

## 明 細 書

発明の名称：多層容器、及び再生ポリエステル製造方法

### 技術分野

[0001] 本発明は、多層容器、及び再生ポリエステルの製造方法に関する。

### 背景技術

[0002] 芳香族ジカルボン酸化合物と脂肪族ジオール化合物とをモノマーとして使用して得られる芳香族ポリエステル樹脂は、透明性、機械的性能、溶融安定性、耐溶剤性、保香性、ガスバリア性、リサイクル性等に優れるという特長を有している。そのため、ポリエチレンテレフタレート（PET）等の芳香族ポリエステル樹脂は、フィルム、シート、中空容器等の各種包装材料に広く利用されている。ポリエステル樹脂は高いガスバリア性を有するが、更なる酸素、炭酸ガス等に対するガスバリア性が求められる用途にとっては必ずしも十分ではない。そのため、ポリエステル樹脂のガスバリア性を改善する手段として、酸化アルミニウムや酸化珪素をポリエステル樹脂からなる成形体や包装容器に蒸着することや、高いガスバリア性能を有する樹脂をポリエステル樹脂からなる成形体や包装容器に塗布、積層、あるいは溶融混合することが行われている。

[0003] ガスバリア性樹脂としては、ナイロン6、ナイロン66等のポリアミド樹脂やエチレンービニルアルコール共重合体が挙げられる。ポリアミド樹脂のなかでも、とりわけキシリレンジアミンを主成分とするジアミン成分と脂肪族ジカルボン酸を主成分とするジカルボン酸成分とを重合して得られるキシリレン基含有ポリアミド樹脂はガスバリア性に優れる。キシリレン基含有ポリアミド樹脂は、高いガスバリア性を有する上に、広く利用されているポリエステル樹脂であるポリエチレンテレフタレートと、ガラス転移温度、融点、結晶性が近似していることから、ポリエステル樹脂に積層、溶融混合しやすい。このことから、ポリエステル樹脂のガスバリア性を改善するための材料として、キシリレン基含有ポリアミド樹脂は非常に適している。

[0004] しかしながら、ポリアミド層を有する多層のポリエステル容器は、熱履歴による黄変がポリエステル単体と比較して進行しやすい。そのため、特に容器を回収して樹脂を再利用するリサイクル工程で黄色化が生じる。これは包装容器の商品価値を低下させる要因となるため、黄変を抑制する検討が行われている。

たとえば、特許文献1には、リサイクル時の再生ポリエステルの黄変の抑制を目的として、ポリエステル樹脂及び特定量の酸化防止剤を含有するポリエステル樹脂組成物層と、特定のポリアミド樹脂及び特定量のコバルト塩を含有するポリアミド樹脂組成物層と、を有する多層容器が開示されている。

### 先行技術文献

#### 特許文献

[0005] 特許文献1：特開2018-043773号公報

#### 発明の概要

#### 発明が解決しようとする課題

[0006] 前記のようにポリアミドを含有するポリエステル樹脂の容器は黄変が進行しやすく、これをリサイクルして得られる再生ポリエステルも黄色味を帯びるものとなっていた。その黄変を抑制するための方法として、たとえば、特許文献1に挙げられるように、容器への酸化防止剤の添加などが行われているが、得られる再生ポリエステルの無色性はいまだ十分ではなかった。更に再生ポリエステルはリサイクル工程を経るため、曇りを生じやすく、透明性の向上も求められていた。

そこで、本発明は、多層容器をリサイクルして得られる再生ポリエステルの黄変を抑制でき、かつ該再生ポリエステルの透明性にも優れる多層容器を提供することを課題とする。

#### 課題を解決するための手段

[0007] 本発明者らは、上記課題に鑑みて鋭意検討した結果、ポリアミド層を有し、更にフェノール系酸化防止剤と特定のリン系酸化防止剤とをポリエステル

層に含有させた多層容器が、前記課題を解決できることを見出し、本発明を完成させるに至った。

本発明は、以下の〔１〕～〔１８〕を提供する。

[0008] 〔１〕 ポリエステル樹脂（Ｘ）、フェノール系酸化防止剤（Ａ）及びリン系酸化防止剤（Ｂ）を含有するポリエステル層、又はポリエステル樹脂（Ｘ）、フェノール系酸化防止剤（Ａ）、リン系酸化防止剤（Ｂ）及びアルデヒドキャッチャー（Ｃ）を含有するポリエステル層と、ポリアミド樹脂（Ｙ）を含有するポリアミド層とを有し、ポリエステル層中のフェノール系酸化防止剤（Ａ）、リン系酸化防止剤（Ｂ）及びアルデヒドキャッチャー（Ｃ）の合計含有量が０．０５～０．２２質量％であり、リン系酸化防止剤（Ｂ）が、ペンタエリスリトール骨格及び芳香環を有する化合物である多層容器。

〔２〕 ポリエステル層中のフェノール系酸化防止剤（Ａ）及びリン系酸化防止剤（Ｂ）の合計含有量が０．０５～０．２２質量％である、前記〔１〕に記載の多層容器。

〔３〕 リン系酸化防止剤（Ｂ）の含有量に対するフェノール系酸化防止剤（Ａ）の含有量の質量比〔（Ａ）／（Ｂ）〕が、２／８～５／５である、前記〔１〕又は〔２〕に記載の多層容器。

〔４〕 前記ポリエステル層がアルデヒドキャッチャー（Ｃ）を含有する、前記〔１〕～〔３〕のいずれか１つに記載の多層容器。

〔５〕 アルデヒドキャッチャー（Ｃ）がアントラニルアミドである、前記〔１〕～〔４〕のいずれか１つに記載の多層容器。

〔６〕 ポリエステル層中のアルデヒドキャッチャー（Ｃ）の含有量が０．００５～０．１２０質量％である、前記〔１〕～〔５〕のいずれか１つに記載の多層容器。

〔７〕 ポリアミド樹脂（Ｙ）が、キシリレンジアミンに由来する構成単位を８０モル％以上含有するジアミンに由来する構成単位と、アジピン酸に由来する構成単位を８０モル％以上含有するジカルボン酸に由来する構成単位とを有する、前記〔１〕～〔６〕のいずれか１つに記載の多層容器。

〔８〕 ポリアミド樹脂（Ｙ）の含有量が、全ポリアミド層及び全ポリエステル層の合計量に対して、０．０５～１０．０質量％である、前記〔１〕～〔７〕のいずれか１つに記載の多層容器。

〔９〕 ポリアミド層の含有量が、全ポリアミド層及び全ポリエステル層の合計量に対して、０．０５～１０．０質量％である、前記〔１〕～〔８〕のいずれか１つに記載の多層容器。

〔１０〕 ポリエステル樹脂（Ｘ）が、テレフタル酸に由来する構成単位を８０モル％以上含有するジカルボン酸に由来する構成単位と、エチレングリコールに由来する構成単位を８０モル％以上含有するジオールに由来する構成単位とを有する、前記〔１〕～〔９〕のいずれか１つに記載の多層容器。

〔１１〕 多層容器が中空容器である、前記〔１〕～〔１０〕のいずれか１つに記載の多層容器。

〔１２〕 多層容器が３～５層構造を有し、最外層と最内層がポリエステル層である、前記〔１〕～〔１１〕のいずれか１つに記載の多層容器。

〔１３〕 ポリエステル樹脂（Ｘ）、フェノール系酸化防止剤（Ａ）、リン系酸化防止剤（Ｂ）及びアルデヒドキャッチャー（Ｃ）を含有するポリエステル層と、ポリアミド樹脂（Ｙ）を含有するポリアミド層とを有し、リン系酸化防止剤（Ｂ）が、ペンタエリスリトール骨格及び芳香環を有する化合物であり、アルデヒドキャッチャー（Ｃ）がアントラニルアミドであり、ポリエステル層中のフェノール系酸化防止剤（Ａ）、リン系酸化防止剤（Ｂ）及びアルデヒドキャッチャー（Ｃ）の合計含有量が０．０５～０．２２質量％であり、ポリエステル層中のアルデヒドキャッチャー（Ｃ）の含有量が０．００５～０．１２０質量％であり、リン系酸化防止剤（Ｂ）の含有量に対するフェノール系酸化防止剤（Ａ）の含有量の質量比〔（Ａ）／（Ｂ）〕が、２／８～５／５である、多層容器。

〔１４〕 前記〔１〕～〔１３〕のいずれか１つに記載の多層容器からポリエステルを回収する工程を有する、再生ポリエステルの製造方法。

〔１５〕 ポリエステルを回収する工程の後に、結晶化工程及び固相重合工程

から選ばれる1つ以上の工程を行う、前記〔14〕に記載の再生ポリエステル  
の製造方法。

〔16〕多層容器から前記ポリアミド層の全部又は一部を除去して、前記ポ  
リエステルを回収する工程を有する、前記〔14〕又は〔15〕に記載の再  
生ポリエステルの製造方法。

〔17〕前記ポリアミド層の除去を、前記多層容器を粉砕した後、風選分離  
にて行う、前記〔16〕に記載の再生ポリエステルの製造方法。

〔18〕前記多層容器又はその粉砕物をアルカリ性の水溶液で洗浄し、ポリ  
エステルを回収する工程を有する、前記〔14〕～〔17〕のいずれか1つ  
に記載の再生ポリエステルの製造方法。

### 発明の効果

[0009] 本発明によれば、多層容器をリサイクルして得られる再生ポリエステルの  
黄変を抑制でき、かつ該再生ポリエステルの透明性にも優れる多層容器を提  
供することができる。

### 発明を実施するための形態

[0010] [多層容器]

本発明の多層容器は、ポリエステル樹脂（X）、フェノール系酸化防止剤  
（A）及びリン系酸化防止剤（B）を含有するポリエステル層、又はポリエ  
ステル樹脂（X）、フェノール系酸化防止剤（A）、リン系酸化防止剤（B  
）及びアルデヒドキャッチャー（C）を含有するポリエステル層と、ポリア  
ミド樹脂（Y）を含有するポリアミド層とを有し、ポリエステル層中のフェ  
ノール系酸化防止剤（A）、リン系酸化防止剤（B）及びアルデヒドキャ  
ッチャー（C）の合計含有量が0.05～0.22質量%であり、リン系酸化  
防止剤（B）が、ペンタエリスリトール骨格及び芳香環を有する化合物であ  
る多層容器である。

より具体的には、本発明の多層容器は、ポリエステル樹脂（X）、フェノ  
ール系酸化防止剤（A）及びリン系酸化防止剤（B）を含有し、アルデヒド  
キャッチャー（C）を含有しないポリエステル層と、ポリアミド樹脂（Y）

を含有するポリアミド層とを有し、ポリエステル層中のフェノール系酸化防止剤（A）及びリン系酸化防止剤（B）の合計含有量が0.05～0.22質量%であり、リン系酸化防止剤（B）が、ペンタエリスリトール骨格及び芳香環を有する化合物である多層容器を含み、更に、本発明の多層容器は、ポリエステル樹脂（X）、フェノール系酸化防止剤（A）、リン系酸化防止剤（B）及びアルデヒドキャッチャー（C）を含有するポリエステル層と、ポリアミド樹脂（Y）を含有するポリアミド層とを有し、ポリエステル層中のフェノール系酸化防止剤（A）、リン系酸化防止剤（B）及びアルデヒドキャッチャー（C）の合計含有量が0.05～0.22質量%であり、リン系酸化防止剤（B）が、ペンタエリスリトール骨格及び芳香環を有する化合物である多層容器が含まれる。

本発明の多層容器が、リサイクルして得られる再生ポリエステルの黄変を抑制でき、かつ該再生ポリエステルの透明性にも優れる理由は定かではないが、次のように考えられる。リサイクル時の黄変を抑制するために、多層容器に酸化防止剤を配合した場合、容器の使用時、また、リサイクル時の洗浄時に、容器中の酸化防止剤が加水分解したり、流出してしまい、その効果を十分に発揮することは難しい。本発明の多層容器では、フェノール系酸化防止剤と、ペンタエリスリトール骨格及び芳香環を有するリン系酸化防止剤を併用することで、加水分解等の影響を抑えることができ、ポリアミド層を有する容器であっても、無色性、透明性に優れる再生ポリエステルを得ることができると考えられる。

