

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 958 839**

51 Int. Cl.:

**B29B 17/02** (2006.01)

**C08J 11/06** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **05.09.2019 PCT/JP2019/034942**

87 Fecha y número de publicación internacional: **26.03.2020 WO20059516**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **05.09.2019 E 19863179 (8)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **26.07.2023 EP 3854841**

54 Título: **Método para separar y recuperar películas estratificadas**

30 Prioridad:

**19.09.2018 JP 2018174909**

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:

**15.02.2024**

73 Titular/es:

**DIC CORPORATION (100.0%)  
35-58, Sakashita 3-chome Itabashi-ku  
Tokyo 174-8520, JP**

72 Inventor/es:

**OHARA, SHIN-ICHI;  
HAMASUNA, YUTAKA;  
IWANAMI, HIDEOKI;  
TAMAOKA, TAKASHI y  
TAKADA, CHOICHI**

74 Agente/Representante:

**UNGRÍA LÓPEZ, Javier**

ES 2 958 839 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

**DESCRIPCIÓN**

Método para separar y recuperar películas estratificadas

**Campo técnico**

5 La presente invención se refiere a un método para reciclar una película de resina laminada mediante un método de laminación utilizando un adhesivo.

**Técnica anterior**

En los últimos años se ha hecho obligatorio el reciclaje de envases de recipientes de plástico, y de ese modo se han recuperado, clasificado y reutilizado desechos plásticos, incluidos desechos plásticos para envasado de alimentos.

10 Existe una variedad de tipos de desechos plásticos, y ejemplos de los mismos incluyen una gran cantidad de desechos plásticos fabricados de una resina sintética tal como polietileno, polipropileno, poliestireno (poliestireno espumado), tereftalato de polietileno o poli(cloruro de vinilo) y varias películas estratificadas obtenidas laminando películas de resina sintética o láminas metálicas tales como láminas de aluminio e indicando un nombre de producto o similar o confiriendo decoración con tinta de impresión. Estos desechos plásticos se encuentran en un estado mixto durante la recolección de basura.

15 Como películas estratificadas, se conoce una película estratificada obtenida por laminación de una pluralidad de capas de películas fabricadas de diferentes tipos de resinas termoplásticas utilizando una pluralidad de extrusoras, y también se ha desarrollado un dispositivo para separar la película estratificada en películas de una sola capa que constituyen las respectivas capas de la película estratificada (por ejemplo, consulte la Bibliografía Relacionada con Patentes 1).

20 Mientras tanto, en una película estratificada obtenida por laminación de una pluralidad de películas de resina no por moldeo por extrusión sino por un método de laminación que utiliza un adhesivo termoendurecible reactivo que funciona mediante la reacción entre un compuesto isocianato y un compuesto poliol, ya que se forma una capa adhesiva después de la reacción que entrecruza las películas de resina, la fuerza adhesiva de laminación es fuerte, y la película estratificada se utiliza, por ejemplo, como un material de envasado de alimentos en autoclave que requiere resistencia de retorta o similar (consulte, por ejemplo, la Bibliografía Relacionada con Patentes 2). Sin embargo, dado que la capa adhesiva formada después de la reacción forma una fuerte capa de entrecruzamiento, no es posible separar fácilmente la película estratificada con el dispositivo de separación como se describe en la Bibliografía Relacionada con Patentes 1.

30 Por lo general, para el plástico de desecho en el que están presentes en forma mixta una resina termoplástica y una resina termoendurecible, se conoce un método para separar el plástico de desecho utilizando la gravedad específica y reciclar el plástico de desecho, pero la facilidad de recuperación del plástico de desecho varía con las resinas. Particularmente, en el reciclado de resinas termoendurecibles, la descomposición térmica es difícil y, por lo tanto, se reconoce comúnmente que las resinas termoendurecibles son difíciles de reciclar.

35 Como método para tratar dichos desechos complejos y clasificar y recuperar componentes individuales, la Bibliografía Relacionada con Patentes 3 describe un método para separar y recuperar desechos complejos basados en plástico, incluyendo el método una etapa de utilización de trietilenglicol como disolvente de separación, adición de un hidróxido de metal alcalino como catalizador, y calentamiento en trietilenglicol de 250°C a 280°C, que está cerca del punto de ebullición de 200°C o más, para fundir un componente P1 que se puede fundir en trietilenglicol, una etapa de disolución o despolimerización de un componente P2 que es difícil de fundir térmicamente en el trietilenglicol calentado de 250°C a 280°C con agitación para descargar el componente P2 junto con un disolvente, una etapa de recuperación del componente fundible P1 restante y una fibra reforzada F o un componente metálico M, y una etapa de recuperación del componente P2 no fundido y el disolvente de separación, destilación del disolvente de separación a presión reducida para separar el disolvente de separación del componente P2 no fundido, purificación y reutilización del componente P2 no fundido.

45 **Lista de citas**

**Bibliografía relacionada con patentes**

- BRP 1: documento JP 2002-96327 A
- BRP 2: documento JP 2001-335771 A
- BRP 3: documento JP 2006-110531 A

50 El documento JP 2008-031399 A se refiere a un procedimiento de recuperación requerido para recolectar/recuperar cloroetilenos de la unidad de una sola pieza o material compuesto que contiene cloroetileno de manera segura y confiable.

## Compendio de la invención

### Problema técnico

Un problema a resolver por la invención es proporcionar un método para separar y recuperar una película estratificada, siendo el método capaz de separar fácilmente una película estratificada que está presente en residuos complejos basados en plástico junto con otras sustancias y está laminada con un adhesivo reactivo en películas de una sola capa.

### Solución al problema

Es decir, la presente invención es un método para separar y recuperar una película estratificada laminada y adherida con un adhesivo, incluyendo el método la etapa 1 de inmersión de la película estratificada en una solución de morfolina que tiene una concentración de morfolina de 50% en masa o más mientras se agita la película estratificada con calentamiento de 20°C a 90°C o se hace vibrar ultrasónicamente la película estratificada y una etapa 2 de recuperación de películas de una sola capa separadas que constituyen las capas respectivas de la película estratificada, en donde el adhesivo es un adhesivo reactivo que contiene una composición de poliisocianato y una composición de polioli.

