

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局

(43) 国際公開日  
2018年3月8日(08.03.2018)



(10) 国際公開番号

WO 2018/043457 A1

(51) 国際特許分類:

D01F 6/92 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2017/030853

(22) 国際出願日: 2017年8月29日(29.08.2017)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:

特願 2016-167741 2016年8月30日(30.08.2016) JP

(71) 出願人: 東レ株式会社 (TORAY INDUSTRIES, INC.) [JP/JP]; 〒1038666 東京都中央区日本橋室町2丁目1番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 荻原 由嗣 (OGIWARA Yoshitsugu); 〒4448522 愛知県岡崎市矢作町字出口1番地 東レ株式会社岡崎工場内 Aichi (JP). 中村 浩太 (NAKAMURA Kota); 〒4448522 愛知県岡崎市矢作町字出口1番地 東レ株式会社岡崎工場内 Aichi (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人栄光特許事務所 (EIKOH PATENT FIRM, P.C.); 〒1050003 東京都港区西新橋一丁目7番13号 虎ノ門イーストビルディング10階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO,

DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: RECYCLED POLYESTER FIBER

(54) 発明の名称: 再生ポリエステル繊維

(57) Abstract: The present invention provides a recycled polyester fiber: which can be used not only for knit fabric configuring sportswear but also for sewing thread to be used in sewing; for which development into sports uniforms that require color tones similar to virgin starting materials is possible; and which can be mass produced at low cost while maintaining a state of minimal fiber fuzz in long-term production without the need for special devices or equipment. The present invention relates to a recycled polyester fiber characterized in: comprising polyester resin, which has salvaged polyester as the main component, and poly(meta-xylylene adipamide) (MXD6); the MXD6 content when the weight of the recycled polyester fiber as a whole is 100 weight% being 0.01 to 1 weight%; and the L value being 70 to 100 and the b value being -5 to 5.

(57) 要約: 本発明は、スポーツウェアを構成するニット生地のみならず縫製に用いる縫い糸にも適応でき、バージン原料並みの色調が求められるスポーツユニフォームへの展開も可能であり、しかも特異な装置と設備を要することなく、低コストで、かつ長期間の生産において繊維毛羽が少ない状態を維持しながら量的生産が可能な再生ポリエステル繊維を提供する。本発明は、回収されたポリエステルを主成分とするポリエステル樹脂と、ポリメタキシリレンアジパミド (MXD6) とを含み、前記MXD6の含有量は、再生ポリエステル繊維全体の重量を100重量%としたときに0.01~1重量%であり、L値が70~100かつ、b値が-5~5であることを特徴とする再生ポリエステル繊維に関する。



WO 2018/043457 A1

## 明 細 書

発明の名称：再生ポリエステル繊維

### 技術分野

[0001] 本発明は、再生ポリエステル繊維に関するものである。詳しくは、スポーツウェアを構成するニット生地のみならず縫製に用いる縫い糸にも適応でき、バージン原料並みの色調が求められるスポーツユニフォームへの展開も可能な再生ポリエステル繊維に関するものである。

### 背景技術

[0002] ポリエステルは、力学的特性、耐熱性、成形性等の機能性の有用さから、例えば、衣料用、資材用、医療用等多様な用途に用いられている。その中でも、汎用性、実用性の点でポリエチレンテレフタレートが優れ、好適に使用されている。

[0003] これらのポリエステル製品は使用後に廃棄処分されているが、焼却処分を行うと燃焼時に高熱が発生し、通常仕様の焼却炉では炉内が損傷し易く、高温耐久性に優れた特別仕様の焼却炉が必要になる等の課題がある。また焼却せずに廃棄する場合には、腐敗分解しにくいために半永久的に廃棄物として残存し、動物が誤食して死亡する等の問題が生じることから環境保全という面で改善が求められている。

[0004] 斯様な状況を踏まえ、資源の再利用、持続的な環境保全の面から、廃棄されたポリマ製品を回収し再利用すべく、使用量が多く、今後も使用量の増加が予想されるポリエチレンテレフタレートを主に、使用した食用液体用ボトル（ペットボトル）をはじめとして成型品を再溶融、ペレット化し、再び繊維、フィルム、成型品にするというリサイクルの試みが近年盛んに行われている。

[0005] しかしながら、回収されたポリエステルは、容器や衣料ポリエステル、産業廃棄物ポリエステル、あるいは繊維、フィルムおよびその他の成形品を製造するための種々の工程で発生する不良品あるいは屑ポリエステルなど、様

々な形態、種々の重合度のポリマが混在している。それら混在したポリマが溶融混合されるため、得られるリサイクルポリエステルはくすみや着色を帯び易いという課題があった。

[0006] また、得られたリサイクルポリエステル、例えばペレット形状化したリサイクルポリエステルを製糸して繊維化する際、該ポリエステル中に含有する添加物、異物等の不純物、更には回収時に分別されずに混入する金属、ガラス等により溶融紡糸する際にノズルの背面にあるフィルターの目詰まりが早く、背圧が急激に上昇し長期の操業が困難となる。一方で、長期操業性を確保するためフィルターの孔サイズを大きくすると、紡糸或いは延伸工程において糸切れが多発し、操業性が悪化することから、回収されたポリエステルから力学的特性と工程通過性に優れた再生ポリエステル繊維を得ることは困難であった。

[0007] 上記のような課題に対して、回収するポリエステルの品質改善や再生プロセスの工程改善が品質向上や色調改善、更には工程通過性改善にも寄与する最も単純かつ有効的な手段と考えられ、現在までにいくつかの提案がなされている。

[0008] 品質改善に関して例えば、ポリエチレンテレフタレート樹脂に、アミド結合を有する重合物、ウレタン結合を有する重合物、ウレア結合を有する重合物、及び主鎖内に $\pi$ 結合と末端アミンを有する重合物からなる群から選択される1種又は2種以上の重合物が反応せしめられて改質されたポリエステル樹脂で、前記ポリエステル樹脂の結晶化前の伸びに対する結晶化後の伸びの割合で表される残存伸張率が50%以上であることを特徴とする改質ポリエステル樹脂に関する発明が提案されており（特許文献1参照）、結晶化後であっても伸びが大幅に低下することがなく伸長性を維持することが可能な改質ポリエステル樹脂及びポリエステル樹脂成形品が得られると記載されている。

[0009] 色調改善に関しては、主として回収されたポリエステルを出発原料に用いて紡糸延伸したポリエステルフィラメントであり、多くとも5重量%の有機

および／または無機不純物を含有しており、且つ、特定の伸度と数平均分子量の最大値と最小値の差に加え、10%伸長時の応力を3.0~3.9 g/dとし、その際の標準偏差を規定した回収ポリエステルフィラメントに関する発明が提案されており（特許文献2参照）、天然繊維に似た自然なムラ感を呈する衣料用ポリエステル繊維製品が得られると記載されている。

[0010] また、品質と色調改善に関しては、色調におけるb値が4~15の再生用ポリエステルAと、色調におけるb値が4未満の再生用ポリエステルBとを原料とするリサイクルポリエステルであって、ポリエステルAとポリエステルBの重量比率が20/80~70/30、含硫黄ナトリウムアルミノシリケートの含有量が30~200 ppm、極限粘度が0.5以上、色調におけるb値が3以下であることを特徴とするリサイクルポリエステルに関する発明が提案されており（特許文献3参照）、廃棄回収されたポリエステルの原料としたにも関わらず、粘度低下が少なく、色調が良好なりサイクルポリエステルが得られると記載されている。

