(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2024-0088754
(43) 공개일자 2024년06월20일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C09J 7/25 (2018.01) *B32B 27/18* (2006.01)
B32B 27/36 (2006.01) *C08K 3/013* (2018.01)
C08K 5/20 (2006.01) *C08L 67/02* (2006.01)
C08L 67/04 (2006.01) *C09J 133/00* (2006.01)
C09J 175/04 (2006.01) *C09J 7/29* (2018.01)
C09J 7/30 (2018.01)
(52) CPC특허분류
C09J 7/255 (2018.01)
B32B 27/18 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2024-7010214
(22) 출원일자(국제) 2022년09월16일
심사청구일자 없음
(85) 번역문제출일자 2024년03월27일
(86) 국제출원번호 PCT/EP2022/075722
(87) 국제공개번호 WO 2023/052144
국제공개일자 2023년04월06일
(30) 우선권주장
21199291.2 2021년09월28일
유럽특허청(EPO)(EP)

(71) 출원인
소시에떼 데 프로듀이 네슬레 소시에떼아노님
스위스 1800 브베 아브뉘 네슬레 55
(72) 발명자
노르드끄비스뜨 다비드
스위스 1112 에쉬쉔 슈맹 데 제네브리에 7
돌레악 프레데릭
프랑스 25160 보 에 샹떼그뤼 뤼 뒤 프레 장 5
크루아지에 엠마뉘엘
스위스 1027 로네 슈맹 데 비뉴 12
(74) 대리인
특허법인코리아나

전체 청구항 수 : 총 11 항

(54) 발명의 명칭 **생분해성 라미네이팅 필름 및 이로부터 제조된 컨테이너**

(57) 요 약

층 구조 A/B를 갖는 생분해성 라미네이팅 필름으로서, 0.5 내지 7 μm 두께의 층 A는 폴리우레탄 또는 아크릴레이트 접착제를 포함하고; 5 내지 150 μm 두께의 층 B는 지방족 폴리에스테르 및/또는 지방족-방향족 폴리에스테르를 포함하고, 지방족-방향족 폴리에스테르는 하기와 같이 구성되는, 생분해성 라미네이팅 필름: b1-i) 성분 b1-i 및 b1-ii를 기준으로 30 내지 70 mol%의 C6-C18 지방족 다이카복실산; b1-ii) 성분 b1-i 및 b1-ii를 기준으로 30 내지 70 mol%의 방향족 다이카복실산; b1-iii) 성분 b1-i 및 b1-ii를 기준으로 98 내지 100 mol%의 1,3-프로판다이올 또는 1,4-부탄다이올; b1-iv) 성분 b1-i 내지 b1-iii을 기준으로 0 내지 2 중량%의 사슬 연장제 및/또는 분지화제. 본 발명은 추가로 기재된 바와 같은 기재 및 생분해성 라미네이팅 필름 코팅을 포함하는 식품 및/또는 음료 컨테이너에 관한 것이다.

(52) CPC특허분류
B32B 27/36 (2013.01)
C08K 3/013 (2018.01)
C08K 5/20 (2013.01)
C08L 67/02 (2013.01)
C08L 67/04 (2013.01)
C09J 133/00 (2013.01)
C09J 175/04 (2013.01)
C09J 7/29 (2021.08)
C09J 7/30 (2018.01)

명 세 서

청구범위

청구항 1

층 구조 A/B를 갖는 생분해성 라미네이팅 필름으로서, 0.5 내지 7 μm 두께의 층 A는 폴리우레탄 또는 아크릴레이트 접착제를 포함하고; 5 내지 150 μm 두께의 층 B는 지방족 폴리에스테르 및/또는 지방족-방향족 폴리에스테르를 포함하고, 상기 지방족-방향족 폴리에스테르는 하기와 같이 구성되는, 생분해성 라미네이팅 필름:

b1-i) 성분들 b1-i 및 b1-ii를 기준으로 30 내지 70 mol%의 C6-C18 지방족 다이카복실산;

b1-ii) 성분들 b1-i 및 b1-ii를 기준으로 30 내지 70 mol%의 방향족 다이카복실산;

b1-iii) 성분들 b1-i 및 b1-ii를 기준으로 98 내지 100 mol%의 1,3-프로판다이올 또는 1,4-부탄다이올;

b1-iv) 성분들 b1-i 내지 b1-iii을 기준으로 0 내지 2 중량%의 사슬 연장제 및/또는 분지화제.

청구항 2

제1항에 있어서, 층 B가

b1) 폴리부틸렌 아디페이트-코테레프탈레이트, 폴리부틸렌 아젤레이트-코테레프탈레이트 및 폴리부틸렌 세바케이트-코테레프탈레이트로 구성되는 군으로부터 선택된, 60 내지 100 중량%의 지방족-방향족 폴리에스테르;

b2) 0 내지 15 중량%, 바람직하게는 3 내지 12 중량%의 폴리하이드록시알카노에이트, 바람직하게는 폴리락트산;

b3) 0 내지 25 중량%, 바람직하게는 3 내지 20 중량%의 광물 충전제로 구성되는, 생분해성 라미네이팅 필름.

청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서, 층 A가 수성 폴리우레탄 분산액으로부터 형성되고, 상기 폴리우레탄의 적어도 60 중량%는,

a1) 적어도 하나의 다이이소시아네이트;

a2) 적어도 하나의 폴리에스테롤;

a3) 다이하이드록시카복실산 및 다이아미노카복실산으로 구성되는 군으로부터 선택된 적어도 하나의 이작용성 카복실산으로 구성되고;

상기 폴리우레탄의 유리 전이 온도는 20℃ 미만이거나, 상기 폴리우레탄의 융점은 20℃ 이하이고 10 J/G 미만의 융합 엔탈피를 갖는, 생분해성 라미네이팅 필름.

청구항 4

제1항 내지 제3항 중 어느 한 항에 있어서, 층 B가 10 내지 50 μm의 층 두께를 가지고, 층 B의 총 중량을 기준으로 0.05 내지 0.3 중량%의 에루크산 아미드 또는 바람직하게는 스테아르산 아미드를 함유하는, 생분해성 라미네이팅 필름.

청구항 5

층 구조 A/B/C/B를 갖는 생분해성 라미네이팅 필름으로서, 층 A 및 층 B는 제1항 내지 제4항에 제공된 의미를 가지고, 층 C는 폴리글리콜산, 에틸렌 비닐 알코올 또는 바람직하게는 폴리비닐 알코올로 구성되는 장벽 층인, 생분해성 라미네이팅 필름.

청구항 6

제5항에 있어서, 상기 장벽 층이 개별 층들 C'/C/C'로 구성되고, 층 C는 폴리비닐 알코올로 구성되고, C'는 접착 촉진제 층인, 생분해성 라미네이팅 필름.

청구항 7

층 구조 A/B/C/B'를 갖는 생분해성 라미네이팅 필름으로서, 상기 층들 A, B 및 B'는 제1항 내지 제4항에 제공된 의미를 가지고, 층 B'는 10 내지 100 μm의 층 두께를 가지고 층 B'의 총 중량을 기준으로 0.2 내지 0.5 중량%의 에루크산 아미드, 스테아르산 아미드 또는 바람직하게는 베헨산 아미드를 함유하는, 생분해성 라미네이팅 필름.

청구항 8

생분해성 필름, 금속 필름, 금속화된 필름, 셀로판 또는 바람직하게는 종이 또는 판지로 구성되는 군으로부터 선택된 기재의 복합 필름 라미네이션을 위한, 제1항 내지 제7항 중 어느 한 항에 따른, 라미네이팅 필름들의 용도.

