

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2007-500769  
(P2007-500769A)

(43) 公表日 平成19年1月18日(2007.1.18)

(51) Int.C1.	F 1	テーマコード (参考)	
<b>CO8G 63/688</b> (2006.01)	CO8G 63/688	Z A B	3 E 033
<b>CO8L 67/02</b> (2006.01)	CO8L 67/02	Z B P	3 E 086
<b>CO8L 101/00</b> (2006.01)	CO8L 101/00		4 F 210
<b>DO1F 6/84</b> (2006.01)	DO1F 6/84	3 O 1 H	4 J 002
<b>DO1F 6/92</b> (2006.01)	DO1F 6/84	3 O 5 B	4 J 029

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 82 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2006-522057 (P2006-522057)	(71) 出願人	390023674 イー・アイ・デュポン・ドゥ・ヌムール・ アンド・カンパニー E. I. DU PONT DE NEMO URS AND COMPANY
(86) (22) 出願日	平成16年7月28日 (2004.7.28)		
(85) 翻訳文提出日	平成18年3月31日 (2006.3.31)		
(86) 國際出願番号	PCT/US2004/024463		
(87) 國際公開番号	W02005/012390		
(87) 國際公開日	平成17年2月10日 (2005.2.10)		
(31) 優先権主張番号	10/631,880		
(32) 優先日	平成15年7月31日 (2003.7.31)		
(33) 優先権主張国	米国(US)	(74) 代理人	100077481 弁理士 谷 義一
		(74) 代理人	100088915 弁理士 阿部 和夫

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルおよびそれから製造される造形品

## (57) 【要約】

スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルおよびそれから製造される物品、ならびにスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルおよび物品の製造方法が提供される。スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルから製造することができる物品には、フィルム、コーティングおよびラミネートが含まれる。組成物および物品の幾つかはバイオ堆肥化できる。フィルムはさらに、シート、例えばサンドイッチ・ラップなどの食品パッケージング、熱成形容器、ならびに例えば、フィルムおよび他の基材用のコーティングのような造形品を形成するために使用することができる。スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルは、芳香族ジカルボン酸成分、脂肪族ジカルボン酸成分、1,4-ブタンジオールよりなる第1グリコール成分、第2グリコール成分、および任意選択的に多官能性分岐剤から形成される脂肪族-芳香族コポリエステルから製造されるコポリエステルから誘導される。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

酸成分、グリコール成分、および100モル%酸成分を基準にして0～約5.0モルパーセントの、多官能性の酸、グリコールまたはそれらの混合物から選択される多官能性分岐剤を含むスルホン化脂肪族・芳香族コポリエステルであって、

前記酸成分が

a. 100モルパーセント全酸成分を基準にして約94.9～約40.0モルパーセントの芳香族ジカルボン酸成分、および

b. 100モルパーセント全酸成分を基準にして約5.0～約50.0モルパーセントの脂肪族ジカルボン酸成分、および

c. 100モルパーセント全酸成分を基準にして約0.1～約5.0モルパーセントのスルホネート成分

を含み、かつ、

前記グリコール成分が

a. 第1グリコール成分として100モルパーセント全グリコール成分を基準にして約100～約90.0モルパーセントの1,4-ブタンジオール、および

b. 100モルパーセント全グリコール成分を基準にして0～約5.0モルパーセントの1つまたは複数の第2グリコール成分

を含むことを特徴とするスルホン化脂肪族・芳香族コポリエステル。

## 【請求項 2】

トリフルオロ酢酸：ジクロロメタン溶媒系の50：50溶液中のコポリエステルの0.5パーセント溶液について室温で測定した際に、少なくとも0.15の固有粘度を有することを特徴とする請求項1に記載のスルホン化脂肪族・芳香族コポリエステル。

## 【請求項 3】

前記固有粘度が少なくとも0.35dL/gであることを特徴とする請求項2に記載のスルホン化脂肪族・芳香族コポリエステル。

## 【請求項 4】

前記第2グリコール成分がエチレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,6-ヘキサンジオール、1,8-オクタンジオール、1,10-デカンジオール、1,12-ドデカンジオール、1,14-テトラデカンジオール、1,16-ヘキサデカンジオール、ダイマージオール、4,8-ビス(ヒドロキシメチル)-トリシクロ[5.2.1.0]2.6]デカン、1,4-シクロヘキサンジメタノール、イソソルビド、ジ(エチレングリコール)、トリ(エチレングリコール)、約500～約4000の分子量範囲のポリ(アルキレンエーテル)グリコール、およびそれらから誘導される混合物よりなる群から選択されることを特徴とする請求項1に記載のスルホン化脂肪族・芳香族コポリエステル。

## 【請求項 5】

前記スルホネート成分が5-スルホイソフタル酸の金属塩およびジメチル5-スルホイソフタレートの金属塩よりなる群から選択されることを特徴とする請求項1に記載のスルホン化脂肪族・芳香族コポリエステル。

## 【請求項 6】

前記芳香族ジカルボン酸成分がテレフタル酸、ジメチルテレフタレート、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート、ビス(3-ヒドロキシプロピル)テレフタレート、ビス(4-ヒドロキシブチル)テレフタレート、イソフタル酸、ジメチルイソフタレート、ビス(2-ヒドロキシエチル)イソフタレート、ビス(3-ヒドロキシプロピル)イソフタレート、ビス(4-ヒドロキシブチル)イソフタレート、2,6-ナフタレンジカルボン酸、ジメチル-2,6-ナフタレート、2,7-ナフタレンジカルボン酸、ジメチル-2,7-ナフタレート、3,4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸、ジメチル-3,4'-ジフェニルエーテルジカルボキシレート、4,4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸、ジメチル-4,4'-ジフェニルエーテルジカルボキシレート、3,4'-ジフェニ

10

20

30

40

50

ルスルフィドジカルボン酸、ジメチル-3,4'-ジフェニルスルフィドジカルボキシレート、4,4'-ジフェニルスルフィドジカルボン酸、ジメチル-4,4'-ジフェニルスルフィドジカルボキシレート、3,4'-ジフェニルスルホンジカルボン酸、ジメチル-3,4'-ジフェニルスルホンジカルボキシレート、4,4'-ジフェニルスルホンジカルボキシレート、3,4'-ベンゾフェノンジカルボン酸、ジメチル-3,4'-ベンゾフェノンジカルボキシレート、4,4'-ベンゾフェノンジカルボン酸、ジメチル-4,4'-ベンゾフェノンジカルボキシレート、1,4-ナフタレンジカルボン酸、ジメチル-1,4-ナフタレート、4,4'-メチレンビス(安息香酸)、ジメチル-4,4'-メチレンビス(ベンゾエート)、およびそれらから誘導される混合物よりなる群から選択されることを特徴とする請求項1に記載のスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステル。10

【請求項7】

前記酸成分が約80~約50モルパーセントの前記芳香族ジカルボン酸成分を含むことを特徴とする請求項1に記載のスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステル。

【請求項8】

前記脂肪族ジカルボン酸成分がシュウ酸、ジメチルオキサレート、マロン酸、ジメチルマロネート、コハク酸、ジメチルスクシネート、メチルコハク酸、グルタル酸、ジメチルグルタレート、ビス(2-ヒドロキシエチル)グルタレート、ビス(3-ヒドロキシプロピル)グルタレート、ビス(4-ヒドロキシブチル)グルタレート、2-メチルグルタル酸、3-メチルグルタル酸、アジピン酸、ジメチルアジペート、ビス(2-ヒドロキシエチル)アジペート、ビス(3-ヒドロキシプロピル)アジペート、ビス(4-ヒドロキシブチル)アジペート、3-メチルアジピン酸、2,2,5,5-テトラメチルヘキサン二酸、ピメリン酸、スペリン酸、アゼライン酸、ジメチルアゼレート、セバシン酸、1,1-1-ウンデカンジカルボン酸、1,10-デカンジカルボン酸、ウンデカンニ酸、1,1-2-ドデカンジカルボン酸、ヘキサデカンニ酸、ドコサンニ酸、テトラコサンニ酸、ダイマー酸、およびそれらから誘導される混合物よりなる群から選択することを特徴とする請求項1に記載のスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステル。20

【請求項9】

前記脂肪族ジカルボン酸成分がコハク酸、ジメチルスクシネート、グルタル酸、ジメチルグルタレート、ビス(2-ヒドロキシエチル)グルタレート、ビス(3-ヒドロキシプロピル)グルタレート、ビス(4-ヒドロキシブチル)グルタレート、アジピン酸、ジメチルアジペート、ビス(2-ヒドロキシエチル)アジペート、ビス(3-ヒドロキシプロピル)アジペート、ビス(4-ヒドロキシブチル)アジペートおよびそれらから誘導される混合物よりなる群から選択することを特徴とする請求項1に記載のスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステル。30

【請求項10】

前記酸成分が約20~約50モルパーセントの前記脂肪族ジカルボン酸成分を含むことを特徴とする請求項1に記載のスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステル。

【請求項11】

前記分岐剤が1,2,4-ベンゼントリカルボン酸、トリメチル-1,2,4-ベンゼントリカルボキシレート、トリス(2-ヒドロキシエチル)-1,2,4-ベンゼントリカルボキシレート、トリス(3-ヒドロキシプロピル)-1,2,4-ベンゼントリカルボキシレート、トリス(4-ヒドロキシブチル)-1,2,4-ベンゼントリカルボキシレート、1,2,4-ベンゼントリカルボン酸無水物、1,3,5-ベンゼントリカルボン酸、1,2,4,5-ベンゼンテトラカルボン酸、1,2,4,5-ベンゼンテトラカルボン酸二無水物、3,3',4,4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、1,4,5,8-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、クエン酸、テトラヒドロフラン-2,3,4,5-テトラカルボン酸、1,3,5-シクロヘキサントリカルボン酸、ベンタエリスリトール、グリセロール、2-(ヒドロキシメチル)-1,3-プロパンジオール、2,2-ビス(ヒドロキシメチル)プロピオン酸、およびそれらから誘導される混合40

物よりなる群から選択されることを特徴とする請求項 1 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステル。

【請求項 1 2】

少なくとも約 0 . 15 dL / g の固有粘度を有することを特徴とする請求項 1 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステル。

【請求項 1 3】

少なくとも約 0 . 35 dL / g の固有粘度を有することを特徴とする請求項 1 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステル。

【請求項 1 4】

少なくとも約 0 . 65 dL / g の固有粘度を有することを特徴とする請求項 1 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステル。 10

【請求項 1 5】

フィラーをさらに含むことを特徴とする請求項 1 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステル。

【請求項 1 6】

前記フィラーが第 1 平均粒度を有する第 1 セットの粒子と、第 2 平均粒度を有する第 2 セットの粒子とを含み、かつ、第 2 平均粒度が前記第 1 平均粒度のそれの少なくとも約 2 倍であることを特徴とする請求項 1 5 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステル。 20

【請求項 1 7】

前記フィラーが本質的に約 40 ミクロン未満の平均直径を有する粒子よりなることを特徴とする請求項 1 5 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステル。

【請求項 1 8】

前記フィラーが本質的に約 20 ミクロン未満の平均直径を有する粒子よりなることを特徴とする請求項 1 5 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステル。

【請求項 1 9】

請求項 1 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルと少なくとも 1 つの他のポリマーとを含むことを特徴とするブレンド。

【請求項 2 0】

前記他のポリマーが生分解性であることを特徴とする請求項 1 9 に記載のブレンド。 30

【請求項 2 1】

前記生分解性ポリマーがポリ(ヒドロキシアルカノエート)、ポリカーボネート、ポリ(カブロラクトン)、脂肪族ポリエステル、脂肪族 - 芳香族コポリエステル、脂肪族 - 芳香族コポリエーテルエステル、脂肪族 - 芳香族コポリアミドエステル、スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステル、スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリアミドエステル、およびそれらから誘導される混合物よりなる群から選択されることを特徴とする請求項 2 0 に記載のブレンド。

【請求項 2 2】

前記他のポリマーが非生分解性であることを特徴とする請求項 1 9 に記載のブレンド。

【請求項 2 3】

前記他のポリマーが天然ポリマーであることを特徴とする請求項 1 9 に記載のブレンド。 40

【請求項 2 4】

前記天然ポリマーがデンプンであることを特徴とする請求項 2 3 に記載のブレンド。

【請求項 2 5】

請求項 1 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルから形成されることを特徴とする造形品。

【請求項 2 6】

フィルム、シート、繊維、メルトブローン容器、成形部品、および発泡部品よりなる群から選択されることを特徴とする請求項 2 5 に記載の造形品。 50

**【請求項 27】**

請求項 1 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とするフィルム。

**【請求項 28】**

約 0.025 mm ~ 約 0.15 mm の厚さを有することを特徴とする請求項 27 に記載のフィルム。

**【請求項 29】**

請求項 27 に準ずることを特徴とする配向フィルム。

**【請求項 30】**

二軸配向されていることを特徴とする請求項 29 に記載のフィルム。

**【請求項 31】**

一軸配向されていることを特徴とする請求項 29 に記載のフィルム。

**【請求項 32】**

請求項 1 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含む層を含むことを特徴とする多層フィルム。

**【請求項 33】**

基材と前記基材上のコーティングとを含む物品であって、前記コーティングが請求項 1 に記載の脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とする物品。

**【請求項 34】**

前記コーティングが約 0.2 ~ 約 1.5 ミルの厚さを有することを特徴とする請求項 33 に記載の物品。

**【請求項 35】**

前記コーティングが約 0.5 ~ 約 2 ミルの厚さを有することを特徴とする請求項 33 に記載の物品。

**【請求項 36】**

前記基材が布地、不織布、フォイル、紙、板紙、および金属よりなる群から選択されることを特徴とする請求項 33 に記載の物品。

**【請求項 37】**

請求項 1 のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを上に積層された基材を含むことを特徴とする物品。

**【請求項 38】**

前記基材が紙、板紙、ボール紙、ファイバーボード、セルロース、デンプン、プラスチック、ポリスチレンフォーム、ガラス、金属、ポリマーフォーム、有機フォーム、無機フォーム、有機 - 無機フォーム、およびポリマーフィルムよりなる群から選択されることを特徴とする請求項 37 に記載の物品。

**【請求項 39】**

請求項 37 に記載の物品を含むことを特徴とするパッケージ。

**【請求項 40】**

請求項 1 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とするラップ。

**【請求項 41】**

請求項 1 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とするシート。

**【請求項 42】**

少なくとも約 0.50 mm の厚さを有することを特徴とする請求項 41 に記載のシート。

**【請求項 43】**

請求項 1 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とする繊維。

**【請求項 44】**

10

20

30

40

50

約0.1～約100のデニールを有することを特徴とする請求項43に記載の纖維。

【請求項45】

約0.5～20のデニールを有することを特徴とする請求項43に記載の纖維。

【請求項46】

請求項1に記載のスルホン化脂肪族・芳香族コポリエステルと少なくとも1つの他のポリマーとを含むことを特徴とする纖維。

【請求項47】

前記スルホン化脂肪族・芳香族コポリエステルと1つまたは複数の天然纖維とのブレンドを含むことを特徴とする請求項43に記載の纖維。

【請求項48】

不均一な纖維であることを特徴とする請求項43に記載の纖維。

【請求項49】

請求項15に記載のスルホン化脂肪族・芳香族コポリエステルを含むことを特徴とする発泡品。

【請求項50】

請求項15に記載のスルホン化脂肪族・芳香族コポリエステルから形成されることを特徴とする造形品。

【請求項51】

フィルム、シート、纖維、メルトプローン容器、成形部品、および発泡部品よりなる群から選択されることを特徴とする請求項50に記載の造形品。

【請求項52】

請求項15に記載のスルホン化脂肪族・芳香族コポリエステルを含むことを特徴とするフィルム。

【請求項53】

約0.025mm～約0.15mmの厚さを有することを特徴とする請求項52に記載のフィルム。

【請求項54】

請求項52に準ずることを特徴とする配向フィルム。

【請求項55】

請求項15に記載のスルホン化脂肪族・芳香族コポリエステルを含む層を含むことを特徴とする多層フィルム。

【請求項56】

基材と前記基材上のコーティングとを含む物品であって、前記コーティングが請求項15に記載のスルホン化脂肪族・芳香族コポリエステルを含むことを特徴とする物品。

【請求項57】

請求項15に記載のスルホン化脂肪族・芳香族コポリエステルを上に積層された基材を含むことを特徴とする物品。

【請求項58】

請求項15に記載のスルホン化脂肪族・芳香族コポリエステルを含むことを特徴とするラップ。

【請求項59】

請求項15に記載のスルホン化脂肪族・芳香族コポリエステルを含むことを特徴とするシート。

【請求項60】

請求項19に記載のスルホン化脂肪族・芳香族コポリエステルを含むことを特徴とする発泡品。

【請求項61】

請求項19に記載のスルホン化脂肪族・芳香族コポリエステルから形成されることを特徴とする造形品。

【請求項62】

10

20

30

40

50

フィルム、シート、繊維、メルトブローン容器、成形部品、および発泡部品よりなる群から選択されることを特徴とする請求項 6 1 に記載の造形品。

【請求項 6 3】

請求項 1 9 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とするフィルム。

【請求項 6 4】

約 0 . 0 2 5 m m ~ 約 0 . 1 5 m m の厚さを有することを特徴とする請求項 6 3 に記載のフィルム。

【請求項 6 5】

請求項 6 3 に準ずることを特徴とする配向フィルム。

【請求項 6 6】

請求項 1 9 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含む層を含むことを特徴とする多層フィルム。

【請求項 6 7】

基材と前記基材上のコーティングとを含む物品であって、前記コーティングが請求項 1 9 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とする物品。

【請求項 6 8】

請求項 1 9 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを上に積層された基材を含むことを特徴とする物品。

【請求項 6 9】

請求項 1 9 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とするラップ。

【請求項 7 0】

請求項 1 9 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とするシート。

【請求項 7 1】

請求項 1 9 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とする発泡品。

【請求項 7 2】

請求項 1 9 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルから形成されることを特徴とする造形品。

【請求項 7 3】

フィルム、シート、繊維、メルトブローン容器、成形部品、および発泡部品よりなる群から選択されることを特徴とする請求項 7 2 に記載の造形品。

【請求項 7 4】

請求項 1 9 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とするフィルム。

【請求項 7 5】

約 0 . 0 2 5 m m ~ 約 0 . 1 5 m m の厚さを有することを特徴とする請求項 7 4 に記載のフィルム。

【請求項 7 6】

請求項 7 5 に準ずることを特徴とする配向フィルム。

【請求項 7 7】

請求項 1 9 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含む層を含むことを特徴とする多層フィルム。

【請求項 7 8】

基材と前記基材上のコーティングとを含む物品であって、前記コーティングが請求項 1 9 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とする物品。

【請求項 7 9】

請求項 1 9 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを上に積層された基材を

10

20

30

40

50

含むことを特徴とする物品。

【請求項 8 0】

請求項 1 9 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とするラップ。

【請求項 8 1】

請求項 1 9 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とするシート。

【請求項 8 2】

請求項 2 3 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とする発泡品。

【請求項 8 3】

請求項 2 3 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とする造形品。

【請求項 8 4】

フィルム、シート、繊維、メルトブローン容器、成形部品、および発泡部品よりなる群から選択されることを特徴とする請求項 8 3 に記載の造形品。

【請求項 8 5】

請求項 2 3 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とするフィルム。

【請求項 8 6】

約 0 . 0 2 5 m m ~ 約 0 . 1 5 m m の厚さを有することを特徴とする請求項 8 5 に記載のフィルム。

【請求項 8 7】

請求項 8 5 に準ずることを特徴とする配向フィルム。

【請求項 8 8】

請求項 2 3 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含む層を含むことを特徴とする多層フィルム。

【請求項 8 9】

基材と前記基材上のコーティングとを含む物品であって、前記コーティングが請求項 2 3 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とする物品。

【請求項 9 0】

請求項 2 3 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを上に積層された基材を含むことを特徴とする物品。

【請求項 9 1】

請求項 2 3 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とするラップ。

【請求項 9 2】

請求項 2 3 に記載のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むことを特徴とするシート。

【請求項 9 3】

基材を提供する工程と、前記基材を所望のパッケージ形態に成形する工程と、本質的に酸成分、グリコール成分、および 1 0 0 モル% 酸成分を基準にして 0 ~ 約 5 . 0 モルパーセントの、多官能性の酸、グリコールまたはそれらの混合物から選択される多官能性分岐剤よりなるスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルであって、

前記酸成分が、

a . 1 0 0 モルパーセント全酸成分を基準にして約 9 4 . 9 ~ 約 4 0 . 0 モルパーセントの芳香族ジカルボン酸成分、および

b . 1 0 0 モルパーセント全酸成分を基準にして約 5 . 0 ~ 約 5 0 . 0 モルパーセントの脂肪族ジカルボン酸成分、および

c . 1 0 0 モルパーセント全酸成分を基準にして約 0 . 1 ~ 約 5 . 0 モルパーセントの

10

20

30

40

50

スルホネート成分

を含み、かつ、

前記グリコール成分が、

a. 第1グリコール成分として100モルパーセント全グリコール成分を基準にして約100～約90.0モルパーセントの1,4-ブタンジオール、および

b. 100モルパーセント全グリコール成分を基準にして0～約5.0モルパーセントの1つまたは複数の第2グリコール成分

を含むスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルを提供する工程と、

前記基材を前記スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルで積層してまたはコーティングして前記パッケージを形成する工程と

を含むことを特徴とするパッケージの製造方法。

10

20

30

40

50

【請求項94】

前記基材が紙、板紙、無機フォーム、有機フォーム、および無機-有機フォームよりなる群から選択される材料を含むことを特徴とする請求項93に記載の方法。

【請求項95】

前記パッケージ形態がラッパー、ストレッチラップフィルム、バッグ、カップ、トレー、カートン、ボックス、ボトル、クレート、パッケージングフィルム、ブリストーパックラッパー、スキンパック、および開き容器よりなる群から選択されることを特徴とする請求項93に記載の方法。

【請求項96】

芳香族ジカルボン酸成分、脂肪族ジカルボン酸成分、スルホネート成分、本質的に1,4-ブタンジオールよりなる第1グリコール成分、任意選択的に第2グリコール成分、および任意選択的に多官能性分岐剤を含む反応混合物を提供する工程と、前記芳香族ジカルボン酸成分、前記脂肪族ジカルボン酸成分、前記スルホネート成分、前記第1グリコール成分、前記第2グリコール成分および前記多官能性分岐剤を重合させて酸成分、およびグリコール成分を含むスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルを形成する工程とを含むスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルの製造方法であって、

前記酸成分が、

a. 100モルパーセント全酸成分を基準にして約94.9～約40.0モルパーセントの芳香族ジカルボン酸成分、および

b. 100モルパーセント全酸成分を基準にして約5.0～約50.0モルパーセントの脂肪族ジカルボン酸成分、および

c. 100モルパーセント全酸成分を基準にして約0.1～約5.0モルパーセントのスルホネート成分

を含み、かつ、

前記グリコール成分が、

a. 第1グリコール成分として100モルパーセント全グリコール成分を基準にして約100～約90.0モルパーセントの1,4-ブタンジオール

を含む

ことを特徴とする方法。

【請求項97】

前記ポリエステルのグリコール成分が前記第1グリコール成分および前記第2グリコール成分の合計を基準にして、5.0モルパーセント以下の前記第2グリコール成分を含むような量で前記第2グリコール成分を提供する工程を含むことを特徴とする請求項96に記載の方法。

【請求項98】

前記ポリエステルが前記第1グリコール成分、前記第2グリコール成分、および前記多官能性分岐剤の合計を基準にして、5.0モルパーセント以下の前記多官能性分岐剤を含むような量で前記多官能性分岐剤を提供する工程を含むことを特徴とする請求項96に記載の方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、ある種のスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルに、および該コポリエステルから製造される造形品に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

埋立地に入れられつつある都市固形廃棄物の不適切な処理とプラスチックをはじめとする非分解性材料の都市固形廃棄物流れへの増加しつつある添加とが組み合わされて利用可能な埋立地の数を急激に減らし、かつ、都市固形廃棄物処分のコストを増やしつつある。廃棄物流れの再使用可能な成分のリサイクリングは多くの場合に望ましいが、リサイクリングのコストおよび材料をリサイクルするために必要とされるインフラストラクチャは時々ひどく高くつく。さらに、リサイクリングの枠組みに容易には適合しない幾つかの製品もある。リサイクル可能でない固形廃棄物の堆肥化は、埋立て向け固形廃棄物容量を減らすための、および/または耕地および庭園の肥沃さを改善するために廃棄物から有用な製品を製造する、認められたおよび成長しつつある方法である。かかる堆肥を市場に出すことに対する制限の1つは、フィルムまたは繊維断片のような、分解されないプラスチックによる目に見える汚染である。

## 【0003】

使い捨て製品で有用であり、かつ、廃棄物堆肥化工程に典型的に存在する条件下でより汚染の少ない形へ分解される成分を提供することが望まれる。これらの条件には、約70

以下の、平均55~60範囲の温度、100パーセント相対湿度ほどに高い多湿条件、および数週間から数ヶ月に及ぶ曝露時間が含まれる。堆肥化で好気的に/嫌気的に分解するだけでなく、土壤または埋立地中でも分解し続けるであろう使い捨て成分を提供することはさらに望ましい。水の存在下で、成分はさらに、木のような天然由来有機物で起るよう、バイオガス、バイオマス、液体浸出液へ微生物によって究極的に生分解され得る、低い分子量の断片へ分解することが望ましい。

## 【0004】

生分解性材料が望ましい物品には、フィルムおよびシートが含まれる。生分解性フィルムは周知であり、例えば、可塑化された再生セルロースフィルムを含むバリアフィルムの使用を開示している、米国特許公報(特許文献1)にウイーリキ(Wielicki)によって記載されている。コマーフォード(Comerford)らは、米国特許公報(特許文献2)に、ポリ(ビニルアルコール)のような非生分解性マトリックスと、デンプンのような約40~60重量パーセントの生分解性材料とを含む生分解性フィルムを開示している。

## 【0005】

ポリエステルは生分解性物品での使用について公知である。生分解性ポリエステルは、3つの一般的なクラス:脂肪族ポリエステル、脂肪族-芳香族ポリエステルおよびスルホン化脂肪族-芳香族ポリエステルに属するとして記載することができる。

## 【0006】

スルホン化脂肪族-芳香族ポリエステルは、脂肪族ジカルボン酸と芳香族ジカルボン酸との混合物から誘導されたポリエステルであり、さらに、その中に5-スルホイソフタル酸の塩のようなスルホン化モノマーを組み入れてきた。ヘイルバーガー(Heilberger)は、米国特許公報(特許文献3)で、その中に0.1~10モルパーセントのスルホン化芳香族モノマーを組み入れた溶媒可溶性の線状スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルの水性分散系を開示している。ポップ(Pop)らは、米国特許公報(特許文献4)で、0.1~10モルパーセントのキシリレンスルホン酸塩モノマーを含む繊維形成性スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルを開示している。キブラー(Kibler)らは、米国特許公報(特許文献5)で、2~12.5モルパーセントのスルホン化モノマーを含む線状の水分散性スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルを開示している。

10

20

30

40

50

## 【0007】

ガラハー (Gallaugherr) らは、米国特許公報（特許文献6）で、堆肥化可能なスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルおよびそれから製造されたフィルムを開示している。しかしながら、開示された組成物は、望ましくないほどに低い生分解速度を有する。ワルツエルハン (Wartzelhan) らは、米国特許公報（特許文献7）、米国特許公報（特許文献8）、および米国特許公報（特許文献9）で、ある種のスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステル組成物および基材コーティング、フィルム、およびフォーム向けのそれらの使用を開示している。例示された組成物中に組み入れられた比較的高いレベルの脂肪族ジカルボン酸は、92の結晶融点をもたらす。このように、幾つかの公知のスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステル材料は、ポリエステルの幾つかの最終用途のための、特にフィルムでの、比較的高い融点ならびに比較的高いレベルの結晶性および結晶化速度をはじめとする、特性の所望のバランスを持たない。（特許文献10）に開示されているように、ブレンドが最適化されたフィルム物理的性質を提供するために使用されてきた。当業者が認識するであろうように、ポリマーブレンドの使用は、フィルム、コーティング、およびラミネートを製造するために用いられる方法を必然的に複雑にする。

10

20

30

40

50

## 【0008】

公知のスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルによって所有されるよりも高レベルの結晶性および結晶化速度は、ポリマーフィルムの成形中のフィルム粘着の低下、成形された造形品の製造におけるより速い成形サイクル時間のような、簡略化された製造方法を可能にするであろう。生分解性である、かかる組成物もまた望まれる。

## 【0009】

【特許文献1】米国特許第3,602,225号明細書

【特許文献2】米国特許第3,952,347号明細書

【特許文献3】米国特許第3,563,942号明細書

【特許文献4】米国特許第3,634,541号明細書

【特許文献5】米国特許第3,779,993号明細書

【特許文献6】米国特許第5,171,308号明細書

【特許文献7】米国特許第6,018,004号明細書

【特許文献8】米国特許第6,114,042号明細書

【特許文献9】米国特許第6,201,034号明細書

【特許文献10】国際公開第02/16468 A1号パンフレット

【特許文献11】米国特許第5,164,478号明細書

【特許文献12】米国特許第3,684,766号明細書

【特許文献13】米国特許第4,340,519号明細書

【特許文献14】米国特許第5,171,309号明細書

【特許文献15】米国特許第5,219,646号明細書

【特許文献16】米国特許第4,578,296号明細書

【特許文献17】米国特許第5,527,387号明細書

【特許文献18】米国特許第6,359,050号明細書

【特許文献19】米国特許第5,362,777号明細書

【特許文献20】米国特許第4,372,311号明細書

【特許文献21】米国特許第4,427,614号明細書

【特許文献22】米国特許第4,880,592号明細書

【特許文献23】米国特許第5,525,281号明細書

【特許文献24】カナダ国特許第893,216号明細書

【特許文献25】米国特許第3,456,044号明細書

【特許文献26】米国特許第4,842,741号明細書

【特許文献27】米国特許第6,309,736号明細書

【特許文献28】米国特許第3,748,962号明細書

【特許文献29】米国特許第4,522,203号明細書

- 【特許文献 30】米国特許第 4,734,324 号明細書  
 【特許文献 31】米国特許第 5,261,899 号明細書  
 【特許文献 32】米国特許第 5,849,374 号明細書  
 【特許文献 33】米国特許第 5,849,401 号明細書  
 【特許文献 34】米国特許第 6,312,823 号明細書  
 【特許文献 35】米国特許第 4,698,372 号明細書  
 【特許文献 36】米国特許第 6,045,900 号明細書  
 【特許文献 37】国際公開第 95/16562 号パンフレット  
 【特許文献 38】米国特許第 4,626,252 号明細書  
 【特許文献 39】米国特許第 5,073,316 号明細書  
 【特許文献 40】米国特許第 3,303,628 号明細書  
 【特許文献 41】米国特許第 3,674,626 号明細書  
 【特許文献 42】米国特許第 5,011,735 号明細書  
 【特許文献 43】米国特許第 3,835,618 号明細書  
 【特許文献 44】米国特許第 3,950,919 号明細書  
 【特許文献 45】再発行米国特許第 Re 30,009 号明細書  
 【特許文献 46】米国特許第 4,503,098 号明細書  
 【特許文献 47】米国特許第 5,294,483 号明細書  
 【特許文献 48】米国特許第 5,475,080 号明細書  
 【特許文献 49】米国特許第 5,611,859 号明細書  
 【特許文献 50】米国特許第 5,795,320 号明細書  
 【特許文献 51】米国特許第 6,183,814 号明細書  
 【特許文献 52】米国特許第 6,197,380 号明細書  
 【特許文献 53】米国特許第 3,378,424 号明細書  
 【特許文献 54】米国特許第 4,117,971 号明細書  
 【特許文献 55】米国特許第 4,168,676 号明細書  
 【特許文献 56】米国特許第 4,180,844 号明細書  
 【特許文献 57】米国特許第 4,211,339 号明細書  
 【特許文献 58】米国特許第 4,283,189 号明細書  
 【特許文献 59】米国特許第 5,078,313 号明細書  
 【特許文献 60】米国特許第 5,281,446 号明細書  
 【特許文献 61】米国特許第 5,456,754 号明細書  
 【特許文献 62】米国特許第 3,924,013 号明細書  
 【特許文献 63】米国特許第 4,147,836 号明細書  
 【特許文献 64】米国特許第 4,391,833 号明細書  
 【特許文献 65】米国特許第 4,595,611 号明細書  
 【特許文献 66】米国特許第 4,957,578 号明細書  
 【特許文献 67】米国特許第 5,942,295 号明細書  
 【特許文献 68】米国特許第 4,836,400 号明細書  
 【特許文献 69】米国特許第 3,137,592 号明細書  
 【特許文献 70】米国特許第 4,673,438 号明細書  
 【特許文献 71】米国特許第 4,863,655 号明細書  
 【特許文献 72】米国特許第 5,035,930 号明細書  
 【特許文献 73】米国特許第 5,043,196 号明細書  
 【特許文献 74】米国特許第 5,095,054 号明細書  
 【特許文献 75】米国特許第 5,300,333 号明細書  
 【特許文献 76】米国特許第 5,413,855 号明細書  
 【特許文献 77】米国特許第 5,512,090 号明細書  
 【特許文献 78】米国特許第 6,106,753 号明細書  
 【特許文献 79】米国特許第 6,030,673 号明細書