### Efectos ventajosos de la invención

De acuerdo con la presente invención, es posible separar fácilmente una película estratificada que está presente en desechos complejos basados en plástico junto con otras sustancias y está laminada y adherida con un adhesivo reactivo en películas de una sola capa y recuperar, clasificar, y reutilizar desechos complejos basados en plástico en los que una película estratificada laminada y adherida con un adhesivo no reactivo, por ejemplo, un adhesivo de resina termoplástica, una película estratificada obtenida por fusión en caliente mediante un método de laminación por extrusión, o similar, está presente junto con otras sustancias

### Descripción de realizaciones

Un método para separar y recuperar una película estratificada de la presente invención es un método para separar y recuperar una película estratificada laminada y adherida con un adhesivo, incluyendo el método la etapa 1 de inmersión de la película estratificada en una solución de morfolina que tiene una concentración de morfolina de 50% en masa o más mientras se agita la película estratificada con calentamiento de 20°C a 90°C o se hace vibrar ultrasónicamente la película estratificada y una etapa 2 de recuperación de películas de una sola capa separadas que constituyen las capas respectivas de la película estratificada, en donde el adhesivo es un adhesivo reactivo que contiene una composición de poliisocianato y una composición de polioli.

#### (Etapas 1)

Como solución de morfolina que se utiliza en la etapa 1 del método de separación y recuperación de la presente invención, se puede utilizar cualquier solución de morfolina sin limitaciones particulares siempre que la concentración de morfolina (Núm. CAS 110-91-8) sea de 50% en masa o más. Particularmente, es preferible una solución de morfolina que tenga una concentración de morfolina de 100% en masa. La solución de morfolina contiene preferentemente, además de morfolina, una solución alcalina tal como una solución acuosa de hidróxido de sodio o una solución acuosa de hidróxido de potasio. La solución acuosa de hidróxido de sodio o la solución acuosa de hidróxido de potasio es preferiblemente una solución acuosa que tiene una concentración de 0,5% en masa a 10% en masa y más preferiblemente una solución acuosa que tiene una concentración de 1% en masa a 5% en masa. Además, el pH es preferiblemente de 10 o más.

Además, la solución de morfolina puede contener adicionalmente un disolvente orgánico soluble en agua, lo cual es preferible. "Soluble en agua" para el disolvente orgánico soluble en agua significa que el disolvente orgánico se disuelve en (se mezcla con) agua en una proporción libre a temperatura ambiente.

Como ejemplos específicos del disolvente orgánico soluble en agua, se pueden ilustrar alcohol metílico, alcohol etílico, alcohol propílico, alcohol isopropílico, éter monometílico de etilenglicol (metilcelosolve), éter monoetilico de etilenglicol (celosolve), éter monobutílico de etilenglicol (butilcelosolve), éter monobutílico de dietilenglicol (butilcelosolve), éter dibutílico de etilenglicol, éter monometílico de dietilenglicol (metil carbitol), éter dimetílico de dietilenglicol, éter monoetilico de dietilenglicol (carbitol), éter dietílico de dietilenglicol (dietil carbitol), éter monobutílico de dietilenglicol (butil carbitol), éter dibutílico de dietilenglicol, éter monometílico de trietilenglicol, éter dimetílico de trietilenglicol, éter dimetílico de tetraetilenglicol, éter dimetílico de metileno (metilal), éter monobutílico de propilenglicol, tetrahidrofurano, acetona, alcohol de diacetona, acetona, acetil acetona, acetato de éter monometílico de etilenglicol (acetato de metilcelosolve), acetato de éter monometílico de dietilenglicol (acetato de metil carbitol), acetato de éter monoetilico de dietilenglicol (acetato de carbitol), hidroxisisobutirato de etilo y lactato de etilo, y estos disolventes orgánicos solubles en agua se pueden utilizar solos o se pueden combinar y utilizar dos o más disolventes orgánicos solubles en agua.

La tasa de contenido de disolvente orgánico soluble en agua en la solución de morfolina es preferiblemente de 0,1% en masa a 20% en masa y más preferiblemente de 0,1% en masa a 10% en masa.

Además, la tasa de contenido de agua en la solución de morfolina es preferiblemente de 0% en masa a 50% en masa y preferiblemente de 20% en masa a 50% en masa.

5 Además, la solución de morfolina puede contener adicionalmente un disolvente orgánico insoluble en agua. Como ejemplos específicos del disolvente orgánico insoluble en agua, se pueden ilustrar disolventes basados en alcohol tales como n-butanol, 2-butanol, isobutanol y octanol, disolventes basados en hidrocarburos alifáticos tales como hexano, heptano y parafina normal, disolventes basados en hidrocarburos aromáticos tales como benceno, tolueno, xileno y alquilbenceno, disolventes basados en hidrocarburos halogenados tales como cloruro de metileno, 1-clorobutano, 2-clorobutano, 3-clorobutano y tetracloruro de carbono, disolventes basados en ésteres tales como acetato de metilo, acetato de etilo y acetato de butilo, disolventes basados en cetonas como metilisobutilcetona, metiletilcetona y ciclohexanona, y disolventes basados en éteres tales como éter etílico y éter butílico, y estos disolventes orgánicos insolubles en agua se pueden utilizar solos o se pueden combinar y utilizar dos o más disolventes orgánicos insolubles en agua.

10 15 Además, la solución de morfolina puede contener adicionalmente un tensioactivo. Los ejemplos del tensioactivo incluyen una variedad de tensioactivos aniónicos, tensioactivos no iónicos, tensioactivos catiónicos, tensioactivos anfóteros y similares y, entre estos, son preferibles los tensioactivos aniónicos y los tensioactivos no iónicos.

Los ejemplos específicos de los tensioactivos aniónicos incluyen alquilbenceno sulfonato, alquilfenil sulfonato, alquilnaftaleno sulfonato, sal de ácido graso superior, sal éster de sulfato de éster de ácido graso superior, sulfonato de éster de ácido graso superior, sal éster de sulfato y sulfonato de éter de alcohol superior, alquil sulfosuccinato superior, polioxietilén alquil éter carboxilato, polioxietilén alquil éter sulfato, alquil fosfato, polioxietilén alquil éter fosfato y similares y, como ejemplos específicos de los mismos, se pueden ilustrar dodecilbenceno sulfonato, isopropilnaftaleno sulfonato, monobutilfenilfenol monosulfonato, monobutilbifenilsulfonato, dibutilfenilfenol disulfonato y similares.