[0011] ＜ポリエステル層＞

ポリエステル層は、ポリエステル樹脂（X）、フェノール系酸化防止剤（A）及びリン系酸化防止剤（B）を含有する。

[0012] （ポリエステル樹脂（X））

ポリエステル層が含有するポリエステル樹脂（X）は、ジカルボン酸とジオールとの重縮合ポリマーが好ましく、ジカルボン酸に由来する構成単位（ジカルボン酸単位）とジオールに由来する構成単位（ジオール単位）とを有

することが好ましい。

- [0013] ジカルボン酸単位としては、芳香族ジカルボン酸に由来する構成単位、脂環式ジカルボン酸に由来する構成単位、脂肪族ジカルボン酸に由来する構成単位が挙げられ、芳香族ジカルボン酸に由来する構成単位が好ましい。

芳香族ジカルボン酸としては、テレフタル酸、イソフタル酸、オルトフタル酸、ビフェニルジカルボン酸、ジフェニルエーテルジカルボン酸、ジフェニルスルホンジカルボン酸、ジフェニルケトンジカルボン酸、2, 6-ナフタレンジカルボン酸、1, 4-ナフタレンジカルボン酸及び2, 7-ナフタレンジカルボン酸等が挙げられ、コストと製造の容易性の観点から、テレフタル酸、イソフタル酸、オルトフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、及び4, 4'-ビフェニルジカルボン酸が好ましく、テレフタル酸、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸がより好ましく、成形性の観点から、テレフタル酸及びイソフタル酸が更に好ましく、テレフタル酸がより更に好ましい。

本発明の多層容器をリサイクルする際には、従来のポリエステル樹脂からなる単層容器と溶融混練されることがある。ジカルボン酸単位として、テレフタル酸由来の単位を有することで、本発明の多層容器と従来の単層容器の相溶性が良好となり、リサイクル性が良好となる。

- [0014] 芳香族ジカルボン酸として、スルホフタル酸、スルホフタル酸金属塩を用いてもよい。スルホフタル酸金属塩は、スルホフタル酸の金属塩であり、該金属原子としては、アルカリ金属、アルカリ土類金属が挙げられる。

脂環式ジカルボン酸としては、シクロヘキサンジカルボン酸、ノルボルネンジカルボン酸及びトリシクロデカンジカルボン酸等が挙げられる。

脂肪族ジカルボン酸としては、マロン酸、コハク酸、アジピン酸、アゼライン酸及びセバシン酸等が挙げられる。

- [0015] ジオール単位としては、脂肪族ジオールに由来する構成単位、脂環式ジオールに由来する構成単位、芳香族ジオールに由来する構成単位が挙げられ、脂肪族ジオールに由来する構成単位が好ましい。

脂肪族ジオールとしては、エチレングリコール、2-ブテン-1, 4-ジ

オール、トリメチレングリコール、テトラメチレングリコール、ヘキサメチレングリコール、ネオペンチルグリコール、メチルペンタンジオール及びジエチレングリコールが挙げられる。これらの中では、エチレングリコールが好ましい。

脂環式ジオールとしては、シクロヘキサンジメタノール、イソソルビド、スピログリコール、2, 2, 4, 4-テトラメチル-1, 3-シクロブタンジオール、ノルボルネンジメタノール及びトリシクロデカンジメタノールが挙げられる。

芳香族ジオールとしては、ビスフェノール化合物及びヒドロキノン化合物が挙げられる。

[0016] ポリエステル樹脂 (X) は、ヒドロキシカルボン酸に由来する構成単位を有していてもよい。

ヒドロキシカルボン酸としては、脂肪族ヒドロキシカルボン酸、脂環式ヒドロキシカルボン酸、芳香族ヒドロキシカルボン酸が挙げられる。

脂肪族ヒドロキシカルボン酸としては、10-ヒドロキシオクタデカン酸、乳酸、ヒドロキシアクリル酸、2-ヒドロキシ-2-メチルプロピオン酸及びヒドロキシブチル酸等が挙げられる。

脂環式ヒドロキシカルボン酸としては、ヒドロキシメチルシクロヘキサンカルボン酸、ヒドロキシメチルノルボルネンカルボン酸及びヒドロキシメチルトリシクロデカンカルボン酸等が挙げられる。

芳香族ヒドロキシカルボン酸としては、ヒドロキシ安息香酸、ヒドロキシトルイル酸、ヒドロキシナフト酸、3-(ヒドロキシフェニル)プロピオン酸、ヒドロキシフェニル酢酸及び3-ヒドロキシ-3-フェニルプロピオン酸等が挙げられる。

[0017] ポリエステル樹脂 (X) は、単官能性化合物由来の構成単位及び多官能性化合物由来の構成単位を有していてもよい。

単官能性化合物としては、モノカルボン酸、モノアルコールが挙げられ、具体的には、芳香族モノカルボン酸、脂肪族モノカルボン酸、芳香族モノア

ルコール、脂肪族モノアルコール、脂環式モノアルコール等が挙げられる。

多官能性化合物としては、芳香族ポリカルボン酸、脂環式ポリカルボン酸、脂肪族多価アルコール、脂環式多価アルコール及びそれらのエステル体が挙げられる。

[0018] ポリエステル樹脂（X）は、テレフタル酸に由来する構成単位を含有するジカルボン酸に由来する構成単位と、エチレングリコールに由来する構成単位を含有するジオールに由来する構成単位とを有することが好ましく、テレフタル酸に由来する構成単位を80モル%以上含有するジカルボン酸に由来する構成単位と、エチレングリコールに由来する構成単位を80モル%以上含有するジオールに由来する構成単位とを有することがより好ましく、テレフタル酸に由来する構成単位を90モル%以上含有するジカルボン酸に由来する構成単位と、エチレングリコールに由来する構成単位を90モル%以上含有するジオールに由来する構成単位とを有することが更に好ましく、テレフタル酸に由来する構成単位を98モル%以上含有するジカルボン酸に由来する構成単位と、エチレングリコールに由来する構成単位を実質的に100モル%含有するジオールに由来する構成単位とを有することがより更に好ましい。

ポリエステル樹脂（X）の具体例としては、ポリエチレンテレフタレート（PET）が挙げられる。

[0019] ポリエチレンテレフタレート（PET）は、テレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸由来の構成単位を含んでもよい。テレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸としては、イソフタル酸、オルトフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、及び4，4'-ビフェニルジカルボン酸から選ばれる1種以上であることが好ましい。これらはコストが低く、また、これらを含む共重合ポリエステル樹脂は、製造が容易である。

なかでも、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸が好ましく、イソフタル酸がより好ましい。イソフタル酸由来の構成単位を含むポリエチレンテレフタレートは、成形性に優れ、また、結晶化速度が遅くなることによって、

成形品の白化を防ぐという点で優れている。また、ナフタレンジカルボン酸由来の構成単位を含むポリエチレンテレフタレートは、樹脂のガラス転移点を上昇させ、耐熱性が向上するうえ、紫外線を吸収するため、紫外線に対して耐性が求められる多層容器の製造に好適に使用される。なお、ナフタレンジカルボン酸としては、2, 6-ナフタレンジカルボン酸成分が、製造が容易であり経済性が高いことから好ましい。

ポリエチレンテレフタレートがテレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸由来の構成単位を含む場合、テレフタル酸以外の芳香族ジカルボン酸由来の構成の割合は、ジカルボン酸単位の1～20モル%であることが好ましく、1～10モル%であることがより好ましく、1～5モル%であることが更に好ましい。

[0020] なお、ポリエステル樹脂(X)は、1種単独で使用してもよいし、2種以上の樹脂を併用してもよい。

ポリエステル樹脂(X)は、公知の方法である直接エステル化法やエステル交換法で製造することができる。

[0021] ポリエステル樹脂(X)の固有粘度は、好ましくは0.5～2.0 dL/g、より好ましくは0.6～1.5 dL/gである。固有粘度が0.5 dL/g以上であると容器の機械的性質が優れる。

なお、固有粘度は、フェノール/1, 1, 2, 2-テトラクロロエタン(=6/4質量比)混合溶媒に、ポリエステル樹脂を溶解して0.2、0.4、0.6 g/dL溶液を調製し、25℃にて自動粘度測定装置(マルバーン製、Viscotek)により測定する。

[0022] (フェノール系酸化防止剤(A))

本発明の多層容器を構成するポリエステル層にはフェノール系酸化防止剤(A)を含有する。

フェノール系酸化防止剤(A)のポリエステル層中の含有量は、効果的に再生ポリエステルの無色性と透明性を良好にする観点から、ポリエステル層全体に対して、好ましくは0.005～0.150質量%であり、より好ま

しくは0.010~0.100質量%であり、更に好ましくは0.015~0.080質量%であり、より更に好ましくは0.015~0.050質量%であり、より更に好ましくは0.020~0.040質量%であり、より更に好ましくは0.020~0.030質量%である。

[0023] フェノール系酸化防止剤(A)は、分子中の芳香環に水酸基が結合したフェノール構造を有する酸化防止剤である。分子中に含まれるフェノール構造は2つ以上が好ましく、3つ以上がより好ましい。

[0024] フェノール系酸化防止剤(A)の具体例としては、ペンタエリスリトールテトラキス[3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート](Irganox 1010、BASF社製)、3,9-ビス[2-[3-(3-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)プロピオニルオキシ]-1,1-ジメチルエチル]-2,4,8,10-テトラオキサスピロ[5.5]ウンデカン(スミライザーGA-80、住友化学株式会社製)、オクタデシル-3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、チオジエチレンビス[3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、N,N'-ヘキサ-1,6-ジイルビス[3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニルプロピオナミド)]、2,4-ジメチル-6-(1-メチルペンタデシル)フェノール、ジエチル[[3,5-ビス(1,1-ジメチルエチル)-4-ヒドロキシフェニル]メチル]ホスフォエート、3,3',3'',5,5',5''-ヘキサ-tert-ブチル-a,a',a''-(メシチレン-2,4,6-トリイル)トリ-p-クレゾール、4,6-ビス(オクチルチオメチル)-o-クレゾール、エチレンビス(オキシエチレン)ビス[3-(5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-m-トリル)プロピオネート]、ヘキサメチレンビス[3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、N,N'-ヘキサメチレンビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-ヒドロシンナミド)、1,3,5-トリ(3,5-ジ-tert-ブチル

ー4ーヒドロキシベンジル)ー1, 3, 5ートリアジンー2, 4, 6 (1 H, 3 H, 5 H)ートリオン, 2, 6ージーtertーブチルー4ー(4, 6ービス(オクチルチオ)ー1, 3, 5ートリアジンー2ーイルアミノ)フェノール等が挙げられる。これらは、1種単独で使用してもよく、2種以上を併用してもよい。これらのなかでも、効果的に再生ポリエステルの無色透明性を良好にする観点から、ペンタエリスリトールテトラキス[3ー(3, 5ージーtertーブチルー4ーヒドロキシフェニル)プロピオネート](Irganox 1010、BASF社製)が好ましい。

[0025] (リン系酸化防止剤(B))

本発明の多層容器を構成するポリエステル層にはリン系酸化防止剤(B)を含有する。なお、本発明に用いられるリン系酸化防止剤(B)は、ペンタエリスリトール骨格及び芳香環を有する化合物である。

リン系酸化防止剤(B)のポリエステル層中の含有量は、効果的に再生ポリエステルの無色性と透明性を良好にする観点から、ポリエステル層全体に対して、好ましくは0.015~0.220質量%であり、より好ましくは0.030~0.150質量%であり、更に好ましくは0.045~0.150質量%であり、より更に好ましくは0.045~0.150質量%であり、より更に好ましくは0.060~0.120質量%であり、より更に好ましくは0.060~0.090質量%である。

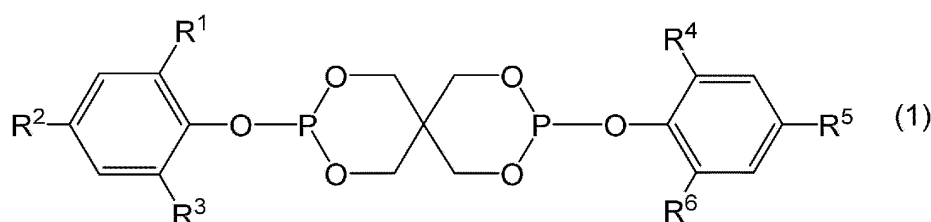
また、ポリエステル層中のフェノール系酸化防止剤(A)及びリン系酸化防止剤(B)の合計含有量は、効果的に再生ポリエステルの無色性と透明性を良好にする観点から、ポリエステル層全体に対して、好ましくは0.04~0.22質量%であり、より好ましくは0.05~0.22質量%であり、更に好ましくは0.05~0.22質量%であり、より更に好ましくは0.05~0.22質量%であり、より更に好ましくは0.07~0.22質量%であり、特に再生ポリエステルの無色性を維持しつつ、透明性を高める観点から、より更に好ましくは0.07~0.16質量%であり、より更に好ましくは0.08~0.16質量%であり、より更に好ましくは0.08

