

(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2009-518513

(P2009-518513A)

(43) 公表日 平成21年5月7日(2009.5.7)

(51) Int.Cl.		F I		テーマコード (参考)
CO 8 L 67/02	(2006.01)	CO 8 L 67/02	Z B P	4 J 0 0 2
CO 8 L 67/04	(2006.01)	CO 8 L 67/04		4 J 2 0 0
CO 8 L 101/16	(2006.01)	CO 8 L 101/16		

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 13 頁)

(21) 出願番号	特願2008-544393 (P2008-544393)	(71) 出願人	390023674
(86) (22) 出願日	平成18年12月1日 (2006.12.1)		イー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・
(85) 翻訳文提出日	平成20年6月6日 (2008.6.6)		アンド・カンパニー
(86) 国際出願番号	PCT/US2006/046049		E. I. DU PONT DE NEMO
(87) 国際公開番号	W02007/067433		URS AND COMPANY
(87) 国際公開日	平成19年6月14日 (2007.6.14)		アメリカ合衆国、デラウェア州、ウイルミ
(31) 優先権主張番号	11/296, 157		ントン、マーケット・ストリート 100
(32) 優先日	平成17年12月7日 (2005.12.7)		7
(33) 優先権主張国	米国 (US)	(74) 代理人	100082005
(31) 優先権主張番号	11/296, 176		弁理士 熊倉 禎男
(32) 優先日	平成17年12月7日 (2005.12.7)	(74) 代理人	100084009
(33) 優先権主張国	米国 (US)		弁理士 小川 信夫
(31) 優先権主張番号	60/751, 816	(74) 代理人	100084663
(32) 優先日	平成17年12月20日 (2005.12.20)		弁理士 箱田 篤
(33) 優先権主張国	米国 (US)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ポリ（トリメチレンテレフタレート）／ポリ（アルファ－ヒドロキシ酸）フィルム

(57) 【要約】

本発明は、ポリ（トリメチレンテレフタレート）／ポリ（アルファ－ヒドロキシ酸）フィルム、同物品を製造するための方法およびその最終用途に関する。

【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

ポリマー組成物の重量に基づいてポリ(トリメチレンテレフタレート)約20～約98重量%と、ポリマー組成物の重量に基づいてポリ(アルファ-ヒドロキシ酸)約80～約2重量%とを含むポリマー組成物を含むフィルム。

【請求項 2】

前記ポリ(アルファ-ヒドロキシ酸)がポリ乳酸である、請求項1に記載のフィルム。

【請求項 3】

前記ポリ乳酸が生物由来ポリマーである、請求項2に記載のフィルム。

【請求項 4】

前記ポリ(トリメチレンテレフタレート)が、再生可能な生物学的源を用いて発酵プロセスによって調製された1,3-プロパンジオールを用いて製造される、請求項1に記載のフィルム。

【請求項 5】

前記ポリ(トリメチレンテレフタレート)が、再生可能な生物学的源を用いて発酵プロセスによって調製された1,3-プロパンジオールを用いて製造される、請求項3に記載のフィルム。

【請求項 6】

厚さが約0.1ミル～約100ミルである、請求項1に記載のフィルム。

【請求項 7】

請求項1～6のいずれか一項に記載のフィルムを含む少なくとも1つのフィルム層を含む多層フィルム。

【発明の詳細な説明】**【技術分野】****【0001】**

本発明は、ポリ(トリメチレンテレフタレート)/ポリ(アルファ-ヒドロキシ酸)フィルム、同物品を製造するための方法およびその最終用途に関する。

【背景技術】**【0002】**

ポリ(トリメチレンテレフタレート)(「PTT」)、および成形造形製品をはじめとする多くの用途においてのその使用が、文献に記載されている。PTTは、テレフタル酸またはそのエステルおよびトリメチレングリコール(1,3-プロパンジオールとしても公知である)(「PDO」)から誘導されたポリエステルである。PDOは、トウモロコシなどの様々な糖源からなど、様々な化学的または生化学的経路によって調製されてもよく、従って再生可能な資源から調製されうる。改良された靱性、伸びおよび表面性質を有する新規なPTT物品が望ましい。さらに、テレフタル酸およびそのエステルは現在、石油ベースから調製されているので、製品の全性質を損なわずにPTT組成物の未加工物(再生可能な資源基盤)を増加させることが望ましい。