20 25 Como ejemplos específicos de los tensioactivos no iónicos, se pueden ilustrar éter alquílico de polioxietileno, éter fenílico de polioxietileno, éster de ácido graso de polioxietileno, éster de ácido graso de sorbitán, éster de ácido graso de polioxietilén sorbitán, éster de ácido graso de polioxietilén sorbitol, éster de ácido graso de glicerina, éster de ácido graso de polioxietilén glicerina, éster de ácido graso de poliglicerina, éster de ácido graso de sacarosa, polioxietilén alquilamina, amida de ácido graso de polioxietileno, alquilolamida de ácido graso, alquilalcanolamida, acetilén glicol, aducto de oxietileno de acetilén glicol, copolímero en bloque de polietilén glicol y polipropilén glicol y similares, y, entre estos, se pueden ilustrar éter nonilfenílico de polioxietileno, éter octilfenílico de polioxietileno, éter dodecilfenílico de polioxietileno, éter alquílico de polioxietileno, éster de ácido graso de polioxietileno, éster de ácido graso de sorbitán, éster de ácido graso de sorbitán polioxietilénado, alquilolamida de ácido graso, acetilén glicol, aducto de oxietileno de acetilén glicol, copolímero en bloque de polietilén glicol y polipropilén glicol.

30 35 Como otros tensioactivos, también es posible utilizar tensioactivos basados en silicona tales como el aducto de oxietileno de polisiloxano; tensioactivos basados en flúor tales como carboxilato de perfluoroalquilo, sulfonatos de perfluoroalquilo y éter perfluoroalquílico de oxietileno; biotensioactivos tales como ácido espicullisporico, ramnolípido y lisolecitina; y similares.

Estos tensioactivos se pueden utilizar solos o se pueden mezclar y utilizar dos o más tipos de tensioactivos. En caso de añadir el tensioactivo, la cantidad de tensioactivo añadido es preferentemente de 0,001% a 2% en masa, más preferentemente de 0,001% a 1,5% en masa, y aún más preferentemente de 0,01% a 1% en masa con respecto a la cantidad total de la solución de morfolina.

40 45 En un estado en el que la solución de morfolina se ha calentado de 20°C a 90°C o se ha hecho vibrar ultrasónicamente, la película estratificada, que es el objeto, se sumerge en la solución de morfolina, por ejemplo, en un tanque de tratamiento. El método de calentamiento no está particularmente limitado y es posible adoptar un método de calentamiento bien conocido utilizando rayos térmicos, rayos infrarrojos, microondas o similares. Además, para la vibración ultrasónica, es posible adoptar, por ejemplo, un método en el que se conecta un vibrador ultrasónico al tanque de tratamiento y se imparten vibraciones ultrasónicas a la solución de morfolina, un método en el que se imparten vibraciones ultrasónicas a una solución calentada, o similar.

50 55 Además, durante la inmersión, la solución de morfolina se encuentra preferiblemente bajo agitación. Los ejemplos del método de agitación incluyen un método en el que un líquido de dispersión de la película estratificada almacenada en el tanque de tratamiento se agita mecánicamente con una pala agitadora, un método en el que la solución de morfolina se agita con flujos de agua utilizando una bomba de flujo de agua, un método de burbujeo con un gas inerte tal como gas nitrógeno, y similares, y estos métodos se pueden utilizar conjuntamente para exfoliar eficazmente una película multicapa.

El tiempo durante el cual la película estratificada se sumerge en la solución de morfolina también depende de la

constitución de la película estratificada, pero típicamente es de dos minutos a 48 horas en muchos casos. Cuando el tiempo de inmersión es inferior a dos minutos, existe la preocupación de que una capa de adhesivo no se exfolie completamente de la película estratificada y pueda permanecer parcialmente. En la presente invención, no es necesario exfoliar la capa adhesiva al 100% de la película estratificada, y el adhesivo puede permanecer en la película estratificada hasta cierto punto, siempre que no se produzcan inconvenientes en la etapa de reciclaje posterior a la recuperación de películas de una sola capa en una etapa 2 descrita a continuación. Específicamente, es necesario exfoliar 80% en masa o más de la capa adhesiva de la película estratificada.

En la etapa 1, en cuanto al número de inmersiones en la solución de morfolina, la película estratificada se puede sumergir una o varias veces por separado. Es decir, la etapa 2 de recuperación de películas de una sola capa separadas que constituyen las capas respectivas de la película estratificada se puede realizar después de que la película estratificada se sumerja una vez o la etapa 2 se puede realizar después de que la película estratificada se sumerja varias veces. Además, en el caso de sumergir la película estratificada varias veces en la etapa 1, la concentración de la solución de morfolina se puede cambiar o la película estratificada se puede sumergir adicionalmente en una solución alcalina, lo cual es preferible. En particular, en caso de que la película estratificada contenga una lámina de aluminio o una película depositada en aluminio, para exfoliar o disolver fácilmente la hoja de aluminio o la película depositada en aluminio, la película estratificada se puede sumergir primero en una solución de morfolina al 100%. y en segundo lugar sumergir en una solución de morfolina y una solución acuosa de hidróxido de sodio (que tiene una concentración de hidróxido de sodio de 0,5% en masa a 10% en masa) (1:1), y a continuación, se puede realizar la etapa 2. Alternativamente, la película estratificada se puede sumergir en primer lugar en una solución de morfolina al 100% y en segundo lugar sumergir en una solución acuosa de hidróxido de sodio (que tiene una concentración de hidróxido de sodio de 0,5% en masa a 10% en masa), y a continuación, se puede realizar la etapa 2. Además, es preferible añadir adecuadamente una etapa bien conocida tal como el lavado con agua o el secado entre las etapas.