～0.12質量％である。

また、リン系酸化防止剤（B）の含有量に対するフェノール系酸化防止剤（A）の含有量の質量比〔（A）／（B）〕は、効果的に再生ポリエステルの無色透明性を良好にする観点から、好ましくは1／9～6／4であり、より好ましくは1／9～5／5であり、更に好ましくは2／8～5／5であり、より更に好ましくは2／8～4／6である。

[0026] リン系酸化防止剤（B）は、ペンタエリスリトール骨格及び芳香環を有する化合物であり、分子中にペンタエリスリトール骨格と芳香環を有するものであればよいが、好ましくは下記一般式（1）で表される化合物である。下記一般式（1）で表される化合物は、ビス（置換フェニル）ペンタエリスリトールジホスファイトである。リン系酸化防止剤（B）は、1種単独で使用してもよく、2種以上を併用してもよい。

[化1]



（式中、 $R^1 \sim R^6$ はそれぞれ水素原子、又は炭素数1～10の炭化水素基である。）

[0027] 式（1）において、 $R^1$ と $R^4$ は同一でも異なってもよいが、同一であることが好ましい。式（1）において、 $R^2$ と $R^5$ は同一でも異なってもよいが、同一であることが好ましい。式（1）において、 $R^3$ と $R^6$ は同一でも異なってもよいが、同一であることが好ましい。

$R^1$ 及び $R^4$ は、水素原子又は炭素数1～10の炭化水素基であり、好ましくは炭素数1～4のアルキル基、ベンジル基、フェニルエチル基、クミル基であり、より好ましくは炭素数4のアルキル基、クミル基であり、更に好ましくはtert-ブチル基、クミル基であり、より更に好ましくはクミル基である。

$R^2$ 及び $R^5$ は、水素原子又は炭素数1～10の炭化水素基であり、好ましくは炭素数1～4のアルキル基、ベンジル基、フェニルエチル基、クミル基であり、より好ましくは炭素数1～3のアルキル基、クミル基であり、更に好ましくはメチル基、クミル基であり、より更に好ましくはクミル基である。

$R^3$ 及び $R^6$ は、水素原子又は炭素数1～10の炭化水素基であり、好ましくは水素原子、炭素数1～4のアルキル基、ベンジル基、フェニルエチル基、クミル基である。 $R^1$ 及び $R^4$ がtert-ブチル基である場合、 $R^3$ 及び $R^6$ はtert-ブチル基が好ましく、 $R^1$ 及び $R^4$ がクミル基である場合、 $R^3$ 及び $R^6$ は水素原子が好ましい。

[0028] リン系酸化防止剤(B)としては、ビス(ノニルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス(2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス(2, 6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス(2, 4-ジクミルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト等が挙げられる。これらのなかでも、効果的に再生ポリエステルが無色透明性を良好にする観点から、ビス(2, 6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス(2, 4-ジクミルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイトが好ましく、ビス(2, 4-ジクミルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイトがより好ましい。

[0029] (アルデヒドキャッチャー(C))

前記ポリエステル層は、好ましくは、更にアルデヒドキャッチャー(C)を含有する。すなわち、本発明の多層容器は、好ましくは、ポリエステル樹脂(X)、フェノール系酸化防止剤(A)、リン系酸化防止剤(B)及びアルデヒドキャッチャー(C)を含有するポリエステル層と、ポリアミド樹脂(Y)を含有するポリアミド層とを有し、リン系酸化防止剤(B)が、ペンタエリスリトール骨格及び芳香環を有する化合物である多層容器である。

[0030] アルデヒドキャッチャー(C)は、再生ポリエステル樹脂を得るにあたり、アルデヒドを捕捉し、再生工程における黄変を抑制する効果を有する化合

物である。

アルデヒドキャッチャー（C）としては、ポリエステル樹脂の黄変を抑制する能力を有し、かつ、アミノ基を含有する化合物が例示され、具体的には、アミノベンズアミド、アミノ安息香酸、ジアミノ安息香酸、及びナイロン6 I / 6 Tよりなる群から選択される少なくとも1つの化合物であることが好ましく、アントラニルアミド、アントラニル酸、及びナイロン6 I / 6 Tよりなる群から選択される少なくとも1つの化合物であることがより好ましい。

アミノベンズアミドは、アミノ基が2位～4位のいずれに置換していてもよいが、2位又は3位に置換していることが好ましく、アントラニルアミド（2-アミノベンズアミド）であることが好ましい。

また、アミノ安息香酸は、アミノ基が2位、3位又は4位のいずれに置換していてもよいが、2位又は3位に置換していることが好ましく、2位に置換していることがより好ましく、アントラニル酸（2-アミノ安息香酸）であることがより好ましい。

また、ジアミノ安息香酸は、2, 3-, 2, 4-, 3, 4-のいずれに置換していてもよいが、3, 4-ジアミノ安息香酸が好ましい。

[0031] ナイロン6 I / 6 Tは、ヘキサメチレンジアミン-イソフタル酸-テレフタル酸共重合ポリアミドであり、ヘキサメチレンイソフタルアミド/ヘキサメチレンテレフタルアミドコポリマーである。ナイロン6 I / 6 Tとしては、市販されている製品を使用してもよく、例えば、S e l a r （登録商標） P A 3 4 2 6（DuPont社製）、NOVAMID X21（DSM社製）が例示される。

ナイロン6 I / 6 Tの重量平均分子量は、好ましくは10,000～50,000であり、より好ましくは15,000～45,000であり、更に好ましくは20,000～40,000である。重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィ法にて測定し、ポリスチレンにて換算した値である。ナイロン6 I / 6 Tの重量平均分子量が上記範囲内であると、ポ

リエステル樹脂との相溶性に優れるほか、容器とした際に内容物への溶出が抑えられ、また、黄変が効果的に抑制される。

また、ナイロン6Ⅰ／6Ⅱのアミノ末端基濃度は、好ましくは50～350  $\mu\text{mol/g}$ であり、より好ましくは100～300  $\mu\text{mol/g}$ であり、更に好ましくは150～250  $\mu\text{mol/g}$ である。ナイロン6Ⅰ／6Ⅱのアミノ末端基濃度が上記範囲内であると、再生ポリエステルの黄変の抑制作用に優れる。

前記アミノ末端基濃度は、ナイロン6Ⅰ／6Ⅱを精秤し、フェノール／エタノール＝4／1容量溶液に20～30℃で攪拌溶解させ、完全に溶解した後、攪拌しつつ、メタノール5 mLで容器内壁を洗い流し、0.01 mol/L塩酸水溶液で中和滴定することで求められる。

[0032] また、上述のアミノベンズアミド、アミノ安息香酸、ジアミノ安息香酸、及びナイロン6Ⅰ／6Ⅱ以外のアルデヒドキャッチャー（C）として、サリチルアミド、サリチルアニリド、*o*-フェニレンジアミン、1,8-ジアミノナフタレン、*o*-メルカプトベンズアミド、N-アセチルグリシンアミド、マロンアミド、3-メルカプト-1,2-プロパンジオール、ヒスチジン、トリプトファン、4-アミノ-3-ヒドロキシ安息香酸、ビウレット、2,3-ジアミノピリジン、1,2-ジアミノアントラキノ-9,10-ジオン、アラントイン、2-アミノ-2-メチル-1,3-プロパンジオールが例示される。

[0033] アルデヒドキャッチャー（C）は1種単独で使用してもよく、2種以上を併用してもよい。

アルデヒドキャッチャー（C）としては、アントラニルアミド及びナイロン6Ⅰ／6Ⅱよりなる群から選択される少なくとも1つの化合物であることが好ましく、アントラニルアミド又はナイロン6Ⅰ／6Ⅱであることがより好ましく、アントラニルアミドであることが更に好ましい。

[0034] ポリエステル層中のアルデヒドキャッチャー（C）の含有量は、効果的に黄変を抑制する観点から、ポリエステル層全体に対して、好ましくは0.0

0.3～0.150質量%であり、より好ましくは0.005～0.150質量%であり、更に好ましくは0.005～0.120質量%であり、より更に好ましくは0.005～0.100質量%であり、より更に好ましくは0.005～0.080質量%であり、より更に好ましくは0.010～0.070質量%であり、より更に好ましくは0.020～0.060質量%である。

[0035] また、ポリエステル層中のフェノール系酸化防止剤（A）、リン系酸化防止剤（B）及びアルデヒドキャッチャー（C）の合計含有量は、効果的に黄変を抑制する観点から、ポリエステル層全体に対して、0.05～0.22質量%であり、好ましくは0.07～0.22質量%であり、特に再生ポリエステルが無色性を維持しつつ、透明性を高める観点から、より好ましくは0.07～0.16質量%であり、更に好ましくは0.08～0.16質量%であり、より更に好ましくは0.08～0.12質量%である。

[0036] 以上のことから、本発明の多層容器として、ポリエステル樹脂（X）、フェノール系酸化防止剤（A）、リン系酸化防止剤（B）及びアルデヒドキャッチャー（C）を含有するポリエステル層と、ポリアミド樹脂（Y）を含有するポリアミド層とを有し、リン系酸化防止剤（B）が、ペンタエリスリトール骨格及び芳香環を有する化合物であり、アルデヒドキャッチャー（C）がアントラニルアミドであり、ポリエステル層中のフェノール系酸化防止剤（A）、リン系酸化防止剤（B）及びアルデヒドキャッチャー（C）の合計含有量が0.05～0.22質量%であり、ポリエステル層中のアルデヒドキャッチャー（C）の含有量が0.005～0.150質量%であり、リン系酸化防止剤（B）の含有量に対するフェノール系酸化防止剤（A）の含有量の質量比  $[(A)/(B)]$  が、 $2/8 \sim 5/5$  である、多層容器が好ましく用いられる。

[0037] （その他の成分）

ポリエステル層には、その他の成分を含有してもよい。その他の成分としては、熱安定剤、光安定剤、防湿剤、防水剤、滑剤、展着剤などが挙げられ

る。

ポリエステル層には、本発明の効果を損なわない範囲で、主成分であるポリエステル樹脂（X）以外の樹脂を含有してもよい。ポリエステル樹脂（X）の含有量は、ポリエステル層全体の樹脂量に対して、好ましくは80～100質量%であり、より好ましくは90～100質量%であり、ポリエステル樹脂（X）のみからなってもよい。

[0038] （ポリエステル層に用いられるポリエステル樹脂組成物）

本発明の多層容器を構成するポリエステル層は、ポリエステル樹脂（X）、フェノール系酸化防止剤（A）及びリン系酸化防止剤（B）を含有し、任意の成分として、アルデヒドキャッチャー（C）等を含有する。したがって、多層容器を形成する際に、これらを含有するポリエステル樹脂組成物を用いることが好ましい。ポリエステル樹脂組成物の製造方法は限定されないが、以下の方法によって製造することが好ましい。

[0039] ポリエステル樹脂（X）、フェノール系酸化防止剤（A）、リン系酸化防止剤（B）及びアルデヒドキャッチャー（C）等を溶融混合して、ポリエステル樹脂組成物を得ることが好ましい。

[0040] フェノール系酸化防止剤（A）、リン系酸化防止剤（B）、アルデヒドキャッチャー（C）及びその他の成分（添加剤）は、そのまま樹脂に添加し、溶融混合してもよいが、液体成分に溶解して、添加剤溶液として樹脂に添加し、溶融混合してもよい。溶液とすることで、計量、添加が容易になるため好ましい。また、ドージングシステム等を用いて添加することができるため、好ましい。添加剤溶液は、マスターバッチとポリエステル樹脂（X）をドライブレンドする際に添加してもよく、ポリエステル樹脂（X）を溶融させた後に添加してもよい。