【0003】

特開2003-041435号公報には、PTTと事実上ポリ乳酸からなるポリエステル1～10重量%との混合物が記載されている。その混合物を用いて中空の、クrimpされたステープルファイバーを作製する。また、ポリ(乳酸)は、再生可能な資源から調製することができ、乳酸(2-ヒドロキシプロピオン酸)と、次に乳酸発酵によって炭水化物から調製されるその分子間エステルとから調製される。特開2003-041435号公報は、ポリ乳酸を用いてより安定なクrimpを提供することに焦点が合わせられており、フィルムまたはそれに対する改良については記載していない。

【発明の開示】**【課題を解決するための手段】****【0004】**

本発明は、ポリマー組成物の重量に基づいてポリ(トリメチレンテレフタレート)約2

10

20

30

40

50

0 ~ 約 98 重量%と、ポリマー組成物の重量に基づいてポリ(アルファ - ヒドロキシ酸) 約 80 ~ 約 2 重量%とを含むポリマー組成物を含むフィルムに関する。

【0005】

好ましくはポリマー組成物は、ポリマー組成物の重量に基づいてポリ(トリメチレンテレフタレート)少なくとも約 30 重量%、より好ましくは少なくとも 40 重量%、さらにより好ましくは少なくとも 50 重量%、さらにより好ましくは 50 重量%超、さらにより好ましくは少なくとも 60 重量%、最も好ましくは少なくとも 75 重量%を含む。好ましくはポリマー組成物は、ポリ(トリメチレンテレフタレート)約 95 重量%までを含む。

【0006】

好ましくはポリマー組成物は、ポリマー組成物の重量に基づいてポリ(アルファ - ヒドロキシ酸)約 70 重量%まで、より好ましくは約 60 重量%まで、より好ましくは約 50 重量%まで、より好ましくは約 50 重量%未満、より好ましくは約 40 重量%まで、最も好ましくは約 25 重量%までを含む。好ましくは組成物は、ポリマー組成物の重量に基づいてポリ(アルファ - ヒドロキシ酸)少なくとも約 5 重量%を含む。

【0007】

好ましくは、ポリ(トリメチレンテレフタレート)は、再生可能な生物学的源を用いて発酵プロセスによって調製された 1, 3 - プロパンジオールを用いて製造される。

【0008】

好ましくはポリ(アルファ - ヒドロキシ酸)はポリ乳酸であり、より好ましくは生体由来(bio-derived)ポリ乳酸である。

【0009】

好ましくはフィルムは厚さ約 0.1 ミル ~ 約 100 ミルである。1つの好ましい実施態様において、フィルムは厚さ約 0.1 ミル ~ 約 15 ミルである。別の好ましい実施態様において、フィルムは厚さ約 15 ミル ~ 約 100 ミルである。

【0010】

1つの好ましい実施態様において、フィルムは二軸延伸フィルムである。別の好ましい実施態様において、フィルムはキャストフィルムである。

【0011】

1つの好ましい実施態様において、フィルムは単一層フィルムである。別の好ましい実施態様において、本発明は、ポリマー組成物の重量に基づいてポリ(トリメチレンテレフタレート)約 20 ~ 約 98 重量%と、ポリマー組成物の重量に基づいてポリ(アルファ - ヒドロキシ酸)約 80 ~ 約 2 重量%とを含むポリマー組成物を含む少なくとも1つのフィルム層を含む、多層フィルムに関する。好ましい実施態様において、多層フィルムは、少なくとも1つのフィルム層を少なくとも1つの他のフィルム層または基材に積層することによって作製される。別の好ましい実施態様において、多層フィルムは、少なくとも1つのフィルム層と、ポリオレフィン、エチレンコポリマー、イオノマー、ポリアミド、ポリカーボネート、アクリル、ポリスチレン、エチレンビニルアルコール、ポリ塩化ビニリデン、およびその他の合成ポリマーフィルム層からなる群から選択された少なくとも1つの他のフィルム層との同時押出によって作製され、多層フィルムは場合により、1つまたは複数の接着タイ層を含む。

