

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7592014号
(P7592014)

(45)発行日 令和6年11月29日(2024.11.29)

(24)登録日 令和6年11月21日(2024.11.21)

(51)国際特許分類

F I

C 0 8 J 5/18 (2006.01)

C 0 8 J 5/18

C F D

C 0 8 G 63/16 (2006.01)

C 0 8 G 63/16

請求項の数 7 (全24頁)

(21)出願番号	特願2021-529073(P2021-529073)	(73)特許権者	523061191
(86)(22)出願日	令和2年10月29日(2020.10.29)		エスケーマイクロワークス 株式会社
(65)公表番号	特表2022-510146(P2022-510146 A)		S K microworks Co. , L t d .
(43)公表日	令和4年1月26日(2022.1.26)		大韓民国、キョンギド、スウォンシ、チ ャンアング、チャンアンロ 3 0 9 ポンギ ル 8 4
(86)国際出願番号	PCT/KR2020/014956		8 4 , J a n g a n - r o 3 0 9 b e o n - g i l , J a n g a n - g u ,
(87)国際公開番号	WO2021/086082		S u w o n - s i , G y e o n g g i - d o , R e p u b l i c o f K o r e a
(87)国際公開日	令和3年5月6日(2021.5.6)		
審査請求日	令和3年5月21日(2021.5.21)	(73)特許権者	519331729
審判番号	不服2023-2784(P2023-2784/J1)		エスケーマイクロワークス アメリカ イ ンコーポレイテッド .
審判請求日	令和5年2月17日(2023.2.17)		
(31)優先権主張番号	62/928,913		
(32)優先日	令和1年10月31日(2019.10.31)		
(33)優先権主張国・地域又は機関	米国(US)		
	最終頁に続く		最終頁に続く

(54)【発明の名称】 ポリエステルフィルム、その製造方法、およびこれを用いたポリエチレンテレフタレート
容器の再生方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項 1】

ジオールおよびジカルボン酸が共重合された共重合ポリエステル樹脂を含むポリエステル
フィルムであって、

前記ジオールは、エチレングリコール、ネオペンチルグリコール及びジエチレングリコ
ールを含み、

前記ジカルボン酸は、テレフタル酸を含み、

前記ジオールは、前記ジオールの総モル数を基準に、前記エチレングリコールを 5 0 モ
ル% ~ 9 0 モル%、前記ネオペンチルグリコールを 5 モル% ~ 3 5 モル%、前記ジエチレ
ングリコールを 1 モル% ~ 1 0 モル%で含み、

10

示差走査熱量計(Differential Scanning Calorimetry)で測定した結晶化温度 (T c)
のピークが観測されないか、結晶化温度 (T c) が 9 0 ~ 1 3 0 であり、

前記ポリエステルフィルムが備えられているポリエチレンテレフタレート (P E T) 容
器を粉碎したフレークを 2 1 0 の温度にて 9 0 分間熱処理する際、クランピング分率 (c
lumping ratio) が 8 % 以下である、ポリエステルフィルム。

【請求項 2】

前記示差走査熱量計で測定した結晶化温度 (T c) が 9 6 ~ 1 2 0 であり、融点 (T m) が 1 7 0 以上である、請求項 1 に記載のポリエステルフィルム。

【請求項 3】

前記クランピング分率が 5 % 以下である、請求項 1 に記載のポリエステルフィルム。

20

【請求項 4】

前記結晶化温度（ T_c ）にて測定した結晶化熱量が $0.01 \text{ J/g} \sim 50 \text{ J/g}$ である、請求項 1 に記載のポリエステルフィルム。

【請求項 5】

80 の温度にて 10 秒間熱処理する際、第 1 方向の熱収縮率が 30 % 以上である、請求項 1 に記載のポリエステルフィルム。

【請求項 6】

ジオールおよびジカルボン酸が共重合された共重合ポリエステル樹脂を調製する段階と、前記共重合ポリエステル樹脂を 250 ～ 300 の温度にて溶融押出して未延伸シートを製造する段階と、

前記未延伸シートを 90 ～ 120 の温度にて 0.01 分～1 分間予熱し、83 ～ 96 にて延伸した後、69 ～ 81 の温度にて 0.05 分～0.5 分間熱固定してポリエステルフィルムを製造する段階とを含み、

前記ジオールは、エチレングリコール、ネオペンチルグリコール及びジエチレングリコールを含み、

前記ジカルボン酸は、テレフタル酸を含み、

前記ジオールは、前記ジオールの総モル数を基準に、前記エチレングリコールを 50 モル%～90 モル%、前記ネオペンチルグリコールを 5 モル%～35 モル%、前記ジエチレングリコールを 1 モル%～10 モル%で含み、

前記ポリエステルフィルムを示差走査熱量計で測定した結晶化温度（ T_c ）のピークが観測されないか、結晶化温度（ T_c ）が 90 ～ 130 であり、

前記ポリエステルフィルムが備えられているポリエチレンテレフタレート容器を粉碎したフレークを 210 の温度にて 90 分間熱処理する際、クランピング分率が 8 % 以下である、ポリエステルフィルムの製造方法。

【請求項 7】

請求項 1 に記載のポリエステルフィルムが備えられているポリエチレンテレフタレート容器を準備する段階と、

前記フィルムが備えられているポリエチレンテレフタレート容器を粉碎してフレークを得る段階と、

前記フレークを熱処理して再生ポリエステルチップを製造する段階とを含み、

前記フレークを 210 の温度にて 90 分間熱処理する際、クランピング分率が 8 % 以下であり、

前記フレークが、前記ポリエチレンテレフタレート容器が粉碎されて得られる第 1 フレークおよび前記ポリエステルフィルムが粉碎されて得られる第 2 フレークを含む、ポリエチレンテレフタレート容器の再生方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

実現例は、ポリエステルフィルム、その製造方法、およびこれを用いたポリエチレンテレフタレート容器の再生方法に関するものである。具体的に、実現例は、結晶性が制御され、リサイクル性に優れたポリエステルフィルム、その製造方法、およびこのようなポリエステルフィルムが備えられたポリエチレンテレフタレート（PET）容器の再生方法に関するものである。

【背景技術】

【0002】

最近、飲料や食品の容器が様々な形態で製作されたり、消費者の視線を引くために全面包装を適用する事例が多かったりして、熱収縮性ラベルおよび包装材が注目を集めている。熱収縮性ラベルおよび包装材は、高分子フィルムが延伸配向後、特定温度以上で再び延伸前の形態に収縮しようとする特性を利用する。一般的な熱収縮ラベリングまたは包装工程は、熱収縮性フィルムを裁断して所望のデザインに印刷し、丸く巻いて接着性溶剤で両

10

20

30

40

50

端部を接着した後、容器に緩く被せて熱を加え収縮させている。

【 0 0 0 3 】

前記熱収縮工程に適用されるフィルムは、耐熱性、耐薬品性、耐候性、印刷性などの基本的な特性だけでなく、容器密封性、熱収縮均一性、長さ方向の走行特性および耐クラック性などが求められる。このような熱収縮工程には、従来からポリ塩化ビニルフィルム、ポリスチレンフィルム、ポリプロピレンフィルムなどが使用されており、最近では、高い耐熱性と耐候性、焼却の容易性、優れた印刷性などの特性を有するポリエステルフィルムが幅広く利用されている。

【 0 0 0 4 】

しかし、通常のポリエステルフィルムは、収縮速度が速く収縮応力が高いため、不均一な収縮による不良やプラスチック容器のいびつなどが発生したりした。そこで、特許文献 1 は、熱収縮性ポリエステルフィルムにポリエステルエラストマーを 5 重量 % 以上配合して、プラスチックボトルの全面包装の際に熱収縮によるシワ、収縮ムラ、歪みなどの発生を抑制すること開示している。

【 0 0 0 5 】

このように、熱収縮工程に使用されるポリエステルフィルムは、ポリエステル樹脂に軟質成分を配合することにより結晶性を下げて製造されており、温度別収縮率と収縮応力のような熱的特性とシーム (seaming) 工程に適した耐薬品性、および最近の廃プラスチック問題で浮上したりサイクル性を備え得るように開発されている。

【 0 0 0 6 】

また、近年、環境問題への懸念が増加するにつれ、熱可塑性ポリマーを用いて製造された製品のリサイクル問題への対応反応が求められている。特に、熱抵抗性、加工性、透明性、および無毒性のような特性に優れた熱可塑性樹脂であるポリエチレンテレフタレート (PET) は、フィルム、繊維、ボトル、容器などと、幅広い製品を製造するのに広く利用されており、再生率を向上させようとする研究が進められている。

【 先行技術文献 】

【 特許文献 】

【 0 0 0 7 】

【 文献 】 韓国特許公開第 2 0 0 2 - 0 0 6 2 8 3 8 号公報

【 発明の概要 】

【 発明が解決しようとする課題 】

【 0 0 0 8 】

したがって、実現例は、結晶性が制御され、収縮特性に優れながらもリサイクル性に優れ、再生工程において長時間の高温乾燥にも、不規則に凝集されるクランピング (clumping) がほとんど発生しないポリエステルフィルム、その製造方法、およびこれを用いたポリエチレンテレフタレート容器の再生方法を提供しようとする。

【 課題を解決するための手段 】

【 0 0 0 9 】

一実現例によるポリエステルフィルムは、ジオールおよびジカルボン酸が共重合された共重合ポリエステル樹脂を含むポリエステルフィルムであって、示差走査熱量計 (Differential Scanning Calorimetry) で測定した結晶化温度 (T_c) が、測定されないか、70 ~ 130 であり、前記ポリエステルフィルムが備えられているポリエチレンテレフタレート (PET) 容器を粉碎したフレークを 210 の温度にて 90 分間熱処理する際、クランピング分率 (clumping ratio) が 10 % 以下である。

