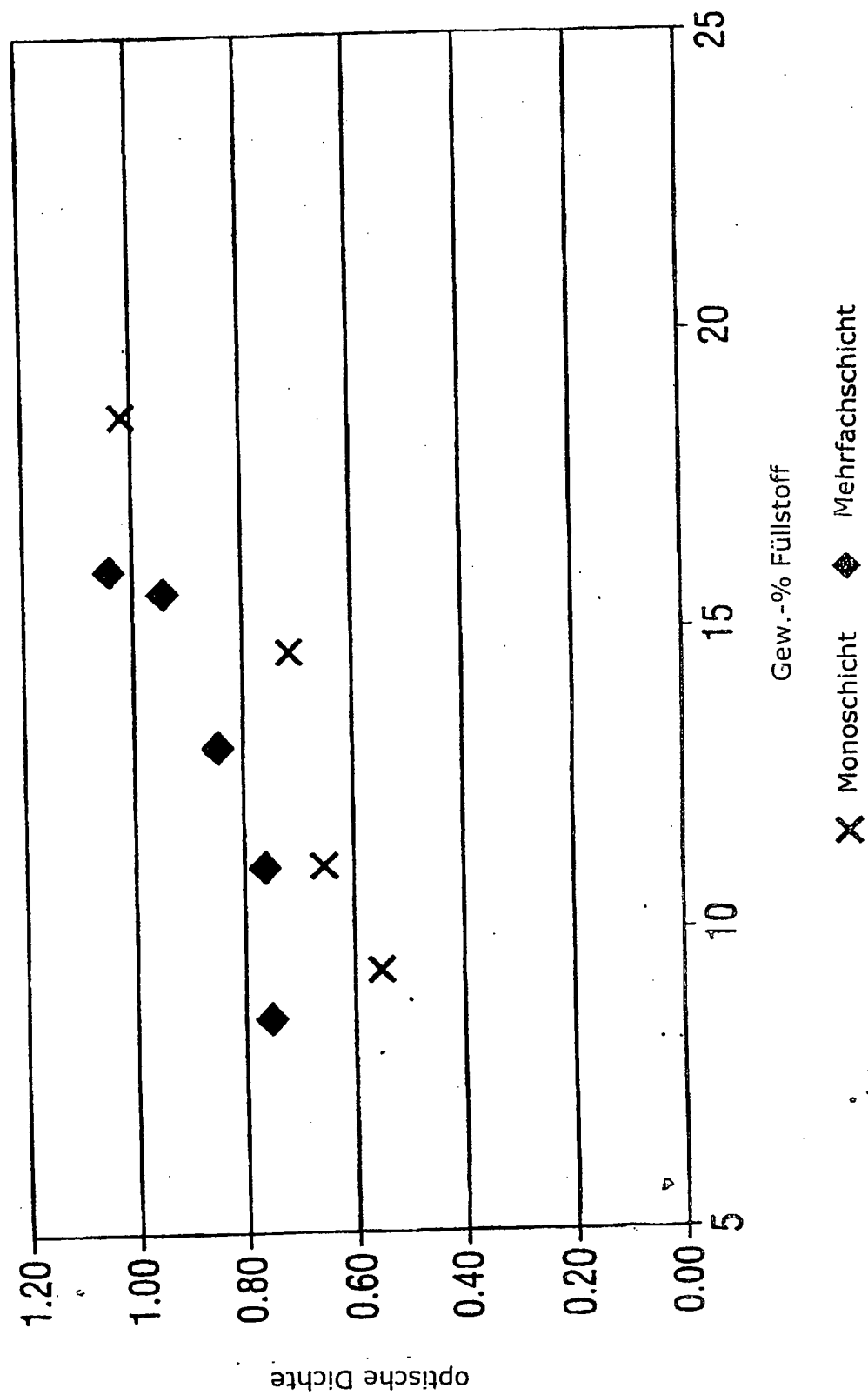


FIG. 3C