【0012】

好ましい実施態様において、フィルムはブローンフィルムである。

【0013】

また、本発明は、フィルムから製造された物品に関する。このような物品を単一層または多層フィルムから作製することができる。物品の実施例は容器(例えば、ビンおよび化粧用容器)、およびその他の多層積層構造物である。熱成形および真空熱成形物品を含める。

【0014】

また、本発明は、単一層フィルムおよび多層フィルムなどのフィルム、および物品の作製に関する。例えば、1つの実施態様において、それは、(a)ポリマー組成物の重量に

10

20

30

40

50

基づいてポリ(トリメチレンテレフタレート)約20~約98重量%と、ポリマー組成物の重量に基づいてポリ(アルファ-ヒドロキシ酸)約80~約2重量%とを含むポリマー組成物を提供する工程と、(b)フィルムを形成する工程とを含む、フィルムを作製するための方法に関する。

【0015】

本発明のフィルム、フィルム層および物品は、PTTだけで作製されたフィルム、フィルム層および物品と同様かまたはより良い性質を有した。これは、ポリ(アルファ-ヒドロキシ酸)ポリマーがPTTよりもかなり低い物理的および機械的性質を有するので、予想外である。従って、ポリ(アルファ-ヒドロキシ酸)ポリマーを用いて、専門家は、最終製品の性質を著しく低下させずにフィルム、フィルム層および物品中の未加工(green)含有量(再生可能な資源のパーセンテージ)を増加させることができる。

10

【0016】

本明細書において言及された全ての刊行物、特許出願、特許、およびその他の参考文献は、それらの全体において参照によって組み込まれる。特に記載しない限り、本明細書中で用いられるすべての技術用語および科学用語は、本発明が属する技術分野の当業者によって一般に理解される同じ意味を有する。対立する場合、定義を含めて本明細書が統括する。

【0017】

特に記載した場合を除き、登録商標は、大文字で示される。

【0018】

本明細書の材料、方法、および実施例は例示にすぎず、特に記載した場合を除き、限定的であることを意図しない。本明細書に記載された方法および材料と同様なまたは同等の方法および材料を本発明の実施または試験において用いることができるが、適した方法および材料は本明細書に記載される。

20

【0019】

別記しない限り、全てのパーセンテージ、部、比等は重量による。

【0020】

量、濃度、または他の値またはパラメーターが範囲、好ましい範囲、または高い側の好ましい値および低い側の好ましい値のリストのいずれかとして与えられるとき、これは、範囲が別々に開示されているかどうかに関係なく、任意の範囲上限または好ましい値と任意の範囲下限または好ましい値との任意の対から形成されたすべての範囲を具体的に開示するものとして理解されなければならない。数値の範囲がここに記載される場合、別記しない限り、範囲は、それらの端点、および範囲内のすべての整数および分数を含めるものとする。範囲を規定する時に記載された特定の値に本発明の範囲を限定することを意図しない。

30

【0021】

用語「約」は範囲の値または端点を記載する時に用いられるとき、開示は、参照される特定の値または端点を含めることが理解されるべきである。

【0022】

本明細書中で用いられるとき、用語「含む(comprises)」、「含む(comprising)」、「含める(includes)」、「含める(including)」、「有する(has)」、「有する(having)」またはそれらの他の何れかの変型は、非限定的な包含を扱うものとする。例えば、一連の要素を含む方法(process、method)、物品、または装置はそれらの要素だけに必ずしも制限されず、特に記載されていないかまたはかかる方法(process、method)、物品、または装置に固有の他の要素を含めてもよい。さらに、特に異なって記載しない限り、「または(or)」は包括的な「または」を指し、限定的な「または」を指さない。例えば、条件AまたはBは、以下の何れか1つによって満足させられる。Aが真であり(または存在する)かつBが偽である(または存在しない)、Aが偽であり(または存在しない)かつBが真である(または存在する)、AおよびBの両方が真である(か、または存在する)

40

50

。

【 0 0 2 3 】

「 a 」または「 a n 」の使用は、本発明の要素および成分を記載するために使用される。これは、単に便宜上のために、および本発明の一般的な意味を提供するために使用される。この説明は、1つまたは少なくとも1つを含めるように読まれるべきであり、また、他の意味であることが明白でない限り、単数は複数を含める。