[0041] 前記添加剤溶液に使用する液体成分は、ポリエステル層を構成する樹脂（ポリエステル樹脂（X）等）に対して、好ましくは0.01～1質量%であり、より好ましくは0.01～0.5質量%である。また、前記添加剤溶液に使用する液体成分は、ポリエステル層を構成するポリエステル樹脂（X）

に対して、好ましくは0.01～1質量%であり、より好ましくは0.01～0.5質量%である。

前記液体成分は液体樹脂や液状油性成分が好ましい。

前記液体樹脂としては、エポキシ化大豆油、エポキシ化アマニ油等のエポキシ系樹脂、脂肪酸ポリエステル樹脂、ポリアルキレングリコール樹脂、ポリエーテルエステル樹脂、またはアセチルクエン酸トリブチル等が挙げられる。

前記液状油性成分としては、オリーブ油、ヒマシ油、ホホバ油、マカデミアナッツ油、カニバラ果実油、カカオ脂、ラノリン等の植物系油；馬油、タートル油、イノシシ油、ミンク油、サメ油などの動物系油；ワセリン、流動パラフィン、イソデカン、イソドデカン、オクチルドデシル、リンゴ酸ジイソステアリル、水添ポリイソブテン等の炭化水素系油；イソノナン酸イソトリデシル、イソステアリン酸イソプロピル、ジカプリン酸ネオペンチルグリコール、イソノナン酸イソトリデシル、ジイソステアリン酸グリセリル、トリイソステアリン酸グリセリル、リンゴ酸ジイソステアリル、オクチルドデカノール、N-ラウロイル-L-グルタミン酸ジ（フィトステリル/2-オクチルドデシル）等のエステル油；ジメチルポリシロキサン、フェニルメチルポリシロキサン等のシリコーン油；ダイマー酸エステル、ダイマージオール誘導体、コレステロール脂肪酸エステル、フィトステロール脂肪酸エステル、ポリグリセリン脂肪酸エステル、ペンタエリスリトール脂肪酸エステル、トリ2-エチルヘキサン酸グリセリル等が挙げられる。

前記添加剤溶液の製造方法は、特に限定されるものではなく、例えば、液体成分と各種添加剤とを加え、ヘンシェルミキサーやタンブラー、ディスペー等で混合し、シルバーソンミキサー（シルバーソン社製）を用いて分散することで、添加剤溶液を得ることができる。分散装置は、上記以外にもニーダー、ロールミル、ボールミル、サンドミル等、任意の装置を使用することができる。

[0042] 溶融混合する方法としては、メルトブレンド（溶融混練）が挙げられる。

また、後述の多層容器を製造する場合、ポリエステル樹脂（X）、フェノール系酸化防止剤（A）、リン系酸化防止剤（B）及びアルデヒドキャッチャー（C）等をドライブレンドしておき、多層プリフォームを得る工程で熔融混合してもよい。

メルトブレンドとしては、マスターバッチ法、及びフルコンパウンド法が挙げられ、樹脂や酸化防止剤の劣化を防ぐ観点から、マスターバッチ法が好ましい。

[0043] マスターバッチ法は、少量の樹脂と、フェノール系酸化防止剤（A）、リン系酸化防止剤（B）及びアルデヒドキャッチャー（C）等を混合してマスターバッチとした後、残部のポリエステル樹脂（X）と混合する方法である。

マスターバッチに用いる樹脂は、ポリエステル樹脂（X）との混和性の点から、ポリエステル樹脂（X）が好ましく、残部のポリエステル樹脂（X）と同じものがより好ましい。

マスターバッチに用いる樹脂の量は、ポリエステル樹脂組成物全体の樹脂量に対して、1～20質量%を用いることが好ましく、3～15質量%を用いることがより好ましい。

[0044] マスターバッチを得る方法として、樹脂、フェノール系酸化防止剤（A）、リン系酸化防止剤（B）及びアルデヒドキャッチャー（C）等を混練する場合、マスターバッチに用いる樹脂の融点を $T_m$ とすると、混練温度（℃）は、混合を十分行う観点から、 $T_m+5\sim T_m+60$ が好ましく、 $T_m+10\sim T_m+50$ がより好ましく、 $T_m+15\sim T_m+40$ が更に好ましい。具体的には、 $245\sim 300^{\circ}\text{C}$ がより更に好ましく、 $250\sim 290^{\circ}\text{C}$ がより更に好ましく、 $255\sim 280^{\circ}\text{C}$ がより更に好ましい。また、混練時間は、混合を十分行う観点から、10～600秒が好ましく、20～400秒がより好ましく、30～300秒が更に好ましい。混練に使用される装置としては、開放型のミキシングロール、非開放型のバンバリーミキサー、ニーダー、連続混練機（単軸混練機、二軸混練機、多軸混練機等）等が挙げられる。

。

[0045] また、マスターバッチと、残部のポリエステル樹脂（X）と熔融混合する方法としては、メルトブレンド（熔融混練）が挙げられる。また、後述の多層容器を製造する場合、マスターバッチと残部のポリエステル樹脂（X）をドライブレンドしておき、多層プリフォームを得る工程で熔融混合してもよい。

[0046] フルコンパウンド法は、樹脂組成物に用いられる全量のポリエステル樹脂（X）と、フェノール系酸化防止剤（A）、リン系酸化防止剤（B）及びアルデヒドキャッチャー（C）等を混練して混合する方法である。

混練温度は、混合を十分行う観点から、255～310℃が好ましく、265～300℃がより好ましく、270～290℃が更に好ましい。また、混練時間は、混合を十分行う観点から、10～600秒が好ましく、20～400秒がより好ましく、30～300秒が更に好ましい。混練に使用される装置としては、開放型のミキシングロール、非開放型のバンバリーミキサー、ニーダー、連続混練機（単軸混練機、二軸混練機、多軸混練機等）等が挙げられる。

[0047] ＜ポリアミド層＞

ポリアミド層は、ポリアミド樹脂（Y）を含有する。

[0048] ポリアミド層中のポリアミド樹脂（Y）の含有量は、ポリアミド層全量に対して、好ましくは70～100質量％であり、ガスバリア性と再生ポリエステルの黄変抑制の観点から、より好ましくは90～100質量％であり、更に好ましくは95～100質量％であり、より更に好ましくは99～100質量％である。ポリアミド層は、ポリアミド樹脂（Y）からなってもよく、ポリアミド樹脂（Y）のみからなってもよい。

ポリアミド層に含まれるポリアミド樹脂（Y）の含有量は、全ポリアミド層及び全ポリエステル層の合計量に対して、好ましくは0.05～10.0質量％であり、ガスバリア性と再生ポリエステルの黄変抑制の観点から、より好ましくは0.5～9.0質量％であり、更に好ましくは1.0～8.0

質量%であり、より更に好ましくは3.0～7.0質量%である。

ポリアミド層の含有量は、全ポリアミド層及び全ポリエステル層の合計量に対して、好ましくは0.05～10.0質量%であり、ガスバリア性と再生ポリエステルの黄変抑制の観点から、より好ましくは0.5～9.0質量%であり、更に好ましくは1.0～8.0質量%であり、より更に好ましくは3.0～7.0質量%である。

[0049] (ポリアミド樹脂(Y))

ポリアミド樹脂(Y)としては、キシリレン基含有ポリアミド樹脂、ナイロン6、ナイロン66、ナイロン666、ナイロン610、ナイロン11、ナイロン12、及びこれらの混合物等が挙げられる。これらのなかでも、ガスバリア性能を向上させることができ、リサイクルの際にポリエステル層と分離しやすいことから、キシリレン基含有ポリアミド樹脂が好ましい。キシリレン基含有ポリアミド樹脂は、キシリレンジアミン由来の構成単位を含むポリアミド樹脂であることが好ましい。

[0050] キシリレン基含有ポリアミド樹脂は、キシリレンジアミンを含むジアミンと、ジカルボン酸とを重縮合したものであり、キシリレンジアミンに由来する構成単位と、ジカルボン酸に由来する構成単位を有する。キシリレン基含有ポリアミド樹脂は、ジアミンに由来する構成単位(ジアミン単位)のうち、キシリレンジアミンに由来する構成単位を50モル%以上有することが好ましく、70モル%以上含有することがより好ましく、80～100モル%含有することが更に好ましく、90～100モル%含有することがより更に好ましい。

キシリレンジアミンは、メタキシリレンジアミン、パラキシリレンジアミン、又はその両方が好ましいが、メタキシリレンジアミンがより好ましい。そして、キシリレン基含有ポリアミド樹脂を構成するジアミン単位は、メタキシリレンジアミン由来の構成単位を50モル%以上含有することが好ましく、70モル%以上含有することがより好ましく、80～100モル%含有することが更に好ましく、90～100モル%含有することがより更に好ま

しい。ジアミン単位中のメタキシリレンジアミン由来の構成単位が上記範囲内であることで、ポリアミド樹脂はガスバリア性がより良好になる。

[0051] キシリレン基含有ポリアミド樹脂におけるジアミン単位は、キシリレンジアミン由来の構成単位のみからなってもよいが、キシリレンジアミン以外のジアミン由来の構成単位を含有していてもよい。ここで、キシリレンジアミン以外のジアミンとしては、エチレンジアミン、テトラメチレンジアミン、ペンタメチレンジアミン、2-メチルペンタンジアミン、ヘキサメチレンジアミン、ヘプタメチレンジアミン、オクタメチレンジアミン、ノナメチレンジアミン、デカメチレンジアミン、ドデカメチレンジアミン、2, 2, 4-トリメチルーヘキサメチレンジアミン、2, 4, 4-トリメチルーヘキサメチレンジアミン等の直鎖又は分岐構造を有する脂肪族ジアミン；1, 3-ビス（アミノメチル）シクロヘキサン、1, 4-ビス（アミノメチル）シクロヘキサン、1, 3-ジアミノシクロヘキサン、1, 4-ジアミノシクロヘキサン、ビス（4-アミノシクロヘキシル）メタン、2, 2-ビス（4-アミノシクロヘキシル）プロパン、ビス（アミノメチル）デカリン、ビス（アミノメチル）トリシクロデカン等の脂環式ジアミン；ビス（4-アミノフェニル）エーテル、パラフェニレンジアミン、ビス（アミノメチル）ナフタレン等の芳香環を有するジアミン類等が挙げられる。

[0052] キシリレン基含有ポリアミド樹脂において、ジカルボン酸単位を構成する化合物としては、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ウンデカン二酸、ドデカン二酸等の炭素数4～20の $\alpha$ ,  $\omega$ -直鎖状脂肪族ジカルボン酸；1, 4-シクロヘキサジカルボン酸等の脂環式ジカルボン酸；ダイマー酸等のその他の脂肪族ジカルボン酸；テレフタル酸、イソフタル酸、オルソフタル酸、キシリレンジカルボン酸、ナフタレンジカルボン酸などの芳香族ジカルボン酸等が挙げられ、炭素数4～20の $\alpha$ ,  $\omega$ -直鎖状脂肪族ジカルボン酸が好ましく、アジピン酸、セバシン酸がより好ましく、バリア性能を良好にする観点からアジピン酸が更に好ましい。

キシリレン基含有ポリアミド樹脂は、ジカルボン酸に由来する構成単位（ジカルボン酸単位）のうち、アジピン酸由来の構成単位を50モル%以上含有することが好ましく、70モル%以上含有することがより好ましく、80～100モル%含有することが更に好ましく、90～100モル%含有することがより更に好ましい。

[0053] すなわち、ポリアミド樹脂（Y）は、キシリレンジアミンに由来する構成単位を50モル%以上含有するジアミンに由来する構成単位と、アジピン酸に由来する構成単位を50モル%以上含有するジカルボン酸に由来する構成単位とを有することが好ましく、キシリレンジアミンに由来する構成単位を80モル%以上含有するジアミンに由来する構成単位と、アジピン酸に由来する構成単位を80モル%以上含有するジカルボン酸に由来する構成単位とを有することがより好ましく、キシリレンジアミンに由来する構成単位を90モル%以上含有するジアミンに由来する構成単位と、アジピン酸に由来する構成単位を90モル%以上含有するジカルボン酸に由来する構成単位とを有することが更に好ましい。