청구항 9

기재 및 생분해성 라미네이팅 필름 코팅을 포함하는 식품 및/또는 음료 컨테이너로서, 상기 생분해성 라미네이팅 필름은 제1항 내지 제7항 중 어느 한 항에 따른, 식품 및/또는 음료 컨테이너.

청구항 10

제9항에 있어서, 상기 기재가 종이 또는 판지이고, 상기 컨테이너가 내부에 커피 또는 차 제품을 포함하는, 식품 및/또는 음료 컨테이너.

청구항 11

제9항 또는 제10항에 있어서, 캡슐, 포드(pod), 파우치, 카트리지 등으로서 구성되는, 식품 및/또는 음료 컨테이너.

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 층 구조 A/B를 갖는 생분해성 라미네이팅 필름으로서, 0.5 내지 7 μm 두께의 층 A는 폴리우레탄 또는 아크릴레이트 접착제를 포함하고; 5 내지 150 μm 두께의 층 B는 지방족 폴리에스테르 및/또는 지방족-방향족 폴리에스테르를 포함하고, 지방족-방향족 폴리에스테르는 하기와 같이 구성되는, 생분해성 라미네이팅 필름에 관한 것이다:

[0002] b1-i) 성분 b1-i 및 b1-ii를 기준으로 30 내지 70 mol%의 $_{C6-C18}$ 다이카복실$_{산}$;

[0003] b1-ii) 성분 b1-i 및 b1-ii를 기준으로 30 내지 70 mol%의 테레프탈산;

[0004] b1-iii) 성분 b1-i 및 b1-ii를 기준으로 98 내지 100 mol%의 1,3-프로판다이올 또는 1,4-부탄다이올;

[0005] b1-iv) 성분 b1-i 및 b1-iii을 기준으로 0 내지 2 중량%의 사슬 연장제 및/또는 분지화제.

[0006] 또한, 본 발명은 특히 종이 또는 판지와 같은 기재를 코팅하기 위한 상기 언급된 라미네이팅 필름의 용도에 관한 것이다.

[0007] 구체적으로, 본 발명은 식품 또는 음료 컨테이너를 구성하기 위한 기재 상의 필름의 용도에 관한 것이다. 컨테이너는 강성, 반강성 또는 가요성일 수 있다.

[0008] 패키징(packaging)은 특히 식품 및 음료 산업에서 사용된다. 이들은 종종 적합한 접착제에 의해 함께 접합된 복합 필름으로 구성되며, 접합된 필름들 중 적어도 하나는 중합체 필름이다. 사용 후 퇴비화(composting)에 의해 처분될 수 있는 생분해성 복합 필름 패키징에 대한 수요가 높다.

[0009] 지금까지의 문헌에서 다양한 접근법이 수행되었다:

[0010] WO 2010/034712호에는 생분해성 중합체로 종이를 압출 코팅하는 프로세스가 기재되어 있다. 원칙적으로, 이러한 프로세스에서 접착제가 사용되지 않는다. WO 2010/034712호에 기재된 프로세스에 의해 입수 가능한 코팅된 종이는 제한된 종이에 대한 접착성, 기계적 특성, 장벽 특성 및 종이 복합재(paper composite)의 생분해로 인해 모든 적용에 적합하지 않다.

[0011] WO 2012/013506호에는 부분적으로 산업적으로 퇴비화 가능한 복합 필름의 생산을 위한 수성 폴리우레탄 분산액

접착제의 용도가 기재되어 있다. 산업 퇴비화 플랜트(plant)에서의 분해는 고습도 하, 특정 미생물의 존재 하 및 약 55℃의 온도에서 일어난다. 이의 생분해성(biodegradability)과 관련한 가요성 패키징에 대한 요건은 끊임없이 증가하여, 오늘날 가정 퇴비화성(home compostability)에 대한 요건이 수많은 적용을 위해 자주 요구되고 있다. WO 2012/013506호에 기재된 복합 필름은 이러한 기준을 충분히 충족하지 못하고, 이는 또한 이들의 기계적 특성 및 장벽 특성의 측면에서 모든 가요성 패키징 적용에 적합하지 않다.

[0012] 따라서, 본 발명의 목적은 생분해성의 측면에서 개선되고 바람직하게는 가정 퇴비화 가능(home compostable)하고, 기재, 바람직하게는 종이에 대한 양호한 접착성을 가지고 또한 다른 요건들을 충족하는 라미네이팅 필름을 제공하는 것이었다.

[0013] 놀랍게도, 이러한 명세서(article)의 초반에 기재된 라미네이팅 필름은 이러한 기준을 충족한다.

[0014] 본 발명은 하기에 더욱 상세하게 기재된다.

[0015] 층 A는 또한 접착제 층으로 지칭될 수 있고 층 B와 기재 사이에 접합을 제공할 수 있다. 층 A는 0.5 내지 7 μm의 두께를 가지고 폴리우레탄 또는 아크릴레이트 접착제를 함유한다.

[0016] 바람직하게는, 층 A 내의 접착제는 WO 2012/013506호에 상세히 기재된 바와 같이 중합체 결합제 및 선택적으로 첨가제, 예컨대 충전제, 증점제, 소포제 등으로서 물 중에 분산된 적어도 하나의 폴리우레탄으로 필수적으로 구성된다. 명시적인 참조가 이루어지는 WO 2012/013506호에 기재된 폴리우레탄 접착제의 필수 특징들이 하기에 나열되어 있다:

[0017] 중합체 결합제는 바람직하게는 물 중의 또는 또한 바람직하게는 150℃(1 bar) 미만의 비등점을 갖는 수용성 유기 용매와 물의 혼합물 중의 분산액으로서 존재한다. 유일한 용매로서 물이 특히 바람직하다. 물 또는 다른 용매는 접착제의 조성에 대한 중량 데이터에 포함되어 있지 않다.

[0018] 바람직하게는, 폴리우레탄 분산액 접착제는 생분해성이다. 본 출원의 의미 내에서 생분해성은, 예를 들어, 20일 후에 사용된 물질(material)의 총 탄소 함량에 대한 CO_2 형태로 방출된 가스상 탄소의 비율이 ISO 14855(2005) 표준에 따라 측정되어 적어도 30%, 바람직하게는 적어도 60 또는 적어도 80%인 경우 제공된다.

[0019] 폴리우레탄은 주로 바람직하게는 한편으로 폴리이소시아네이트, 특히 다이이소시아네이트 및 다른 한편으로, 반응물로서, 폴리에스테르다이올 및 이작용성 카복실산으로 구성된다. 바람직하게는, 폴리우레탄은 적어도 40 중량%, 더욱 바람직하게는 적어도 60 중량%, 및 매우 특히 바람직하게는 적어도 80 중량%의 다이이소시아네이트, 폴리에스테르다이올 및 이작용성 카복실산으로 구성된다.

[0020] 폴리우레탄은 비정질 또는 반결정질일 수 있다. 폴리우레탄이 반결정질인 경우, 융점은 바람직하게는 80℃ 미만이다. 바람직하게는, 폴리우레탄은 이러한 목적을 위해 폴리우레탄을 기준으로 10 중량% 초과, 50 중량% 초과 또는 적어도 80 중량%의 양으로 폴리에스테르 다이올을 함유한다. 상표명 Epotal®로 시판되는 BASF SE의 폴리우레탄 분산액이 특히 적합하다.