## 先行技術文献

### 特許文献

[0011] 特許文献1：日本国特開2011-246665号公報

特許文献2：日本国特開2000-212832号公報

特許文献3：日本国特開2000-63557号公報

### 発明の概要

#### 発明が解決しようとする課題

[0012] 上記のとおり先行技術では様々な提案がなされているが、特許文献1の提案では、本発明の如きポリメタキシリレンアジパミド（MXD6）の記載があるものの重合物の一例として挙げられているだけである。すなわち、種々の重合物と反応せしめ改質したポリエステル樹脂との記載から分かつとおり、特許文献1に記載の発明は、ポリマを共重合化することで結晶化度を低下させ伸張性を得ることを目的としているものであり、特定のポリアミド樹脂

を添加剤として加えることで繊維製品とした際のタフネス損失を抑制する本発明の如き繊維設計がなされているものではなかった。また、紡糸加工品として、繊維、衣服といった記載はあるものの実施例に記載はなく、高品質の繊維製品を得る技術であることは何ら示唆されているものではなかった。

[0013] 特許文献2の提案は、本発明の如き異物量を規定しているものの、異物により天然繊維に似た自然なムラ感を呈することが目的であり、請求項1記載の10%伸長時の応力が3.0~3.9g/dであることから繊維製品の縫製に用いる高い力学的特性を要する縫い糸への適応は到底成し得るものではなかった。

[0014] また特許文献3の提案では本発明の如き色調におけるb値を規定し、かつ粘度低下抑制に着目し品質低下を抑制しているだけでなく、含硫黄ナトリムアルミノシリケートを30~200ppm添加することで樹脂補強を図っている。一見すると本発明の如き高品質と良好な色調を兼ね揃えた繊維製品を得ることが可能と考えられるが、含硫黄ナトリムアルミノシリケートは粒子であり、繊維製品のように延伸、細化が求められる用途においては、該添加剤が樹脂補強の役割ではなく延伸阻害粒子となり、力学的特性の発現性を大きく損ね、高品質の繊維製品が得られないといった課題があった。

[0015] このように従来技術では、回収されたポリエステルを繊維化した際に優れた力学特性を発現しつつ、同時にバージン原料並みの色調を有し、さらに低コストで、長期間の生産において毛羽が少ない状態を維持した量産生産を同時に満足することは達成し得ていないのが現状である。

[0016] 本発明の目的は、前記の従来技術の有する課題を解決するものであり、スポーツウェアを構成するニット生地のみならず縫製に用いる縫い糸にも適応でき、バージン原料並みの色調が求められるスポーツユニフォームへの展開も可能であり、しかも特異な装置と設備を要することなく、低コストで、かつ長期間の生産において繊維毛羽が少ない状態を維持しながら量的生産が可能な再生ポリエステル繊維を提供することにある。

**課題を解決するための手段**

[0017] 本発明は、上記の課題を達成せんとするものであって、回収されたポリエステルを主成分とするポリエステル樹脂と、ポリメタキシリレンアジパミド（MXD6）とを含み、前記ポリメタキシリレンアジパミド（MXD6）の含有量は、再生ポリエステル繊維全体の重量を100重量%としたときに0.01～1重量%であり、L値が70～100かつ、b値が-5～5であることを特徴とする再生ポリエステル繊維である。

[0018] 本発明の再生ポリエステル繊維においては前記ポリエステル樹脂に、無機不純物（チタン化合物および着色を目的とした染顔料を除く）を前記ポリエステル樹脂全体の重量を100重量%としたときに灰分量で0.1～5重量%含有すること、本発明の再生ポリエステル繊維がカチオン染料で染色せしめる官能基を有すること、回収されたポリエステルが飲料ボトル由来であることが、それぞれ好ましい条件として挙げられる。

### 発明の効果

[0019] 本発明によれば、スポーツウェアを構成するニット生地のみならず縫製に用いる縫い糸にも適応でき、バージン原料並みの色調が求められるスポーツユニフォームへの展開が可能な再生ポリエステル繊維が得られる。また、ニット生地および縫製用の縫い糸を本発明の再生ポリエステル繊維で構成することができ、100%再生ポリエステル繊維使いの製品を得ることのできるものである。さらには、本発明によれば、前記再生ポリエステル繊維を、低コストで、かつ長期間の生産において繊維毛羽が少ない状態を維持しながら量的生産が可能である。

### 発明を実施するための形態

[0020] 本発明の再生ポリエステル繊維について具体的に説明する。

[0021] 本発明の再生ポリエステル繊維は、回収されたポリエステルを主成分とするポリエステル樹脂と、ポリメタキシリレンアジパミド（MXD6）とを含み、前記ポリメタキシリレンアジパミド（MXD6）の含有量は、再生ポリエステル繊維全体の重量を100重量%としたときに0.01～1重量%であり、L値が70～100かつ、b値が-5～5であることを特徴とする。

[0022] 本発明の再生ポリエステル繊維（以下、単に「繊維」と称することがある。）を形成する回収されたポリエステルとしては、資源リサイクルを目的として回収された容器や衣料ポリエステル、産業廃棄物ポリエステル、あるいは繊維、フィルムおよびその他の成形品を製造するための種々の工程で発生する不良品あるいは屑ポリエステルが用いられる。中でもポリエステル容器であるペットボトル、特に飲料ペットボトルを回収ポリエステルとして用いると、一般衣料繊維用樹脂に比べ、重合度が高く繊維に再生するときに加熱溶融しても衣料用繊維として要求される繊維強度などの力学特性が安定しやすく好ましい。

なお、本発明の再生ポリエステル繊維のようなりサイクルされた原料を使用した製品を扱う会社は、原則的にGRS（Global Recycle Standard）認証を取得している。このGRSにより、使用しているリサイクル原料の詳細はリストに開示されるため、当該リストの情報から、回収されたポリエステルとバージン原料のポリエステルとを区別することができる。

[0023] また、再生ポリエステル繊維を形成する回収されたポリエステルは、本発明の効果を阻害しない範囲において、マテリアルリサイクル（メカニカルリサイクル、フィードストックリサイクル）など如何なるリサイクル手法を採用することができるが、再溶融時の熱履歴が比較的短時間であり、熱によるくすみや着色を抑制できることからマテリアルリサイクルの中でもメカニカルリサイクル手法を用いることが好ましい。

[0024] 前記回収されたポリエステルの主成分とするポリエステル樹脂（以下、単に「ポリエステル樹脂」又は「樹脂」と称することがある。）には、チタン化合物および着色を目的とした染顔料以外の無機化合物（本明細書において、「無機不純物（チタン化合物および着色を目的とした染顔料を除く）」又は「無機不純物」とも記す。）を樹脂全体の重量を100重量%としたときに灰分量で0.1～5重量%含有することが好ましく、0.1～3重量%含有することがより好ましい態様である。

無機不純物を、このような範囲とすることにより回収されたポリエステル  
の再生プロセス（原料受入、選別、粉碎（フレーク状化）、フレーク洗浄、  
ペレット化）における洗浄工程にて薬品洗浄時間を短縮化でき、粗大粒子の  
異物は除去しながらも薬品による長時間処理でのポリマ黄変を抑制できるた  
め、スポーツユニフォームに好適な色調が得られやすくなる。なお、ポリエ  
ステル樹脂中の無機不純物（チタン化合物および着色を目的とした染顔料を  
除く）の灰分量は、後述する方法で求めることができる。

[0025] また、本発明の効果を阻害しない範囲において、前記無機不純物とは別に  
、チタン化合物を艶消し剤としてさらに含有させることができる。この場合  
、コストと艶消し効果の両立を考えると酸化チタンが好ましい。