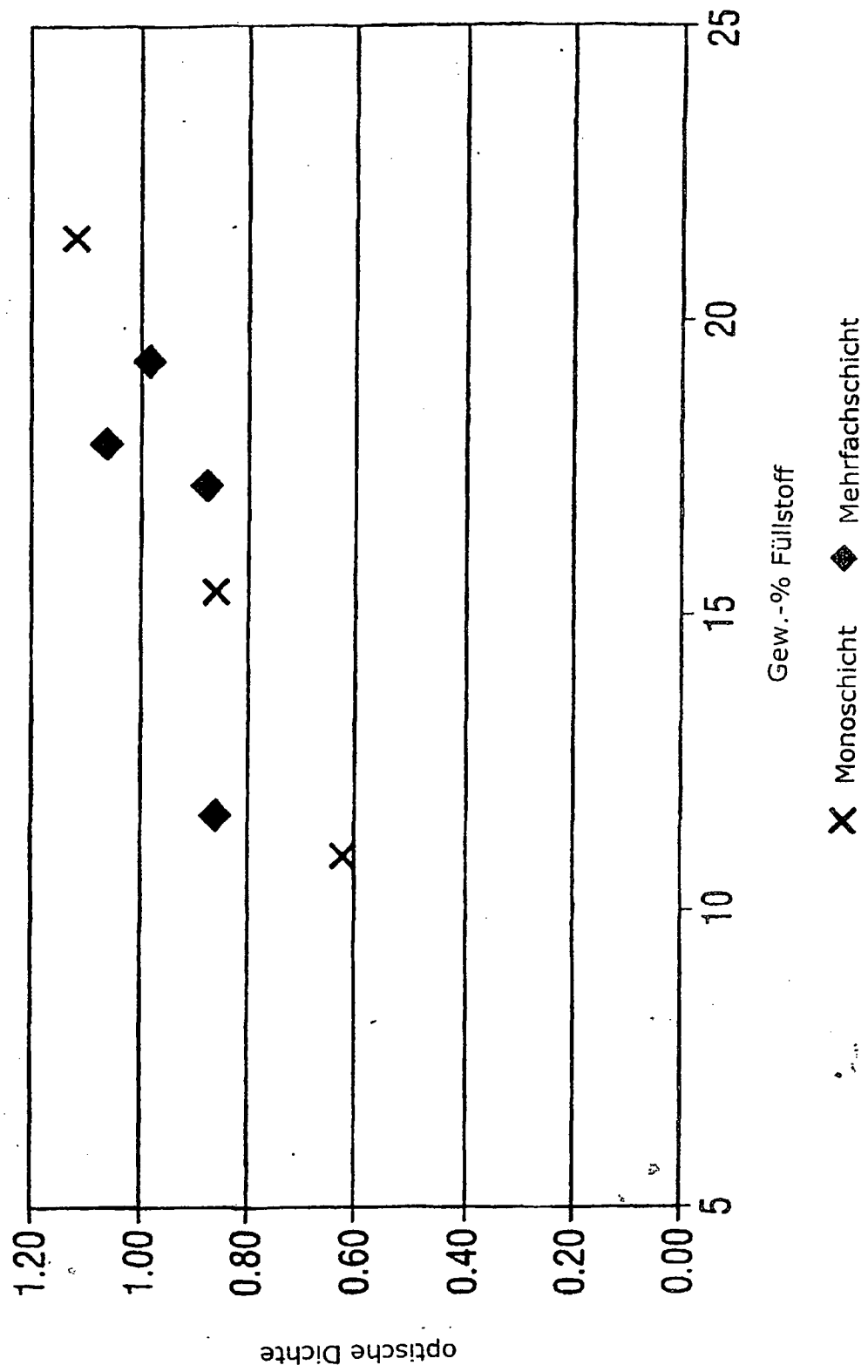


FIG. 3D