【 0 0 2 4 】

本発明は、ポリマー組成物、溶融ブレンドされた混合物、フィルム、フィルム層、およびポリマー組成物を含む物品（または物品層）に関する。ポリマー組成物および溶融ブレンドされた混合物は、ポリ（トリメチレンテレフタレート）とアルファ - ヒドロキシ酸のポリマーとを含む。アルファ - ヒドロキシ酸のポリマーの量は少なくとも約 2 %、より好ましくは少なくとも約 5 %、特定の場合、より好ましくは少なくとも約 10 % である。アルファ - ヒドロキシ酸のポリマーの量は約 80 パーセントまで、好ましくは約 75 % まで、別の実施態様において約 60 % まで、さらに別の実施態様において約 50 % まで、さらに別の実施態様において 50 % 未満、もっとさらに別の実施態様において約 40 % まで、さらに別の実施態様において約 25 % までである。好ましくはポリ（トリメチレンテレフタレート）は約 98 % まで、別の実施態様において好ましくは約 95 % まで、さらに別の実施態様において好ましくは約 90 % までの量において用いられる。それは好ましくは、少なくとも約 20 %、別の実施形態において少なくとも約 25 %、別の実施態様において少なくとも約 40 %、さらに別の実施態様において好ましくは少なくとも約 50 %、さらに別の実施態様において 50 % 超、さらに別の実施態様において少なくとも約 60 %、さらに別の 1 つの実施態様において少なくとも約 75 % の量において用いられる。前述の量は重量パーセンテージであり、それぞれ、ポリマー組成物および溶融ブレンドされたポリエステル混合物の全重量に基づいている。便宜上、本発明のポリマー組成物は「 P T T / P A H A ポリマー」と称されることもある。

10

20

【 0 0 2 5 】

ポリ（トリメチレンテレフタレート）または P T T は、少なくとも 70 モル % のトリメチレンテレフタレート反復単位を含有するホモポリマーおよびコポリマーを包含することが意図される。好ましいポリ（トリメチレンテレフタレート）は、少なくとも 85 モル %、より好ましくは少なくとも 90 モル %、さらにより好ましくは少なくとも 95 または少なくとも 98 モル %、最も好ましくは約 100 モル % のトリメチレンテレフタレート反復単位を含有する。

30

【 0 0 2 6 】

ポリ（トリメチレンテレフタレート）は概して、1, 3 - プロパンジオールおよびテレフタル酸 / ジエステルと任意の少量の他のモノマーとの酸触媒重縮合によって製造される。

【 0 0 2 7 】

P T T がコポリマーであるとき、それは、他の単位を含有する反復単位を 30 モル % まで、好ましくは 15 モル % まで、より好ましくは 10 モル % まで、さらにより好ましくは 5 モル % まで、最も好ましくは 2 モル % まで含有することができる。これらの反復単位は好ましくは、4 ~ 12 個の炭素原子を有するジカルボン酸（例えばブタン二酸、ペンタン二酸、ヘキサン二酸、ドデカン二酸、および 1, 4 - シクロ - ヘキサジカルボン酸）、テレフタル酸以外の 8 ~ 12 個の炭素原子を有する芳香族ジカルボン酸（例えばイソフタル酸および 2, 6 - ナフタレンジカルボン酸）、および 1, 3 - プロパンジオール以外の 2 ~ 8 個の炭素原子を有する直鎖、環状、および分岐状脂肪族ジオール（例えば、エタンジオール、1, 2 - プロパンジオール、1, 4 - ブタンジオール、3 - メチル - 1, 5 - ペンタンジオール、2, 2 - ジメチル - 1, 3 - プロパンジオール、2 - メチル - 1, 3 - プロパンジオール、および 1, 4 - シクロヘキサジオール）を含有する。

40

【 0 0 2 8 】

ポリ（トリメチレンテレフタレート）は、少量の他のコモノマーを含有することができ

50

、このようなモノマーは通常、性質に著しい悪影響を与えないように選択される。このような他のモノマーには、例えば、約 0.2 ~ 5 モル % の範囲のレベルの、5 - ナトリウム - スルホイソフタレートがある。非常に少量の三官能性モノマー、例えばトリメリト酸を粘度制御のために混入することができる。