【 0 0 1 0 】

他の実現例によるポリエステルフィルムの製造方法は、ジオールおよびジカルボン酸が共重合された共重合ポリエステル樹脂を調製する段階と、前記共重合ポリエステル樹脂を 250 ~ 300 の温度にて熔融押出して未延伸シートを製造する段階と、前記未延伸シートを 70 ~ 100 の温度にて延伸した後、65 ~ 90 の温度にて熱固定してポリエステルフィルムを製造する段階とを含み、前記ポリエステルフィルムを示差走査熱

10

20

30

40

50

量計で測定した結晶化温度（ T_c ）が、測定されないか、 $70 \sim 130$ であり、前記ポリエステルフィルムが備えられているポリエチレンテレフタレート容器を粉碎したフレークを 210 の温度にて 90 分間熱処理する際、クランピング分率が 10% 以下である。

【0011】

また他の実現例によるポリエチレンテレフタレート容器の再生方法は、前記ポリエステルフィルムが備えられているポリエチレンテレフタレート容器を準備する段階と、前記フィルムが備えられているポリエチレンテレフタレート容器を粉碎してフレークを得る段階と、前記フレークを熱処理して再生ポリエステルチップを製造する段階とを含み、前記フレークを 210 の温度にて 90 分間熱処理する際、クランピング分率が 10% 以下であり、前記フレークが、前記ポリエチレンテレフタレート容器が粉碎されて得られる第1フレークおよび前記ポリエステルフィルムが粉碎されて得られる第2フレークを含む。

10

【発明の効果】

【0012】

実現例によるポリエステルフィルムは、示差走査熱量計で測定した結晶化温度（ T_c ）が、測定されないか、 $70 \sim 130$ を満足することにより、結晶性を容易に制御することができる。したがって、再生工程の際、長時間の高温乾燥にもクランピング発生が抑制されて再生工程に適用され得る。

【0013】

また、クランピング分率が非常に低いため、環境汚染を防止しながらリサイクル性を向上させ得るので、前記ポリエステルフィルムを用いたポリエチレンテレフタレート容器の再生方法により製造される再生ポリエステルチップの品質、収率および生産性を向上させ得る。

20

【0014】

しかも、実現例によるポリエチレンテレフタレート容器の再生方法は、容器とフィルムとを分離する別途の工程が不要なので、時間およびコストが削減され経済的である。

【図面の簡単な説明】

【0015】

【図1】図1は、製品に適用されたポリエステルフィルムの熱収縮の前および後を示すものである。

【図2】図2は、実験例2-1において、ポリエステルフィルムが備えられているポリエチレンテレフタレート容器のクランピングを測定する方法を示したものである。

30

【図3】図3は、実験例1-2において、ポリエステルフィルムの熱収縮率を測定する方法を示したものである。

【図4】図4は、ポリエステルフィルムの溶媒による接着特性を測定する方法を示したものである。

【図5】図5は、ポリエステルフィルムの収縮応力を測定する方法を示したものである。

【図6】図6は、ポリエステルフィルムのスカート比を測定する方法を示したものである。

【発明を実施するための形態】

【0016】

以下、実現例により発明を詳細に説明する。実現例は、以下に開示の内容に限定されるものではなく、発明の要旨を変更しない限り、様々な形態に変形され得る。

40

【0017】

本明細書において、ある部分がある構成要素を「含む」とするとき、これは特に反する記載がない限り、他の構成要素を除外することではなく、他の構成要素をさらに含む得ることを意味する。

【0018】

本明細書に記載された構成成分の量、反応条件などを表すすべての数字および表現は、特別な記載がない限り、すべての場合に「約」という用語で修飾されるものと理解すべきである。

【0019】

50

本明細書において、第 1、第 2、1 次、2 次などの用語は、様々な構成要素を説明するために使用されるものであり、前記構成要素は前記用語によって限定されない。前記用語は、1 つの構成要素を他の構成要素と区別するためにのみ使用される。

【0020】

ポリエステルフィルムからなる熱収縮性ラベルまたは包装材は、熱的特性や耐薬品性に優れていてもリサイクルが難しく、使用後にはほとんど廃棄されていた。これは、現在のリサイクル工程、すなわち、再生工程にポリエステルフィルムが投入される場合、長時間の高温工程の間にポリエステルフィルムが様々な工程不良を発生させ、コストが増加するからである。または、リサイクルが可能であるとしても、ポリエステルフィルムの高い結晶化度により、可変スリーブオフセット印刷 (V S O P : Variable Sleeve Offset Printing) 法を適用する際、シーム (seaming) 特性が低調であるという問題があった。

10

【0021】

また、一般消費者から回収されたポリエチレンテレフタレート容器は、洗浄および粉碎後、粉碎物に含まれている多量のフィルムを除去するために、液比重分離、脱水乾燥および/または風力比重分離を経た後、ペレタイズ (pelletize) のような追加工程を行って、再生ポリエステルチップを製造してきた。しかし、前記工程を経た後でも、ポリエチレンテレフタレート容器のラベルとして使用されたフィルムを完全に除去することは難しく、フィルムに含まれているインクによって再生ポリエステルチップが着色され得る。また、フィルムの熱的特性に起因して再生工程、特に熱処理工程において前記再生ポリエステルチップが不規則に凝集するクランピングが発生する問題があった。

20

【0022】

そこで、比重分離が容易に行われ得るよう、低比重重合体であるポリスチレン、ポリエチレン、ポリプロピレンなどのフィルムをラベルとして使用する比重分離方法が提案された。しかし、インク層に起因して低比重が効果的に行われず、依然としてフィルムを完全に分離および除去するのが難しく、残留インクが再生ポリエステルチップを着色させる問題も解決することができなかった。

【0023】

実現例によるポリエステルフィルムは、結晶性が制御され、収縮特性および様々な印刷方式におけるシーム特性に優れながらもリサイクル性に優れ、再生工程において長時間の高温乾燥にもクランピングがほとんど発生しない。したがって、前記ポリエステルフィルムまたはこれを用いたポリエチレンテレフタレート容器の再生方法により製造される再生ポリエステルチップの品質、収率、および生産性を向上させ得る。

30

【0024】

[ポリエステルフィルム]

一実現例によるポリエステルフィルムは、ジオールおよびジカルボン酸が共重合された共重合ポリエステル樹脂を含むポリエステルフィルムであって、示差走査熱量計 (Differential Scanning Calorimetry) で測定した結晶化温度 (T_c) が、測定されないか、 $70 \sim 130$ であり、前記ポリエステルフィルムが備えられているポリエチレンテレフタレート (PET) 容器を粉碎したフレークを 210 の温度にて 90 分間熱処理する際、クランピング分率が 10% 以下である。

40

【0025】

実現例によるポリエステルフィルムを示差走査熱量計で測定した結晶化温度 (T_c) は、測定されないか、 $70 \sim 130$ である。例えば、前記フィルムを示差走査熱量計で測定した結晶化温度 (T_c) は、測定されないか、 $80 \sim 130$ 、 $85 \sim 125$ 、 $90 \sim 123$ 、 $96 \sim 120$ 、 $98 \sim 120$ 、または $99.5 \sim 118$ であり得る。結晶化温度が前記範囲に調節されることによって、前記ポリエステルフィルムは結晶性が効果的に制御され、前記フィルムまたは前記フィルムを含むポリエチレンテレフタレート容器の再生工程の際にクランピング分率が非常に低いので、環境汚染を防止しながらリサイクル性を向上させ得る。

【0026】

50

前記示差走査熱量計 (DSC) は、具体的に変調示差走査熱量計 (modulated DSC、MDSC) であり、より具体的に、温度 - 変調示差走査熱量計 (temperature-modulated DSC、TMDSC) であり得る。

【0027】

具体的に、前記結晶化温度は、示差走査熱量計 (DSC) モードを使用して、10 / 分の昇温速度でスキャンして測定され得る。測定結果において、最初の吸熱温度がガラス転移温度 (T_g、Glass Transition Temperature) であり、前記 T_g の後に測定される発熱温度が結晶化温度 (T_c、Crystallization Temperature) であり、前記 T_c の後に測定される吸熱温度を融点 (T_m、Melting Temperature) として測定した。結晶化熱量は、前記 T_c における積分値 (integral) で計算しており、前記結晶化熱量の値が大きいほど結晶化速度が速く、結晶相への転移率が高い。

10

【0028】

また、前記ポリエステルフィルムが備えられているポリエチレンテレフタレート容器を粉砕したフレークを 210 の温度にて 90 分間熱処理する際、クランピング分率は 10 % 以下であり得る。例えば、前記クランピング分率は、8 % 以下、6 % 以下、5 % 以下、4 % 以下であり、好ましくは、3 % 以下、2 % 以下、1.5 % 以下、1 % 以下、0.8 % 以下、0.5 % 以下であり得る。

【0029】

前記クランピングは、再生工程の際に形成され得る凝集体のことを意味するものであり、前記凝集体の大きさは、例えば、前記熱処理前のフレーク粒径の 3 倍以上であり得る。前記クランピング分率は、前記熱処理前のフレークの総重量を基準に、前記凝集体の重量比のことを意味する。

20

【0030】

具体的に、フィルムがラベルとして備えられているポリエチレンテレフタレート容器の再生工程の際、これを粉砕したフレークを篩に通過させた後、熱処理工程を経る。この際、フレークが互にくっつき合って凝集体を形成し得るが、このような凝集体をクランピングという。形成された凝集体は、再び篩にかける過して分離し、重量を測定して、前記熱処理前のフレーク総重量を基準に前記凝集体の重量比を計算することにより、クランピング分率を得ることができる。したがって、このようなクランピング分率の数値が高いほど、リサイクル性が低下する。

30

【0031】

実現例によるポリエステルフィルムは、結晶性が効果的に制御されることにより、ポリエチレンテレフタレート容器のラベルとして適用する際、しわやポリエチレンテレフタレート容器のいびつが発生しない。また、使用完了後、再生工程の際、ポリエチレンテレフタレート容器と一緒に粉砕されたフレークを熱処理しても、クランピング分率が非常に低いので、リサイクル性を向上させ得るとともに、リサイクルして製造される再生ポリエステルチップの品質、収率および生産性を向上させ得る。