10

20

30

40

50

- 【特許文献 8 0】米国特許第 5 , 1 0 8 , 6 7 7 号明細書
- 【特許文献 8 1】米国特許第 5 , 2 3 4 , 9 7 7 号明細書
- 【特許文献 8 2】米国特許第 5 , 2 5 8 , 4 3 0 号明細書
- 【特許文献 8 3】米国特許第 5 , 2 6 2 , 4 5 8 号明細書
- 【特許文献 8 4】米国特許第 5 , 2 9 2 , 7 8 2 号明細書
- 【特許文献 8 5】米国特許第 5 , 3 7 6 , 3 2 0 号明細書
- 【特許文献 8 6】米国特許第 5 , 3 8 2 , 6 1 1 号明細書
- 【特許文献 8 7】米国特許第 5 , 4 0 5 , 5 6 4 号明細書
- 【特許文献 8 8】米国特許第 5 , 4 1 2 , 0 0 5 号明細書
- 【特許文献 8 9】米国特許第 5 , 4 6 2 , 9 8 0 号明細書
- 【特許文献 9 0】米国特許第 5 , 4 6 2 , 9 8 2 号明細書
- 【特許文献 9 1】米国特許第 5 , 5 1 2 , 3 7 8 号明細書
- 【特許文献 9 2】米国特許第 5 , 5 1 4 , 4 3 0 号明細書
- 【特許文献 9 3】米国特許第 5 , 5 4 9 , 8 5 9 号明細書
- 【特許文献 9 4】米国特許第 5 , 5 6 9 , 5 1 4 号明細書
- 【特許文献 9 5】米国特許第 5 , 5 6 9 , 6 9 2 号明細書
- 【特許文献 9 6】米国特許第 5 , 5 7 6 , 0 4 9 号明細書
- 【特許文献 9 7】米国特許第 5 , 5 8 0 , 4 0 9 号明細書
- 【特許文献 9 8】米国特許第 5 , 5 8 0 , 6 2 4 号明細書
- 【特許文献 9 9】米国特許第 5 , 5 8 2 , 6 7 0 号明細書
- 【特許文献 1 0 0】米国特許第 5 , 6 1 4 , 3 0 7 号明細書
- 【特許文献 1 0 1】米国特許第 5 , 6 1 8 , 3 4 1 号明細書
- 【特許文献 1 0 2】米国特許第 5 , 6 2 6 , 9 5 4 号明細書
- 【特許文献 1 0 3】米国特許第 5 , 6 3 1 , 0 5 3 号明細書
- 【特許文献 1 0 4】米国特許第 5 , 6 5 8 , 6 0 3 号明細書
- 【特許文献 1 0 5】米国特許第 5 , 6 5 8 , 6 2 4 号明細書
- 【特許文献 1 0 6】米国特許第 5 , 6 6 0 , 9 0 0 号明細書
- 【特許文献 1 0 7】米国特許第 5 , 6 6 0 , 9 0 3 号明細書
- 【特許文献 1 0 8】米国特許第 5 , 6 6 0 , 9 0 4 号明細書
- 【特許文献 1 0 9】米国特許第 5 , 6 6 5 , 4 4 2 号明細書
- 【特許文献 1 1 0】米国特許第 5 , 6 7 9 , 1 4 5 号明細書
- 【特許文献 1 1 1】米国特許第 5 , 6 8 3 , 7 7 2 号明細書
- 【特許文献 1 1 2】米国特許第 5 , 7 0 5 , 2 3 8 号明細書
- 【特許文献 1 1 3】米国特許第 5 , 7 0 5 , 2 3 9 号明細書
- 【特許文献 1 1 4】米国特許第 5 , 7 0 9 , 8 2 7 号明細書
- 【特許文献 1 1 5】米国特許第 5 , 7 0 9 , 9 1 3 号明細書
- 【特許文献 1 1 6】米国特許第 5 , 7 5 3 , 3 0 8 号明細書
- 【特許文献 1 1 7】米国特許第 5 , 7 6 6 , 5 2 5 号明細書
- 【特許文献 1 1 8】米国特許第 5 , 7 7 0 , 1 3 7 号明細書
- 【特許文献 1 1 9】米国特許第 5 , 7 7 6 , 3 8 8 号明細書
- 【特許文献 1 2 0】米国特許第 5 , 7 8 3 , 1 2 6 号明細書
- 【特許文献 1 2 1】米国特許第 5 , 8 0 0 , 6 4 7 号明細書
- 【特許文献 1 2 2】米国特許第 5 , 8 1 0 , 9 6 1 号明細書
- 【特許文献 1 2 3】米国特許第 5 , 8 3 0 , 3 0 5 号明細書
- 【特許文献 1 2 4】米国特許第 5 , 8 3 0 , 5 4 8 号明細書
- 【特許文献 1 2 5】米国特許第 5 , 8 4 3 , 5 4 4 号明細書
- 【特許文献 1 2 6】米国特許第 5 , 8 4 9 , 1 5 5 号明細書
- 【特許文献 1 2 7】米国特許第 5 , 8 6 8 , 8 2 4 号明細書
- 【特許文献 1 2 8】米国特許第 5 , 8 7 9 , 7 2 2 号明細書
- 【特許文献 1 2 9】米国特許第 5 , 8 9 7 , 9 4 4 号明細書

10

20

30

40

50

- 【特許文献 130】米国特許第 5, 910, 350 号明細書  
 【特許文献 131】米国特許第 5, 928, 741 号明細書  
 【特許文献 132】米国特許第 5, 976, 235 号明細書  
 【特許文献 133】米国特許第 6, 083, 586 号明細書  
 【特許文献 134】米国特許第 6, 090, 195 号明細書  
 【特許文献 135】米国特許第 6, 146, 573 号明細書  
 【特許文献 136】米国特許第 6, 168, 857 号明細書  
 【特許文献 137】米国特許第 6, 180, 037 号明細書  
 【特許文献 138】米国特許第 6, 200, 404 号明細書  
 【特許文献 139】米国特許第 6, 214, 907 号明細書  
 【特許文献 140】米国特許第 6, 231, 970 号明細書  
 【特許文献 141】米国特許第 6, 242, 102 号明細書  
 【特許文献 142】米国特許第 6, 347, 934 号明細書  
 【特許文献 143】米国特許第 6, 348, 524 号明細書  
 【特許文献 144】米国特許第 6, 379, 446 号明細書  
 【特許文献 145】米国特許第 5, 868, 309 号明細書  
 【特許文献 146】米国特許第 4, 343, 858 号明細書  
 【特許文献 147】米国特許第 4, 455, 184 号明細書  
 【特許文献 148】米国特許第 4, 543, 280 号明細書  
 【特許文献 149】米国特許第 4, 900, 594 号明細書  
 【特許文献 150】米国特許第 5, 679, 201 号明細書  
 【特許文献 151】米国特許第 6, 071, 577 号明細書  
 【特許文献 152】米国特許第 3, 863, 832 号明細書  
 【特許文献 153】米国特許第 3, 866, 816 号明細書  
 【特許文献 154】米国特許第 4, 337, 116 号明細書  
 【特許文献 155】米国特許第 4, 456, 164 号明細書  
 【特許文献 156】米国特許第 4, 698, 246 号明細書  
 【特許文献 157】米国特許第 4, 701, 360 号明細書  
 【特許文献 158】米国特許第 4, 789, 575 号明細書  
 【特許文献 159】米国特許第 4, 806, 399 号明細書  
 【特許文献 160】米国特許第 4, 888, 222 号明細書  
 【特許文献 161】米国特許第 5, 002, 833 号明細書  
 【特許文献 162】米国特許第 4, 130, 234 号明細書  
 【特許文献 163】米国特許第 2, 590, 221 号明細書  
 【特許文献 164】米国特許第 4, 611, 456 号明細書  
 【特許文献 165】米国特許第 4, 862, 671 号明細書  
 【特許文献 166】米国特許第 3, 932, 105 号明細書  
 【特許文献 167】米国特許第 3, 957, 558 号明細書  
 【特許文献 168】米国特許第 4, 124, 434 号明細書  
 【特許文献 169】米国特許第 4, 200, 481 号明細書  
 【特許文献 170】米国特許第 4, 257, 530 号明細書  
 【特許文献 171】米国特許第 3, 657, 044 号明細書  
 【特許文献 172】米国特許第 4, 092, 201 号明細書  
 【特許文献 173】米国特許第 2, 183, 869 号明細書  
 【特許文献 174】米国特許第 2, 704, 493 号明細書  
 【特許文献 175】米国特許第 3, 185, 370 号明細書  
 【特許文献 176】米国特許第 4, 026, 458 号明細書  
 【特許文献 177】米国特許第 2, 434, 106 号明細書  
 【特許文献 178】米国特許第 2, 510, 908 号明細書  
 【特許文献 179】米国特許第 2, 628, 180 号明細書

10

20

30

40

50

- 【特許文献 180】米国特許第 2,917,217 号明細書  
 【特許文献 181】米国特許第 2,975,093 号明細書  
 【特許文献 182】米国特許第 3,112,235 号明細書  
 【特許文献 183】米国特許第 3,135,648 号明細書  
 【特許文献 184】米国特許第 3,616,197 号明細書  
 【特許文献 185】米国特許第 3,697,369 号明細書  
 【特許文献 186】米国特許第 4,016,327 号明細書  
 【特許文献 187】米国特許第 4,352,925 号明細書  
 【特許文献 188】米国特許第 5,037,700 号明細書  
 【特許文献 189】米国特許第 5,132,391 号明細書  
 【特許文献 190】米国特許第 4,722,474 号明細書  
 【特許文献 191】米国特許第 5,110,390 号明細書  
 【特許文献 192】国際公開第 96/38282 号パンフレット  
 【特許文献 193】国際公開第 97/00284 号パンフレット  
 【特許文献 194】米国特許第 4,132,707 号明細書  
 【特許文献 195】米国特許第 4,145,466 号明細書  
 【特許文献 196】米国特許第 4,999,388 号明細書  
 【特許文献 197】米国特許第 5,000,991 号明細書  
 【特許文献 198】米国特許第 5,110,844 号明細書  
 【特許文献 199】米国特許第 5,128,383 号明細書  
 【特許文献 200】米国特許第 5,134,028 号明細書  
 【特許文献 201】米国特許第 5,116,881 号明細書  
 【特許文献 202】米国特許第 4,626,183 号明細書  
 【特許文献 203】米国特許第 4,746,478 号明細書  
 【特許文献 204】米国特許第 5,000,844 号明細書  
 【特許文献 205】米国特許第 4,761,256 号明細書  
 【非特許文献 1】アール・ストーベック (R. Storbeck) ら著、J. Appel. Polymer Science, 59 (1996)、1199-1202 ページ  
 【非特許文献 2】「カーカ - オスマ - 化学技術百科事典 (Kirk-Othmer Encyclopedia of Chemical Technology)」、第 3 版、30  
 第 11巻、ニューヨーク州ニューヨーク (New York, N.Y.)、ジョン・ Wiley and Sons, Inc.)、1980 年、82-145 ページ  
 【非特許文献 3】「ポリマー科学およびエンジニアリング百科辞典 (Encyclopedia of Polymer Science and Engineering)」、第 2 版、第 2巻、ニューヨーク州ニューヨーク、ジョン・ ウィリー・ アンド・ サンズ社 (John Wiley and Sons, Inc.)、1985 年、434-446 ページ  
 【発明の開示】  
 【課題を解決するための手段】  
 【0010】  
 本発明は、その中にグリコール成分として主に 1,4-ブタンジオールを組み入れたスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを提供する。幾つかの公知のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルより低い脂肪族ジカルボン酸成分の含有量を有する、本発明のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルは、幾つかの公知のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルと比べて高程度の結晶性を提供する。好ましい実施形態では、本明細書に開示されるスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルの比較的より高い結晶融点および結晶性レベルは、それから形成された物品に高められた熱変形温度を可能にさせる。  
 【0011】  
 本発明の一態様は、94.9 ~ 40.0 モルパーセントの芳香族ジカルボン酸成分、5.0 ~ 50.0 モルパーセントの脂肪族ジカルボン酸成分、0.1 ~ 5.0 モルパーセン  
 10  
 20  
 30  
 40  
 50

トのスルホネート成分、本質的に1,4-ブタンジオールよりなる100.0~90.0モルパーセントの第1グリコール成分、0~5.0モルパーセントの第2グリコール成分、および0~5.0モルパーセントの多官能性分岐剤を含むスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルである。幾つかの実施形態では、スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルはフィラーを含有する。

#### 【0012】

本発明の別の態様は、スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルの製造方法を提供する。好ましい実施形態では、本方法は、芳香族ジカルボン酸成分、脂肪族ジカルボン酸成分、スルホネート成分、および本質的に1,4-ブタンジオールよりなる第1グリコール成分の反応混合物を提供する工程と、反応混合物を重合させて94.9~40.0モルパーセントの芳香族ジカルボン酸成分、5.0~50.0モルパーセントの脂肪族ジカルボン酸成分、0.1~5.0モルパーセントのスルホネート成分、および100.0~90.0モルパーセントの1,4-ブタンジオールを含むスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルを形成する工程とを含む。幾つかの好ましい実施形態では、本方法はまた、コポリエステルが5.0モルパーセント以下の第2グリコール成分を含有するように第2グリコール成分を提供することも含む。幾つかの好ましい実施形態では、本方法は、コポリエステルが5.0モルパーセント以下の分岐剤を含有するように多官能性分岐剤を提供することも含む。

#### 【0013】

本発明のさらなる態様は、スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルから形成された造形品である。スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルは94.9~40.0モルパーセントの芳香族ジカルボン酸成分、5.0~50.0モルパーセントの脂肪族ジカルボン酸成分、0.1~5.0モルパーセントのスルホネート成分、本質的に1,4-ブタンジオールよりなる100.0~90.0モルパーセントの第1グリコール成分、0~5.0モルパーセントの第2グリコール成分、および0~5.0モルパーセントの多官能性分岐剤を含む。造形品には、フィルム、シート、繊維、メルトブローン容器、食事用器具類のような成形部品、発泡部品、基材上へのポリマー溶融押出コーティング、および基材上へのポリマー溶液コーティングが含まれる。幾つかの実施形態では、スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルはフィラーを含有する。

#### 【0014】

本発明のさらなる態様は、スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルからの造形品の製造方法を提供する。

#### 【0015】

本発明の別の態様は、94.9~40.0モルパーセントの芳香族ジカルボン酸成分、5.0~50.0モルパーセントの脂肪族ジカルボン酸成分、0.1~5.0モルパーセントのスルホネート成分、本質的に1,4-ブタンジオールよりなる100.0~90.0モルパーセントの第1グリコール成分、0~5.0モルパーセントの第2グリコール成分、および0~5.0モルパーセントの多官能性分岐剤を含むスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルから製造されたフィルムである。幾つかの実施形態では、スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルのフィルムはフィラーを含有する。

#### 【0016】

幾つかの好ましい実施形態では、フィルムは配向される。幾つかの実施形態では、フィルムはフィラーを含有する。幾つかの実施形態では、フィルムは基材上へ積層される。他の実施形態では、フィルムは基材上へコートされる。

#### 【0017】

本発明のさらなる態様は、基材上へ積層されたスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルを含むフィルムを含むラミネート構造体である。フィルムは94.9~40.0モルパーセントの芳香族ジカルボン酸成分、5.0~50.0モルパーセントの脂肪族ジカルボン酸成分、0.1~5.0モルパーセントのスルホネート成分、本質的に1,4-ブタンジオールよりなる100.0~90.0モルパーセントの第1グリコール成分、0~5.0モルパーセントの第2グリコール成分、および0~5.0モルパーセントの多官能性分岐剤を含むスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルから成る。

10

20

30

40

50

0モルパーセントの第2グリコール成分、および0～5.0モルパーセントの多官能性分岐剤を含む。幾つかの実施形態では、積層されたスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルはパッケージで使用される。ラミネート構造体の幾つかの実施形態では、スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルはフィラーを含有する。

【0018】

本発明のさらなる態様は、スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルを含むパッケージである。スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルは94.9～40.0モルパーセントの芳香族ジカルボン酸成分、5.0～50.0モルパーセントの脂肪族ジカルボン酸成分、0.1～5.0モルパーセントのスルホネート成分、本質的に1,4-ブタンジオールよりなる100.0～90.0モルパーセントの第1グリコール成分、0～5.0モルパーセントの第2グリコール成分、および0～5.0モルパーセントの多官能性分岐剤を含む。パッケージの幾つかの実施形態では、スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルはフィラーを含有する。

【0019】

本発明のさらなる実施形態には、94.9～40.0モルパーセントの芳香族ジカルボン酸成分、5.0～50.0モルパーセントの脂肪族ジカルボン酸成分、0.1～5.0モルパーセントのスルホネート成分、本質的に1,4-ブタンジオールよりなる100.0～90.0モルパーセントの第1グリコール成分、0～5.0モルパーセントの第2グリコール成分、および0～5.0モルパーセントの多官能性分岐剤を含むスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルを含む配向フィルムを含むパッケージが含まれる。配向フィルムを含むパッケージの幾つかの実施形態では、スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルはフィラーを含有する。

【0020】

本発明のさらなる態様は、基材上へ積層されたフィルムを含む食品パッケージである。フィルムは94.9～40.0モルパーセントの芳香族ジカルボン酸成分、5.0～50.0モルパーセントの脂肪族ジカルボン酸成分、0.1～5.0モルパーセントのスルホネート成分、本質的に1,4-ブタンジオールよりなる100.0～90.0モルパーセントの第1グリコール成分、0～5.0モルパーセントの第2グリコール成分、および0～5.0モルパーセントの多官能性分岐剤を含むスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルを含有する。フィルムを含む食品パッケージの幾つかの実施形態では、スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルはフィラーを含有する。例示的な基材には、紙、板紙、無機フォーム、有機フォーム、および無機-有機フォームが含まれる。

【0021】

本発明のさらなる態様は基材上へコートされたフィルムである。フィルムは94.9～40.0モルパーセントの芳香族ジカルボン酸成分、5.0～50.0モルパーセントの脂肪族ジカルボン酸成分、0.1～5.0モルパーセントのスルホネート成分、本質的に1,4-ブタンジオールよりなる100.0～90.0モルパーセントの第1グリコール成分、0～5.0モルパーセントの第2グリコール成分、および0～5.0モルパーセントの多官能性分岐剤を含むスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルを含有する。基材上へコートされるフィルムの幾つかの実施形態では、スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルはフィラーを含有する。例示的な基材には、紙、板紙、無機フォーム、有機フォーム、および無機-有機フォームが含まれる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0022】

本発明には、ある種のスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルの組成物と、好ましくはフィルム、コーティング、およびラミネートの形での造形品とが含まれる。スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルの製造方法もまた本発明の範囲内である。本発明はさらに、例えば、スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルを含む、ラップ、コップ、ボウル、およびプレートのような使い捨ての食品パッケージングをはじめとするパッケージを提供する。パッケージには、フィルムだけかまたは基材上のフィルム、基材上のコーティング

10

20

30

40

50

、および基材上のラミネートの形でスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルが含まれ得る。例示的な基材には、紙、板紙、無機フォーム、有機フォーム、および無機 - 有機フォームが含まれる。スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含有するパッケージングは特に食品向けに有用である。

【0023】

本明細書で「コポリエステル」とも言われる、スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルは 94.9 ~ 40.0 モルパーセントの芳香族ジカルボン酸成分、5.0 ~ 50.0 モルパーセントの脂肪族ジカルボン酸成分、0.1 ~ 5.0 モルパーセントのスルホネート成分、本質的に 1,4-ブタンジオールよりなる 100.00 ~ 90.0 モルパーセントの第 1 グリコール成分、0 ~ 5.0 モルパーセントの第 2 グリコール成分、および 0 ~ 5.0 モルパーセントの多官能性分岐剤を含む。百分率は、本明細書で報告されるところでは、組み合わされたジカルボン酸成分およびスルホネート成分の 100 モルパーセント、ならびに組み合わされたグリコール成分および分岐剤の 100 モルパーセントを基準とする。従って、芳香族ジカルボン酸成分、脂肪族ジカルボン酸成分およびスルホネート成分の総モル量は 100 モルパーセントであり、第 1 グリコール成分、任意の第 2 グリコール成分、および任意の多官能性分岐剤の総モル量は 100 モルパーセントである。ポリエステル組成物に関してかかるモル百分率の使用は当業者には周知である。

【0024】

芳香族ジカルボン酸成分には、置換されていないおよび置換されている芳香族ジカルボン酸と 8 ~ 20 個の炭素原子を有する芳香族ジカルボン酸の低級アルキルエステルとが含まれる。好適な二酸部分の例には、テレフタレート、イソフタレート、ナフタレートおよびビベンゾエートから誘導されるものが挙げられる。望ましい芳香族ジカルボン酸成分の具体的な例には、テレフタル酸、ジメチルテレフタレート、イソフタル酸、ジメチルイソフタレート、2,6-ナフタレンジカルボン酸、ジメチル-2,6-ナフタレート、2,7-ナフタレンジカルボン酸、ジメチル-2,7-ナフタレート、3,4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸、ジメチル-3,4'-ジフェニルエーテルジカルボキシレート、4,4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸、ジメチル-4,4'-ジフェニルエーテルジカルボキシレート、3,4'-ジフェニルスルフィドジカルボン酸、ジメチル-3,4'-ジフェニルスルフィドジカルボキシレート、4,4'-ジフェニルスルフィドジカルボキシレート、3,4'-ジフェニルスルホンジカルボン酸、ジメチル-3,4'-ジフェニルスルホンジカルボキシレート、4,4'-ジフェニルスルホンジカルボン酸、ジメチル-4,4'-ジフェニルスルホンジカルボキシレート、3,4'-ベンゾフェノンジカルボン酸、ジメチル-3,4'-ベンゾフェノンジカルボン酸、ジメチル-4,4'-ベンゾフェノンジカルボキシレート、1,4-ナフタレンジカルボン酸、ジメチル-1,4-ナフタレート、4,4'-メチレンビス(安息香酸)、ジメチル-4,4'-メチレンビス(ベンゾエート)、およびそれらから誘導される混合物が挙げられる。用語「それらから誘導される混合物」には、成分または他の品目のリストに関連して本明細書で用いるところでは、リスト中の 2 つ以上の品目の任意の混合物が含まれる。好ましくは、芳香族ジカルボン酸成分はテレフタレート、ジメチルテレフタレート、イソフタル酸、ジメチルイソフタレート、2,6-ナフタレンジカルボン酸、ジメチル-2,6-ナフタレート、およびそれらから誘導される混合物から誘導される。公知の本質的にいかなる芳香族ジカルボン酸も使用することができる。好ましくは、スルホン化ポリエステル組成物は 80 ~ 50 モルパーセントの芳香族ジカルボン酸成分を含有する。

【0025】

脂肪族ジカルボン酸成分には、置換されていない、置換されている、線状の、および分岐の脂肪族ジカルボン酸と 2 ~ 36 個の炭素原子を有する脂肪族ジカルボン酸の低級アルキルエステルとが含まれる。望ましい脂肪族ジカルボン酸成分の具体的な例には、シュウ酸、ジメチルオキサレート、マロン酸、ジメチルマロネート、コハク酸、ジメチルスクシネート、メチルコハク酸、グルタル酸、ジメチルグルタル酸、

10

20

30

40

50

3 - メチルグルタル酸、アジピン酸、ジメチルアジペート、3 - メチルアジピン酸、2, 2, 5, 5 - テトラメチルヘキサン二酸、ピメリン酸、スペリン酸、アゼライン酸、ジメチルアゼレート、セバシン酸、1, 11 - ウンデカンジカルボン酸、1, 10 - デカンジカルボン酸、ウンデカン二酸、1, 12 - ドデカンジカルボン酸、ヘキサデカン二酸、ドコサン二酸、テトラコサン二酸、ダイマー酸、およびそれから誘導される混合物が挙げられる。好ましくは、脂肪族ジカルボン酸成分は、コハク酸、ジメチルスクシネート、グルタル酸、ジメチルグルタレート、アジピン酸、ジメチルアジペートおよびそれから誘導される混合物の群から選択される。公知の本質的にいかなる脂肪族ジカルボン酸も使用することができる。好ましくは、本発明のスルホン化ポリエステル組成物は、20 ~ 50モルパーセントの脂肪族ジカルボン酸成分を含有する。

10

## 【0026】

脂肪族 - 芳香族スルホン化コポリエステルはスルホネート基を含む。スルホネート基は、脂肪族または芳香族モノマーに導入することができるか、または末端基として導入することができる。脂肪族スルホネート成分の例は、スルホコハク酸の金属塩である。末端基として使用することができる芳香族スルホネート成分の具体的な例には、3 - スルホ安息香酸、4 - スルホ安息香酸、および5 - スルホサリチル酸の金属塩が挙げられる。スルホネート塩の基が芳香族ジカルボン酸、すなわち、芳香基を含有するジカルボン酸に結合しているスルホネート成分が好ましい。芳香基は、例えば、ベンゼン、ナフタレン、ジフェニル、オキシジフェニル、スルホニルジフェニル、またはメチレンジフェニルであり得る。好ましくは、スルホネートモノマーはスルホネート置換のフタル酸、テレフタル酸、イソフタル酸、または2, 6 - ナフタレンジカルボン酸の残基である。より好ましくは、スルホネート成分は、5 - スルホイソフタル酸または5 - スルホイソフタル酸の低級アルキルエステルの金属塩である。金属塩は、一価または多価のアルカリ金属イオン、アルカリ土類金属イオン、または他の金属イオンを含有することができる。好ましいアルカリ金属イオンには、ナトリウム、カリウムおよびリチウムが含まれる。しかしながら、マグネシウムのようなアルカリ土類金属もまた有用である。他の有用な金属イオンには、例えば、亜鉛、コバルトまたは鉄のような、遷移金属イオンが含まれる。例えば、スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルの溶融粘度の増加が望まれる場合、多価金属イオンが有用であり得る。かかる溶融粘度上昇が有利であり得る最終用途例には、溶融押出コーティング、メルトブローン容器またはフィルム、およびフォームが挙げられる。0.1モルパーセントほどしかないスルホネート基が、得られたフィルムまたはコーティングの性質特性に影響を及ぼし得る。好ましくは、スルホネート基含有成分の量は0.1 ~ 4.0モルパーセントである。

20

## 【0027】

本質的に1, 4 - ブタンジオールよりなる第1グリコール成分に加えて、スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルは、1つまたは複数の第2グリコール成分を含む。用語「本質的になる」は、本明細書では、第1グリコール成分が主に1, 4 - ブタンジオールであることを示すために用いられる。従って、第1グリコール成分は完全に1, 4 - ブタンジオールであってもよいし、または少量の他の成分および/または添加物を有してもよい。用語「1, 4 - ブタンジオール」は、スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルの成分に関して本明細書で用いられる時、本質的に1, 4 - ブタンジオールよりなる第1グリコール成分を意味することを意図される。好ましくは、第1グリコール成分は約100%の1, 4 - ブタンジオールである。スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルでの使用のための第2グリコール成分には、2個の炭素原子から36個の炭素原子を有する、置換されていない、置換されている、直鎖の、分岐の、環式の脂肪族、脂肪族 - 芳香族または芳香族ジオールが含まれる。望ましい第2グリコール成分の具体的な例には、エチレングリコール、1, 3 - プロパンジオール、1, 6 - ヘキサンジオール、1, 8 - オクタンジオール、1, 10 - デカンジオール、1, 12 - ドデカンジオール、1, 14 - テトラデカンジオール、1, 16 - ヘキサデカンジオール、ダイマージオール、4, 8 - ビス(ヒドロキシメチル) - トリシクロ[5.2.1.0/2.6]デカン、1, 4 - シクロヘキサ

30

40

50

ンジメタノール、イソソルビド、ジ(エチレングリコール)、トリ(エチレングリコール)、例えば、ポリ(エチレングリコール)、ポリ(1,3-プロピレングリコール)、ポリ(1,4-ブチレングリコール)、(ポリテトラヒドロフラン)、ポリ(ペンタメチレングリコール)、ポリ(ヘキサメチレングリコール)、ポリ(ヘプタメチレングリコール)のような約500～約4000の分子量範囲のポリ(アルキレンエーテル)グリコール、ポリ(エチレングリコール)-ブロック-ポリ(プロピレングリコール)-ブロック-ポリ(エチレングリコール)、4,4'-(1-フェニルエチリデン)ビスフェノールエトキシレート(ビスフェノールAエトキシレート)、4,4'-(1-フェニルエチリデン)ビスフェノールエトキシレート(ビスフェノールA Pエトキシレート)、4,4'-(エチリデンビスフェノールエトキシレート(ビスフェノールEエトキシレート)、ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタンエトキシレート(ビスフェノールFエトキシレート)、4,4'-(1,3-フェニレンジイソプロピリデン)ビスフェノールエトキシレート(ビスフェノールMエトキシレート)、4,4'-(1,4-フェニレンジイソプロピリデン)ビスフェノールエトキシレート(ビスフェノールPエトキシレート)、4,4'-(スルホニルジフェノールエトキシレート(ビスフェノールSエトキシレート)、4,4'-(シクロヘキシリデンビスフェノールエトキシレート(ビスフェノールZエトキシレート)、およびそれらから誘導される混合物が挙げられる。ポリエステルの形成での使用について公知の本質的にいかなるグリコールも使用することができる。

10

20

## 【0028】

任意の多官能性分岐剤には、3つ以上のカルボン酸官能基、ヒドロキシ官能基またはそれらの混合物を含む合計3つ以上の官能基を有する任意の材料が含まれる。望ましい多官能性分岐剤成分の具体的な例には、1,2,4-ベンゼントリカルボン酸(トリメリット酸)、トリメチル-1,2,4-ベンゼントリカルボキシレート、1,2,4-ベンゼントリカルボン酸無水物(トリメリット酸無水物)、1,3,5-ベンゼントリカルボン酸、1,2,4,5-ベンゼンテトラカルボン酸(ピロメリット酸)、1,2,4,5-ベンゼンテトラカルボン酸二無水物、(ピロメリット酸無水物)、3,3',4,4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、1,4,5,8-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、クエン酸、テトラヒドロフラン-2,3,4,5-テトラカルボン酸、1,3,5-シクロヘキサントリカルボン酸、ペンタエリスリトール、グリセロール、2-(ヒドロキシメチル)-1,3-プロパンジオール、2,2-ビス(ヒドロキシメチル)プロピオン酸、およびそれらから誘導される混合物が挙げられる。3つ以上のカルボン酸またはヒドロキシル官能基を有する本質的にいかなる多官能性材料も多官能性分岐剤として使用することができる。例えば、より高い樹脂溶融粘度が溶融押出コーティング、メルトプローランフィルムまたは容器、およびフォームのような特定の最終用途に望まれる場合、多官能性分岐剤が望ましいかもしれない。好ましくは、スルホン化ポリエステルは0～1.0モルパーセントの多官能性分岐剤を含む。