キシリレンジアミンとしては、メタキシリレンジアミンが好ましい。

また、アジピン酸を除く残部のジカルボン酸単位としては、炭素数4～20の $\alpha$ ,  $\omega$ -直鎖状脂肪族ジカルボン酸に由来する構成単位が好ましい。

[0054] また、好ましいキシリレン基含有ポリアミド樹脂としては、ジアミン単位の70モル%以上がキシリレンジアミン（好ましくはメタキシリレンジアミン）に由来する構成単位であり、ジカルボン酸単位の70～99モル%がアジピン酸に由来する構成単位であり、かつ、1～30モル%がイソフタル酸に由来する構成単位であるポリアミド樹脂を例示することもできる。前記ポリアミド樹脂は、ジアミン単位の80モル%以上がキシリレンジアミン（好ましくはメタキシリレンジアミン）に由来する構成単位であり、ジカルボン酸単位の80～99モル%がアジピン酸に由来する構成単位であり、かつ、1～20モル%がイソフタル酸に由来する構成単位であるポリアミド樹脂であることが好ましく、ジアミン単位の90モル%以上がキシリレンジアミン

(好ましくはメタキシリレンジアミン)に由来する構成単位であり、ジカルボン酸単位の80～99モル%がアジピン酸に由来する構成単位であり、かつ、1～20モル%がイソフタル酸に由来する構成単位であるポリアミド樹脂であることがより好ましい。

ジカルボン酸単位としてイソフタル酸単位を加えることで融点が低下し、成形加工温度を下げるができるため成形中の熱劣化を抑制することができ、また、結晶化時間を遅延することより延伸成形性が向上する。

[0055] 前記のジアミン及びジカルボン酸以外にも、キシリレン基含有ポリアミド樹脂を構成する成分として、本発明の効果を損なわない範囲で、 $\epsilon$ -カプロラクタムやラウロラクタム等のラクタム類、アミノカプロン酸、アミノウンデカン酸等の脂肪族アミノカルボン酸類；p-アミノメチル安息香酸のような芳香族アミノカルボン酸も共重合成分として用いることができる。

[0056] キシリレン基含有ポリアミド樹脂は、熔融状態での重縮合反応（以下、「熔融重縮合」と記載することがある。）により製造することが好ましい。例えば、ジアミンとジカルボン酸とからなるナイロン塩を水の存在下に、加圧法で昇温し、水を除きながら熔融状態で重合させる方法により製造することが好ましい。また、ジアミンを熔融状態のジカルボン酸に直接加えて、常圧下で重縮合する方法によって製造してもよい。この場合、反応系を均一な液体状態で保つために、ジアミンをジカルボン酸に連続的に加え、その間、反応温度が、生成するオリゴアミド及びポリアミドの融点よりも下回らないように反応系を昇温しつつ、重縮合を進行させることが好ましい。また、キシリレン基含有ポリアミドは、必要に応じて熔融重縮合により得られたものを更に固相重合することにより分子量を高めることもできる。

[0057] キシリレン基含有ポリアミド樹脂は、リン原子含有化合物の存在下で重縮合することが好ましい。キシリレン基含有ポリアミド樹脂は、リン原子含有化合物の存在下で重縮合すると、熔融成形時の加工安定性が高められ、着色が抑制されやすくなる。

リン原子含有化合物としては、次亜リン酸化合物、亜リン酸化合物が好ま

しく、次亜リン酸化合物がより好ましい。

リン原子含有化合物は有機金属塩が好ましく、中でもアルカリ金属塩がより好ましい。

[0058] 次亜リン酸化合物としては、重合反応を促進する観点及び着色防止の観点から、次亜リン酸、次亜リン酸金属塩、フェニル亜ホスホン酸金属塩、次亜リン酸エチル、ジメチルホスフィン酸、フェニルメチルホスフィン酸、フェニル亜ホスホン酸、フェニル亜ホスホン酸エチル等が挙げられ、次亜リン酸金属塩が好ましい。

次亜リン酸金属塩としては、次亜リン酸ナトリウム、次亜リン酸カリウム、次亜リン酸リチウム、次亜リン酸カルシウムが挙げられ、次亜リン酸ナトリウムがより好ましい。

フェニル亜ホスホン酸金属塩としては、フェニル亜ホスホン酸ナトリウム、フェニル亜ホスホン酸カリウム、フェニル亜ホスホン酸リチウムが挙げられる。

[0059] 亜リン酸化合物としては、亜リン酸、ピロ亜リン酸、亜リン酸金属塩、フェニルホスホン酸金属塩、亜リン酸トリエチル、亜リン酸トリフェニル、エチルホスホン酸、フェニルホスホン酸、フェニルホスホン酸ジエチル等が挙げられる。

亜リン酸金属塩としては、亜リン酸水素ナトリウム、亜リン酸ナトリウム、亜リン酸カリウム、亜リン酸カルシウム等が挙げられる。

エチルホスホン酸金属塩としては、エチルホスホン酸ナトリウム、エチルホスホン酸カリウム等が挙げられる。

フェニルホスホン酸金属塩としては、フェニルホスホン酸ナトリウム、フェニルホスホン酸カリウム、フェニルホスホン酸リチウム等が挙げられる。

リン原子含有化合物は、1種類でもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0060] また、キシリレン基含有ポリアミド樹脂の重縮合は、リン原子含有化合物及びアルカリ金属化合物の存在下で行うことが好ましい。リン原子含有化合物の使用量が多いとポリアミド樹脂がゲル化するおそれがある。そのため、

アミド化反応速度を調整する観点から、アルカリ金属化合物を共存させることが好ましい。

アルカリ金属化合物としては、アルカリ金属水酸化物、アルカリ金属酢酸塩が挙げられる。アルカリ金属水酸化物としては、水酸化リチウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化ルビジウム、水酸化セシウムが挙げられ、アルカリ金属酢酸塩としては、酢酸リチウム、酢酸ナトリウム、酢酸カリウム、酢酸ルビジウム、酢酸セシウムが挙げられる。

ポリアミド樹脂を重縮合する際にアルカリ金属化合物を使用する場合、アルカリ金属化合物の使用量は、ゲルの生成を抑制する観点から、アルカリ金属化合物のモル数をリン原子含有化合物のモル数で除した値は、0.5～1が好ましく、0.55～0.95がより好ましく、0.6～0.9が更に好ましい。

[0061] ポリアミド樹脂の数平均分子量は、多層容器の用途や成形方法により適宜選択されるが、多層容器の成形性や強度の観点から、10,000～60,000が好ましく、11,000～50,000がより好ましい。

なお、ポリアミド樹脂の数平均分子量については、下式(2)から算出される。

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

(式中、 $[\text{COOH}]$  はポリアミド樹脂中の末端カルボキシル基濃度 ( $\mu\text{mol/g}$ ) を表し、 $[\text{NH}_2]$  はポリアミド樹脂中の末端アミノ基濃度 ( $\mu\text{mol/g}$ ) を表す。)

ここで、末端カルボキシル基濃度は、ポリアミドをベンジルアルコールに溶解したものを水酸化ナトリウム水溶液で中和滴定して算出した値を用いる。

[0062] 本発明において、ポリアミド樹脂(Y)の末端アミノ基濃度は、再生ポリエステルの変色を抑制する観点から、 $50 \mu\text{mol/g}$  以下が好ましく、 $45 \mu\text{mol/g}$  以下がより好ましく、 $40 \mu\text{mol/g}$  以下が更に好ましく

、 $30\text{ }\mu\text{mol/g}$ 以下がより更に好ましく、 $20\text{ }\mu\text{mol/g}$ 以下がより更に好ましい。

ポリアミド樹脂（Y）の末端アミノ基濃度は、ポリアミド樹脂を精秤し、フェノール／エタノール＝4／1容量溶液に $20\sim 30^{\circ}\text{C}$ で攪拌溶解させ、完全に溶解した後、攪拌しつつ、メタノール $5\text{ mL}$ で容器内壁を洗い流し、 $0.01\text{ mol/L}$ 塩酸水溶液で中和滴定することで求められる。

ポリアミド樹脂（Y）の末端アミノ基濃度の調整方法は特に限定されないが、ジアミンとジカルボン酸の仕込み比（モル比）を調整して重縮合反応を行う方法、アミノ基をキャップするモノカルボン酸類をジアミンとジカルボン酸と共に仕込んで重縮合反応を行う方法、重縮合反応を行った後、アミノ基をキャップするカルボン酸と反応させる方法等により、末端アミノ基濃度を低く抑えることができる。

[0063] （その他の成分）

ポリアミド層には、その他の成分を含有してもよい。その他の成分としては、熱安定剤、光安定剤、防湿剤、防水剤、滑剤、展着剤などが挙げられる。

ポリアミド層には、本発明の効果を損なわない範囲で、主成分であるポリアミド樹脂（Y）以外の樹脂を含有してもよい。

[0064] ＜多層容器の構造・特性＞

本発明の多層容器は、ポリエステル樹脂（X）、フェノール系酸化防止剤（A）及びリン系酸化防止剤（B）を含有するポリエステル層、又はポリエステル樹脂（X）、フェノール系酸化防止剤（A）、リン系酸化防止剤（B）及びアルデヒドキャッチャー（C）を含有するポリエステル層と、ポリアミド樹脂（Y）を含有するポリアミド層とを有し、ポリエステル層中のフェノール系酸化防止剤（A）、リン系酸化防止剤（B）及びアルデヒドキャッチャー（C）の合計含有量が $0.05\sim 0.22$ 質量％であり、リン系酸化防止剤（B）が、ペンタエリスリトール骨格及び芳香環を有する化合物である多層容器である。

本発明の多層容器には、前記ポリエステル層と前記ポリアミド層以外の樹脂層を含んでもよいが、リサイクル時の分別を容易にする観点、及び、容器と回収ポリエステルの色調を向上させる観点から、前記ポリエステル層と前記ポリアミド層以外の樹脂層の含有量は少ないことが好ましく、前記ポリエステル層と前記ポリアミド層以外の樹脂層は実質的に含まないことが好ましい。また、接着剤からなる接着層や無機物からなる無機層を設けてもよいが、これらについてもリサイクル時の分別を容易にする観点及び黄変抑制効果を向上させる観点から、接着層や無機層の含有量は少ないことが好ましく、接着層や無機層は実質的に含まないことが好ましい。

[0065] 本発明の多層容器は、2層以上の多層構造を有し、2～5層構造を有することが好ましく、3～5層構造を有することがより好ましく、3層構造又は5層構造を有することが更に好ましく、3層構造を有することがより更に好ましい。

本発明の多層容器の最外層はポリエステル層であることが好ましい。また、最内層もポリエステル層であることが好ましく、最外層と最内層がポリエステル層であることがより好ましい。

最外層がポリエステル層であると、多層容器は、耐衝撃性や外観、意匠性に優れるものとなる。

したがって、多層容器の構造としては、多層容器が2～5層構造を有し、最外層がポリエステル層であることが好ましく、多層容器が3～5層構造を有し、最外層と最内層がポリエステル層であることがより好ましい。

[0066] 2層構造の場合、最内層から、ポリアミド層／ポリエステル層であることが好ましく、3層構造の場合、最内層から、ポリエステル層／ポリアミド層／ポリエステル層であることが好ましく、5層構造の場合、最内層から、ポリエステル層／ポリアミド層／ポリエステル層／ポリアミド層／ポリエステル層であることが好ましい。

[0067] 本発明の多層容器は、中空容器であることが好ましく、該多層容器が中空容器である場合、胴部が、少なくとも多層構造を有する。そして、胴部にお

けるポリエステル層の厚さ（W）のポリアミド層の厚さ（S）に対する比（厚さ比 $W/S$ ）は、2.5以上200以下が好ましい。なお、ポリエステル層の厚さとは、平均厚さを意味し、胴部においてポリエステル層が複数層ある場合には、その複数層の厚さを平均して1層あたりの平均厚さを求めたものである。ポリアミド層の厚さも同様である。

厚さ比 $W/S$ が2.5以上であると、再生ポリエステルの製造方法における分別工程、特に風選分離や比重分離において、ポリアミド樹脂を、ポリエステル樹脂から分別し易いので好ましい。また、厚さ比 $W/S$ が200以下であると、中空容器のガスバリア性に優れ、内容物を長期保存することができる。