[0026] 本発明における最大の特徴かつ重要な要件は、本発明の再生ポリエステル  
繊維にポリメタキシリレンアジパミド（MXD6）を繊維全体の重量を10  
0重量%としたときに0.01～1重量%含有することであり、0.01～  
0.8重量%が繊維化した際の力学的特性発現に好適である。

[0027] 明確な理由は現時点で判明していないが、以下のように考えている。

再生ポリエステル繊維中のポリメタキシリレンアジパミド（MXD6）が  
上記範囲で含有される場合には、ポリメタキシリレンアジパミド（MXD6  
）特有の高い耐熱性により回収されたポリエステルの熔融時にも熱分解が起  
きない。また、MXD6はポリエステル樹脂に近い性質（比重1.21g/  
cm<sup>3</sup>、融点237℃など）を有するためにポリマ中で均一分布し、ポリエス  
テル樹脂とスタッキング構造を形成しつつ自由体積を生み出すことができる  
。これにより、ポリエステル樹脂の流動性を向上させ異物による延伸性阻害  
を抑制することで高い力学的特性を発現すると考えている。

[0028] これまで再生ポリエステル繊維の力学的特性、例えば強力を高めるには、  
特許文献2のように異物に着目し、単純に異物量を低減させることに注力さ  
れてきた。しかしながら、異物量を低減させるには再生プロセスにおける洗  
浄工程で微細な粒子が除去されるまで極めて長い時間薬品洗浄する必要があ  
り、異物除去と並行してポリマ分解が生じてしまい、結果としてくすみや着

色といった色調悪化が発生していた。

これに対し、本発明者らは、再生ポリエステル繊維において、相反する力学的特性改善と色調改善を同時に満足すべく分子鎖の性質に着目し分析した結果、異物由来の粒子が分子鎖の連続性を阻害すること、また、延伸工程における分子鎖の配向性を阻害することが強力を低下させている主原因であることを解明した。すなわち、分子鎖の連続性と延伸時の配向性を確保することこそが力学的特性改善に効果的であるという結論に到達した。本発明は、この分析を踏まえ鋭意検討したことで、力学的特性改善を満足しながら色調改善を同時に達成する方法を見出したものである。

[0029] なお、ポリメタキシリレンアジパミド (MXD6) の含有量が、再生ポリエステル繊維全体の重量を100重量%としたときに0.01重量%未満である場合は、ポリエステル樹脂とのスタッキング構造が十分に形成されず自由体積が少なく力学的特性が低下し、一方、1重量%を超える場合はポリメタキシリレンアジパミド (MXD6) 同士でスタッキング構造を形成してしまい、結果として自由体積が少なくなり力学的特性が低下する。

[0030] 本発明に用いるポリメタキシリレンアジパミド (MXD6) の数平均分子量は、好ましくは10,000~50,000であり、より好ましくは15,000以上、さらに好ましくは20,000以上である。また、より好ましくは45,000以下、更に好ましくは40,000以下である。数平均分子量が10,000~50,000の範囲を満足する場合には、ポリエステル樹脂との熔融混練時に均一相溶性が得られ易く、繊維成形性が良好である。なお、ポリメタキシリレンアジパミド (MXD6) の数平均分子量については、下式から算出される。

$$\text{数平均分子量} = 2 \times 1,000,000 / ([\text{COOH}] + [\text{NH}_2])$$

[0031] また、本発明に用いるポリメタキシリレンアジパミド (MXD6) は、本発明の効果を損なわない範囲で、ジアミン成分、ジカルボン酸成分および、 $\epsilon$ -カプロラクタムやラウロラクタム等のラクタム類、アミノカプロン酸、アミノウンデカン酸等の脂肪族アミノカルボン酸類を共重合成分として使用

できる。

[0032] 本発明の再生ポリエステル繊維においては、縫製の縫い糸として優れた力学的特性を得る上で、回収されたポリエステルを主成分とするポリエステル樹脂の重合度は高い方が良く、25℃の温度で、8wt/vol%オルソクロロフェノール溶液の相対粘度 $\eta_r$ を、オストワルド粘度計を用いて測定し、得られた固有粘度(IV)が0.55~1.10であることが好ましい態様である。

[0033] また、本発明の再生ポリエステル繊維はカチオン染料で染色せしめる官能基を有することが好ましく、すなわち、回収されたポリエステルを主成分とするポリエステル樹脂がカチオン染料で染色せしめる官能基を有することが好ましい。具体的には、ポリエステル樹脂を構成する高分子が当該官能基を有していてもよいし(フィードストックリサイクル手法)、ポリエステル樹脂中に当該官能基を有する別の成分を練り込み等により添加することで当該官能基を有するようにしてもよい(メカニカルリサイクル手法)。前記官能基としては、例えばスルホン酸基、カルボン酸基、リン酸基等が挙げられる。

官能基付与について公知の技術を採用できるが、メカニカルリサイクル手法では、例えば、回収されたポリエステルを溶融する際にナフタリンスルホン酸ナトリウムホルマリン縮合物を添加することが好ましい。フィードストックリサイクル手法では、例えば、回収されたポリエステルをエチレングリコールにて解重合した後、金属スルホネート基を含有したイソフタル酸成分を共重合すると共に再重合することが好ましい態様である。斯様な機能性を付与することで、本発明の如きバージン原料に近い色調を有する再生ポリエステル繊維においてカチオン染料で染色したときに優れた高発色性を有するカチオン可染性再生ポリエステル繊維を得ることができる。

[0034] 本発明の再生ポリエステル繊維は、総繊度が50~4,000dtexであることが好ましく、より好ましくは50~2,000dtexである。総繊度が50~4,000dtexの範囲を満足する場合には、単位時間当た

りの生産性を維持しつつ、長期間の生産において紡出後の冷却工程で均一な冷却性を得ることができるため毛羽が少ない状態で量的生産を可能にする。なお、繊維の総繊度は後述する測定方法で測定した値をいう。

[0035] 本発明の再生ポリエステル繊維は、L値が70～100の範囲であることが必要である。L値が70～100を満足する場合には、スポーツユニフォームに好適な白度を発現する。L値が70未満の場合には黒ずんだ色調となり、バージン原料の如き色調とは到底言えず、L値が100を超えることは測定機器の上限値を超えるため、理論上満足することは不可能である。

[0036] また、本発明の再生ポリエステル繊維は、b値が-5～5の範囲であることが必要であり、好ましくは-5～4であり、特に好ましく-5～3である。b値が-5～5を満足する場合には、バージン原料の如き色調を発現する。b値が-5未満の場合には、青味が強くなり染色時に暖色の発現性が乏しくなり、b値が5を超える場合には、黄色度が強くスポーツユニフォームには不適である。L値及びb値は後述する測定方法で測定した値をいう。

[0037] 本発明の再生ポリエステル繊維は、破断強度が2.0～9.0 cN/dtexであることが好ましく、より好ましくは3.5 cN/dtex以上であり、また、より好ましくは8.5 cN/dtex以下である。破断強度が2.0～9.0 cN/dtexの範囲を満足する場合には、スポーツウェアを構成するニット生地のみならず縫製に用いる縫い糸にも適用可能であり、再生ポリエステル繊維を100%使用した製品を得ることができる。なお、繊維の破断強度は直線強度と同義であり、後述する直線強度の測定方法で測定した値をいう。

