

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
27. Dezember 2001 (27.12.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
WO 01/98080 A2

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: B32B 27/00

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP01/06679

(22) Internationales Anmeldedatum:  
13. Juni 2001 (13.06.2001)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
100 30 235.1 20. Juni 2000 (20.06.2000) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): MITSUBISHI POLYESTER FILM GMBH [DE/DE]; Rheingaustrasse 190-196, 65203 Wiesbaden (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): PEIFFER, Herbert [DE/DE]; Thüringer Strasse 26, 55126 Mainz (DE).

KLIESCH, Holger [DE/DE]; Grosse Kirchenstrasse 1, 55126 Mainz (DE). HILKERT, Gottfried [DE/DE]; Schützenstrasse 12, 55291 Saulheim (DE). BENNETT, Cynthia [US/DE]; Am Wiesenweg 9, 55232 Alzey (DE).

(74) Anwälte: ZOUNEK, Nikolai usw.; Patentanwaltskanzlei Zounek, Industriepark Kalle-Albert, Rheingaustrasse 190-196, 65203 Wiesbaden (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): JP, KR, US.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).

Veröffentlicht:

— ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: WHITE, SEALABLE, THERMODEFORMABLE, BIAXIALLY ORIENTED AND COEXTRUDED POLYESTER FILM CONTAINING A CYCLOOLEFIN COPOLYMER, METHOD FOR PRODUCING THE SAME AND THE USE THEREOF

(54) Bezeichnung: WEISSE, SIEGELFÄHIGE, THERMOFORMBARE, BIAXIAL ORIENTIERTE UND KOEXTRUDIERTER POLYESTERFOLIE MIT CYCLOOLEFINCOPOLYMER, VERFAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG UND IHRE VERWENDUNG

(57) Abstract: The invention relates to a white, sealable, thermodeformable, biaxially oriented and coextruded polyester film that comprises at least one base layer B and at least one sealable cover layer A, wherein at least the base layer B contains a polyester starting compound and a cycloolefin copolymer (COC). The polyester starting compound should contain an increased amount of diethylene glycol, polyethylene glycol or isophthalic acid. The invention further relates to a method for producing the inventive polyester film and to the use thereof for thermoformed articles, especially on high-speed machines.

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft eine weiße, siegelfähige, biaxial orientierte, thermoformbare und koextrudierte Polyesterfolie, die mindestens eine Basisschicht B und mindestens eine siegelfähige Deckschicht A umfaßt, wobei mindestens die Basisschicht B einen Polyesterrohstoff und ein Cycloolefincopolymer (COC) enthält. Der Polyesterrohstoff soll eine erhöhte Menge an Diethylenglykol, an Polyethylenglykol oder an Isophthalsäure enthalten. Die Erfindung betrifft ferner ein Verfahren zur Herstellung der Polyesterfolie sowie ihre Verwendung für thermogeformte Artikel, insbesondere auf schnelllaufenden Maschinen.



WO 01/98080 A2

Weißer, siegelfähiger, thermoformbarer, biaxial orientierter und koextrudierter Polyesterfolie mit Cycloolefincopolymer, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung

5 Die vorliegende Erfindung betrifft eine weiße, siegelfähige, thermoformbare, biaxial orientierte, koextrudierter Polyesterfolie, die mindestens eine Basisschicht B und mindestens eine siegelfähige Deckschicht umfaßt, wobei mindestens die Basis-  
10 schicht B einen Polyesterrohstoff und ein Cycloolefincopolymer (COC) enthält. Die Erfindung betrifft ferner ein Verfahren zur Herstellung der Polyesterfolie sowie ihre Verwendung.

Weißer, biaxial orientierter Polyesterfolien sind nach dem Stand der Technik bekannt. Diese nach dem Stand der Technik bekannten Folien zeichnen sich entweder durch  
15 eine gute Herstellbarkeit oder durch eine gute Optik oder durch ein akzeptables Verarbeitungsverhalten aus.

In der DE-A 23 53 347 wird ein Verfahren zur Herstellung einer ein- oder  
20 mehrschichtigen, milchigen Polyesterfolie beschrieben, das dadurch gekennzeichnet ist, dass man ein Gemisch aus Teilchen eines linearen Polyesters mit 3 bis 27 Gew.-% eines Homopolymeren oder Mischpolymeren von Ethylen oder Propylen herstellt, das Gemisch als Film extrudiert, den Film abschreckt und durch  
Verstrecken in senkrecht zueinander verlaufenden Richtungen biaxial orientiert und den Film thermofixiert. Nachteilig an dem Verfahren ist, dass das bei der  
25 Herstellung der Folie anfallende Regenerat (im Wesentlichen ein Gemisch aus Polyesterrohstoff und Ethylen- oder Propylen-Mischpolymer) nicht mehr für die Produktion eingesetzt werden kann, da ansonsten die Folie gelb wird. Das Verfahren ist damit aber unwirtschaftlich und die mit Regenerat produzierte, gelbliche Folie konnte sich am Markt nicht durchsetzen. Außerdem weist die Folie  
30 deutlich zu hohe Rauigkeiten auf und hat damit ein sehr mattes Aussehen (sehr niedriger Glanz), was für viele Anwendungszwecke unerwünscht ist.

In der EP-A-0 300 060 wird eine einschichtige Polyesterfolie beschrieben, die außer Polyethylenterephthalat noch 3 bis 40 Gew.-% eines kristallinen Propylenpolymeren und 0,001 bis 3 Gew.-% einer oberflächenaktiven Substanz enthält. Die oberflächenaktive Substanz bewirkt, dass die Anzahl der Vakuolen in der Folie ansteigt und gleichzeitig ihre Größe in gewünschtem Maße abnimmt. Hierdurch wird eine höhere Opazität und eine niedrigere Dichte der Folie erzielt. Nachteilig an der Folie bleibt weiterhin, dass bei der Herstellung der Folie anfallendes Verschnittmaterial (im Wesentlichen ein Gemisch aus Polyesterrohstoff und Propylen-Homopolymer) nicht mehr als Regenerat eingesetzt werden kann, da ansonsten die Folie gelb wird. Das Verfahren ist damit aber unwirtschaftlich und die mit Regenerat produzierte Folie mit Gelbstich konnte sich am Markt nicht durchsetzen. Außerdem weist die Folie deutlich zu hohe Rauigkeiten auf und hat damit ein sehr mattes Aussehen (sehr niedriger Glanz), was für viele Anwendungszwecke unerwünscht ist.

In der EP-A-0 360 201 wird eine zumindest zweischichtige Polyesterfolie beschrieben, die eine Basisschicht mit feinen Vakuolen enthält, deren Dichte zwischen 0,4 und 1,3 kg/dm<sup>3</sup> liegt und mindestens eine Deckschicht aufweist, deren Dichte größer als 1,3 kg/dm<sup>3</sup> ist. Die Vakuolen werden durch Zugabe von 4 bis 30 Gew.-% eines kristallinen Propylenpolymeren und anschließender biaxialer Streckung der Folie erzielt. Durch die zusätzliche Deckschicht wird die Herstellbarkeit der Folie besser (keine Streifenbildung auf der Oberfläche der Folie), die Oberflächenspannung wird erhöht und die Rauigkeit der laminierten Oberfläche kann verringert werden. Nachteilig bleibt jedoch, dass das bei der Herstellung der Folie anfallende Regenerat (im Wesentlichen ein Gemisch aus Polyesterrohstoff und Propylen-Homopolymer) nicht mehr für den Herstellprozess eingesetzt werden kann, da ansonsten die Folie gelb wird. Das Verfahren ist damit aber unwirtschaftlich und die mit Regenerat produzierte, gelbstichige Folie konnte sich am Markt nicht durchsetzen. Außerdem weisen die in den Beispielen aufgeführten Folien noch immer zu hohe Rauigkeiten auf und haben damit ein mattes Aussehen (niedriger Glanz), was für viele Anwendungszwecke unerwünscht ist.

In der EP-A-0 795 399 wird eine zumindest zweischichtige Polyesterfolie beschrieben, die eine Basisschicht mit feinen Vakuolen enthält, deren Dichte zwischen 0,4 und 1,3 kg/dm<sup>3</sup> liegt und mindestens eine Deckschicht aufweist, deren Dichte größer als 1,3 kg/dm<sup>3</sup> beträgt. Die Vakuolen werden durch Zugabe von 5 bis 45 Gew.-% eines thermoplastischen Polymers zum Polyesterrohstoff in der Basis und anschließender biaxialer Streckung der Folie erzielt. Als thermoplastische Polymere werden u.a. Polypropylen, Polyethylen, Polymethyl-Penten, Polystyrol oder Polycarbonat genannt, wobei Polypropylen das bevorzugte thermoplastische Polymer ist. Durch die zusätzliche Deckschicht wird die Herstellbarkeit der Folie besser (keine Streifenbildung auf der Oberfläche der Folie), die Oberflächenspannung wird erhöht und die Rauigkeit der laminierten Oberfläche kann den jeweiligen Erfordernissen angepasst werden. Eine weitere Modifizierung der Folie in der Basisschicht und/oder in den Deckschichten mit Weiß-Pigmenten (in der Regel TiO<sub>2</sub>) und/oder mit optischen Aufhellern ermöglicht die Anpassung der Folieneigenschaften an die jeweiligen Anwendungserfordernisse. Nachteilig bleibt aber, dass bei der Herstellung der Folie anfallendes Verschnittmaterial (im Wesentlichen ein Gemisch aus Polyesterrohstoff und dem additiven Rohstoff) nicht mehr als Regenerat für die Folienproduktion eingesetzt werden kann, da ansonsten die mit Regenerat produzierte Folie undefiniert in der Farbe verändert wird, was unerwünscht ist. Das Verfahren ist damit aber unwirtschaftlich und die mit Regenerat produzierte Folie mit Verfärbungen konnte sich am Markt nicht durchsetzen. Außerdem weisen die in den Beispielen aufgeführten Folien noch immer zu hohe Rauigkeiten auf und haben damit ein mattes Aussehen (niedriger Glanz), was für viele Anwendungszwecke unerwünscht ist.