分別工程における分別性を高めつつ、中空容器のガスバリア性を良好にする観点から、上記厚さ比（ $W/S$ ）は、3～50がより好ましく、4～15が更に好ましい。

[0068] また、多層容器が中空容器である場合、中空容器の胴部における総厚さ（すなわち、胴部の全層の合計厚さ）は、100 $\mu\text{m}$ ～5mmが好ましく、150 $\mu\text{m}$ ～3mmがより好ましく、200 $\mu\text{m}$ ～2mmが更に好ましい。また、各ポリエステル層の厚さ（W）は、30 $\mu\text{m}$ ～2mmが好ましく、40 $\mu\text{m}$ ～1mmがより好ましく、50 $\mu\text{m}$ ～500 $\mu\text{m}$ が更に好ましい。各ポリアミド層の厚さ（S）は、1～200 $\mu\text{m}$ が好ましく、3～100 $\mu\text{m}$ がより好ましく、8～50 $\mu\text{m}$ が更に好ましい。本発明では、ポリアミド層の厚さをこの範囲とすることで、ガスバリア性を確保しつつ、分別工程において、ポリアミド層がポリエステルから分別しやすくなる。

[0069] 本発明の多層容器が中空容器である場合、中空容器の内部に液体を充填して使用される液体用包装容器であることがより好ましく、飲料用包装容器であることが更に好ましい。内部に充填される液体としては、飲料、液体調味料、化学品、医薬品、洗剤等が挙げられ、本発明の多層容器によって酸素による劣化を有効に防止できる飲料が好ましい。

飲料としては、水、炭酸水、酸素水、水素水、牛乳、乳製品、ジュース、

コーヒー、コーヒー飲料、炭酸ソフトドリンク類、茶類、アルコール飲料等が挙げられる。

液体調味料としては、ソース、醤油、シロップ、みりん類、ドレッシング等が挙げられる。

化学品としては、農薬、殺虫剤等が挙げられる。

[0070] <多層容器の製造方法>

本発明の多層容器の製造方法は、ポリエステル樹脂（X）、フェノール系酸化防止剤（A）及びリン系酸化防止剤（B）を含有するポリエステル層と、ポリアミド樹脂（Y）を含有するポリアミド層とを有する多層容器の製造方法であれば、特に限定されないが、下記工程 1 及び下記工程 2 を含む製造方法であることが好ましい。

つまり、本発明の多層容器の製造方法は、下記工程 1 及び 2 を含み、該多層容器が、ポリエステル樹脂（X）、フェノール系酸化防止剤（A）及びリン系酸化防止剤（B）を含有するポリエステル層と、ポリアミド樹脂（Y）を含有するポリアミド層とを有する多層容器である製造方法であることが好ましい。

工程 1：ポリアミド層に用いられるポリアミド樹脂（Y）、ポリアミド樹脂（Y）を含有するポリアミド樹脂組成物、又はポリアミド樹脂（Y）を含有するポリアミド樹脂混合物と、ポリエステル樹脂（X）、フェノール系酸化防止剤（A）及びリン系酸化防止剤（B）を含有するポリエステル樹脂組成物、又はポリエステル樹脂（X）、フェノール系酸化防止剤（A）及びリン系酸化防止剤（B）を含有するポリエステル樹脂混合物と、を共射出成形して、多層プリフォームを得る工程

工程 2：前記多層プリフォームをブロー成形する工程

[0071] （工程 1（多層プリフォームを得る工程））

工程 1 では、ポリアミド樹脂（Y）、前記ポリアミド樹脂組成物又は前記ポリアミド樹脂混合物と、前記ポリエステル樹脂組成物又は前記ポリエステル樹脂混合物を共射出成形して、多層プリフォームを得る。

前記ポリアミド樹脂組成物は、ポリアミド樹脂（Ｙ）を主成分とし、＜ポリアミド層＞の項で説明した、ポリアミド樹脂（Ｙ）以外の樹脂、その他の成分等を含む組成物である。

前記ポリエステル樹脂組成物は、ポリエステル樹脂（Ｘ）を主成分とし、フェノール系酸化防止剤（Ａ）及びリン系酸化防止剤（Ｂ）を含有する組成物であり、＜ポリエステル層＞の項で説明した、アルデヒドキャッチャー（Ｃ）、ポリエステル樹脂（Ｘ）以外の樹脂、その他の成分等を含んでいてもよい。

なお、ポリアミド樹脂混合物は、ポリアミド樹脂（Ｙ）、ポリアミド樹脂（Ｙ）以外の樹脂、その他の成分等をドライブレンドした混合物、又はその他の成分等を含むマスターバッチと残部のポリアミド樹脂（Ｙ）をドライブレンドした混合物を指す。これらポリアミド樹脂混合物は、本工程で各成分が熔融混合されることによって、前記ポリアミド樹脂組成物となる。

また、ポリエステル樹脂混合物は、ポリエステル樹脂（Ｘ）、フェノール系酸化防止剤（Ａ）、リン系酸化防止剤（Ｂ）、アルデヒドキャッチャー（Ｃ）、ポリエステル樹脂（Ｘ）以外の樹脂、その他の成分等をドライブレンドした混合物、又は、フェノール系酸化防止剤（Ａ）、リン系酸化防止剤（Ｂ）、アルデヒドキャッチャー（Ｃ）、ポリエステル樹脂（Ｘ）以外の樹脂、その他の成分等を含むマスターバッチと残部のポリエステル樹脂（Ｘ）をドライブレンドした混合物を指す。これらポリエステル樹脂混合物は、本工程で各成分が熔融混合されることによって、前記ポリエステル樹脂組成物となる。

共射出成形では、ポリエステル樹脂（組成物、混合物）及びポリアミド樹脂（組成物、混合物）を金型にそれぞれ押し出し、共射出成形して、多層プリフォームを成形する。

[0072] （工程２（ブロー成形する工程））

工程２では、前記多層プリフォームをブロー成形する。

本発明の多層容器の製造方法においては、工程１により得られた多層プリ

フォーム（多層パリソン）を延伸ブローにより成形することが好ましい。

これらの中でも、工程2において、共射出成形にて得られた多層プリフォームを延伸ブロー成形することが好ましく、共射出成形により得られた多層プリフォームを二軸延伸ブロー成形することがより好ましい。なお、二軸延伸ブロー成形の条件としては、プリフォーム加熱温度を95～110℃、一次ブロー圧力を0.5～1.2MPa、二次ブロー圧力を2.0～2.6MPaとすることが好ましく、これにより、厚さムラや延伸ムラの発生が抑制され、優れた強度の多層容器を得ることができる。

[0073] [再生ポリエステルの製造方法]

本発明の再生ポリエステルの製造方法は、前記多層容器からポリエステルを回収する工程を有する、再生ポリエステルの製造方法である。

以下、本発明の再生ポリエステルの製造方法を詳述する。

[0074] 本製造方法において、多層容器は、使用済みのものが通常使用されるが、未使用品のものであってもよい。使用済みの多層容器としては、市場に一旦流通したものを回収したものが挙げられる。

本製造方法では、まず、多層容器に蓋が取り付けられている場合には、蓋を多層容器から取り外すことが好ましい。

次に容器を粉砕し、必要に応じてポリエステルを選択的に取り出す分離を行い、再生ポリエステルとして回収することが好ましい（回収工程）。

前記回収工程において、容器、又は粉砕物をアルカリ性の水溶液で洗浄することが好ましい（洗浄工程）。

次に、必要に応じて、造粒化を行い、ペレットとする（造粒工程）。

更に、必要に応じて、結晶化工程及び固相重合工程を行う（結晶化／固相重合工程）。

以下に各工程について説明する。

[0075] <洗浄工程>

本発明の再生ポリエステルの製造方法では、前記多層容器又はその粉砕物をアルカリ性の水溶液で洗浄し、ポリエステルを回収することが好ましい。

アルカリ性の水溶液で洗浄することにより、多層容器に保管されていた内容物だけでなく、接着剤等も効率的に除去することができる。

アルカリ性の水溶液での洗浄は、容器のままで洗浄してもよく、粉碎と同時に洗浄してもよく、粉碎後に洗浄してもよく、ポリエステルとポリアミド樹脂に分別した後に洗浄してもよい。更に複数回洗浄してもよい。好ましくは粉碎後に洗浄するが、便宜上、後述の回収工程の説明の前に洗浄工程について説明する。

[0076] 多層容器又はその粉碎物の洗浄に用いられるアルカリ性の水溶液の溶媒は、洗浄効率とコストの面から、水である。水の他に水性有機溶媒を含有してもよい。水性有機溶媒としては、メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール等の低級アルコール、ジオール等が挙げられる。

アルカリ性の水溶液のpHは、好ましくは8以上であり、より好ましくは10以上であり、更に好ましくは12以上である。上限には制限はないが、好ましくは14以下である。

アルカリ性の水溶液には上記溶媒以外に、アルカリ性物質を含有する。アルカリ性物質としては、アルカリ金属の水酸化物及びアルカリ土類金属の水酸化物からなる群より選ばれる少なくとも1つが好ましく、洗浄効率とコストの面から、アルカリ金属の水酸化物がより好ましい。

アルカリ金属の水酸化物としては、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化リチウム等が挙げられ、洗浄効率とコストの面から、水酸化ナトリウム及び水酸化カリウムからなる群より選ばれる少なくとも1つが好ましく、水酸化ナトリウムがより好ましい。

アルカリ性物質の含有量は、アルカリ性の水溶液全量に対して、好ましくは0.1～10質量%であり、より好ましくは0.5～8質量%であり、更に好ましくは1～5質量%である。

[0077] 洗浄装置は、いかなる方法を用いてもよいが、特に粉碎物を洗浄する場合には、攪拌機を備えた容器を用いることが好ましい。

また、洗浄時の温度は、好ましくは30～95℃であり、より好ましくは

50～90℃であり、更に好ましくは70～90℃である。洗浄時間は、好ましくは5分間～10時間であり、5分間～1時間であり、10～30分間である。洗浄温度及び洗浄時間は、多層容器又は粉碎物の量、形状等によって適宜、適切な条件を選択することができる。

[0078] なお、本発明の再生ポリエステルの製造方法においては、アルカリ性の水溶液で洗浄する洗浄工程を有するが、更にアルカリ性の水溶液以外の液体で洗浄する工程を有していてもよい。好ましくは更に水での洗浄を行う。洗浄後には、必要に応じて加熱し、乾燥することが好ましい。乾燥工程を行うことで、本方法で得られる再生ポリエステルの水分量を少なくすることができるため、熱安定性等が高く、高品質の再生ポリエステルを提供することが可能になる。乾燥工程は、例えば、ドライヤーによる送風又は熱風等を用いて行うことができる。

[0079] <回収工程>

回収工程は、多層容器を粉碎して、再生ポリエステルを回収する工程である。

なかでも、多層容器を粉碎した後、ポリアミド層の全部又は一部を除去して、ポリエステルを選択的に取り出すことが好ましく、ポリエステルとポリアミド層を構成するポリアミド樹脂とを分別することがより好ましい。

多層容器の粉碎は、単軸粉碎機、二軸粉碎機、三軸粉碎機、カッターミル等の粉碎機を用いて行うことができる。粉碎して得られた粉碎物は、例えば、フレーク状、粉末状、塊状のものとなる。ただし、多層容器は、胴部等、厚さが数mm以下の薄厚状の多層積層構造となる部分が大部分であるため、通常、粉碎物の大部分がフレーク状のものとなる。なお、フレーク状である粉碎物とは、厚さが2mm以下程度の薄片状ないし扁平状であるものをいう。

[0080] また、多層容器において、ポリエステル層とポリアミド層とは構造上一体となっているが、通常、これらは互いに接着しているものではなく、粉碎工程において、ポリエステルとポリアミド樹脂は別体の粉碎物として分離され

やすい。また、フレーク状とすることで、後述する風選分離の気流により巻き上げて分離しやすくなる。

ただし、ポリエステルと、ポリアミド樹脂は、粉碎工程において必ずしも完全に分離できるものではなく、粉碎物には、ポリエステルの含有率が相対的に高いものと、ポリエステルの含有率が相対的に低くて、ポリアミド樹脂の含有率が比較的高いものに分離される。なお、以下では、説明の便宜上、ポリエステルの含有率が相対的に高いものを単にポリエステル、ポリアミド樹脂の含有率が比較的高いものを単にポリアミド樹脂という。