[0038] また、本発明の再生ポリエステル繊維は、150℃の温度の乾熱における収縮率が1～15%であることが好ましく、2%以上がより好ましく、また、12%以下がより好ましい態様である。150℃の乾熱による収縮率を上記の範囲とすることが、繊維製品として加工する際の工程通過性や製品の寸法安定性維持・向上に繋がるために好適である。繊維の収縮率は後述する測定方法で測定した値をいう。

- [0039] 次に、本発明の再生ポリエステル繊維の製造方法について説明する。製造方法は、公知の回収されたポリエステルの再生プロセスを適用して再生ポリエステルペレットを得た後、低コストで、かつ長期間の生産において、毛羽が少ない状態を維持しながら量的生産が可能なポリエチレンテレフタレート溶融紡糸を採用することが好ましい。次に一例を説明する。
- [0040] 本発明で好適に用いられる回収されたポリエステルは飲料ボトル由来である。すなわち、飲料ペットボトルから回収されたポリエステルである。飲料ペットボトルから回収されたポリエステルとしては、粉碎物の形状がフレーク状（薄片状）であり、回収された使用済みのペットボトルを分別、粉碎し、薬品洗浄、すすぎ洗浄、脱水および乾燥を行ったフレーク状物を好適に用いることができる。次いで得られたフレークを原料とし、必要に応じて固相重合工程、ペレット化工程および繊維製糸工程を経て再生ポリエステル繊維を製造する。各工程における詳細を、次に説明する。
- [0041] ペットボトルの回収形状は、ベール状、ボトル状など何れの形状でも良く、運搬効率を優先するならばベール状を、高品質を優先するならばボトル状が好適である。
- [0042] 回収された使用済みのペットボトルは、分別工程において、光学選別機、手選別など公知の選別技術を用いて、他樹脂ボトル、着色ボトルなどと分別されると共に、キャップ、ラベルについても合わせて分別する。
- [0043] 分別工程において、分別されたペットボトルは一旦ボトル形状のまま水洗浄または温水洗浄しペットボトルの表面汚れを除去することが好適ではあるが、回収されたペットボトルの汚れ状況に応じて実施要否を判断すればよい。次いで、金属探知機でアルミなどの金属を除去した後、粉碎工程にて目標サイズのフレーク状物に粉碎する。なお、粉碎においては公知の粉碎技術を用いることができるが、破碎時の摩擦熱を抑制するため水を使用する湿式粉碎が好適である。
- [0044] 次に洗浄工程では、ペットボトルを粉碎してなるフレークを、薬品洗浄として、アルカリ金属水酸化物の水溶液を用いて洗浄する。この洗浄工程で用

いるアルカリ金属水酸化物の水溶液としては、水酸化カリウム水溶液および水酸化ナトリウム水溶液が好ましい。このような洗浄工程では、アルカリ金属水酸化物の水溶液による洗浄の前に予備洗浄を行ってもよい。

[0045] 洗浄工程で用いるアルカリ金属水酸化物の水溶液の濃度は、洗浄時間、温度、攪拌などの条件にもよるが、通常0.5～10重量%、好ましくは1～5重量%であるのが望ましい。また、ペットボトルを粉砕してなるフレークと、アルカリ金属水酸化物の水溶液とが接触する洗浄工程の洗浄時間は、通常5～120分、好ましくは10～60分、より好ましくは20～40分程度であるのが望ましい。またこのような洗浄工程は、攪拌下で行うのが好ましい。このような洗浄工程では、アルカリ金属水酸化物の水溶液によって、ペットボトルを粉砕してなるフレークの表面が、少なくとも一部加水分解される。これによって、該フレークの表面に付着または含浸している不純物、表面に含浸している塩類などの不揮発性物質、表面に食いこんでいる微細な固形異物など、水洗浄あるいは界面活性剤洗浄では除去できない不純物を高度に洗浄除去することができる。このような洗浄工程は、洗浄されるフレークの0.1～5重量%、好ましくは0.5～3重量%が加水分解される条件で行うのが望ましい。このようにして洗浄工程の条件を制御することで、粗大粒子の異物は除去しながらも薬品による長時間処理でのポリマ黄変を抑制できるため、スポーツユニフォームに好適な本発明の如き色調が得られやすくなる。

[0046] また、洗浄工程においては、アルカリ金属水酸化物の水溶液による洗浄につづいて、すすぎ洗浄、脱水および乾燥を行うのが望ましい。このようにして洗浄したフレークは、必要に応じて固相重合工程に供することができる。

[0047] 固相重合工程は、洗浄工程で洗浄したフレークを、180～230℃、好ましくは190～230℃の不活性気体と接触させて連続固相重合することができる。不活性気体としては、洗浄したフレークとの接触を行う条件において、反応性を有さない気体をいずれも用いることができ、具体的には窒素ガス、希ガスなどが挙げられるが、このうち窒素ガスをを用いるのが製造コス

トを考慮すると特に好ましい。固相重合工程に供することにより、樹脂の重合度を向上させて、繊維製造に適切な重合度に調整するとともに、フレーク中に不純物として含まれる揮発性成分の一部を除去することができる。

[0048] 次いで、前記工程にて得られたフレークを、ペレット化工程に供する。ペレット化工程は、フレークを、脱揮手段および濾過手段を有する押出機を用いて溶融・造粒することにより行うことができる。

[0049] 本発明の如きポリメタキシリレンアジパミド (MXD6) を繊維全体の重量を100重量%としたときに0.01~1重量%含有させる手段としては、ペレット化工程、繊維製糸工程の何れかで添加することが好適ではあるが、繊維製糸工程においては不活性気体と接触させながらブレンド装置に供する必要があることからプロセスが複雑になるため、ペレット化工程で添加することが望ましい。

[0050] ペレット化工程における添加は、フレークと繊維全体の重量を100重量%としたときに0.01~1重量%になるように計量したポリメタキシリレンアジパミド (MXD6) を押出機の溶融帯域において、通常260~300℃、好ましくは265~280℃で溶融混練することにより行うことができる。ペレット化工程で用いる押出機は、脱揮手段として、樹脂の溶融帯域に少なくとも1個の真空ベントを有しているのが好ましい。溶融樹脂中の揮発性物質の脱揮は、該真空ベントにより、溶融状態で通常70kPa以下、好ましくは65kPa以下の減圧下で行うのが好ましい。樹脂中の揮発性不純物は、このようなペレット化工程における溶融状態での脱揮により、厳密に除去することができる。

[0051] また、該押出機は、濾過手段として溶融樹脂中の粒径25 $\mu$ m以上、好ましくは15 $\mu$ m以上、より好ましくは10 $\mu$ m以上の固形異物を濾過除去できるフィルターを有しているのが好ましく、ペレット化工程において、溶融樹脂中の粒径25 $\mu$ m以上、好ましくは15 $\mu$ m以上、より好ましくは10 $\mu$ m以上の固形異物が樹脂中から濾過除去されるのが望ましい。樹脂中の固形異物は、前述した洗浄工程においても除去されているが、このような濾過

除去により、さらに厳密に除去することができる。

[0052] このようにして揮発性不純物および固形異物を十分に除去した熔融樹脂は、押出機にて、常法により所望の形状および大きさのペレット状に押出成形する造粒を行いペレット化することができる。なお、ペレット工程に用いる押出機は前記ペレットが得られる範囲であれば、1軸エクストルーダー、2軸エクストルーダーなど公知の押出機を採用することができる。