30

40

50

## 【0029】

ポリエステルの分子量は一般に直接測定されない。その代わりに、溶液でのポリマーの固有粘度または溶融粘度が分子量の指標として用いられる。当業者に公知であるように、固有粘度は、ポリ(エチレンテレフタレート)、ポリ(ブチレンテレフタレート)などのポリマー系統内のサンプルの比較のための分子量の指標であり、本明細書では分子量の指標として用いられる。所望の物理的性質を与えるために、本発明のスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルは好ましくは、室温でトリフルオロ酢酸:ジクロロメタン溶媒システムの50:50(重量)溶液中のコポリエステルの0.5パーセント(重量/容量)溶液について測定される時に、少なくとも0.15の固有粘度(IV)を有する。より好ましくは、スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルの固有粘度は少なくとも0.35dL/gである。本明細書で列挙される固有粘度は幾つかの用途向けには好ましいが、より高い固有粘度が、例えば、フィルム、ボトル、シート、および成形樹脂のような、ある種の用途向けには望ましい。スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルの製造に用いられる重合条件は、少なくとも約0.5以下の所望の固有粘度を得るために調節するこ

できる。幾つかの用途向けには、所望の固有粘度は  $0.65 \text{ dL/g}$  より大きいものであり得る。当業者に公知の方法による、コポリエステルのさらなる処理は、 $0.7$ 、 $0.8$ 、 $0.9$ 、 $1.0$ 、 $1.5$ 、 $2.0 \text{ dL/g}$  のおよびさらにより高い固有粘度を提供することができる。

#### 【0030】

脂肪族 - 芳香族スルホン化コポリエステルは、通常の重縮合技術によって製造することができる。コポリエステル組成物は、用いられる製造方法に依存して、特にコポリエステル内に存在するジオールの量に関して変わり得る。好適な方法には、ジオールモノマーと酸塩化物との反応が含まれる。例えば、芳香族ジカルボン酸成分の酸塩化物、脂肪族ジカルボン酸成分の酸塩化物、および / またはスルホネート成分の酸塩化物を、塩化水素酸が生成した時にそれを中和するピリジンのような塩基の存在下に、トルエンのような溶媒中で  $1,4$  - ブタンジオールおよび第2グリコール成分と化合させることができる。かかる手順は、例えば、その開示が参考により本明細書によって本明細書に援用される、(非特許文献1)に開示されている。界面重合法のような、酸塩化物を使用する他の周知の変形もまた用いることができる。あるいはまた、モノマーは加熱しながら一緒に単に攪拌することができる。

#### 【0031】

ポリマーが酸塩化物を使用して製造される場合、生成物ポリマー中のモノマー単位の比は反応モノマーの比とほぼ同じである。それ故、反応器に装入されるモノマーの比は生成物中の所望の比とほぼ同じである。化学量論等量のジオール成分と二酸成分を、高分子量ポリマーを得るために一般に使用することができる。

#### 【0032】

好ましくは、スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルは溶融重合法を用いて製造される。例示的な溶融重合法では、芳香族ジカルボン酸成分(酸、エステル、またはそれらの混合物のどれかとして)、脂肪族ジカルボン酸成分(酸、エステル、またはそれらの混合物のどれかとして)、スルホネート成分、 $1,4$  - ブタンジオール、第2グリコール成分および任意選択的に多官能性分岐剤は、モノマーが化合してエステルおよびジエステル、次にオリゴマー、そして最終的にポリマーを形成するのに十分な温度で触媒の存在下に化合させられる。温度は、部分的に、成分の性質に依存し、当業者によって決定され得る。重合工程は溶融した生成物を生み出す。一般に、第2グリコール成分および $1,4$  - ブタンジオールは揮発性であり、重合が進行するにつれて反応器から留出する。かかる手順は当業者には公知である。

#### 【0033】

コポリエステルの形成に用いられる溶融法条件、特に使用されるモノマーの量は、望まれるポリマー組成物に依存する。 $1,4$  - ブタンジオール、第2グリコール成分、芳香族ジカルボン酸成分、脂肪族ジカルボン酸成分、スルホネート化合物および分岐剤の量は、等モル量のモノマー単位がそれぞれのジオールおよび二酸成分から誘導されて、ポリマー生成物が所望の量の様々なモノマー単位を含有するよう望ましくは選ばれる。モノマーの幾つか、特に第2グリコール成分および $1,4$  - ブタンジオール成分の幾つかの揮発性のために、ならびに反応器が密閉されている(すなわち、圧力下にある)かどうか、重合温度昇温速度、およびポリマーの合成に使用される蒸留塔の効率のような変数に依存して、モノマーの幾つかは、特に第2グリコール成分および $1,4$  - ブタンジオールに関しては、重合反応の開始時に過剰に含まれ、反応が進行するにつれて蒸留によって除去されることが好ましいかもしれない。

#### 【0034】

反応器に装入されるべきモノマーの量は当業者によって決定され得るが、しばしば次の範囲内にあるであろう。過剰の二酸、 $1,4$  - ブタンジオール成分、および第2グリコールがしばしば望ましくは装入され、そして過剰の二酸、 $1,4$  - ブタンジオールおよび第2グリコールは、重合反応が進行するにつれて蒸留または蒸発の他の方法によって望ましくは除去される。 $1,4$  - ブタンジオールは望ましくはコポリエステル中で望まれる量よ

10

20

30

40

50

り約 10 ~ 100 パーセント多く装入される。好ましくは、1,4-ブタンジオール成分は、コポリエステル中で望まれる量より約 20 ~ 70 パーセント多く装入される。第 2 グリコール成分は望ましくは、第 2 グリコール成分の揮発性に依存して、コポリエステル中で望まれる量より約 0 ~ 100 パーセント多く装入される。

## 【0035】

モノマーについて与えられる範囲の幅は、重合中のモノマー損失における広範な変動のためであり、順繰りに蒸留塔および / または他の回収およびリサイクルシステムの効率に依存し、近似値であるに過ぎない。所望の組成を達成するために反応器に装入されるべきモノマーの量は当業者によって決定され得る。

## 【0036】

好ましい重合法では、モノマーは組み合わされ、触媒または触媒混合物の存在下に混合しながら好ましくは 230 ~ 約 300 、より好ましくは 250 ~ 295 の範囲の温度に徐々に加熱される。用いられる条件および触媒は、部分的に、二酸が本当の酸として重合させられるかジメチルエステルとして重合させられるかどうかによって決定される。触媒は反応体と共に最初に含まれることができる、および / または混合物が加熱されるにつれてそれに 1 回または複数回で添加することができる。使用される触媒は、反応が進行するにつれて変性することができる。加熱および攪拌は、一般に蒸留によって過剰の反応体を除去しながら、二次加工製品の製造に好適であるほど十分に高い分子量を有する溶融ポリマーをもたらすのに十分な時間および十分な温度まで続けられる。

## 【0037】

使用することができる触媒には、グリコール付加体、および Ti アルコキシドをはじめとする、酢酸塩および酸化物のような、Li、Ca、Mg、Mn、Zn、Pb、Sb、Sn、Ge、および Ti の塩が含まれる。かかる触媒は公知であり、使用される触媒、または触媒の組み合わせもしくは系列は、熟練者によって選択され得る。特定の重合にとって好ましい触媒および好ましい条件は変わることができ、例えば、二酸モノマーが遊離二酸として重合させられるかジメチルエステルとして重合させられるかどうかに、およびグリコール成分の化学的同一性に依存する。エステルの重合での使用について公知のいかなる触媒システムも使用することができる。

## 【0038】

ポリマーのモノマー組成は、具体的な用途向けにおよび特定セットの特性のために選ぶことができる。当業者が理解するであろうように、コポリエステルで観察される熱的性質は、コポリエステルの製造に用いられる各成分の化学的同一性および量の関数である。多くの用途向けに適切な固有粘度を有するポリマーは、本明細書で上に記載された溶融縮合法によって製造することができる。固相重合は、さらにより高い固有粘度およびより高い分子量を達成するために用いることができる。

## 【0039】

押出、冷却およびペレット化後に、ポリマーは実質的に非結晶性であるかもしれない。非結晶性材料は、それをガラス転移温度より上の温度に長期間加熱することによって半結晶性にすることができる。これは、生成物を次により高い温度に加熱して分子量を上げることができるように結晶化を誘起する。半結晶性ポリマーは、ペレット化ポリマーまたは粉末化ポリマーを、高温だがポリマーの溶融温度より下に長期間、窒素のような不活性ガスの流れ中へ、または 1 トルの減圧下に置くことによって固相重合にかけることができる。あるいはまた、ポリマーは、結晶化を誘起する、ポリエステルの比較的貧溶媒での処理によって固相重合前に結晶化させることができる。かかる溶媒はガラス転移温度 (Tg) を下げ、結晶化を可能にする。ポリエステルの溶媒誘起結晶化は公知であり、例えば、米国特許公報 (特許文献 11) および米国特許公報 (特許文献 12) に記載されている。

## 【0040】

スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルは、公知の添加剤を含有するおよび / またはそれ入りで使用することができる。ポリエステルでの使用について公知のいかなる添加剤も使用することができる。幾つかの用途向けには、添加剤は毒性がなく、生分解性であり

10

20

30

40

50

、バイオ良性であることが好ましい。かかる添加剤には、例えば、フェノール系酸化防止剤のような熱安定剤、例えば、チオエーテルおよびホスフェートのような二次熱安定剤、例えば、ベンゾフェノン-およびベンゾトリアゾール-誘導体のようなUV吸収剤、および、例えば、ヒンダードアミン光安定剤(HALS)のようなUV安定剤が含まれ得る。他の有用な添加剤には、可塑剤、加工助剤、流動促進剤、滑剤、顔料、難燃剤、衝撃改質剤、結晶性を上げるための核剤、シリカのようなプロッキング防止剤、酢酸ナトリウム、酢酸カリウム、および水酸化テトラメチルアンモニウムのような塩基緩衝剤が含まれる。好適な添加剤およびそれらの使用は、例えば、米国特許公報(特許文献5)、米国特許公報(特許文献13)、米国特許公報(特許文献6)、米国特許公報(特許文献14)、および米国特許公報(特許文献15)ならびにそれらに引用された参考文献に開示されている。10

#### 【0041】

可塑剤が、加工性または機械的性質を改善するために、またはポリエステルから製造されたフィルム、コーティングおよびラミネートの立てる音を減らすために望ましいかもしれない。好適な可塑剤の例には、大豆油、エポキシ化大豆油、コーンオイル、ヒマシ油、アマニ油、エポキシ化アマニ油、鉛油、アルキルホスフェートエステル、トウイーン(Tween)(登録商標)20、トウイーン(登録商標)40、トウイーン(登録商標)60、トウイーン(登録商標)80、トウイーン(登録商標)85可塑剤、ソルビタンモノラウレート、ソルビタンモノオレエート、ソルビタンモノパルミテート、ソルビタントリオレエート、ソルビタンモノステアレート、クエン酸トリメチルおよびシトロフレックス(Citroflex)(登録商標)2クエン酸トリエチル、シトロフレックス(登録商標)4クエン酸トリブチル、クエン酸トリオクチル、シトロフレックス(登録商標)A-4アセチルクエン酸トリ-n-ブチル、シトロフレックス(登録商標)A-2アセチルクエン酸トリエチル、シトロフレックス(登録商標)A-6アセチルクエン酸トリ-n-ヘキシル、およびシトロフレックス(登録商標)B-6ブチリルクエン酸トリヘキシルをはじめとする、モルフレックス社(Morflex, Inc.)によって生産されるシトロフレックス(登録商標)クエン酸エステルのような、クエン酸エステル、酒石酸ジメチル、酒石酸ジエチル、酒石酸ジブチル、および酒石酸ジオクチルのような酒石酸エステル、ポリ(エチレングリコール)、ポリ(エチレングリコール)の誘導体、パラフィン、6-O-ステアリルグルコピラノシド、グリセリルモノステアレート、マイバプレックス(Myapple)(登録商標)600濃縮グリセロールモノステアレート、ナイバプレックス(Nyapple)(登録商標)濃縮グリセロールモノステアレート、マイバセット(Myvacet)変性脂肪の蒸留アセチル化モノグリセリド、例えば、マイバセット(登録商標)507(48.5~51.5パーセント・アセチル化)、マイバセット(登録商標)707(66.5~69.5パーセント・アセチル化)、マイバセット(登録商標)908(最低96パーセント・アセチル化)、マイベロール(Myverol)(登録商標)、濃縮グリセリルモノステアレートのようなモノアシル炭水化物、アクラワックス(Acrawax)(登録商標)、N,N-エチレンビス-ステアルアミド、N,N-エチレンビス-オレアミド、ジオクチルアジペート、ジイソブチルアジペート、ジエチレングリコールジベンゾエート、ジブロピレングリコールジベンゾエート、ポリ(1,6-ヘキサメチレンアジペート)、ポリ(エチレンアジペート)のような高分子可塑剤、ルコフレックス(Rucoflex)(登録商標)、および他の相溶性の低分子量ポリマーならびにそれらから誘導される混合物が挙げられる。好ましくは、可塑剤は毒性がなく、生分解性であるおよび/または生物由来である。20

#### 【0042】

さらに、本発明の組成物は、例えば木粉、石膏、タルク、雲母、カーボンブラック、珪灰石、モンモリロナイト鉱物、チョーク、珪藻土、砂、砂利、碎石、ボーキサイト、石灰岩、砂岩、エアロゲル、キセロゲル、ミクロスフェア、多孔性セラミック球、石膏二水和物、アルミニン酸カルシウム、炭酸マグネシウム、セラミック材料、ポゾラミック(poziolamic)材料、ジルコニウム化合物、ゾノトライド(結晶性ケイ酸カルシウムゲ30

10

20

30

40

50

ル)、パーライト、バーミキュライト、水和または非水和水硬性セメント粒子、軽石、パーライト、ゼオライト、カオリン、天然および合成粘土の両方ならびに有機粘土およびコポリエステル・マトリックスとの粘着性を高めるためにシランおよびステアリン酸で表面処理された粘土のような、処理および未処理粘土をはじめとする粘土フィラー、スメクタイト粘土、マグネシウム・アルミニウムシリケート、ベントナイト粘土、ヘクトライト粘土、酸化ケイ素、カルシウムテレフタレート、酸化アルミニウム、二酸化チタン、酸化鉄、リン酸カルシウム、硫酸バリウム、炭酸ナトリウム、硫酸マグネシウム、硫酸アルミニウム、炭酸マグネシウム、炭酸バリウム、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム、硫酸カルシウム、硫酸バリウム、フッ化リチウム、ポリマー粒子、粉末金属、パルプ粉、セルロース、デンプン、化学変性デンプン、熱可塑性デンプン、リグニン粉、小麦、キチン、キトサン、ケラチン、グルテン、クルミ殻粉、木粉、トウモロコシ穂軸粉、炭酸カルシウム、水酸化カルシウム、ガラスビーズ、中空ガラスビーズ、シーゲル (seagel)、コルク、種、ゼラチン、木粉、おがくず、寒天ベース材料、ガラス纖維、例えばサイザル麻、麻、綿、羊毛、木、亜麻、アバカ、サイザル麻、ラミー、バガス、およびセルロース纖維などの天然纖維、炭素纖維、グラファイト纖維、シリカ纖維、セラミック纖維、金属纖維、ステンレススチール纖維、および例えば、再パルプ化操作からのリサイクル紙纖維のような強化材などの無機、有機および/または粘土フィラーで充填され得る。フィラーは、ヤング率を大きくする、永久折り目特性を改善する、フィルム、コーティングまたはラミネートの剛性を改善する、コストを下げる、およびフィルム、コーティング、またはラミネートが加工または使用中に塊になるまたは自己付着する傾向を減らすことができる。フィラーの使用はまた、例えば、ミヤザキ (Miya zaki) らによって米国特許公報 (特許文献 16) に開示されているように、外見および感触のような、紙の幾つかの特質を有するプラスチック物品をもたらすことも分かった。添加剤、フィラーまたはブレンド材料は、重合工程の前に、重合工程中の任意の段階でまたはポスト重合工程として添加することができる。ポリエステルでの使用について公知のいかなるフィラ-もスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルで使用することができる。

## 【0043】

好適な粘土フィラーには、天然および合成粘土、ならびに有機粘土およびコポリエステル・マトリックスとの粘着性を高めるためにシランまたはステアリン酸で表面処理された粘土のような、未処理および処理粘土が含まれる。具体的な使用に適した粘土材料には、例えば、カオリン、スメクタイト粘土、マグネシウム・アルミニウムシリケート、ベントナイト粘土、モンモリロナイト粘土、ヘクトライト粘土、およびそれらから誘導される混合物が含まれる。粘土は、それらを有機親和性にするために、界面活性剤のような有機材料で処理することができる。使用に適した粘土フィラーの具体的な商業例には、ゲルホワイト (Gelwhite) (登録商標) MAS100 粘土 (マグネシウム・アルミニウムシリケート)、クレートーン (Claytone) (登録商標) 2000 有機親和性スメクタイト粘土、ホワイトベントナイト粘土からのゲルホワイト (登録商標) L モンモリロナイト粘土をはじめとする、サザーン・クレー・カンパニー (Southern Clay Company) から入手可能なゲルホワイト (登録商標) およびクレートーン (登録商標) 粘土、ビス (2-ヒドロキシエチル) メチル牛脂第四級アンモニウムクロリド塩入りのクロイサイト (Clavisite) (登録商標) 30B 有機親和性天然モンモリロナイト粘土、クロイサイト (登録商標) Na 天然モンモリロナイト粘土をはじめとする、サザーン・クレー・カンパニー製のクロイサイト (登録商標) 粘土、ガラマイト (Garamite) (登録商標) 1958 粘土、鉱物の混合物と定義されるサザーン・クレー・カンパニーの市販製品；無機ポリホスフェート・ペプタイザー (peptizer) 入りラポナイト (Laponite) (登録商標) RDS 合成層状シリケート、サザーン・クレー・カンパニーの市販製品、ラポナイト (登録商標) RD 合成コロイド状粘土、サザーン・クレー・カンパニーの市販製品、相溶化剤で処理されたナノマーズ (Nanomers) (登録商標) モンモリロナイト鉱物、アミノ酸で表面処理されたナノマー 1.24T L モンモリロナイト鉱物、「P シリーズ (P Series)」ナノマーズ (登録商標) 50

表面改質モンモリロナイト鉱物をはじめとする、ナノコール・カンパニー (Nanocor Company) 製のナノマーズ (登録商標) 粘土、高純度アルミニシリケート鉱物と定義される (時々フィロシリケート (phylllosilicate) と言われる)、ポリマーグレード (Polymer Grade) (PG) モンモリロナイト PGW、ポリマーグレード (PG) モンモリロナイト PGA 粘土、ポリマーグレード (PG) モンモリロナイト PGN 粘土およびポリマーグレード (PG) モンモリロナイト PGV 粘土、ナノコール・カンパニーの市販製品、ならびにそれらから誘導される混合物が挙げられる。ポリエステルでの使用について公知のいかなる粘土フィラーも使用することができる。幾つかの粘土フィラーは、重合中に剥離してナノ複合材料を形成することができる。これは、スメクタイト粘土、マグネシウム・アルミニウムシリケート、ベントナイト粘土、モンモリロナイト粘土、ヘクトライト粘土のような、層状シリケート粘土について特に真実である。上述されたように、かかる粘土は天然または合成、処理または未処理品であることができる。

#### 【0044】

フィラーの粒度は広範囲の粒度から選択することができる。当業者が認識するであろうように、フィラー粒度は、フィラーア入りコポリエステル組成物の所望の用途向けに調整することができる。フィラーの平均直径は約40ミクロン未満であることが一般に好ましく、フィラーの平均直径は約20ミクロン未満であることがより好ましい。しかしながら、他の粒度を特定の用途向けに使用することができる。フィラーは40メッシュ (米国標準) 以下、またはそれ以上の範囲の粒度を含むことができる。フィラー粒度の混合物もまた有利に使用することができる。例えば、約5ミクロンのおよび約0.7ミクロンの平均粒度を有する炭酸カルシウム・フィラーの混合物は、一様なサイズの炭酸カルシウム粒子ができるよりも良好なフィラーの空間充填をコポリエステル・マトリックス内に提供することができる。2つ以上のフィラー粒度の使用は改善された粒子充填を可能にする。2つ以上の範囲のフィラー粒度は、大きな粒子の群間の空間がより小さいフィラー粒子の選択群によって実質的に占められるように選択することができる。一般に、粒子充填は、第1セットの粒子が第1群の粒子より少なくとも約2倍大きいまたは小さい粒度を有する別のセットの粒子と混合される時にはいつでも増える。2粒子システムについての粒子充填密度は、第1セットの粒子のサイズ比が第2セットの粒子のサイズの約3~10倍である時にはいつでも最大になる。同様に、3つ以上の異なるセットの粒子を、粒子充填密度をさらに高めるために使用することができる。充填密度の最適な程度は、例えば、ポリマー相および固体フィラー相の両方内の様々な成分のタイプおよび濃度、用いられるフィルム、コーティングまたは積層法、ならびにポリマーから製造されるべき製品の所望の機械的、熱的および他の性能特性のような多数の因子に依存する。アンダーセン (Andersen) らは、米国特許公報 (特許文献17) に、粒子充填技術を開示している。上の粒子充填技術に基づいてフィラー粒度の混合物を組み入れているフィラー・コンセントレートは、ペーパーマッチ (Papermatch) (登録商標) フィラー・コンセントレートとしてシャルマン・カンパニー (Shulman Company) によって商業的に入手可能である。

#### 【0045】

フィラーは、ポリマーを形成するための成分の重合中の任意の段階で、または重合が完了した後に加えることができる。例えば、フィラーは、重合工程の開始時にコポリエステルモノマーと共に加えることができる。これは、ポリエステル・マトリックス内のフィラーの十分な分散を提供するために、例えば、シリカおよび二酸化チタン・フィラーの使用で好ましい。あるいはまた、フィラーは、重合の中間段階で、例えば、プレ縮合物が重合容器中へ通る時に加えることができる。その上さらなる代替案として、フィラーは、コポリエステルが重合器を出た後で加えることができる。例えば、コポリエステルは、静的ミキサーまたは単軸もしくは二軸スクリュー押出機のような任意の強烈な混合操作に溶融供給し、フィラーと配合することができる。

#### 【0046】

10

20

30

40

50

フィラー入りコポリエステルのその上さらなる製造方法として、コポリエステルはその後のポスト重合工程でフィラーと組み合わせることができる。典型的には、かかる方法は溶融したコポリエステルとフィラーとの強烈な混合を含む。強烈な混合は、例えば、静的ミキサー、ブラベンダー (Brabender) ミキサー、単軸スクリュー押出機、および二軸スクリュー押出機によって提供することができる。典型的な方法では、コポリエステルは乾燥される。乾燥コポリエステルは次にフィラーと混合することができる、またはコポリエステルおよびフィラーは、2つの異なる供給機によって共供給することができる。押出工程では、コポリエステルおよびフィラーは、押出機の逆供給セクション中へ供給することができる。コポリエステルおよびフィラーは、押出機の2つの異なる場所へ有利に供給することができる。例えば、コポリエステルは、押出機の逆供給セクションに加えることができ、一方、フィラーはダイプレートに近い押出機の最前部に供給される（「側面詰め込みされる」）。押出機温度プロフィールは、加工条件下でコポリエステルを溶融させるように選択される。スクリューデザインは、それが溶融したコポリエステルをフィラーと混合する時に、応力、そして順に、熱を提供するように選択される。かかる方法は、例えば、ドーラー (Dohrer) らによって、米国特許公報（特許文献18）に開示されている。あるいはまた、フィラーは、下記のように、フィルムまたはコーティングの形成中にコポリエステルとブレンドすることができる。

## 【0047】

コポリエステルは、生分解性であるまたは生分解性でない、天然由来品、変性天然由来品または合成品であることができる他のポリマー材料とブレンドすることができる。ブレンド可能な生分解性材料の例には、本願特許出願人から入手可能なバイオマックス (BiomaX) (登録商標) ポリエステルのようなスルホン化脂肪族・芳香族コポリエステル；イーストマン・ケミカル・カンパニー (Eastman Chemical Company) から入手可能なイースター・バイオ (Eastar Bio) (登録商標) ポリエステルのような脂肪族・芳香族コポリエステル；バスフ・コーポレーション (BASF Corporation) から入手可能なエコフレックス (Ecoflex) (登録商標) ポリエステルおよびイレ・ケミカル・カンパニー (Ire Chemical Company) から入手可能なエンポル (EnPol) (登録商標) ポリエステル；昭和高分子株式会社製のバイオノール (Bionolle) (登録商標) 1001ポリ (1,4-ブチレンスクリシネット)、昭和高分子株式会社製のバイオノール (登録商標) 3001ポリ (エチレンスクリシネット) およびポリ (1,4-ブチレンアジペート-コ-スクリシネット)；ならびにイレ・ケミカル・カンパニー製のエンポル (登録商標) ポリ (1,4-ブチレンアジペート) のような脂肪族ポリエステル；バイオノール (登録商標)、昭和高分子株式会社、三井東圧株式会社、日本触媒株式会社、チエイル・シンセチックス・カンパニー (Cheil Synthetics Company)、イーストマン・ケミカル・カンパニー、およびサンキオン・インダストリーズ・カンパニー (Sunkyon Industries Company) によって販売されているポリマー；例えば、バイエル・カンパニー (Bayer Company) によって販売されているバック (Bak) (登録商標) ポリ (アミドエステル) のようなポリ (アミドエステル)；PAC・ポリマーズ・カンパニー (PAC Polymers Company) によって販売されているポリ (エチレンカーボネート) のようなポリカーボネート；モンサント・カンパニー (Monsanto Company) によって販売されている例えばバイオポール (Biopol) (登録商標) ポリカーボネートなどの、ポリ (ヒドロキシブチレート)、ポリ (ヒドロキシバレート)、ポリ (ヒドロキシブチレート-コ-ヒドロキシバレート) のようなポリ (ヒドロキシアルカノエート)；例えば、H100J、S100、およびT100のグレード呼称で三井化学株式会社によって販売されているようなポリ (ラクチド-コ-グリコリド-コ-カプロラクトン)；ポリ (カプロラクトン)、例えば、ユニオン・カーバイド・カンパニー (Union Carbide Company) によって販売されているトーン (Tone) (登録商標) ポリ (カプロラクトン)、およびダイセル化学工業株式会社およびソルベー・カンパニー (Solvay Company)

10

20

30

40

50

によって販売されているような；およびポリ(ラクチド)、例えばカーギル・ダウ・カンパニー(Cargill Dow Company)によって販売されているようなエコプラ(EcoPLA)(登録商標)ポリ(ラクチド)およびダイニッポン・カンパニー(Dianippon Company)によって販売されているポリ(ラクチド)、ならびにそれらから誘導される混合物が挙げられる。

## 【0048】

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

## 【0049】

ブレンド可能な天然ポリマー材料の例には、デンプン、デンプン誘導体、変性デンプン、熱可塑性デンプン、カチオンデンプン、アニオンデンプン、デンプンアセテートのようなデンプンエステル、デンブンヒドロキシエチルエーテル、アルキルデンプン、デキストリン、アミンデンプン、ホスフェートデンプン、ジアルデヒドデンプン、セルロース、セルロース誘導体、変性セルロース、セルロースアセテート、セルロースジアセテート、セルロースプロピオネート、セルロースブチレート、セルロースバレレート、セルローストリアセテート、セルローストリプロピオネート、セルローストリブチレートのようなセルロースエステル、およびセルロースアセテート・プロピオネートおよびセルロースアセテート・ブチレートのようなセルロース混合エステル、メチルヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシメチルエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、メチルセルロース、エチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、およびヒドロキシエチルプロピルセルロースのようなセルロースエーテル、多糖類、アルギン酸、アルギネット、フィココロイド、寒天、アラビアゴム、グァーゴム、アカイアゴム(acacia gum)、カラギナンゴム、フルセラランゴム、ガティゴム、オオバコゴム、マルメロゴム、タマリンドゴム、イナゴマメゴム、カラヤゴム、キサンタンゴム、トラガカントゴム、タンパク質、ゼイン(Zein)(登録商標)プロラミン(トウモロコシから誘導された)コラーゲン(動物結合組織および骨から抽出された)ならびにゼラチンおよび膠のようなその誘導体、カゼイン、ヒマワリタンパク質、卵タンパク質、大豆タンパク質、植物性ゼラチン、グルテン、ならびにそれらから誘導される混合物が挙げられる。熱可塑性デンプンは、例えば、米国特許公報(特許文献19)に開示されているように製造することができる。彼らは、デンプンがほとんどまたは何の結晶性も持たず、低いガラス転移温度および低い含水率を有するようなやり方での、天然デンプンまたは変性デンプンとグリセリンまたはソルビトールのような高沸点可塑剤との混合および加熱を開示している。任意の相溶性ポリマー

10

20

30

40

50

材料を、スルホン化脂肪族 - 芳香族ポリエステルとブレンドすることができる。

【0050】

コポリエステルとブレンドされるべきポリマー材料は、コポリエステルを形成するための成分の重合中の任意の段階で、または重合が完了した後に、コポリエステルに加えることができる。例えば、ポリマー材料は、重合工程の開始時にコポリエステルモノマーと共に加えることができる。あるいはまた、ポリマー材料は、重合の中間段階で、例えば、ブレ縮合物が重合容器中へ通る時に加えることができる。その上さらなる代替案として、ポリマー材料は、コポリエステルが重合器を出た後で加えることができる。例えば、コポリエステルおよびポリマー材料は、静的ミキサーまたは単軸 - もしくは二軸 - スクリュー押出機のような任意の強烈な混合操作に溶融供給し、配合することができる。

10

【0051】

コポリエステルとポリマー材料とのブレンドのその上さらなる製造方法として、コポリエステルは、後のポスト重合工程でポリマー材料と組み合わせることができる。典型的には、かかる方法は、溶融したコポリエステルとポリマー材料との強烈な混合を含む。強烈な混合は、静的ミキサー、ブラベンダーミキサー、単軸スクリュー押出機、および二軸スクリュー押出機によって提供することができる。典型的には、コポリエステルは乾燥される。ポリマー材料もまた乾燥することができる。乾燥コポリエステルは次にポリマー材料と混合することができる。あるいはまた、コポリエステルおよびポリマー材料は、2つの異なる供給機によって共供給することができる。押出工程では、コポリエステルおよびポリマー材料は、押出機の逆供給セクション中へ供給することができる。コポリエステルおよびポリマー材料は、押出機の2つの異なる場所へ有利に供給することができる。例えば、コポリエステルは、押出機の逆供給セクションに加えることができ、一方、ポリマー材料はダイプレートに近い押出機の最前部に供給される（「側面詰め込みされる」）。押出機温度プロフィールは、加工条件下でコポリエステルを溶融させるようにセットされる。スクリューデザインはまた、それが溶融したコポリエステルをポリマー材料と混合する時に、樹脂に応力、そして順に、熱も提供する。あるいはまた、ポリマー材料は、下記のように、フィルムおよびコーティングの形成中にポリエステルとブレンドすることができる。

20

【0052】

スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルは、多種多様な造形品の成形に使用することができる。スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルから製造された造形品は、公知のスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルから製造された造形品のそれらより大きい熱的性質を有する。コポリエステルから製造することができる造形品の例には、フィルム、シート、繊維、メルトブローン容器、食事用器具類のような成形部品、発泡部品、基材上へのポリマー溶融押出コーティング、および基材上へのポリマー溶液コーティングが挙げられる。スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むかかる造形品は、任意の公知の方法を用いて製造することができる。

30

【0053】

スルホン化脂肪族 - 芳香族ポリエステルはまた、フィルムおよびフィルムに由来する物品をはじめとする他の物品の形成にも有用である。かかるフィルムは、例えば、特に食料品のパッケージング、接着剤、粘着テープ、絶縁体、キャパシター、誘電絶縁体、写真現像、およびx - 線現像でのような、ならびにラミネートとしての、様々な用途に好適である。幾つかの用途にとって、フィルムの耐熱性は重要な因子である。かかる用途にとって、より高い融点、ガラス転移温度、および結晶性レベルは、速い生分解速度と共に、より良好な耐熱性とより安定な電気的特性とを提供するために望ましい。さらに、フィルムは、引張強度および好適にも高い破断伸びだけでなく、例えば、湿気バリア性、酸素バリア性および二酸化炭素バリア性、耐油性のような、意図される用途にとって十分なバリア性を有することが望ましい。コポリエステルのモノマー組成は、フィルムの形成に望ましい部分結晶性ポリマーであって、結晶性が強度と弾性とを提供するポリマーをもたらすように好ましくは選ばれる。製造されたままで、コポリエステルは構造の点で一般に半結晶性