25

In der DE-A 195 40 277 wird eine ein- oder mehrschichtige Polyesterfolie beschrieben, die eine Basisschicht mit feinen Vakuolen enthält, deren Dichte zwischen 0,6 und 1,3 kg/dm<sup>3</sup> liegt und eine Doppelbrechung in der Ebene aufweist, die von -0,02 bis 0,04 reicht. Die Vakuolen werden durch Zugabe von 3 bis 40 Gew.-% eines thermoplastischen Harzes zum Polyesterrohstoff in der Basis und anschließender biaxialer Streckung der Folie erzielt. Als thermoplastische Harze werden u.a. Polypropylen, Polyethylen, Polymethyl-Penten, cyclische Olefin-Polymere,

30

Polyacrylharze, Polystyrol oder Polycarbonat genannt, wobei Polypropylen und Polystyrol bevorzugte Rohstoffe sind. Durch Einhaltung der angegebenen Grenzen für die Doppelbrechung der Folie zeichnet sich die beanspruchte Folie insbesondere durch eine überlegene Reißfestigkeit und überlegene Isotropieeigenschaften aus. 5  
Nachteilig bleibt aber, dass bei der Herstellung der Folie anfallendes Regenerat nicht mehr für die Folienfertigung eingesetzt werden kann, da ansonsten die Folie undefiniert in der Farbe verändert wird, was unerwünscht ist. Das Verfahren ist damit aber unwirtschaftlich und die mit Regenerat produzierte, verfärbte Folie konnte sich am Markt nicht durchsetzen. Außerdem weisen die in den Beispielen 10  
aufgeführten Folien noch immer zu hohe Rauigkeiten auf und haben damit ein mattes Aussehen (niedriger Glanz), was für viele Anwendungszwecke unerwünscht ist.

Siegelfähige, biaxial orientierte Polyesterfolien sind nach dem Stand der Technik 15  
ebenfalls bekannt. Diese nach dem Stand der Technik bekannten Folien zeichnen sich entweder durch ein gutes Siegelverhalten oder durch eine gute Optik oder durch ein akzeptables Verarbeitungsverhalten aus.

In der GB-A 1 465 973 wird eine koextrudierte, zweischichtige Polyesterfolie 20  
beschrieben, deren eine Schicht aus isophthalsäurehaltigen und terephthalsäurehaltigen Copolyestern und deren andere Schicht aus Polyethylenterephthalat besteht. Über das Siegelverhalten der Folie finden sich in der Schrift keine verwertbaren Angaben. Wegen fehlender Pigmentierung ist die Folie nicht prozesssicher herstellbar (Folie ist nicht wickelbar) und nur unter Einschränkung weiter 25  
verarbeitbar. Darüber hinaus werden weiße Folien in der GB-A gar nicht erwähnt.

In der EP-A 0 035 835 wird eine koextrudierte siegelfähige Polyesterfolie beschrieben, der zur Verbesserung des Wickel- und Verarbeitungsverhaltens in der Siegelschicht Partikeln beigelegt werden, deren mittlere Teilchengröße größer ist 30  
als die Schichtdicke der Siegelschicht. Durch die teilchenförmigen Zusatzstoffe werden Oberflächenvorsprünge gebildet, die das unerwünschte Blocken und Kleben an Walzen oder Führungen verhindern. Über die andere, nicht siegelfähige

Schicht der Folie, werden keine näheren Angaben zur Einarbeitung von Anti-blockmitteln gemacht. Durch die Wahl von Partikeln mit größerem Durchmesser als die Dicke der Siegelschicht in den in den Beispielen angegebenen Mengen wird allerdings das Siegelverhalten der Folie verschlechtert. Angaben zum Siegeltemperaturbereich der Folie werden in der Schrift nicht gemacht. Die Siegelnahtfestigkeit wird bei 140 °C gemessen und liegt in einem Bereich von 63 bis 120 N/m (0,97 N/15 mm bis 1,8 N/15 mm Folienbreite). Weiße Folien werden in der EP-A nicht beschrieben.

10 In der EP-A-0 432 886 wird eine koextrudierte, mehrschichtige Polyesterfolie beschrieben, die eine erste Oberfläche besitzt, auf der eine siegelfähige Schicht angeordnet ist, und eine zweite Oberfläche, auf der sich eine Acrylatschicht befindet. Die siegelfähige Deckschicht kann auch hier aus isophthalsäurehaltigen und terephthalsäurehaltigen Copolyestern bestehen. Durch die rückseitige  
15 Beschichtung erhält die Folie ein verbessertes Verarbeitungsverhalten. Angaben zum Siegelbereich der Folie werden in der Schrift nicht gemacht. Die Siegelnahtfestigkeit wird bei 140 °C gemessen. Für eine 11 µm dicke Siegelschicht wird eine Siegelnahtfestigkeit von 761,5 N/m (entsprechend 11,4 N/15 mm) angegeben. Nachteilig an der rückseitigen Acrylatbeschichtung ist, dass diese Seite gegen die  
20 siegelfähige Deckschicht nicht mehr siegelt. Die Folie ist damit nur sehr eingeschränkt zu verwenden. Weiße Folien werden in der Schrift nicht erwähnt.

In der EP-A-0 515 096 wird eine koextrudierte, mehrschichtige, siegelfähige Polyesterfolie beschrieben, die auf der siegelfähigen Schicht ein zusätzliches  
25 Additiv enthält. Das Additiv kann z.B. anorganische Partikeln enthalten und wird vorzugsweise in einer wässrigen Schicht an die Folie bei deren Herstellung herangetragen. Hierdurch soll die Folie die guten Siegeleigenschaften beibehalten und gut zu verarbeiten sein. Die Rückseite enthält nur sehr wenige Partikeln, die hauptsächlich über Regranulat in diese Schicht gelangen. Angaben zum Siegeltemperaturbereich der Folie werden in dieser Schrift nicht gemacht. Die Siegelnahtfestigkeit wird bei 140 °C gemessen und beträgt mehr als 200 N/m (entsprechend 3 N/15 mm). Für eine 3 µm dicke Siegelschicht wird eine Siegelnahtfestigkeit  
30

von 275 N/m (entsprechend 4,125 N/15 mm) angegeben. Weiße Folien werden in der Schrift allerdings nicht erwähnt.

5 Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es, eine weiße, siegelfähige, thermoformbare und biaxial orientierte Polyesterfolie bereitzustellen, die eine sehr gute Siegelfähigkeit aufweist und die sich mit hoher Wirtschaftlichkeit herstellen läßt. Insbesondere soll gewährleistet sein, dass bei dem Herstellprozess immanent anfallendes Verschnittmaterial als Regenerat in einer Menge im Bereich von 10 bis 70 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der Folie, wieder für die Folienfertigung verwendet werden kann, ohne dass dabei die physikalischen Eigenschaften der damit hergestellten Folie nennenswert negativ beeinflusst werden. 10 Insbesondere soll durch die Regeneratzugabe keine nennenswerte Gelbfärbung der Folie auftreten.

15 Die Aufgabe wird erfindungsgemäß gelöst, durch die Bereitstellung einer weißen, siegelfähigen, biaxial orientierten, koextrudierten Polyesterfolie mit mindestens einer Basisschicht B und einer siegelfähigen Deckschicht A, beide aus thermoplastischem Polyester. Die kennzeichnenden Merkmale dieser Folie sind darin zu sehen, dass zumindest die Basisschicht B neben Polyesterrohstoff zusätzlich ein Cycloolefincopolymer (COC) in einer Menge im Bereich von 2 bis 60 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht der Basisschicht B enthält, wobei die Glasübergangstemperatur  $T_g$  des Cycloolefincopolymeren (COC) im Bereich von 70 bis 270 °C liegt, und dass der Polyesterrohstoff eine erhöhte Menge an Diethylenglykol und/oder Polyethylenglykol und/oder Isophthalsäure enthält. 20

25 Zu einer guten Streckbarkeit zählt, dass sich die Folie bei ihrer Herstellung sowohl in Längs- als auch in Querrichtung gut und vor allem ohne Abrisse orientieren läßt. Gute Thermoformbarkeit bedeutet, dass sich die Folie auf handelsüblichen Tiefziehmaschinen ohne unwirtschaftliche Vorbehandlung zu komplexen und großflächigen Formteilen tiefziehen beziehungsweise thermoformen läßt. 30

Für die Realisierung einer guten Thermoformbarkeit ist es wesentlich, dass der Polyesterrohstoff für die Basisschicht B und für die Deckschicht A oder auch für weitere Deckschichten Diethylenglykol (DEG) in einer Menge von  $\geq 0,5$  Gew.-% enthält, vorzugsweise von  $\geq 1,0$  Gew.-%, besonders bevorzugt von  $\geq 1,2$  Gew.-%, und/oder Polyethylenglykol (PEG) in einer Menge von  $\geq 0,5$  Gew.-%, vorzugsweise  $\geq 1,0$  Gew.-%, insbesondere von  $\geq 1,2$  Gew.-%, und/oder Isophthalsäure (IPA) in einer Menge im Bereich von 3 bis 10 Gew.-%.

Unter einer weißen, biaxial orientierten Polyesterfolie im Sinne der vorliegenden Erfindung wird eine solche Folie bezeichnet, die einen Weißgrad von mehr als 70 %, bevorzugt von mehr als 75 % und besonders bevorzugt von mehr als 80 %, aufweist. Ferner beträgt die Opazität der erfindungsgemäßen Folie mehr als 55 %, bevorzugt mehr als 60 % und besonders bevorzugt mehr als 65 %.

Zur Erzielung des gewünschten Weißgrades der erfindungsgemäßen Folie muss der Anteil an COC in der Basisschicht B größer als 2 Gew.-% sein, andernfalls ist der Weißgrad kleiner als 70 %. Ist der COC-Gehalt andererseits größer als 60 Gew.-%, so lässt sich die Folie nicht mehr wirtschaftlich herstellen, da sie sich nicht mehr verfahrenssicher strecken lässt.

Weiterhin ist es notwendig, dass die Glasübergangstemperatur  $T_g$  des eingesetzten COCs größer als 70 °C ist. Andernfalls (bei einer Glasübergangstemperatur  $T_g$  von kleiner als 70 °C) ist das Rohstoffgemisch schlecht verarbeitbar (schlecht extrudierbar), der gewünschte Weißgrad wird nicht mehr erreicht und das eingesetzte Regenerat führt zu einer Folie, die zu einer erhöhten Gelbfärbung neigt. Ist andererseits die Glasübergangstemperatur  $T_g$  des ausgewählten COCs größer als 270 °C, so wird sich die Rohstoffmischung unter Umständen im Extruder nicht mehr ausreichend homogen dispergieren lassen. Dies hätte dann eine Folie mit inhomogenen Eigenschaften zur Folge.

30

In der bevorzugten Ausführungsform der erfindungsgemäßen Folie liegt die Glasübergangstemperatur  $T_g$  der verwendeten COC's in einem Bereich von 90 bis 250 °C und in der ganz besonders bevorzugten Ausführungsform in einem Bereich von 110 bis 220 °C.