【0029】

特定の好ましいポリ(トリメチレンテレフタレート)は、ポリマーを製造するために用いられた 1, 3 - プロパンジオールが、再生可能な生物学的源を用いて発酵プロセスによって調製された 1, 3 - プロパンジオールを含む(好ましくは実質的に含む)ポリ(トリメチレンテレフタレート)である。再生可能な供給源からの出発原料の具体的な実施例として、トウモロコシ供給原料などの生物学的および再生可能な資源から製造された供給原料を利用する、1, 3 - プロパンジオール(PDO)に対する生化学的経路が記載されている。例えば、グリセロールを 1, 3 - プロパンジオールに変換することができる菌種は、種 *Klebsiella*、*Citrobacter*、*Clostridium*、および *Lactobacillus* に見出される。その技術は、前に援用された米国特許第 5633362 号明細書、米国特許第 5686276 号明細書および米国特許第 5821092 号明細書など、いくつかの公開文献に開示されている。米国特許第 5821092 号明細書には、とりわけ、組換え生物体を用いるグリセロールからの 1, 3 - プロパンジオールの生物学的製造のための方法が開示されている。その方法は、1, 2 - プロパンジオールに対する特異性を有する、異種 *pdu* ジオール脱水酵素遺伝子で形質転換された大腸菌を導入する。形質転換大腸菌が炭素源としてグリセロールの存在下で成長させられ、1, 3 - プロパンジオールが培養培地から単離される。細菌および酵母の両方がグルコース(例えば、トウモロコシ糖)または他の炭水化物をグリセロールに変換することができるので、これらの公開文献に開示された方法は、1, 3 - プロパンジオールモノマーの迅速な、安価で環境的に信頼できる供給源を提供する。

【0030】

上に記載および参照された方法によって製造されるような生物由来 1, 3 - プロパンジオールは、プラントによって混入された大気中の二酸化炭素からの炭素を含有し、それは 1, 3 - プロパンジオールの製造のための供給原料を分解する。このようにして、本発明の場合において使用するために好ましい生物由来 1, 3 - プロパンジオールは、再生可能な炭素だけを含有し、化石燃料系または石油系の炭素を含有しない。従って、生物由来 1, 3 - プロパンジオールを利用するそれに基づいたポリ(トリメチレンテレフタレート)は、組成物中で用いられる 1, 3 - プロパンジオールが、減少している化石燃料を消費しないので環境への影響が少なくなり、分解したとき、プラントによる使用のために大気へ炭素を再び放出する。

【0031】

好ましくは、反応体としてまたは反応体の成分として用いられる 1, 3 - プロパンジオールは、ガスクロマトグラフ分析によって定量したとき、約 99 重量 % より大きい、より好ましくは約 99.9 重量 % より大きい純度を有する。特に好ましいのは、米国特許第 7038092 号明細書、米国特許出願公開第 2004 - 0260125 A 1 号明細書、米国特許出願公開第 2004 - 0225161 A 1 号明細書および米国特許出願公開第 2005 - 0069997 A 1 号明細書に開示されたような精製 1, 3 - プロパンジオールである。

【0032】

精製 1, 3 - プロパンジオールは好ましくは、以下の特性を有する。

- (1) 220 nm において紫外線吸収が約 0.200 未満、250 nm において約 0.075 未満、275 nm において約 0.075 未満、および / または
- (2) 約 0.15 未満の $L^*a^*b^*$ 色値 (ASTMD6290)、および 270 nm において約 0.075 未満の吸光度を有する組成物、および / または
- (3) 約 10 ppm 未満の過氧化物組成物、および / または
- (4) 全有機不純物 (1, 3 - プロパンジオール以外の有機化合物) の濃度が、ガスクロ

10

20

30

40

50

マトグラフィによって測定したとき、約 400 ppm 未満、より好ましくは約 300 ppm 未満、さらにより好ましくは約 150 ppm 未満である。

【0033】

本発明のポリ(トリメチレンテレフタレート)の固有粘度は少なくとも約 0.5 dL/g、好ましくは少なくとも約 0.7 dL/g、より好ましくは少なくとも約 0.8 dL/g、より好ましくは少なくとも約 0.9 dL/g、最も好ましくは少なくとも約 1 dL/g である。本発明のポリエステル組成物の固有粘度は好ましくは約 2.5 dL/g まで、より好ましくは約 2 dL/g まで、さらにより好ましくは約 1.5 dL/g まで、最も好ましくは約 1.2 dL/g までである。