40

50

である。結晶性は、フィルムの製造で起こるような、ポリマーの再加熱および／または延伸で増加する。

#### 【0054】

フィルムは、任意の公知のフィルム形成方法によってコポリエステルから製造することができる。例えば、薄いフィルムは、米国特許公報（特許文献20）に開示されているような浸漬コーティングによって、米国特許公報（特許文献21）に開示されているような圧縮成形によって、米国特許公報（特許文献22）に開示されているような溶融押出によって、米国特許公報（特許文献23）に開示されているようなメルトブローリングによって、または他の公知の方法によって形成することができる。フィルムとシートとの相違は厚さであるが、いつフィルムがシートになるかに関しては何の設定工業標準もない。本明細書で用いるところでは、フィルムは厚さが0.25mm（10ミル）以下であり、好ましくは、約0.025mm～約0.15mm（1ミル～6ミル）である。しかしながら、より薄いフィルムは約0.50mm（20ミル）の厚さ以下に形成することができる。

#### 【0055】

フィルムは、溶液キャスティングか押出かのいずれかによってコポリエステルから好ましくは形成される。押出は、長尺物として出てくるフィルムおよびシートのような、「エンドレス」製品の形成に特に好ましい。押出では、ポリマー材料は、溶融ポリマーとして提供されようと、プラスチックペレットまたは顆粒として提供されようと、流動化され、均質化される。必要ならば、熱またはUV安定剤、可塑剤、フィラーおよび／またはブレンド可能なポリマー材料のような添加剤を添加することができる。流動化ポリマーは次に、所望の断面フィルム形状を生み出すために好適形状のダイを通って押し進められる。押出力は、ピストンもしくはラム（ラム押出）によって、または回転スクリュー（スクリュー押出）によって働かせることができ、それはシリンダー内で作動し、シリンダー内で材料は加熱され、可塑化され、そしてそれからそれは次に連続流れでダイを通って押し出される。単軸スクリュー、二軸スクリュー、または多軸スクリュー押出機を用いることができる。異なる種類のダイを用いて、ローンフィルム（ローン押出のためのブローヘッドによって形成される）、シートおよびストリップ（スロットダイを用いて形成される）ならびに中空および中実切り口（円形ダイを用いて形成される）のような、様々な製品を製造することができる。様々な幅および厚さを有するフィルムを製造することができる。押出後に、ポリマーフィルムは、ローラーに巻き取られ、冷却され、フィルムのその後の変形も防ぐようにデザインされた好適な装置を用いて取り外される。

#### 【0056】

公知の押出機を用いて、フィルムは、ポリマーの薄層をチルドロール一面に押し出し、次にテンションロールによってフィルムを適切な大きさにさらにドローダウンすることによって製造することができる。押出キャスティング法では、ポリマー溶融物は押出機からスロットダイ（T-形状または「コートハンガー」ダイ）を通って運ばれる。ダイは、10フィートほどに広いものであることができ、典型的には、内部圧力によるリップのたわみを最小にするために最終ランド上に厚い壁セクションを有する。ダイ開口部は広範囲内にあることができるが、0.015インチ～0.030インチが典型的である。新生キャストフィルムは、フィルムを巻き取るロールの速度に依存して、ドローダウンし、著しく薄くすることができる。フィルムは次に結晶融点またはガラス転移温度より下に冷却することによって凝固する。冷却は、フィルムを、水浴中または水冷のために芯を抜き取られている2つ以上のクロムメッキ・チルロール上方を通過させることによって成し遂げることができる。キャストフィルムは次にニップロール、エッジを取り除くためのスリッターを通って運ばれ、次に巻き取られる。キャストフィルムでは、条件は、特に高いドローダウン条件および巻取速度で、縦方向に比較的高い程度の配向を、そして横方向にはるかにより低いレベルの配向を可能にするように調整することができる。あるいはまた、条件は配向のレベルを最小にするように調整することができ、こうして縦方向および横方向の両方で実質的に同等の物理的性質を有するフィルムを提供する。好ましくは、完成フィルムは厚さが約0.25mm以下である。また好ましくは、完成フィルムは厚さが少なくとも

10

20

30

40

50

約0.015mmである。より好ましくは、フィルム厚さは約0.025～約0.15mmである。

#### 【0057】

キャストフィルムより一般に強くて強靭であり、そして容易に製造することができるプローンフィルムは、チューブを押し出すことによって製造される。プローンフィルムの製造では、溶融ポリマーのメルトフローは典型的には押出機から上向きになり、環形状開口部を有する環状ダイを通って供給される。溶融物はマンドレルの周りを流れ、チューブの形の環形状開口部を通って出てくる。チューブがダイを出る時、内部圧力がダイ・マンドレルを通した空気の導入によって加えられ、それはチューブをダイ直径の約1.5～約2.5倍まで膨張させ、同時にフィルムを延伸してフィルムの厚さの低下をもたらす。気泡中に含有される空気は、それが一端をダイによって、他端をニップロール（またはピンチロールとも呼ばれる）によって密封されているので、脱出することができない。望ましくは、一様な空気圧力がフィルム気泡の一様な厚さを確保するために維持される。チューブ状フィルムは、フィルム上へ空気を導くことによって内部でおよび／または外部で冷却することができる。プローンフィルム法でのより速い急冷は、膨張したフィルムを気泡内側に置かれている冷却マンドレルの回りを通過させることによって成し遂げることができる。例えば、冷却マンドレルを用いるかかる一方法は、ブンガ（Bung a）らによって（特許文献24）に開示されている。プローンフィルムを製造するために使用中のポリマーが半結晶性である場合、気泡は、それがポリマーの軟化点より下に冷えるにつれて曇ってく 10 るかもしれない。押出物のドローダウンは必須ではないが、好ましくはドローダウン比は2～40である。ドローダウン比は、ダイギャップ対冷却されたフィルムの厚さとプロー 20 -アップ比との積の比として定義される。ドローダウンは、ピンチロールからの張力によ 30 って誘起することができる。プロー-アップ比は、冷却されたフィルム気泡の直径対円形ダイの直径の比である。プロー-アップ比は4～5ほどに大きいものであることができるが、2.5のプロー-アップ比がより典型的である。ドローダウンは縦方向（すなわち、押出物流れの方向）にフィルムで分子配向を誘起し、プロー-アップ比は横または輪方向にフィルム中に分子配向を誘起する。急冷された気泡は、ガイド装置を通って、それを平たくするピンチロールのセット中へと上方へ移動する。生じたスリープをその次に一側面に沿って細長く切り、キャストフィルム法によって便利に製造することができるであろうよりも大きなフィルム幅を提供することができる。スリットフィルムはインラインでガセットを付け、表面処理することができる。

#### 【0058】

あるいはまた、プローンフィルムは、ダブルバブル、テープバブル、または捕捉バブル法のような、もっと複雑な技術によって製造することができる。ダブルバブル法は、ポリマー-チューブが先ず急冷され、次に再加熱され、ポリエステルが結晶性である場合、ポリマー-チューブをポリエステルのガラス転移温度（Tg）より上だが、結晶溶融温度（Tm）より下で膨らませることによって配向させられる技術である。ダブルバブル技術は、例えば、パークル（Pahk le）によって米国特許公報（特許文献25）に開示されている。

#### 【0059】

プローンフィルムを製造するために用いられる条件は、ポリマーの化学的組成、使用される例えば可塑剤などの添加剤の量およびタイプ、ならびにポリマーの熱的性質のような因子の組み合わせによって決定される。しかしながら、プローンフィルム法は、気泡中の空気の容量およびスクリューの速度を変えることによるフィルム幅および内径の変更の比較的容易さ、末端効果の排除、ならびに製造時にフィルム中に二軸配向を提供する可能性のような利点を提供する。プローンフィルム操作からの典型的なフィルム厚さは約0.04～0.008インチの範囲にあることができ、フラットフィルム幅は細長く切った後に24フィート以下またはそれ以上に及ぶことができる。

#### 【0060】

大量のフィルムを製造するために、圧延カレンダーを用いることができる。粗いフィル

10

20

30

40

50

ムが、カレンダー（反対方向に回転し、ポリマーを広げ、必要とされる厚さにそれを延伸する多数の加熱可能な平行の円筒ローラーを含む機械）のギャップ中へ供給される。最終ローラーはこのように製造されるフィルムを平滑にする。フィルムがテクスチャ加工表面を有することが必要とされる場合、最終ローラーは適切なエンボス化パターンを備えている。あるいはまた、フィルムは、再加熱し、次にエンボス化カレンダーを通過させることができる。カレンダーに1つまたは複数の冷却ドラムが続く。最後に、完成フィルムは巻き取られる。

### 【0061】

押出フィルムはまた、他の製品の出発原料として使用することができる。例えば、フィルムは、射出成形のような他の加工方法用の供給原料としての使用のために小さなセグメントへカットすることができる。さらなる例として、フィルムは、下記のように基材上へ積層することができる。その上さらなる例として、フィルムは公知の方法を用いて金属化することができる。ローンフィルム操作から入手可能なフィルムチューブは、例えば、ヒートシーリング法によってバッグに変換することができる。押出法は、拡張した汎用性のために様々なポスト押出操作と組み合わせることができる。かかるポスト成形操作には、当業者に公知の方法を用いる、卵形状への円形の変更、異なる寸法へのフィルムのブローリング、機械加工および穴あけ、ならびに二軸延伸が含まれる。

### 【0062】

フィルムはまた、溶融押出が生み出すよりも一貫して一様な厚さのフィルムを生み出す溶液キャスティングによって製造することができる。溶液キャスティングには、ポリマー顆粒または粉末を、任意選択的に可塑剤または着色剤のような任意の所望の調合剤と共に好適な溶媒に溶解する工程が含まれる。溶液は、夾雑物および/または大きな粒子を除去するために濾過され、スロットダイから、好ましくはステンレススチールの移動ベルト上へキャストされ、乾燥され、その結果フィルムは冷える。押出物厚さは完成フィルムのそれの5~10倍である。フィルムは次に、押出フィルムと似たやり方で仕上げることができる。当業者は、ポリマー組成物およびフィルム形成に用いられた方法に依存して適切なプロセス・パラメーターを決定することができる。溶液キャストフィルムは次に、押出キャストフィルムについて記載されたもののようなポスト成形処理にさらすことができる。

### 【0063】

2層、3層、および多層フィルム構造体のような、多層フィルムもまた、コポリエステルから製造することができる。多層フィルムの一利点は、コストの高くない原料を内層に使用できるままに、よりコストの高い原料をフィルムの特性に最大の影響を及ぼし得る外層中へ組み入れることによって特定の性質を決定的に重要な用途ニーズを解決するためにフィルム中へ調整できることである。多層フィルムは、共押出、ローンフィルム法、浸漬コーティング、溶液コーティング、刃、パドル、エアナイフ、印刷、ダールグレン（D a h l g r e n）、グラビア印刷、粉体塗装、吹き付け塗り、または他の公知の方法によって形成することができる。一般に、多層フィルムは押出キャスティング法によって製造される。例示的な方法では、ポリマーは、添加剤のような他の任意の材料と共に一様なやり方で加熱されて溶融し、溶融ポリマーおよび任意の他の材料は、溶融材料を組み合わせて多層共押出構造体を形成する共押出アダプターに搬送される。層状ポリマー材料は、一般に約0.05インチ（0.13cm）~0.012インチ（0.03cm）の、予め定められたギャップに開かれた押出ダイを通って移動する。材料は次に、約15~55（60~130°F）の範囲の温度内に典型的には維持された一次チルロールまたはキャスティングロールによって意図されるゲージ厚さにドローダウンされる。典型的なドローダウン比は約5:1~約40:1の範囲である。多層フィルムの層は、バリア層、接着層、ブロックキング防止層として、および/または他の目的のために機能することができる。さらに、例えば、米国特許公報（特許文献26）および米国特許公報（特許文献27）に開示されているように、内層はフィラー入りであることができ、外層はフィラー入りでないことができる。多層フィルム製造方法は、例えば、米国特許公報（特許文献28）、米国特許公報（特許文献29）、米国特許公報（特許文献30）、米国特許公報（特許文献3

10

20

30

40

50

1) 、および米国特許公報(特許文献27)に開示されている。エル-アファンジ(E 1 - A f a n d i)らは、米国特許公報(特許文献32)、米国特許公報(特許文献33)、および米国特許公報(特許文献34)に、コアのポリ(ラクチド)層、内層、および脂肪族ポリエステルのプロッキング低減層の外層を持った堆肥化可能な多層フィルムを開示している。

【0064】

このように、コポリエステルを含有する1つまたは複数の層と、1つまたは複数の追加の層とを含む多層構造体を製造することができる。用語「追加の層」は本明細書では、本発明の脂肪族-芳香族コポリエステルを含有する単層以外の層を意味するために用いられる。追加の層は、コポリエステルおよび/または生分解性であるもしくは生分解性でないことができる他の材料を含有することができる。材料は、天然由来品、変性天然由来品または合成品であることができる。追加の層として好適な生分解性材料の例には、ブレンドでの使用について本明細書で上に開示された生分解性材料が挙げられる。追加の層として好適な非生分解性ポリマー材料の例には、ブレンドでの使用について本明細書で上に開示された非生分解性材料が挙げられる。追加の層として好適な天然ポリマー材料の例には、ブレンドでの使用について本明細書で上に開示された天然材料が挙げられる。追加の層は、多層構造体での使用について公知の任意の好適な材料から形成することができる。

【0065】

フィルムがどのように形成されるかにかかわらず、それは、形成後に縦方向および横方向の両方に延伸することによって二軸配向にかけることができる。縦方向延伸は、フィルムを単に広げ、巻き取ることによってフィルムを形成することで開始される。これはフィルムを本質的に巻取の方向に延伸し、纖維の幾らかを配向させる。これはフィルムを縦方向に強くするが、纖維のすべてが一方向に配向するので、それは、フィルムが縦方向に直角の方向に容易に裂けるのを可能にする。

【0066】

二軸延伸は、フィルムの平面に平行に纖維を配向させるが、纖維をフィルムの平面内にランダムに配向させたままにする。これは、例えば、非配向フィルムと比較して、増加した引張強度、柔軟性、強靭性および収縮性を提供する。フィルムを互いに直角の2軸に沿って延伸することが望ましい。これは、延伸の方向に引張強度および弾性率を高める。各方向の延伸の量が実質的に等しいことが好ましく、それによってフィルムが任意の方向から試験された時にフィルム中に観察される類似の特性を提供する。しかしながら、ラベルまたは粘着および磁気テープのように、ある量の収縮または一方向で他方より大きな強度が望まれるもののような、ある種の用途は、フィルムの纖維の一様でない、また一軸配向とも言われる配向を必要とする。

【0067】

二軸配向は任意の公知の方法によって得ることができる。しかしながら、材料を加熱しながら縦方向の延伸と同時に、またはそれに引き続いて横方向に延伸する、幅出しが好ましい。配向は入手可能な商業装置で行うことができる。例えば、好適な装置は西独國のブルックナー・マシェネンbau (Bruckner Maschinenbau of West Germany) から入手可能である。かかる装置の一例は、延伸されるべきシートのエッジで固定し、そして適切な温度で、制御された速度でシートのエッジを引き離すことによって動作する。例えば、フィルムは、そのガラス転移温度より上に加熱された温度制御ボックス中へ供給し、延伸張力(縦延伸)および拡大張力(横延伸)を同時に加えるテンターフックでどちらかの側面を掴むことができる。典型的には、3:1~4:1の縦方向および長さ方向での延伸比を用いることができる。あるいはまた、そして幾つかの商業目的のために好ましくは、二軸延伸法は、ブルックナーから入手可能なもののような多段階ロール延伸装置で高生産速度で連続的に行われ、それによって押出フィルム素材の延伸は、異なる増加しつつある速度で回転している加熱ロール間の一連の工程で起こる。延伸温度と延伸速度との適切な組み合わせが用いられる時、縦方向の一軸延伸は好ましくは約4~約20、より好ましくは約4~約10である。二軸配向フィルムはさらに、引張

として知られる方法で、縦方向のフィルムの追加延伸にかけることができる。

【0068】

一軸配向は、上記の二軸法と同じやり方でたった1つの方向にフィルムを延伸することによって、またはロードアイランド州プロビデンスのマーシャル・アンド・ウィリアムス・カンパニー (Marshall and Williams Company of Providence, Rhode Island) のような供給業者から商業的に入手可能であるような、縦方向配向機（「MDO」）を通してフィルムを導くことによって得ることができる。MDO装置は、装置を通るフィルムの移動の方向である縦方向にフィルムを徐々に延伸し、薄くする複数の延伸ローラーを有する。

【0069】

延伸に適切な温度は部分的には延伸の速度に依存する。好ましくは、延伸はフィルム中のポリマーのガラス転移温度より少なくとも10高い温度で実施され、同様に好ましくは、ポリマーのビカ（Vicat）軟化温度より下で、より好ましくはビカ軟化温度より少なくとも10低い温度で実施される。

【0070】

配向は、プローアップ比を調節することによってローンフィルム操作で高めることができる。例えば、バッグまたはラップの製造のためには1~5のBURを有することが一般に好ましい。しかしながら、好ましいBURは、縦方向および/または横方向で望まれる特性のバランスに依存して変わり得る。バランスのとれたフィルムのためには、約3:1のBURが一般に適切である。「スプリッティ」フィルム、すなわち、一方向に容易に裂けるフィルムを手にすることが望まれる場合、その時は1:1~約1.5:1のBURが一般に好ましい。収縮は、フィルムを延伸位置に保持し、急冷前に2、3秒間加熱することによって制御することができる。加熱は配向フィルムを安定化させ、配向フィルムは次に熱安定化温度より上の温度でのみ収縮するよう強いることができる。さらに、フィルムはまた、ローリング、カレンダー掛け、コーティング、エンボス化、印刷、または任意の他の典型的な仕上げ操作にかけることができる。任意の方法によるフィルム製造に好ましいプロセス条件およびパラメーターは、任意の所与のポリマー組成物および所望の用途について熟練工によって決定され得る。

【0071】

フィルムの特性は、ポリマー組成物、ポリマーの形成方法、フィルムの形成方法、およびフィルムが延伸のために処理されたか二軸配向されたかどうかをはじめとする、上述されたような幾つかの因子に依存する。これらの因子は、収縮、引張強度、破断伸び、衝撃強度、絶縁耐力および誘電率、引張弾性率、耐化学薬品性、融点、ならびに加熱たわみ温度のようなフィルムの特性に影響を及ぼす。フィルム特性はさらに、上に列挙されたような、例えば着色剤、染料、UVおよび熱安定剤、酸化防止剤、可塑剤、滑剤、ブロッキング防止剤、およびスリップ剤などの添加剤およびフィラーをコポリエステルに添加することによって調節することができる。あるいはまた、スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルは、上記のような、ある種の特性を改善するために1つまたは複数の他のポリマー材料とブレンドすることができる。米国特許公報（特許文献35）に、モス（Moss）、米国特許公報（特許文献36）に、ハフナー（Haffner）ら、および（特許文献37）にマックコーマック（McCormack）によって、ならびに米国特許公報（特許文献38）、米国特許公報（特許文献39）、および米国特許公報（特許文献18）に開示されているように、必要ならば、フィルム、特にフィラー入りフィルムは微小孔性に成形することができる。当業者に公知であるように、フィラー入りフィルムの延伸は、フィルムが空気および水蒸気を通過させるが、液体および粒状物質へのバリアとして役立つことを可能にする細孔を生み出すことができる。印刷性（インク受容力）、粘着性または他の望ましい特性を高めるために、フィルムは、例えば、コロナ放電、化学処理、または火炎処理のような、公知の通常のポスト成形操作によって処理することができる。

【0072】

フィルムは多種多様な用途で有用である。例えば、フィルムは、使い捨ておむつ、失禁

10

20

30

40

50

ブリーフ、女性パッド、生理用ナプキン、タンポン、タンポンアプリケーター、乗物酔いバッグ、おむつカバー、および個人吸収製品のような個人衛生用品の構成部品として使用することができる。コポリエステルを含むフィルムは、漏洩を回避するための優れた水バリア性を優れた強靭性と組み合わせて容易に身体に適合し、かつ、使用中に身体の動きと共に伸長する。それらの使用後に、物品は、適切に廃棄された時にはバイオ堆肥化するであろう。さらなる例として、フィルムは、マルチフィルムのような農業用保護フィルム、種子カバー、種子を含有する農業マット（「種子テープ」）、生ごみおよび芝生廃棄物バッグ、粘着テープ基材、バッグ、バッグクロージャ、ベッドシート、ボトル、カートン、ごみ袋、布柔軟仕上げシート、衣装袋、工業バッグ、くず袋、廃棄物ごみ箱ライナー、堆肥袋、ラベル、札、ピローケース、ベッドライナー、便器ライナー、包帯、ボックス、ハンカチ、パウチ、ワイプ、防護服、手術衣、手術シート、手術スポンジ、仮囲い、仮羽目板、おもちゃ、およびワイプとして使用することができる。  
10

## 【0073】

スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むフィルムの好ましい用途は、特にファストフード・パッケージング用の食品パッケージングにある。食品パッケージング用途の具体的な例には、ファストフード包装材料、ストレッチラップフィルム、密封シール、食品袋、スナックバッグ、食料雑貨入れ袋、コップ、トレー、カートン、ボックス、ボトル、クレーント、食品パッケージングフィルム、プリスター・パック包装材料、およびスキンパックが挙げられる。

## 【0074】

ポリエステルから製造された好ましい食品パッケージングの具体的な例はラップである。スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むラップは、肉類、他の傷みやすい品目、ならびに、例えば、サンドイッチ、バーガー、およびデザート品目のような、特にファストフード品目を囲むために使用することができる。望ましくは、コポリエステルのフィルムは、ラップとして使用される場合に、食品品目を包むために使用される時に裂けないほどに十分な強靭性と組み合わされた紙のような剛性、いったん所望の形状へ折り畳まれ、包まれまたは別のやり方で操作されると、ラップがそれらの形状を維持し、自然に折り目が開くまたは包装を解く傾向がないような永久折り目特性、望まれる場合、耐脂性をはじめとする、物理的性質のバランスを兼ね備えるであろう。望ましくは、フィルムはまた湿気バリア性を提供し、その中に包まれた食品上へ湿気を凝縮させない。ラップは平滑な表面または、例えば、エンボス化、捲縮、キルティングによって生み出されるテクスチャ加工表面を有することができる。ラップは、例えば、無機粒子、例えばデンプンなどの有機粒子、およびフィラーの組み合わせのようなフィラーを含有することができる。フィルムはさらに加工して容器のような追加の望ましい物品を製造することができる。例えば、フィルムは、例えば、米国特許公報（特許文献40）、米国特許公報（特許文献41）、および米国特許公報（特許文献42）に開示されているように熱成形することができる。フィルムはまた、例えば、米国特許公報（特許文献43）、米国特許公報（特許文献44）、米国特許公報（特許文献45）、および米国特許公報（特許文献42）に開示されているような、真空スキンパック技術によって、肉類のような食品を包装するために使用することができる。フィルムはさらに、下記のように、基材上へ積層することができる。  
30

## 【0075】

スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルはまたコーティングでも有用である。コポリエステルを含有するコーティングは、ロール塗り、延展、吹き付け塗り、刷毛塗り、または流し込み法によってコポリエステルのポリマー溶液、分散系、ラテックス、または乳濁液で基材をコートし、引き続いて乾燥することによって；コポリエステルを他の材料と共に押出することによって；予め成形された基材上へ粉体塗装することによって、または予め成形された基材をコポリエステルで溶融／押出コートすることによって生み出すことができる。基材は一面上にまたは両面上にコートすることができる。ポリマーコートされた基材は、特に食料品のパッケージングでのよう、ならびに使い捨てコップ、プレート、ボウルおよび食事用器具類として、様々な用途を有する。幾つかの用途にとって、コーティ  
40

10

20

30

40

50

ングの耐熱性は重要な特性であり、より高い融点、ガラス転移温度、および結晶性の程度は、望ましくは速い生分解速度と共に、より良好な耐熱性を提供するために望ましい。さらに、コーティングは湿気、グリース、酸素、および二酸化炭素に対する良好なバリア性を提供し、かつ、良好な引張強度および高い破断伸びを有することが望ましいかもしれない。

#### 【0076】

コーティングは、コポリエステルから任意の公知コーティング法によって製造することができる。例えば、薄いコーティングは、米国特許公報（特許文献20）および米国特許公報（特許文献46）に開示されているように浸漬コーティングによって、例えば、米国特許公報（特許文献47）、米国特許公報（特許文献48）、米国特許公報（特許文献49）、米国特許公報（特許文献50）、米国特許公報（特許文献51）、および米国特許公報（特許文献52）に開示されているように基材上への押出によって、刃、パドル、エアナイフ、印刷、ダーラグレン、グラビア印刷、粉体塗装、吹き付け塗り、または他の公知の方法によって形成することができる。コーティングは任意の厚さのものであることができるが、好ましくは約0.25mm（10ミル）厚さかまたはそれより薄く、より好ましくは、約0.025mm～0.15mm（1ミル～6ミル）である。しかしながら、約0.50mm（20ミル）以下かまたはそれ以上の厚さを有する、より厚いコーティングを形成することができる。

#### 【0077】

様々な基材を直接コートすることができる。コーティングは好ましくは溶液、分散系、ラテックス、もしくは乳濁液キャスティングによって、粉体塗装によって、または予め成形された基材上へのコーティングの押出によって形成される。基材上への溶液キャスティングは、溶融押出よりも一貫して一様な厚さのコーティングを生み出す。溶液キャスティング法はフィルムの形成に関して本明細書で上に記載されている。コーティングは、連続運転延展コーティング機によって布地、不織布、フォイル、紙、板紙、および他のシート材料に塗布することができる。「ドクターナイフ」のようなコーティングナイフは、ローラーによって移動する基材上にコーティング（水または有機媒体中の溶液、乳濁液、または分散系の形の）の一様な延展を確実にする。コーティングは次に乾燥される。あるいはまた、ポリマー溶液、乳濁液、または分散系は、基材上へ吹き付け塗り、刷毛塗り、ロール塗りするまたは注ぎ込むことができる。例えば、ポツツ（Potts）は、米国特許公報（特許文献20）および米国特許公報（特許文献46）に、水不溶性材料の溶液での水溶性基材のコーティングを開示している。米国特許公報（特許文献53）は、水性ポリマー乳濁液での纖維状基材のコーティング法を開示している。

#### 【0078】

コポリエステルのコーティングはまた、粉体塗装法によって基材に塗布することができる。粉体塗装法では、ポリマーは細粒度を有する粉体の形で基材上へコートされる。コートされるべき基材はポリマーの溶融温度より上に加熱され、基材を、多孔性板を通った空気の通過によって流動化された粉体ポリマー床中へ浸漬することができる。流動床は典型的には加熱されない。ポリマーの層は熱い基材表面に付着し、溶融してコーティングを提供する。コーティング厚さは約0.005インチ～0.080インチ（0.13～2.00mm）の範囲にあることができる。他の粉体塗装法には、基材がコートされる後まで加熱されない吹き付け塗装、および静電塗装が含まれる。例えば、コップのような板紙容器は、米国特許公報（特許文献54）、米国特許公報（特許文献55）、米国特許公報（特許文献56）、米国特許公報（特許文献57）、および米国特許公報（特許文献58）に開示されているように、熱可塑性ポリマー粉体で静電吹き付け塗装することができる。容器は次に加熱され、ポリマー粉体を溶融させて積層ポリマーコーティングを形成する。

#### 【0079】

複雑な形状の金属物品はまた、回転焼結法を用いてコートすることができる。ポリマーの融点より上に加熱された物品は、ポリマー粒子が空気の上昇流れによって浮遊状態で保持されている粉体ポリマーの流動床中へ導入され、こうしてコーティングを焼結によって

10

20

30

40

50

金属上に沈積させる。

【0080】

コポリエステルを含有するコーティングはまた、溶融した噴霧ポリマー組成物を板紙のような基材上へ吹き付けることによって塗布することができる。かかる方法は、例えば、米国特許公報（特許文献59）、米国特許公報（特許文献60）、および米国特許公報（特許文献61）に、ワックスコーティングの塗布での使用について開示されており、コポリエステルのコーティングの塗布での使用に順応できる。

【0081】

好みしい実施形態では、基材上のコポリエステルのコーティングは、溶融または押出コーティング法によって形成される。押出は、長尺物として出てくるコート紙および板紙のようなコートされた「エンドレス」製品の形成に特に好みしい。押出コーティングに好適な押出法はフィルムの形成に関して本明細書で上に記載されている。押出コーティングでは、例えば、紙、フォイル、布、またはポリマーフィルムであり得る基材は、ポリマーを最大接着のために基材に含浸せしめるように、押し出されたポリマー溶融物と一緒に圧力ロールで圧縮される。基材上の溶融ポリマーは次に、水冷されたクロムメッキ・チルロールで冷却される。コートされた基材は次にエッジを取り除くためのスリッターを通過し、コートされた基材のその後の変形を防ぐようにデザインされた好適な装置を用いて取り外される。

【0082】

板紙上へのポリエステルの押出コーティングは、例えば、米国特許公報（特許文献62）、米国特許公報（特許文献63）、米国特許公報（特許文献64）、米国特許公報（特許文献65）、米国特許公報（特許文献66）、および米国特許公報（特許文献67）に開示されている。ケイン（Kane）は、米国特許公報（特許文献62）に、先にポリエステル積層された板紙から機械的に形成されたオーブンで使えるトレーの形成を開示している。チャフィ（Chaffey）らは、米国特許公報（特許文献68）に、両面上をポリマーでコートされた紙素材から形成されたコップの製造を開示している。ビーバース（Beavers）らは、米国特許公報（特許文献47）に、紙基材上へのある種のポリエステルの押出コーティングを開示している。押出コーティングのさらなる例として、ワイヤおよびケーブルは、斜頭から押し出されたポリマーフィルムで直接覆うことができる。

【0083】

カレンダー加工法もまた基材上へコーティングを生み出すために用いることができる。カレンダーは、水蒸気加熱または水冷のために配置された2、3、4、または5つの中空ロールよりなり得る。典型的には、カレンダー掛けされるべきポリマーは、例えば、バンバリーミキサーのようなリボン・ブレンダー中で軟化する。可塑剤のような他の成分を混ぜ入れることができる。軟化したポリマーは次にローラーに供給され、フィルムの形へ圧縮される。必要ならば、より厚いセクションは、ポリマーの1層を先の層上へ付けること（二重合わせ）によって形成することができる。布地もしくは不織布または紙のような基材は、フィルムが基材へプレスされるようにカレンダーの最後の2つのロールを通して供給される。ラミネートの厚さは、カレンダーの最後の2つのロール間のギャップによって決定される。表面は、光沢のある、艶のない、またはエンボス加工されたようにすることができます。コートされた基材は次に冷却され、ロールに巻き取られる。

【0084】

フィルムに関して本明細書で上に開示されたような、例えば2層、3層、および多層フィルム構造体などの、基材上へコートされた多ポリマー層もまた製造することができる。追加の層は、スルホン化脂肪族・芳香族コポリエステルまたは生分解性であるもしくは生分解性でない、天然由来品、変性天然由来品もしくは合成品であることができる他の材料を含有することができる。追加の層として好適な生分解性のおよび非生分解性の材料の例は、ブレンドの形成に関して本明細書で上に開示されている。同様に、多層コーティングでの使用に好適なポリマー材料も、ブレンドの形成に関して本明細書で上に開示されている。

10

20

30

40

50

## 【0085】

一般に、コーティングは約0.2~1.5ミル、典型的には0.5~2ミルの範囲の厚さに塗布される。基材は厚さの点で広く変わり得るが、約0.5~約2.4ミル厚さの範囲が一般的である。脂肪族・芳香族コポリエステルでのコーティングに好適な基材には、紙、板紙、ボール紙、ファイバーボード、セロファン(Cellobanane)(登録商標)セルロースのようなセルロース、デンプン、プラスチック、ポリスチレンフォーム、ガラス、金属、例えばアルミニウムまたは錫缶、金属フォイル、ポリマー・フォーム、有機フォーム、無機フォーム、有機・無機フォーム、およびポリマーフィルムでできた物品が含まれる。紙、板紙、ボール紙、セルロース、デンプン、ならびに例えば無機および無機・有機フォームなどのバイオ良性基材のような、生分解性基材が好ましい。基材として好適なポリマーフィルムは、脂肪族・芳香族コポリエステルおよび/または生分解性であるもしくは生分解性でない、天然由来品、変性天然由来品もしくは合成品である他のポリマー材料を含有することができる。好適なかかる材料は本明細書で上に既に開示されている。