【0032】

再生工程においてプラスチックフレークが融着してクランピングが形成されると、様々な問題を引き起こし得るので、米国のプラスチックリサイクル業者協会 (APR) では、クランピング分率 (%) を評価するための手引き (APR PET-S-08) を設けている。具体的に、前記クランピング分率は、前記ポリエステルフィルム 3 重量部およびポリエチレンテレフタレート容器 97 重量部を、粒径 9.5 mm 以下でそれぞれ粉砕し、210 の温度にて 8.7 kPa の圧力 (直径 6 cm の円筒に対して加えられた 2.5 kgf の荷重) 下で 90 分間熱処理した後、網目 11.2 mm の篩 (0.625" 篩) を通過できない比率であり得る。

40

【0033】

また、前記ポリエステルフィルムを示差走査熱量計で測定した融点 (T_m) が 170 以上であり得る。例えば、前記融点は、175 以上、180 以上、または 190 以上であり、170 ~ 240、175 ~ 235、180 ~ 235、185 ~

50

230、190～225、または195～225であり得る。

【0034】

前記ポリエステルフィルムの融点が前記範囲を超えると、ポリエステルフィルムの溶媒による接着力が低下してシーム工程で使用する事が難しくなり、前記溶融温度が前記範囲未満であると、クランピング分率が高くなり得る。

【0035】

具体的に、前記ポリエステルフィルムの結晶化温度が96～120であるとともに、融点が170以上であるとき、より好ましくは、前記ポリエステルフィルムの結晶化温度が96～120であるとともに、融点が190以上であるとき、再生工程で発生し得るクランピング現象の防止効果を最大化することができる。

10

【0036】

また、前記結晶化温度(T_c)にて測定した前記フィルムの結晶化熱量は、0.01J/g～50J/gであり得る。例えば、前記結晶化温度(T_c)にて測定した前記フィルムの結晶化熱量は、0.01J/g～40J/g、0.05J/g～30J/g、0.1J/g～20J/g、0.1J/g～10J/g、0.1J/g～8J/g、0.2J/g～6J/g、または0.3J/g～5.7J/gであり得る。結晶化熱量が前記範囲を満足することにより、前記ポリエステルフィルムは結晶性が効果的に制御され、前記フィルムまたは前記フィルムを含むポリエチレンテレフタレート容器の再生工程の際、クランピング分率が非常に低いので、環境汚染を防止しながらもリサイクル性を向上させ得る。

【0037】

20

また、実現例によるポリエステルフィルムは、各温度別に主収縮方向の収縮率が特定範囲内に調節され得る。例えば、前記ポリエステルフィルムをXの温度にて10秒間熱処理する際、主収縮方向の収縮率を T_X と定義すると、 T_{70} 、 T_{80} 、 T_{90} 、および T_{100} の範囲が調節され得る。前記 T_X を得るための熱処理は、具体的に、前記ポリエステルフィルムをXの温水に10秒間浸漬することであり得る。

【0038】

具体的に、前記フィルムを70の温度にて10秒間熱処理する際、第1方向の熱収縮率(T_{70})は0%～50%であり得る。例えば、 T_{70} は、0%以上、5%以上、10%以上、15%以上、または20%以上であり、50%以下、40%以下、35%以下、30%以下、25%以下、または20%以下であり得る。

30

【0039】

本明細書において、前記第1方向は横方向(TD)または縦方向(MD)であり、前記第1方向に垂直な第2方向は縦方向(MD)または横方向(TD)であり得る。具体的に、前記第1方向は主収縮方向であり得る。より具体的に、前記第1方向が主収縮方向として横方向(TD)であり、前記第2方向が縦方向(MD)であり得る。

【0040】

また、前記フィルムを80の温度にて10秒間熱処理する際、第1方向の熱収縮率(T_{80})は30%以上であり得る。例えば、 T_{80} は、35%以上、45%以上、50%以上、または55%以上であり、30%～85%、40%～80%、50%～80%、55%～75%、または58%～71%であり得る。80の温度にて10秒間熱処理する際、第1方向の熱収縮率が前記範囲を満足することにより、前記フィルムが容器の少なくとも一部を取り囲む工程の際、ラベリングするのに容易である。具体的に、前記フィルムをポリエチレンテレフタレート容器のラベルに適用する際、しわやポリエチレンテレフタレート容器のいびつが発生しない。

40

【0041】

前記フィルムを90の温度にて10秒間熱処理する際、第1方向の熱収縮率(T_{90})は50%以上であり得る。例えば、 T_{90} は、55%以上、60%以上、または65%以上であり、50%～90%、60%～85%、65%～83%、または69%～80%であり得る。90の温度にて10秒間熱処理する際、第1方向の熱収縮率が前記範囲を満足することにより、前記フィルムが容器の少なくとも一部を取り囲む工程の際、ラベリ

50

ングするのに容易である。具体的に、前記フィルムをポリエチレンテレフタレート容器のラベルに適用する際、しわやポリエチレンテレフタレート容器のいびつが発生しない。

【0042】

前記フィルムを100の温度にて10秒間熱処理する際、第1方向の熱収縮率(T_{100})は40%~90%であり得る。例えば、 T_{100} は、40%以上、50%以上、60%以上、または70%以上であり、90%以下、85%以下、80%以下、75%以下、または70%以下であり得る。すなわち、前記ポリエステルフィルムは、100の温度にて10秒間熱処理する際、第1方向の熱収縮率が50%~80%であり得る。

【0043】

一方、前記実現例によるポリエステルフィルムは、各温度別に第1方向および前記第1方向に垂直な第2方向に対する収縮率が特定範囲内に調節され得る。例えば、前記ポリエステルフィルムをXの温度にて10秒間熱処理する際、第2方向の収縮率を $T_{X'}$ と定義すると、 $T_{70'}$ 、 $T_{75'}$ 、 $T_{80'}$ 、 $T_{90'}$ 、および $T_{100'}$ の範囲が特定範囲内に調節され得る。前記 $T_{X'}$ を得るための熱処理は、前記ポリエステルフィルムをXの温水に10秒間浸漬することであり得る。

10

【0044】

前記ポリエステルフィルムの $T_{70'}$ 、 $T_{75'}$ 、 $T_{80'}$ 、 $T_{90'}$ 、および $T_{100'}$ は、それぞれ独立して-10%~10%であり得る。例えば、前記ポリエステルフィルムの $T_{70'}$ 、 $T_{75'}$ 、 $T_{80'}$ 、 $T_{90'}$ 、および $T_{100'}$ は、それぞれ-10%以上、-8%以上、-6%以上、-4%以上、-2%以上、または0%以上であり、10%以下、8%以下、6%以下、4%以下、または2%以下であり得る。

20

【0045】

実現例によるポリエステルフィルムは、溶媒による接着性、つまり、シーム特性に優れ得る。

【0046】

例えば、前記ポリエステルフィルムは、1,3-ジオキソランにより接着した後の剥離力が300gf/in以上であり得る。具体的に、前記1,3-ジオキソランにより接着した後の剥離力は、300gf/in以上、400gf/in以上、500gf/in以上、600gf/in以上、または700gf/in以上であり、3000gf/in以下、2500gf/in以下、2000gf/in以下、または1500gf/in以下であり得る。前記ポリエステルフィルムの剥離力が前記範囲で調節されると、ポリエステルフィルムのシーム工程に使用するのに適し得る。

30

【0047】

前記剥離力は、前記ポリエステルフィルム上に溶媒を塗布し、その上に他の一枚のポリエステルフィルムを貼り合わせた後、溶媒が塗布された部位に160Paの圧力を1時間加えた後、前記ポリエステルフィルムを300mm/分の速度および180°の角度で剥離する条件で測定され得る。

【0048】

図4は、ポリエステルフィルムの溶媒による接着特性を測定する方法を示したものである。例えば、第1ポリエステルフィルム100に1,3-ジオキソランを幅2mmの帯状に塗布して接着部120を面積0.6cm²で形成した。その上に第2ポリエステルフィルム200を貼り付け、接着部120上に2kgの錘を乗せて1時間エージングし、2枚のポリエステルフィルムを300mm/分の速度と180°の角度で剥離しながら、最大の力を測定した。前記ポリエステルフィルムは、寸法(x、y)が横9cmおよび縦3cmの長方形に裁断して使用した。

40

【0049】

前記実現例によるポリエステルフィルムは、主収縮方向の収縮応力が特定範囲内に調節され得る。例えば、前記ポリエステルフィルムを、90の温度にて1分間熱処理する際、主収縮方向の最大応力は7.0Nまたは6.0Nであり得る。また、前記ポリエステルフィルムを、90の温度にて1分間熱処理する際、主収縮方向の残留応力は、6.0N

50

または 5 . 5 N であり得る。

【 0 0 5 0 】

前記収縮応力を得るための熱処理は、具体的に、前記ポリエステルフィルムを主収縮方向に固定して、90 の温水に 1 分間浸漬することであり得る。また、前記収縮過程で得られた時間に応じる応力の曲線において最高点の応力を最大応力とし、収縮時間の終点における応力を残留応力とし得る。

【 0 0 5 1 】

図 5 は、ポリエステルフィルムの収縮応力を測定する方法を示したものである。例えば、前記第 1 ポリエステルフィルム 100 を測定しようとする方向の初期寸法 x 110 mm、両末端の余分寸法 z 5 mm、およびこれに垂直な方向の寸法 y 15 mm を有するように裁断した (図 5 (a))。前記裁断されたフィルムを応力試験機 2 に装着し、100 mm 間隔のジグ 21 にフィルムの両末端を固定した (図 5 (b))。前記フィルムが装着された応力試験機 2 を 90 の水槽に 1 分間浸漬し、収縮過程において最大応力 (S_{MAX})、および収縮後の残留応力 (S_{RES}) をロードセル 22 により測定した (図 5 (c))。