【0034】

10

ポリ(トリメチレンテレフタレート)およびポリ(トリメチレンテレフタレート)を製造するための好ましい製造技術は、米国特許第 5015789 号明細書、米国特許第 5276201 号明細書、米国特許第 5284979 号明細書、米国特許第 5334778 号明細書、米国特許第 5364984 号明細書、米国特許第 5364987 号明細書、米国特許第 5391263 号明細書、米国特許第 5434239 号明細書、米国特許第 5510454 号明細書、米国特許第 5504122 号明細書、米国特許第 5532333 号明細書、米国特許第 5532404 号明細書、米国特許第 5540868 号明細書、米国特許第 5633018 号明細書、米国特許第 5633362 号明細書、米国特許第 5677415 号明細書、米国特許第 5686276 号明細書、米国特許第 5710315 号明細書、米国特許第 5714262 号明細書、米国特許第 5730913 号明細書、米国特許第 5763104 号明細書、米国特許第 5774074 号明細書、米国特許第 5786443 号明細書、米国特許第 5811496 号明細書、米国特許第 5821092 号明細書、米国特許第 5830982 号明細書、米国特許第 5840957 号明細書、米国特許第 5856423 号明細書、米国特許第 5962745 号明細書、米国特許第 5990265 号明細書、米国特許第 6232511 号明細書、米国特許第 6235948 号明細書、米国特許第 6245844 号明細書、米国特許第 6255442 号明細書、米国特許第 6277289 号明細書、米国特許第 6281325 号明細書、米国特許第 6297408 号明細書、米国特許第 6312805 号明細書、米国特許第 6325945 号明細書、米国特許第 6331264 号明細書、米国特許第 6335421 号明細書、米国特許第 6350895 号明細書、米国特許第 6353062 号明細書、米国特許第 6437193 号明細書、米国特許第 6538076 号明細書、米国特許第 6841505 号明細書および米国特許第 6887953 号明細書(その内容の全てを参照によって本願明細書に組み込む)に記載されている。

20

30

【0035】

本発明のポリエステルとして有用なポリ(トリメチレンテレフタレート)は、商標 SORONA として E. I. du Pont de Nemours and Company, Wilmington, Delaware から、および商標 CORTERRA として Shell Chemicals, Houston, Texas から市販されている。

【0036】

40

本発明の実施において用いられた重合アルファ-ヒドロキシ酸(「PAHA」)には、乳酸のポリマー(その立体特異性ダイマー L(-)ラクチドのポリマーなど)、グリコール酸(そのダイマーグリコリドなど)、および 2-ヒドロキシ酪酸などがある。また、用語「重合アルファ-ヒドロキシ酸」には、PLA と -カプロラクトン(2-オキセパノン)および/または -カプロラクトン(5-エチル-2-オキソラノン)のコポリマーなどの PLA のコポリマーが含まれる。

【0037】

任意のグレードの PLA を使用して本発明を実施することができる。本発明の実施において用いられた好ましいポリ(乳酸)(PLA)は、好ましくは 130~200 の融点を有する、L(-)ラクチドから触媒的に調製された 100% の生物由来ポリマーである。本発明の実施において用いられた PLA の固有粘度は好ましくは少なくとも約 0.7 d

50

L / g、より好ましくは少なくとも約 0.9 d L / g、好ましくは約 2.0 d L / g まで、より好ましくは約 1.6 d L / g までである。

【0038】

本発明を実施するために適した P L A は、C a r g i l l , I n c . , M i n e t o n k a , M N (P L A ポリマー 4040D など) およびその他の供給元から入手可能であり、1つの好ましいグレードは P L A ポリマー 4040D およびその他である。