[0053] 前記工程にて得られたペレットを、繊維製糸工程に供する。上記にて得られたポリエステルペレットを紡糸ホッパーに一旦貯留し、1軸エクストルーダー型熔融紡糸装置に供給して熔融紡糸する。この熔融ポリマを、ギヤポンプにてマルチフィラメントの最終織度に合わせて計量した後、紡糸パック中で金属不織布フィルターによって濾過し、口金から紡出する。このようにして紡出された繊維を冷却装置によって冷却固化した後、熱延伸する直接紡糸延伸法によって製造する。繊維製糸の各工程における詳細を、次に説明する。

[0054] 本発明で用いられる回収されたポリエステルを主成分とするポリエステル樹脂の固有粘度（ $IV$ ）は、原糸の破断強伸度を制御する点から特定範囲にあることが好ましく、上述したペレットの場合には、固有粘度は0.60～1.2の範囲であることが好ましい態様である。

[0055] 本発明の再生ポリエステル繊維は、不活性気体である窒素雰囲気下で、ホッパーに充填されたポリエステルペレットを1軸エクストルーダーにて熔融混練し、この熔融ポリマを計量ポンプにてマルチフィラメントの最終織度に合わせて計量した後、紡糸パックに導入し紡糸パック中で金属不織布フィルターによって濾過し、口金より吐出する方法で得ることができる。前記の1軸エクストルーダー以外にも、本発明のポリエステル繊維が得られる範囲であれば、2軸エクストルーダー、プレッシャーメルター、ロール、バンバリーミキサー、およびニーダーなどで熔融混練することができる。前述の添加剤等を添加する際は、エクストルーダーにて直接混合する方法や、あらかじめ添加剤等を高濃度に含有したポリエステルペレットを作成して、熔融前に

ペレットをブレンドする方法を採用することができる。

[0056] 溶融紡糸温度は、固有粘度やポリマ種類等により適宜変更することができるが、270～330℃の温度であることが好ましい。このような温度範囲を満足する場合、ポリマ溶融時に十分な流動性を得ることができ、品質バラツキを低減できるうえ、ポリマ分解などの問題も発生しないため、本発明の再生ポリエステル繊維に好適である。

[0057] 紡糸口金の直下は、紡糸口金面から0～15cmを上端とし、目標の原糸力学的特性に合わせて、その上端から5～60cmの範囲を加熱筒および／または断熱筒で囲み、紡出糸条を250～350℃の温度に加熱せしめた雰囲気を通して後、10～80℃の温度、好ましくは15～50℃の温度の冷却風で、冷却固化することが好適である。このような範囲を満足する場合、大型の冷却装置などを必要とせず通常装置で冷却ができるだけでなく、紡糸時の単繊維が十分にかつ均一に冷却されるため糸条のウスター糸斑が小さくなり、品質と品位の安定性に繋がるため好適である。なお、加熱筒および／または断熱筒については、本発明の如き再生ポリエステル繊維が得られる場合、未使用であっても特段問題はない。

[0058] このような空冷装置は、横吹き出しタイプ（ユニフロー型）でも良く、環状型吹きだしタイプを用いることもできる。また、モノフィラメントのように高い冷却効果が求められる際には、水冷やミスト等の冷却方法を採用することができる。このような温度履歴を経ることにより、縫製に用いる縫い糸などに好適な直線強伸度などの力学的特性を有す繊維を品位良く製造することができる。

[0059] 冷却固化された未延伸糸条は、次いで給油装置で油剤が付与される。油剤は、水系であっても非水系であっても用いることができる。平滑剤を主成分とし、界面活性剤、制電剤および極圧剤成分等を含み、ポリエステル樹脂に活性な成分を除いた油剤組成とすることが好ましい態様である。例えば、平滑剤成分としてアルキルエーテルエステル、界面活性剤成分として高級アルコールのアルキレンオキサイド付加物、および極圧剤成分として有機ホスフ

エート塩等を鉱物油で希釈した非水系油剤であることがより好ましい態様である。

[0060] 油剤を付与された未延伸糸条は、引取ロールに捲回して引取られる。引取ロールの表面速度、即ち引取速度は300m/分以上であることが好ましく、さらに好ましくは500m/分以上である。このような範囲を満足する場合、生産効率が良く工業的に安定して、本発明の如きポリエステル繊維を生産することができる。また、単繊維の冷却も十分に進むため糸条のウースター糸斑が小さくなり品質と品位の低下を抑制できるため好適である。

[0061] 前記の引取速度で引き取られた未延伸糸条は、通常の熱延伸が採用されれば良く、その延伸倍率は、未延伸糸の複屈折と延伸温度によって変化させ得るが、一旦巻き取った後、若しくは一旦巻き取ることなく、連続して1～6倍の延伸倍率で熱延伸するのが好ましく、より好ましくは1.5～5.5倍である。延伸倍率がかかる範囲の場合は、安定製糸が可能であり、できあがる繊維はスポーツウェアを構成するニット生地のみならず縫製に用いる縫い糸にも好適な強度と弾性率を有するだけでなく、繊維自体の単糸切れ頻度が小さくなるため、製織工程における収率向上および得られる最終製品が優れた性能を発現でき好適である。

[0062] 例えば、延伸方法としては、引取りロール（1GR）と同様に、2個のロールを1ユニットとするネルソン型ロールを給糸ロール（2GR）、第1延伸ロール（3GR）、熱セットロール（4GR）および弛緩ロール（5GR）と並べて配置し、順次糸条を捲回して上記の条件で延伸熱処理を行うが、このとき、ロール数とロール上での熱処理温度は特に限定されない。

[0063] 通常、1GRと2GR間では、糸条を集束させるためにプレストレッチ処理を行う。本発明におけるプレストレッチ処理は上述の延伸とは異なり、糸条の集束性向上や熱処理時の収縮に伴う糸条揺れでの製糸張力不足を補うことを目的とし、本発明のポリエステルの強伸度特性に影響を与えない範囲とする。プレストレッチ率は、全体の延伸比率を100%とした際の1～8%の範囲であることが好ましい。1GRは、50～90℃の温度に加熱す

ることが好ましく、引取糸条を予熱して次の延伸工程に送られる。

[0064] 延伸は2GRと4GR間での多段延伸が好ましく、2GRの温度は70～120℃とし、その後3GR（100～140℃）にて全体の延伸比率を100%とした際の60～80%の範囲で糸条の熱延伸を行うことが好ましく、4GRにて全体の延伸比率を100%とした際の12～39%の範囲で糸条の延伸を行いながら熱処理を行なうことが好ましい。

[0065] 上記のとおり延伸された糸条は、縫製に用いる縫い糸などに使用可能な熱的寸法安定性を付与させるため、4GRの表面温度（熱処理温度）を180～250℃、特に200～240℃とすることが有効である。上述の延伸後には、4GRと5GR間で弛緩熱処理を施すが、本発明の再生ポリエステル繊維の場合は弛緩率を比較的高く、具体的には0.5～10%程度に設定するのが良い。弛緩処理では熱延伸によって生じた歪みを取るだけでなく、非晶領域の配向を緩和させ熱収縮率を下げ、熱的寸法安定性を上げることができる。RR（Relax Roll）は非加熱ロールまたは、150℃以下に過熱したロールを用いることが好ましい。これら条件の弛緩熱処理を施すことで、縫製に用いる縫い糸用途に好適な熱収縮応力を満足し、かつ耐熱性に優れ熱的寸法安定性を有す繊維が得られやすくなる。

[0066] また、糸条を収束させ、かつ毛羽の発生を少なくして高品位のポリエステル繊維を得るために、2GRと3GR間または3GRと4GR間、および4GRと5GR間に繊維糸条に高圧流体を吹き付けて繊維糸条に交絡を付与し、糸条を集束させながら延伸を行うことが好ましい。流体圧力は、糸条の総繊度、単繊維繊度および延伸速度などによって変化させることができるが、0.3～0.8MPaの範囲に設定することが好ましい。