5

Überraschend wurde gefunden, dass durch den Zusatz eines COCs in der vorstehend beschriebenen Weise eine weiße, opake Folie hergestellt werden kann.

Entsprechend der Menge und der Art des zugegebenen COCs kann der Weißgrad und auch die Opazität der Folie exakt eingestellt und den jeweiligen Anforderungen angepasst werden. Durch diese Maßnahme ist es möglich, auf andere gängige weiß- und opakmachende Additive weitgehend zu verzichten. Vollkommen überraschend war der zusätzliche Effekt, dass das Regenerat nicht wie die polymeren Additive nach dem Stand der Technik zur Gelbverfärbung neigt.

15

Alle diese beschriebenen Vorteile waren nicht vorhersehbar. Dies umso mehr, da COC's zwar offensichtlich mit Polyethylenterephthalat weitgehend inkompatibel sind, bekanntlich aber mit ähnlichen Streckverhältnissen und Strecktemperaturen orientiert werden, wie Polyethylenterephthalat. Unter diesen Voraussetzungen hätte der Fachmann erwartet, dass bei diesen Herstellbedingungen keine weiße, opake Folie produziert werden kann.

20

In den bevorzugten und den besonders bevorzugten Ausführungsformen zeichnet sich die erfindungsgemäße Folie durch einen hohen/bzw. durch einen besonders hohen Weißgrad und eine hohe/bzw. durch eine besonders hohe Opazität aus, wobei die Farbänderung der Folie durch die Regeneratzugabe äußerst gering bleibt und damit im hohen Maße wirtschaftlich ist.

25

Die erfindungsgemäße Folie ist mehrschichtig. Mehrschichtige Ausführungsformen sind mindestens zweischichtig und umfassen immer die COC-haltige Basisschicht B und zumindest eine siegelfähige Deckschicht A. In einer bevorzugten Ausführungsform bildet die COC-haltige Schicht die Basisschicht B der Folie mit

30

mindestens einer siegelfähigen Deckschicht A, wobei gegebenenfalls einseitig eine oder beidseitig Zwischenschicht/en vorhanden sein kann/können. In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform bildet die COC-haltige Schicht die Basisschicht B der Folie mit mindestens einer siegelfähigen Deckschicht A und vorzugsweise mit einer weiteren Deckschicht C, wobei gegebenenfalls einseitig eine oder beidseitig Zwischenschicht/en vorhanden sein kann/können. In einer weiteren möglichen Ausführungsform bildet die COC-haltige Schicht auch eine Zwischenschicht der Mehrschichtfolie. Weitere Ausführungsformen mit COC-haltigen Zwischenschichten sind fünfschichtig aufgebaut und haben neben der COC-haltigen Basisschicht B beidseitig COC-haltige Zwischenschichten. In einer weiteren Ausführungsform kann die COC-haltige Schicht zusätzlich zur Basisschicht B, einseitig eine Deckschicht auf der Basis- oder Zwischenschicht bilden. Die Basisschicht B ist im Sinne der vorliegenden Erfindung diejenige Schicht, deren Dicke mehr als 30 bis 99,5 %, vorzugsweise 60 bis 95 %, der Gesamtfoliendicke ausmacht. Die Deckschicht/en ist/sind die Schicht/en, welche die äußere(n) Schicht/en der Folie bildet/n.

Die optionale weitere Deckschicht C kann siegelfähig sein, wie die Deckschicht A, oder sie kann wie die Basisschicht B auch COC enthalten, sie kann aber auch weitere Ausstattungsmerkmale wie z.B. eine matte oder besonders raue oder besonders glatte Oberfläche aufweisen. Sie kann z.B. auch hochglänzend sein.

Es hat sich dabei weiterhin herausgestellt, dass die Folie bereits einen besonders hohen Glanz aufweist, wenn die nicht siegelfähige Deckschicht C genauso aufgebaut ist wie die Basisschicht B bzw. die Basisschicht B gleichzeitig (bei einem zweischichtigen Aufbau) die nicht siegelfähige Außenschicht darstellt. Der Glanz der so erhaltenen Folie beträgt mehr als 50 bevorzugt mehr als 70 und besonders bevorzugt mehr als 90.

Die COC-haltige Basisschicht B der erfindungsgemäßen Folie enthält einen Polyesterrohstoff, ein COC sowie gegebenenfalls weitere zugesetzte Additive in jeweils wirksamen Mengen. Im allgemeinen enthält diese Schicht mindestens

20 Gew.-%, vorzugsweise 40 bis 98 Gew.-%, insbesondere 70 bis 96 Gew.-%, Polyesterrohstoff, bezogen auf das Gewicht der Schicht.

Als thermoplastischer Polyesterrohstoff geeignet sind Polyester aus Ethylenglykol  
5 und Terephthalsäure (= Polyethylenterephthalat, PET), aus Ethylenglykol und Naphthalin-2,6-dicarbonsäure (= Polyethylen-2,6-naphthalat, PEN), aus 1,4-Bis-hydroximethyl-cyclohexan und Terephthalsäure (= Poly-1,4-cyclohexandimethylen-terephthalat, PCDT) sowie aus Ethylenglykol, Naphthalin-2,6-dicarbonsäure und Biphenyl-4,4'-dicarbonsäure (= Polyethylen-2,6-naphthalatbibenzoat, PENBB).  
10 Besonders bevorzugt sind Polyester, die zu mindestens 80 Mol-% aus Ethylenglykol- und Terephthalsäure-Einheiten oder aus Ethylenglykol- und Naphthalin-2,6-dicarbonsäure-Einheiten bestehen. Die restlichen Monomereinheiten stammen aus anderen aliphatischen, cycloaliphatischen oder aromatischen Diolen bzw. Dicarbonsäuren, wie sie auch in der Deckschicht A und/oder der Deckschicht C der mehrschichtigen ABC-Folie (B = Basisschicht) vorkommen können.  
15

Geeignete andere aliphatische Diole sind beispielsweise Diethylenglykol, Triethylenglykol, aliphatische Glykole der allgemeinen Formel  $\text{HO}-(\text{CH}_2)_n-\text{OH}$ , wobei  $n$  eine ganze Zahl von 3 bis 6 darstellt (insbesondere Propan-1,3-diol, Butan-1,4-diol, Pentan-1,5-diol und Hexan-1,6-diol) oder verzweigte aliphatische Glykole mit bis zu 6 Kohlenstoff-Atomen. Von den cycloaliphatischen Diolen sind Cyclohexandiole (insbesondere Cyclohexan-1,4-diol) zu nennen. Geeignete andere aromatische Diole entsprechen beispielsweise der Formel  $\text{HO}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{X}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{OH}$ , wobei  $\text{X}$  für  $-\text{CH}_2-$ ,  $-\text{C}(\text{CH}_3)_2-$ ,  $-\text{C}(\text{CF}_3)-$ ,  $-\text{O}-$ ,  $-\text{S}-$  oder  $-\text{SO}_2$  steht. Daneben sind auch  
20 Bisphenole der Formel  $\text{HO}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{C}_6\text{H}_4-\text{OH}$  gut geeignet.  
25

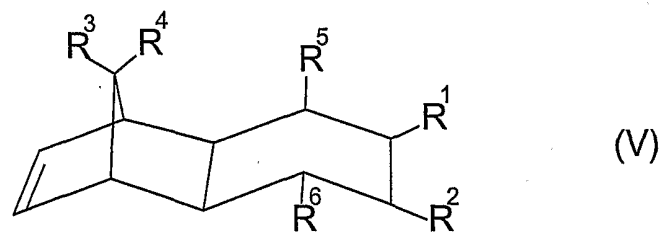
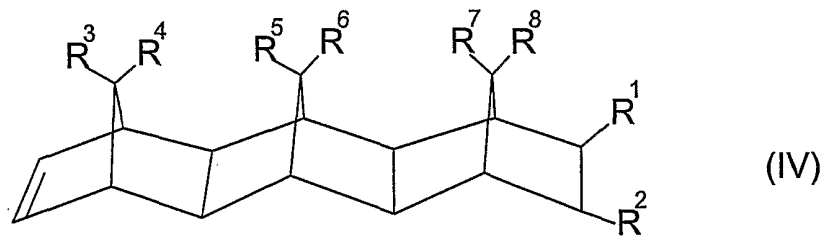
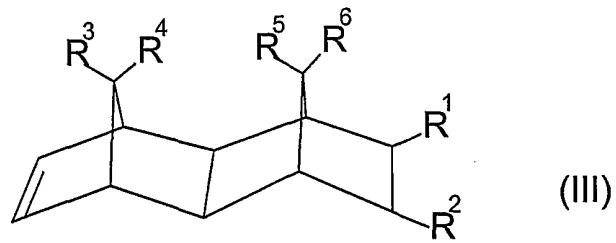
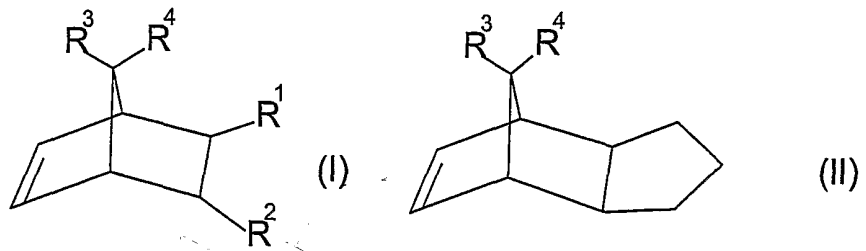
Geeignete andere aromatische Dicarbonsäuren sind bevorzugt Benzoldicarbonsäuren, Naphtalindicarbonsäuren (beispielsweise Naphthalin-1,4- oder -1,6-dicarbonsäure), Biphenyl- $x,x'$ -dicarbonsäuren (insbesondere Biphenyl-4,4'-dicarbonsäure), Diphenylacetylen- $x,x'$ -dicarbonsäuren (insbesondere Diphenylacetylen-4,4'-dicarbonsäure) oder Stilben- $x,x'$ -dicarbonsäuren. Von den cycloaliphatischen Dicarbonsäuren sind Cyclohexandicarbonsäuren (insbesondere Cyclohexan-1,4-  
30

dicarbonsäure) zu nennen. Von den aliphatischen Dicarbonsäuren sind die (C<sub>3</sub>-C<sub>19</sub>)-Alkandisäuren besonders geeignet, wobei der Alkanteil geradkettig oder verzweigt sein kann.