## 【0086】

広範なデンプンおよび穀物から誘導されるような有機フォームは、基材として使用することができる。かかる材料は、例えば、米国特許公報(特許文献69)、米国特許公報(特許文献70)、米国特許公報(特許文献71)、米国特許公報(特許文献72)、米国特許公報(特許文献73)、米国特許公報(特許文献74)、米国特許公報(特許文献75)、米国特許公報(特許文献76)、米国特許公報(特許文献77)、および米国特許公報(特許文献78)に開示されている。材料の具体的な例には、ヒドロキシプロピル化デンプン製品である、エコフォーム(EcoFoam)(登録商標)、ニュージャージー州ブリッジウォーターのナショナル・スター・カンパニー(National Starch Company of Bridgewater, NJ)の製品、およびエンビロフィル(EnviroFil)(登録商標)、エンパック・カンパニー(EnPack Company)、デュポン・コンアグラ・カンパニー(DuPont-ConAgra Company)の製品が挙げられる。

## 【0087】

基材としての使用に好ましい有機・無機フォームは、例えば、炭酸カルシウム、粘土、セメント、または石灰岩のような無機フィラーで高度に充填された、そして例えば、米国特許公報(特許文献79)にアンダーセンらによって開示されているような、例えばジャガイモデンプン、コーンスター・チ、ロウ質コーンスター・チ、米デンプン、小麦デンプン、タピオカ、および少量の纖維などのデンプンベースのバインダーを有する気泡質フォームである。かかる材料は、石灰岩、ジャガイモデンプン、纖維および水のような原料を一緒に混合してバッターを形成することによって製造することができる。基材は、2つの加熱された金型の間でバッターをプレスすることによって形成される。バッター内に含有される水は水蒸気になり、金型内の圧力を上げ、発泡製品を形成する。かかるフォーム基材材料は、アースシェル・パッケージング・カンパニー(EarthShell Packaging Company)製の完成製品の形で商業的に入手可能である。該製品には、9-インチ・プレート、12-オンス・ボウルならびに開き蓋(hinged-lid)サンドイッチおよびサラダ容器(「クラムシェル」)が含まれる。

## 【0088】

無機および有機・無機フォーム基材はまた、例えば、米国特許公報(特許文献74)、米国特許公報(特許文献80)、米国特許公報(特許文献81)、米国特許公報(特許文献82)、米国特許公報(特許文献83)、米国特許公報(特許文献84)、米国特許公報(特許文献85)、米国特許公報(特許文献86)、米国特許公報(特許文献87)、米国特許公報(特許文献88)、米国特許公報(特許文献89)、米国特許公報(特許文献90)、米国特許公報(特許文献91)、米国特許公報(特許文献92)、米国特許公報(特許文献93)、米国特許公報(特許文献94)、米国特許公報(特許文献95)、米国特許公報(特許文献96)、米国特許公報(特許文献97)、米国特許公報(特許文献98)、米国特許公報(特許文献99)、米国特許公報(特許文献100)、米国特許

10

20

30

40

50

公報（特許文献 101）、米国特許公報（特許文献 102）、米国特許公報（特許文献 103）、米国特許公報（特許文献 104）、米国特許公報（特許文献 105）、米国特許公報（特許文献 106）、米国特許公報（特許文献 107）、米国特許公報（特許文献 108）、米国特許公報（特許文献 109）、米国特許公報（特許文献 110）、米国特許公報（特許文献 111）、米国特許公報（特許文献 112）、米国特許公報（特許文献 113）、米国特許公報（特許文献 114）、米国特許公報（特許文献 115）、米国特許公報（特許文献 116）、米国特許公報（特許文献 117）、米国特許公報（特許文献 118）、米国特許公報（特許文献 119）、米国特許公報（特許文献 120）、米国特許公報（特許文献 121）、米国特許公報（特許文献 122）、米国特許公報（特許文献 123）、米国特許公報（特許文献 124）、米国特許公報（特許文献 125）、米国特許公報（特許文献 126）、米国特許公報（特許文献 127）、米国特許公報（特許文献 128）、米国特許公報（特許文献 129）、米国特許公報（特許文献 130）、米国特許公報（特許文献 131）、米国特許公報（特許文献 132）、米国特許公報（特許文献 133）、米国特許公報（特許文献 134）、米国特許公報（特許文献 135）、米国特許公報（特許文献 136）、米国特許公報（特許文献 137）、米国特許公報（特許文献 138）、米国特許公報（特許文献 139）、米国特許公報（特許文献 140）、米国特許公報（特許文献 141）、米国特許公報（特許文献 142）、米国特許公報（特許文献 143）、および米国特許公報（特許文献 144）に開示されている。コーティングまたは積層のための基材としての使用について公知の本質的にいかなる材料もスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルでコートするための基材として使用することができる。

### 【0089】

コーティング工程を増進するために、基材は、コロナ放電；または例えばプライマー、火炎処理、接着剤などの化学処理のような、公知の通常のポスト成形操作によって処理することができる。基材は、例えば、ポリエチレンイミンの水溶液（アドコート（Adcote）（登録商標）313）、もしくはスチレン-アクリルラテックスで下塗りすることができ、または米国特許公報（特許文献 66）および米国特許公報（特許文献 145）に開示されているように火炎処理することができる。必要ならば、基材は、通常のコーティング技術によってまたは押出によって、接着剤でコートすることができる。基材へのコーティングの接着を高めるのに使用することができる接着剤の例には、膠、ゼラチン、カゼイン、デンプン、セルロースエステル、脂肪族ポリエステル、ポリ（アルカノエート）、脂肪族-芳香族ポリエステル、スルホン化脂肪族-芳香族ポリエステル、ポリアミドエステル、ロジン/ポリカプロラクトン・トリプロックコポリマー、ロジン/ポリ（エチレンアジペート）トリプロックコポリマー、ロジン/ポリ（エチレンスクリシネット）トリプロックコポリマー、ポリ（ビニルアセテート）、ポリ（エチレン-コ-ビニルアセテート）、ポリ（エチレン-コ-エチルアクリレート）、ポリ（エチレン-コ-メチルアクリレート）、ポリ（エチレン-コ-プロピレン）、ポリ（エチレン-コ-1-ブテン）、ポリ（エチレン-コ-1-ベンテン）、ポリ（スチレン）、ポリアクリレート、ロープレックス（Rhoplex）（登録商標）N-1031（ローム・アンド・ハース・カンパニー（Rohm & Haas Company）製のアクリルラテックス）、ポリウレタン、AS316（アドヒージョン・システムズ社（Adhesion Systems, Inc.）製の接着触媒）と共にAS390（アドヒージョン・システムズ社の水性ポリウレタン接着剤ベース）、エアフレックス（Airflex）（登録商標）421（架橋剤と調合された水系ビニルアセテート接着剤）、スルホン化ポリエステルウレタン分散系（バイエル・コーポレーション（Bayer Corporation）によってディスパーコル（Dispercol 11）（登録商標）U-54、ディスパーコル（登録商標）U-53、およびディスパーコル（登録商標）KA-8756として販売されているような）、非スルホン化ウレタン分散系（レイチヨルド・カンパニー（Reichold Company）によるアクアサン（Aquathane）（登録商標）97949およびアクアサン（登録商標）97959；エア・プロダクツ・カンパニー（Air Products Company）によるフレキサン（Flexthane）（登録商標）620お

10

20

30

40

50

およびフレキサン（登録商標）630；バスフ・コーポレーションによるルーフエン（Luphen）（登録商標）D DS3418およびルーフエン（登録商標）D200A；ゼネカ・レジンス・カンパニー（Zeneca Resins Company）によるネオレツツ（Neorez）（登録商標）9617およびネオレツツ（登録商標）9437；マーキンサ・カンパニー（Merquinsa Company）によるクイラスチック（Quilaastic）（登録商標）DEP170およびクイラスチック（登録商標）172；ビー・エフ・グッドリッチ・カンパニー（B.F.Goodrich Company）によるサンキュア（Sancure）（登録商標）1601およびサンキュア（登録商標）815のような）、ウレタン-スチレンポリマー分散系（エア・プロダクト・アンド・ケミカルズ・カンパニー（Air Products & Chemicals Company）のフレキサン（登録商標）790およびフレキサン（登録商標）791のような）、非イオンポリエステルウレタン分散系（ゼネカ・レジンス・カンパニーのネオレツツ（登録商標）9249のような）、アクリル分散系（イエーガー・カンパニー（Jager Company）によるジャゴテックス（Jagotex）（登録商標）KEA-5050およびジャゴテックス（登録商標）KEA5040；ビー・エフ・グッドリッチ・カンパニーによるハイカー（Hycar）（登録商標）26084、ハイカー（登録商標）26091、ハイカー（登録商標）26315、ハイカー（登録商標）26447、ハイカー（登録商標）26450、およびハイカー（登録商標）26373；ローム・アンド・ハース・カンパニーによるロープレックス（登録商標）AC-264、ロープレックス（登録商標）HA-16、ロープレックス（登録商標）B-60A、ロープレックス（登録商標）AC-234、ロープレックス（登録商標）E-358、およびロープレックス（登録商標）N-619のような）、シラン化アニオン性アクリレート-スチレンポリマー分散系（バスフ・コーポレーションによるアクロナル（Acronal）（登録商標）S-710およびスコット・ベイダー社（Scott Bader Inc.）によるテキシゲル（Texigel）（登録商標）13-057のような）、アニオン性アクリレート-スチレン分散系（バスフ・コーポレーションによるアクロナル（登録商標）296D、アクロナル（登録商標）NX4786、アクロナル（登録商標）S-305D、アクロナル（登録商標）S-400、アクロナル（登録商標）S-610、アクロナル（登録商標）S-702、アクロナル（登録商標）S-714、アクロナル（登録商標）S-728、およびアクロナル（登録商標）S-760；ビー・エフ・グッドリッチ・カンパニーによるカーボセット（Carboset）（登録商標）CR-760；ローム・アンド・ハース・カンパニーによるロープレックス（登録商標）P-376、ロープレックス（登録商標）P-308、およびロープレックス（登録商標）NW-1715K；レイチヨルド・ケミカルズ・カンパニー（Reichold Chemicals Company）によるシンセムル（Synthemul）（登録商標）40402およびシンセムル（登録商標）40403；スコット・ベイダー社によるテキシゲル（登録商標）13-57、テキシゲル（登録商標）13-034、およびテキシゲル（登録商標）13-031；ならびにエア・プロダクト・アンド・ケミカルズ・カンパニーによるヴァンクリル（Vancryl）（登録商標）954、ヴァンクリル（登録商標）937およびヴァンクリル（登録商標）989のような）、アニオン性アクリレート-スチレン-アクリロニトリル分散系（バスフ・コーポレーションによるアクロナル（登録商標）S886S、アクロナル（登録商標）S504、およびアクロナル（登録商標）DS2285Xのような）、アクリレート-アクリロニトリル分散系（バスフ・コーポレーションによるアクロナル（登録商標）35D、アクロナル（登録商標）81D、アクロナル（登録商標）B37D、アクロナル（登録商標）DS3390、およびアクロナル（登録商標）V275のような）、塩化ビニル-エチレン乳濁液（エア・プロダクト・アンド・ケミカルズ社によるヴァンクリル（登録商標）600、ヴァンクリル（登録商標）605、ヴァンクリル（登録商標）610、およびヴァンクリル（登録商標）635のような）、ビニルビロリドン/スチレンコポリマー乳濁液（ISPケミカルズ（ISP Chemicals）によるポレクトロン（Polectron）（登録商標）430のような）、カルボキ

シル化および非カルボキシル化ビニルアセテート・エチレン分散系（エア・プロダクト・アンド・ケミカルズ社によるエアフレックス（登録商標）420、エアフレックス（登録商標）421、エアフレックス（登録商標）426、エアフレックス（登録商標）7200、およびエアフレックス（登録商標）A-7216、ならびにICIによるドュル・オ・セット（Dur-o-set）（登録商標）E150およびドュル・オ・セット（登録商標）E-230のような）、ビニルアセテートホモポリマー分散系（ICIによるレジーン（Resyn）（登録商標）68-5799およびレジーン（登録商標）25-2828のような）、ポリ塩化ビニル乳濁液（ビー・エフ・グッドリッチ・カンパニーによるヴァイカー（Vycar）（登録商標）460×24、ヴァイカー（登録商標）460×6およびヴァイカー（登録商標）460×58のような）、ポリフッ化ビニリデン分散系（エルフ・アトケム（Elf Atochem）によるカイナー（Kynar）（登録商標）32のような）、エチレン・アクリル酸分散系（モートン・インターナショナル（Morton International）によるアドコーテ（登録商標）50T4990およびアドコーテ（登録商標）50T4983のような）、ポリアミド分散系（ユニオン・キャンプ・コーポレーション（Union Camp Corporation）によるミクロミッド（Micromid）（登録商標）121RC、ミクロミッド（登録商標）141L、ミクロミッド（登録商標）142LTL、ミクロミッド（登録商標）143LTL、ミクロミッド（登録商標）144LTL、ミクロミッド（登録商標）321RC、およびミクロミッド（登録商標）632HPLのような）、アニオン性カルボキシル化または非カルボキシル化アクリロニトリル・ブタジエン・スチレン乳濁液およびアクリロニトリル乳濁液（ビー・エフ・グッドリッチによるハイカー（登録商標）1552、ハイカー（登録商標）1562×107、ハイカー（登録商標）1562×117およびハイカー（登録商標）1572×64のような）、スチレンから誘導される樹脂分散系（ハーキュレス（Hercules）によるタコリーン（Taconlyn）（登録商標）5001およびピックコテックス（Picketex）（登録商標）LC-55WKのような）、脂肪族および/または芳香族炭化水素から誘導される樹脂分散系（エクソン（Exxon）によるエスコレツ（Escorez）（登録商標）9191、エスコレツ（登録商標）9241、およびエスコレツ（登録商標）9271のような）、スチレン・無水マレイン酸（アトケム（AtoChem）によるSMA（登録商標）1440HおよびSMA（登録商標）1000のような）、ならびにそれらから誘導される混合物が挙げられる。基材のコーティングでの使用について公知のいかなる接着剤も使用することができる。例として、基材は、膠、ゼラチン、カゼイン、またはデンプンのような生分解性接着剤バインダー層でコートすることができる。接着剤は、溶融法によってまたは溶液、乳濁液、分散系、もしくはコーティング法によって塗布することができる。例えば、米国特許公報（特許文献146）は、ポリエステル上面フィルムとアクリル酸、メタクリル酸、またはエタクリル酸のエステルの中間層との板紙上への共押出によって形成されるコート板紙を開示している。米国特許公報（特許文献147）は、ポリエステル層とポリマー接着剤層とを板紙基材上へ共押出する方法を開示している。フジタ（Fujita）らは、米国特許公報（特許文献148）に、オープンで使える板紙上へのポリエステルの押出コーティングでの接着剤の使用を開示している。ハフマン（Huffman）らは、米国特許公報（特許文献66）に、ポリエチレン・コート板紙上へのポリエステル層の押出を開示している。当業者は、コーティング形成のために用いられるポリマー組成物および方法、ポリマー組成物、ならびに意図される用途に基づいて適切なプロセス・パラメーターを特定することができる。

#### 【0090】

ポリマーコーティングによって示される特性は、ポリマー組成物、ポリマーの形成方法、コーティングの形成方法、およびコーティングが製造中に配向されたかどうかをはじめとする、上に示された幾つかの因子に依存する。これらの因子は、収縮、引張強度、破断伸び、衝撃強度、絶縁耐力および誘電率、引張弾性率、耐化学薬品性、融点、加熱たわみ温度のような、コーティングの多くの特性に影響を及ぼす。幾つかのコーティング特性は

10

20

30

40

50

、上に列挙されたような、例えば着色剤、染料、UVおよび熱安定剤、酸化防止剤、可塑剤、滑剤、ブロッキング防止剤、スリップ剤などの添加剤およびフィラーをポリマー組成物に添加することによって調節することができる。コーティングでの使用のためのスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルは、上記のような、ある種の特性を改善するために1つまたは複数の他のポリマー材料とブレンドすることができる。

### 【0091】

基材は、コーティング前に物品に成形することができ、またはコートされた後に物品に成形することができる。例えば、容器は、平らなコート板紙から最終所望形状へ真空成形のようなプレス成形法によって、またはそれらを折り畳み、接着することによって製造することができる。コートされた平らな板紙素材は、例えば、米国特許公報（特許文献149）に開示されているように、加熱および加圧によってトレーに成形する、または米国特許公報（特許文献47）に開示されているように、食品および飲料用の容器に真空成形することができる。物品には、例えば、食事用器具類、植木鉢、郵送用円筒、照明器具、アッシュトレー、ゲームボード、食品容器、ファストフード容器、カートン、ボックス、ミルクカートン、フルーツジュース容器、飲料容器用の運搬装置、アイスクリーム・カートン、カップ、使い捨て飲用カップ、ツーピース・カップ、ワンピース・ブリーツカップ、コーンカップ、コーヒーカップ、リッディング、蓋、ストロー、カップトップ、フレンチフライ容器、ファストフード持帰りボックス、パッケージング、サポートボックス、菓子箱、化粧品用ボックス、プレート、ボウル、ベンディングプレート、パイプレート、トレー、ベーキングトレー、朝食プレート、電子レンジで使えるディナートレー、「テレビ」ディナートレー、卵カートン、肉類包装大プレート、カップまたは食品容器のような容器で利用することができる使い捨て1回使用ライナー、実質的に球形の物体、ボトル、ジャー、クレート、皿、医薬バイアル、仕切りのような内部パッケージング、ライナー、アンカーパッド、角補強材、すみ金、クリアランスパッド、開きシート、トレー、じょうご、クッショニン材、および包装、保管、輸送、分割、給仕、または容器内物体の小分けに使用される他の物体が含まれ得る。耐水性ポリマーでコートされた紙および板紙は一般に、食料品用の包装材料で、および使い捨て容器として使用される。コーティングポリマーと耐水性ポリマーでコートされた紙および板紙を含む多層コーティング構造体とが、その中に包装された品目の良好な保存を確実にするために、良好な酸素、水蒸気、および芳香タイプをパッケージに与えるために開発してきた。

### 【0092】

脂肪族-芳香族コポリエステルのコーティングは多種多様な用途で有用である。例えば、コーティングは、本明細書で上に記載されたように、個人衛生品目の製造に、および農業用の保護フィルムとして使用することができる。コーティングのための用途のさらなる例には、粘着テープ基材、バッグ、バッグクロージャ、ベッドシート、ボトル、カートン、ごみ袋、布柔軟仕上げシート、衣装袋、工業バッグ、くず袋、廃棄物ごみ箱ライナー、堆肥袋、ラベル、札、ピローケース、ベッドライナー、便器ライナー、包帯、ボックス、ハンカチ、パウチ、ワイプ、防護服、手術衣、手術シート、手術スポンジ、仮囲い、仮羽目板、おもちゃ、およびワイプが挙げられる。

### 【0093】

スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルを含むコーティングの特に好ましい用途は、食品パッケージングに、特にその例が本明細書で上に開示されるファストフード・パッケージング用にある。コポリエステルのコーティングのための特に好ましい用途は、例えば、コポリエステルでコートされた紙でできていることができるラップの製造においてである。かかるラップは、上に開示されたように、食品品目を包むために使用することができる。望ましくは、コーティングは、食品品目を包むために使用される時に裂けないほどに十分な強靭性と組み合わされた紙のような剛性、いったん所望の形状へ折り畳まれ、包まれ、または別のやり方で操作されると、ラップがそれらの形状を維持し、自然に折り目が開くまたは包装を解く傾向がないような永久折り目特性、望まれる場合、良好な耐脂性、ならびにその中に含有される食品上へ湿気を凝縮させない湿気バリアをはじめとする、物

10

20

30

40

50

理的性質のバランスを提供する。ラップは平滑な表面またはエンボス化、捲縮、キルティングによるようなテクスチャ加工表面を有することができ、そして例えば、無機粒子、デンプンのような有機粒子、またはフィラーの組み合わせで充填され得る。

#### 【0094】

スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルは、積層された完成物品をはじめとするラミネートを製造するために使用することができる。上記のように製造されたスルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルを含むフィルムは、例えば熱成形、真空熱成形、真空積層、圧積層、機械積層、スキンパック、および接着積層のような公知の方法によって多種多様な基材上へ積層することができる。ラミネートは、ラミネートでは予め成形されたフィルムが基材に付けられるという点でコーティングと区別される。基材は、例えばプレート、コップ、ボウル、またはトレーの形でなど、最終用途形状へ造形することができ、またはシートもしくはフィルムのような、さらに成形されるべき中間形状にあることができる。フィルムは、例えば、加熱された接合ロールでのように、加熱および/または加圧によって基材に付けることができる。剥離強度とも言われるラミネート接合強度は、より高い温度および/または圧力の使用によって高めることができる。接着剤が使用される時、接着剤はホットメルト接着剤または溶剤系接着剤であることができる。積層プロセスを増進するために、フィルムおよび/または基材は、先に記載されたような、コロナ放電、例えばプライマーなどの化学処理、火炎処理のような、公知の通常のポスト成形操作によって処理することができる。例えば、米国特許公報（特許文献63）は、ポリ（エチレンテレフタレート）フィルムとの積層プロセスを増進するために板紙をコロナ放電にかけることを記載している。クイック（Quick）らは、米国特許公報（特許文献149）に、接着剤での紙素材への積層に役立つためのポリエステルフィルムのコロナ処理を開示している。シャーマー（Schirmer）は、米国特許公報（特許文献42）に、様々なブローンフィルム間の接着を助けるためのコロナ処理の使用を開示している。米国特許公報（特許文献150）および米国特許公報（特許文献151）は、ポリマー積層プロセス内で接着に役立つための火炎処理の使用を開示している。サンドストローム（Sandstrom）らは、米国特許公報（特許文献145）に、ポリマーラミネートとの接着性を改善するためのある種のスチレン - アクリル材料よりなる板紙基材プライマーの使用を開示している。

#### 【0095】

容器およびカートンとしての使用のためのポリマーコートされたまたは積層された紙および板紙基材の製造方法は公知であり、例えば、米国特許公報（特許文献152）、米国特許公報（特許文献153）、米国特許公報（特許文献154）、米国特許公報（特許文献155）、米国特許公報（特許文献156）、米国特許公報（特許文献157）、米国特許公報（特許文献158）、米国特許公報（特許文献159）、米国特許公報（特許文献160）、および米国特許公報（特許文献161）に記載されている。ケインは、米国特許公報（特許文献62）に、ポリエステルで先に積層された板紙から機械的に形成されたオーブンで使えるトレーの成形を開示している。シュミット（Schmidt）は、米国特許公報（特許文献162）に、紙コップのポリマーフィルム積層を開示している。不織布上へのフィルムの積層は、米国特許公報（特許文献36）および米国特許公報（特許文献27）に開示されている。ポリエステル積層基材の意図される用途に依存して、基材は、一面上でまたは両面上で積層することができる。

#### 【0096】

コポリエステルのフィルムは、加熱および圧力/ニップロールを通過させて平らな基材上へ積層することができる。あるいはまた、フィルムは、熱成形から派生した方法を用いて基材上へ積層することができる。かかる方法では、フィルムは、真空積層、圧積層、ブロー積層、または機械積層によって基材上へ積層することができる。フィルムが加熱される時、それらは軟化し、実質的に任意の形状の基材上へ引き伸ばすことができる。予め成形された基材へのポリマーフィルムの接着方法は、例えば、米国特許公報（特許文献163）に開示されている。真空積層では、フィルムを固定し、または単に基材に接して保持

10

20

30

40

50

し、次にそれが軟らかくなるまで加熱することができる。次に真空が典型的には多孔性基材またはデザイン・イン穴を通してかけられ、軟化したフィルムを基材の外郭中へ成形させ、基材上へ積層させる。ラミネートは次に成形されたままで冷却される。真空は、冷却プロセスの間ずっと維持することも維持しないこともできる。コップ、深いボウル、ボックス、およびカートンのような深絞りを必要とする基材形状については、プラグ・アシストを用いることができる。かかる基材形状では、軟化したフィルムは、それが基材形状のベースまたは底部に届く前にかなりまばらになる傾向があり、基材形状の底部上に薄いおよび弱いラミネートを残すにすぎない。プラグ・アシストは、積層がさもなければ薄すぎるであろう基材形状の区域の方へより多くのフィルム素材を運ぶ任意のタイプの機械ヘルパーである。プラグ・アシスト技法は、真空および圧積層法に適合させることができる。予め成形された基材上へのフィルムの真空積層法は公知であり、例えば、米国特許公報（特許文献 164）および米国特許公報（特許文献 165）に開示されている。クネール（Knoe11）は、米国特許公報（特許文献 166）に、折り畳まれた板紙カートン上へのフィルムの真空積層法を開示している。リー（Lee）らは、米国特許公報（特許文献 167）に、プレートのような、成形パルプ製品上への熱可塑性フィルムの真空積層を開示している。フォスター（Foster）らは、米国特許公報（特許文献 154）に、パルプ容器およびフィルムを予熱し、フィルムをプレスして基材と接触させ、成形パルプ容器基材を通して真空をかけることによる予め成形された成形パルプ容器上へのポリ（エチレンテレフタレート）フィルムの積層を開示している。プラグ・アシストされた真空積層法もまた公知であり、例えば、ウォムメルスドルフ（Wommelsdorf）ら、米国特許公報（特許文献 168）に、コートカップのような、深延伸ラミネートについて開示されている。ファーラー（Faller）は、米国特許公報（特許文献 169）および米国特許公報（特許文献 170）に、かかる方法による裏打ちトレーの製造法を開示している。

#### 【0097】

圧積層、真空積層への代替案では、フィルムを固定し、それが軟化するまで加熱し、次に基材の反対側のフィルム側面に圧力、例えば、空気圧をかけることによって、積層されるべき基材の外郭中へ押し進めることができる。排気穴は、トラップされた空気を脱出させるために存在することができ、または基材が空気に対して多孔性である場合、空気は基材を通って脱出する。空気圧は、いったん積層基材が冷え、フィルムが凝固すると、解除することができる。圧積層は、真空積層より速い生産サイクル、改善された部分鮮明度および大きな寸法制御を可能にする傾向がある。予め成形された基材上へのフィルムの圧積層法は公知であり、例えば、米国特許公報（特許文献 171）および米国特許公報（特許文献 165）に開示されている。ウォムメルスドルフは、米国特許公報（特許文献 172）に、ガスの暖かい加圧流れの使用による熱可塑性フォイルでの紙コップのような空気透過性容器の裏打ち方法を開示している。

#### 【0098】

さらなる代替案は、真空または空気圧を用いない任意の積層法を含む機械積層である。機械積層では、フィルムは加熱され、次に機械的に基材に付けられる。機械的付着の例には、金型または圧力ロールの使用を挙げられる。

#### 【0099】

積層用の好適な基材には、紙、板紙、ボール紙、ファイバーボード、セロファン（登録商標）セルロースのようなセルロース、デンプン、プラスチック、ポリスチレンフォーム、ガラス、例えば、アルミニウムもしくは錫缶または金属フォイルのような金属、ポリマー・フォーム、有機フォーム、無機フォーム、有機・無機フォーム、およびポリマー・フィルムの物品が含まれる。紙、板紙、ボール紙、セルロース、デンプンのような生分解性基材、ならびに無機および無機・有機フォームのようなバイオ良性基材が好ましい。

#### 【0100】

積層用の基材として好適なポリマー・フィルムは、スルホン化脂肪族・芳香族コポリエスチルおよび/または生分解性であるもしくは生分解性でないことができる他の材料を含有

10

20

30

40

50

することができる。材料は、天然由来品、変性天然由来品または合成品であることができる。基材として好適な生分解性材料および非生分解性材料の例は、ブレンドに関して本明細書で上に開示されている。基材として好適な天然ポリマー材料の例もまた、本明細書で上に開示されている。

#### 【0101】

広範なデンプンおよび穀物から誘導されるフォームのような有機フォームは、基材として使用することができ、同様に本明細書で上に開示されている。基材としての使用に好ましい有機・無機フォームは、コーティング用の基材に関して本明細書で上に開示されたように、例えば、炭酸カルシウム、粘土、セメント、または石灰岩のような無機フィラーで充填された、デンプンベースのバインダーを有する気泡質フォームである。

10

#### 【0102】

基材は、積層前にそれらの意図される最終形状に成形することができる。基材を形成するための任意の通常の方法を用いることができる。例えば、成形パルプ基材については、「精密成形」、「ダイ・乾燥」、および「クローズ・乾燥」法を用いることができる。該方法には、水性スラリーからスクリーン・カバー付き開口吸引金型に向けて実質的に完成した外郭形状へ纖維状パルプを成形する工程、引き続いて番ペアの加熱ダイによって加えられる強い圧力下で湿ったプリフォームを乾燥する工程が含まれる。かかる方法は、例えば、米国特許公報（特許文献173）、米国特許公報（特許文献154）、および米国特許公報（特許文献155）に開示されている。精密成形されたパルプ物品は、極めて平滑なホットアイロン掛けされた表面仕上げで、高密度であり、硬く、そして堅い傾向がある。かかる方法で製造されたチネット（Chinet）（登録商標）使い捨て紙プレートは、フータマキ・カンパニー（Huhtamaki Company）によって販売してきた。

20

#### 【0103】

成形パルプ基材はまた、「フリードライ」または「オープンドライ」法によって製造することができる。フリードライ法には、水性スラリーからスクリーン・カバー付き開口吸引金型に向けて本質的に最終成形形状へ纖維状パルプを成形する工程と、次に、例えばそれをコンベヤ上に置き、加熱された乾燥オーブンを通してそれをゆっくり移動させることによってなど、生じた湿ったプリフォームをフリー空間で乾燥する工程とが含まれる。かかる成形パルプ物品は、コンパクトでない整合性、弾力的な柔軟さ、ならびに不規則な纖維感触および外観を有することができる。成形パルプ基材はまた、例えば、米国特許公報（特許文献174）に開示されているように、フリードライ法で成形後に「後プレス」することができる。それらはまた、例えば、米国特許公報（特許文献175）に記載されているような、他の通常の方法によって製造することができる。

30

#### 【0104】

積層された基材は、プレス成形または折り畳みのような、公知の方法によって最終形状に成形することができる。かかる方法は、例えば米国特許公報（特許文献62）、米国特許公報（特許文献176）、および米国特許公報（特許文献155）に開示されている。クイックらは、米国特許公報（特許文献149）に、圧力および熱の使用による平らなポリエステル積層紙素材からのトレーの製造を開示している。必要ならば、接着剤を、ラミネートの接合強度を高めるためにフィルムにおよび/または基材に塗布することができる。予め成形された基材上へのフィルムの接着積層は、例えば、米国特許公報（特許文献177）、米国特許公報（特許文献178）、米国特許公報（特許文献179）、米国特許公報（特許文献180）、米国特許公報（特許文献181）、米国特許公報（特許文献182）、米国特許公報（特許文献183）、米国特許公報（特許文献184）、米国特許公報（特許文献185）、米国特許公報（特許文献170）、米国特許公報（特許文献186）、米国特許公報（特許文献187）、米国特許公報（特許文献188）、米国特許公報（特許文献189）、米国特許公報（特許文献67）に開示されている。シュミットは、米国特許公報（特許文献162）に、紙コップへのポリマーフィルムの積層でのホットメルト接着剤の使用を開示している。ドロップシー（Dropsy）は、米国特許公報

40

50

(特許文献190)に、プラスチック積層ボール紙パッケージング物品について接着剤の使用を開示している。クイックらは、米国特許公報(特許文献149)に、架橋性接着剤システムで接着された平らなポリエステル積層板紙素材の圧力および熱成形による板紙トレーの形成を開示している。マーチニ(Martini)らは、米国特許公報(特許文献191)に、接着剤の使用による水溶性基材上への共押出2層フィルムの積層を開示している。ガーディナー(Gardiner)は、米国特許公報(特許文献150)および米国特許公報(特許文献151)に、例えば、ジュース容器を製造するためにポリエチレン-コート板紙上へのポリエステルコート板紙間に改善された接合強度を提供するための接着剤の使用を開示している。接着剤でのフィルムおよび/または基材のコーティングは、通常の方法を用いてまたは共押出によって成し遂げることができる。ラミネートで使用することができる接着剤の例は、コーティングの付着に関して本明細書で上に開示されている。