[0067] 交絡は、繊維長手方向に均一かつ可能な限り多く付与することが好ましい。交絡付与することにより、巻取製品からの糸条解舒性および糸条の工程通過性が良好になり、高次加工工程におけるトラブルを回避することができる。

[0068] また、前記工程にて得られた原糸を必要に応じて延伸仮撚加工しても良い

。仮撚加工は、マルチフィラメント部分配向延伸糸を延伸しながら、仮撚を施す加工方法であり、糸条は加熱されながら加撚され、仮撚ディスク通過後に解撚されて嵩高な風合いとなる。その後、空気ノズルにて交絡を付与し、追油剤を塗布して、紙管に巻取ってパッケージを形成する。本発明の再生ポリエステル繊維は、部分配向未延伸糸を延伸仮撚加工する際に、非接触ヒーター温度を200～350℃の温度にて糸条を加熱すること、延伸倍率を1.2～2.5倍にすること、糸速に対するフリクションディスク表面の走行速度比を1.3～2.5の範囲にすることが好ましい。仮撚加工した再生ポリエステル繊維は、巻取機にてパーン形状など既知のパッケージで巻き取られることが好ましい。このようにして本発明の再生ポリエステル繊維が得られる。

## 実施例

[0069] 次に、実施例において、本発明を具体的に説明する。明細書および実施例で用いた特性の定義および各物性の測定と算出法は、次のとおりである。

[0070] (1) [総繊度] :

JIS L1013 (2010) 8.3.1 正量繊度 a) A法に基づき、中山電気産業(株)社製検尺機を用いて、表示繊度 $\times 0.45 \text{ mN} / d t e x$ の初荷重を加え所定糸長100mで測定し、総繊度とした。

[0071] (2) [直線強度(破断強度)と伸度] :

直線強度と伸度は、試料を気温20℃、湿度65%の温調室において、オリエンテック(株)社製“テンシロン”(TENSILON)UCT-100でJIS L-1013 (2010) 8.5.1 標準試験時に示される定速伸長条件で測定した。このときの掴み間隔は250mm、引張速度は300mm/分で、試験回数は10回とした。破断伸度は、荷重-伸長曲線における最大強力を示した点の伸びから求めた。強度については、前記の荷重-伸長曲線における最大強力を示した点を総繊度で除することにより算出した。

[0072] (3) [乾熱収縮率] :

乾熱収縮率は、JIS L-1013 (2010) 8.18.2 乾熱収縮率 a) かせ収縮率 (A法) に従って、試料採取時の所定荷重を  $5 \text{ mN} / \text{tex}$   $\times$  表示繊度、かせ長測定時の所定荷重  $200 \text{ mN} / \text{tex}$   $\times$  表示繊度とし、処理温度  $150^\circ\text{C}$  として測定した。

[0073] (4) [固有粘度] :

固有粘度は、オルソクロロフェノール  $100 \text{ mL}$  に対し試料  $8.0 \text{ g}$  を加え、 $160^\circ\text{C}$  の温度で  $10$  分間加熱溶解した溶液の相対粘度  $\eta_r$  を、オストワルド粘度計を用いて  $25^\circ\text{C}$  の温度で測定し、次の近似式に従い算出した。

$$\text{固有粘度} = 0.0242 \eta_r + 0.2634$$

[0074] (5) [L 値及び b 値] :

糸状ピッチ  $0.7 \text{ cm}$  で幅  $6.5 \text{ cm}$  になるように、得られた繊維をプレートに周回し  $3$  層とした測色用サンプルを作製し、コニカミノルタ社製色彩色差計 CR-410 を用いて測定した。L 値は、色の明るさ (明度) を表し、 $0 \sim 100$  ( $0$  は黒、 $100$  は白) まであり、数字が大きいほど明るい色を表す。b 値は、黄青系の色相 (プラス側は黄味、マイナス側は青味) を表す。

[0075] (6) [灰分量] :

灰分量の測定は以下の方法に従った。

[0076]  $105^\circ\text{C}$  にて  $30$  分間乾燥させて水分を取り除いた状態のポリエステル樹脂約  $5 \text{ g}$  を坩堝に取り、坩堝ごと重量測定 (初期重量) した後、 $800^\circ\text{C}$  に設定した電気炉で  $2$  時間焼成する。焼成後、デシケータ中で冷却した後、再び重量を測定し、初期重量との比較から無機不純物全体の灰分量を計算した。

[0077] 次いで、 $105^\circ\text{C}$  で  $1$  時間乾燥した後、試料  $1 \text{ g}$  に硫酸  $10 \text{ mL}$  と過塩素酸  $6 \text{ mL}$  とを加えて湿式分解し、分解後の溶液と  $3 \text{ wt} \%$  過酸化水素水  $5 \text{ mL}$  に水を加えて  $100 \text{ mL}$  の希釈水溶液とした。その後、 $3 \text{ wt} \%$  過酸化水素水においてチタン酸塩 (IV) を反応させて黄色のペルオクソチタン (IV) 錯体とし、 $420 \text{ nm}$  の吸光度を吸光度計 (日立製作所製、U-39

OH) で測定してチタン化合物量を比色定量し、前記無機不純物全体の灰分量よりチタン化合物量を差し引くことで、無機不純物（チタン化合物および着色を目的とした染顔料を除く）の灰分量を決定した。

[0078] なお、着色を目的とした染顔料については焼成時に減量するため、本測定方法にて灰分量の定量が可能である。

[0079] (7) [工程通過性] :

生産開始後ガイド、ロール類の交換を行わず、連続製糸によって得られた24時間後と240時間後の再生ポリエステル繊維について、500m/分の速度で解舒しつつ、大広(株)製光感知式毛羽検知装置で糸条に含まれる毛羽(単糸破断)を検知し、糸条の長さ10万m当たりの毛羽数から以下の基準により評価した。

◎(優良) : 0~1 (個/10万m)

○(良) : 2~5 (個/10万m)

△(不良) : 6~50 (個/10万m)

×(極めて不良) : 51 (個/10万m) 以上

[0080] [製造例1]

公益財団法人日本容器包装リサイクル協会より落札したベール状の使用済みペットボトルを光学選別機(日本シーム社製)および手選別にて他樹脂ボトル、着色ボトル、キャップ、ラベルを分別(除去)した後、ペットボトルをボトル形状のまま40℃の温水で洗浄した。次いで、金属探知機(日本金属探知機製造社製)にて非鉄金属を含めた金属を探知して除去した後、2~15mmのフレーク状物に湿式粉碎し、そのまま連続して濃度3重量%の水酸化ナトリウム水溶液により30分間、攪拌浴中にてフレークを洗浄した。洗浄後、すすぎ洗浄、脱水および乾燥を行い洗浄後のペットボトルフレークを得た。

[0081] ついで、EREMA社製VACUREMA1109Tにより固相重合を窒素ガス下220℃で反応せしめた後、固相重合後のフレークと繊維全体の重量を100重量%としたときに0.4重量%になるように計量した三菱ガス

化学製（S6007）ポリメタキシリレンアジパミド（MXD6）を押出機にて275℃で熔融混練し、熔融樹脂中の粒径15 $\mu$ m以上の固形異物を濾過除去できるフィルターを通過させ、20ホールの口金より冷水にストランド状で吐出し、カッティングしてペレット状のポリエステル樹脂組成物を得た。