[0021] 전반적으로, 폴리우레탄은 바람직하게는

[0022] a) 다이이소시아네이트,

[0023] b) 다이올로서, 그 중

[0024] b1) 다이올(b)의 총량을 기준으로 10 내지 100 mol%는 폴리에스테르다이올이고, 분자량이 500 내지 5000 g/mol이고,

[0025] b2) 다이올(b)의 총량을 기준으로 0 내지 90 mol%는 60 내지 500 g/mol의 분자량을 갖는, 다이올,

[0026] c) 다이하이드록시카복실산 및 다이아미노카복실산으로부터 선택된 적어도 하나의 이작용성 카복실산,

[0027] d) 선택적으로, 단량체 (a) 내지 (c)와 상이하고, 알코올성 하이드록실 기, 1차 또는 2차 아미노 기 또는 이소시아네이트 기인 반응성 기를 함유하는 추가의 다가 화합물, 및

[0028] e) 선택적으로, 단량체 (a) 내지 (d)와 상이하고, 알코올성 하이드록실 기, 1차 또는 2차 아미노 기 또는 이소시아네이트 기인 반응성 기를 갖는 일가 화합물로부터 제조된다.

[0029] 특히, PCT/EP2021/054570호에 기재된 바와 같은 층 A 내의 가정 퇴비화 가능한 접착제가 바람직하다. 본원에서 명시적으로 참조되는 PCT/EP2021/054570호에 기재된 폴리우레탄 접착제의 필수 특징이 하기에 열거되어 있다:

[0030] PCT/EP2021/054570호의 수계 폴리우레탄 분산액 접착제는 가정 퇴비화 조건(25 ±5℃) 하에서 생분해성인 복합 필름을 제조하는 데 적합하며, 여기서 적어도 하나의 층 B 및 제2 기재는 폴리우레탄 분산액 접착제 A를 사용하여 접합되고,

[0031] 기재 중 적어도 하나는 가정 퇴비화 조건 하에서 생분해성인 중합체 필름이고, 폴리우레탄의 적어도 60 중량%는,

[0032] (a) 적어도 하나의 다이이소시아네이트,

[0033] (b) 적어도 하나의 폴리에스테르다이올, 및

[0034] (c) 다이하이드록시카복실산 및 다이아미노카복실산으로부터 선택된 적어도 하나의 이작용성 카복실산으로 구성되고;

[0035] 폴리우레탄은 20℃ 미만의 유리 전이 온도를 갖고, 20℃ 초과의 융점을 가지지 않거나 10 J/g 미만의 융합 엔탈피와 함께 20℃ 초과의 융점을 가지고,

[0036] 바람직하게는 폴리우레탄 접착제의 층 A는 360일 이내에 가정 퇴비화 조건 하에 $_{CO2}$ 및 물 중에서 90 중량% 초과까지 분해되고, 바람직하게는 폴리우레탄 접착제의 층 A는 가정 퇴비화 가능하고,

[0037] 바람직하게는 그로부터 생산된 라미네이팅 필름 A/B는, 물질의 원래 건조 중량의 최대 10%가 25 ±5℃에서 최대 180일의 기간 동안 호기성 퇴비화 후 2 mm 초과의 스크린 부분(screen fraction)에 존재하는 경우 가정 퇴비화 조건 하에서 생분해성이다.

[0038] 바람직하게는, 폴리우레탄 접착제, 층 B 및/또는 기재를 포함하는 필름 및/또는 복합 필름은 가정 퇴비화 가능하다.

[0039] 상표명 Epotal® Eco로 시판되는 BASF SE로부터의 폴리우레탄 분산액이 특히 적합하다.

[0040] 본 발명에 따른 층 B는 5 내지 150 μm의 층 두께를 가지고 지방족 폴리에스테르 및/또는 지방족-방향족 폴리에스테르를 포함하고, 지방족-방향족 폴리에스테르는 하기와 같이 구성된다:

[0041] b1-i) 성분 b1-i 및 b1-ii를 기준으로 30 내지 70 mol%의 $_{C6-C18}$ 다이카복실$_{산}$;

[0042] b1-ii) 성분 b1-i 및 b1-ii를 기준으로 30 내지 70 mol%의 테레프탈산;

[0043] b1-iii) 성분 b1-i 및 b1-ii를 기준으로 98 내지 100 mol%의 1,3-프로판다이올 또는 1,4-부탄다이올;

[0044] b1-iv) 성분 b1-i 및 b1-iii을 기준으로 0 내지 2 중량%의 사슬 연장제 및/또는 분지화제.

[0045] 지방족 폴리에스테르는 예를 들어, 본원에서 명시적으로 참조되는 WO 2010/034711호에 더 상세히 기재된 폴리에스테르를 의미하는 것으로 이해된다.

[0046] WO 2010/034711호의 폴리에스테르(i)는 일반적으로 하기와 같이 구조화된다:

[0047] i-a) 성분 i-a 내지 i-b를 기준으로 80 내지 100 mol%의 석신산;

[0048] i-b) 성분 i-a 내지 i-b를 기준으로 0 내지 20 mol%의 하나 이상의 $_{C6-C20}$ 다이카복실산;

[0049] i-c) 성분 i-a 내지 i-b를 기준으로 99 내지 102 mol%, 바람직하게는 99 내지 100 mol%의 1,3-프로판다이올 또는 1,4-부탄다이올;

[0050] i-d) 성분 i-a 내지 i-c를 기준으로 0 내지 1 중량%의 사슬 연장제 또는 분지.

[0051] WO 2010/034711호의 폴리에스테르(i)의 합성은 바람직하게는 개별 성분의 직접 중축합 반응에서 수행된다. 이러한 경우에, 다이카복실산 유도체는 에스테르교환 촉매의 존재 하에 다이올과 함께 직접 반응되어 고분자량의 중축합물을 형성한다. 다른 한편으로, 코폴리에스테르는 또한 다이올의 존재 하에 $_{C6-C20}$ $_{다이카복실산}$을 사용하는 폴리부틸렌 석시네이트(PBS)의 에스테르교환에 의해 수득될 수 있다. 촉매로서 아연, 알루미늄 및 특히 티타늄 촉매가 통상적으로 사용된다. 테트라(이소프로필)오르토티타네이트 및 특히 테트라이소부톡시티타네이트(TBOT)와 같은 티타늄 촉매는 문헌에서 자주 사용되는 주석, 안티몬, 코발트 및 납 촉매, 예컨대, 주석 다이옥타노에이트에 비해 잔류량의 촉매 또는 생성물에 잔류하는 촉매의 다운스트림 생성물이 덜 독성이라는 장점을 갖는다. 이러한 상황은 생분해성 폴리에스테르의 경우에 특히 중요한데, 왜냐하면, 이들이 환경으로 직접 방출되기

때문이다.

[0052] 또한, 언급된 폴리에스테르는 JP 2008-45117호 및 EP-A 488 617호에 기재된 방법에 의해 제조될 수 있다. 먼저 성분 a 내지 c를 반응시켜, 50 내지 100 mL/g, 바람직하게는 60 내지 80 mL/g의 VZ를 갖는 프레폴리에스테르를 형성하고, 이후 사슬 연장 반응에서 이를 사슬 연장제 i-d, 예를 들어, 다이이소시아네이트 또는 에폭사이드-함유 폴리메타크릴레이트와 반응시켜 100 내지 450 mL/g, 바람직하게는 150 내지 300 mL/g의 VZ를 갖는 폴리에스테르(i)를 형성하는 것이 유리한 것으로 입증되었다.

[0053] 사용된 산 성분 i-a는 산 성분 a 및 b를 기준으로 80 내지 100 mol%, 바람직하게는 90 내지 99 mol%, 및 더욱 바람직하게는 92 내지 98 mol%의 석신산이다. 석신산은 석유화학 수단에 의해 그리고 바람직하게는 예를 들어, EPA 2185682호에 기재된 바와 같은 재생 가능한 원료로부터 입수 가능하다. EPA 2185682호에는 파스테우렐라세애(*pasteurellaceae*) 강(class)으로부터의 미생물을 사용하여 상이한 탄수화물로부터 출발하여 석신산 및 1,4-부탄다이올을 생산하기 위한 생명공학적 프로세스가 개시되어 있다.