10

#### 【0105】

スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルを含むラミネートは、本明細書で上に開示されたような、衛生品目および農業用の保護フィルムをはじめとする、多種多様な用途で有用である。スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルを含むラミネートの特に好ましい用途は、食品パッケージングに、特にファストフード・パッケージング用にある。食品パッケージング用途の具体的な例は本明細書で上に開示されている。ラミネートの好ましい用途はラップにある。かかるラップはポリマー積層紙の形を取ることができる。ラップは、上記のように、食品および他の傷みやすい品目を包むために使用することができ、好ましくは、本明細書で上に記載されたような、強靭性と組み合わされた紙のような剛性、永久折り目特性、望まれる場合、耐脂性、およびバランス・バリア性をはじめとする、物理的性質のバランスを提供する。ラップは平滑な表面またはテクスチャ加工表面を有することができ、そして本明細書で上に開示されたように、無機および/または有機フィラーで充填され得る。

20

#### 【0106】

幾つかの実施形態では、スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルはシートに成形することができる。シートとフィルムとの相違は厚さであるが、いつフィルムがシートになるかに関しては何の設定工業標準もない。用語が本明細書で用いられるところでは、シートは、厚さが約0.25mm(10ミル)より大きく、好ましくは約0.25mm~25mm、より好ましくは約2mm~約15mm、さらにより好ましくは約3mm~約10mmである。好ましい実施形態では、シートは、シートを堅くするのに十分な厚さを有し、それは一般に少なくとも約0.50mmの厚さで起こる。しかしながら、25mmより厚い、および0.25mmより薄いシートは形成することができ、幾つかの用途に望ましいかもしれない。ポリマーシートは、看板、グレージング、熱成形物品、ディスプレーおよびディスプレー基板、ディスプレー、自動車ライトおよび熱成形物品でのような様々な用途を有する。幾つかの用途にとって、シートの耐熱性は重要な因子である。それ故、より高い融点、ガラス転移温度、および結晶性レベルがより良好な耐熱性およびより大きい安定性を提供するために望ましい。さらに、シートが紫外線(UV)および引っかき抵抗性、良好な引張強度、高い光学的透明度、ならびに特に低温での良好な衝撃強度を有することは望ましいかもしれない。

30

#### 【0107】

スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルは、重合溶融物から直接に、公知の方法を用いてシートに成形することができる。あるいはまた、コポリエステルは、溶融物から容易に取り扱われる形状(ペレットのような)に成形することができ、ペレットは次にシートを形成するために使用することができる。シートの形成に用いることができる公知の方法には、押出、溶液キャスティングおよび射出成形が含まれる。該方法に好ましいパラメーターは、当業者によって決定されることができ、スルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルの粘度特性およびシートの所望の厚さに部分的に依存する。シートは好ましくは溶液キャスティングか押出かのいずれかによって脂肪族-芳香族コポリエステルから形成される

40

50

。押出は「エンドレス」製品の形成に特に好ましい。PCT特許出願（特許文献192）および（特許文献193）は、溶融押出による結晶性シートの例示的な形成方法を開示している。溶融押出は、フィルムの形成に関して本明細書で上に記載されているように実施することができる。シートは、ポリマーの薄層をチルドロール一面に押し出し、次にテンションロールによってシートを所望の厚さにさらにドローダウンすることによって製造することができる。大量のシートを製造するために、圧延カレンダーを用いることができる。シートの製造に好適なカレンダー加工法は、フィルムの形成に関して本明細書で上に開示されている。押出法は、広範な汎用性のためにポスト成形操作にフォローされることができる。例示的なポスト成形操作には、卵形形状への円形の変更、異なる寸法へのシートの延伸、機械加工、穴あけ、および二軸延伸が含まれる。コポリエステルシートは、押出および／または仕上げ中に他のポリマー材料と組み合わせて、耐湿性のような所望の特性を有するラミネートまたは多層シートを形成することができる。多層またはラミネート・シートは、公知の方法を用いて製造することができ、例えば、熱、接着剤および／またはタイ層によって接合された5つ以上ほどに多くの別個の層を有することができる。あるいはまた、シートは、溶融押出より一貫して一様な厚さのシートを生み出す溶液キャスティングによってコポリエステルから製造することができる。溶液キャスティングには、ポリマー顆粒または粉末を、可塑剤または着色剤のような任意の所望の調合剤と共に好適な溶媒に溶解する工程が含まれる。溶液は、夾雑物および／または大きな粒子を除去するために濾過され、スロットダイから、好ましくはステンレススチールの移動ベルト上へキャストされ、次に乾燥され、その結果シートは冷える。シートの厚さは、それがベルトから出てくる時に完成シートのそれの一般に約5～10倍である。シートは次に押出フィルムと似たやり方で仕上げることができる。さらなる代替案として、シートおよびディスクのようなシート状物品は、公知の方法を用いる射出成形によって形成することができる。当業者は、ポリマー組成物および用いられた具体的なシート形成法に基づいて、シートの製造に適切なプロセス・パラメーターを特定することができる。

10

20

30

40

#### 【0108】

どのようにシートが形成されるかにかかわらず、それは望ましくは、形成後に縦および横方向の両方に延伸することによって二軸配向にかけられる。縦方向延伸は、単にシートを広げ、巻き取ることによってシートを形成する際に開始される。これは本質的にシートを巻取の方向に延伸し、纖維の幾らかを配向させる。これはシートを縦方向に強くするが、纖維のすべてが一方向に配向するので、それは、シートが直角方向に容易に裂けるのを可能にする。それ故、二軸延伸シートが一様なシーティングが望まれるある種の用途にとって好ましい。二軸延伸は、纖維をシートの平面に平行に配向させるが、纖維をシートの平面内にランダムに配向したままにする。これは、例えば、非配向シートと比較して、優れた引張強度、柔軟性、強靭性および収縮性を提供する。シートを互いに直角の2軸に沿って延伸することが望ましい。これは、延伸の方向に引張強度および弾性率を高める。各方向の延伸の量が実質的に等しいことが最も望ましく、それによって任意の方向から試験された時にシート内で類似の特性または挙動を提供する。二軸配向は任意の公知の方法を用いて得ることができる。しかしながら、テンタリングが好ましい。収縮は、シートを延伸された位置に保持し、急冷前に2,3秒間加熱することによって制御することができる。加熱は配向シートを安定化させ、配向シートは次に熱安定化温度より上の温度でのみ収縮するよう強いることができる。

50

#### 【0109】

シートによって示される特性は、ポリマー組成物、ポリマーの形成方法、シートの形成方法、およびシートが延伸のために処理されたか二軸配向されたかどうかをはじめとする、上に示された幾つかの因子に依存する。かかるパラメーターによって影響を受ける特性には、収縮、引張強度、破断伸び、衝撃強度、絶縁耐力および誘電率、引張弾性率、耐化学薬品性、融点、ならびに加熱たわみ温度が含まれる。シート特性は、上に列挙されたような、例えば着色剤、染料、UVおよび熱安定剤、酸化防止剤、可塑剤、滑剤、プロッキング防止剤、ならびにスリップ剤などのある種の添加剤およびフィラーをポリマー組成物

50

に添加することによってさらに調節することができる。あるいはまた、スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルは、具体的な特性を変性するために、デンプンのような1つまたは複数の他のポリマーとブレンドすることができる。他のポリマーは、例えば、空気透過性、光学的透明度、強度および / または弾性のような特性を変性するために添加することができる。

#### 【0110】

シートは、カバー、天窓、造形温室グレージング、ディスプレー、および食品トレーのような、任意の望ましい形状へ任意の公知の方法によって熱成形することができる。熱成形は、シートを所望の形状へ成形できるように、コポリエステルを軟化させるのに十分な温度および十分な時間シートを加熱することによって成し遂げられる。当業者は、例えば、ポリエステルシートの粘度および結晶化特性に依存して、最適な熱成形パラメーターを決定することができる。

#### 【0111】

スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルはまた、プラスチック容器を製造するのに使用することができる。プラスチック容器は、食品および飲料用に、そしてまた非食品材料用にも広く使用される。ポリ(エチレンテレフタレート)(PET)は、その外観(光学的透明度)、ブロー成形の容易さ、化学的および熱的安定性、ならびに価格のために容器を製造するために使用される。PETはブロー成形法によって、そして一般にストレッチブロー成形によってボトルへ一般に二次加工される。スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルは、PETが通常使用される用途で使用することができ、生分解性の利点を提供することができる。容器は、シートの押出、射出成形、射出ブロー成形、回転成形、熱成形、およびストレッチ - ブロー成形のような、公知の方法によって製造することができる。スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルについては、容器の好ましい成形方法は、ボトルのようなポリ(エチレンテレフタレート)(PET)容器の製造に用いられるストレッチ - ブロー成形である。予め成形されたパリソン(一般に射出成形によって製造される)が金型から取り出され、次に別個の工程でストレッチブロー成形にかけられる、コールドパリソン法もまた用いることができる。あるいはまた、パリソンを製造するための射出成形後に完全な冷却なしに同じ装置でホットパリソンが直ちにストレッチブロー成形にかけられる、ホットパリソン法を用いることができる。パリソン温度は使用されるべきポリマーの組成に依存するが、一般的なガイドラインとして、約90 ~ 約160 の範囲内のパリソン温度が有用である。所望のストレッチブロー成形温度もまたポリマー組成に依存するが、約80 ~ 約150 の金型温度が一般に有用である。

#### 【0112】

容器は望ましい任意の形状を有することができる。例示的な容器には、ねじ込み上面と、多様な形状のより小さなおよびより大きな容器を形成することができるが、約400mL ~ 約3リットルの容量とを有する細口ボトルおよび広口ボトルが含まれる。スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルから製造された容器は、標準コールドフィル用途で使用することができる。スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルから製造された、かつ、適切な組成物を有する容器はまた、ホットフィル用途でも使用することができる。

#### 【0113】

スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルから製造された容器は、食品および飲料ならびに非食品固体および液体を含有するために使用することができる。容器は好ましくはクリアで、透明であるが、必要ならば、着色剤もしくは染料を添加することによって、または不透明さをもたらすのに十分な結晶性をコポリエステルに誘起することによって、色を有するようにまたは、透明よりもむしろ不透明であるように変性することができる。

#### 【0114】

スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルは纖維にすることができる。用語「纖維」は、本明細書で用いるところでは、連続モノフィラメント、撚りのないまたは絡まったマルチフィラメント糸、スフ糸、紡績糸、および不織材を意味する。かかる纖維は、一様でない布、編布、布ウェブ、またはタイヤコードのような他の纖維含有構造体を形成するため

10

20

30

40

50

に使用することができる。ポリエステル繊維は、衣類、敷物、および他の品目をはじめとする最終用途向けの、特に綿および羊毛のような天然繊維と組み合わせて布地でのような様々な用途での使用のために大量に製造されている。さらに、ポリエステル繊維は、それらの弾性および強度のために工業用途での使用に望ましい。特に、それらは、タイヤコードおよびロープのような物品を製造するために使用される。例えば、繊維ナイロン、アクリル、およびポリエステルのような合成繊維は、ポリマーをフィラメントへ紡糸し、延伸することによって製造され、フィラメントは次に多くのフィラメントを一緒に巻くことによって糸にされる。繊維は、繊維から作られるべき所望の最終製品に依存して、強度、弾性、耐熱性、手触り（布の感触）のような望ましい特性を与るために機械的におよび/または化学的にしばしば処理される。

10

## 【0115】

繊維の形成のために、スルホン化脂肪族・芳香族コポリエステルのモノマー組成物は、部分結晶性ポリマーをもたらすように好ましくは選ばれる。結晶性は強度および弾性を提供することができるので、それは繊維の形成に望ましい。最初に製造された時、ポリエステルは構造の点でほとんど非晶質である。好ましい実施形態では、ポリエステルポリマーは、ポリマーの再加熱および/または伸長で容易に結晶化する。

## 【0116】

繊維は、ポリエステルからの任意の公知の繊維製造方法を用いてコポリエステルから製造することができる。繊維は、ポリエステル繊維の製造での使用について公知の溶融紡糸法を用いてコポリエステルから製造することができる。溶融紡糸には、ポリマーを加熱して溶融液体を形成する工程が含まれる。ポリマーは、加熱された表面に接触して溶融することができる。溶融ポリマーは、複数の細孔を有する紡糸口金を通して押し進められる。紡糸口金を通過した後で空気または非反応性ガス流れと接触すると、各紡糸口金からのポリマーはフィラメントへ凝固する。フィラメントは、収束ガイドによって紡糸口金の下流で一緒に集められ、1つのローラーまたは複数のローラーによって巻き取ることができる。この方法は、円形、橢円形、正方形、長方形、葉形またはドッグボーン形断面を有する例えばフィラメントのような、様々なサイズおよび断面のフィラメントを形成させる。繊維の押出および巻取の後、繊維は通常延伸され、それは結晶化を増やし、縦軸に沿った配向のような望ましい特性を最大にし、こうして弾性および強度を高める。延伸は、当該技術で公知のようにその幾つかを加熱することができる一連のローラーを用いることによって巻取と組み合わせて行うことができ、または繊維形成のプロセスで別個の段階として行うことができる。

20

## 【0117】

ポリマーは、所望の繊維サイズに依存して、約600~6000メートル毎分以上の速度で紡糸することができる。布地用途向けには、約0.1~約100のフィラメント当たりデニールの繊維が望まれる。好ましくは、デニールは約0.5~20であり、より好ましくは0.7~10である。しかしながら、工業用途向けには繊維はフィラメント当たり約0.5~100デニール、好ましくは約1.0~10.0、最も好ましくはフィラメント当たり3.0~5.0デニールであるべきである。繊維の必要とされるサイズおよび強度は、任意の所与の用途について当業者によって容易に決定され得る。

30

## 【0118】

生じたフィラメント材料は、追加の加工装置によるさらなる加工が容易にでき、またはそれは連続フィラメント織編用糸を必要とする用途に直接使用することができる。必要ならば、フィラメント材料は、公知の仮撚りテクスチャ加工条件または当該技術で公知の他の方法を用いてフラットヤーンからテクスチャ加工糸に変換することができる。特に、よりソフトな感触を提供するために、および気体を通す繊維の能力を高め、それによって、例えば、特定の用途を意図される布地によるより良好な絶縁および水分保持を提供するために、繊維の表面積を大きくすることが望ましい。繊維は、例えば、仮撚り法、エアジェット、エッジクリンプ、ギアクリンプ、またはスタッファーボックスによって捲縮させるまたは撚ることができる。あるいはまた、繊維は、ステープルと呼ばれるより短い長さへ

40

50

カットすることができ、それは糸へ加工することができる。熟練工は、纖維の所望の用途および組成に基づいて捲縮および燃りの最良の方法を決定することができる。ステープルファイバーは、天然纖維、特に綿および羊毛とブレンドすることができる。スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルをはじめとするポリエステルは、糸状菌、うどん粉菌、および天然纖維に固有の他の問題に一般に耐性がある。ポリエステル纖維は強度および耐摩耗性をさらに提供し、かつ、材料のコストを下げる。それ故、それは、アパレル用の布、家財道具およびカーペットでの使用向けのような、布地および他の商業用途での使用にとって理想的である。

## 【0119】

形成後、纖維は、所望の最終用途に適切な任意の方法によって仕上げることができる。布地向け纖維の仕上げは、染色、サイジング、または帯電防止剤、難燃剤、UV光安定剤、酸化防止剤、顔料、染料、耐汚染性剤、および抗菌剤のような化学試剤の添加を含むことができる。幾つかの用途向けには、仕上げは、纖維の外観および手触りを調整するため有効であり得る。工業用途向けには、纖維は、例えば、強度、弹性または収縮のような追加の所望の特性を与えるために処理することができる。

## 【0120】

連続フィラメント纖維は、例えば、アパレル用の編織布および家財道具のような幾つかの用途での使用のために、製造されたままかテクスチャ加工されてかのどちらかで使用することができる。高テナシティ纖維は、例えば、高強度布、防水布、帆布、縫糸ならびにタイヤおよびV - ベルト用のゴム補強材のような工業用途で使用することができる。スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルは、別の合成または天然ポリマーと共に使用して不均一纖維または複合纖維を形成することができ、個々の纖維の特性によって決定される所望の特性を纖維に与える。不均一纖維は、サイド - バイ - サイド、シース - コア、およびマトリックスデザインのような、公知の方法によって形成することができる。

## 【0121】

幾つかの実施形態では、コポリエステルは発泡可能である。ポリエステルは典型的には他のポリマーよりはるかに高い密度（例えば、1.3 g / c c）を有するので、成形部品、フィルム、シート、食品トレー、熱成形部品の重量を減らすためにポリエステル材料を発泡させることは幾つかの用途にとって望ましいかもしれない。かかる発泡品はまた、非発泡品より改善された絶縁性を提供する。スルホン化脂肪族 - 芳香族コポリエステルはまた、造形発泡品に成形することができる。熱可塑性ポリマー材料は、例えば、フィルム、カップ、食品トレー、装飾リボン、および家具部品のような低密度物品を提供するために発泡させられる。例えば、ペンタンのような低沸点炭化水素を含有するポリスチレンビーズは、ホットドリンク用の軽量発泡カップに成形される。ポリプロピレンは、窒素または二酸化炭素ガスのような発泡剤の存在下に押し出されて装飾フィルムおよびパッケージ包装材料用のリボンを形成することができる。同様に、ポリプロピレンは、発泡剤の存在下に射出成形されて例えば椅子およびテーブル脚のような家具部品などの軽量家具を形成することができる。発泡のために、コポリエステルは好ましくは、コポリエステルが凝固して最終発泡品を形成するために十分に長く発泡形状を形成されたままに保持するために十分に高い溶融粘度を有する。高い溶融粘度は、例えば、製造されたままのポリエステルの固有粘度を上げることによって、上記のような、例えば固相重合法などのポスト重合法によって得ることができる。あるいはまた、分岐剤を、例えば、米国特許公報（特許文献194）、米国特許公報（特許文献195）、米国特許公報（特許文献196）、米国特許公報（特許文献197）、米国特許公報（特許文献198）、米国特許公報（特許文献199）、および米国特許公報（特許文献200）に記載されているように、ポリエステル中へ組み入れることができる。かかる分岐ポリエステルはさらに、溶融粘度をさらに高めるために、上記のような固相重合にかけることができる。ポリエステルはさらに、発泡工程中に添加することができる、酸二無水物またはポリエポキシドのような、鎖延長剤を含むことができる。

## 【0122】

10

20

30

40

50

ポリエステルは多種多様な方法によって発泡させることができる。例えば、窒素または二酸化炭素のような不活性ガスを、押出または成形操作中に溶融物中へ注入することができる。あるいはまた、メタン、エタン、プロパン、ブタン、およびペンタンのような不活性炭化水素ガス、またはクロロフルオロカーボン、ヒドロクロロフルオロカーボン、もしくはヒドロフルオロカーボンを使用することができる。別的方法は、化学発泡剤とコポリエステルとを乾式混合し、次にコポリエステルを押出または成形して発泡品を提供する工程を含む。押出または成形操作の間ずっと、窒素のような不活性ガスが発泡剤から放出され、発泡作用を提供する。典型的な発泡剤には、アゾジカルボンアミド、ヒドラゾカルボンアミド、ジニトロソベンタメチレンテトラミン、p-トルエンスルホニルヒドラジカルボキシレート、5-フェニル-3,6-ジヒドロ-1,3,4-オキサ-ジアジン-2-オン、水素化ホウ素ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、5-フェニルテトラゾール、p,p'-オキシビス(ベンゼンスルホニルヒドラジド)が含まれる。コポリエステルのペレットでの使用のためのさらに別的方法は、炭酸ナトリウムまたは炭酸水素ナトリウムとコポリエステルペレットの一部との混合、クエン酸のような有機酸とポリエステルペレットの別の部分との混合、次に高温での押出または成形によるペレットの二部分の混合を含む。二酸化炭素ガスが炭酸ナトリウムとクエン酸との相互作用から放出されてポリマー溶融物中で所望の発泡作用を提供する。コポリエステルで使用される核剤は、泡開始のためのサイトを生み出し、発泡シートまたは物体の気泡サイズを決定し、そしてコポリエステルが物品に成形される時にフォームの凝固を加速する。好適な核剤の例には、酢酸ナトリウム、タルク、二酸化チタン、およびポリエチレンおよびポリプロピレンのようなポリオレフィン材料が挙げられる。

## 【0123】

ポリマー発泡装置および方法は公知であり、例えば、米国特許公報(特許文献201)、米国特許公報(特許文献200)、米国特許公報(特許文献202)、米国特許公報(特許文献199)、米国特許公報(特許文献203)、米国特許公報(特許文献198)、米国特許公報(特許文献204)、および米国特許公報(特許文献205)に開示されている。発泡技術に関するレビューは、(非特許文献2)および(非特許文献3)に見いだすことができる。発泡性コポリエステルは、本明細書で開示されるように多種多様な添加剤および/またはフィラーを含むことができるか、または他の材料とブレンドすることができる。生分解性フォームについては、セルロース、化学変性セルロースのようなセルロース誘導体、デンプン、ならびに化学変性デンプンおよび熱可塑性デンプンのようなデンプン誘導体の添加が特に好ましい。

## 【実施例】

## 【0124】

## (試験方法)

示差走査熱量測定法(DSC)は、TAインスツルメンツ・モデル番号(TA Instruments Model Number)2920機で行う。サンプルを窒素雰囲気下20/分の速度で300まで加熱し、20/分の速度で室温までプログラム冷却し、次に20/分の速度で300まで再加熱する。観察されたサンプルのガラス転移温度(Tg)および結晶溶融温度(Tm)は二次加熱工程からのものであった。

## 【0125】

固有粘度(IV)はダブリュ.アール.ソレンソン(W.R.Sorenson)およびティ.ダブリュ.キャンベル(T.W.Campbell)著、「ポリマー化学の調製方法(Preparative Methods of Polymer Chemistry)」(1961年)、35ページに定義されている。それは、グッドイヤー(Good year)R-103B法によって室温で0.5g/100mLの50:50重量パーセント・トリフルオロ酢酸:ジクロロメタン酸性溶媒システムの濃度で測定する。

## 【0126】

実験室相対粘度(LRV)は、両方とも毛管粘度計で25で測定した、80ppm硫酸を含有する10mLのヘキサフルオロイソプロパノール(HFIP)に溶解した0.6

10

20

30

40

50

グラムのポリエステル溶液の粘度対硫酸含有ヘキサフルオロイソプロパノールそれ自体の粘度の比である。LRVは数的にIVと関係づけることができる。この関係が用いられる場合、用語「計算されたIV」が書き留められる。

### 【0127】

生分解性はISO 14855法「制御された堆肥化条件下でのプラスチック材料の好気的究極生分解性および分解の測定 - 発生炭素の分析による方法 (Determination of the ultimate aerobic biodegradability and disintegration of plastic materials under controlled composting conditions - Method by analysis of evolved carbon)」に従って測定した。生分解試験は、バーミキュライト・マトリックス上で都市固形廃棄物の有機部分に由来する安定化し熟成した堆肥よりなる接種材料に試験すべきポリマーの磨り潰した粉末を投入すること、および58±2に制御された培養温度で標準条件下に堆肥化することを含んだ。発生した二酸化炭素を用いて生分解の程度を測定する。

### 【0128】

フィルム特性を試験する前に、フィルムのサンプルを72°Fおよび50パーセント湿度で40時間順化させた。エルメンドルフ引裂 (Elmendorf Tear) は米国材料試験協会 (ASTM) 1922に従って測定した。グレーブス引裂 (Graves Tear) はASTM D1004に従って測定した。破断引張強度、引張弾性率およびパーセント破断伸びはASTM D882に従って測定した。

### 【0129】

#### (実施例1)

250ミリリットル・ガラスフラスコに、ジメチルテレフタレート (48.55グラム)、1,4-ブタンジオール (58.58グラム)、ジメチルイソフタレート-3-スルホン酸ナトリウム (2.96グラム)、ジメチルグルタレート (40.04グラム)、およびチタン (IV) イソプロポキシド (0.0603グラム) を加えて反応混合物を形成した。反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に搅拌し、180まで加熱した。180に達した後、反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に搅拌しながら2.6時間にわたって200まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージと共に200で1時間搅拌した。反応混合物を次に搅拌しながらゆっくりした窒素パージと共に0.60時間にわたって255まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージ下に255

で1.0時間搅拌した。30.7グラムの無色留出物をこの加熱サイクルにわたって集めた。反応混合物を次に255で搅拌しながら段階的に十分な真空にした。生じた反応混合物を十分な真空 (100ミリトル未満の圧力) 下に3.0時間搅拌した。真空を次に窒素で解除し、反応マスを室温まで放冷した。追加の1.5グラムの留出物を回収し、103.9グラムの固体生成物を回収した。生成物は13.80のLRVを有することが分かり、0.50dL/gの固有粘度を有すると計算された。DSC分析で、結晶Tmが129.2 (14.6J/g) に観察された。

### 【0130】

#### (実施例2)

250ミリリットル・ガラスフラスコに、ジメチルテレフタレート (48.55グラム)、1,4-ブタンジオール (58.58グラム)、ジメチルイソフタレート-3-スルホン酸ナトリウム (2.96グラム)、ジメチルグルタレート (40.04グラム)、1,2,4,5-ベンゼンテトラカルボン酸二無水物 (0.1015グラム)、およびチタン (IV) イソプロポキシド (0.0603グラム) を加えて反応混合物を形成した。反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に搅拌し、180まで加熱した。180に達した後、反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に搅拌しながら2.5時間にわたって200まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージと共に200で1時間搅拌した。反応混合物を次に搅拌しながらゆっくりした窒素パージと共に0.90時間にわたって255まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージ下に255で0.

10

20

30

40

50

7時間攪拌した。67.5グラムの無色留出物をこの加熱サイクルにわたって集めた。反応混合物を次に255で攪拌しながら段階的に十分な真空にした。生じた反応混合物を十分な真空(100ミリトル未満の圧力)下に3.1時間攪拌した。真空を次に窒素で解除し、反応マスを室温まで放冷した。追加の2.8グラムの留出物を回収し、99.8グラムの固体生成物を回収した。生成物は33.15のLRVを有することが分かり、0.85dL/gの固有粘度を有すると計算された。DSC分析で、幅広い結晶Tmが129.2(16.9J/g)に観察された。

## 【0131】

## (比較例CE1)

250ミリリットル・ガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレート(62.92グラム)、エチレングリコール(18.93グラム)、ジメチルイソフタレート-3-スルホン酸ナトリウム(0.74グラム)、ジメチルアジペート(43.55グラム)、酢酸マンガン(II)四水和物(0.042グラム)、および三酸化アンチモン(III)(0.034グラム)を加えて反応混合物を形成した。反応混合物をゆっくりした窒素ページ下に攪拌し、180まで加熱した。180に達した後、反応混合物をゆっくりした窒素ページ下に攪拌しながら3.7時間にわたって275まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素ページ下に275で1時間攪拌した。6.7グラムの無色留出物をこの加熱サイクルにわたって集めた。反応混合物を次に275で攪拌しながら段階的に十分な真空にした。生じた反応混合物を十分な真空(100ミリトル未満の圧力)下に3.5時間攪拌した。真空を次に窒素で解除し、反応マスを室温まで放冷した。追加の15.8グラムの留出物を回収し、70.5グラムの固体生成物を回収した。生成物は0.44dL/gのIVを有することが分かった。DSC分析で、142.0(6.3J/g)の幅広い結晶Tmが観察された。

## 【0132】

## (実施例3)

1リットル・ガラスフラスコに、ジメチルテレフタレート(240.31グラム)、1,4-ブタンジオール(292.89グラム)、ジメチルイソフタレート-3-スルホン酸ナトリウム(3.70グラム)、ジメチルアジペート(217.75グラム)、酢酸マンガン(II)四水和物(0.234グラム)、および三酸化アンチモン(III)(0.189グラム)を加えて反応混合物を形成した。反応混合物をゆっくりした窒素ページ下に攪拌し、180まで加熱した。180に達した後、反応混合物をゆっくりした窒素ページ下に攪拌しながら2.2時間にわたって255まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素ページ下に255で1.2時間攪拌した。188.2グラムの無色留出物をこの加熱サイクルにわたって集めた。反応混合物を次に255で攪拌しながら段階的に十分な真空にした。生じた反応混合物を十分な真空(100ミリトル未満の圧力)下に4.7時間攪拌した。真空を次に窒素で解除し、反応マスを室温まで放冷した。追加の17.4グラムの留出物を回収し、461.0グラムの固体生成物を回収した。生成物は5.74のLRVを有し、0.35dL/gの固有粘度を有すると計算された。DSC分析で、幅広い結晶Tmが133.6(20.0J/g)に観察された。

## 【0133】

生成物のサンプルを粉末へ磨り潰し、上記のように、生分解について試験した。サンプルは、これらの試験条件下で13日内に36.2パーセント生分解することが分かった。

## 【0134】

本実施例は、公知のスルホン化コポリエステルと比べて本発明のスルホン化コポリエステル内に見いだされるより高レベルの結晶性を実証する。実施例3で形成された生成物は、公知のスルホン化コポリエステルを代表する比較例CE1のそれより3倍の結晶性のレベルを有することが分かった。本実施例はさらに、本発明のスルホン化コポリエステルの比較的高い結晶融点を実証する。

## 【0135】

## (実施例4)

10

20

30

40

50

250ミリリットル・ガラスフラスコに、ジメチルテレフタレート(47.58グラム)、1,4-ブタンジオール(72.10グラム)、ジメチルイソフタレート-3-スルホン酸ナトリウム(1.48グラム)、DBE二塩基酸エステル(本願特許出願人の製品、およそ20:60:20モル比のジメチルスクシネート、ジメチルグルタレート、およびジメチルアジペートの混合物、40.04グラム)、シリカ(12.04グラム)、およびチタン(IV)イソプロポキシド(0.06グラム)を加えて反応混合物を形成した。反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に搅拌し、180まで加熱した。180に達した後、反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に搅拌しながら0.3時間にわたって190まで加熱した。190で1.0時間搅拌した後、反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に搅拌しながら0.4時間にわたって200まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージと共に200で1.1時間搅拌した。反応混合物を次に搅拌しながらゆっくりした窒素パージと共に2.2時間にわたって255まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージ下に255で0.6時間搅拌した。44.97グラムの無色留出物をこの加熱サイクルにわたって集めた。反応混合物を次に255で搅拌しながら段階的に十分な真空にした。生じた反応混合物を十分な真空(100ミリトル未満の圧力)下に3.3時間搅拌した。真空を次に窒素で解除し、反応マスを室温まで放冷した。追加の5.65グラムの留出物を回収し、105.75グラムの固体生成物を回収した。生成物は27.60のLRVを有することが分かり、0.75dL/gの固有粘度を有すると計算された。DSC分析で、幅広い結晶Tmが125.4(12.4J/g)に観察された。

10

20

30

40

## 【0136】

## (実施例5)

250ミリリットル・ガラスフラスコに、ジメチルイソフタレート-3-スルホン酸ナトリウム(3.65グラム)、ジメチルグルタレート(39.42グラム)、1,2,4-ベンゼントリカルボン酸無水物(0.12グラム)、酢酸ナトリウム(0.69グラム)、およびチタン(IV)イソプロポキシド(0.16グラム)の反応混合物を加えて反応混合物を形成した。反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に搅拌し、180まで加熱した。180に達した後、反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に搅拌しながら0.3時間にわたって190まで加熱した。190で0.5時間搅拌した後、反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に搅拌しながら0.5時間にわたって200まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージと共に200で1時間搅拌した。反応混合物を次に搅拌しながらゆっくりした窒素パージと共に1.1時間にわたって255まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージ下に255で1.0時間搅拌した。55.46グラムの無色留出物をこの加熱サイクルにわたって集めた。反応混合物を次に255で搅拌しながら段階的に十分な真空にした。生じた反応混合物を十分な真空(100ミリトル未満の圧力)下に3.4時間搅拌した。真空を次に窒素で解除し、反応マスを室温まで放冷した。追加の2.17グラムの留出物を回収し、118.99グラムの固体生成物を回収した。生成物は18.59のLRVを有することが分かり、0.58dL/gの固有粘度を有すると計算された。DSC分析で、幅広い結晶Tmが153.6(22.0J/g)に観察された。