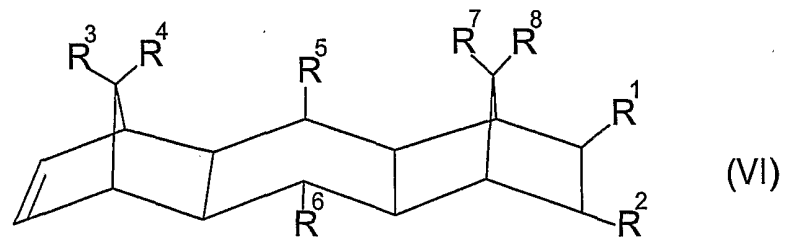
- 5 Die Herstellung der Polyester kann z.B. nach dem Umesterungsverfahren erfolgen. Dabei geht man von Dicarbonsäureestern und Diolen aus, die mit den üblichen Umesterungskatalysatoren, wie Zink-, Calcium-, Lithium-, Magnesium- und Mangan-
- 10 Salzen, umgesetzt werden. Die Zwischenprodukte werden dann in Gegenwart allgemein üblicher Polykondensationskatalysatoren, wie Antimontrioxid oder Titan-
- Salzen, polykondensiert. Die Herstellung kann ebenso gut nach dem Direktveresterungsverfahren in Gegenwart von Polykondensationskatalysatoren erfolgen. Dabei geht man direkt von den Dicarbonsäuren und den Diolen aus.

- Erfindungsgemäß enthält/enthalten die COC-haltige Schicht/en ein Cycloolefin-
- 15 copolymeres (COC) in einer Menge von minimal 2,0 Gew.-%, bevorzugt 4 bis 50 Gew.-% und besonders bevorzugt 6 bis 40 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht der COC-haltigen Schicht. Es ist wesentlich für die vorliegende Erfindung, dass das COC mit dem Polyethylenterephthalat nicht verträglich ist und mit diesem keine
- homogene Mischung bildet.

- 20 Cycloolefinpolymere sind Homopolymerisate oder Copolymerisate, welche polymerisierte Cycloolefineinheiten und gegebenenfalls acyclische Olefine als Comonomer enthalten. Für die vorliegende Erfindung sind Cycloolefinpolymere geeignet, die 0,1 bis 100 Gew.-%, bevorzugt 10 bis 99 Gew.-%, besonders bevorzugt 50 bis
- 25 95 Gew.-%, jeweils bezogen auf die Gesamtmasse des Cycloolefinpolymeren, polymerisierte Cycloolefineinheiten enthalten. Bevorzugt sind insbesondere Polymere, die aus den Monomeren der cyclischen Olefinen der Formeln I, II, III, IV, V oder VI aufgebaut sind:



5

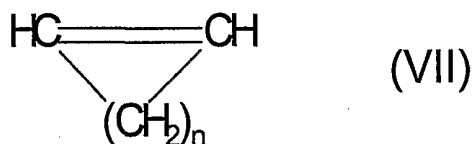


In diesen Formeln sind  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$ ,  $R^6$ ,  $R^7$  und  $R^8$  unabhängig voneinander gleich oder verschieden und bedeuten ein Wasserstoffatom oder einen  $C_1$ - $C_{30}$ -

Kohlenwasserstoffrest; oder zwei oder mehrere der Reste  $R^1$  bis  $R^8$  sind cyclisch verbunden, wobei gleiche Reste in den verschiedenen Formeln gleiche oder unterschiedliche Bedeutung haben.  $C_1$ - $C_{30}$ -Kohlenwasserstoffreste sind bevorzugt lineare oder verzweigte  $C_1$ - $C_8$ -Alkylreste,  $C_6$ - $C_{18}$ -Arylreste,  $C_7$ - $C_{20}$ -Alkylarylreste oder cyclische  $C_3$ - $C_{20}$ -Alkylreste oder acyclische  $C_2$ - $C_{20}$ -Alkenylreste.

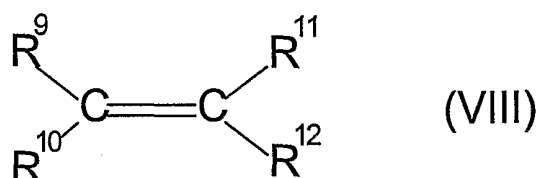
Gegebenenfalls können die Cycloolefinpolymere 0 bis 45 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmasse des Cycloolefinpolymeres, polymerisierte Einheiten mindestens eines monocyclischen Olefins der Formel VII enthalten:

10



Hierin ist n eine Zahl von 2 bis 10.

Gegebenenfalls können die Cycloolefinpolymere 0 bis 99 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmasse des Cycloolefinpolymeren, polymerisierte Einheiten eines acyclischen Olefins der Formel VIII enthalten:



Hierin sind  $R^9$ ,  $R^{10}$ ,  $R^{11}$ , und  $R^{12}$  unabhängig voneinander gleich oder verschieden und bedeuten ein Wasserstoffatom oder  $C_1$ - $C_{10}$ -Kohlenwasserstoffrest, bevorzugt einen  $C_1$ - $C_8$ -Alkylrest oder  $C_6$ - $C_{14}$ -Arylrest.

Ebenfalls prinzipiell geeignet sind Cycloolefinpolymere, die durch ringöffnende Polymerisation mindestens eines der Monomeren der Formeln I bis VI und anschließende Hydrierung erhalten werden.

Cycloolefinhomopolymere sind aus einem Monomeren der Formeln I bis VI aufgebaut. Diese Cycloolefin-Polymere sind für die Zwecke der vorliegenden Erfindung weniger geeignet. Für die Zwecke der vorliegenden Erfindung sind solche Cycloolefincopolymerisate (COC) geeignet, die mindestens ein Cycloolefin der Formeln I bis VI und zusätzlich acyclische Olefine der Formel VIII als Comonomer enthalten. Im vorstehenden wie im nachfolgenden werden diese erfindungsgemäß verwendbaren Cycloolefincopolymerisate COC genannt. Dabei sind als acyclische Olefine solche bevorzugt, die 2 bis 20 C-Atome aufweisen, insbesondere unverzweigte acyclische Olefine mit 2 bis 10 C-Atomen wie beispielsweise Ethylen, Propylen und/oder Butylen. Der Anteil polymerisierter Einheiten acyclischer Olefine der Formel VIII beträgt bis zu 99 Gew.-%, bevorzugt 5 bis 80 Gew.-%, besonders bevorzugt 10 bis 60 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht des jeweiligen COCs.

Unter den vorstehend beschriebenen COCs sind insbesondere diejenigen bevorzugt, die polymerisierte Einheiten polycyclischer Olefine mit Norbornengrundstruktur, besonders bevorzugt Norbornen oder Tetracyclododecen, enthalten. Besonders bevorzugt sind auch COCs, die polymerisierte Einheiten acyclischer Olefine, insbesondere Ethylen, enthalten. Wiederum besonders bevorzugt sind Norbonen/Ethylen- und Tetracyclododecen/Ethylen-Copolymere, welche 5 bis 80 Gew.-%, vorzugsweise 10 bis 60 Gew.-% enthalten (bezogen auf das Gewicht des Copolymeren).

Die vorstehend generisch beschriebenen COCs weisen im allgemeinen Glasübergangstemperaturen  $T_g$  zwischen  $-20\text{ °C}$  und  $400\text{ °C}$  auf. Für die Erfindung sind COCs verwendbar, die eine Glasübergangstemperatur  $T_g$  von größer als  $70\text{ °C}$ , vorzugsweise größer als  $90\text{ °C}$  und insbesondere größer als  $110\text{ °C}$  aufweisen. Die Viskositätszahl (Dekalin,  $135\text{ °C}$ , DIN 53 728) liegt zweckmäßig zwischen 0,1 und 200 ml/g, bevorzugt zwischen 50 und 150 ml/g.

Die Herstellung der COCs geschieht durch eine heterogene oder homogene Katalyse mit metallorganischen Verbindungen und ist in zahllosen Dokumenten

beschrieben. Geeignete Katalysatorsysteme basierend auf Mischkatalysatoren aus Titan- bzw. Zirkon- oder Vanadiumverbindungen in Verbindung mit Aluminiumorganen werden in DD 109 224, DD 237 070 und EP-A-0 156 464 beschrieben. EP-A-0 283 164, EP-A-0 407 870, EP-A-0 485 893 und EP-A-0 503 422  
5 beschreiben die Herstellung von Cycloolefincopolymeren (COC) mit Katalysatoren, basierend auf löslichen Metallocenkomplexen. Auf die in obengenannten Schriften beschriebenen Herstellungsverfahren von Cycloolefinpolymeren wird hiermit ausdrücklich Bezug genommen.

10 Die COCs werden entweder als reines Granulat oder als granuliertes Konzentrat (Masterbatch) in die Folie eingearbeitet, indem das Polyestergranulat oder -pulver mit dem COC bzw. dem COC-Masterbatch vorgemischt und anschließend dem Extruder zugeführt wird. Im Extruder werden die Komponenten weiter vermischt und auf Verarbeitungstemperatur erwärmt. Dabei ist es für das erfindungsgemäße  
15 Verfahren zweckmäßig, dass die Extrusionstemperatur oberhalb der Glasübergangstemperatur  $T_g$  des COCs liegt, im allgemeinen mindestens 5 K, vorzugsweise 10 bis 180 K, insbesondere 15 bis 150 K, über der Glasübergangstemperatur  $T_g$  des Cycloolefincopolymeren (COC).

20 Für die Zwischenschichten und ggf. die Deckschicht C können prinzipiell die gleichen Polymeren verwendet werden, wie für die zuvor beschriebene Basisschicht B. Daneben kann diese Deckschicht C und ggf. die Zwischenschichten auch andere Materialien enthalten, wobei dann diese Deckschicht C und ggf. die Zwischenschichten bevorzugt aus einem Gemisch von Polymeren, einem  
25 Copolymeren oder einem Homopolymeren bestehen, welche Ethylen-2,6-naphthalat-Einheiten und Ethylen-terephthalat-Einheiten enthalten.