[0054] 산 성분 i-b는 산 성분 i-a 및 i-b를 기준으로 0 내지 20 mol%, 바람직하게는 1 내지 10 mol%, 및 더욱 바람직하게는 2 내지 8 mol%로 사용된다.

[0055] C6-C20 다이카복실산 i-b는 특히 아디프산, 석신산, 아젤라산, 세박산, 브라실산 및/또는 C18 다이카복실산을 의미한다. 석신산, 아젤라산, 세박산 및/또는 브라실산이 바람직하다. 상기 언급된 산은 재생 가능한 원료로부터 입수 가능하다. 예를 들어, 세박산은 피마자유로부터 입수 가능하다. 이러한 폴리에스테르는 우수한 생분해 특성을 특징으로 한다[문헌: Polym. Degr. Stab. 2004, 85, 855-863].

[0056] 다이카복실산 i-a 및 i-b는 유리산으로서 또는 에스테르-형성 유도체의 형태로 사용될 수 있다. 특히, 다이메틸, 다이에틸, 다이-n-프로필, 다이-이소프로필, 다이-n-부틸, 다이-이소-부틸, 다이-t-부틸, 다이-n-펜틸, 다이-이소-펜틸 또는 다이-n-헥실 에스테르와 같은 다이-C1- 내지 C6-알킬 에스테르가 에스테르-형성 유도체로서 언급될 수 있다. 다이카복실산의 무수물이 또한 사용될 수 있다. 다이카복실산 또는 이의 에스테르-형성 유도체는 개별적으로 또는 혼합물로서 사용될 수 있다.

[0057] 다이올 1,3-프로판다이올 및 1,4-부탄다이올이 또한 재생 가능한 원료로부터 입수 가능하다. 2개의 다이올의 혼합물이 또한 사용될 수 있다. 형성된 공중합체의 더 높은 용융 온도 및 더 우수한 결정화로 인해, 다이올로서 1,4-부탄다이올이 바람직하다.

[0058] 일반적으로, 중합 개시 시에, 다이올(성분 i-c)은 1.0:1 내지 2.5:1 및 바람직하게는 1.3:1 내지 2.2:1의 다이올 대 이산의 비율로 산(성분 i-a 및 i-b)에 대해 조정된다. 과도한 다이올의 양은, 중합 종료 시에 대략 등몰비가 얻어지도록 중합 동안 회수된다. 대략 등몰은 0.98 내지 1.00의 이산/다이올 비율을 의미한다.

[0059] 일 실시형태에서, 성분 i-a 내지 i-b의 총 중량을 기준으로 0 내지 1 중량%, 바람직하게는 0.1 내지 0.9 중량%, 및 더욱 바람직하게는 0.1 내지 0.8 중량%의, 다작용성 이소시아네이트, 이소시아누레이트, 옥사졸린, 카복실산 무수물, 예컨대, 말레산 무수물, 에폭사이드(특히, 에폭사이드-함유 폴리(메트)아크릴레이트), 적어도 삼작용성 알코올 또는 적어도 삼작용성 카복실산으로 구성되는 군으로부터 선택된 분지화제 i-d 및/또는 사슬 연장제 i-d'가 사용된다. 원칙적으로, 분지화제는 사용되지 않고, 사슬 연장제만이 사용된다.

[0060] 적합한 이작용성 사슬 연장제는 톨루엔-2,4-다이이소시아네이트, 톨루엔-2,6-다이이소시아네이트, 2,2'-다이페닐메탄 다이이소시아네이트, 2,4'-다이페닐메탄 다이이소시아네이트, 4,4'-다이페닐메탄 다이이소시아네이트, 나프틸렌-1,5-다이이소시아네이트 또는 자일릴렌 다이이소시아네이트, 1,6-헥사메틸렌 다이이소시아네이트, 이소포론 다이이소시아네이트 또는 메틸렌-비스(4-이소시아네이토사이클로헥산)을 포함한다. 이소포론 다이이소시아네이트 및 특히, 1,6-헥산-메틸렌 다이이소시아네이트가 특히 바람직하다.

[0061] 지방족 폴리에스테르(i)는 특히 폴리부틸렌 석시네이트(PBS), 폴리부틸렌 석시네이트-코-아디페이트(PBSA), 폴리부틸렌 석시네이트-코-세바케이트(PBSSe), 폴리부틸렌 석시네이트-코-아젤레이트(PBSAz) 또는 폴리부틸렌 석시네이트-코-브라실레이트(PBSBr)와 같은 폴리에스테르를 지칭한다. 지방족 폴리에스테르 PBS 및 PBSA는 예를 들어, Mitsubishi에 의해 BioPBS® 명칭으로 시판된다. 더욱 최근의 개발예(development)는 WO 2010/034711호에 기재되어 있다.

[0062] 폴리에스테르(i)는 일반적으로 5000 내지 100000의 범위, 특히 10000 내지 75000 g/mol 범위, 바람직하게는 15000 내지 50000 g/mol 범위 내의 수 평균 분자량(Mn), 30000 내지 300000, 바람직하게는 60000 내지 200000 g/mol의 중량 평균 분자량(Mw) 및 1 내지 6, 바람직하게는 2 내지 4의 Mw/Mn 비율을 갖는다. 점도 수

(viscosity number)는 30 내지 450, 바람직하게는 100 내지 400 g/mL의 범위이다(o-다이클로로벤젠/페놀(중량비 50/50)에서 측정됨). 융점은 85 내지 130의 범위, 바람직하게는 95 내지 120℃의 범위 내에 있다. DIN EN 1133-1에 따른 MVR 범위는 8 내지 50, 특히 15 내지 40 cm^3 /10분(190℃, 2.16 kg)의 범위 내에 있다.

[0063] 층 B 지방족 폴리에스테르는 또한 폴리카프로락톤(PCL), 폴리-3-하이드록시부티레이트(PHB), 폴리-3-하이드록시부티레이트-코-3-하이드록시발레레이트(P(3HB)-co-P(3HV)), 폴리-3-하이드록시부티레이트-코-4-하이드록시부티레이트(P(3HB)-co-P(4HB)) 및 폴리-3-하이드록시부티레이트-코-3-하이드록시헥사노에이트(P(3HB)-co-P(3HH))와 같은 폴리하이드록시알카노에이트를 포함하고, 특히 폴리락트산(PLA)이 사용된다.

[0064] 하기 특성 프로파일을 갖는 폴리락트산(b2)이 바람직하다:

[0065] 용융 부피 지수(0.5 내지 100 및 특히 5 내지 50 cm^3 /10분의 ISO 1133-1 EN에 따른 190℃ 및 2.16 kg에서의 MVR)

[0066] 240℃ 미만의 융점;

[0067] 55℃ 초과의 유리점(Tg)

[0068] 1000 ppm 미만의 수분 함량

[0069] 0.3% 미만의 잔류 단량체 함량(락타이드).

[0070] 80,000 달톤 초과의 분자량.

[0071] 바람직한 폴리락트산에는 Ingeo® 6201 D, 6202 D, 6251 D, 3051 D, 및 3251 D, 및 특히 4043 D 및 4044 D와 같은 NatureWorks로부터의 결정질 폴리락트산 타입뿐만 아니라 Luminy® L175 및 LX175 Corbion과 같은 Total Corbion 으로부터의 폴리락트산, 및 Revode® 190 또는 110과 같은 Hisun으로부터의 폴리락트산이 있다. Luminy® L175 및 LX175 Corbion과 같은 전체 Corbion, 및 Revode® 190 또는 110과 같은 Hisun으로부터의 폴리락트산, 그러나 비정질 폴리락트산 등급, 예컨대, NatureWorks로부터의 Ingeo® 4060 D가 또한 적합할 수 있다.