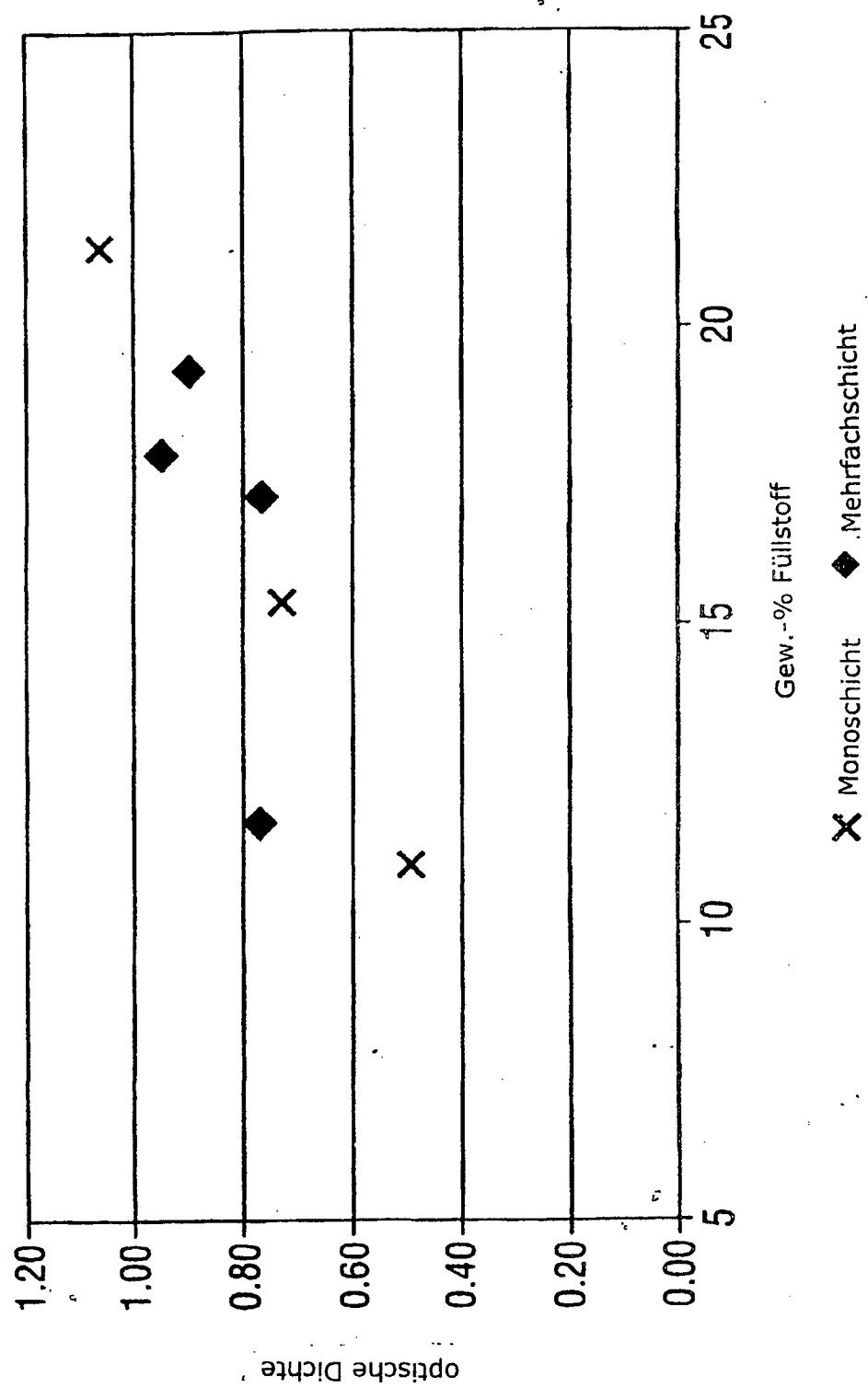


FIG. 4A