Die durch Koextrusion auf die Basisschicht B aufgebrachte siegelfähige Deckschicht A ist auf Basis von Polyesterpolymeren aufgebaut und besteht im wesentlichen aus Copolyestern, die überwiegend aus einem Mix aus Isophthalsäure- und Terephthalsäure-Einheiten und aus Ethylenglykol-Einheiten zusammengesetzt sind.  
30 Die restlichen Monomereinheiten stammen aus anderen aliphatischen, cycloali-

phatischen oder aromatischen Diolen bzw. Dicarbonsäuren, wie sie auch in der Basisschicht B vorkommen können. Die bevorzugten Copolyester, die die gewünschten Siegeleigenschaften bereitstellen, sind solche, die aus Ethylenterephthalat-, aus Ethylenisophthalat-Einheiten und aus Ethylenglykol-Einheiten aufgebaut sind. Der Anteil an Ethylenterephthalat beträgt 40 bis 95 Mol-% und der entsprechende Anteil an Ethylenisophthalat 60 bis 5 Mol-%. Bevorzugt sind Copolyester, bei denen der Anteil an Ethylenterephthalat 50 bis 90 Mol-% und der entsprechende Anteil an Ethylenisophthalat 50 bis 10 Mol-% beträgt und ganz bevorzugt sind Copolyester, bei denen der Anteil an Ethylenterephthalat 60 bis 85 Mol-% und der entsprechende Anteil an Ethylenisophthalat 40 bis 15 Mol-% beträgt.

Die Gesamtdicke der Folie kann innerhalb weiter Grenzen variieren und richtet sich nach dem beabsichtigten Verwendungszweck. Die bevorzugten Ausführungsformen der erfindungsgemäßen Folie haben Gesamtdicken von 4 bis 500  $\mu\text{m}$ , wobei 8 bis 300  $\mu\text{m}$ , insbesondere 10 bis 300  $\mu\text{m}$ , bevorzugt sind. Die Dicke der gegebenenfalls vorhandenen Zwischenschicht/en beträgt im allgemeinen jeweils unabhängig voneinander 0,5 bis 15  $\mu\text{m}$ , wobei Zwischenschichtdicken von 1 bis 10  $\mu\text{m}$ , insbesondere 1 bis 8  $\mu\text{m}$ , bevorzugt sind. Die angegebenen Werte beziehen sich jeweils auf eine Zwischenschicht. Die Dicke der Deckschicht/en wird unabhängig von den anderen Schichten gewählt und liegt bevorzugt im Bereich von 0,1 bis 10  $\mu\text{m}$ , insbesondere 0,2 bis 5  $\mu\text{m}$ , vorzugsweise 0,3 bis 2  $\mu\text{m}$ , wobei beidseitig aufgetragene Deckschichten bezüglich Dicke und Zusammensetzung gleich oder verschieden sein können. Die Dicke der Basisschicht B ergibt sich entsprechend aus der Differenz von Gesamtdicke der Folie und der Dicke der aufgetragenen Deck- und Zwischenschicht/en und kann daher analog der Gesamtdicke innerhalb weiter Grenzen variieren.

Es war für die Fachwelt überraschend, dass sich die erfindungsgemäße weiße, siegelfähige Polyesterfolie aus einem Polyesterrohstoff mit wie oben angegeben vergleichsweise angereicherter Menge an DEG und/oder PEG und/oder IPA wirtschaftlich herstellen lässt und sich dann auch noch auf gängigen Tief-

ziehanlagen problemlos thermoformen lässt und dabei eine überraschend hohe Detailwiedergabe liefert.

Die Basisschicht B und die anderen Schichten können zusätzlich übliche Additive, wie Stabilisatoren, Antiblockmittel und andere Füller, enthalten. Sie werden zweckmäßig dem Polymer bzw. der Polymermischung bereits vor dem Aufschmelzen zugesetzt. Als Stabilisatoren werden beispielsweise Phosphorverbindungen, wie Phosphorsäure oder Phosphorsäureester, eingesetzt.

Typische Antiblockmittel (in diesem Zusammenhang auch als Pigmente bezeichnet) sind anorganische und/oder organische Partikeln, beispielsweise Calciumcarbonat, amorphe Kieselsäure,  $\text{SiO}_2$  in kolloidaler und in kettenartiger Form, Talk, Magnesiumcarbonat, Bariumcarbonat, Calciumsulfat, Bariumsulfat, Lithiumphosphat, Calciumphosphat, Magnesiumphosphat, Aluminiumoxid, Lithiumfluorid, Calcium-, Barium-, Zink- oder Mangan-Salze der eingesetzten Dicarbonsäuren, Ruß, Titandioxid, Kaolin oder vernetzte Polymerpartikel, z.B. Polystyrol- oder Acrylat-Partikeln.

Als Additive können auch Mischungen von zwei und mehreren verschiedenen Antiblockmitteln oder Mischungen von Antiblockmitteln gleicher Zusammensetzung, aber unterschiedlicher Partikelgröße gewählt werden. Die Partikeln können den Polymeren der einzelnen Schichten der Folie in den jeweils vorteilhaften Mengen, z.B. als glykolische Dispersion während der Polykondensation oder über Masterbathe bei der Extrusion zugegeben werden. Als besonders geeignet haben sich Pigmentkonzentrationen von 0 bis 25 Gew.-% erwiesen (bezogen auf das Gewicht der jeweiligen Schicht). Eine detaillierte Beschreibung der Antiblockmittel findet sich beispielsweise in der EP-A-0 602 964.

Zu Verbesserung des Weißgrades der Folie kann die Basisschicht B oder die anderen zusätzlichen Schichten eine weitere Pigmentierung enthalten. Hierbei hat es sich als besonders günstig erwiesen, als zusätzliche Additive Bariumsulfat in einer Korngröße im Bereich von 0,3 bis 0,8  $\mu\text{m}$ , vorzugsweise von 0,4 bis 0,7  $\mu\text{m}$

oder Titandioxid in einer Korngröße von 0,05 bis 0,3  $\mu\text{m}$ , gemessen jeweils nach der Sedigraphmethode, auszuwählen. Die Folie erhält hierdurch ein brillantes, weißes Aussehen. Die Menge an Bariumsulfat liegt im Bereich von 1 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise von 1 bis 20 Gew.-%, und ganz bevorzugt von 1 bis 15 Gew.-%.

5

Die Deckschichten können prinzipiell die erfindungsgemäßen oben angegebenen Additivkonzentrationen enthalten. Als besonders günstig haben sich aber die folgenden Ausführungsformen erwiesen:

10 Die niedrigste Siegelanspringtemperatur und die höchste Siegelnahtfestigkeit wird erreicht, wenn für die siegelfähige Deckschicht A die oben näher beschriebenen Copolymere verwendet werden. Die besten Siegeleigenschaften der Folie erhält man, wenn dem Copolymeren gar keine weiteren Additive, insbesondere keine anorganischen oder organischen Partikeln zugegeben werden. Für diesen Fall  
15 erhält man bei vorgegebenem Copolyester die niedrigste Siegelanspringtemperatur und die höchsten Siegelnahtfestigkeiten. Allerdings ist in diesem Fall das Handling der Folie nicht optimal, da die Oberfläche der siegelfähigen Deckschicht A zum Verblocken neigt.

20 Als besonders günstig hat es sich daher erwiesen, wenn zur Verbesserung des Handlings der Folie und der Verarbeitbarkeit die siegelfähige Deckschicht A modifiziert wird. Dies geschieht bevorzugt mit Hilfe von geeigneten Antiblockmitteln einer ausgewählten Größe, die der Siegelschicht in einer bestimmten Menge zugegeben werden und zwar derart, dass einerseits das Verblocken minimiert und  
25 andererseits die Siegeleigenschaften nur unmerklich verschlechtert werden. Diese gewünschte Eigenschaftskombination lässt sich erreichen, wenn die Topographie der siegelfähigen Deckschicht A bevorzugt durch den folgenden Satz von Parametern gekennzeichnet ist:

30 - Die Rauigkeit der siegelfähigen Deckschicht, ausgedrückt durch den  $R_a$ -Wert, sollte kleiner als 100 nm und bevorzugt  $\leq 80$  nm sein. Im anderen Fall

werden die Siegeleigenschaften im Sinne der vorliegenden Erfindung negativ beeinflusst.

- Der Messwert der Oberflächengasströmungszeit sollte bevorzugt im Bereich von 50 bis 4000 s liegen. Bei Werten unterhalb von 50 s werden die Siegeleigenschaften im Sinne der vorliegenden Erfindung negativ beeinflusst und bei Werten oberhalb von 4000 s wird das Handling der Folie schlecht.

Als besonders günstig für das Verarbeitungsverhalten hat es sich erwiesen, wenn die Folie zusätzlich eine Deckschicht C aufweist, deren Topographie bevorzugt durch den folgenden Satz von Parametern gekennzeichnet sein soll:

- Der Reibungskoeffizient (COF) dieser Seite gegen sich selbst sollte bevorzugt kleiner als 0,7 und besonders bevorzugt  $\leq 0,6$  sein. Andernfalls ist das Wickelverhalten und die Weiterverarbeitung der Folie weniger gut.
- Die Rauigkeit der nicht siegelfähigen Deckschicht, ausgedrückt durch den  $R_a$ -Wert, sollte  $\geq 30$  nm. Kleinere Werte als 30 nm haben negative Auswirkungen auf das Wickel- und Verarbeitungsverhalten der Folie.
- Der Messwert der Oberflächengasströmungszeit sollte günstig im Bereich unterhalb von 500 s liegen. Bei Werten ab 500 s wird nämlich das Wickel- und das Verarbeitungsverhalten der Folie negativ beeinflusst.

Zur Erzielung dieses besonders günstigen Eigenschaftsprofils der Folie weist die Folie eine Deckschicht C auf, die eine größere Menge an Pigmenten (d.h. höhere Pigmentkonzentration) als die Deckschicht A enthält. Die Pigmentkonzentration in dieser zweiten Deckschicht C liegt zwischen 0,1 und 10 Gew.-%, vorteilhaft zwischen 0,12 und 8 Gew.-% und insbesondere zwischen 0,15 und 6 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht dieser Schicht. Die andere, der Deckschicht C gegenüberliegende, siegelfähige Deckschicht A ist dagegen mit einer geringeren Menge an inerten Pigmenten gefüllt. Die Konzentration der inerten Partikeln innerhalb der Schicht A liegt günstig zwischen 0,01 und 0,3 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 0,015 und 0,2 Gew.-% und insbesondere zwischen 0,02 und 0,1 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht dieser Schicht.

Die Erfindung betrifft weiterhin ein Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen weißen, siegelfähigen Polyesterfolie nach dem an sich bekannten Extrusions- oder Koextrusionsverfahren.

5 Im Rahmen dieses Verfahrens wird so vorgegangen, dass die den einzelnen Schichten der Folie entsprechenden Schmelzen durch eine Flachdüse koextrudiert werden, die so erhaltene Folie zur Verfestigung auf einer oder mehreren Walze/n abgezogen wird, die Folie anschließend biaxial gestreckt (orientiert), die biaxial gestreckte Folie thermofixiert und gegebenenfalls an einer zur Behandlung  
10 vorgesehenen Oberflächenschicht corona- oder flammbehandelt und dann aufgewickelt wird.