[0072] 층 B에서 지방족-방향족 폴리에스테르(b1)는 예를 들어, 명시적으로 참조된 WO 96/15173호 내지 15176호 또는 WO 98/12242호에 기재된 바와 같이, 선형, 사슬-연장된 및 선택적으로 분지형 및 사슬-연장된 폴리에스테르인 것으로 이해된다. 상이한 부분 방향족 폴리에스테르의 블렌드가 또한 고려된다. 흥미로운 최근의 개발예는 재생 가능한 원료에 기초한다(WO 2010/034689호 참조). 특히, 폴리에스테르(b1)는 ecoflex®(BASF SE)와 같은 제품을 포함한다.

[0073] 바람직한 폴리에스테르(b1)는 필수 성분으로서 하기 성분들을 함유하는 폴리에스테르를 포함한다:

[0074] b1-i) 성분 b1-i) 및 b1-ii)를 기준으로 30 내지 70 mol%, 바람직하게는 40 내지 60, 및 더욱 바람직하게는 50 내지 60 mol%의, 지방족 다이카복실산 또는 이들의 혼합물, 바람직하게는 하기에 기재된 바와 같은 것: 아디프산 및 특히 아젤라산, 세박산 및 브라실산,

[0075] b1-ii) 성분 b1-i) 및 b1-ii)를 기준으로 30 내지 70 mol%, 바람직하게는 40 내지 60, 및 더욱 바람직하게는 40 내지 50 mol%의, 방향족 다이카복실산 또는 이들의 혼합물, 바람직하게는 하기에 기재된 바와 같은 것: 테레프탈산,

[0076] b1-iii) 성분 b1-i) 및 b1-ii)를 기준으로 98 내지 100 mol%의 1,4-부탄다이올 및 1,3-프로판다이올; 및

[0077] b1-iv) 성분 b1-i) 내지 b1-iii)을 기준으로 0 내지 2 중량%, 바람직하게는 0.1 내지 1 중량%의, 사슬 연장제, 특히 이작용성 또는 다작용성 이소시아네이트, 바람직하게는 헥사메틸렌 다이이소시아네이트, 및 선택적으로 분지화제, 바람직하게는 트라이메틸올프로판, 펜타에리트리톨 및 특히 글리세롤.

[0078] 지방족 이산 및 상응하는 유도체(b1-i)는 일반적으로 6 내지 18개의 탄소 원자, 바람직하게는 9 내지 14개의 탄소 원자를 갖는 것이다. 이들은 선형 및 분지형 둘 모두일 수 있다.

[0079] 예로는 아디프산, 아젤라산, 세박산, 브라실산 및 수베르산(코르크 산)이 있다. 다이카복실산 또는 이들의 에스테르-형성 유도체는 개별적으로 또는 이들 중 둘 이상의 혼합물로서 사용될 수 있다.

[0080] 바람직하게는, 아디프산, 아젤라산, 세박산, 브라실산 또는 이들 각각의 에스테르-형성 유도체 또는 이들의 혼합물이 사용된다. 아젤라산 또는 세박산 또는 이들 각각의 에스테르-형성 유도체 또는 이들의 혼합물이 특히

바람직하다.

[0081] 특히, 하기 지방족-방향족 폴리에스테르가 바람직하다: 폴리부틸렌 아디페이트-코테레프탈레이트(PBAT), 폴리부틸렌 아디페이트-코-아젤레이트-테레프탈레이트(PBAAzT) 폴리부틸렌 아디페이트-코-세바케이트-테레프탈레이트(PBASeT), 폴리부틸렌 아젤레이트-코테레프탈레이트(PBAzT) 및 폴리부틸렌 세바케이트-코테레프탈레이트(PBSeT)뿐만 아니라 이들 폴리에스테르의 혼합물.

[0082] 호주 표준 AS 5810-2010 및 ISO 14855-1(2012)에 따라 더 양호한 가정 퇴비화성으로 인해, 폴리부틸렌 아디페이트-코-아젤레이트-테레프탈레이트(PBAAzT), 폴리부틸렌 아디페이트-코-세바케이트-테레프탈레이트(PBASeT), 폴리부틸렌 아젤레이트-코-테레프탈레이트(PBAzT) 및 폴리부틸렌 세바케이트-코테레프탈레이트(PBSeT), 및 폴리부틸렌 아젤레이트-코-테레프탈레이트(PBAzT) 및 폴리부틸렌 세바케이트-코테레프탈레이트(PBSeT)와의 폴리부틸렌 아디페이트-코테레프탈레이트(PBAT)의 블렌드가 특히 바람직하다.

[0083] 방향족 다이카복실산 또는 이들의 에스테르-형성 유도체(b1-ii)는 개별적으로 또는 이들 중 둘 이상의 혼합물로서 사용될 수 있다. 테레프탈산 또는 이의 에스테르-형성 유도체, 예컨대 다이메틸 테레프탈레이트가 특히 바람직하다.

[0084] 다이올 b1-iii -1,4-부탄다이올 및 1,3-프로판다이올-이 재생 가능한 원료로서 입수 가능하다. 명명된 다이올의 혼합물이 또한 사용될 수 있다.

[0085] 원칙적으로, 폴리에스테르의 총 중량을 기준으로 0 내지 1 중량%, 바람직하게는 0.1 내지 1.0 중량%, 및 더욱 바람직하게는 0.1 내지 0.3 중량%의 분지화제 및/또는 폴리에스테르의 총 중량을 기준으로 0 내지 1 중량%, 바람직하게는 0.1 내지 1.0 중량%의 사슬 연장제(b1-vi)가 사용된다. 바람직하게는, 사슬 연장제로서 이작용성 또는 다작용성 이소시아네이트, 바람직하게는 헥사메틸렌 다이이소시아네이트가 사용되고, 분지화제로서 바람직하게는 트라이메틸올프로판, 펜타에리트리톨 및, 특히 글리세롤과 같은 폴리올이 사용된다.

[0086] 폴리에스테르(b1)는 일반적으로 5000 내지 100000의 범위, 특히 10000 내지 75000 g/mol 범위, 바람직하게는 15000 내지 38000 g/mol 범위 내의 수 평균 분자량(Mn), 30000 내지 300000, 바람직하게는 60000 내지 200000 g/mol의 중량 평균 분자량(Mw) 및 1 내지 6, 바람직하게는 2 내지 4의 Mw/Mn 비율을 갖는다. 점도 수는 50 내지 450, 바람직하게는 80 내지 250 g/mL의 범위이다(o-다이클로로벤젠/페놀(중량비 50/50)에서 측정됨). 융점은 85 내지 150의 범위, 바람직하게는 95 내지 140℃의 범위 내에 있다.

[0087] EN ISO 1133-1 EN(190℃, 2.16 kg 중량)에 따른 폴리에스테르(b1)의 MVR(용융 부피 지수)은 일반적으로 0.5 내지 20, 바람직하게는 5 내지 15 cm^3 /10분이다. DIN EN 12634에 따른 산가는 일반적으로 0.01 내지 1.2 mg KOH/g, 바람직하게는 0.01 내지 1.0 mg KOH/g, 및 특히 바람직하게는 0.01 내지 0.7 mg KOH/g이다.