【 0 0 5 2 】

前記実現例によるポリエステルフィルムは、スカート比 (skirt ratio) が特定範囲内に調節され得る。具体的に、前記スカート比は、ポリエステルフィルムを主収縮方向に対して固定し、前記ポリエステルフィルムの主収縮方向に垂直な方向に対して収縮前後の長さを測定して、測定された収縮前後の長さの差を、前記ポリエステルフィルムの主収縮方向に対する長さで割り、比率で計算されたものであり得る。より具体的に、前記ポリエステルフィルムを、90 の温度にて 10 秒間熱処理する条件で測定されたスカート比は 17 . 4 % であり得る。

【 0 0 5 3 】

図 6 は、ポリエステルフィルムのスカート比を測定する方法を示したものである。例えば、前記ポリエステルフィルム 100 を測定しようとする方向の初期寸法 x 1 を 60 mm に裁断して、幅 y 115 mm の熱固定枠にジグ 21 で固定した (図 6 (a))。これを 90 の水槽に 10 秒間浸漬した後、減少した寸法 x 2 を測定した (図 6 (b))。本明細書においては、主収縮方向である幅方向 (TD) に対して固定し、これに垂直な長さ方向 (MD) に対する収縮後の長さを測定して、下記式に基づいて計算した。

【 0 0 5 4 】

$$\Delta S R (mm) = x 1 (mm) - x 2 (mm)$$

$$S R \% (\%) = \Delta S R (mm) / y (mm) \times 100$$

また、前記フィルムを示差走査熱量計で測定したガラス転移温度 (T_g) は、60 以上であり得る。例えば、前記フィルムを示差走査熱量計で測定したガラス転移温度 (T_g) は、60 以上、65 以上、70 以上 ~ 80 未満、または 70 ~ 75 であり得る。

【 0 0 5 5 】

前記フィルムは、550 nm 波長における光透過率が 90 % 以上であり得る。具体的に、85 の温度にて 1 % 濃度の水酸化ナトリウム (NaOH) 水溶液に浸漬前後の前記フィルムを 550 nm 波長で測定した光透過率は、それぞれ 90 . 5 % 以上、91 % 以上、92 % 以上、または 93 % 以上であり得る。

【 0 0 5 6 】

また、前記フィルムを 85 の温度にて 1 % 濃度の水酸化ナトリウム (NaOH) 水溶液に浸漬前後の光透過率の変化量は、0 . 7 % 以下であり得る。例えば、前記浸漬前後のフィルムの光透過率の変化量は、0 . 6 % 以下または 0 . 5 % 以下であり得る。

【 0 0 5 7 】

前記光透過率の変化量は、前記浸漬前に 550 nm の波長で測定した前記フィルムの光透過率と、前記浸漬後 550 nm の波長で測定した前記フィルムの光透過率との差の絶対値のことを意味する。

【 0 0 5 8 】

10

20

30

40

50

また、前記フィルムを 85 の温度にて 1 % 濃度の水酸化ナトリウム (NaOH) 水溶液に浸漬前後の Col-L の変化量 (L) は 0.7 以下であり、Col-a の変化量 (a) は 0.5 以下であり、Col-b の変化量 (b) は 0.5 以下であり得る。例えば、前記浸漬前後の Col-L の変化量 (L) は 0.65 以下、0.6 以下、0.55 以下、または 0.5 以下であり、Col-a の変化量 (a) は 0.3 以下、0.1 以下、0.08 以下、0.06 以下、または 0.05 以下であり、Col-b の変化量 (b) は 0.3 以下、0.1 以下、0.08 以下、または 0.07 以下であり得る。

【0059】

前記 Col-L の変化量 (L) は、前記浸漬前の Col-L 値と前記浸漬後の Col-L 値との差の絶対値のことを意味し、前記 Col-a の変化量 (a) は、前記浸漬前の Col-a 値と前記浸漬後の Col-a 値との差の絶対値のことを意味し、前記 Col-b の変化量 (b) は、前記浸漬前の Col-a 値と前記浸漬後の Col-a 値との差の絶対値のことを意味する。

10

【0060】

前記 Col-L、前記 Col-a および前記 Col-b は、国際照明委員会 (CIE (Commission International d'Eclairage)) によって確立されたカラーシステムであって、色を L (明度)、a (緑色から赤色の補色)、b (黄色から青色の補色) で表記して色を表現し、UltraScan PRO (HunterLab 社) を用いて測定し得るが、これに限定されるものではない。

【0061】

20

実現例によるポリエステルフィルムは、共重合ポリエステル樹脂を含む。具体的に、前記共重合ポリエステル樹脂は、2 種または 3 種以上のジオールおよびジカルボン酸が重合されたものであり得、より具体的に、共重合ポリエチレンテレフタレート (Co-PET) 樹脂であり得る。

【0062】

具体的に、前記ジオールは、エチレングリコール、ジエチレングリコール、ネオペンチルグリコール、アルキル基で置換または非置換のプロパンジオール、アルキル基で置換または非置換のブタンジオール、アルキル基で置換または非置換のペンタンジオール、アルキル基で置換または非置換のヘキサジオール、アルキル基で置換または非置換のオクタジオール、およびその組み合わせからなる群より選択された 1 種以上を含み得る。

30

【0063】

例えば、前記ジオールは、エチレングリコール、ジエチレングリコール、ネオペンチルグリコール、1,3-プロパンジオール、1,2-オクタジオール、1,3-オクタジオール、2,3-ブタンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、1,5-ペンタンジオール、2-ブチル-2-エチル-1,3-プロパンジオール、2,2-ジエチル-1,5-ペンタンジオール、2,4-ジエチル-1,5-ペンタンジオール、3-メチル-1,5-ペンタンジオール、および 1,1-ジメチル-1,5-ペンタンジオールからなる群より選択された 1 種以上を含み得る。

【0064】

前記ジカルボン酸は、芳香族ジカルボン酸、脂肪族ジカルボン酸、脂環式ジカルボン酸、またはそのエステル化物を含み得る。

40

【0065】

例えば、前記ジカルボン酸は、テレフタル酸、ジメチルテレフタル酸、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、オルトフタル酸、アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、デカンジカルボン酸、これらのエステル化物、またはその組み合わせであり得る。具体的に、前記ジカルボン酸は、テレフタル酸、ジメチルテレフタレート、ナフタレンジカルボン酸、およびオルトフタル酸からなる群より選択された 1 種以上を含み得る。

【0066】

一実施例によると、前記共重合ポリエステル樹脂は、2 種または 3 種の以上のジオール、および芳香族ジカルボン酸が重合されたものであり得る。具体的に、前記共重合ポリエ

50

ステル樹脂は、エチレングリコールおよび 1 種以上の共単量体を含むジオール、および芳香族ジカルボン酸が重合されたものであり得る。

【 0 0 6 7 】

前記ジオールはエチレングリコールを含み、ネオペンチルグリコールおよびジエチレングリコールからなる群より選択された 1 種以上の共単量体を含み得る。

【 0 0 6 8 】

具体的に、前記ジオールは、前記ジオールの総モル数を基準に、エチレングリコールを 5 0 モル % ~ 9 0 モル % で含み得る。例えば、前記ジオールは、前記ジオールの総モル数を基準に、エチレングリコールを 6 0 モル % ~ 9 0 モル % 、 6 5 モル % ~ 8 8 モル % 、 6 8 モル % ~ 8 5 モル % 、 7 0 モル % ~ 8 3 モル % 、または 7 1 モル % ~ 8 0 モル % で含み得る。

10

【 0 0 6 9 】

また、前記ジオールはネオペンチルグリコールおよびジエチレングリコールからなる群より選択された 1 種以上の共単量体を 1 5 モル % 以上で含み得る。例えば、前記ジオールは、ネオペンチルグリコールおよびジエチレングリコールからなる群より選択された 1 種以上の共単量体を、前記ジオールの総モル数を基準に、 1 7 モル % 以上、 1 9 モル % 以上、 2 0 モル % 以上で含み、 1 5 モル % ~ 5 0 モル % 、 1 5 モル % ~ 4 0 モル % 、 1 7 モル % ~ 3 5 モル % 、 1 9 モル % ~ 3 0 モル % 、または 2 0 モル % ~ 2 9 モル % で含み得る。共単量体の含有量が前記範囲を満足することにより、主収縮方向の熱収縮率が優れるとともに、結晶性をより効果的に制御し得る。

20

【 0 0 7 0 】

また、共単量体の含有量が前記範囲未満であると、前記ポリエステルフィルムの熱収縮特性が劣化し得る。具体的に、前記ポリエステルフィルムの主収縮方向に対する熱収縮率が、特定温度にて不十分となり得、前記ポリエステルフィルムの主収縮方向に垂直な方向の熱収縮率が、特定温度にて過度に高くなり得る。

【 0 0 7 1 】

具体的に、前記ジオールは、共単量体としてジエチレングリコールを含み得る。例えば、前記ジオールのうちジエチレングリコールの含有量は、 1 モル % ~ 1 0 モル % 、 1 モル % ~ 8 モル % 、 3 モル % ~ 6 モル % 、または 3 . 5 モル % ~ 5 . 5 モル % であり得る。

【 0 0 7 2 】

30

また、前記ジオールは、共単量体としてネオペンチルグリコールを含み得る。例えば、前記ジオールのうちネオペンチルグリコールの含有量は、 5 モル % ~ 3 5 モル % 、 7 モル % ~ 3 3 モル % 、 1 0 モル % ~ 3 0 モル % 、 1 3 モル % ~ 2 8 モル % 、または 1 5 モル % ~ 2 5 モル % であり得る。

【 0 0 7 3 】

ネオペンチルグリコールの含有量が前記範囲を満足することにより、前記フィルムの熱収縮時の第 1 方向または前記第 1 方向に垂直な第 2 方向の熱収縮率が容易に調節され、フィルムを容器に適用する際、しわが生じたり変形が起きたりすることを、さらに効果的に防止することができる。