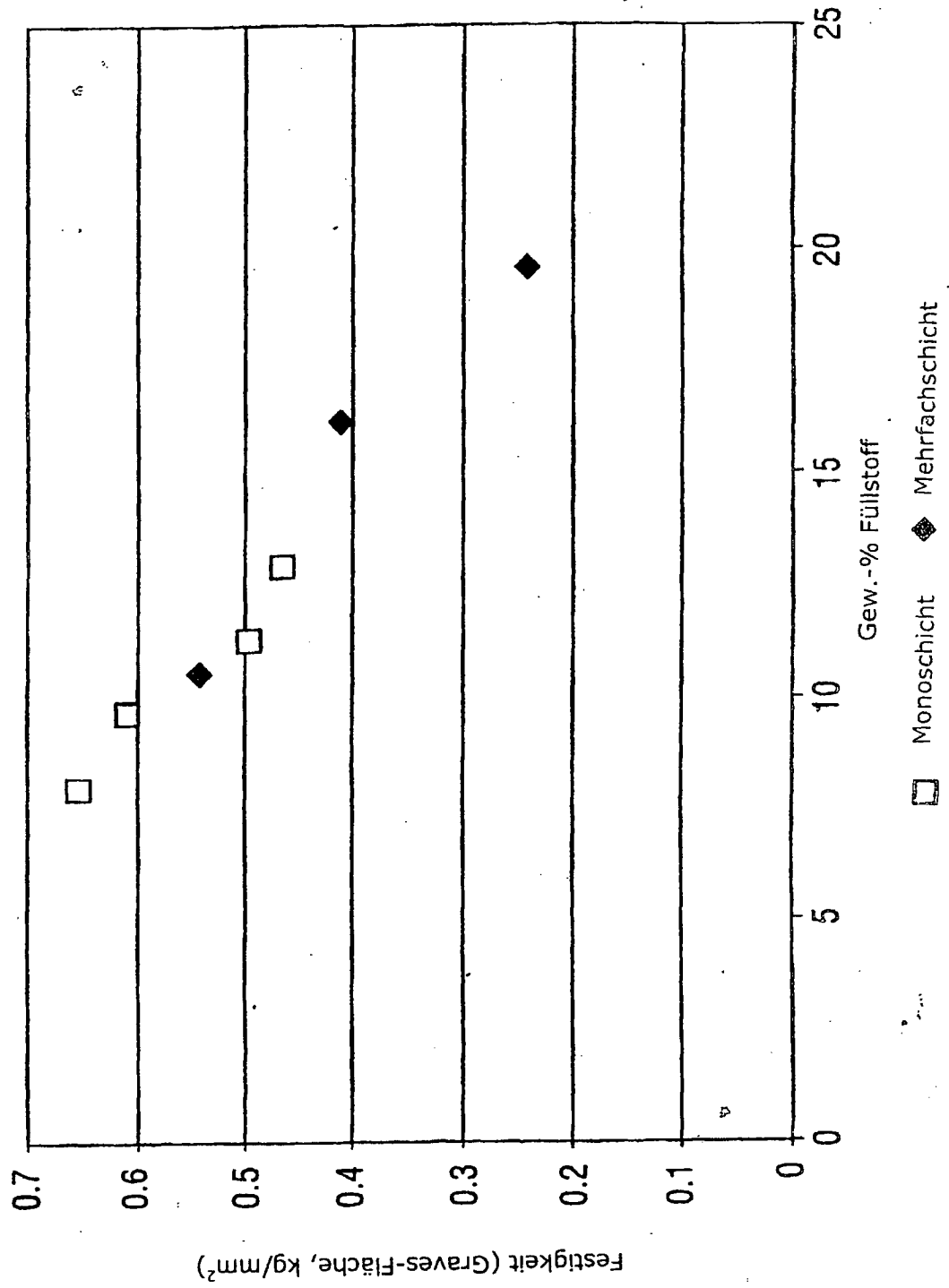


FIG. 4B