[0082] 次いで、125℃の温度で6時間、真空下に置いて上記で得られたポリエステル樹脂組成物ペレットの乾燥および結晶化を行うことにより、固有粘度が0.80の再生ポリエステルペレットを得た。

[0083] [製造例2]

製造例1記載の内容において、湿式粉碎後のフレーク状物を、濃度8重量%の水酸化ナトリウム水溶液により20分間、攪拌浴中にてフレークを洗浄したこと、固相重合後のフレークと繊維全体の重量を100重量%としたときに0.08重量%になるように計量した三菱ガス化学製（S6007）ポリメタキシリレンアジパミド（MXD6）を275℃で熔融混練したこと以外は、製造例1と同じ方法により再生ポリエステルペレットを得た。

[0084] [製造例3]

製造例1記載の内容において、固相重合後のフレークと繊維全体の重量を100重量%としたときに0.95重量%になるように計量した三菱ガス化学製（S6007）ポリメタキシリレンアジパミド（MXD6）を275℃で熔融混練したこと、熔融樹脂中の粒径10 $\mu$ m以上の固形異物を濾過除去できるフィルターを通過させたこと以外は、製造例1と同じ方法により再生ポリエステルペレットを得た。

[0085] [製造例4]

製造例1記載の内容において、固相重合後のフレークと三菱ガス化学製（S6007）ポリメタキシリレンアジパミド（MXD6）を熔融混練する際に、繊維全体の重量を100重量%としたときに1.20重量%になるように計量したナフタリンスルホン酸ナトリウムホルマリン縮合物を添加したこと以外は、製造例1と同じ方法により再生ポリエステルペレットを得た。

## [0086] [製造例 5]

製造例 1 記載の内容において、ポリメタキシリレンアジパミド (MXD 6) 未添加で固相重合後のフレークのみ溶融混練したこと以外は、製造例 1 と同じ方法により再生ポリエステルペレットを得た。

## [0087] [製造例 6]

製造例 1 記載の内容において、湿式粉碎後のフレーク状物をアルカリ金属水酸化物の水溶液による洗浄を行わなかったこと、ポリメタキシリレンアジパミド (MXD 6) 未添加で固相重合後のフレークのみ溶融混練したこと以外は、製造例 1 と同じ方法により再生ポリエステルペレットを得た。

## [0088] [製造例 7]

製造例 1 記載の内容において、湿式粉碎後のフレーク状物を、濃度 10 重量%の水酸化ナトリウム水溶液により 150 分間、攪拌浴中にてフレークを洗浄したこと、ポリメタキシリレンアジパミド (MXD 6) 未添加で固相重合後のフレークのみ溶融混練したこと以外は、製造例 1 と同じ方法により再生ポリエステルペレットを得た。

## [0089] [製造例 8]

製造例 1 記載の内容において、湿式粉碎後のフレーク状物を、濃度 10 重量%の水酸化ナトリウム水溶液により 150 分間、攪拌浴中にてフレークを洗浄したこと、固相重合後のフレークと繊維全体の重量を 100 重量%としたときに 1.10 重量%になるように計量した三菱ガス化学製 (S6007) ポリメタキシリレンアジパミド (MXD 6) を 275℃で溶融混練したこと以外は、製造例 1 と同じ方法により再生ポリエステルペレットを得た。

## [0090] [製造例 9]

製造例 1 記載の内容において、湿式粉碎後のフレーク状物を、濃度 10 重量%の水酸化ナトリウム水溶液により 150 分間、攪拌浴中にてフレークを洗浄したこと、固相重合後のフレークと繊維全体の重量を 100 重量%としたときに 1.10 重量%になるように計量した三菱ガス化学製 (S6007) ポリメタキシリレンアジパミド (MXD 6) を 275℃で溶融混練したこ

と、繊維全体の重量を100重量%としたときに1.20重量%になるように計量したナフタリンスルホン酸ナトリウムホルマリン縮合物を添加したこと以外は、製造例1と同じ方法により再生ポリエステルペレットを得た。

[0091] [実施例1]

製造例1の方法で得られた再生ポリエステルペレットを、295℃の温度の1軸エクストルーダー型押出機に連続的に供給し熔融した。得られた熔融ポリマを、295℃の温度の配管を通じて8段のスタティックミキサーで混練し、計量ポンプによって吐出量50g/分となるように調整した後、295℃の温度の紡糸パックに導き、パック内で15ミクロンカットのフィルターを通過させた後、孔径が0.6mmφで、孔長が0.78mmの丸型単孔が72個開けられた口金から紡出した。

[0092] 紡出された糸条は、口金下に設けられた長さが70mmで、雰囲気温度が285℃の加熱筒を通過させた後、環状型チムニーを用いて40℃の温度の冷風を30m/分の速度で吹き付け固化させた。次に、冷却糸条に油剤ロールによって油剤（三洋化成社製：サンオイルF）を付与し、得られた糸条を3,500m/分の表面速度を有するGR（非加熱）に供し、3500m/分の巻取機で巻取りし、135dtex-72フィラメントの再生ポリエステル部分配向糸を得た。

[0093] 次いで得られた再生ポリエステル部分配向糸を、ディスク仮撚り機を用いて、非接触ヒーター温度350℃、延伸速度750m/分、DY比1.7、延伸倍率1.65倍で延伸仮撚り加工を行い、83dtex-72フィラメントの再生ポリエステル繊維を得た。結果を表1に示す。

[0094] [実施例2]

製造例2の方法で得られた再生ポリエステルペレットを、計量ポンプによって吐出量167g/分となるように調整したこと、孔径0.6mmφ、孔長0.78mmの丸型単孔が48個開けられた口金使用したこと以外は、実施例1と同じ方法により紡出した。

[0095] 紡出された糸条は、口金下に設けられた長さが200mmで、雰囲気温度

が320℃の加熱筒を通過させた後、ユニフロ型チムニーを用いて20℃の温度の冷風を30m/分の速度で吹き付け固化させた。次に、冷却糸条に油剤ロールによって油剤（三洋化成社製：サンオイルF）を付与し、得られた糸条を1,000m/分の表面速度を有するGR（非加熱）に供し、1000m/分の巻取機で巻取りし、1,670dtex-48フィラメントの再生ポリエステル未延伸糸を得た。

[0096] 次いで得られた再生ポリエステル未延伸糸を、多段延伸機を用いて、速度74m/分の1GR（90℃）、速度300m/分の2GR（110℃）、速度430m/分の3GR（225℃）、および速度400m/分の4GR（非加熱）に連続して供することにより延伸を行い巻取機で巻取り、278dtex-48フィラメントの再生ポリエステル繊維を得た。結果を表1に示す。

[0097] [実施例3]

製造例3の方法で得られた再生ポリエステルペレットを、計量ポンプによって吐出量500g/分となるように調整したこと、孔径0.6mmφ、孔長0.78mmの丸型単孔が144個開けられた口金使用したこと、パック内で10ミクロンカットのフィルター以外は、実施例2と同じ方法により紡出した。

[0098] 紡出された糸条は、口金下に設けられた長さが350mmで、雰囲気温度が285℃の加熱筒を通過させた後、環状型チムニーを用いて40℃の温度の冷風を30m/分の速度で吹き付け固化させた。次に、冷却糸条に油剤ロールによって油剤（三洋化成社製：サンオイルF）を付与し、得られた糸条を500m/分の表面速度を有する1GR（70℃）で引き取り、連続して延伸工程に供した。