【 0 0 7 4 】

40

また、前記ポリエステル樹脂は、前記ジオール成分以外に 1 価アルコールをさらに含み得る。例えば、前記 1 価アルコールは、メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、アリルアルコール、またはベンジルアルコールであり得る。具体的に、前記ポリエステル樹脂は、前記ジオール成分および前記 1 価アルコールの総モル数を基準に、前記 1 価アルコールを 1 0 モル % ~ 3 0 モル % 、 1 3 モル % ~ 2 5 モル % 、または 1 5 モル % ~ 2 2 モル % で含み得るが、これに限定されるものではない。

【 0 0 7 5 】

前記ジカルボン酸は、芳香族ジカルボン酸を含み得る。例えば、前記ジカルボン酸は、前記ジカルボン酸の総モル数を基準に、 8 0 モル % 以上、 9 0 モル % 以上、 9 5 モル % 以上、 9 9 モル % 以上、または 1 0 0 モル % のテレフタル酸またはジメチルテレフタル酸を

50

含み得る。

【 0 0 7 6 】

前記ジオールおよび前記ジカルボン酸は、エステル交換反応を経た後、重合され共重合ポリエステル樹脂を形成し得る。

【 0 0 7 7 】

具体的に、前記エステル交換反応の触媒として、酢酸マンガン (manganese acetate tetrahydrate)、カルシウムおよび亜鉛からなる群より選択された 1 種以上の触媒を使用し得る。前記触媒の含有量は、前記ジカルボン酸の総重量を基準に、0.02 重量部 ~ 0.2 重量部、0.02 重量部 ~ 0.1 重量部、または 0.05 重量部 ~ 0.08 重量部であり得る。

10

【 0 0 7 8 】

また、前記エステル交換反応が終了した後、シリカ、カリウム、およびマグネシウムからなる群より選択された 1 種以上の添加剤；トリメチルホスフェートのような安定化剤；およびアンチモニトリオキシドまたはテトラブチレンチタネートのような重合触媒等を必要に応じて添加し得る。

【 0 0 7 9 】

前記ポリエステルフィルムの厚さは 10 μm ~ 100 μm であり得る。例えば、前記基材層の厚さは 20 μm ~ 80 μm 、30 μm ~ 70 μm 、35 μm ~ 65 μm 、35 μm ~ 55 μm 、40 μm ~ 60 μm 、または 35 μm ~ 45 μm であり得る。

【 0 0 8 0 】

20

[ポリエステルフィルムの製造方法]

他の実現例によるポリエステルフィルムの製造方法は、ジオールおよびジカルボン酸が共重合された共重合ポリエステル樹脂を調製する段階と、前記共重合ポリエステル樹脂を 250 ~ 300 の温度にて溶融押出して未延伸シートを製造する段階と、前記未延伸シートを 70 ~ 100 の温度にて延伸した後、65 ~ 90 の温度にて熱固定してポリエステルフィルムを製造する段階とを含み、前記ポリエステルフィルムを示差走査熱量計で測定した結晶化温度 (T_c) が、測定されないか、70 ~ 130 であり、前記ポリエステルフィルムが備えられているポリエチレンテレフタレート容器を粉砕したフレークを 210 の温度にて 90 分間熱処理する際、クランピング分率が 10 % 以下である。

【 0 0 8 1 】

30

前記方法により、最終的に製造されるポリエステルフィルムは、前述の特性 (結晶化温度、収縮特性など) を満足するように組成および工程条件を調整する。具体的に、最終ポリエステルフィルムが前述の特性を満足するためには、共重合ポリエステル樹脂の組成を調節し、その押出温度、キャスト温度、延伸時の予熱温度、各方向別の延伸比、延伸温度、延伸速度などを調節するか、延伸後に熱処理および弛緩を行いながら熱処理温度および弛緩率を調節し得る。

【 0 0 8 2 】

以下、各段階別でより具体的に説明する。

まず、共重合ポリエステル樹脂を調製する。前記共重合ポリエステル樹脂に関する説明は、前述の通りである。

40

【 0 0 8 3 】

具体的に、前記共重合ポリエステル樹脂の重合は、通常のエステル交換反応および重縮合反応により行われてよく、この際に使用されるジオールおよびジカルボン酸の成分、並びにその含有量は前記で例示した通りである。

【 0 0 8 4 】

その後、前記共重合ポリエステル樹脂を 250 ~ 300 または 260 ~ 280 の温度にて溶融押出した後、冷却して未延伸シートを得ることができる。前記未延伸シートを 10 m / 分 ~ 110 m / 分、25 m / 分 ~ 90 m / 分、40 m / 分 ~ 80 m / 分、または 50 m / 分 ~ 60 m / 分の速度で移送しながら、チャンパーを通過させながら予熱し得る。

50

【 0 0 8 5 】

前記予熱は 9 0 ～ 1 2 0 にて 0 . 0 1 分～ 1 分間行われ得る。例えば、前記予熱温度 (T 1) は、 9 5 ～ 1 1 5 または 9 7 ～ 1 1 3 であり、前記予熱時間は、 0 . 0 5 分～ 0 . 5 分、 0 . 0 8 分～ 0 . 2 分であり得る。

【 0 0 8 6 】

その後、前記予熱された未延伸シートは、 7 0 ～ 9 5 の温度にて延伸する。

【 0 0 8 7 】

具体的に、前記延伸は一軸延伸または二軸延伸であり得る。具体的に、前記延伸は、横方向 (T D) に行われる一軸延伸であり、縦方向 (M D) に行われた後、横方向 (T D) に行われる二軸延伸であり得る。

10

【 0 0 8 8 】

前記延伸は、前記予熱温度 (T 1) よりも 1 0 ～ 2 0 低い温度にて行われ得る。例えば、前記延伸は、 7 0 ～ 1 0 0 、 7 5 ～ 1 0 0 、 8 0 ～ 9 8 、または 8 3 ～ 9 6 にて行われ得る。

【 0 0 8 9 】

また、前記延伸が一軸延伸の場合、前記延伸は、横方向 (T D) に 3 . 5 倍～ 5 倍、 3 . 5 倍～ 4 . 8 倍、または 3 . 8 倍～ 4 . 6 倍の延伸比で行われ得る。また、前記延伸が二軸延伸の場合、前記延伸は、縦方向 (M D) に 1 . 1 倍～ 2 倍または 1 . 1 倍～ 1 . 5 倍の延伸比で行われた後、横方向 (T D) に 3 . 5 倍～ 5 倍、 3 . 5 倍～ 4 . 8 倍、または 3 . 8 倍～ 4 . 6 倍の延伸比で行われ得る。

20

【 0 0 9 0 】

また、前記延伸後にコーティング工程をさらに行える。具体的に、前記横方向 (T D) に一軸延伸する前に、または前記縦方向 (M D) に延伸した後、前記横方向 (T D) に延伸する前に、コーティング工程を追加で行える。より具体的に、前記フィルムに帯電防止などのような機能性を付与し得る促進層などを形成するコーティング工程を追加で行える。前記コーティング工程は、スピンコーティングまたはインラインコーティングで行われ得るが、これに限定されるものではない。

【 0 0 9 1 】

その後、前記延伸済みのシートを 6 5 ～ 9 0 の温度にて熱固定して、ポリエステルフィルムを製造する。

30

【 0 0 9 2 】

前記熱固定はアニーリングでよく、 6 5 ～ 9 0 の温度にて 0 . 0 1 分～ 1 分間行われ得る。例えば、前記熱固定温度 (T 2) は、 6 5 ～ 8 5 または 6 9 ～ 8 1 であり、前記熱固定時間は、 0 . 0 5 分～ 0 . 5 分または 0 . 0 8 分～ 0 . 2 分間行われ得る。

【 0 0 9 3 】

〔 ポリエチレンテレフタレート容器の再生方法 〕

また他の実現例によるポリエチレンテレフタレート容器の再生方法は、前記ポリエステルフィルムが備えられているポリエチレンテレフタレート容器を準備する段階と、前記フィルムが備えられているポリエチレンテレフタレート容器を粉砕してフレークを得る段階と、前記フレークを熱処理して再生ポリエステルチップを製造する段階とを含み、前記フレークを 2 1 0 の温度にて 9 0 分間熱処理する際、クランプング分率が 1 0 % 以下であり、前記フレークが、前記ポリエチレンテレフタレート容器が粉砕されて得られる第 1 フレークおよび前記ポリエステルフィルムが粉砕されて得られる第 2 フレークを含む。

40

【 0 0 9 4 】

一実現例によるポリエチレンテレフタレート容器を再生するために、まず、前記ポリエステルフィルムが少なくとも一部を取り囲むポリエチレンテレフタレート容器を準備する。

【 0 0 9 5 】

従来では、容器、金属、ガラス、プラスチックなどが混在し得る回収済みの廃品を洗浄してポリエステル容器を分類し、容器のリサイクル性および品質を向上させるために、前記容器を包んでいるフィルムなどを除去する工程を行っていた。前記除去工程は、フィル

50

ムを機械的に引き裂くか切断して行われたり、液比重分離、脱水乾燥、風力比重分離、またはペレタイズ（pelletize）のような追加工程により行われたりしてきた。

【 0 0 9 6 】

しかし、前記除去工程ではフィルムを完全に除去することが難しく、特に、フィルムに形成されたいる残渣インクに起因して、製造される再生ポリエステルチップの品質を向上させるのが難しかった。

【 0 0 9 7 】

実現例によるポリエステル容器の再生方法は、ポリエチレンテレフタレート容器を取り囲むフィルムを除去する工程を別途行うことなく再生ポリエステルチップを製造することができるので、コスト削減の効果がある。

10

【 0 0 9 8 】

前記ポリエチレンテレフタレート容器は、外表面に前記ポリエステルフィルムが備えられているものである。具体的に、前記ポリエステルフィルムで前記ポリエチレンテレフタレート容器の外表面を取り囲んだ後、スチームまたは熱風によって前記フィルムが収縮され、前記ポリエチレンテレフタレート容器の外表面の少なくとも一部を包み得る。例えば、前記ポリエステルフィルムは、熱収縮フィルムとして前記ポリエチレンテレフタレート容器のラベルであり得るが、これに限定されるものではない。