## 【0137】

## (実施例6)

1リットル・ガラスフラスコに、ジメチルテレフタレート(277.20グラム)、1,4-ブタンジオール(288.36グラム)、ジメチルイソフタレート-3-スルホン酸ナトリウム(14.60グラム)、ジメチルグルタレート(157.68グラム)、1,2,4-ベンゼントリカルボン酸無水物(0.48グラム)、酢酸ナトリウム(2.76グラム)、およびチタン(IV)イソプロポキシド(0.61グラム)を加えて反応混合物を形成した。反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に搅拌し、180まで加熱した。180に達した後、反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に搅拌しながら0.3時間にわたって190まで加熱した。190で0.5時間搅拌した後、反応混合物を

50

ゆっくりした窒素パージ下に搅拌しながら0.3時間にわたって200まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージと共に200で1時間搅拌した。反応混合物を次に搅拌しながらゆっくりした窒素パージと共に1.0時間にわたって255まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージ下に255で1.0時間搅拌した。148.58グラムの無色留出物をこの加熱サイクルにわたって集めた。反応混合物を次に255で搅拌しながら段階的に十分な真空にした。生じた反応混合物を十分な真空(100ミリトル未満の圧力)下に4.6時間搅拌した。真空を次に窒素で解除し、反応マスを室温まで放冷した。追加の54.12グラムの留出物を回収し、443.00グラムの固体生成物を回収した。生成物は18.75のLRVを有することが分かり、0.59dL/gの固有粘度を有すると計算された。DSC分析で、幅広い結晶Tmが151.9(22.90J/g)に観察された。

## 【0138】

## (実施例7)

250ミリリットル・ガラスフラスコに、ジメチルテレフタレート(75.27グラム)、1,4-ブタンジオール(83.40グラム)、ジメチルイソフタレート-3-スルホン酸ナトリウム(3.65グラム)、ジメチルグルタレート(34.49グラム)、1,2,4-ベンゼントリカルボン酸無水物(0.12グラム)、酢酸ナトリウム(0.69グラム)、およびチタン(IV)イソプロポキシド(0.20グラム)を加えて反応混合物を形成した。反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に搅拌し、180まで加熱した。180に達した後、反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に搅拌しながら0.2時間にわたって190まで加熱した。190で0.5時間搅拌した後、反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に搅拌しながら0.4時間にわたって200まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージと共に200で1時間搅拌した。反応混合物を次に搅拌しながらゆっくりした窒素パージと共に0.7時間にわたって255まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージ下に255で1.2時間搅拌した。60.0グラムの無色留出物をこの加熱サイクルにわたって集めた。反応混合物を次に255で搅拌しながら段階的に十分な真空にした。生じた反応混合物を十分な真空(100ミリトル未満の圧力)下に3.2時間搅拌した。真空を次に窒素で解除し、反応マスを室温まで放冷した。追加の3.3グラムの留出物を回収し、115グラムの固体生成物を回収した。生成物は31.41のLRVを有することが分かり、0.81dL/gの固有粘度を有すると計算された。DSC分析で、幅広い結晶Tmが163.0(25.1J/g)に観察された。

## 【0139】

## (実施例8)

250ミリリットル・ガラスフラスコに、ジメチルテレフタレート(75.27グラム)、1,4-ブタンジオール(83.17グラム)、ジメチルイソフタレート-3-スルホン酸ナトリウム(3.65グラム)、ジメチルグルタレート(34.49グラム)、1,2,4-ベンゼントリカルボン酸無水物(0.12グラム)、酢酸ナトリウム(0.69グラム)、およびチタン(IV)イソプロポキシド(0.15グラム)を加えて反応混合物を形成した。反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に搅拌し、180まで加熱した。180に達した後、反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に搅拌しながら0.3時間にわたって190まで加熱した。190で0.4時間搅拌した後、反応混合物を次に搅拌しながらゆっくりした窒素パージと共に1.8時間にわたって255まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージ下に255で1.0時間搅拌した。54.86グラムの無色留出物をこの加熱サイクルにわたって集めた。反応混合物を次に255で搅拌しながら段階的に十分な真空にした。生じた反応混合物を十分な真空(100ミリトル未満の圧力)下に5.4時間搅拌した。真空を次に窒素で解除し、反応マスを室温まで放冷した。追加の2.40グラムの留出物を回収し、118.92グラムの固体生成物を回収した。生成物は19.92のLRVを有することが分かり、0.61dL/gの固有粘度を有すると計算された。DSC分析で、幅広い結晶Tmが162.6(24.50J/g)に観察された。

.7 J / g ) に観察された。

【0140】

(実施例9)

250ミリリットル・ガラスフラスコに、ジメチルテレフタレート(75.27グラム)、1,4-ブタンジオール(83.17グラム)、ジメチルイソフタレート-3-スルホン酸ナトリウム(3.65グラム)、ジメチルスクシネート(31.48グラム)、1,2,4-ベンゼントリカルボン酸無水物(0.12グラム)、酢酸ナトリウム(0.69グラム)、およびチタン(IV)イソプロポキシド(0.16グラム)を加えて反応混合物を形成した。反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に攪拌し、180まで加熱した。180に達した後、反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に攪拌しながら0.3時間にわたって190まで加熱した。190で0.6時間攪拌した後、反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に攪拌しながら0.6時間にわたって200まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージと共に200で1時間攪拌した。反応混合物を次に攪拌しながらゆっくりした窒素パージと共に1.0時間にわたって255まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージ下に255で1時間攪拌した。56.00グラムの無色留出物をこの加熱サイクルにわたって集めた。反応混合物を次に255で攪拌しながら段階的に十分な真空にした。生じた反応混合物を十分な真空(100ミリトル未満の圧力)下に3.0時間攪拌した。真空を次に窒素で解除し、反応マスを室温まで放冷した。追加の3.3グラムの留出物を回収し、101グラムの固体生成物を回収した。生成物は16.11のLRVを有することが分かり、0.54dL/gの固有粘度を有すると計算された。DSC分析で、幅広い結晶Tmが167.6(26.9J/g)に観察された。

【0141】

(実施例10)

250ミリリットル・ガラスフラスコに、ジメチルテレフタレート(66.02グラム)、1,4-ブタンジオール(58.58グラム)、ジメチルイソフタレート-3-スルホン酸ナトリウム(2.96グラム)、ジメチルグルタレート(24.03グラム)、1,2,4-ベンゼントリカルボン酸無水物(0.21グラム)、およびチタン(IV)イソプロポキシド(0.0623グラム)を加えて反応混合物を形成した。反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に攪拌し、180まで加熱した。180に達した後、反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に攪拌しながら3.1時間にわたって200まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージ下に200で1時間攪拌した。反応混合物を次にゆっくりした窒素パージと共に1.0時間にわたって255まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージ下に255で0.7時間攪拌した。31.0グラムの無色留出物をこの加熱サイクルにわたって集めた。反応混合物を次に255で攪拌しながら段階的に十分な真空にした。生じた反応混合物を十分な真空(100ミリトル未満の圧力)下に3.3時間攪拌した。真空を次に窒素で解除し、反応マスを室温まで放冷した。追加の0.5グラムの留出物を回収し、101.2グラムの固体生成物を回収した。生成物は9.08のLRVを有することが分かり、0.41dL/gの固有粘度を有すると計算された。DSC分析で、結晶Tmが173.6(23.2J/g)に観察された。

【0142】

本実施例は、公知の材料と比較して本発明のスルホン化脂肪族-芳香族コポリエステルの幾つかの特性を例示する。本実施例で製造した生成物は、公知のポリエステルに匹敵する量の脂肪族ジカルボン酸を有するが、1,4-ブタンジオール以外のグリコールを含有せず、幾つかのかかる公知のポリエステルより実質的に高い結晶融点を有することが分かった。

【0143】

(比較例CE2)

250ミリリットル・ガラスフラスコに、ビス(2-ヒドロキシエチル)テレフタレー 50

ト ( 88.86 グラム ) 、エチレングリコール ( 6.27 グラム ) 、ジメチルイソフタレート - 3 - スルホン酸ナトリウム ( 0.15 グラム ) 、ジメチルグルタレート ( 24.03 グラム ) 、酢酸マンガン ( II ) 四水和物 ( 0.042 グラム ) 、および三酸化アンチモン ( III ) ( 0.034 グラム ) を加えて反応混合物を形成した。反応混合物をゆっくりした窒素バージ下に攪拌し、 180 まで加熱した。 180 に達した後、反応混合物をゆっくりした窒素バージ下に攪拌しながら 3.6 時間にわたって 275 まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素バージ下に 275 で 1 時間攪拌した。 12.8 グラムの無色留出物をこの加熱サイクルにわたって集めた。反応混合物を次に 275 で攪拌しながら段階的に十分な真空にした。生じた反応混合物を十分な真空 ( 100 ミリトル未満の圧力 ) 下に 2.4 時間攪拌した。真空を次に窒素で解除し、反応マスを室温まで放冷した。追加の 7.0 グラムの留出物を回収し、 64.0 グラムの固体生成物を回収した。生成物は 32.7 の LRV を有することが分かり、 0.84 dL/g の固有粘度を有すると計算された。 DSC 分析で、  $T_g$  は 35.8 の開始温度、 37.6 の中間温度、および 39.5 の終点温度であることが分かった。幅広い結晶  $T_m$  が 185.1 ( 16.8 J/g ) に観察された。

## 【 0144 】

## ( 比較例 C E 3 )

250 ミリリットル・ガラスフラスコに、ジメチルテレフタレート ( 48.5 グラム ) 、ビス ( 2 - ヒドロキシエチル ) テレフタレート ( 25.40 グラム ) 、 1,4 - ブタンジオール ( 43.40 グラム ) 、ジメチルイソフタレート - 3 - スルホン酸ナトリウム ( 0.15 グラム ) 、ジメチルグルタレート ( 24.30 グラム ) 、酢酸マンガン ( II ) 四水和物 ( 0.042 グラム ) 、および三酸化アンチモン ( III ) ( 0.035 グラム ) を加えて反応混合物を形成した。反応混合物をゆっくりした窒素バージ下に攪拌し、 180 まで加熱した。 180 に達した後、反応混合物をゆっくりした窒素バージ下に攪拌しながら 0.8 時間にわたって 200 まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素バージ下に 200 で 1.1 時間攪拌した。生じた反応混合物をわずかな窒素バージ下に攪拌しながら 1.3 時間にわたって 255 まで加熱した。反応混合物を次にわずかな窒素バージ下に 255 で 0.5 時間攪拌した。 16.4 グラムの無色留出物をこの加熱サイクルにわたって集めた。反応混合物を次に 255 で攪拌しながら段階的に十分な真空にした。生じた反応混合物を十分な真空 ( 100 ミリトル未満の圧力 ) 下に 3 時間攪拌した。真空を次に窒素で解除し、反応マスを室温まで放冷した。追加の 3.9 グラムの留出物を回収し、 85.6 グラムの固体生成物を回収した。生成物は 12.2 の LRV を有することが分かり、 0.47 dL/g の固有粘度を有すると計算された。 DSC 分析で、結晶  $T_m$  が 154.2 ( 24.5 J/g ) に観察された。

## 【 0145 】

## ( 実施例 11 )

250 ミリリットル・ガラスフラスコに、ジメチルテレフタレート ( 67.87 グラム ) 、 1,4 - ブタンジオール ( 58.58 グラム ) 、ジメチルイソフタレート - 3 - スルホン酸ナトリウム ( 0.148 グラム ) 、ジメチルグルタレート ( 24.03 グラム ) 、酢酸マンガン ( II ) 四水和物 ( 0.042 グラム ) 、および三酸化アンチモン ( III ) ( 0.034 グラム ) を加えて反応混合物を形成した。反応混合物をゆっくりした窒素バージ下に攪拌し、 180 まで加熱した。 180 に達した後、反応混合物をゆっくりした窒素バージ下に攪拌しながら 2.7 時間にわたって 255 まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素バージ下に 255 で 1.0 時間攪拌した。 35.4 グラムの無色留出物をこの加熱サイクルにわたって集めた。反応混合物を次に 255 で攪拌しながら段階的に十分な真空にした。生じた反応混合物を十分な真空 ( 100 ミリトル未満の圧力 ) 下に 3.7 時間攪拌した。真空を次に窒素で解除し、反応マスを室温まで放冷した。追加の 1.1 グラムの留出物を回収し、 91.0 グラムの固体生成物を回収した。生成物は 6.56 の LRV を有することが分かり、 0.36 dL/g の固有粘度を有すると計算された。 DSC 分析で、結晶  $T_m$  が 174.3 ( 25.2 J/g ) に観察された。

10

20

30

40

50

## 【0146】

## (比較例C E 4)

250ミリリットル・ガラスフラスコに、ジメチルテレフタレート(58.26グラム)、1,4-ブタンジオール(46.80グラム)、エチレングリコール(20.86グラム)、ジメチルイソフタレート-3-スルホン酸ナトリウム(3.55グラム)、ジメチルアジペート(39.72グラム)、ジメチルイソフタレート(11.65グラム)、酢酸マンガン(II)四水和物(0.0586グラム)、および三酸化アンチモン(III)(0.0471グラム)を加えて反応混合物を形成した。反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に攪拌し、180まで加熱した。180に達した後、反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に攪拌しながら1.8時間にわたって200まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージ下に200で1.3時間攪拌した。反応混合物を次にわずかな窒素パージ下に攪拌しながら1.1時間にわたって260まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージ下に260で1.0時間攪拌した。25.7グラムの無色留出物をこの加熱サイクルにわたって集めた。反応混合物を次に260で攪拌しながら段階的に十分な真空にした。生じた反応混合物を十分な真空(100ミリトル未満の圧力)下に3.1時間攪拌した。真空を次に窒素で解除し、反応マスを室温まで放冷した。追加の1.7グラムの留出物を回収し、107.2グラムの固体生成物を回収した。生成物は5.63のLRVを有することが分かり、0.35dL/gの固有粘度を有すると計算された。DSC分析で、幅広い結晶Tmが106.1(1.5J/g)に観察された。

10

20

30

40

50

## 【0147】

## (実施例12)

250ミリリットル・ガラスフラスコに、ジメチルテレフタレート(58.26グラム)、1,4-ブタンジオール(81.11グラム)、ジメチルイソフタレート-3-スルホン酸ナトリウム(3.55グラム)、ジメチルアジペート(39.72グラム)、ジメチルイソフタレート(11.65グラム)、酢酸マンガン(II)四水和物(0.0586グラム)、および三酸化アンチモン(III)(0.0471グラム)を加えて反応混合物を形成した。反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に攪拌し、180まで加熱した。180に達した後、反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に攪拌しながら1.5時間にわたって200まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージ下に200で1時間攪拌した。反応混合物を次にわずかな窒素パージ下に攪拌しながら2.0時間にわって260まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージ下に260で0.8時間攪拌した。41.0グラムの無色留出物をこの加熱サイクルにわたって集めた。反応混合物を次に260で攪拌しながら段階的に十分な真空にした。生じた反応混合物を十分な真空(100ミリトル未満の圧力)下に3.6時間攪拌した。真空を次に窒素で解除し、反応マスを室温まで放冷した。追加の0.6グラムの留出物を回収し、100.8グラムの固体生成物を回収した。生成物は2.97のLRVを有することが分かり、0.30dL/gの固有粘度を有すると計算された。DSC分析で、幅広い結晶Tmが118.6(10.1J/g)に観察された。

## 【0148】

## (実施例13)

250ミリリットル・ガラスフラスコに、ジメチルテレフタレート(161.18グラム)、1,4-ブタンジオール(144.2グラム)、ジメチルイソフタレート-3-スルホン酸ナトリウム(5.92グラム)、ジメチルグルタレート(24.02グラム)、酢酸マンガン(II)四水和物(0.168グラム)、および三酸化アンチモン(III)(0.068グラム)を加えて反応混合物を形成した。反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に攪拌し、180まで加熱した。180に達した後、反応混合物をゆっくりした窒素パージ下に攪拌しながら1.6時間にわって200まで加熱した。生じた反応混合物をわずかな窒素パージ下のまま200で1.0時間攪拌するにまかせた。攪拌される反応混合物を次にわずかな窒素パージ下に1.8時間にわって255まで加熱し

た。生じた反応混合物をわずかな窒素パージ下に 255 度 0.2 時間攪拌した。96.5 グラムの無色留出物をこの加熱サイクルにわたって集めた。反応混合物を次に 255 度攪拌しながら段階的に十分な真空にした。生じた反応混合物を十分な真空 (100 ミリトル未満の圧力) 下に 2.6 時間攪拌した。真空を次に窒素で解除し、反応マスを室温まで放冷した。184.7 グラムの固体生成物を回収した。生成物は 2.64 の LRV を有することが分かり、0.29 dL/g の固有粘度を有すると計算された。DSC 分析で、結晶 Tm が 178.0 (29.7 J/g) に観察された。

### 【0149】

#### (実施例 14)

より大きい規模であることを除いて、実施例 6 に記載したように製造したポリマーを、-40 露点までホッパードライヤー中 60 度で 8 時間乾燥する。材料を次に 20 ポンド毎時の速度で 1.5 インチ直径単軸スクリュー・ディビス・スタンダード (Davis Standard) 押出機 (24:1 のスクリュー L/D、モデル番号 DS-15H) の供給セクション中へ供給する。押出機条件および温度プロフィールを下に書き留める。溶融ポリマーを次に、下に書き留める条件および温度プロフィールのキリオン (Killison) 3 ロール・スタックシート・ライン中へ供給する。

押出機ゾーン 1 温度 (供給セクション) : 290 °F

押出機ゾーン 2 温度 : 335 °F

押出機ゾーン 3 温度 : 335 °F

押出機ゾーン 4 (最前部) 温度 : 315 °F

フランジ : 335 °F

パイプ : 335 °F

フランジ : 335 °F

ダイ温度 : 330 °F

ダイリップ : 330 °F

溶融物温度 : 335 °F

押出機アンプ : 3.4

押出機 RPM : 50

チルロール最上部温度 : 70 °F

チルロール中間部温度 : 70 °F

チルロール底部温度 : 70 °F

フィルム巻取速度 : 275 インチ / 分

10

20

30

40

50

### 【0150】

0.003 インチ (3 ミル) の厚さで 8 インチ幅のフィルムを製造する。フィルムをファストフード・サンドイッチ・ラップパッケージングとして試験する。

### 【0151】

#### (実施例 15)

実施例 14 で製造したフィルムの 2 インチ正方形を、ホットスポットを避けるために熱風をフィルム上へ直接作用させないように注意しながら、50 度に 4 分間予熱し、幅出機 (tenter frame) ティ・エム・ロング二軸延伸機 (T.M. Long Bi axial stretcher) で二軸配向させる。延伸機の延伸比は 3 × 3 倍にセットし、延伸速度は 5 インチ毎秒 (12.7 cm / 秒) である。二軸延伸フィルムは、未延伸フィルムより、縦方向 (MD)、および横方向 (TD) の両方に少なくとも 10 パーセント大きい引張強度を有することが分かる。二軸延伸フィルムをファストフード・サンドイッチ・ラップパッケージングとして試験する。

### 【0152】

#### (実施例 16 ~ 26)

より大きい規模であることを除いて、表 1 で下にリストする実施例で上記のように製造したポリマーを、-40 露点までホッパードライヤー中 60 度で 8 時間乾燥する。材料を単軸スクリュー容量供給機 (ケイ・トロン (K-tron) モデル No. 7) のホッパ

ーに入れ、そこからそれらは、所内バキュームに維持された真空ポートを約0.010インチ・ギャップの10インチ幅フィルム・ダイに取り付けた28mmワーナー・アンド・フライダー(Werner and Pfeider)二軸スクリュー押出機の入口に自由に落下する。乾燥窒素バージを供給ホッパーおよび押出機の供給口に維持する。押出機を表1に示すヒーター・プロフィールで150RPMスクリュー速度で運転する。

【0153】

【表1】

表1

実施例	実施例	ホリマー 押出機ヒーター・プロフィール					
		ゾーン1 (°C)	ゾーン2 (°C)	ゾーン3 (°C)	ゾーン4 (°C)	ゾーン5 (°C)	ダイ (°C)
16	1	120	150	150	150	155	160
17	2	120	150	150	150	155	160
18	3	125	155	155	155	160	165
19	4	115	145	145	145	150	155
20	5	140	175	175	175	180	185
21	7	150	185	185	185	190	195
22	9	155	190	190	190	195	200
23	10	160	195	195	195	200	205
24	11	160	195	195	195	195	200
25	12	100	140	140	140	140	145
26	13	165	200	200	200	205	210

【0154】

押出ポリマーフィルムを、冷水で26の温度に維持された12インチ直径の平滑な急冷ドラム上に静電気的に固定し、標準テンションロールを用いて剥離紙上に集める。急冷ドラム速度を5~15フィート毎分に調節して約8ミル~約1.5ミルの厚さのフィルムサンプルを得る。

【0155】

実施例16~26のフィルムは、ファストフード・サンドイッチ・ラップとして試験され、優れた永久折り目性能を有することが分かる。実施例16~26のフィルムを、エルメンドルフ引裂、グレーブス引裂、およびパーセント破断伸びによって測定されるような強靭性と、破断引張強度および引張弾性率によって測定されるような強度について試験する。

【0156】

10インチ×16インチ長方形を、実施例18、実施例25、比較例CE6および比較例CE7のフィルムからカットし、サイズを正確に測定する。フィルム長方形をフィッシャー・サイエンティフィック・アイソテンプ・インキュベーター(Fisher Scientific Iso temp Incubator)、モデル番号625Dに入れ、60に1時間加熱する。フィルム長方形のサイズを次に正確に再測定する。

【0157】

(実施例27~38)

約1.5ミル~8ミルの厚さを有する、表2で下にリストする実施例で製造したフィルムを、ロードアイランド州プロビデンスのマーシャル・アンド・ウィリアムス・カンパニー(Marshall and Williams Company of Prov

10

20

30

40

50

dence, Rhode Island) 製の縦方向配向機 (Machine Direction Orienter) (MDO) モデル番号 7200 を通して送った。MDO 装置を、下の表 2 にリストする温度に予熱し、フィルムを当該温度のまま表 2 で下に書き留めるように延伸する。例えば、1 メートル長さのフィルムについての「3×」の MDO 延伸は、フィルムが 3 メートルの結果として生じる長さまで延伸されることを意味する。

【0158】

【表 2】

表 2

10

実施例	キャストフィルム	MDO	MDO
実施例	温度(℃)	延伸	
27	16	40	3X
28	17	40	3X
29	17	50	4X
30	18	50	3.5X
31	19	40	4X
32	20	55	3X
33	21	60	4.5X
34	22	60	3.5X
35	23	60	3X
36	24	60	3X
37	25	35	4X
38	26	60	3.5X

20

30

【0159】

(結果)

実施例 27 ~ 38 の単軸延伸フィルムは、相当する未延伸フィルムより縦方向 (MDO) に少なくとも 10 % 大きい引張強度を有することが分かる。実施例 27 ~ 38 の単軸延伸フィルムは、ファストフード・サンドイッチ・ラップパッケージングとして試験され、優れた永久折り目性能を有することが分かる。

40

【0160】

(実施例 39 ~ 49)

上で製造した、下の表 3 に詳述するフィルムの 2 インチ正方形を、表 3 で下に書き留める温度に 4 分間予熱し (ホットスポットを避けるために熱風をフィルム上へ直接作用させないように注意しながら)、幅出機ティ・エム・ロング二軸延伸機で二軸配向させる。延伸機の延伸比は 3 × 3 倍にセットし、延伸速度は 5 インチ毎秒 (12.7 cm / 秒) である。

【0161】

【表3】

表3

実施例	キャストフィルム 実施例	二軸延伸 温度 (℃)	
39	16	45	
40	17	50	10
41	18	55	
42	19	45	
43	20	60	
44	21	65	
45	22	65	
46	23	60	
47	24	65	
48	25	45	20
49	26	60	

## 【0162】

縦方向 (MD)、および横方向 (TD) の両方で引張強度を測定する。二軸延伸フィルムをファストフード・サンドイッチ・ラップパッケージングとして試験する。

## 【0163】

(実施例50～54)

より大きい規模であることを除いて、実施例10に記載したように製造したポリマーを、-40露点までホッパー・ドライヤー中75で8時間乾燥する。材料を0.10重量パーセント(ポリマー重量を基準にして)イルガノックス(Irganox)-1010、チバ・カンパニー(Ciba Company)製のヒンダードフェノール系酸化防止剤と粉末ブレンドする。材料を単軸スクリュー容量供給機(ケイ・トロン・モデルNo.7)のホッパーに入れ、そこからそれは、所内バキュームに維持された真空ポートを約0.010インチ・ギャップの10インチ幅フィルム・ダイに取り付けた28mmワーナー・アンド・フライダー二軸スクリュー押出機の入口に自由に落下する。乾燥室素バージを供給ホッパーおよび押出機の供給口に維持する。押出機を次のようなヒーター・プロファイルで150RPMスクリュー速度で運転する。

## 【0164】

## 【表4】

ゾーン1 (℃)	ゾーン2 (℃)	ゾーン3 (℃)	ゾーン4 (℃)	ゾーン5 (℃)	ダイ (℃)
160	190	195	195	200	205

## 【0165】

モルフレックス社製の可塑剤、アセチルケン酸トリ-n-ブチルを、アキュレート(Accurate)供給機を使って表4で下にリストする組成物を提供するための速度でゾーン2中へ注入する。表4にリストする可塑剤の量は全組成物の重量を基準にしている

【0166】

【表5】

表4

実施例	可塑剤	
	(重量%)	
50	0	10
51	5	
52	10	
53	15	
54	20	

【0167】

押出ポリマーフィルムを、冷水で26 の温度に維持された12インチ直径の平滑な急冷ドラム上に静電気的に固定し、標準テンションロールを用いて剥離紙上に集める。急冷ドラム速度を5~15フィート毎分に調節して約8ミル~約1.5ミルの厚さのフィルムサンプルを得る。フィルムをファストフード・サンドイッチ・ラップパッケージングとして試験する。

【0168】

(実施例55~60)

より大きい規模であることを除いて、上の実施例6のように製造したポリマーを、0.04パーセント未満の含水率まで乾燥熱風再循環を使って大きなトレー乾燥機中60で一晩乾燥する。コーンスター・チ(CPCインターナショナル社(CPC International, Inc.)製のトウモロコシ製品(Corn Products)3005)、および米デンプン(シグマ・ケミカルズ(Sigma Chemicals)カタログ番号S7260)を、1パーセント未満の含水率まで大きなトレー真空オーブン中90および1mmHg未満減圧で乾燥し、使用するまで密封容器中に保管する。ポリエチレンアジペート(ルコ・ポリマー・コーポレーション(Ruco Polymer Corporation)製のルコフレックス(登録商標)S-101-55、2000の公称分子量)を前処理なしに受け取ったまま使用する。

【0169】

ポリマーとデンプンとのブレンドを、プラスチック袋中で材料を手動で混転することによって調製する。乾燥デンプンを乾燥機からの暖かいポリマーに加え、暖かい混合物を押出機に供給する。ルコフレックス(登録商標)ポリエチレンアジペートを使用する時、ポリエチレンアジペートを溶融させ、液体を計量供給ポンプによって押出機の第2ヒータゾーン中へ注入する。下の表5にリストする最終組成物を調製する。

【0170】

【表6】

表5

実施例	ポリマー (重量%)	コーンスター (重量%)	メテンブン (重量%)	ポリエチレン アジヘート (重量%)	
55	80	20			
56	60	40			10
57	55	40		5	
58	45	35		20	
59	60		40		
60	45	35		20	

【0171】

ブレンドを、窒素バージしながら、ケイトロン二軸スクリュー供給機 (190 630 20  
0 コントローラー付きのモデル番号 T - 35) の供給ホッパーに入れ、真空ポートおよび  
穏やかな混合スクリュー付きで 30 / 1 の L / D を有するワーナー・アンド・フライダ  
ー ZSK30mm 二軸スクリュー押出機に計量供給する。押出機バレルの温度を押出機の供  
給端での 135 から排出端での 170 まで電気的に加熱する。押出機を 150 RPM  
で運転し、真空ポートを所内バキュームに連結し、プロセス条件で変動することを可能に  
する。単一穴ダイ (1 / 8 インチ直径) をストランドの排出のために使用する。生じたス  
トランドを 6 フィート長さの水トラフ中で急冷し、エアナイフで脱水し、コナイル (C  
o n a i r) カッター (モデル番号 304) でペレットへカットする。各組成物に対する運  
転条件を表6 で下にリストする。

【0172】

【表7】

表6

実施例 番号	供給 速度 (pph)	スクリュー トルク (%最大)	ダイ 圧力 (psig)	溶融物 温度 (°C)	減圧 (インチ Hg)	
55	34	58	800	175	13	
56	32	60	800	180	13	40
57	31	50	750	175	12	
58	32	35	600	170	12	
59	33	60	800	180	13	
60	32	35	600	170	13	

【0173】

(実施例 61 ~ 66)

50

実施例 55～60 で上に調製したポリマー・デンブンブレンドを、-40 露点までホッパー・ドライヤー中 70 で 8 時間乾燥する。材料を単軸スクリュー容量供給機（ケイ・トロン・モデル No. 7）のホッパーに入れ、そこからそれらは、所内バキュームに維持された真空ポートを約 0.010 インチ・ギャップの 10 インチ幅フィルム・ダイに取り付けた 28 mm ワーナー・アンド・フライダー二軸スクリュー押出機の入口に自由に落下する。乾燥窒素バージを供給ホッパーおよび押出機の供給口に維持する。押出機を次のようなヒーター・プロフィールで 150 RPM スクリュー速度で運転する。

【0174】

【表 8】

ゾーン 1 (°C)	ゾーン 2 (°C)	ゾーン 3 (°C)	ゾーン 4 (°C)	ゾーン 5 (°C)	ダイ (°C)	溶融物 (°C)	10
135	170	180	180	180	185	190	

【0175】

押出ポリマーフィルムを、冷水で 26 の温度に維持された 12 インチ直径の平滑な急冷ドラム上に静電気的に固定し、標準テンションロールを用いて剥離紙上に集める。急冷ドラム速度を 5～15 フィート毎分に調節して約 8 ミル～約 1.5 ミルの厚さのフィルムサンプルを得る。

【0176】

【表 9】

表 7

実施例	デンブン・ブレンド		30
	実施例	実施例	
61	55		
62	56		
63	57		
64	58		
65	59		
66	60		

【0177】

フィルムをファストフード・サンドイッチ・パッケージングとして試験する。

【0178】

(実施例 67～73)

より大きい規模であることを除いて、上の実施例 8 でのように製造したポリマーを、0.04 パーセント未満の含水率まで乾燥熱風再循環を使って大きなトレー乾燥機中 60 で一晩乾燥する。タルク（コロラド州エンゲルウッド（Englewood, Colorado）にあるルゼナック（Luzenac）製の、3.8 ミクロンの粒度を有する）、二酸化チタン（オクラホマ州オクラホマ市（Oklahoma City, Oklahoma）にあるケル・マックギー・ケミカル社（Kerr-McGee Chemical, LLC）によって供給される、0.17 ミクロンの粒度を有する、グレード・トロノックス（Tronox）（登録商標）470）、および炭酸カルシウム（アラバマ州シラコ 40

40

50

ーガ (Sylacauga, AL) の ECCA カルシウム・プロダクツ社 (ECCA Calcium Products, Inc.) 製の、1ミクロン平均粒度の ECC スーパーコート (Supercoat) (T) グレード) を、1パーセント未満の含水率まで大きなトレー真空オーブン中 90 および 1 mmHg 未満減圧で乾燥し、使用するまで密封容器中に保管する。

## 【0179】

ポリマーと無機フィラーとのブレンドを、プラスチック袋中で材料を手動で混転することによって調製する。乾燥無機フィラーを乾燥機からの暖かいポリマーに加え、まだ暖かい混合物を押出機に供給する。下の表 8 にリストする組成物を調製する。

## 【0180】

## 【表 10】

10

表 8

実施例	ポリマー (重量%)	タルク (重量%)	二酸化チタン (重量%)	炭酸カルシウム (重量%)
67	85	2.5	5	7.5
68	70	5	5	20
69	70	5	10	15
70	30	10	15	45
71	95	5		
72	95		5	
73	70			30