En muchos casos, la película estratificada está provista, además del adhesivo, de una capa de tinta de impresión para indicar un nombre de producto o similar o impartir decoración. Tal capa de tinta de impresión también se puede exfoliar o disolver en la etapa de inmersión de la película estratificada en la solución de morfolina. Además, hay un caso en el que se laminan una lámina metálica (aluminio) o una película depositada en la película estratificada como se describe anteriormente, y tal lámina metálica o película depositada también se pueden exfoliar o disolver mezclando una solución acuosa de sodio hidróxido, hidróxido de potasio o similares en la solución de morfolina.

Se supone que la solución de morfolina que se utiliza en el presente método de separación y recuperación actúa en la interfase entre la película estratificada y el adhesivo o la tinta de impresión para reducir significativamente la fuerza adhesiva, provocando así la exfoliación de la interfase entre la película estratificada y el adhesivo o la tinta de imprenta. Típicamente, casi no hay casos en los que una película de revestimiento se disuelva en una solución después del entrecruzamiento de un adhesivo reactivo o similar. Sin embargo, en la presente invención, la solución de morfolina no está destinada a disolver la película estratificada, sino que provoca la exfoliación interfacial y, por lo tanto, se supone que el método es capaz de separar y recuperar eficazmente la película estratificada en un corto período de tiempo.

#### **(Etapa 2)**

La capa adhesiva separada de la película estratificada no se disuelve en la solución de morfolina, sino que permanece en la solución de morfolina en muchos casos. Es decir, en la solución de morfolina en la etapa 1, las películas de una sola capa separadas que constituyen las capas respectivas de la película estratificada y los residuos del adhesivo reactivo, la tinta de impresión, la lámina metálica y similares flotan o se disuelven. Estas sustancias se eliminan de la solución de morfolina y a continuación, se clasifican y recuperan.

Como ejemplo de un método específico, por ejemplo, en un método de flotación, se ordenan una película de plástico que tiene una gravedad específica ligera, tal como poliolefina, tal como polipropileno o polietileno (sustancia flotante), una película sintética de condensación, tal como poliéster o nailon, que tiene una gravedad específica más pesada que la poliolefina, y una sustancia pesada tal como una lámina metálica, la sustancia pesada se elimina, a continuación, una película de plástico recuperada en una etapa de lavado y deshidratación se lava y deshidrata, y los plásticos que tienen diferentes pesos específicos se clasifican por separación centrífuga. Por ejemplo, el plástico se puede clasificar en una sustancia separada de la película plástica que incluye una resina de cloruro de vinilo o tereftalato de polietileno con una gravedad específica de 1 o más que se hunde en el agua y una sustancia separada de la película plástica que contiene una resina basada en olefina tal como polietileno o polipropileno que no contiene resinas de cloruro de vinilo.

Se habilita una clasificación adicional cambiando las gravedades específicas cambiando apropiadamente la razón de mezcla de los líquidos que se utilizan en la clasificación por flotación, por ejemplo, agua y un disolvente orgánico.

Cada sustancia separada se seca, a continuación, se solidifica, se produce como un producto reciclado y se reutiliza como materia prima reciclada para plástico reciclado.

**(Película estratificada)**

La película estratificada que es objeto del presente método de separación y recuperación no está particularmente limitada y es una película estratificada laminada y adherida con un adhesivo reactivo, que se utiliza para el envasado de alimentos o artículos para el hogar. Sin embargo, no hace falta decir que también se puede separar en películas de una sola capa individuales una película estratificada laminada y adherida con un adhesivo no reactivo, por ejemplo, un adhesivo de resina termoplástica o una película estratificada obtenida por fusión en caliente mediante un método de laminación por extrusión, mediante el método de separación y recuperación de la presente invención. Es decir, una característica de la presente invención es que una película estratificada que tiene una variedad de tipos de capas de resina descartadas por el reciclaje se puede tratar en conjunto sin necesidad de una reclasificación particular.

La película estratificada que se sumerge en la solución de morfolina en la etapa 1 se puede someter a la etapa de inmersión en la forma que tiene la película estratificada después de ser descartada y recuperada para reciclar, pero la película estratificada se corta preferiblemente hasta cierto punto ya que la película estratificada se puede separar y recuperar de manera eficaz. Específicamente, se ilustran un método en el que la película estratificada se corta en virutas y un método en el que la película estratificada se corta en forma de tira, y es preferible cortar la película estratificada de modo que la sección transversal de una película multicapa entre en contacto con una solución tanto como sea posible.

En la película estratificada laminada y adherida con el adhesivo reactivo, que es el objeto del presente método de separación y recuperación, a menudo se lamina una capa adhesiva elaborada a partir del adhesivo reactivo entre al menos dos capas de película de resina o entre la película de resina y una lámina metálica o una capa de película depositada. Específicamente, en la película estratificada, cuando la capa de película de resina está representada por (F), una capa de lámina metálica de la lámina metálica o la capa de película depositada está representada por (M), y la capa adhesiva del adhesivo reactivo está representada por (AD), las siguientes constituciones pueden considerarse como los aspectos específicos de la película estratificada, pero no hace falta decir que la película estratificada no se limita a ellos.

(F) / (AD) / (F), (F) / (AD) / (F) / (AD) / (F), (F) / (AD) / (M) / (AD) / (F), (F) / (AD) / (M), (F) / (AD) / (F) / (AD) / (M) / (AD) / (F), (F) / (AD) / (M) / (AD) / (F) / (AD) / (F), (M) / (AD) / (M), (M) / (AD) / (F) / (AD) / (M), (AD) / (F) / (AD) / (M), (AD) / (F) / (AD) / (F) / (AD), y similares.

Hay un caso en el que la película estratificada, que es el objeto del presente método de separación y recuperación, tiene adicionalmente una capa de papel, una capa de absorción de oxígeno, una capa de revestimiento de anclaje, una capa de impresión o similar.

Cuando se clasifica de acuerdo con los roles requeridos, la capa de película de resina (F) funciona como una capa de película de sustrato (F1), una capa de sellado (F2) que sirve como una porción de termosellado en el momento de formar un material de envasado, y similares.