Die biaxiale Streckung wird im allgemeinen sequentiell durchgeführt. Dabei wird vorzugsweise erst in Längsrichtung (d.h. in Maschinenrichtung, = MD-Richtung) und  
15 anschließend in Querrichtung (d.h. senkrecht zur Maschinenrichtung, = TD-Richtung) gestreckt. Gegebenenfalls kann nach der Querstreckung noch eine weitere Längsstreckung erfolgen. Das Strecken führt zu einer räumlichen Orientierung der Molekülketten des Polyesters. Das Strecken in Längsrichtung erfolgt bevorzugt mit Hilfe mehrerer entsprechend dem angestrebten Streck-  
20 verhältnis mit unterschiedlichen Winkelgeschwindigkeiten rotierender Walzen. Zum Querstrecken benutzt man allgemein einen entsprechenden Kluppenrahmen.

Die Temperatur, bei der die Streckung durchgeführt wird, kann in einem relativ großen Fenster variieren und richtet sich nach den gewünschten Eigenschaften der  
25 Folie. Im allgemeinen wird die Längsstreckung bei 80 bis 130 °C und die Querstreckung bei 90 bis 150 °C durchgeführt. Das Längsstreckverhältnis liegt allgemein im Bereich von 2,5:1 bis 6:1, bevorzugt von 3:1 bis 5,5:1. Das Querstreckverhältnis liegt allgemein im Bereich von 3,0:1 bis 5,0:1, bevorzugt von 3,5:1 bis 4,5:1.

30

Die Streckung kann auch in einem Simultanstreckrahmen (Simultanstreckung) erfolgen, wobei die Anzahl der Streckschritte und die Abfolge (längs/quer) nicht von

entscheidender Bedeutung für das Eigenschaftsbild der Folie ist. Günstig sind jedoch hier Strecktemperaturen  $\leq 125$  °C und besonders günstig  $\leq 115$  °C. Die Streckverhältnisse entsprechen denen im herkömmlichen sequenziellen Prozess.

- 5 Bei der nachfolgenden Thermofixierung wird die Folie über einen Zeitraum von etwa 0,1 bis 10 s bei einer Temperatur im Bereich von 150 bis 250 °C gehalten. Anschließend wird die Folie in üblicher Weise aufgewickelt.

10 Zur Einstellung weiterer gewünschter Eigenschaften kann die Folie chemisch behandelt werden oder auch corona- bzw. flammbehandelt sein. Die Behandlungsintensität ist so einzustellen, dass die Oberflächenspannung der Folie im allgemeinen über 45 mN/m liegt.

15 Ebenso kann die Folie zur Einstellung weiterer Eigenschaften beschichtet werden. Typische Beschichtungen sind haftvermittelnde, antistatisch, schlupfverbessernd oder dehäsiv wirkende Schichten. Es bietet sich an, diese zusätzlichen Schichten nach der Technik des so genannten »in-line coating« mittels wässriger Dispersionen nach der Längsstreckung und vor der Querstreckung auf die Folie aufzubringen.

20 Überraschend war, dass sich die erfindungsgemäße Folie ohne weitere Vorbehandlung, insbesondere ohne einen vorgeschalteten Trockenschritt, thermoformen lässt, so dass komplexe Formteile daraus hergestellt werden können.

25 Das Thermoformen umfasst in aller Regel die Schritte Vortrocknen, Aufheizen, Formen, Abkühlen, Entformen, Tempern und Abkühlen. Beim Thermoformprozess wurde festgestellt, dass sich die erfindungsgemäßen Folien ohne den Schritt des Vortrocknens überraschend gut formen lassen. Dieser Vorteil im Vergleich zu anderen thermoformbaren Folien aus Polycarbonat oder Polymethylmethacrylat, bei denen in Abhängigkeit von der Dicke der Folie Vorbehandlungen bei Temperaturen von 100 bis 120 °C über Zeiten im Bereich von 10 bis 15 Stunden nötig  
30 sind, reduziert drastisch die Kosten für die Thermoformung bei Einsatz der

erfindungsgemäßen Folie und macht aus diesem Grund die erfindungsgemäße thermoformbare Folie wirtschaftlich ganz besonders attraktiv.

Für das Thermoformen der erfindungsgemäßen, weißen, siegelfähigen Polyesterfolie wurden insbesondere folgende besonders geeignete Verfahrensparameter gefunden:

	<b>Verfahrensschritt</b>	<b>Erfindungsgemäße Folie</b>
10	Vortrocknen	Nicht erforderlich
	Temperatur der Form [°C]	100 bis 160
	Aufheizzeit	≤ 5 sec pro 10 µm Foliendicke
	Temperatur der Folie beim Verformen [°C]	160 bis 200
15	möglicher Verformfaktor	1,5 bis 2,0
	Detailwiedergabe	gut
	Schrumpf (Schwindung)	≤ 1,5 %

Der besondere Vorteil der erfindungsgemäßen Folie drückt sich durch einen hohen Weißgrad bei gleichzeitig hervorragender Siegelfähigkeit aus. Der Weißgrad der Folie beträgt mehr als 70 %, bevorzugt mehr als 75 % und besonders bevorzugt mehr als 80 %. Die Opazität der erfindungsgemäßen Folie beträgt mehr als 55 %, bevorzugt mehr als 60 % und besonders bevorzugt mehr als 65 %.

Besonders hervorzuheben ist aber der wirtschaftlich bedeutende und besonders überraschende Vorteil, dass nämlich bei der Herstellung der Folie immanent anfallendes Verschnittmaterial als Regenerat in einer Menge im Bereich von 10 bis 70 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der Folie, wieder für die Folienherstellung verwendet werden kann, ohne dass dabei die physikalischen Eigenschaften der so hergestellten Folie nennenswert negativ beeinflusst werden. Insbesondere wird durch das Regenerat (im Wesentlichen aus Polyesterrohstoff

und COC bestehend) die Folie nicht undefiniert in der Farbe verändert, was bei den Folien nach dem Stand der Technik stets der Fall ist.

5 Die Folie eignet sich auf Grund ihres sehr guten Handlings und auf Grund ihrer sehr guten Verarbeitungseigenschaften insbesondere für die Verarbeitung auf schnelllaufenden Maschinen.

10 Die erfindungsgemäße Folie eignet sich hervorragend zur Herstellung von thermogeformten Verpackungen für licht- und/oder luftempfindliche Nahrungs- und Genussmittel. Daneben ist sie auch hervorragend für den Einsatz im industriellen Bereich, z.B. bei der Herstellung von Prägefolien oder als Etikettenfolie, geeignet. Daneben ist die Folie natürlich besonders geeignet für die Herstellung von thermogeformten Formteilen aller Art oder für Bildaufzeichnungspapiere, Druckbögen, magnetische Aufzeichnungskarten, um nur einige mögliche  
15 Anwendungen zu nennen.

Darüber hinaus eignet sich die Folie auf Grund ihrer hervorragenden Eigenschaftskombinationen für eine Vielzahl verschiedener Anwendungen, beispielsweise für Innenraumverkleidungen, für den Messebau und Messeartikel, als Displays, für  
20 Schilder, für Schutzverglasungen von Maschinen und Fahrzeugen, im Beleuchtungssektor, im Laden- und Regalbau, als Werbeartikel und als Kaschiermedium.

Die nachstehende Tabelle (Tabelle 1) fasst die wichtigsten erfindungsgemäßen Folieneigenschaften noch einmal auf einen Blick zusammen.

Tabelle 1: Eigenschaften; erfindungsgemäßer Bereich

	Erfindungsgemäßer Bereich	bevorzugt	besonders bevorzugt	Einheit	Messmethode
--	---------------------------	-----------	---------------------	---------	-------------

Deckschicht A

Siegelspringtemp.	< 200	< 180	< 160	°C	intern
Siegelnahfestigkeit	> 0,8	> 1	> 1,2	N/15 mm	intern
Mittlere Rauigkeit R <sub>a</sub>	< 100	< 80	< 60	nm	DIN 4768, Cut-off von 0,25 mm
Messwert für die Ofi.-gasströmungszeit	50 bis 4000	200 - 3500	500 - 3000	sec	intern
Glanz, 60 °	> 50	> 70	> 90		DIN 67 530

Deckschicht C bzw. Basisschicht B, wenn Außenschicht

COF	< 0,7	< 0,6	< 0,40		DIN 53 375
Mittlere Rauigkeit R <sub>a</sub>	> 30	> 45	> 50	nm	DIN 4768, Cut-off von 0,25 mm
Messwert für die Ofi.-gasströmungszeit	< 500	< 400	< 300	sec	intern
Glanz, 60 °	> 50	> 70	> 90		

weitere Folieneigenschaften

Weißgrad	> 70	> 75	> 80	%	Berger
Opazität	> 55	> 60	> 65	%	DIN 53 146

Zur Charakterisierung der Rohstoffe und der Folien wurden im Rahmen der vorliegenden Erfindung die folgenden Messmethoden benutzt:

#### **DEG/PEG/IPA-Gehalt**

- 5 Die Menge an DEG, PEG und/oder IPA im Polyester wird nach Verseifung in methanolischer KOH und anschließender Neutralisierung mit wässriger Salzsäure gaschromatographisch bestimmt.

#### **SV-Wert (standard viscosity)**

- 10 Die Standardviskosität SV (DCE) wird, angelehnt an DIN 53726, in Dichloressigsäure gemessen.

Die intrinsische Viskosität (IV) berechnet sich wie folgt aus der Standardviskosität

$$IV (DCE) = 6,67 \cdot 10^{-4} SV (DCE) + 0,118$$

- 15 **Reibung (COF)**

Die Reibung wurde nach DIN 53 375 bestimmt. Die Gleitreibungszahl wurde 14 Tage nach der Produktion gemessen.

#### **Oberflächenspannung**

- 20 Die Oberflächenspannung wurde mittels der sogenannten Tintenmethode (DIN 53 364) bestimmt.

#### **Rauigkeit**

- 25 Die Rauigkeit  $R_a$  der Folie wurde nach DIN 4768 bei einem Cut-off von 0,25 mm bestimmt.

#### **Weißgrad und Opazität**

- Die Bestimmung des Weißgrades und der Opazität erfolgt mit Hilfe des elektrischen Remissionsphotometers "ELREPHO" der Firma Zeiss, Oberkochen (DE),  
30 Normlichtart C, 2° Normalbeobachter. Die Opazität wird nach DIN 53 146 bestimmt.  
Der Weißgrad wird als  $WG = RY + 3RZ - 3RX$  definiert.