前記ポリエステルフィルムに関する説明は、前述の通りである。

【 0 0 9 9 】

その後、前記フィルムが備えられているポリエチレンテレフタレート容器を粉砕してフレークを得る。

20

【 0 1 0 0 】

具体的に、前記ポリエチレンテレフタレート容器の外表面の少なくとも一部は前記フィルムが取り囲んでおり、前記容器と前記フィルムとを分離する別途の工程もなく、前記容器および前記フィルムを一緒に粉砕してフレークを得る。

【 0 1 0 1 】

すなわち、前記フレークは、前記ポリエステル容器が粉砕されて得られる第1フレークおよび前記フィルムが粉砕されて得られる第2フレークを含む。

【 0 1 0 2 】

前記第1フレークの粒径は0.1mm～25mmであり、前記第2フレークの粒径は0.1mm～25mmであり得る。例えば、前記第1フレークの粒径は、0.3mm～23mm、0.5mm～20mm、1mm～20mm、0.5mm～15mm、0.5mm～13mm、1mm～18mm、1mm～15mm、1mm～13mm、または2mm～10mmであり、前記第2フレークの粒径は、0.3mm～23mm、0.5mm～20mm、1mm～20mm、0.5mm～15mm、0.5mm～13mm、1mm～18mm、1mm～15mm、1mm～13mm、または2mm～10mmであり得るが、これに限定されるものではない。

30

【 0 1 0 3 】

その後、熱処理段階の前に、前記粉砕されたフレークを洗浄する段階をさらに行える。具体的に、前記洗浄段階は、85～90の温度にて水および/または1重量部の水酸化ナトリウム水溶液を含む洗浄溶液で行われ得る。

40

【 0 1 0 4 】

例えば、前記粉砕されたフレークを水で1次洗浄し、前記洗浄溶液で2次洗浄した後、さらに水で3次洗浄し得る。前記洗浄段階を行うことにより、前記粉砕されたフレークに残り得る不純物を除去できるとともに、インク成分を効果的に除去できるので、製造される再生ポリエステルチップの品質および純度を向上させ、リサイクル性を最大化し得る。

【 0 1 0 5 】

また、前記洗浄段階の後に、前記洗浄済みのフレークを60～175にて10分～90分間乾燥する段階をさらに行える。例えば、前記乾燥段階は、65～175、70～170、90～165、100～165、120～165、140

50

～ 1 6 5 、または 1 5 0 ～ 1 6 5 にて 1 0 分～ 8 5 分、 1 0 分～ 7 0 分、 1 5 分～ 3 0 分間行われ得る。

【 0 1 0 6 】

前記洗浄および乾燥段階は、 1 回～ 5 回繰り返し行われ得る。例えば、前記洗浄および乾燥段階を順番に 2 回～ 5 回または 3 回～ 5 回繰り返し行うことにより、前記フレークに残っている不純物を効果的に除去することができる。

【 0 1 0 7 】

最後に、前記フレークを熱処理して再生ポリエステルチップを製造する。

【 0 1 0 8 】

具体的に、前記フレークは、前記ポリエチレンテレフタレート容器が粉碎されて得られる第 1 フレークおよび前記ポリエステルフィルムが粉碎されて得られる第 2 フレークを含む。

10

【 0 1 0 9 】

前記熱処理は、 2 0 0 ～ 2 2 0 にて 6 0 分～ 1 2 0 分間行われ得る。例えば、前記熱処理は、 2 0 0 ～ 2 1 5 または 2 0 5 ～ 2 2 0 にて 7 0 分～ 1 2 0 分、または 8 0 分～ 1 2 0 分間行われ得る。

【 0 1 1 0 】

また、前記フレークを 2 1 0 の温度にて 9 0 分間熱処理する際、クランピング分率は 1 0 % 以下である。したがって、前記第 1 フレークおよび第 2 フレークが互にくっつき合っ

て発生し得るクランピング分率が低いので、製造される再生ポリエステルチップは品質に優れる。具体的に、前記フレークは、実現例によるポリエステルフィルムが粉碎されて得られる第 2 フレークを含むので、凝集体の形成を効果的に減少または防止することにより、製造される再生ポリエステルチップの品質を向上させ得る。

20

【 0 1 1 1 】

前記熱処理工程を経た後、再生ポリエステルチップを得られ得る。具体的に、前記熱処理工程を経た後、前記第 1 フレークおよび前記第 2 フレークを含む再生ポリエステルチップを得られ得る。例えば、前記フレークを溶融押出した後、これを裁断して再生ポリエステルチップを得られ得るが、これに限定されるものではない。

【 0 1 1 2 】

[再生ポリエステルチップ]

30

また他の実現例による再生ポリエステルチップは、前記ポリエチレンテレフタレート容器の再生方法によって製造される。

【 0 1 1 3 】

具体的に、前記再生ポリエステルチップは、ポリエチレンテレフタレートを含む第 1 フレークおよびポリエステル樹脂を含む第 2 フレークを含み得る。

【 0 1 1 4 】

前記再生ポリエステルチップの固有粘度 (I V) は、 0 . 5 5 d l / g 以上であり得る。例えば、前記再生ポリエステルチップの固有粘度は 0 . 5 8 d l / g 以上、または 0 . 5 9 d l / g 以上であり、 0 . 5 5 d l / g ～ 3 . 0 d l / g 、 0 . 5 5 d l / g ～ 2 . 0 d l / g 、 0 . 5 5 d l / g ～ 1 . 0 d l / g 、 0 . 5 8 d l / g ～ 0 . 8 5 d l / g 、または 0 . 5 8 d l / g ～ 0 . 7 d l / g であり得る。

40

【 0 1 1 5 】

また、前記再生ポリエステルチップは、前記再生ポリエステルチップの総重量を基準に、ポリエチレンテレフタレートを 7 0 重量 % ～ 9 9 重量 % で含み、共重合ポリエステル樹脂を 1 重量 % ～ 3 0 重量 % で含み得る。例えば、前記再生ポリエステルチップは、前記再生ポリエステルチップの総重量を基準に、 8 0 重量 % ～ 9 9 重量 % 、 9 0 重量 % ～ 9 9 重量 % 、または 9 5 重量 % ～ 9 9 重量 % のポリエチレンテレフタレートを含み、 1 重量 % ～ 2 0 重量 % 、 1 重量 % ～ 1 0 重量 % 、または 1 重量 % ～ 5 重量 % の共重合ポリエステル樹脂を含み得る。

【 0 1 1 6 】

50

(実施例)

前記内容を、下記実施例によりさらに詳細に説明する。但し、下記実施例は本発明を例示するためのものであるのみ、実施例の範囲はこれらだけに限定されるものではない。

【0117】

[ポリエステルフィルムの製造]

(実施例1-1)

(1) 共重合ポリエステル樹脂の調製

ジカルボン酸としてテレフタル酸(TPA)、ジオールとしてエチレングリコール(EG)および共単量体を攪拌機と蒸留塔が設けられているオートクレーブに投入し、エステル交換反応触媒として酢酸マンガンをジカルボン酸100重量部に対して0.07重量部を投入した後、220℃まで昇温させながら、副産物であるメタノールを除去して反応を進行させた。

10

【0118】

エステル交換反応が終了したとき、ジカルボン酸100重量部に対して平均粒径0.28μmのシリカを0.07重量部で投入し、安定化剤としてトリメチルホスフェートを0.4重量部で投入した。5分後に重合触媒として、アンチモニトリオキシド0.035重量部およびテトラブチルチタネート0.005重量部を投入して、10分間攪拌した。次いで、前記反応物を真空設備が設けられている第2反応器に移送した後、285℃に昇温させながら徐々に減圧し、約210分間重合して共重合ポリエステル樹脂を得た。

【0119】

20

(2) フィルムの製造

前記段階(1)で調製された共重合ポリエステル樹脂をT-ダイで270℃にて押出した後、冷却して未延伸シートを得た。その後、前記未延伸シートを55m/分の速度で移送しながら、ロールに通過させて厚さを調節した。前記未延伸シートを55m/分の速度で移送しながら105℃にて0.1分間予熱し、83℃にて横方向(TD)に4.3倍延伸した。その後、延伸済みのシートを69℃の温度にて0.1分間熱固定して、厚さ40μmのポリエステルフィルムを製造した。

【0120】

(実施例1-2～1-6および比較例1-1)

それぞれの構成、含有量および工程条件を下記表1に記載のように変化させたことを除いて、前記実施例1-1と同様の方法によりポリエステルフィルムを製造した。

30

【0121】

40

50

【表 1】

区分	TPA (モル%)	EG (モル%)	NPG (モル%)	CHEM (モル%)	DEG (モル%)	延伸 温度 (°C)	熱固定 温度 (°C)
実施例 1-1	100	72	24	—	4	83	69
実施例 1-2	100	80	16	—	4	88	75
実施例 1-3	100	80	16	—	4	90	71
実施例 1-4	100	80	16	—	4	90	80
実施例 1-5	100	78	17	—	5	96	81
実施例 1-6	100	71	24	—	5	85	70
比較例 1-1	100	70	—	25	5	96	81
* NPG : ネオペンチルグリコール * CHDM : 1, 4-シクロヘキサジメタノール * DEG : ジエチレングリコール							

【0122】

(実験例 1 - 1 : T_c、T_mおよび結晶化熱量)

前記で製造した実施例 1 - 1 ~ 1 - 6 および比較例 1 - 1 のポリエステルフィルムの試料 4 mg を示差走査熱量計 (Q2000、TA Instruments 社) に投入し、示差走査熱量計 (DSC) モードを使用して、10 / 分の昇温速度でスキャンした。