Por ejemplo, como película de resina que se convierte en la capa de película sustrato (F1), por ejemplo, se pueden ilustrar películas que contienen un pigmento de una capa K tales como películas basadas en poliolefinas tales como polietileno de baja densidad, polietileno de alta densidad, polietileno lineal de baja densidad, polipropileno estirado biaxialmente (OPP) y polipropileno no estirado (CPP); películas basadas en poliésteres tales como tereftalato de polietileno (PET) y tereftalato de polibutileno; películas basadas en poliamidas tales como nailon 6, nailon 6,6 y meta-xileno adipamida (N-MXD6); películas biodegradables tales como ácido poliláctico; películas basadas en poliacrilonitrilo; películas poli(met)acrílicas; películas basadas en poliestireno; películas basadas en policarbonato; películas basadas en sustancia saponificada de copolímero de etileno-acetato de vinilo (EVOH); películas basadas en poli(alcohol vinílico); y poli(cloruro de vinilideno). En cuanto a estas películas, también se puede utilizar una película depositada transparente sobre la que se deposita alúmina, sílice o similares.

Además, hay un caso en el que se realiza una variedad de tratamientos superficiales tales como un tratamiento a la llama, un tratamiento de descarga de corona y un tratamiento químico utilizando una imprimación en una superficie del material de la película.

Como película de polímero flexible que se convierte en la capa selladora (F2), es preferible una película basada en poliolefina, tal como una película de polietileno, una película de polipropileno o un copolímero de etileno-acetato de vinilo, una película de una resina de ionómero, una resina EAA, una resina EMAA, una resina EMA, una resina EMMA, una resina biodegradable o similares. Como nombres generales, se ilustran una película de polipropileno no estirado (CPP), película de polipropileno no estirado depositada en aluminio (VMCPP), polietileno lineal de baja densidad (LLDPE), polietileno de baja densidad (LDPE), polietileno de alta densidad (HDPE), una película de polietileno de baja densidad libre de depósito de aluminio (VMLDPE), una película que contiene estos pigmentos y similares. En una superficie de la película se puede realizar una variedad de tratamientos superficiales tales como un tratamiento a la llama, un tratamiento de descarga de corona y un tratamiento químico utilizando una imprimación.

Los ejemplos de la capa de lámina metálica (M) incluyen láminas metálicas que tienen excelente ductilidad, tales como oro, plata, cobre, zinc, hierro, plomo, estaño, una aleación de los mismos, acero, acero inoxidable o aluminio.

Como capa de papel, se ilustran papel natural, papel sintético y similares. También hay un caso en el que la primera y segunda capas de sellado están formadas del mismo material que la capa de sellado.

- 5 También hay un caso en el que "otras capas" contienen aditivos o estabilizadores bien conocidos, tales como un agente antiestático, una capa adhesiva no reactiva, un agente de recubrimiento de fácil adherencia, un plastificante, un lubricante y un antioxidante.

10 En el método de separación y recuperación de la presente descripción, las películas estratificadas laminadas con un adhesivo no reactivo, tal como una emulsión acuosa, se recuperan fácilmente y, en particular, el método muestra el efecto de las películas estratificadas laminadas con un adhesivo reactivo que no se pueden recuperar hábilmente por otros métodos bien conocidos de separación y recuperación.

El efecto es exhibido particularmente para los denominados adhesivos reactivos de tipo de dos líquidos que contienen una composición de poliisocianato y una composición de polioliol, y por lo tanto son preferibles los adhesivos reactivos de tipo de dos líquidos.

#### 15 **(Adhesivo reactivo: composición de poliisocianato)**

La composición de poliisocianato que se utiliza en los adhesivos reactivos habituales es una composición que contiene un compuesto poliisocianato como componente principal, y se puede utilizar sin limitaciones particulares cualquier compuesto poliisocianato siempre que se sepa que los compuestos poliisocianato se utilizan para adhesivos reactivos. Los ejemplos de compuestos poliisocianato específicos incluyen, por ejemplo, poliisocianatos que tienen una estructura aromática en la estructura molecular, tales como diisocianato de tolueno, diisocianato de difenilmetano, diisocianato de difenilmetano polimérico, diisocianato de 1,5-naftaleno, triisocianato de trifenilmetano y diisocianato de xilileno, compuestos en los que algunos de los grupos isocianato (grupos NCO) de estos poliisocianatos se modifican con carbodiimida; poliisocianatos que tienen una estructura alicíclica en la estructura molecular tales como diisocianatos de isoforona, isocianato de 4,4'-metileno-bis(ciclohexilo) y 1,3-(isocianatometil)ciclohexano, poliisocianatos alifáticos lineales tales como diisocianato de 1,6-hexametileno, diisocianato de 1,5-pentametileno, diisocianato de lisina y diisocianato de trimetilhexametileno, y compuestos en los que algunos de los grupos NCO de estos poliisocianatos están modificados con carbodiimida; cuerpos de isocianurato de la variedad de poliisocianatos; cuerpos de alofanato derivados de la variedad de poliisocianatos; cuerpos de piezas derivados de la variedad de poliisocianatos; cuerpos de aductos obtenidos por la modificación con trimetilolpropano de la variedad de poliisocianatos; poliisocianatos que son los productos de reacción entre la variedad de poliisocianatos y un componente polioliol descrito a continuación; y similares.

#### 30 **(Adhesivo reactivo: composición de polioliol)**

La composición de polioliol que se utiliza en los adhesivos reactivos habituales es una composición que contiene un compuesto polioliol como componente principal, y se puede utilizar cualquier compuesto polioliol sin limitaciones particulares siempre que se sepa que los compuestos polioliol se utilizan para adhesivos reactivos. Como ejemplos de compuestos polioliol específicos se pueden ilustrar, por ejemplo, glicoles tales como etilenglicol, propilenglicol, 1,3-propanodiol, 1,4-butanodiol, 1,5-pentanodiol, 3-metil-1,5-pentanodiol, 1,6-hexanodiol, neopentilglicol, metilpentanodiol, dimetilbutanodiol, butiletilpropanodiol, dietilenglicol, trietilenglicol, tetraetilenglicol, dipropilenglicol, tripropilenglicol, bishidroxietoxibenceno, 1,4-ciclohexanodiol, 1,4-ciclohexanodimetanol y trietilenglicol; alcoholes alifáticos trifuncionales o tetrafuncionales tales como glicerina, trimetilolpropano y pentaeritritol; bisfenoles tales como bisfenol A, bisfenol F, bisfenol A hidrogenado y bisfenol F hidrogenado; dioles díméricos o polioles poliméricos seleccionados entre poliéster polioliol, poliéter polioliol, poliuretano polioliol, poliéter éster polioliol, poliéster (poliuretano) polioliol, poliéter (poliuretano) polioliol, poliesteramida polioliol, polioliol acrílico, policarbonato polioliol, polihidroxialcano, aceite de ricino o mezclas de los mismos.