【0039】

P T T / P A H A ポリマー組成物は、物理的ブレンドおよび溶融ブレンドなど、どんな公知の技術によって調製されてもよい。好ましくは P T T と P A H A とを溶融ブレンドおよび配合する。好ましくは P T T と P A H A とを混合し、ブレンドを形成するために十分な温度に加熱し、冷却したとき、ブレンドをペレットなどの造形物品に形成する。P T T と P A H A とを多くの異なった方法でブレンドに形成することができる。例えば、それらを (a) 同時に加熱および混合する、(b) 加熱する前に別個の機器内で予混合する、または (c) 加熱し、次いで混合することができる。例として、ポリマーブレンドをトランスファーライン射出によって製造することができる。混合、加熱および形成は、押出機、バンパリーミキサ等のその目的のために設計された通常の装置によって行なわれてもよい。温度は、各成分の融点より高いが最低分解温度より低いのがよく、したがって、P T T / P A H A ポリマーのいずれかの特定の組成物のために調節されなければならない。温度は典型的に、本発明の特定の P T T と P A H A とに依りて、約 180 ~ 約 260 の範囲、好ましくは少なくとも約 230 およびより好ましくは約 250 までである。

【0040】

ポリマー組成物は、必要ならば、特定の添加剤、例えば、熱安定剤、核剤、粘度向上剤、蛍光増白剤、顔料、および酸化防止剤を含有することができる。

【0041】

所期の最終用途の適用に依りて、ポリマーは、少量の他の熱可塑性樹脂または熱可塑性樹脂に通常に添加される公知の添加剤、例えば、紫外線吸収剤および帯電防止剤などの安定剤を含有してもよい。もちろん、これらの添加剤は、本発明によって達成された利点に悪影響を与える量において使用されるべきでない。

【0042】

ナイロン 6 またはナイロン 6 - 6 などのポリアミドを、ポリマー組成物の重量に基づいて約 0.5 ~ 約 15 重量%の少量で添加して本発明の組成物に対して性質 (例えば強度) および加工性を改良することができる。

【0043】

米国特許第 6245844 号明細書に記載されたように好ましい核剤、核剤としてテレフタル酸一ナトリウム、ジカルボン酸一ナトリウムナフタレンおよびイソフタル酸一ナトリウムからなる群から選択されたジカルボン酸の一ナトリウム塩を好ましくは 0.005 ~ 2 重量%添加することができる。

【0044】

本発明の組成物は、キャストまたは二軸延伸フィルム、シートまたは他の物品に形成されてもよい。これらのフィルムは典型的に、約 0.1 ミル ~ 約 100 ミルのサイズを有する。フィルムは単一層フィルムであるか、またはポリオレフィン、エチレンコポリマー、イオノマー、ポリアミド、ポリカーボネート、アクリル、ポリスチレン、接着タイ層、エチレンビニルアルコール、ポリ塩化ビニリデンまたは他の合成ポリマーなどの他のフィルム層と同時に押出して形成された多層フィルムであってもよい。また、単一層フィルムを他のフィルムまたは基材に積層することができる。

【0045】

通常の装置を用いて、ポリマー組成物を、キャストおよび二軸延伸フィルムの両方を含めてフィルムに製造することができる。必要とされる工程は典型的に以下の通りであり、すなわち、ポリマーの乾燥ブレンドを調製する工程、ポリマーを溶融ブレンドする工程、ポリマーを押出してペレット (フレーク等の他の形状を含める) を形成する工程、ペレッ

トを再融解する工程、ペレットをダイを通して押出す工程であり、約 180 ~ 約 260 の範囲の温度において実施することができる。本発明のポリマー組成物は、PTT自体の物理的性質の新規な変化をもたらす。

【0046】

以下の実施例は、本発明を説明する目的のために示され、限定的であることを意図しない。全ての部、パーセンテージ等は、別途指示しない限り重量による。

【実施例】

【0047】

材料

使用されたPTTは、1.02 dl/gの固有粘度を有するSORONAブライトポリ(トリメチレンテレフタレート)(E. I. du Pont de Nemours and Company, Wilmington, DE)であった。

【0048】

使用されたPLAは、Cargill, Inc., Minnetonka, MN製のPLAポリマー4040Dポリ(乳酸)であった。

【0049】

試験方法1 固有粘度の測定

PTTおよびPAHAの固有粘度(IV)は、ASTMD5225-92に基づく自動化方法に従って19において0.4グラム/dL濃度において50/50重量%トリフルオロ酢酸/塩化メチレンに溶解されたポリマーについて、Viscotek Forced Flow Viscometer Y900 (Viscotek Corporation, Houston, TX)で測定された粘度を用いて定量された。PTTによって測定されたIV値は、ASTMD4603-96に従って60/40重量%のフェノール/1,1,2,2-テトラクロロエタン中で手動で測定されたIV値に相関された。米国特許第5840957号明細書も参照のこと。