【0123】

測定結果において、最初の吸熱温度がガラス転移温度 (T_g、Glass Transition Temperature) であり、前記 T_g の後に測定される発熱温度が結晶化温度 (T_c、Crystallization Temperature) であり、前記 T_c の後に測定される吸熱温度を融点 (T_m、Melting Temperature) として測定した。前記 T_c における積分値 (integral) を結晶化熱量として計算しており、前記結晶化熱量の値が大きいほど結晶化速度が速く、結晶相への転移率が高い。

【0124】

(実験例 1 - 2 : 熱収縮率)

図 3 は、ポリエステルフィルムの熱収縮率を測定する方法を示したものである。図 3 を参照して、前記で製造した実施例 1 - 1 ~ 1 - 6 および比較例 1 - 1 のポリエステルフィルム 100 を、それぞれ測定しようとする方向に 300 mm およびこれに垂直な方向に 15 mm で裁断した。この際、前記 300 mm は収縮前の第 1 寸法 × 1 であり、前記 15 mm は第 2 寸法である (図 3 (a))。

【0125】

前記裁断済みのポリエステルフィルム 100 を、80 または 90 に加熱された水槽に 10 秒間浸漬した後、収縮後のポリエステルフィルム 100 a の収縮された寸法、すなわち、収縮後の第 1 寸法 × 2 を測定し (図 3 (b))、下記式に基づいて計算した。本実験例における熱収縮率 (%) は、フィルムの主収縮方向 (TD) に対して得た。

$$\text{熱収縮率}(\%) = (x_1 - x_2) / x_1 \times 100$$

【0126】

10

20

30

40

50

【表 2】

区分	T D 熱収縮率 (80℃)	T D 熱収縮率 (90℃)	T c (℃)	結晶化熱量 (J/g)	T m (℃)
実施例 1-1	69.7%	79.3%	99.5	5.7	210.2
実施例 1-2	60.7%	69.7%	101.1	4.0	208.2
実施例 1-3	63.3%	75.7%	99.9	4.5	223.9
実施例 1-4	59.4%	71.7%	99.9	4.5	223.9
実施例 1-5	58.0%	70.0%	—	—	199
実施例 1-6	70.7%	78.8%	115.8	5.0	185.1
比較例 1-1	68.0%	78.0%	82.0	0.1	166

10

【0127】

前記表 2 から分かるように、実施例 1 - 1 ~ 1 - 6 のポリエステルフィルムは、主収縮方向（T D）に対して、各温度による熱収縮率、結晶化温度（T c）、それによる結晶化熱量および融点（T m）がすべて好ましい範囲内に含まれていた。

20

【0128】

〔再生ポリエステルチップの製造〕

（実施例 2 - 1）

（1）ポリエステルフィルムが備えられているポリエチレンテレフタレート容器の製造
ポリエチレンテレフタレート容器（PET 容器、30 g）の外表面の一部を、前記で製造した実施例 1 - 1 のポリエステルフィルムで包んだ。この際、アクリル系接着剤を用いて固定させた。その後、90 の温度および熱風条件において、前記実施例 1 - 1 のポリエステルフィルムを収縮させてポリエステルフィルムが備えられているポリエチレンテレフタレート容器を得た。

30

【0129】

（2）ポリエチレンテレフタレート容器の再生工程

前記段階（1）で製造されたポリエステルフィルムが備えられている容器を、粉砕機で粉砕してフレークを得た。前記フレークを水で 1 次洗浄した。その後、88 にて 880 r p m の速度で水槽にて攪拌させた洗浄溶液（0.3 重量部の T r i t o n X - 1 0 0 溶液および 1.0 重量部の N a O H 溶液の混合液）で 15 分間 2 次洗浄した。その後、前記 2 次洗浄済みのフレークを常温の水で 3 次洗浄して残留洗浄溶液を除去し、160 にて 20 分間乾燥させた。

【0130】

その後、210 にて 90 分間熱処理して、再生ポリエステルチップを製造した。

40

【0131】

（実施例 2 - 2 ~ 2 - 8 および比較例 2 - 1）

実施例 1 - 1 のポリエステルフィルムの代わりに、実施例 1 - 2 ~ 1 - 6 および比較例 1 - 1 のポリエステルフィルムを使用したことを除いて、前記実施例 2 - 1 と同様の方法により再生ポリエステルチップを製造した。

【0132】

（実験例 2 - 1：クランピング分率（clumping ratio））

米国のプラスチックリサイクル業者協会（APR）のポリエチレンテレフタレートフレーククランプ評価（APR PET - S - 08）の手続きに準じて、クランピング分率（%）を測定した。

50

【0133】

図2は、ポリエステルフィルムが備えられているポリエチレンテレフタレート容器のクラumpingを測定する方法を示したものである。

【0134】

図2(a)に示すように、ポリエチレンテレフタレート容器20に、ポリエステルフィルムがラベル11aとして備えられた製品1を粉碎機6で粉碎し、網目9.5mmの第1篩(0.374''篩、図示せず)に通過させた後、ポリエチレンテレフタレートが粉碎された第1フレーク20aを97gおよびポリエステルフィルムが粉碎された第2フレーク10aを3gで構成された混合フレークを得た。

【0135】

その後、図2(b)に示すように、前記混合フレークを直径6cmおよび高さ8cmの円筒に投入し、その上に2.5kgの錘7を乗せて荷重を加えた。その後、錘が載せられた円筒を210°の対流式オープンにて90分間熱処理した後、常温で冷却した。

【0136】

その後、図2(c)に示すように、冷却された混合フレークを網目dが11.2mmの第2篩8(0.625''篩)に乗せてろ過した後、第2篩8の上に残っている凝集された混合フレーク10bを集めて重量を測定した。

クラumping分率(%) = 凝集された混合フレークの重量 / 最初混合フレークの重量 × 100

【0137】

(実験例2-2: 固有粘度)

前記実施例2-1~2-6および比較例2-1で製造した再生ポリエステルチップを100のオルト-クロロフェノール(Ortho-Chlorophenol)に溶解させた後、35の恒温槽にてオストワルド(Ostwald)粘度計を用いて落下時間を測定して相対粘度を得た。その後、前記得られた相対粘度に該当する値の固有粘度IVを下記表3で確認し、小数点第3位で四捨五入した。

【0138】

10

20

30

40

50

【表 3】

no.	相对 粘度	固有 粘度	no.	相对 粘度	固有 粘度	no.	相对 粘度	固有 粘度	no.	相对 粘度	固有 粘度
1	1.840	0.590	31	1.870	0.608	61	1.900	0.627	91	1.930	0.645
2	1.841	0.591	32	1.871	0.609	62	1.901	0.627	92	1.931	0.645
3	1.842	0.591	33	1.872	0.610	63	1.902	0.628	93	1.932	0.646
4	1.843	0.592	34	1.873	0.610	64	1.903	0.629	94	1.933	0.647
5	1.844	0.592	35	1.874	0.611	65	1.904	0.629	95	1.934	0.647
6	1.845	0.593	36	1.875	0.611	66	1.905	0.630	96	1.935	0.648
7	1.846	0.594	37	1.876	0.612	67	1.906	0.630	97	1.936	0.648
8	1.847	0.594	38	1.877	0.613	68	1.907	0.631	98	1.937	0.649
9	1.848	0.595	39	1.878	0.613	69	1.908	0.631	99	1.938	0.650
10	1.849	0.595	40	1.879	0.614	70	1.909	0.632	100	1.939	0.650
11	1.850	0.596	41	1.880	0.615	71	1.910	0.633	101	1.940	0.651
12	1.851	0.597	42	1.881	0.615	72	1.911	0.633	102	1.941	0.651
13	1.852	0.597	43	1.882	0.616	73	1.912	0.634	103	1.942	0.652
14	1.853	0.598	44	1.883	0.616	74	1.913	0.635	104	1.943	0.653
15	1.854	0.599	45	1.884	0.617	75	1.914	0.635	105	1.944	0.653
16	1.855	0.599	46	1.885	0.618	76	1.915	0.636	106	1.945	0.654
17	1.856	0.600	47	1.886	0.618	77	1.916	0.636	107	1.946	0.654
18	1.857	0.600	48	1.887	0.619	78	1.917	0.637	108	1.947	0.655
19	1.858	0.601	49	1.888	0.619	79	1.918	0.637	109	1.948	0.656
20	1.859	0.602	50	1.889	0.620	80	1.919	0.638	110	1.949	0.656
21	1.860	0.602	51	1.890	0.621	81	1.920	0.639	111	1.950	0.657
22	1.861	0.603	52	1.891	0.621	82	1.921	0.639	112	1.951	0.657
23	1.862	0.603	53	1.892	0.622	83	1.922	0.640	113	1.952	0.658
24	1.863	0.604	54	1.893	0.622	84	1.923	0.641	114	1.953	0.659
25	1.864	0.605	55	1.894	0.623	85	1.924	0.641	115	1.954	0.659
26	1.865	0.605	56	1.895	0.624	86	1.925	0.642	116	1.955	0.660
27	1.866	0.606	57	1.896	0.624	87	1.926	0.642	117	1.956	0.660

28	1.867	0.607	58	1.897	0.625	88	1.927	0.643	118	1.967	0.667
29	1.868	0.607	59	1.898	0.625	89	1.928	0.644	119	1.968	0.667
30	1.869	0.608	60	1.899	0.626	90	1.929	0.644	120	1.969	0.668

【表 4】

区分	クランピング分率 (%)	固有粘度 (d l / g)
実施例 2-1	0	0.59
実施例 2-2	0.3	0.60
実施例 2-3	0	0.65
実施例 2-4	0	0.61
実施例 2-5	0.7	0.60
実施例 2-6	3.5	0.60
比較例 2-1	22.6	0.65

10

【 0 1 4 0 】

前記表 4 に示すように、前記表 2 の特定結晶化温度 (T c) の範囲および特定融点 (T m) の範囲を満足する実施例 2 - 1 ~ 2 - 6 の再生ポリエステルチップは、比較例 2 - 1 に比べて、類似の固有粘度範囲においてクランピング分率が非常に低いため、再生工程時の長時間の高温乾燥に有利であり、リサイクル性を向上させ得る。