[0081] 前記のように、粉碎した粉碎物は、ポリエステルとポリアミド樹脂に分別する（分別工程）。

その分別方法としては、ポリエステルとポリアミド樹脂の比重の違いを利用した比重選別を使用することが好ましい。

すなわち、ポリアミド層の除去を、前記多層容器を粉碎した後、風選分離にて行うことが好ましい。

比重選別としては、具体的には、風力による粉碎物の選別を行う風選分離が挙げられる。風選分離は、例えば、内部に回転気流を発生させることが可能な分離装置内で、該分離装置によって生じた気流に当てられた粉碎物のうち、比重が大きいあるいは比表面積が小さく自重によって自然落下するものと、比重が小さいあるいは比表面積が大きく、気流によって巻き上げられるものとに分別回収する方法が挙げられる。

この方法では、ポリエステルの粉碎物が自重によって自然落下する一方、ポリアミド樹脂の粉碎物が巻き上げられることになるので、それにより、ポリエステルとポリアミド樹脂とを分別して回収することが可能になる。

このような風選分離においては、同じ粉碎物に対して、同様の操作を繰り返して行ってもよい。例えば、自然落下したものを更に風選分離して、再生ポリエステル中におけるポリエステルの含有率を高めてもよい。

なお、分別方法は、風選分離に限定されず、粉碎物を水等の液体に浸し、液体に対する粉碎物の比重差によって分別する方法、粉碎物に一定の振動を

与えて比重の異なる粉碎物を分離し分別する方法等が挙げられる。

[0082] <造粒工程>

回収された再生ポリエステルは、成形加工時等における取扱いを容易にするため、造粒化を行い、ペレットとすることが好ましい。

造粒化は、後述する結晶化／固相重合工程の前でも後でもよいが、結晶化／固相重合工程の前に行ったほうがよい。結晶化／固相重合工程の前に行うことで、結晶化／固相重合工程における取り扱い性も良好となる。

造粒工程では、粉碎物をメルトブレンドによって可塑化して造粒化することが好ましい。可塑化及び造粒化するための造粒装置としては、単軸押出機、二軸押出機、多軸押出機等が挙げられるが、公知のものであればいずれのものも使用することができる。ペレットの形状としては、円柱状、球状、楕円球状であることが好ましい。

造粒化は、例えば、可塑化した再生ポリエステルをストランド状に押出し、水槽にて冷却しつつペレタイザーにてカットしてペレット化することが好ましい。水槽より取り出したペレットは、通常、表面に付着した水分を取り除くために乾燥される。

[0083] <結晶化／固相重合工程>

前記のポリエステルを回収する工程の後に、結晶化工程及び固相重合工程から選ばれる1つ以上の工程を行うことが好ましく、結晶化工程及び固相重合工程の両方を行うことがより好ましい。結晶化／固相重合工程は、上記したペレット化したポリエステルに対して行うことが好ましいが、ペレット化されていないもの（例えば、粉碎物）に対して行ってもよい。

なお、結晶化と固相重合の両方を行う場合、ポリエステルを結晶化した後に、固相重合することが好ましい。

ポリエステルの結晶化は、ポリエステルを一定の加熱下に保持することを行う。結晶化は、ポリエステルを例えば100～230℃にて加熱して行うことが好ましい。ポリエステルは、結晶化することで、固相重合時や成形加工時に、ポリエステル同士が融着したり、ポリエステルが装置内面へ付着した

りすることが防止される。

[0084] 固相重合は、（ポリエステルの融点－８０℃）以上、ポリエステルの融点未満の温度で一定時間保つことで行われることが好ましい。融点未満とすることでポリエステルが溶融することを防止し、例えば、ポリエステルが装置表面に付着して作業効率が低下することを防止する。また、（ポリエステルの融点－８０℃）以上とすることで、十分な重合速度で重合が進行して所望の物性が得られやすくなる。ここで「（ポリエステルの融点－８０℃）」とは、「ポリエステルの融点より８０℃低い温度」のことである。

[0085] 固相重合は、真空下で実施してもよく、窒素やアルゴンなどの不活性ガス気流下で実施してもよい。真空下で実施する場合は、１．０ｔｏｒｒ以下が好ましく、０．５ｔｏｒｒ以下がより好ましく、０．１ｔｏｒｒ以下が更に好ましい。また、真空下あるいは窒素やアルゴンなどの不活性ガス気流下いずれにおいても、極力系中に残存する酸素濃度を低くすることが好ましく、酸素濃度は好ましくは３００ｐｐｍ以下、より好ましくは３０ｐｐｍ以下である。酸素濃度が３０ｐｐｍ以下とすることで、黄色化などの外観不良を起こしにくくなる。

固相重合を真空下で実施する場合は、ポリエステルの攪拌又は混合を常に繰り返しながら伝熱を均一に保つことが好ましい。不活性ガス存在下で実施する場合は、乾燥したガス気流下で常にポリエステルの表面が乾燥した気体に接した状態を保つことが好ましい。

[0086] 結晶化／固相重合工程を行うための固相重合装置は、加温ジャケットを装着したタンブラー型のバッチ式装置や、不活性ガス気流設備を備えた乾燥サイロ型、内部に攪拌翼及び排出スクリーを備えた結晶化装置及びリアクター等が挙げられる。なお、結晶化及び固相重合は、同じ装置で連続的に又は同時に行われることが好ましい。

固相重合の加熱時間は、装置、他条件を踏まえて適時決定するが、ポリエステルが十分な物性を得る時間であればよい。

固相重合は、高温下でポリエステルを長時間保持するため、ポリエステル

中に不純物が存在すると色調等の品質を悪化させることがある。上記した除去工程において大部分のポリアミド樹脂が除去されていることが好ましく、この場合、固相重合時に生じるおそれがある品質の悪化が最小限に抑えられる。

[0087] 再生ポリエステルの製造方法が、ポリアミド樹脂の除去工程を有する場合には、得られた再生ポリエステルにおいて、ポリアミド樹脂の含有量は、好ましくは1質量%未満であり、より好ましくは0.8質量%未満、更に好ましくは0.6質量%未満である。このように、ポリアミド樹脂の含有量を少なくすることで、再生ポリエステルの品質が良好となる。

また、本発明の再生ポリエステルの製造方法においては、前記で説明した工程以外の工程を実施してもよい。

[0088] 本製造方法で得られた再生ポリエステルは、樹脂成形体、繊維等様々な用途に用いることができる。

### 実施例

[0089] 以下、実施例及び比較例を用いて本発明をより具体的に説明するが、本発明は、これらの実施例に制限されるものではない。

[0090] [原料]

実施例及び比較例で使用したポリエステル樹脂、黄変抑制剤及び色調調整剤は以下のとおりである。また、ポリアミド樹脂は以下の製造例1で製造したものをを用いた。

<ポリエステル樹脂>

PET 1101: Polyclear Refresh PET 1101、ポリエチレンテレフタレート (Indorama社製)

<フェノール系酸化防止剤 (A)>

Irganox 1010: Pentaerythritol Tetrakis[3-(3',5'-di-*t*-butyl-4'-hydroxyphenyl)propionate] (商品名: Irganox 1010、BASF社製)

<リン系酸化防止剤 (リン系酸化防止剤 (B) 及び (B) 以外のリン系酸化

防止剤) >

Doverphos S9228: Bis(2,4-di-cumylphenyl) pentaerythritol diphosphite (商品名: Doverphos S9228、Dover Chemical 社製、リン系酸化防止剤 (B))

PEP-36: Bis(2,6-di-ter-butyl-4-methylphenyl)pentaerythritol-diphosphite (商品名: アデカスタブ PEP-36、株式会社 ADEKA 製、リン系酸化防止剤 (B))

PEP-8: 0,0'-Dioctadecylpentaerythritol bis(phosphite) (ペンタエリスリトール骨格を有するが、芳香環は有さないリン系酸化防止剤、商品名: アデカスタブ PEP-8、株式会社 ADEKA 製、(B) 以外のリン系酸化防止剤)

Irgaphos 168: Tris(2,4-di-tert-butylphenyl)phosphite (芳香環を有するが、ペンタエリスリトール骨格は有さないリン系酸化防止剤、商品名: Irgaphos 168、BASF 社製、(B) 以外のリン系酸化防止剤)

<アルデヒドキャッチャー (C) >

アントラニルアミド: 2-アミノベンズアミド (東京化成工業株式会社製)

#### [0091] <ポリアミド樹脂>

製造例 1 (ポリアミド樹脂 (Y1) の製造)

攪拌機、分縮器、全縮器、温度計、滴下ロート、窒素導入管、及びストランドダイを備えた内容積 50 リットルの反応容器に、精秤したアジピン酸 15,000 g (102.6 mmol)、次亜リン酸ナトリウム一水和物 ( $\text{NaH}_2\text{PO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ) 13.06 g (123.3 mmol、ポリアミド中のリン原子濃度として 151 ppm)、酢酸ナトリウム 6.849 g (83.49 mmol、次亜リン酸ナトリウム一水和物に対するモル比として 0.68) を入れ、十分に窒素置換した後、更に少量の窒素気流下で系内を攪拌しながら 170℃ まで加熱した。これにメタキシリレンジアミン 13,896 g (

102.0mol、仕込みモル比として0.994)を攪拌下に滴下し、生成する縮合水を系外へ除きながら系内を連続的に昇温した。メタキシリレンジアミンの滴下終了後、内温を260℃として40分反応を継続した。その後、系内を窒素で加圧し、ストランドダイからポリマーを取り出してこれをペレット化し、約24kgのポリアミドを得た。

次いで、窒素ガス導入管、真空ライン、真空ポンプ、内温測定用の熱電対を設けたジャケット付きのタンブルドライヤーに前記ポリアミドを仕込み、一定速度で回転させつつ、タンブルドライヤー内部を純度が99容量%以上の窒素ガスで十分に置換した後、同窒素ガス気流下でタンブルドライヤーを加熱し、約150分かけてペレット温度を150℃に昇温した。ペレット温度が150℃に達した時点で系内の圧力を1torr以下に減圧した。更に昇温を続け、約70分かけてペレット温度を200℃まで昇温した後、200℃で30～45分保持した。次いで、系内に純度が99容量%以上の窒素ガスを導入して、タンブルドライヤーを回転させたまま冷却してポリアミド樹脂(Y1)を得た。アミノ末端基濃度を測定した結果、14.4μmol/gであった。

#### [0092] 実施例1 [多層容器及び再生ポリエステル製の製造]

##### <1. ポリエステル樹脂混合物の製造>

ポリエステル樹脂(Polyclear Refresh PET 1101)99.94質量部、フェノール系酸化防止剤(A)としてIrganox 1010 0.0150質量部(ポリエステル層中150ppm)、及びリン系酸化防止剤(B)としてDoverphos S9228 0.0450質量部(ポリエステル層中450ppm)をあらかじめドライブレンドして、ポリエステル樹脂混合物を得た。

##### [0093] <2. 多層容器の製造>

###### (ブリフォーム成形)

2本の射出シリンダーを有する射出成形機(住友重機械工業株式会社製、型式DU130C1)、及び、2個取りの金型(Kortec製)を使用し

て、一方の射出シリンダーからポリアミド樹脂（Y 1）を、他方の射出シリンダーから、前記ポリエステル樹脂混合物を射出して、以下に示した条件で、ポリエステル層／ポリアミド層／ポリエステル層からなる3層プリフォーム（プリフォーム1つ当たり、25 g相当の設定）を、プリフォーム全体に対するポリアミド層の質量が表1の記載となるように、射出成形して製造した。プリフォームの形状は、全長95 mm、外径22 mm、肉厚4.0 mmであった。3層プリフォーム成形条件は、以下に示したとおりである。

|                    |        |
|--------------------|--------|
| スキン側射出シリンダー温度      | : 285℃ |
| コア側射出シリンダー温度（3層のみ） | : 265℃ |
| 金型内樹脂流路温度          | : 285℃ |
| 金型冷却水温度            | : 15℃  |
| サイクルタイム            | : 40秒  |