WG = Weißgrad, RY, RZ, RX = entsprechende Reflexionsfaktoren bei Einsatz des Y-, Z- und X-Farbmessfilters. Als Weißstandard wird ein Pressling aus Bariumsulfat (DIN 5033, Teil 9) verwendet. Eine ausführliche Beschreibung ist z.B. in Hansl Loos "Farbmessung", Verlag Beruf und Schule, Itzehoe (1989), beschrieben.

5

### **Lichtdurchlässigkeit**

Die Lichtdurchlässigkeit wird in Anlehnung an ASTM-D 1033-77 gemessen.

### **Glanz**

10 Der Glanz wurde nach DIN 67 530 bei einem Messwinkel von 60° bestimmt. Gemessen wurde der Reflektorwert als optische Kenngröße für die Oberfläche einer Folie. Ein Lichtstrahl trifft unter dem eingestellten Einstrahlwinkel auf die ebene Prüffläche und wird von dieser reflektiert bzw. gestreut. Die auf den photoelektronischen Empfänger auffallenden Lichtstrahlen werden als proportionale  
15 elektrische Größe angezeigt. Der Messwert ist dimensionslos und muß mit dem Einstrahlwinkel angegeben werden.

### **Glasübergangstemperatur $T_g$**

Die Glasübergangstemperatur  $T_g$  wurde anhand von Folienproben mit Hilfe der  
20 DSC (Differential Scanning Calorimetry) bestimmt (DIN 73 765). Verwendet wurde ein DSC 1090 der Fa. DuPont. Die Aufheizgeschwindigkeit betrug 20 K/min und die Einwaage ca. 12 mg. Im ersten Aufheizvorgang wurde der Glasübergang ermittelt. Die Proben zeigten vielfach eine Enthalpielaxation (ein Peak) zu Beginn des stufenförmigen Glasübergangs. Als  $T_g$  wurde die Temperatur genommen, bei der  
25 die stufenförmige Veränderung der Wärmekapazität - unabhängig von der peakförmigen Enthalpielaxation - ihre halbe Höhe im ersten Aufheizvorgang erreichte. In allen Fällen wurde nur eine einzige Glasübergangsstufe im Thermogramm beim ersten Aufheizen beobachtet.

### **Siegelanspringtemperatur (Mindestsiegeltemperatur)**

30 Mit dem Siegelgerät HSG/ET der Firma Brugger werden heißgesiegelte Proben (Siegelnaht 20 mm x 100 mm) hergestellt, wobei die Folie bei unterschiedlichen

Temperaturen mit Hilfe zweier beheizter Siegelbacken bei einem Siegeldruck von 2 bar und einer Siegeldauer von 0,5 s gesiegelt wird. Aus den gesiegelten Proben wurden Prüfstreifen von 15 mm Breite geschnitten. Die T-Siegelnahtfestigkeit wurde wie bei der Bestimmung der Siegelnahtfestigkeit gemessen. Die Siegelanspringtemperatur ist die Temperatur, bei der eine Siegelnahtfestigkeit von mindestens 0,5 N/15 mm erreicht wird.

### **Siegelnahtfestigkeit**

Zur Bestimmung der Siegelnahtfestigkeit wurden zwei 15 mm breite Folienstreifen übereinandergelegt und bei 130 °C, einer Siegelzeit von 0,5 s und einem Siegeldruck von 2 bar (Gerät: Brugger Typ NDS, einseitig beheizte Siegelbacke) versiegelt. Die Siegelnahtfestigkeit wurde nach der T-Peel-Methode bestimmt.

### **Oberflächengasströmungszeit**

Das Prinzip des Messverfahrens basiert auf der Luftströmung zwischen einer Folienseite und einer glatten Silizium-Wafer-Platte. Die Luft strömt von der Umgebung in einen evakuierten Raum, wobei die Grenzfläche zwischen Folie und Silizium-Wafer-Platte als Strömungswiderstand dient.

Eine runde Folienprobe wird auf einer Silizium-Wafer-Platte, in deren Mitte eine Bohrung die Verbindung zu dem Rezipienten gewährleistet, gelegt. Der Rezipient wird auf einen Druck kleiner 0,1 mbar evakuiert. Bestimmt wird die Zeit in Sekunden, die die Luft benötigt, um in dem Rezipienten einen Druckanstieg von 56 mbar zu bewirken.

25

Messbedingungen:

	Messfläche	45,1 cm <sup>2</sup>
	Anpressgewicht	1276 g
	Lufttemperatur	23 °C
30	Luftfeuchte	50 % relative Feuchte
	Gassammelvolumen	1,2 cm <sup>3</sup>
	Druckintervall	56 mbar

**Beispiel 1**

Nach der Koextrusions-Technologie wurde eine 23 µm dicke mehrschichtige Folie mit der Schichtreihenfolge A-B hergestellt, wobei B die Basisschicht und A die Deckschicht darstellte. Die Basisschicht B war 21,5 µm dick und die Deckschicht A 1,5 µm.

Chips aus Polyethylenterephthalat, die eine Menge von 1,25 Gew.-% an DEG enthielten, (hergestellt über das Umesterungsverfahren mit Mn als Umesterungskatalysator, Mn-Konzentration: 100 ppm) wurden bei 150 °C auf eine Restfeuchte von unterhalb 100 ppm getrocknet und dem Extruder für die Basisschicht B zugeführt. Daneben wurden Chips aus Cycloolefincopolymeren (COC) der Fa. Ticona: ®Topas 6015 (COC bestehend aus 2-Norbornen und Ethylen, siehe auch W. Hatke: Folien aus COC, Kunststoffe 87 (1997) 1, S. 58-62) mit einer Glasübergangstemperatur  $T_g$  von 160 °C ebenfalls dem Extruder für die Basisschicht B zugeführt. Der mengenmäßige Anteil an COC in der Basisschicht B betrug 10 Gew.-%.

Der Deckschicht A wurden 97 Gew.-% Chips eines linearen Polyesters zugeführt, der aus einem amorphen Copolyester mit 78 Mol-% Ethylenterephthalat und 22 Mol-% Ethylenisophthalat bestand (hergestellt über das Umesterungsverfahren mit Mn als Umesterungskatalysator, Mn-Konzentration: 100 ppm). Der Copolyester wurde bei einer Temperatur von 100 °C auf eine Restfeuchte von unterhalb 200 ppm getrocknet und dem Extruder für die siegelfähige Deckschicht A zugeführt. Außerdem wurden dem Extruder 3 Gew.-% Chips eines Masterbatches zugeführt, das neben dem Polyester mit einem Mengenanteil von 1,25 Gew.-% an DEG zusätzlich 10.000 ppm Siliciumdioxid (®Sylobloc, Grace, Deutschland) und 12500 ppm Siliciumdioxid (®Aerosil, pyrogenes SiO<sub>2</sub> der Fa. Degussa) enthielt. Auch diese Chips wurden bei 100 °C auf eine Restfeuchte von unterhalb 200 ppm getrocknet.

Es wurde durch Koextrusion und anschließende stufenweise Orientierung in Längs- und Querrichtung eine weiße, opake zweischichtige Folie mit einer Gesamtdicke von 23 µm hergestellt.

Basisschicht B, Mischung aus:

90,0 Gew.-% Polyethylterephthalat-Homopolymer mit 1,25 Gew.-% DEG  
(RT49, Kosa, Deutschland)

10,0 Gew.-% Cycloolefincopolymeren (COC) der Fa. Ticona, <sup>®</sup>Topas 6015

5

Die Herstellungsbedingungen in den einzelnen Verfahrensschritten waren:

10	Extrusion:	Temperaturen der Basis- und der Deckschicht:	280 °C
		Temperatur der Abzugswalze:	30 °C
10	Längsstreckung:	Temperatur:	80 - 125 °C
		Längsstreckverhältnis:	4,2
	Querstreckung:	Temperatur:	80 - 135 °C
		Querstreckverhältnis:	4,0
15	Fixierung:	Temperatur:	230 °C
		Dauer:	3 s

Diese Verfahrensparameter gelten für alle Beispiele (ohne Vergleichsbeispiele).

Die Folie hatte die geforderten guten Eigenschaften und zeigte das gewünschte Handling und das gewünschte Verarbeitungsverhalten. Die erzielten Eigenschaften derart hergestellter Folien sind in den Tabellen 2 und 3 dargestellt.

20

### Beispiel 2

Im Vergleich zu Beispiel 1 wurde jetzt in die Basisschicht B 50 Gew.-% Regenerat dazugegeben. Die Menge an COC in der damit hergestellten Basisschicht B betrug wiederum 10 Gew.-%. Die Verfahrensparameter wurden im Vergleich zu Beispiel 1 nicht geändert. Die Deckschicht A blieb unverändert. Es wurde die Gelbverfärbung der Folie visuell beobachtet. Anhand der Tabellen 2 und 3 sieht man, dass kaum eine Gelbverfärbung der Folie sichtbar geworden ist.

25

30

Basisschicht B, Mischung aus:

- 44,7 Gew.-% Polyethylenterephthalat-Homopolymer mit 1,25 Gew.-% DEG  
und mit einem SV-Wert von 800
- 5 50,0 Gew.-% Regenerat (Polymeranteil: 90,7 Gew.-% Polyester inklusive  
Isophthalat + 9,3 Gew.-% Topas 6015)
- 5,3 Gew.-% Cycloolefincopolymeren (COC) der Fa. Ticona, ®Topas 6015

### Beispiel 3

Die Basisschicht B wurde aufgebaut wie in Beispiel 1 war aber nur 40,5 µm dick.  
10 Die siegelfähige Deckschicht A hatte eine Dicke von 2,5 µm. Zusätzlich wurde eine  
dritte 2,0 µm dicke pigmentierte Deckschicht C mit koextrudiert (Trocknung wie  
Deckschicht A).

Diese Deckschicht C enthielt:

- 15 88 Gew.-% Polyethylenterephthalat-Homopolymer mit 1,25 Gew.-% DEG und mit  
einem SV-Wert von 800
- 12 Gew.-% Masterbatch aus Polyester mit 1,25 Gew.-% DEG und mit 10.000  
ppm Siliciumdioxid (®Sylobloc, Grace, Deutschland) und 12500 ppm  
Siliciumdioxid (®Aerosil, pyrogenes SiO<sub>2</sub> der Fa. Degussa)

20

Die sonstigen Prozessbedingungen entsprachen Beispiel 1.

Die Folie wies die gleichen guten Eigenschaften hinsichtlich Weißgrad und  
Siegelfähigkeit auf wie die Folie aus Beispiel 1 und 2, zeigte aber ein noch  
25 besseres Verarbeitungsverhalten. Die erzielten Eigenschaften derart hergestellter  
Folien sind in den Tabellen 2 und 3 dargestellt.