[0088] 원칙적으로, 층 B의 총 중량을 기준으로 0 내지 25 중량%, 특히 3 내지 20 중량%의, 백악, 흑연, 석고, 전도성 카본 블랙, 산화철, 황산칼슘, 돌로마이트, 카올린, 이산화규소(석영), 탄산나트륨, 탄산칼슘, 이산화티타늄, 실리케이트, 규회석, 운모, 몬트모릴로나이트 및 활석으로 구성되는 군으로부터 선택된 적어도 하나의 광물 충전제(b3). 바람직한 광물 충전제에는 실리카, 카올린 및 황산칼슘이 있고, 탄산칼슘 및 활석이 특히 바람직하다.

[0089] 층 B의 바람직한 실시형태는

[0090] b1) 폴리부틸렌 아디페이트-코테레프탈레이트, 폴리부틸렌 아젤레이트-코테레프탈레이트 및 폴리부틸렌 세바케이트-코테레프탈레이트로 구성되는 군으로부터 선택된, 60 내지 100 중량%의 지방족-방향족 폴리에스테르;

[0091] b2) 0 내지 15 중량%, 바람직하게는 3 내지 12 중량%의 폴리하이드록시알카노에이트, 바람직하게는 폴리락트산;

[0092] b3) 0 내지 25 중량%, 바람직하게는 3 내지 20 중량%의 광물 충전제를 포함한다.

[0093] 일 실시형태에서, 층 B는 임의의 활택제 또는 이형제를 함유하지 않는다. 이러한 실시형태는 최대 150 μm의 층 두께의 층 A와의 매우 양호한 상용성을 나타내므로, 기재, 예컨대, 특히 종이 또는 보드에 대한 라미네이팅 필름의 접착성이 매우 양호하다. 이는 필름을 종이 또는 보드로부터 다시 분리하기 위한 시도가 이루어질 때 섬유 인열이 발생한다는 사실로 나타난다.

[0094] 추가의 실시형태에서, 층 B는 층 B의 총 중량을 기준으로 0.05 내지 0.3 중량%의 활택제 또는 이형제, 예컨대 에루크산 아미드 또는 바람직하게는 스테아르산 아미드를 함유한다. 이러한 실시형태는 최대 50 μm의 층 두께의 층 A와의 매우 양호한 상용성을 나타내므로, 기재, 예컨대, 특히 종이 또는 보드에 대한 라미네이팅 필름의

접착성이 매우 양호하다. 이는 필름을 종이 또는 보드로부터 다시 분리하기 위한 시도가 이루어질 때 섬유 인열이 발생한다는 사실로 나타난다. 다른 한편으로, 베헨산 아미드와 같은 활택제 또는 이형제가 층 B에 사용되는 경우, 층 A와의 불량한 상용성이 관찰된다.

[0095] 또한, 본 발명에 따른 성분 i 내지 v의 화합물은 당업자에게 공지된 다른 첨가제를 함유할 수 있다. 예를 들어, 플라스틱 기술에서 통상적인 첨가제, 예컨대, 안정화제; 핵형성제, 예컨대, 이미 전술된 광물 충전제(b3) 또는 또한 결정질 폴리락트산; 이형제, 예컨대, 스테아레이트(특히 칼슘 스테아레이트); 가소제(가소제), 예컨대, 시트르산 에스테르(특히 아세틸 트라이부틸 시트레이트), 글리세르산 에스테르, 예컨대 트라이아세틸 글리세롤 또는 에틸렌 글리콜 유도체, 계면활성제, 예컨대, 폴리소르베이트, 팔미테이트 또는 라우레이트; 정전기 방지제, UV 흡수제; UV 안정화제; 흐림방지제(antifog agent), 안료 또는 바람직하게는 Fa. BASF SE의 생분해성 염료 Sicoversal®. 첨가제는 층 B를 기준으로 0 내지 2 중량%, 특히 0.1 내지 2 중량%의 농도로 사용된다. 가소제는 본 발명에 따른 층 B에 0.1 내지 10 중량%로 존재할 수 있다.

[0096] 식품 산업에서 대부분의 식품 및/또는 음료는 산소 장벽 또는 아로마(aroma) 장벽에 대한 높은 요건을 적용한다. 여기서, 추가적인 장벽 층(C)을 갖는 층상 구조가 유리한 것으로 입증되었다. 적합한 층 구조는 예를 들어 A/B/C/B이며, 여기서, 층 A 및 층 B는 전술한 의미를 갖고, 층 C는 폴리글리콜산(PGA), 에틸렌 비닐 알코올(EVOH) 또는 바람직하게는 폴리비닐 알코올(PVOH)로 구성되는 장벽 층이다.

[0097] 장벽 층(C)은 일반적으로 2 내지 10 μm의 두께를 가지고, 바람직하게는 폴리비닐 알코올로 구성된다. 적합한 PVOH는 예를 들어 Mitsubishi Chemicals로부터의 G-중합체, 특히 G-중합체 BVE8049이다. PVOH가 생물중합체 층(B)에 충분히 접착되지 않기 때문에, 장벽 층은 바람직하게는 개별 층 C'/C/C'로 구성되며, 여기서, 층 C'는 접착 촉진제 층을 나타낸다. 적합한 접착 촉진제는 예를 들어 Mitsubishi Chemicals로부터의 공중합체 BTR-8002P이다. 접착 촉진제 층은 일반적으로 2 내지 6 μm의 두께를 갖는다. 이러한 경우에, 라미네이팅 필름은 예를 들어 A/B/C'/C/C'/B 또는 B'의 전체 층 구조를 갖는다.

[0098] 또 다른 적합한 층 구조는 A/B/C/B'이며, 층 A, B 및 C는 상기에 제공된 의미를 갖고, 층 B'는 10 내지 100 μm의 층 두께를 가지고 층 B에 대해 언급된 성분들 이외에 활택제 또는 주형 이형제로서 층 B'의 총 중량을 기준으로 0.2 내지 0.5 중량%의 에루크산 아미드, 스테아르산 아미드 또는 바람직하게는 베헨산 아미드를 함유한다.

[0099] 본 발명에 따른 라미네이팅 필름은 생분해성 필름, 금속 필름, 금속화된 필름, 셀로판 또는 바람직하게는 종이 제품의 군으로부터 선택된 기재의 복합 필름 라미네이션을 위해 사용된다.

[0100] 본 발명의 목적을 위해, 용어 "종이 제품"은 모든 유형의 종이 및 보드를 포함한다.

[0101] 상기 종이 제품의 생산을 위한 적합한 섬유는 모든 일반적으로 사용되는 유형, 예를 들어, 기계적 펄프, 표백된 및 비표백된 화학 펄프, 임의의 한해살이 작물(annual crop)로부터의 종이 펄프, 및 (코팅되거나 코팅되지 않은, 브로크(broke) 형태를 포함하는) 폐지(waste paper)를 포함한다. 상기 섬유는 단독으로 또는 이들의 임의의 혼합물로서 사용되어 종이 제품을 제조하는 펄프를 생산할 수 있다. 예를 들어, 용어 목재 펄프(wood pulp)는 쇄목 펄프, 열기계 펄프(TMP), 화학열기계 펄프(CTMP), 압축 목재 펄프, 반화학 펄프, 고수율 화학 펄프, 및 정제기 펄프(RMP)를 포함한다. 예시적인 화학 펄프는 설페이트 펄프, 설파이트 펄프, 및 소다 펄프를 포함한다. 펄프 생산을 위한 적합한 한해살이 식물의 예는 쌀, 밀, 사탕수수, 및 케냐프(kenaf)를 포함한다.

[0102] 종이 건조 물질의 고형물 함량을 기준으로 각각의 경우에 0.01 내지 3 중량%, 바람직하게는 0.05 내지 1 중량% 양의 사이징(sizing)은 일반적으로 펄프에 첨가되어, 완성될 종이의 원하는 사이징 정도에 따라 변한다. 종이는 또한 다른 물질, 예를 들어 전분, 안료, 염료, 광학 증백제, 살생물제, 종이 강화제, 고정제, 소포제, 유지제 및/또는 탈수 보조제를 함유할 수 있다.