45 Además, existe un caso en el que, en el adhesivo reactivo, se utilizan aditivos tales como un pigmento, un agente de acoplamiento de silano, un agente de acoplamiento tal como un agente de acoplamiento basado en titanato o un agente de acoplamiento basado en aluminio, un promotor de la adherencia tal como una resina epoxídica, un agente de nivelación, partículas finas inorgánicas tales como sílice coloidal o sol de alúmina, partículas finas orgánicas basadas en poli(metacrilato de metilo), un agente antiespumante, un agente antidesgaste, un dispersante húmedo, un modificador de viscosidad, un absorbente ultravioleta, un agente inactivador de metales, un agente de descomposición de peróxido, un retardante de llama, un agente de refuerzo, un plastificante, un lubricante, un agente antioxidante, un agente blanqueador fluorescente, un absorbente inorgánico de rayos de calor, un agente ignífugo, un agente antiestático y un agente deshidratante.

55 Además, como adhesivo reactivo, existe un adhesivo para laminación en seco diluido con un disolvente orgánico altamente soluble para dilución, un adhesivo para laminación sin disolvente que casi no contiene disolvente orgánico para dilución, un adhesivo acuoso para el cual el diluyente es agua, y similares, y todos los adhesivos se pueden

5 exfoliar en el método de separación y recuperación de la presente invención. Los ejemplos específicos del disolvente orgánico altamente soluble para la dilución incluyen tolueno, xileno, cloruro de metileno, tetrahidrofurano, acetato de metilo, acetato de etilo, acetato de n-butilo, acetona, metiletilcetona (MEK), ciclohexanona, toluol, n-hexano, ciclohexano, y similares. Entre estos, el tolueno, el xileno, el cloruro de metileno, el tetrahidrofurano, el acetato de metilo y el acetato de etilo son particularmente conocidos como disolventes orgánicos altamente solubles. Para el adhesivo acuoso, se puede utilizar agua o un disolvente orgánico que tenga afinidad con el agua como disolvente de dilución.

10 En el adhesivo reactivo, con respecto a la razón de mezcla entre la composición de poliisocianato y la composición de poliol, normalmente, la razón equivalente [grupo isocianato/grupo hidroxilo] de un grupo isocianato en la composición de poliisocianato con respecto a un grupo hidroxilo en la composición de poliol es de 1,0 a 5,0 en muchos casos en términos de la razón de mezcla que se recomienda para los adhesivos reactivos disponibles en el mercado. No hace falta decir que, en algunos casos, el adhesivo reactivo todavía se utiliza con la razón de mezcla fuera del rango descrito anteriormente.

15 En las películas estratificadas laminadas y adheridas con el adhesivo reactivo, el adhesivo reactivo se mezcla, por ejemplo, y después se aplica a una primera película de plástico, a continuación, se lamina una segunda película de plástico sobre la superficie recubierta y después se somete el adhesivo reactivo a una etapa de envejecimiento o similar, por medio de lo cual el adhesivo reactivo se cura y entrecruza en muchos casos.

20 Además, en la película estratificada, existe un caso en el que, además del adhesivo, se proporciona una capa de tinta de impresión para indicar un nombre de producto o similar o impartir decoración. Para la capa de tinta de impresión, se utiliza una máquina de impresión por huecograbado, una máquina de impresión flexográfica, una máquina de impresión offset, una máquina de impresión por chorro de tinta o similar, y se imprime en muchos casos una tinta de impresión de tipo disolvente orgánico, una tinta acuosa o curable por rayos de energía activa. Entre éstas, la tinta que se utiliza más a menudo para películas con capas de plástico, tales como aquellas para el envasado de alimentos, es una tinta de huecograbado o una tinta flexográfica y, en la presente invención, la capa de tinta de impresión también se puede exfoliar como se describe anteriormente.

**(Tinta de impresión)**

Una composición típica de la tinta de impresión, tal como la tinta de huecograbado o la tinta flexográfica, es una combinación de una resina aglutinante, un colorante, un disolvente, tal como un disolvente orgánico o un disolvente acuoso, un aditivo y similares.

30 Los ejemplos de la resina aglutinante incluyen una resina basada en celulosa tal como nitrocelulosa soluble, una resina de uretano, una resina de poliamida, un copolímero de cloruro de vinilo/acetato de vinilo, una resina basada en colofonia y una sustancia modificada de la misma, una resina de cetona, una resina basada en celulosa, una resina de poliéster, una resina de poliamida, una resina acrílica y similares, y estas resinas aglutinantes se pueden combinar y utilizar apropiadamente. Entre estas, se combinan apropiadamente y se utilizan en muchos casos una resina basada en celulosa tal como nitrocelulosa soluble, una resina de uretano, una resina de poliamida, un copolímero de cloruro de vinilo/acetato de vinilo y similares.

40 Además, los ejemplos del colorante incluyen pigmentos y tintes orgánicos e inorgánicos que se utilizan para tinta, pintura, agentes de registro y similares ordinarios. Los ejemplos de pigmentos orgánicos incluyen los basados en azo, basados en ftalocianina, basados en antraquinona, basados en perileno, basados en perinona, basados en quinacridona, basados en tioíndigo, basados en dioxazina, basados en isoindolinona, basados en quinoftalona, basados en azometina-azo, basados en dictopirrolpirrol, basados en isoindolina y otros pigmentos, y los ejemplos de pigmentos inorgánicos incluyen negro de humo, óxido de titanio, óxido de zinc, sulfuro de zinc, sulfato de bario, carbonato de calcio, óxido de cromo, sílice, colcótar, aluminio, mica), y similares. Además, se ilustra un pigmento fotoluminiscente (METASHINE; Nippon Sheet Glass Co., Ltd.) obtenido mediante el recubrimiento de escamas de vidrio o escamas en trozos como material base con metal u óxido de metal.