20

## 【0181】

ブレンドを、窒素バージしながら、ケイトロン二軸スクリュー供給機 (190 630 0 コントローラー付きのモデル番号 T-35) の供給ホッパーに入れ、真空ポートおよび硬質混合スクリュー付きで 30/1 の L/D を有するワーナー・アンド・フライダー ZSK 30 mm 二軸スクリュー押出機に計量供給する。押出機バレルの温度を、押出機の供給端での 150 から排出端での 200 まで電気的に加熱する。押出機を 150 RPM で運転し、真空ポートを所内バキュームに連結し、プロセス条件で変動することを可能にする。単一穴ダイ (1/8 インチ直径) を排出のために使用する。生じたストランドを 6 フィート長さの水トラフ中で急冷し、エアナイフで脱水し、コナイル・カッター (モデル番号 304) でペレットへカットする。個々の組成物に対する具体的な運転条件を表 9 で下にリストする。

30

## 【0182】

40

【表11】

表9

実施例番号	供給速度(pph)	スクリュートルク(%最大)	ダイ圧力(psig)	溶融物温度(°C)	減圧(インチHg)
67	34	58	800	195	13
68	30	70	800	215	13
69	31	70	800	215	12
70	32	80	800	225	12
71	33	50	600	195	13
72	32	50	600	195	13
73	30	70	800	215	12

【0183】

(実施例74～80)

実施例67～73で上に調製したポリマー・無機フィラー・ブレンドと、より大きい規模であることを除いて、上の実施例8について記載したのと同様に製造したポリマーとを、-40露点までホッパードライヤー中60で8時間乾燥する。材料を単軸スクリュー容量供給機(ケイ・トロン・モデルNo.7)のホッパーに入れ、そこからそれらは、所内バキュームに維持された真空ポートを約0.010インチ・ギャップの10インチ幅フィルム・ダイに取り付けた28mmワーナー・アンド・フライダー二軸スクリュー押出機の入口に自由に落下する。実施例77は、50重量パーセントの実施例70と50重量パーセントの実施例8との混転ブレンドよりなる。乾燥室素バージを供給ホッパーおよび押出機の供給口に維持する。押出機を次のヒーター・プロフィールで150RPMスクリュー速度で運転する。

【0184】

【表12】

ゾーン1 (°C)	ゾーン2 (°C)	ゾーン3 (°C)	ゾーン4 (°C)	ゾーン5 (°C)	ダイ (°C)	溶融物 (°C)
170	195	210	210	210	215	220

【0185】

押出ポリマーフィルムを、冷水で26の温度に維持された12インチ直径の平滑な急冷ドラム上に静電気的に固定し、標準テンションロールを用いて剥離紙上に集める。急冷ドラム速度を5～15フィート毎分に調節して約8ミル～約1.5ミルの厚さのフィルムサンプルを得る。

【0186】

10

20

30

40

【表13】

表10

実施例	ブレンド	
	実施例	
74	67	
75	68	10
76	69	
77	50 重量%70 および 50 重量%8	
78	71	
79	72	
80	73	

【0187】

フィルムをファストフード・サンドイッチ・パッケージングでの使用について試験する 20

。

【0188】

(実施例81～86)

より大きい規模であることを除いて、表11で下に書き留める実施例に記載するように製造したポリマーを除湿空気乾燥機中60で一晩乾燥する。乾燥したポリマーを、15:1ギア減速機付きのキリオン1.25インチ直径押出機を含む実験室規模プローンフィルム・ラインに供給する。押出機ヒーター・ゾーンを表11で下に書き留める温度近くにセットする。スクリューは24対1のL/Dのマドック(Maddock)混合タイプである。混合スクリューについての圧縮比は3.5:1である。スクリュー速度は25～30RPMである。25ミル・ダイギャップの1.21インチ直径ダイを用いる。エアリングはキリオン・シングル・リップ、No.2タイプである。ブローイング条件は、気泡直径対ダイ直径の比であり、輪もしくは横方向(TD)延伸の指標を与えるブローアップ比(BUR)、または軸もしくは縦方向(MD)延伸の指標であるドローダウン比(DDR)によって特徴づけることができる。延伸のレベルが大きければ大きいほど、フィルム中の配向は大きくなる。

【0189】

【表14】

表11

実施例 番号	実施例 番号	ポリマー 押出機 ヒーターゾーン (℃)	フィルム 厚さ (ミル)	BUR	DDR
81	2	150	2.5	3.2	3.9
82	8	185	2.0	2.6	4.6
83	13	200	1.2	3.1	8.0
84	60	170	2.0	2.5	5.0
85	67	195	1.5	3.0	7.0
86	69	215	2.3	2.0	

10

【0190】

管状フィルムを細長く切って、ファストフード・サンドイッチ・パッケージングとして 20 試験する。

【0191】

(実施例87～89)

2層フィルムを、ブランプトン・エンジニアリング (B r a m p t o n E n g i n e e r i n g) によって製造された10インチ、2層、流線形共押出ダイ (S t r e a m l i n e d C o e x t r u s i o n D i e) (S C D)、ローンフィルム・ダイで製造する。ダイの層構造はダイの外層から内層へ次の通り、A / Bである。2つの3.5インチ・ディビッド標準 (D a v i d S t a n d a r d) 押出機がAおよびB層を供給した。プロセスラインはさらに、ポリマー冷却用のブランプトン・エンジニアリング回転エアリングを利用する。層Aは、より大きな規模であることを除いて、実施例10について記載したものと同様に製造したポリマーを含有する。層Bは、より大きな規模であることを除いて、実施例2について記載したものと同様に製造したポリマーを含有する。両ポリマーを除湿乾燥機中60で乾燥する。運転を、全フィルム構造の時点で、表12で下に書き留めるフィルムについての層比を提供するように調整した。フィルムの厚さは約2.5ミル (0.00225インチ) である。フィルムの加工条件を下の表13に提供する。

30

【0192】

【表15】

表12

40

実施例	層A (重量%)	層B (重量%)
87	25	75
88	50	50
89	75	25

50

【 0 1 9 3 】

【表 1 6 】

表 13

	押出機A	押出機B	
ゾーン 1	160°C	115°C	10
ゾーン 2	185°C	140°C	
ゾーン 3	195°C	150°C	
ゾーン 4	195°C	150°C	
ゾーン 5	200°C	155°C	
スクリーン自動交換装置	195°C	150°C	
アダプター 1	195°C	150°C	
アダプター 2	195°C	150°C	
アダプター 4	195°C	150°C	
ダイ 1	195°C	195°C	
ダイ 2	195°C	195°C	20
ダイ 3	195°C	195°C	
ライン速度	122 フィート毎分		
注記	10	2	

【 0 1 9 4 】

30

上で製造した多層フィルムを、押出ライン・ニップの下流でバッテンフェルド・グロウセスター・エンジニアリング社 (Battenfeld Gloucester Engineering Co., Inc.) によって製造されたインライン製袋機を用いて袋へ変換する。スリットフィルムをファストフード・サンドイッチ・ラップとして試験する。

【 0 1 9 5 】

40

(実施例 90 ~ 92)

2層フィルムを、プランプトン・エンジニアリングによって製造された10インチ、2層、流線形共押出ダイ (SCD)、プローンフィルム・ダイで製造する。ダイの層構造はダイの外層から内層へ次の通り、A / B である。2つの3.5インチ・ディビッド標準押出機がAおよびB層を供給した。プロセスラインはさらに、ポリマー冷却用のプランプトン・エンジニアリング回転エアリングを利用する。層Aは、より大きな規模であることを除いて、実施例68について記載したものと同様に製造したポリマーを含有する。層Bは、より大きな規模であることを除いて、実施例5について記載したものと同様に製造したポリマーを含有する。両ポリマーを除湿乾燥機中60°で乾燥する。運転を、全フィルム構造の時点で、表14で下に書き留めるフィルムについての層比を提供するように調整した。フィルムの厚さは約2.25ミル (0.00225インチ) である。フィルムの加工条件を下の表15に提供する。

【 0 1 9 6 】

【表17】

表14

実施例	層A (重量%)	層B (重量%)	
90	25	75	
91	50	50	10
92	75	25	

【0197】

【表18】

表15

	押出機A	押出機B	
ゾーン1	155°C	140°C	
ゾーン2	170°C	160°C	
ゾーン3	215°C	175°C	
ゾーン4	215°C	175°C	
ゾーン5	220°C	180°C	
スクリーン自動交換装置	215°C	175°C	
アダプター1	215°C	175°C	30
アダプター2	215°C	175°C	
アダプター4	215°C	175°C	
ダイ1	215°C	215°C	
ダイ2	215°C	215°C	
ダイ3	215°C	215°C	
ライン速度	122 フィート毎分		
注記	68	5	40

【0198】

上で製造した多層フィルムを、押出ライン・ニップの下流でバッテンフェルド・グロウセスター・エンジニアリング社によって製造されたインライン製袋機を用いて袋へ変換する。スリットフィルムをファストフード・サンドイッチ・ラップとして試験する。

【0199】

(実施例93～95)

2層フィルムを、プランプトン・エンジニアリングによって製造された10インチ、2

50

層、流線形共押出ダイ（S C D）、ブローンフィルム・ダイで製造する。ダイの層構造はダイの外層から内層へ次の通り、A / Bである。2つの3.5インチ・ディビッド標準押出機がAおよびB層を供給した。プロセスラインはさらに、ポリマー冷却用のプランプトン・エンジニアリング回転エアリングを利用する。層Aは、実施例58について記載したものと同様に製造したデンブン充填ポリマーを含有する。層Bは、イーストマン・ケミカル・カンパニー（Eastman Chemical Company）製の上記のような、イースター（Eastar）（登録商標）バイオ（Bio）を含有する。両ポリマーを除湿乾燥機中60で乾燥する。運転を、全フィルム構造の時点で、表16で下に書き留めるフィルムについての層比を提供するように調整した。フィルムの厚さは約2.25ミル（0.00225インチ）である。フィルムの加工条件を下の表17に提供する。 10

【0200】

【表19】

表16

実施例	層A (重量%)	層B (重量%)	20
93	25	75	
94	50	50	
95	75	25	

【0201】

【表20】

表17

	押出機A	押出機B	
ゾーン1	140°C	100°C	
ゾーン2	160°C	115°C	
ゾーン3	170°C	130°C	10
ゾーン4	170°C	130°C	
ゾーン5	175°C	135°C	
<b>スクリーン自動交換装置</b>	170°C	130°C	
アダプター1	170°C	130°C	
アダプター2	170°C	130°C	
アダプター4	170°C	130°C	
ダイ1	170°C	170°C	20
ダイ2	170°C	170°C	
ダイ3	170°C	170°C	
<b>ライン速度</b>		122 フィート毎分	

【0202】

上で製造した多層フィルムを、押出ライン・ニップの下流でバッテンフェルド・グロウセスター・エンジニアリング社によって製造されたインライン製袋機を用いて袋へ変換する。スリットフィルムをファストフード・サンドイッチ・ラップとして試験する。

【0203】

(実施例96～125)

より大きな規模であることを除いて、表18で下にリストする実施例に記載するように製造したポリエステル樹脂を、-40の露点の乾燥空気乾燥機中60の温度で一晩乾燥する。ポリエステル樹脂を、28:1のバレル長さ対直徑比を有する2.5インチ市販押出機中へ乾燥ペレットを供給することによって板紙素材上へ押出コートする。押出機の5ゾーンを表18内で下に書き留める範囲の温度に維持する。8つの圧縮ねじ山、4つの計量供給ねじ山、2つのねじ山混合セクションおよび6つの計量供給ねじ山を有する一条ねじスクリューを押出機で用いる。スクリュー速度を180回転毎分(RPM)に維持する。溶融ポリエステル樹脂を3つの24×24メッシュ・スクリーンを通過させる。ポリマーを、36インチ×0.02インチのダイ開口部を有する0.75インチ・ランド部の中心供給ダイを通過させる。押出供給速度を460ポンド毎時で一定に保持する。生じた押出物を、5インチ・エアギャップを通してゴム・カバー圧力ロールとチルロールとによって形成されたニップ中へ通す。同時に、32インチ幅である表18で下に書き留める板紙素材を、フィルムと接触するロール付きのニップ中へ供給する。線インチ当たり100ポンドのニップ圧力をかける。24インチ直徑ミラー仕上げチルロールを押出試行の間ずっと19の温度に維持する。コート板紙を、圧力ロールとチルロールとによって形成されるニップからポイント180度でチルロールから取り去る。チルロールを300フィート毎分の線速度で運転する。このコーティング速度で、1.25ミルのポリエステル樹脂厚さが得られる。ポリエステル樹脂厚さは運転上の修正によって変えることができる。

【0204】

30

40

50

【表21】

表18

ポリマー 実施例	押出機 実施例	紙/板紙 温度(℃)	素材	
96	1	160	羊皮紙	10
97	3	160	15 ポンド坪量クラフト紙	
98	4	155	18 ポンド坪量天然紙	
99	5	185	18 ポンド坪量漂白紙	
100	8	190	25 ポンド坪量漂白クラフト紙	
101	9	200	35 ポンド坪量天然クラフト紙	
102	10	205	羊皮紙	
103	11	205	15 ポンド坪量クラフト紙	
104	12	150	18 ポンド坪量漂白紙	
105	13	210	25 ポンド坪量漂白クラフト紙	
106	1	160	3 層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 重量)	20
107	3	160	3 層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 重量)	
108	4	155	3 層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 重量)	
109	5	185	3 層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 重量)	
110	8	190	3 層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 重量)	
				30

【0205】

## 【表22】

111	9	200	3層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 重量)	
111	9	200	3層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 重量)	
112	10	205	3層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 重量)	
113	11	205	3層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 重量)	
114	12	150	3層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 重量)	
115	13	210	3層カップ板紙(210g/m <sup>2</sup> 重量)	10
116	1	160	18ポイント板紙	
117	3	160	12ポイント板紙	
118	4	155	18ポイント板紙	
119	5	185	12ポイント板紙	
120	8	190	18ポイント板紙	
121	9	200	12ポイント板紙	
122	10	205	18ポイント板紙	20
123	11	205	12ポイント板紙	
124	12	150	18ポイント板紙	
125	13	210	12ポイント板紙	

## 【0206】

実施例96～105で製造したポリエステルをファストフード・サンドイッチ・ラップパッケージングとして試験する。

## 【0207】

実施例96～105で製造したポリエステルは、例えば、廃棄物、ごみ、葉、飛行機酔い、および食料品用をはじめとする封筒、バッグの形状へ従来法によって成形され、ヒートシールされる。実施例106～115で製造したポリエステルは、例えば、ミルク、ジュース、水、ワイン、ヨーグルト、クリーム、およびソーダに好適なコップ、グラス、ボウル、トレー、液体容器およびカートンの形状へ従来法によって成形される。

## 【0208】

実施例116～125で製造したポリエステルは、トレー、ボックス、蓋付きのサンドイッチ容器、蓋付きのサラダ容器、開き蓋サンドイッチ容器、および開き蓋サラダ容器の形状へ従来法によって成形される。

## 【0209】

## (実施例126)

押出-コート紙ラミネートを下記のように製造する。より大きな規模であることを除いて、上の実施例7のように製造した樹脂を60で一晩乾燥する。樹脂を次に、0.07インチ・ギャップの18インチ幅フィルム・ダイ付きの1インチ(2.5cm)押出機(エチリン・マニュファクチャリング・カンパニー(Echlin Manufacturing Company)通し番号0717)の入口上方のホッパーに入れる。18インチ幅不織布を、バーモント州セントオールバンスのバーテック社(Bertek Inc. of St. Albans, Vt.)によって製造された押出コーティング機を通して47～106フィート/分の速度で連続的に導く。樹脂を、チルロールとチルロールにできるだけ近い(約0.25～0.50インチ)ニップロールとの間のある場所で、所

10

20

30

40

50

望の厚さのコーティングをもたらすために適切であると分かった押出量でダイを通して押し出しながら、コートされるべき紙（11インチ幅、18ポンド紙素材）をこの支持布一面に供給し、アセンブリを、コロナ処理機（インターフィル（Interfil）によって製造された）を通して、150～260°Fに加熱された4インチ直径トウロール間のS型ワープを通して、100～200°F、12インチ直径ロールの円周の約300度で、12インチ（30cm）の直径のポリテトラフルオロエチレン・コート艶消し仕上げチルロール上へ導く。押出機中のポリマー温度は355°Fであり、ダイ中のポリマー温度は360°Fである。ポリマー温度は、流れ不規則性を最小にするように調節することができる。0.5ミル厚さのフィルムを紙に貼り付ける。紙ラミネートをファストフード・サンドイッチ・ラップパッケージングとして試験する。

10

## 【0210】

上のラミネートの試験片（8インチ×8インチ正方形）を、約2:1の比での混合都市固体廃棄物（それからガラス、缶と、軽いプラスチックおよび紙の大半とが除去されている）および下水スラッジの四角にした約0.5立方ヤードと共に回転堆肥機中に入れる。堆肥機を1週間に1回回転させ、温度および含水率を監視する。ラミネートを生分解性について試験する。

## 【0211】

## （実施例127）

押出・コート紙ラミネートを下記のように製造する。より大きな規模であることを除いて、上の実施例6のように製造した樹脂を60で一晩乾燥する。樹脂を次に0.007インチ・ギャップの18インチ幅フィルム・ダイ付きの1インチ（2.5cm）押出機（エチリン・マニュファクチャリング・カンパニー通し番号0717）の入口上方のホッパーに入れる。18インチ幅不織布を、バーモント州セントオールバンスのバーテック社によって製造された押出コーティング機を通して47～106フィート/分の速度で連続的に導く。樹脂を、チルロールとチルロールにできるだけ近い（約0.25～0.50インチ）ニップロールとの間のある場所で、所望の厚さのコーティングをもたらすために適切であると分かった押出量でダイを通して押し出しながら、コートされるべき紙（11インチ幅、18ポンド坪量の漂白クラフト紙素材）を不織布一面に供給し、紙と布とを、コロナ処理機（インターフィルによって製造された）を通して、150～260°Fに加熱された4インチ直径トウロール間のS型ワープを通して、100～200°F、12インチ直径ロールの円周の約300度で、12インチ（30cm）の直径のポリテトラフルオロエチレン・コート艶消し仕上げチルロール上へ導く。押出機中のポリマー温度は315°Fであり、ダイ中のポリマー温度は320°Fである。ポリマー温度は、流れ不規則性を最小にするように調節することができる。0.5ミル厚さのフィルムを紙に貼り付ける。紙ラミネートをファストフード・サンドイッチ・ラップパッケージングとして試験する。

20

## 【0212】

上のラミネートの試験片（8インチ×8インチ正方形）を、約2:1の比での混合都市固体廃棄物（それからガラス、缶と、軽いプラスチックおよび紙の大半とが除去されている）および下水スラッジの四角にした約0.5立方ヤードと共に回転堆肥機中に入れる。堆肥機を1週間に1回回転させ、温度および含水率を監視する。ラミネートを生分解性について試験する。

30

## 【0213】

## （実施例128）

より大きな規模であることを除いて、実施例2に記載するように製造したポリマーと、ポリ（ラクチド）（カーギル・ダウ・カンパニー製の）とを-40の露点までホッパードライヤー中60で一晩乾燥する。210グラム/m<sup>2</sup>の重さがある3層板紙上に150メートル/分の前進速度で実施例2ポリマーとポリ（ラクチド）とを1:3の重量比で共押出する。実施例2ポリマーの溶融温度は150であり、ポリ（ラクチド）の溶融温度は240である。ポリマーコーティングの総重量が外層を形成した75重量パーセントのポリ（ラクチド）、および板紙に付着した内層を形成した実施例2からの25重量パ

40

50

ーセントのポリマーの重量比で 19.4 グラム / メートル<sup>2</sup> であるコート板紙を得る。

【 0 2 1 4 】

上に製造した板紙は、例えば、ミルク、ジュース、水、ワイン、ヨーグルト、クリーム、およびソーダに好適なカップ、グラス、ボウル、トレー、液体容器およびカートンの形状へ従来法によって成形される。

【 0 2 1 5 】

( 実施例 129 ~ 134 )

カレンダー掛け紙ラミネートを、表 19 で下に書き留める実施例で上記のように製造したフィルムのアセンブリを製造し、コートされるべき紙の類似サイズのシートと接触した剥離紙上へコートし、次に 5 ヤード / 分の表面速度で、200 °F の温度および 10 トンの圧力下で、加熱された磨き金属トップロールと加熱されていない弾力的な（絹）ロールとの間のニップによってアセンブリをプレスすることによって製造する。

【 0 2 1 6 】

ラミネート紙製品を製造するのに使用する様々な紙基材の詳細を下の表 19 に示す。

【 0 2 1 7 】

【 表 23 】

表 19

実施例	フィルム	紙	紙坪量/厚さ
実施例	基材		(オンス/ヤード <sup>2</sup> /ミル)
129	17	タオル(スコット(Scott)、ビバ(Viva))	1.2/6
130	21	タオル(G.P.、スパーク(Sparkle))	1.3/10
131	32	トイレットペーパー(チャーミン(Charmin))	0.9/6
132	52	包装用ティッシュ(白)	0.5/2
133	63	新聞用紙	1.5/4
134	74	クラフト(リサイクルされた)	2.8/6

10

20

30

40

50

【 0 2 1 8 】

上のラミネートの試験片 (8 インチ × 8 インチ正方形) を、約 2 : 1 の比の混合都市固体廃棄物 (それからガラス、缶と、軽いプラスチックおよび紙の大半とが除去されている) および下水スラッジの四角にした約 0.5 立方ヤードと共に回転堆肥機中に入れる。堆肥機を 1 週間に 1 回回転させ、温度および含水率を監視する。ラミネートを生分解性について試験する。

【 0 2 1 9 】

( 実施例 135 )

積層素材を、2つの水系アクリル接着剤調合物の組み合わせを用いて板紙とコロナ処理ポリエステルフィルムとの組み合わせから製造する。板紙ベース素材は、食品包装材用ベース素材として周知である、典型的には固体漂白スルフェート (SBS) 板紙と言われるタイプの漂白白板紙である。ここで使用する特定の板紙は、0.0235 インチの厚さで 3,000 平方フィート当たり 282 ポンドの重さがある非コートのミルクカートン素材である。フィルムを上の実施例 32 に記載したように製造し、接着接合を高めるために一面上を従来法によってコロナ放電処理する。積層工程は、板紙およびフィルムの両方に接着剤を塗布するための接着剤ステーション付きの通常の湿式接合積層機で行う。接着剤を

、 1 , 0 0 0 平方フィートの板紙当たり約 3 ポンドの湿った接着剤を供給する 1 1 0 ライン・グラビアロール塗布機で板紙に塗布する。板紙に塗布される接着剤は、2 0 0 ポンドのローム・アンド・ハース・カンパニー製のロープレックス（登録商標）N - 1 0 3 1 アクリルラテックスおよび 1 . 5 オンスのダイヤモンド・シャムロック・ケミカル・カンパニー（Diamond Shamrock Chemical Company）製のフォームマスター（Foamaster）NXZ 脱泡剤（等容量の水中に予め分散された）よりなる。接着剤をポリエステルフィルムのコロナ処理面に塗布する。塗布される接着剤は、3 7 5 ポンドのローム・アンド・ハース・カンパニー製のロープレックス（登録商標）N - 1 0 3 1 アクリルラテックス、1 1 . 5 ポンドのサイメル（Cymel）（登録商標）3 2 5 メラミン・ホルムアルデヒド架橋剤、1 1 . 5 ポンドのイソプロピルアルコール、2 3 ポンドの水、および 3 オンスのダイヤモンド・シャムロック・ケミカルズ・カンパニー製のフォームマスター NXZ 脱泡剤（等容量の水中に予め分散された）よりなる。

## 【 0 2 2 0 】

積層工程は、それぞれの接着剤塗布ステーションを同時に通過する板紙およびフィルムで行い、次に板紙およびフィルムを両方とも積層ニップ中へ導き、そこで 2 つの接着剤コート表面を両面上でまだ湿っている接着剤で接合する。積層機を 3 0 0 ~ 3 5 0 フィート毎分の速度で運転する。積層素材を積層ニップから 4 0 0 度 F の空気温度の熱風オーブン中へ走らせる。積層素材のオーブン中の滞留時間は約 5 秒である。積層素材を次にチルロールを越えて走らせ、仕上げロールに巻き取る。

## 【 0 2 2 1 】

上に製造した積層素材は、例えば、ミルク、ジュース、水、ワイン、ヨーグルト、クリーム、およびソーダに好適なコップ、グラス、ボウル、トレー、液体容器およびカートンの形状へ従来法によって成形される。

## 【 0 2 2 2 】

## ( 実施例 1 3 6 ~ 1 6 5 )

これらの実施例は、予め成形した基材上への本発明のコポリエステルを含有するフィルムの積層を実証する。操作を 1 0 × 1 0 インチ圧盤付きのラボ・フォーム社（Lab Form Inc.）成形機で行う。予め成形した基材を圧盤上へ往復させる。フィルムを広げず、赤外型ヒーターでの「ブラックボックス加熱（Black Box Heating）」によって表 2 0 で下に書き留める時間予熱する。予熱フィルムを次に予め成形した基材の上方に置き、予め成形した基材上へ引き下ろす。実施例 1 3 6 ~ 1 4 5 は、予め成形した基材を通して真空に引くことによる真空積層を利用し、それは順繰りに、フィルムを予め成形した基材の外郭上へ引っ張る。実施例 1 4 6 ~ 1 5 5 はプラグ・アシスト真空積層を利用し、それによって、上記の真空に加えて、プラグは、予め成形した基材の反対側から予熱フィルムを押すのに役立って深絞りの予め成形した基材中へのフィルム薄層化を減らすのを助ける。実施例 1 5 6 ~ 1 6 5 は、予め成形した基材の反対側の予熱フィルムに空気圧をかけることによる圧力積層を利用し、それは予め成形した基材の外郭上へフィルムを押し付ける。積層法は典型的には 5 ~ 1 0 0 秒を要し、当該時間で過剰フィルムを積層基材から切り取り、積層基材を取り出し、冷却する。

## 【 0 2 2 3 】

実施例 1 3 6 ~ 1 6 5 で使用する予め成形した基材は次の通りである：従来法で製造された 9 インチ成形「パルププレート」。従来法で製造された成形冷凍ディナー板紙「トレー」。従来法で製造された高さ 3 . 5 インチの成形板紙コーヒー「カップ」。従来法で製造された高さ 3 インチおよび直径 4 インチの成形板紙「ボウル」。アースシェル・カンパニー（Earth Shell Company）から得られる商業的に入手可能なプレート（ストック番号 P L 9 V 0 0 0 0 1 ）からバリアフィルムを注意深く剥離することによって得られる 9 インチ「フォーム皿」。アースシェル・カンパニーから得られる商業的に入手可能なボウル（ストック番号 B L 1 2 V 0 0 0 0 1 ）からバリアフィルムを注意深く剥離することによって得られる 1 2 オンス「フォームボウル」。アースシェル・カンパニーから得られる商業的に入手可能な容器（ストック番号 C L S 0 0 0 0 1 ）からバリアフ

10

20

30

40

50

イルムを注意深く剥離することによって得られる、ダブル・タブ・クロージャー機構の開き蓋サラダおよびサンドイッチ「フォーム容器」。

【0224】

【表24】

表20

実施例	実施例	フィルム 時間(秒)	フィルム予熱 予め成形した 基材
136	2	10	パルププレート
137	12	10	トレー
138	30	20	カップ
139	51	30	ボウル
140	61	30	フォーム皿
141	74	40	フォームボウル
142	78	40	フォーム容器
143	87	40	パルププレート
144	92	40	トレー
145	95	30	フォーム皿
146	4	10	カップ
147	11	30	ボウル
148	32	30	フォームボウル
149	52	30	フォーム容器
150	63	30	カップ
151	75	40	ボウル
152	79	40	フォームボウル
153	88	40	フォーム容器
154	91	40	カップ
155	94	30	ボウル
156	8	25	トレー
157	13	40	カップ
158	35	40	ボウル
159	54	20	フォーム皿
160	65	40	フォームボウル
161	76	40	フォーム容器
162	80	40	パルププレート
163	89	40	トレー
164	90	40	フォーム皿
165	93	30	パルププレート

## 【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International Application No PCT/US2004/024463
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 C08G63/68 C08G63/688		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 C08G		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal, WPI Data		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 6 368 710 B1 (HAYES RICHARD ALLEN) 9 April 2002 (2002-04-09)  column 4, line 57 - column 5, line 7; claims 1,2,4-10; example 15 the whole document	1-6, 8-14,96, 98
X	US 2003/036626 A1 (HAYES RICHARD ALLEN ET AL) 20 February 2003 (2003-02-20) paragraphs '0004!, '0005!; claims 1,4,7-9	15,19-95
A	US 2003/088033 A1 (SHELBY MARCUS DAVID ET AL) 8 May 2003 (2003-05-08) paragraphs '0027!, '0053!, '0072!; claims 1,13	1-98
A		1-14, 19-22,25
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C.		<input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.
* Special categories of cited documents:		
*A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance		
*E* earlier document but published on or after the international filing date		
*L* document which may throw doubts on priority, claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)		
*O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means		
*P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		
*T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention		
*X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone		
*Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.		
*&* document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report	
23 November 2004	30/11/2004	
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL-2280 HV Rijswijk Tel: (+31-70) 340-2040, Tx: 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer Sperry, P	

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int'l Application No
PCT/US2004/024463

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date
US 6368710	B1 09-04-2002	NONE		
US 2003036626	A1 20-02-2003	EP 1414884 A1	06-05-2004	
		WO 03014184 A1	20-02-2003	
US 2003088033	A1 08-05-2003	EP 1414904 A1	06-05-2004	
		WO 03008499 A1	30-01-2003	

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (January 2004)

## フロントページの続き

(51)Int.Cl.			F I			テーマコード(参考)	
<b>D 0 2 G</b>	<b>3/02</b>	<b>(2006.01)</b>	D 0 1 F	6/92	3 0 7 Z	4 L 0 3 5	
<b>D 0 2 G</b>	<b>3/04</b>	<b>(2006.01)</b>	D 0 2 G	3/02		4 L 0 3 6	
<b>B 2 9 C</b>	<b>55/02</b>	<b>(2006.01)</b>	D 0 2 G	3/04			
<b>B 6 5 D</b>	<b>1/00</b>	<b>(2006.01)</b>	B 2 9 C	55/02			
<b>B 6 5 D</b>	<b>65/40</b>	<b>(2006.01)</b>	B 6 5 D	1/00	B R Q A		
<b>B 2 9 K</b>	<b>67/00</b>	<b>(2006.01)</b>	B 6 5 D	65/40	B S F D		
			B 2 9 K	67:00			

(81)指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LS,MW,MZ,NA,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM),EP(AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HU,IE,IT,LU,MC,NL,PL,PT,RO,SE,SI,SK,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KP,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,M A,MD,MG,MK,MN,MW,MX,MZ,NA,NI,NO,NZ,OM,PG,PH,PL,PT,RO,RU,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SY,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG ,US,UZ,VC,VN,YU,ZA,ZM,ZW

(72)発明者 リチャード アレン ヘイズ

アメリカ合衆国 3 7 0 2 7 テネシー州 ブレントウッド ミルブルック ブールバード 6 3  
0 9

F ターム(参考) 3E033 BA01 BA07 BA10 BA17 BA22 BA26 BB01 CA20  
3E086 AD05 AD06 AD13 BA04 BA13 BA14 BA15 BA16 BA33 BB41  
BB90 CA01 CA11 CA12 CA13 DA08  
4F210 AA24E AG01 QA08 QC05 QG01 QG17  
4J002 AB04X CF03X CF09X CF14W CF14X CF18X CF19X CG00X CL08X GG01  
GK00  
4J029 AA03 AC02 AD01 AE01 AE02 AE03 BA01 BA02 BA03 BA04  
BA05 BD07A BD10 BF09 CA01 CA02 CA03 CA04 CA05 CA06  
CA09 CB05A CB05B CB06A CB06B CC06A CE04 CF03 CH02 DB02  
DB07 FC12 FC36 HA01 HA02 HB01 HB02 JA093 JA123  
4L035 BB31 EE20 HH01  
4L036 MA05 MA08 MA39 PA33 PA46 UA25