[0103] 생산된 복합 필름은 바람직하게는 하기 구조를 갖는다:

[0104] (i) 30 내지 600 g/m2, 바람직하게는 40 내지 400 g/m2, 더욱 바람직하게는 50 내지 150 g/m2의 평량을 갖는 종이,

[0105] ii) 5.5 내지 300 μm, 바람직하게는 10 내지 150 μm 및 특히 바람직하게는 15 내지 100 μm의 총 두께를 갖는 본 발명에 따른 라미네이팅 필름.

[0106] 매우 다양한 물질은 종이 층, 예를 들어 백색 또는 갈색 크래프트라이너, 펄프, 폐지, 파형 보드(corrugated board) 또는 스크리닝(screening)에 사용될 수 있다.

[0107] 종이-필름 복합재의 총 두께는 대개 31 내지 1000 g/m2이다. 80 내지 500 μm의 종이-필름 복합재는 바람직하게는 라미네이션에 의해 생산될 수 있고, 압출 코팅에 의해 50 내지 300 μm의 종이-필름 복합재가 특히 바람직하다.

[0108] 본 발명에 따른 라미네이팅된 필름 내에서, 기재(예를 들어, 종이) 는 광유(mineral oil) 및 다른 유형의 오일뿐만 아니라 그리스(grease) 및 수분에 대한 보호를 갖는데, 이는 라미네이팅 필름이 상응하는 장벽 효과를 발휘하기 때문이다. 다른 한편으로, 라미네이팅된 필름이 식품 패키징에 사용될 때, 식료품은 예를 들어 폐지에 존재하는 광유 및 미네랄 물질로부터의 보호를 갖는데, 왜냐하면 이는 라미네이팅 필름이 이러한 장벽 효과를 발휘하기 때문이다. 또한, 라미네이팅된 필름은 종이, 판지, 셀로판 및 금속뿐만 아니라 그 자체에 밀봉될 수 있기 때문에, 이는 예를 들어 커피 컵, 음료 카톤(carton) 또는 냉동 제품용 카톤의 생산을 가능하게 한다. 캡슐, 포드, 파우치, 카트리지 등이고, 바람직하게는 커피 및/또는 차를 포함하는 식품 및/또는 음료 컨테이너에 특히 적합하다.

[0109] 복합 필름은 건조 식품, 예를 들어 커피, 차, 스프 분말, 소스 분말을 위한 종이 백(paper bag)의 생산을 위해; 액체; 관형 라미네이트; 아이스크림, 제과류(예를 들어, 초콜릿 및 곡물 바)를 위한 종이 캐리어 백, 종이 라미네이트 및 공압출물, 및 종이 테이프; 종이 컵, 요거트 포트; 조리 식품 트레이; 랩핑된 판지(paperboard)(캔, 드럼), 외부 패키징(와인 병, 식료품(grocery))을 위한 습윤-강도 카톤(wet-strength carton); 코팅된 판지 과일 상자; 즉석 식품 플레이트; 스테이플 트레이; 음료 카톤 및 액체용 카톤, 예컨대 세제 및 세정 제품, 냉동 제품용 카톤, 아이스크림 패키징(예를 들어, 아이스크림 컵, 랩핑 물질), 예를 들어 아이스크림 컵, 원추형 아이스크림 콘을 위한 랩핑 물질); 종이 라벨; 화분 및 식물 포트의 생산을 위해 특히 적합하다.

[0110] 본 발명에 따라 생산된 복합 필름은 패키징, 특히 식품 패키징의 생산에 특히 적합하다.

[0111] 따라서, 본 발명은 생분해성이거나 바람직하게는 가정 퇴비화 조건 하에서 생분해성인 복합 필름의 제조에서 본원에 기재된 라미네이팅 필름의 용도를 제공하며, 여기서, 복합 필름은 가정 퇴비화 가능한 가요성 패키지의 일부이다.

[0112] 본 발명의 이점은 본 발명에 따라 사용되는 라미네이팅 필름이 상이한 물질, 예컨대, 기재 및 층 B의 서로에 대한 양호한 접착 접합(adhesive bonding)을 가능하게 하여, 접합된 복합재에 고강도를 제공한다는 것이다. 또한, 본 발명에 따라 생산된 라미네이팅된 필름은 양호한 생분해성 및 특히 가정 퇴비화성을 나타낸다.

[0113] 본 발명의 목적을 위해, 특성 "생분해성"은 이러한 물질 또는 물질의 혼합물이 DIN EN 13432에 따라 180일 후에 적어도 90%의 생분해 백분율 정도를 갖는 경우 물질 또는 물질의 혼합물에 대해 충족된다.

[0114] 일반적으로, 생분해는 합리적이고 검출 가능한 기간에 폴리에스테르(블렌드) 분해를 초래한다. 분해는 효소적, 가수분해적, 산화적일 수 있고/있거나, UV 방사선과 같은 전자기 복사선에 대한 노출로 인해, 일반적으로 세균, 효모, 진균, 및 조류와 같은 미생물의 작용에 의해 주로 유발된다. 생분해성은 예를 들어, 폴리에스테르를 퇴비와 혼합하고 소정 시간 동안 이들을 저장함으로써 정량화될 수 있다. 예를 들어, DIN EN 13432(ISO 14855로 지칭됨)에 따라, $CO_{2-무함유}$ 공기는 퇴비화 동안 숙성 퇴비를 통해 유동할 수 있게 되고, 이는 규정된 온도 프로그램을 거친다. 본원에서, 생분해성은 생분해 백분율 정도로서 (샘플의 탄소 함량으로부터 계산된) 샘플의 최대 $CO_{2\ 방출}$에 대한 (샘플이 없는 퇴비에 의한 $CO_{2\ 방출}$을 차감한 후) 샘플의 순 CO2 방출의 비율로 정의된다. 생분해성 폴리에스테르(블렌드)는 일반적으로 단지 수일의 퇴비화 후에 진균 성장, 균열(cracking) 및 피팅(pitting)과 같은 분해의 명확한 징후를 나타낸다.

[0115] 생분해성을 결정하기 위한 다른 방법은 예를 들어, ASTM D 5338 및 ASTM D 6400-4에 기재되어 있다.

[0116] 본 발명은 바람직하게는 가정 퇴비화 조건(25 ±5℃) 하에서 생분해성인 라미네이팅 필름 및 이러한 라미네이팅 필름을 포함하는 라미네이팅된 필름을 제공한다. 가정 퇴비 조건은, 라미네이팅 필름 또는 복합 필름이 360일 이내에 CO_2 및 물 중에서 90 중량% 초과까지 분해됨을 의미한다.

[0117] 가정 퇴비화성은 ISO 표준 14855-1 (2012)에 기재된 58℃의 온도 대신에 가정 퇴비화 조건을 시뮬레이션하기 위해 주변 온도(28 ±2℃)에서 호주 표준 AS 5810-2010 또는 프랑스 표준 NF T 51-800 또는 문헌[ISO 14855-1 (2012) "Determination of ultimate aerobic biodegradability of plastics under controlled composting conditions - Method by analysis of evolved carbon dioxide"]에 따라 시험하였다.

[0118] 특징부:

[0119] 유리 전이 온도를 시차 주사 열량법(ASTM D 3418-08, 제2 가열 곡선의 "중간점 온도", 가열 속도 20 K/분)에 의해 결정하였다.