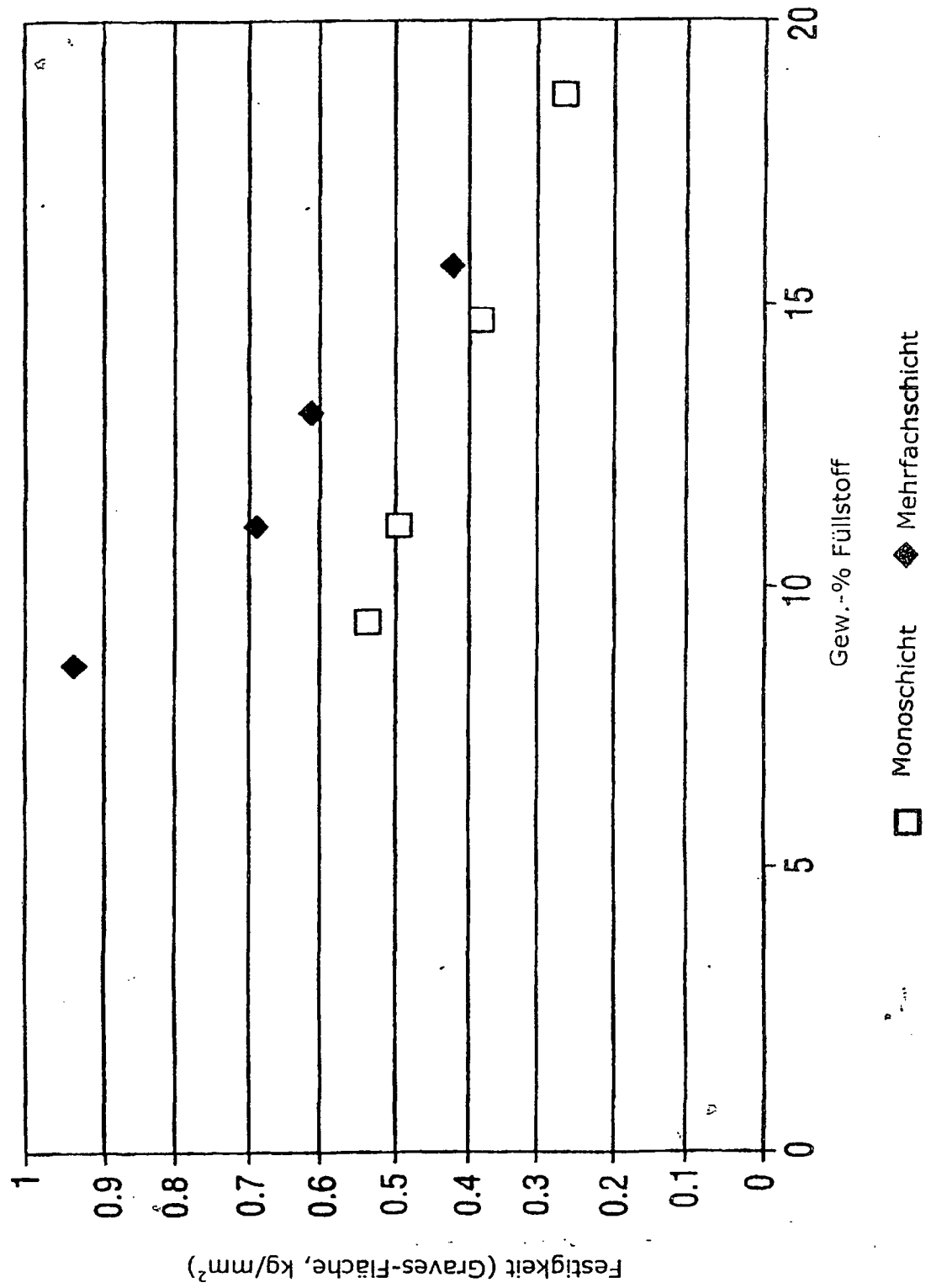


FIG. 4C