### Beispiel 4

Es wurde verfahren wie in Beispiel 3 aber der Basisschicht B wurden 50 Gew.-%  
30 eigenes Regenerat dazugegeben. Die Menge an COC in der Basisschicht B betrug  
wiederum 10 Gew.-%. Die Verfahrensparameter würden im Vergleich zu Beispiel  
1 nicht geändert. Es wurde die Gelbverfärbung der Folie visuell beobachtet. Die

Tabellen 2 und 3 zeigen, dass kaum eine Gelbverfärbung der Folie sichtbar geworden ist.

### Vergleichsbeispiel 1

5 Es wurde eine Folie mit einem Aufbau wie in Beispiel 3 beschrieben hergestellt. Der für alle Schichten A, B und C eingesetzte Polyesterrohstoff hatte aber nur einen Mengenanteil von 0,45 Gew.-% an DEG. Die Eigenschaften der Folie sind in den Tabellen 2 und 3 beschrieben. Die Thermoformbarkeit dieser Folie war nicht mehr ausreichend.

10

### Vergleichsbeispiel 2

Es wurde Beispiel 1 aus der EP-A-0 300 060 nachgearbeitet. In Abänderung des Beispiels wurde die Folie mit einer siegelfähigen Deckschicht A ausgerüstet, die eine Dicke von 2,0 µm besaß, und es wurden für die Basisschicht zusätzlich 50 Gew.-% Regenerat mitverarbeitet. Anhand der Tabelle 2 sieht man, dass eine deutliche Gelbverfärbung der Folie sichtbar geworden ist.

15

Basisschicht B, Mischung aus:

20

- |             |  |
|-------------|--|
| 45,0 Gew.-% | Polyethylenterephthalat-Homopolymer mit 0,6 Gew.-% DEG und mit einem SV-Wert von 800 |
| 50,0 Gew.-% | Eigenregenerat (95 Gew.-% Polyester + 5 Gew.-% Polypropylen)                         |
| 5,0 Gew.-%  | Polypropylen.  |

Tabelle 2

Bei- spiel	Folien- dicke µm	Folien- aufbau	Schicht- dikken µm			Partikeln in den Schichten			mittlerer Partikel-Durch- messer in Schichten µm			Pigmentkonzentrationen ppm		
			A	B	C	A	B	C	A	B	C	A	B	C
B 1	23	AB	1,5	21,5	-	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600	kein		2,5 0,04			300 375	0	
B 2	23	AB	1,5	21,5	-	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600	etwas über Regenerat		2,5 0,04			300 375	< 100 ppm	1200 1500
B 3	40,5	ABC	1,5	36	1,5	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600	kein	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600	2,5 0,04			300 375	0	1200 1500
B 4	40,5	ABC	1,5	36	1,5	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600	etwas über Regenerat	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600	2,5 0,04			300 375	< 100 ppm	1200 1500

Tabelle 3

Bei- spiel	Dicke der Folie  µm	Schicht- aufbau	Additiv zum Polyester- rohstoff	Konzen- tration des Additivs in Basis- schicht %	Glasüber- gangs- temperatur des Additivs °C	Weiß- grad %	Opazität	Beurteilung des Gelbgrades der Folie	Siegel- anspring- temperatur (Seite A gegen A) °C	Siegel- naht- festig- keit (Seite A gegen A) N/15mm	Thermo- formbar- keit	Mittlere Rauigkeit R <sub>a</sub>  nm	
												A- Seite	B- Seite
B 1	23	AB	COC	10	170	75	72	++	101	1,9	gut	25	118
B 2	23	AB	COC	10	170	74	74	+	99	2,1	gut	27	120
B 3	40,5	ABC	COC	10	170	71	71	++	97	2,0	gut	26	64
B 4	40,5	ABC	COC	10	170	72	70	+	99	2,1	gut	28	66
VB 1	40,5	ABC	COC	10	170	82	80	0	98	3,1	schlecht	25	66
VB 2	100	AB	PP	10	-10	88	80	-	98	2,8	schlecht	27	182

Zeichenerklärung für den Gelbgrad der produzierten Folien:

- ++ : keine Gelbfärbung ist zu erkennen
- + : geringe Gelbfärbung ist zu erkennen
- : deutliche Gelbfärbung ist zu erkennen

## Patentansprüche

1. Weiße, siegelfähige, biaxial orientierte, thermoformbare und koextrudierte Polyesterfolie umfassend mindestens eine Basisschicht B und mindestens eine siegelfähige Deckschicht A, beide aus thermoplastischem Polyester, dadurch gekennzeichnet, dass zumindest die Basisschicht B neben Polyesterrohstoff zusätzlich ein Cycloolefincopolymer (COC) in einer Menge im Bereich von 2 bis 60 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht der Basisschicht B enthält, wobei die Glasübergangstemperatur  $T_g$  des Cycloolefincopolymeren (COC) im Bereich von 70 bis 270 °C liegt, und dass der Polyesterrohstoff eine erhöhte Menge an Diethylenglykol und/oder Polyethylenglykol und/oder Isophthalsäure enthält.
2. Weiße, siegelfähige Polyesterfolie nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Cycloolefincopolymer (COC) Polynorbornen, Polydimethyloctahydronaphthalin, Polycyclopenten oder Poly(5-methyl)norbornen enthält und eine Glasübergangstemperatur  $T_g$  im Bereich von 90 bis 250 °C besitzt.
3. Weiße, siegelfähige Polyesterfolie nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass das COC eine Glasübergangstemperatur  $T_g$  im Bereich von 110 bis 220 °C besitzt und dass der Polyesterrohstoff für die Basisschicht B und für die Deckschicht A oder für weitere Deckschichten Diethylenglykol in einer Menge von  $\geq 0,5$  Gew.-% enthält, vorzugsweise von  $\geq 1,0$  Gew.-%, besonders bevorzugt von  $\geq 1,2$  Gew.-%, und/oder Polyethylenglykol in einer Menge von  $\geq 0,5$  Gew.-%, vorzugsweise  $\geq 1,0$  Gew.-%, insbesondere von  $\geq 1,2$  Gew.-%, und/oder Isophthalsäure in einer Menge im Bereich von 3 bis 10 Gew.-%.

4. Weiße, siegelfähige Polyesterfolie nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass die Folie einen Weißgrad von mehr als 70 % und eine Opazität von mehr als 55 % aufweist.
5. Weiße, siegelfähige Polyesterfolie nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass die siegelfähige Deckschicht A ein Polyester Copolymer enthält, das Ethylenterephthalat-Einheiten in einer Menge im Bereich von 40 bis 95 Mol-% und Ethylenisophthalat-Einheiten in einer Menge von 60 bis 5 Mol-% enthält, bezogen auf die Gesamtmenge an Carbonsäureeinheiten, und dass die anderen Monomereinheiten aus aliphatischen, cycloaliphatischen oder aromatischen Diolen stammen.
6. Weiße, siegelfähige Polyesterfolie nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass die siegelfähige Deckschicht A eine Dicke im Bereich von 0,2 bis 5,0  $\mu\text{m}$  besitzt und eine Siegelanspringtemperatur von  $\leq 200$  °C aufweist.
7. Weiße, siegelfähige Polyesterfolie nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass die Folie eine Gesamtdicke im Bereich von 4 bis 500  $\mu\text{m}$  besitzt, vorzugsweise von 8 bis 300  $\mu\text{m}$ , insbesondere von 10 bis 300  $\mu\text{m}$ .
8. Weiße, siegelfähige Polyesterfolie nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass die Rauigkeit der siegelfähigen Deckschicht A, ausgedrückt durch ihren  $R_a$ -Wert, kleiner/gleich 100 nm, bevorzugt  $\leq 80$  nm, ist und dass ihr Messwert der Oberflächengasströmungszeit im Bereich von 50 bis 4000 s liegt.
9. Weiße, siegelfähige Polyesterfolie nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass zwischen der COC-haltigen Basisschicht B und der siegelfähigen Deckschicht A eine Zwischenschicht angeordnet ist.

10. Weiße, siegelfähige Polyesterfolie nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, dass sie eine weitere Deckschicht C enthält, deren Reibungskoeffizient (COF) gegen sich selbst kleiner als 0,7, bevorzugt  $\leq 0,6$  ist, deren Rauigkeit, ausgedrückt durch ihren  $R_a$ -Wert,  $\geq 30$  nm ist und deren Messwert der Oberflächengasströmungszeit im Bereich unterhalb von 500 s liegt.
11. Weiße, siegelfähige Polyesterfolie nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, dass die Deckschicht C eine Menge an Pigmenten im Bereich zwischen 0,1 und 10 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 0,12 und 8 Gew.-%, insbesondere zwischen 0,15 und 6 Gew.-%, enthält.
12. Verfahren zur Herstellung einer Polyesterfolie nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Polymere bzw. die Polymermischung der einzelnen Schichten in getrennten Extrudern komprimiert und verflüssigt werden, die Schmelzen dann gleichzeitig durch eine Flachdüse (Breitschlitzdüse) gepresst werden, die ausgepresste mehrschichtige Folie auf einer oder mehreren Abzugswalzen abgezogen wird, die so erhaltene Vorfolie anschließend biaxial gestreckt und thermofixiert wird und gegebenenfalls an einer zur Behandlung vorgesehenen Oberflächensicht corona- oder flammbehandelt wird.
13. Verfahren nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, dass bei der Herstellung der Folie immanent anfallendes Verschnittmaterial als Regenerat in einer Menge im Bereich von 10 bis 70 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der Folie, wieder für die Folienherstellung eingesetzt wird.
14. Verwendung einer weißen, siegelfähigen Folie nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 11 zur Herstellung von thermogeformten Verpackungen für licht- und/oder luftempfindliche Nahrungs- und Genussmittel oder für den

Einsatz im industriellen Bereich bei der Herstellung von Prägefolien oder als Etikettenfolie oder für die Herstellung von thermogeformten Formteilen aller Art oder für Bildaufzeichnungspapiere, Druckbögen oder magnetische Aufzeichnungskarten.

15. Verwendung einer weißen, siegelfähigen Polyesterfolie nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 11 als Innenraumverkleidung, für den Messebau und Messeartikel, als Display, für Schilder, im Beleuchtungssektor, im Laden- und Regalbau, als Werbeartikel, als Kaschiermedium, für Abdeckungen von Materialien, oder in Elektroanwendungen, insbesondere auf schnelllaufenden Maschinen.

-----