[0120] 융점 및 융합 엔탈피를, 폴리우레탄 필름을 120℃까지 가열하고, 23℃까지 20 K/분으로 냉각하고, 20시간 동안 어닐링한 후에 20 K/분으로 가열함으로써 DIN 53765(1994)(융점 = 피크 온도)에 따라 결정하였다.

[0121] 공급원 물질

[0122] 층 A)의 성분

[0123] a-1) BASF SE로부터의 Epotal® Eco 3702, 수계 폴리우레탄 분산액(PCT/EP 2021/054570호 참조)

[0124] a-2) BASF SE로부터의 Epotal® P 100 eco, 수성 폴리우레탄 분산액(WO 2010/034712호 참조)

[0125] 층 B)의 성분

[0126] 성분 b1):

[0127] b1-1) 폴리부틸렌 아디페이트-코테레프탈레이트: BASF SE로부터의 ecoflex® F C1200(2.5 내지 4.5 cm^3 /10분의 MVR(190℃, 2.16 kg)

[0128] b1-2) 폴리부틸렌 세바케이트-코테레프탈레이트: BASF SE로부터의 ecoflex® FS C2200(3 내지 5 cm^3 /10분의 MVR(190℃, 5 kg)

[0129] 성분 b2)

[0130] b2-1) 폴리락트산: (PLA) NatureWorks로부터의 Ingeo® 4044 D(MVR 1.5 내지 3.5 cm^3 /10분(190℃, 2.16 kg))

[0131] 성분 b3)

[0132] b3-1) 회사 Elementis로부터의 Plustalc H05C

[0133] b3-2) 회사 Omya로부터의 탄산칼슘

[0134] 성분 b4)

[0135] b4-1) 에루카산 아미드: Croda International Plc.로부터의 Crodamide™ ER

[0136] b4-2) 스테아르산 아미드: 회사 Croda로부터의 Crodamide SRV

[0137] b4-3) 베헨산 아미드: 회사 Croda로부터의 Crodamide BR

[0138] 성분 b5)

[0139] b5-1) BASF SE로부터의 Joncryl® ADR 4468, 글리시딜 메타크릴레이트

[0140] 층 C)의 성분

[0141] c-1(C') Mitsubishi Chemicals로부터의 BTR-8002P 접착 촉진제

[0142] c-2 Mitsubishi Chemicals로부터의 G-중합체 BVE8049 PvOH

[0143] 층 B의 배합

[0144] 표 1에 열거된 화합물을 Coperion MC 40 압출기에서 생산하였다. 유출구에서의 온도를 250℃로 설정하였다. 이후, 압출물을 물 중에서 펠렛화하였다. 펠렛화 후, 펠렛을 60℃에서 건조시켰다.

[0145] [표 1]

층 B의 조성

	b1-1	b1-2	b2-1	b3-1	b3-2	b4-1	b4-2	b4-3	b5-1
	중량%	중량%	중량%	중량%	중량%	중량%	중량%	중량%	중량%
I		71,9	8	6	14				0.1
II	88,4		9		2,4	0,1			0.1
III	90,7		9				0,2		0.1
IV	87,7		9	3			0.2		0.1
V		75,8	9	15				0.2	
VI		75,8	9	15			0.2		
VII		75,6	9	15			0,4		
VIII		76	9	15					

[0146]

[0147] [표 2]

라미네이팅 필름의 조성

실시예	A	B		C '	C	C '	B/B'	경향성*
	4 μm	μm	표 1	4 μm	8 μm	4 μm	17 μm	
1	a-1)	17	VIII					+
2	a-1)	100	VIII					+
V-3	a-1)	200	VIII					-
4	a-1)	17	VIII	c-1	c-2	c-1	VIII	+
5	a-1)	12	I					+
6	a-1)	12	II					+
7	a-1)	12	III					+
8	a-1)	12	IV					+
V-9	a-1)	60	IV					-/+
V-10	a-1)	17	V					-
11	a-1)	17	VI					+
12	a-1)	17	VI	c-1	c-2	c-1	V	+
V-13	a-1)	17	VII					-

[0148] *기재(종이)에 대한 라미네이팅 필름의 접착성은 하기와 같이 결정되었다:

[0149] 베이스 필름 B를 실험실 코팅 테이블 상에 코로나 전처리되는 측면이 위로 오게 고정하고, 시험될 접착제를 스퀴지(squeegee)를 이용하여 필름 상에 직접 코팅하였다. 접착제 A를 고온 공기 송풍기로 2분 동안 건조시키고, 이후 라미네이팅 필름을 핸드 롤러로 적용하고, 5 m/분의 롤러 속도 및 6.5 bar의 라미네이팅 압력으로, 70℃에서 롤러 라미네이팅 스테이션에서 50 gsm 내지 130 gsm의 상이한 두께의 종이 상에 가압하였다. 이후, 라미네이트를 절삭 템플릿을 사용하여 15 밀리미터 폭의 스트립으로 절단하고, 다양한 저장 사이클을 거쳤다. 저장 후에, 라미네이트 스트립을 인장 시험 기계 상에서 떼어내고, 그렇게 하는데 필요한 힘을 기록하였다. 시험을 인장 시험 기계 상에서 90도의 각도에서 100 ㎜/분의 풀-오프 속도(pull-off speed)로 수행하였다. 시험 스트립의 일측을 갈라지게 하고, 지금 풀린 단부(loose end) 중 하나를 상부 클램프에 클램핑하고, 다른 하나를 인장 시험 기계의 하부 클램프에 클램핑하였고, 시험을 시작하였다.

[0150] 표 2의 마지막 열에 명시된 등급 (+)는 섬유 인열이 관찰되었음을 의미한다.

[0151] 마지막 열에 명시된 등급 (-)는 섬유 인열이 관찰되지 않았음을 의미한다.

[0152] 표 2에 제공된 시험은, 층에 이형제(b4)를 함유하지 않은 라미네이팅 필름이 대략 150 μm의 라미네이팅 필름의 총 층 두께까지의 기재 종이에 대한 매우 양호한 접착성을 나타냄을 보여준다. 에루크산 아미드(b4-1) 또는 스테아르산 아미드(b4-2)가 이형제로서 최대 0.3 중량%의 농도로 사용되는 경우, 기재 종이에 대한 매우 양호한 접착성은 대략 50 내지 60 μm의 라미네이팅 필름의 총 층 두께까지 달성될 수 있다. 다른 한편으로, 베헨산 아미드(b4-3)를 이형제로서 0.2 내지 0.3 중량%의 농도로 사용하는 경우, 종이에 대한 접착성은 17 μm의 라미네이팅 필름 두께에서 이미 적절하지 않다.

[0153] 가정 퇴비화 시험

[0154] 가정 퇴비화성을, 기재된 58℃의 온도 대신에 가정 퇴비화 조건을 시뮬레이션하기 위해 주변 온도(28 ±2℃)에서 프랑스 표준 NF T 51-800 또는 문헌[ISO 14855-1 (2012) "Determination of ultimate aerobic

biodegradability of plastics under controlled composting conditions - Method by analysis of evolved carbon dioxide"]에 따라 시험하였다.

[0155] 실시예 4 및 실시예 12의 대략 60 μm 두께의 라미네이팅 필름의 가정 퇴비화성을 상기 조건 하에서 조사하였고, 각각 116일 및 157일 후에 필름의 완전한(90% 초과) 분해가 관찰되었다. 따라서, 이들 필름은 호주 표준 AS 5810-2010 및 ISO 14855-1(2012)에 따른 가정 퇴비화성의 기준을 충족한다. 따라서, 층 구조 A/B 및 층 B의 조성: I, V 내지 VIII(표 1 참조)을 갖는 더 얇은 필름이 또한 가정 퇴비화 가능한 것으로 가정될 수 있다.