50 Como disolvente, los ejemplos del disolvente orgánico incluyen un disolvente orgánico aromático, un disolvente basado en cetona tal como acetona, metiletilcetona o metilisobutilcetona, un disolvente basado en éster tal como acetato de etilo, acetato de n-propilo, acetato de butilo, acetato de éter monometílico de propilenglicol y un disolvente basado en alcohol tal como n-propanol, isopropanol, n-butanol y éter monometílico de propilenglicol. Además, los ejemplos del disolvente acuoso incluyen un disolvente que contiene agua como componente principal y un disolvente basado en alcohol soluble en agua o similar mezclado con el mismo.

Los ejemplos del aditivo incluyen un pigmento extensor, un dispersante de pigmento, un agente de nivelación, un agente antiespumante, una cera, un plastificante, un inhibidor de bloqueo, un absorbente de infrarrojos, un absorbente de ultravioleta, una fragancia, un retardante de llama y similares.

55 Además, existe una tinta cuya dureza aumenta al agregar adicionalmente un agente de entrecruzamiento o un agente quelante para entrecruzar la capa de tinta de impresión.

5 Como se describió anteriormente, se supone que la solución de morfolina que se utiliza en el presente método de separación y recuperación actúa en la interfase entre la película estratificada y el adhesivo o la tinta de impresión para reducir significativamente la fuerza adhesiva, provocando así la exfoliación interfacial. Paralelamente, la solución de morfolina también tiene una alta solubilidad y, por lo tanto, disuelve la capa de tinta de impresión no entrecruzada. Además, incluso en el caso de que la capa de tinta de impresión esté entrecruzada, dado que en la presente invención se provoca la exfoliación de la interfase, es posible separar y recuperar eficazmente la película estratificada en un corto período de tiempo.

### Ejemplos

10 A continuación, se describirán con más detalle el contenido y el efecto de la presente invención utilizando ejemplos. Además, a continuación, se describirán las películas, tintas de impresión, adhesivos reactivos y disolventes orgánicos que se utilizaron como materias primas en cada uno de los ejemplos y ejemplos comparativos.

#### (Películas utilizadas para películas estratificadas)

15 OPP: Película de polipropileno estirado biaxialmente de 20 µm  
 PET: Película de tereftalato de polietileno de 12 µm  
 OPA: Película de poliamida (nailon) de 15 µm  
 CPP: Película de polipropileno no estirado de 35 µm  
 LLDPE: Película de polietileno de baja densidad lineal no estirado de 60 µm  
 VMCPP: Película de polipropileno no estirado depositado en aluminio de 25 µm  
 AL: Papel de aluminio de 9 µm

#### 20 (Tinta de impresión)

Tinta de huecograbado para impresión posterior tipo disolvente  
 Tinta 1: FINART R507 color primario índigo / R794S blanco fabricada por DIC Graphics Corporation  
 Tinta de huecograbado de impresión frontal de tipo disolvente  
 25 Tinta 2: GROSSA R507 color primario índigo / R794S blanco fabricada por DIC Graphics Corporation  
 Tinta flexográfica de impresión posterior acuosa  
 Tinta 3: MARING ROSS R507 color primario índigo / R793 blanco fabricado por DIC Graphics Corporation

#### (Adhesivos reactivos)

30 Adhesivos tipo disolvente  
 Ad1: DICDRY LX-401A / SP-60 fabricado por DIC Graphics Corporation  
 Ad2: DICDRY LX-500 / KW-75 fabricado por DIC Graphics Corporation  
 Adhesivo sin disolventes  
 Ad3: DICDRY 2K-SF-400A/HA-400B fabricado por DIC Graphics Corporation  
 (Adhesivo acuoso no reactivo)  
 35 Adhesivo de emulsión acuosa  
 Ad4: Eportal CF701 fabricado por BASF

#### (Soluciones de morfolina)

40 "Solución M" de morfolina: (fabricada por Kanto Kagaku, Reactivo de primer grado)  
 Solución acuosa de hidróxido de sodio "solución SH": Una solución acuosa al 5% en masa se ajustó disolviendo hidróxido de sodio (reactivo de primer grado) fabricado por Wako Pure Chemical Industries, Ltd. en agua de intercambio iónico.

#### (Método para producir películas estratificadas)

45 Las películas estratificadas se produjeron realizando la impresión sobre películas objetivo mediante un método de impresión y a continuación, laminando juntas las películas objetivo mediante un método de laminación. Las constituciones de las capas de las películas, los adhesivos reactivos y los tipos de tintas de impresión se determinaron de acuerdo con las combinaciones de la Tabla 1.

#### <Método de impresión>

50 Cada una de las tintas de huecograbado y la tinta flexográfica, que eran las tintas de impresión, se extendieron sobre una película "Película 1" utilizando un dispositivo de prueba.

**<Método de laminación>**

5 Se aplicó un adhesivo reactivo "Ad" con un laminador a la superficie de la película "Película 1" sobre la que se había extendido la tinta de impresión o la superficie opuesta a la superficie extendida de tinta de impresión de manera que la cantidad de película de recubrimiento alcanzó los 3 g/m<sup>2</sup> en cuanto al contenido sólido, y la película "Película 1" se laminó con una película "Película 2". Se provocó una reacción de envejecimiento en la película estratificada laminada a 40°C durante 72 horas. En el caso de una constitución de tres capas, las etapas se repitieron para obtener películas estratificadas "LAM1" a "LAM6". Las velocidades de mezcla de los adhesivos reactivos "Ad" utilizados fueron las que se describe a continuación.