20

【符号の説明】

【 0 1 4 1 】

- d : 網目直径
- x : 第 1 寸法
- x 1 : 収縮前の第 1 寸法
- x 2 : 収縮後の第 1 寸法
- y : 第 2 寸法
- z : 第 3 寸法
- S M A X : 最大応力
- S R E S : 残留応力
- 1 : ラベルが貼り付けられた製品
- 2 : 応力試験機
- 6 : 粉碎機
- 7 : 錘
- 8 : 篩
- 1 0 a : 第 2 フレーク
- 1 0 b : 凝集された混合フレーク
- 1 1 : (収縮前の) ラベル
- 1 1 a : 収縮後のラベル
- 2 0 : 製品
- 2 0 a : 第 1 フレーク
- 2 1 : ジグ
- 2 2 : ロードセル
- 1 0 0 : (収縮前の第 1) ポリエステルフィルム
- 1 0 0 a : 収縮後のポリエステルフィルム
- 1 2 0 : 接着部
- 2 0 0 : 第 2 ポリエステルフィルム

30

40

50

【図面】

【図 1】

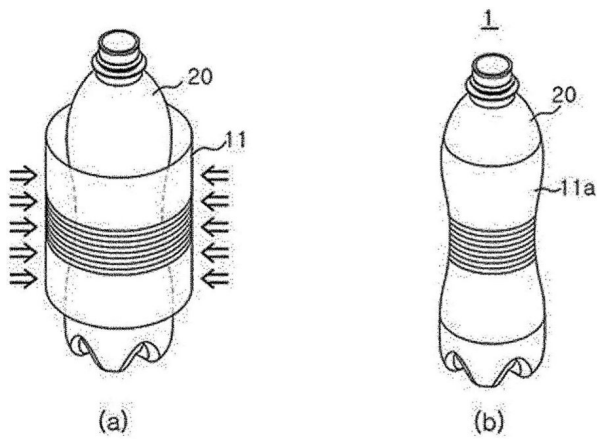


図 1

【図 2】

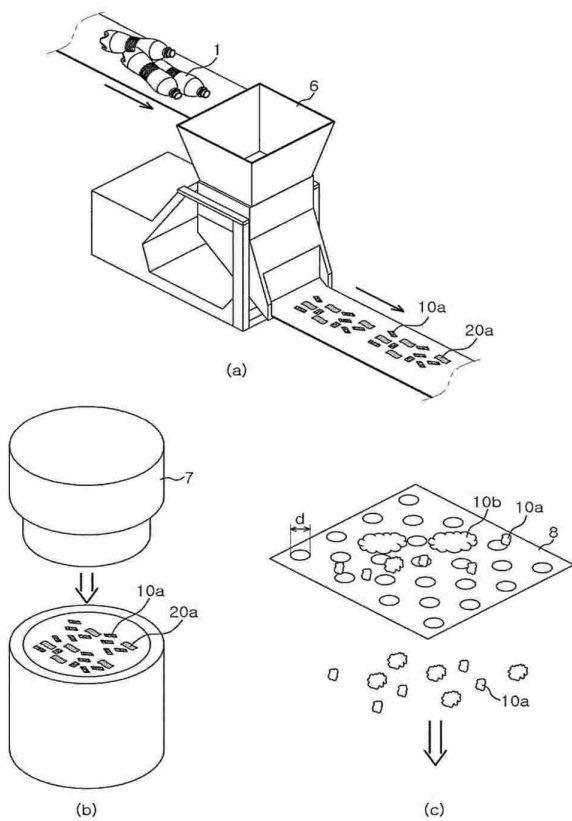


図 2

【図 3】

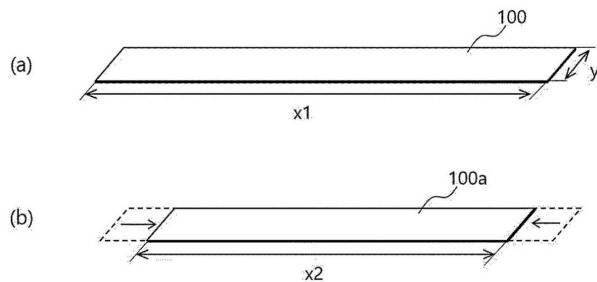


図 3

【図 4】

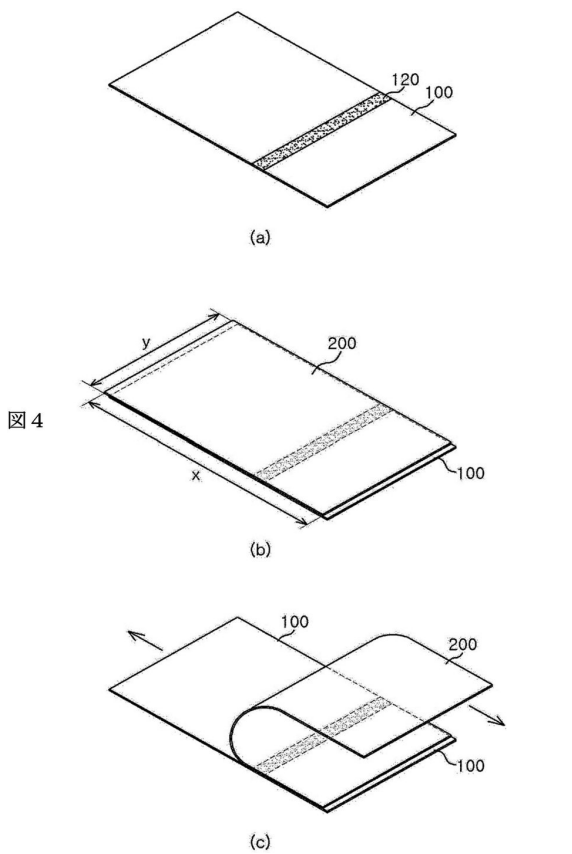
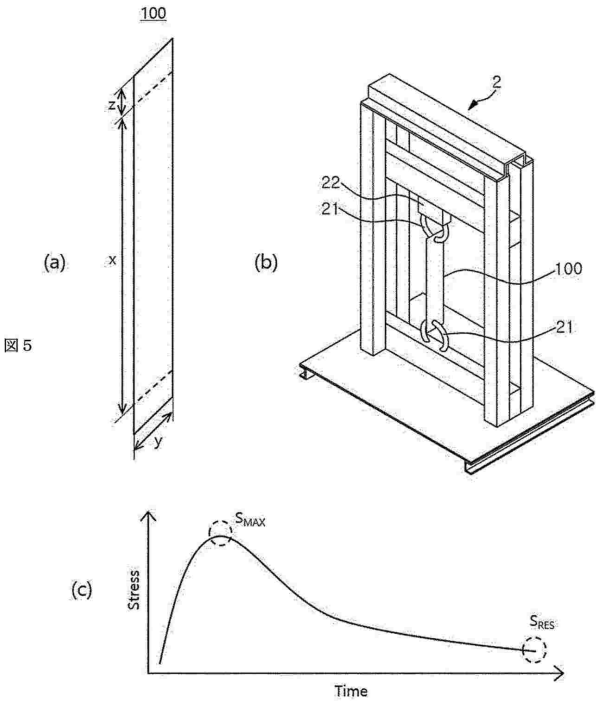
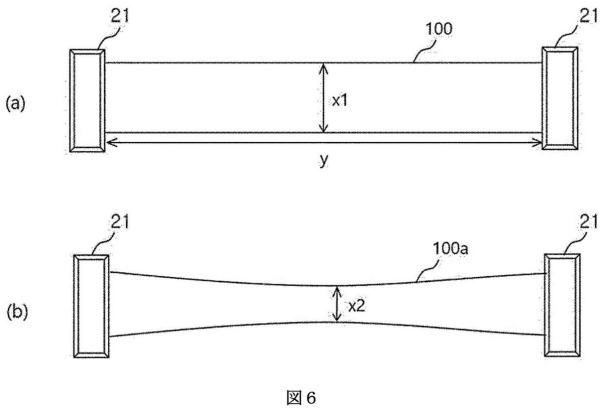


図 4

【図 5】



【図 6】



10

20

30

40

50

フロントページの続き

(31)優先権主張番号 10-2020-0141579

(32)優先日 令和2年10月28日(2020.10.28)

(33)優先権主張国・地域又は機関

韓国(KR)

SK Microworks America, Inc.

アメリカ合衆国、ジョージア州、コピントン、エスケーシー ドライブ 1000.

1000 SKC Drive, Covington, Georgia 30014 United States of America

(74)代理人 110001139

SK弁理士法人

(74)代理人 100130328

弁理士 奥野 彰彦

(74)代理人 100130672

弁理士 伊藤 寛之

(72)発明者 キム、チョルキュ

大韓民国、ギョンギド、スウォン - シ、ジャンアン - グ、ジョンザ - ロ、102

(72)発明者 ジョン、ユジン

大韓民国、ギョンギ - ド、スウォン - シ、ジャンアン - グ、ジョンジャ - ロ、102

(72)発明者 キム、ヨンドク

大韓民国、ギョンギ - ド、スウォン - シ、ジャンアン - グ、ジョンジャ - ロ、102

(72)発明者 ヤン、ジュホ

大韓民国、ギョンギ - ド、スウォン - シ、ジャンアン - グ、ジョンジャ - ロ、102

(72)発明者 イ、ヒョクス

大韓民国、ギョンギ - ド、スウォン - シ、ジャンアン - グ、ジョンジャ - ロ、102

合議体

審判長 植前 充司

審判官 加藤 友也

審判官 柴田 昌弘

(56)参考文献 特開2011-184690(JP, A)

特表2017-526557(JP, A)

特表2013-510919(JP, A)

中国特許出願公開第108908922号明細書(CN, A)

特開2002-361741(JP, A)

特表2022-508652(JP, A)

(58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)

C08J5/18

C08G63/16