[0099] 1GRを通過させた糸条を一旦巻き取ることなく、速度530m/分の2GR（115℃）、速度1,900m/分の3GR（110℃）、速度3030m/分の4GR（230℃）、および速度3,000m/分の5GR（非加熱）に連続して供することにより延伸を行った。交絡処理装置は、2G

R-3GR間、4GR-5GR間、および5GR-巻取機間に設置し、それぞれ0.4、0.1、および0.5MPaの設定で高圧流体を噴射することにより、交絡処理を施し巻取機で巻取り、1,670dtex-144フィラメントの再生ポリエステル繊維を得た。結果を表1に示す。

[0100] [実施例4]

製造例4の方法で得られた再生ポリエステルペレットを用いたこと、計量ポンプによって吐出量60g/分となるように調整したこと、125dtex-72フィラメントの再生ポリエステル部分配向糸を得たこと、非接触ヒーター温度300℃、DY比1.6、延伸倍率1.56倍で延伸仮撚り加工を行ったこと以外は、実施例1と同じ方法により、75dtex-72フィラメントの再生ポリエステル繊維を得た。結果を表1に示す。

[0101] 実施例1～4で得られた再生ポリエステル繊維を用いて、固有粘度（IV）、総繊度、直線強度（破断強度）、伸度、乾熱収縮率、L値、b値および灰分量を測定した結果、及び、実施例1～4で得られた再生ポリエステル繊維の工程通過性について評価した結果を、表1に示す。

[0102] [比較例1および2]

製造例5および6の方法で得られた再生ポリエステルペレットを用いたこと以外は、実施例2と同様に行った。ただし、比較例1および2に関しては、製糸性が低下してしまい再生ポリエステル繊維が得られなかったため原糸評価を行わなかった。

[0103] [比較例3]

製造例7の方法で得られた再生ポリエステルペレットを用いたこと以外は、実施例1と同じ方法により、83dtex-72フィラメントの再生ポリエステル繊維を得た。結果を表1に示す。

[0104] [比較例4]

製造例8の方法で得られた再生ポリエステルペレットを用いたこと以外は、実施例1と同じ方法により、278dtex-48フィラメントの再生ポリエステル繊維を得た。結果を表1に示す。

[0105] [比較例 5]

製造例 8 の方法で得られた再生ポリエステルペレットを用いたこと以外は、実施例 2 と同じ方法により、278 dtex-48 フィラメントの再生ポリエステル繊維を得た。結果を表 1 に示す。

[0106] [比較例 6]

製造例 9 の方法で得られた再生ポリエステルペレットを用いたこと以外は、実施例 4 と同じ方法により、75 dtex-72 フィラメントの再生ポリエステル繊維を得た。

[0107] [表 1]

表 1

			実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6
繊維	MXD6	%	0.40	0.08	0.95	0.40	0	0	0	1.10	1.10	1.10
	IV	—	0.724	0.760	0.659	0.651	0.725	0.770	0.755	0.644	0.648	0.682
	総繊度	dtex	83	278	1670	75	-	-	83	278	278	75
	直線強度	cN/dtex	4.28	7.55	8.09	3.10	-	-	4.37	3.18	4.91	2.48
	伸度	dtex	19.1	16.0	12.8	45.3	-	-	18.9	16.6	11.2	38.5
	乾熱収縮率	%	11.8	3.6	9.9	7.0	-	-	11.9	11.1	4.2	7.7
	L 値	—	91.7	85.4	89.8	88.9	-	-	72.4	69.5	71.1	68.0
	b 値	—	1.2	0.3	1.9	3.4	-	-	6.9	6.6	7.4	5.5
	灰分量	%	0.78	3.20	0.30	0.82	0.80	4.01	0.18	0.17	0.18	1.04
工程通過性	24時間後	—	◎	○	◎	◎	-	-	◎	○	×	△
	240時間後	—	◎	○	◎	○	-	-	○	△	×	×

[0108] 表 1 の結果から明らかなように、比較例 1 および 2 では本発明の如き L 値、b 値を達成できる可能性はあるものの、再生ポリエステル樹脂中の不純物により工程通過性が低く延伸性が不十分となりポリエステル繊維が得られなかった。また、比較例 3~5 のように延伸性を得るべく湿式粉碎後のフレーク状物をアルカリ金属水酸化物の水溶液により長時間洗浄したことで工程通過性は改善したものの、b 値が大きくなり本発明の如きバージン原料並みの再生ポリエステル繊維が得られなかった。

[0109] これに対し、本発明の再生ポリエステル繊維は工程通過性に優れるだけでなく、高い力学的特性を有しながら、バージン原料並みの色調を達成しているため、スポーツウェアを構成するニット生地のみならず縫製に用いる縫い

糸にも適用でき、スポーツユニフォームへも有効に用いることが可能である。

[0110] 本発明を詳細に、また特定の実施態様を参照して説明したが、本発明の精神と範囲を逸脱することなく様々な変更や修正を加えることができることは当業者にとって明らかである。本出願は2016年8月30日出願の日本特許出願（特願2016-167741）に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

## 請求の範囲

- [請求項1] 回収されたポリエステルを主成分とするポリエステル樹脂と、ポリメタキシリレンアジパミド（MXD6）とを含み、  
前記ポリメタキシリレンアジパミド（MXD6）の含有量は、再生ポリエステル繊維全体の重量を100重量%としたときに0.01～1重量%であり、  
L値が70～100かつ、b値が-5～5であることを特徴とする再生ポリエステル繊維。
- [請求項2] 前記ポリエステル樹脂に、無機不純物（チタン化合物および着色を目的とした顔料を除く）を前記ポリエステル樹脂全体の重量を100重量%としたときに灰分量で0.1～5重量%含有することを特徴とする請求項1に記載の再生ポリエステル繊維。
- [請求項3] カチオン染料で染色せしめる官能基を有することを特徴とする請求項1または2に記載の再生ポリエステル繊維。
- [請求項4] 前記回収されたポリエステルが飲料ボトル由来であることを特徴とする請求項1～3の何れか1項に記載の再生ポリエステル繊維。

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.  
PCT/JP2017/030853

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
D01F6/92(2006.01) i

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)  
D01F6/92, C08K3/00-13/08, C08L1/00-101/14

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2005-8809 A (Mitsubishi Gas Chemical Co., Inc.), 13 January 2005 (13.01.2005), claims 1 to 4; paragraphs [0009], [0022], [0028]; table 1; paragraph [0043] (Family: none)	1-4
A	JP 2007-31881 A (Toyobo Co., Ltd.), 08 February 2007 (08.02.2007), claims (Family: none)	1-4
A	JP 1-183545 A (Toyobo Co., Ltd.), 21 July 1989 (21.07.1989), claims (Family: none)	1-4

Further documents are listed in the continuation of Box C.       See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search 09 November 2017 (09.11.17)	Date of mailing of the international search report 21 November 2017 (21.11.17)
--	---

Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer  Telephone No.
--	---

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. D01F6/92(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. D01F6/92, C08K3/00-13/08, C08L1/00-101/14

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2005-8809 A（三菱瓦斯化学株式会社）2005.01.13, 請求項1-4, 【0009】, 【0022】, 【0028】, 表1, 【0043】（ファミリーなし）	1-4
A	JP 2007-31881 A（東洋紡績株式会社）2007.02.08, 特許請求の範囲（ファミリーなし）	1-4
A	JP 1-183545 A（東洋紡績株式会社）1989.07.21, 特許請求の範囲（ファミリーなし）	1-4

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

\* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）  
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

09.11.2017

国際調査報告の発送日

21.11.2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

齋藤 克也

電話番号 03-3581-1101 内線 3474

4S

9344