- 10 Ad1: DICDRY LX401A / SP-60 = 1/1  
 Ad2: DICDRY LX-500 / KW75 = 10/1  
 Ad3: DICDRY 2K-SF-400A / HA-400B = 100/50  
 Ad4: Eportal CF701 = 100

[Tabla 1]

Configuración de película estratificada	•Lado de la superficie exterior ←			→ lado de la superficie interior			
	Tinta	Película1	Tinta	Ad	Película2	Ad	Película3
LAM1		PET	Tinta1	Ad1	LLDPE		
LAM2		PET	Tinta1	Ad2	VMCPP		
LAM3		OPA	Tinta1	Ad3	LLDPE		
LAM4	Tinta2	OPP		Ad4	CPP		
LAM5		OPP	tinta3	Ad3	CPP		
LAM6		PET	Tinta1	Ad2	Alabama	Ad2	CPP

\* En la tabla, "lado de la superficie exterior" se refiere a una superficie de la película estratificada opuesta a una superficie que entra en contacto con un contenido cuando la película estratificada se utiliza como cuerpo de envasado (una superficie que está en el lado más exterior durante el distribución del producto), y "lado de la superficie interior" se refiere a la superficie que entra en contacto con el contenido cuando la película estratificada se utiliza como cuerpo de envasado.

15

**(Ejemplos)**

**(Método para separar y recuperar la película estratificada, Etapa 1)**

Las películas estratificadas "LAM1" a "LAM6" se cortaron en tamaños de 10 mm × 10 mm para obtener piezas de prueba. Se realizó una prueba de exfoliación en estas piezas de prueba de la Etapa 1-1 a la Etapa 1-8.

- 20 Etapa 1-1: Un tratamiento de agitación en la solución M a 30°C  
 Etapa 1-2: Un tratamiento de agitación en la solución M a 90°C  
 Etapa 1-3: Un tratamiento de agitación en una solución de la solución M / agua de intercambio iónico (1/1) a 70°C  
 Etapa 1-4: Un tratamiento de agitación en una solución de la solución M / solución de SH (1/1) a 70°C  
 25 Etapa 1-5: Un tratamiento sobre una solución de la solución M / solución de SH (1/1) con ondas ultrasónicas a 60°C  
 Etapa 1-6: La solución M se agitó a 50°C, a continuación, se retiró la pieza de prueba y la solución SH se agitó a 50°C.  
 Etapa 1-7: Un tratamiento de agitación en la solución M a 50°C y a continuación, un tratamiento de agitación  
 30 en el agua de intercambio iónico a 70°C  
 Etapa 1-8: Un tratamiento de agitación en acetato de etilo a 50°C

**(Método para separar y recuperar la película estratificada, Etapa 2)**

Después de la etapa 1, las películas se separaron del líquido mediante un método de filtración, se retiraron, se lavaron con agua y a continuación, se secaron a 50°C.

- 35 Después de eso, se observó el estado de exfoliación de las películas. Para la película multicapa que incluía la película depositada en aluminio, se confirmó el resto de un átomo de aluminio en la película con rayos X fluorescentes en la superficie exfoliada.

La Tabla 2 y la Tabla 3 muestran los resultados después del método de separación y recuperación. En los ejemplos, la solución de morfolina que tenía una concentración de morfolina del 50% en masa o más que se utilizó en la Etapa 1-1 a la Etapa 1-7 fue capaz de exfoliar todas las películas estratificadas en películas de una sola capa que constituyeron las capas respectivas. de las películas estratificadas. Además, no quedó ninguna capa de tinta sobre las películas de una sola capa.

5

Entre los Ejemplos 9 a 13 en los que se utilizó la película estratificada que tenía una capa depositada en aluminio, los Ejemplos 9 y 13 son ejemplos en los que se usó la solución de morfolina en el Etapa 1-3 que era una mezcla disolvente de morfolina y agua de intercambio iónico. En estos ejemplos, fue posible aislar las películas de una sola capa que constituían las respectivas capas de las películas estratificadas, pero las capas depositadas en aluminio permanecieron en las películas. Por otra parte, los Ejemplos 10 a 12 son ejemplos de la Etapa 1-4 y Etapa 1-5 en las que se utilizó una mezcla disolvente de morfolina e hidróxido de sodio o la Etapa 1-6 en las que se realizó el tratamiento de agitación con la solución de morfolina y a continuación, se realizó el tratamiento con la solución acuosa de hidróxido de sodio y, en todos estos ejemplos, fue posible exfoliar hasta las capas depositadas en aluminio de las películas.

10

15 Por otro lado, en el Ejemplo Comparativo 1, no fue posible exfoliar el adhesivo.

[Tabla 2]

Tabla 2	Ejemplo 1	Ejemplo 2	Ejemplo 3	Ejemplo 4	Ejemplo 5	Ejemplo 6	Ejemplo 7	Ejemplo 8
Película multicapa	LAM1	LAM1	LAM1	LAM2	LAM3	LAM4	LAM5	LAM6
Etapa 1-1	Exfoliada							
Etapa 1-2		Exfoliada		Exfoliada	Exfoliada	Exfoliada	Exfoliada	Exfoliada
Etapa 1-3			Exfoliada					
Etapa 1-4								
Etapa 1-5								
Etapa 1-6								
Etapa 1-7								
Etapa 1-8								

[Tabla 3]

Tabla 3	Ejemplo 9	Ejemplo 10	Ejemplo 11	Ejemplo 12	Ejemplo 13	Ejemplo comparativo 1
película multicapa	LAM2	LAM2	LAM2	LAM2	LAM2	LAM1
Etapa 1-1						
Etapa 1-2						
Etapa 1-3	Exfoliada*1					
Etapa 1-4		Exfoliada*2				
Etapa 1-5			Exfoliada*2			
Etapa 1-6				Exfoliada*2		
Etapa 1-7					Exfoliada*1	
Etapa 1-8						No exfoliada

\* 1 Queda capa depositada en aluminio  
 \* 2 Sin capa depositada en aluminio

**REIVINDICACIONES**

1. Un método para separar y recuperar una película estratificada laminada y adherida con un adhesivo, comprendiendo el método:

5 una etapa 1 de inmersión de la película estratificada en una solución de morfolina que tiene una concentración de morfolina de 50% en masa o más mientras se agita la película estratificada con calentamiento de 20°C a 90°C o se hace vibrar ultrasónicamente la película estratificada; y  
una etapa 2 de recuperación de películas de una sola capa separadas que constituyen las capas respectivas de la película estratificada,  
10 en donde el adhesivo es un adhesivo reactivo que contiene una composición de poliisocianato y una composición de poliol.

2. El método para separar y recuperar una película estratificada según la reivindicación 1, en donde la película estratificada tiene una capa de tinta de impresión.