【0050】

試験方法2 物理的性質の測定

フィルムの物理的性質は、Instron Corp.の引張試験機のモデル番号1125 (Instron Corp., Norwood, MA)を用いて試験試料を用いて測定された。

【0051】

引張性質はASTM D-638によって測定された。

【0052】

実施例1~3および比較例A

フィルムは、本発明のポリマーおよびPTTの対照標準ポリマーを押出すことによって作製された。

【0053】

PTTを16時間120の空気炉内で乾燥させた。PLAポリマー4040dを16時間80において乾燥させた。

【0054】

PTTとPLAとのポリマーブレンドを249において28mm二軸スクリー押出機内で調製した。フィルムを標準ダイを通して押出し、水冷却ロールを通過させることによって急冷し、室温に冷却し、巻き上げた。様々な厚さのフィルムを作製し、厚さ4ミルのフィルムのデータを以下の表1に示す。各データポイントは10個の単一試験試料の平均である。

【0055】

表1 PTT/PLA フィルムの性質

10

20

30

40

実施例	PLA (重量%)		弾性率 (KSI)	最大応力 (KSI)	破断点歪 (%)
A	0	XD	265.46	5.05	2.29
		MD	265.73	5.67	2.55
1	5	XD	278.60	5.47	2.30
		MD	273.91	5.47	2.35
2	10	XD	277.93	5.38	2.27
		MD	274.70	5.26	2.38
3	20	XD	288.68	5.24	2.09
		MD	301.90	5.63	2.17
4	40	MD	321.74	6.86	2.77
5	50	MD	348.08	7.82	2.93
6	60	MD	351.42	8.01	3.00

10

XD = 横方向

MD = 縦方向 (長手方向)

【 0 0 5 6 】

(横方向および縦方向の両方の) 試料の弾性率は、P L A のレベルを増加させることによって増加した。また、横方向の応力は P L A を P T T に添加することによって改良される。

20

【 0 0 5 7 】

これらの変化は、P L A が一般に、P T T よりも弾性率など、著しく弱い強度の性質を有するので、特に予想外であった。

【 0 0 5 8 】

本発明の実施態様の前述の開示は、実例および説明の目的のために示された。完全であるかまたは開示された正確な形に本発明を限定することは意図されない。ここに記載された実施態様の多くの変形および改良は開示を考慮に入れて当業者には明白であろう。

【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No PCT/US2006/046049
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER INV. B32B27/36 C08J5/18 C08L67/02		
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) C08J B32B C08L		
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		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 6 331 344 B1 (OKAZAKI IWAO [JP] ET AL) 18 December 2001 (2001-12-18) claim 1 -----	1-7
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family 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 22 May 2007		Date of mailing of the International search report 04/06/2007
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.O. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer Bergmeier, Martin

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/US2006/046049

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 6331344	B1	18-12-2001	CA 2273499 A1 15-04-1999
			CN 1246825 A 08-03-2000
			DE 69810438 D1 06-02-2003
			DE 69810438 T2 14-08-2003
			EP 0943428 A1 22-09-1999
			ID 22047 A 26-08-1999
			WO 9917931 A1 15-04-1999

フロントページの続き

(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, IS, IT, LT, LU, LV, 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, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW

(74)代理人 100093300

弁理士 浅井 賢治

(74)代理人 100114007

弁理士 平山 孝二

(72)発明者 キュリアン ジョセフ ヴィー

アメリカ合衆国 デラウェア州 19707 ホクシン ピーブルズ ウェイ 209

(72)発明者 ゴッドウィン リチャード イー

アメリカ合衆国 デラウェア州 19805 ウィルミントン ロビンズ プレイス 1724

(72)発明者 フェニヴェシ ギオルギー

アメリカ合衆国 デラウェア州 19803 ウィルミントン オークウッド ロード 224

Fターム(参考) 4J002 CF05W CF18X CF19X GG00

4J200 AA04 AA06 BA17 BA19 CA01 DA17 EA11