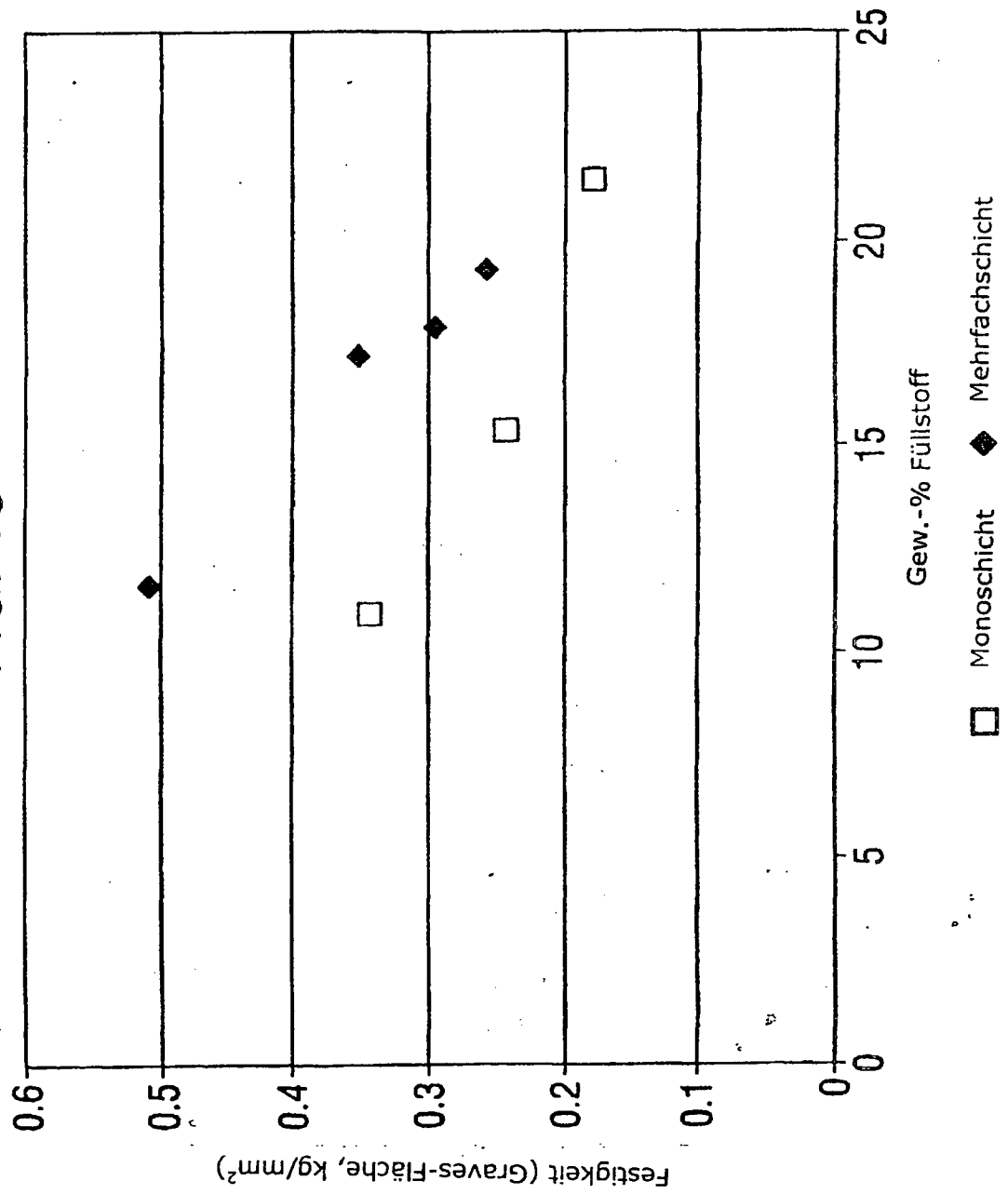


FIG. 4D