[0094] （ボトル成形）

前記（プリフォーム成形）で得られたプリフォームをブロー成形装置（E F B 1 0 0 0 E T、フロンティア製）により二軸延伸ブロー成形しボトル（中空多層容器）を得た。ボトルの全長は223 mm、外径は65 mm、内容積は500 mLであり、底部はペタロイド形状である。胴部にディンプルは設けなかった。2軸延伸ブロー成形条件は以下に示したとおりである。

|            |           |
|------------|-----------|
| プリフォーム加熱温度 | : 103℃    |
| 延伸ロッド用圧力   | : 0.7 MPa |
| 一次ブロー圧力    | : 1.1 MPa |
| 二次ブロー圧力    | : 2.5 MPa |
| 一次ブロー遅延時間  | : 0.30秒   |
| 一次ブロー時間    | : 0.30秒   |
| 二次ブロー時間    | : 2.0秒    |
| ブロー排気時間    | : 0.6秒    |
| 金型温度       | : 30℃     |

[0095] <3. 再生ポリエステルの製造>

(洗浄・回収・造粒工程)

前記<2. 多層容器の製造>で得られた中空多層容器 10 kg をメッシュ径 10 mm の粉砕機で粉砕した。得られたフレーク状の粉砕物 1 kg に対して、1%水酸化ナトリウム水溶液が 4 L となるように、攪拌機を備えた容器に入れ、攪拌しながら、洗浄した。洗浄温度は 85℃であり、洗浄時間は 15 分であった。洗浄水を除いた後、粉砕物を、粉砕物の 4 倍の質量の 45℃の水中に入れ、5 分間攪拌した。脱水後、さらに粉砕物の 8 倍の質量の水を加えて攪拌した。脱水した後、洗浄後の粉砕物を 50℃で乾燥した。

このフレークに対して、同様の手順で得たポリエステルの単層容器のフレークを加えてドライブレンドして、2 倍に希釈した。

乾燥後の粉砕物を二軸押出機（東芝機械社製、TEM26SX）で、ヒーター温度 280℃、吐出速度 20 kg/時間にて押し出し、ストランド状とし、水槽内にて冷却しつつペレタイザーにてカットを行ってペレット化した。なお、ポリアミド層の風選分離は行わなかった。

[0096] (結晶化／固相重合工程)

前記造粒工程で得られたペレットを 200℃にて 7 時間、1 torr 以下に減圧した真空下にて加熱した。加熱処理後のペレットを取り出し、再生ポリエステルとした。

[0097] 実施例 2～11 及び比較例 1～17 [多層容器及び再生ポリエステルの製造]

実施例 1 において、ポリエステル樹脂組成物（ポリエステル層）に用いられるフェノール系酸化防止剤（A）及びリン系酸化防止剤を表 1～3 に示す種類及び量とし、実施例 7～11 及び比較例 7～10、14、15 はアルデヒドキャッチャー（C）を表 1～3 に示す種類及び量とした以外は実施例 1 と同様にして、多層容器及び再生ポリエステルを製造した。なお、表 1～3 において、フェノール系酸化防止剤（A）、リン系酸化防止剤、及びアルデヒドキャッチャー（C）の含有量は「ppm」（質量百万分率、質量 ppm）で示す。1 ppm は 0.0001 質量%である。

## [0098] [評価方法]

## ＜評価用サンプル作製＞

下記のヘイズ、 $b^*$ 値及び $\Delta b^*$ 値を測定した再生ポリエステルの評価用サンプルは次のようにして作製した。

実施例及び比較例の加熱処理後のペレットを、射出シリンダーを有する射出成形機（住友重機械工業株式会社製、型式SE130DU-HP）を使用し、以下に示した成形条件で、縦60mm、横90mm、肉厚3.0mmのプレートを射出成形して製造した。

射出シリンダー温度 : 280℃

金型冷却水温度 : 15℃

サイクルタイム : 45秒

## [0099] ＜ヘイズ＞

前記プレートのヘイズは、JIS K 7136:2000に基づき、ヘイズメーターCOH7700（日本電色工業株式会社製、白色LED光源）を用い、4回測定した平均値として測定した。ヘイズの値が小さいほど、再生ポリエステルの透明性に優れ、好ましい。

[0100] ＜ $b^*$ 値＞

JIS K 7105:1981に従って、ヘイズメーターCOH400（日本電色工業株式会社製）を用いて測定し、評価用サンプルの $b^*$ 値を測定した。

なお、 $b^*$ 値は色度を表す。 $+b^*$ は黄方向、 $-b^*$ は青方向を表す。 $b^*$ 値の絶対値が小さく、かつ $b^*$ 値が小さいほど、黄変が抑制されており、無色性に優れ、色調に優れる。

[0101] ＜ $\Delta b^*$ 値＞

上記原料に用いたポリエステル樹脂（Polyclear Refresh PET 1101）を、＜評価用サンプル作製＞に示した成形条件で、縦60mm、横90mm、肉厚3.0mmのプレートを製造した。次にJIS K 7105:1981に従って、ヘイズメーターCOH400（日本

電色工業株式会社製）を用いて測定し、b\*値を測定した（b\*値4.1）。

上記＜b\*値＞で得られた実施例及び比較例の評価用サンプルのb\*値と、原料に用いたポリエステル樹脂のb\*値（4.1）の差をΔb\*値とした。Δb\*値が小さいほど、黄変が抑制されており、原料ポリエステル樹脂からの変色が小さく、無色性に優れ、好ましい。なお、本評価において、Δb\*値が4.5未満であると無色性が良好であり、Δb\*値が4.5以上であると無色性が不良である。

[0102] [表1]

|             |                          |                 |     | 実施例  |      |      |      |      |      |      |      |      |      |      |
|-------------|--------------------------|-----------------|-----|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
|             |                          |                 |     | 1    | 2    | 3    | 4    | 5    | 6    | 7    | 8    | 9    | 10   | 11   |
| ポリエステル樹脂組成物 | フェノール系酸化防止剤(A)           | Irganox1010     | ppm | 150  | 240  | 400  | 500  | 240  | 500  | 100  | 240  | 400  | 240  | 240  |
|             | リン系酸化防止剤                 | Doverphos S9228 | ppm | 450  | 720  | 1200 | 1500 | —    | —    | 300  | 720  | 1200 | —    | 720  |
|             |                          | PEP36           | ppm | —    | —    | —    | —    | 720  | 1500 | —    | —    | —    | 720  | —    |
|             |                          | PEP8            | ppm | —    | —    | —    | —    | —    | —    | —    | —    | —    | —    | —    |
|             |                          | Irgafos168      | ppm | —    | —    | —    | —    | —    | —    | —    | —    | —    | —    | —    |
|             | アルデヒドキャッチャー(C)           | アントラニルアミド       | ppm | —    | —    | —    | —    | —    | —    | 500  | 500  | 500  | 500  | 50   |
|             | 酸化防止剤の合計含有量              |                 | ppm | 600  | 960  | 1600 | 2000 | 960  | 2000 | 400  | 960  | 1600 | 960  | 960  |
|             | 酸化防止剤及びアルデヒドキャッチャーの合計含有量 |                 | ppm | 600  | 960  | 1600 | 2000 | 960  | 2000 | 900  | 1460 | 2100 | 1460 | 1010 |
|             | ポリエステル樹脂 (PET 1101)      |                 | 質量% | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   |
|             | 合計                       |                 | 質量% | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  |
| 多層容器        | ポリエステル層                  | ポリエステル樹脂組成物     | 質量% | 94   | 94   | 94   | 94   | 94   | 94   | 94   | 94   | 94   | 94   | 94   |
|             | ポリアミド層                   | ポリアミド樹脂(Y1)     | 質量% | 6    | 6    | 6    | 6    | 6    | 6    | 6    | 6    | 6    | 6    | 6    |
|             | 合計                       |                 | 質量% | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  |
| 再生ポリエステルの評価 | ヘイズ                      |                 | %   | 18.4 | 21.0 | 22.0 | 29.8 | 20.8 | 27.7 | 17.4 | 21.6 | 25.4 | 20.8 | 19.2 |
|             | b*                       |                 | —   | 8.4  | 8.1  | 8.0  | 7.9  | 8.3  | 8.3  | 6.8  | 5.5  | 6.4  | 5.9  | 7.9  |
|             | Δb*                      |                 | —   | 4.3  | 4.0  | 3.9  | 3.8  | 4.2  | 4.2  | 2.7  | 1.4  | 2.3  | 1.8  | 3.8  |

[0103]

[表2]

表2

|                 |                          |                 |     | 比較例  |      |      |      |      |      |      |      |      |
|-----------------|--------------------------|-----------------|-----|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
|                 |                          |                 |     | 1    | 2    | 3    | 4    | 5    | 6    | 7    | 8    | 9    |
| ポリエステル樹脂組成物     | フェノール系酸化防止剤(A)           | Irganox1010     | ppm | －    | 500  | 2000 | －    | －    | －    | －    | －    | 500  |
|                 | リン系酸化防止剤                 | Doverphos S9228 | ppm | －    | －    | －    | 1500 | 3010 | －    | －    | －    | －    |
|                 |                          | PEP36           | ppm | －    | －    | －    | －    | －    | 1500 | －    | －    | －    |
|                 |                          | PEP8            | ppm | －    | －    | －    | －    | －    | －    | －    | －    | －    |
|                 |                          | Irgafos168      | ppm | －    | －    | －    | －    | －    | －    | －    | －    | －    |
|                 | アルデヒドキャッチャー(C)           | アントラニルアミド       | ppm | －    | －    | －    | －    | －    | －    | 500  | 1500 | 500  |
|                 | 酸化防止剤の合計含有量              |                 | ppm | 0    | 500  | 2000 | 1500 | 3010 | 1500 | 0    | 0    | 500  |
|                 | 酸化防止剤及びアルデヒドキャッチャーの合計含有量 |                 | ppm | 0    | 500  | 2000 | 1500 | 3010 | 1500 | 500  | 1500 | 1000 |
|                 | ポリエステル樹脂 (PET 1101)      |                 | 質量% | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   |
|                 | 合計                       |                 | 質量% | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  |
| 多層容器            | ポリエステル層                  | ポリエステル樹脂組成物     | 質量% | 94   | 94   | 94   | 94   | 94   | 94   | 94   | 94   | 94   |
|                 | ポリアミド層                   | ポリアミド樹脂(Y1)     | 質量% | 6    | 6    | 6    | 6    | 6    | 6    | 6    | 6    | 6    |
|                 | 合計                       |                 | 質量% | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  |
| 再生ポリエステル<br>の評価 | ヘイズ                      |                 | %   | 20.2 | 21.3 | 22.2 | 18.7 | 23.1 | 19.9 | 19.8 | 19.3 | 19.2 |
|                 | b*                       |                 | －   | 11.8 | 9.8  | 9.4  | 9.8  | 9.4  | 9.8  | 10.3 | 10.0 | 9.1  |
|                 | Δ b*                     |                 | －   | 7.7  | 5.7  | 5.3  | 5.6  | 5.3  | 5.7  | 6.2  | 5.9  | 5.0  |

[0104]

[表3]

表3

|                         |                                  |                    |     | 比較例  |      |      |      |      |      |      |      |
|-------------------------|----------------------------------|--------------------|-----|------|------|------|------|------|------|------|------|
|                         |                                  |                    |     | 10   | 11   | 12   | 13   | 14   | 15   | 16   | 17   |
| ポリ<br>エステル<br>樹脂<br>組成物 | フェノール系<br>酸化防止剤(A)               | Irganox1010        | ppm | －    | 100  | 600  | 800  | 240  | 500  | 500  | 500  |
|                         | リン系<br>酸化防止剤                     | Doverphos<br>S9228 | ppm | 1500 | 300  | 1800 | 2410 | 720  | 1500 | －    | －    |
|                         |                                  | PEP36              | ppm | －    | －    | －    | －    | －    | －    | －    | －    |
|                         |                                  | PEP8               | ppm | －    | －    | －    | －    | －    | －    | 1500 | －    |
|                         |                                  | Irgafos168         | ppm | －    | －    | －    | －    | －    | －    | －    | 1500 |
|                         | アルデヒド<br>キャッチャー(C)               | アントラニル<br>アミド      | ppm | 500  | －    | －    | －    | 1500 | 500  | －    | －    |
|                         | 酸化防止剤の合計含有量                      |                    | ppm | 1500 | 400  | 2400 | 3210 | 960  | 2000 | 2000 | 2000 |
|                         | 酸化防止剤及び<br>アルデヒドキャッチャー<br>の合計含有量 |                    | ppm | 2000 | 400  | 2400 | 3210 | 2460 | 2500 | 2000 | 2000 |
|                         | ポリエステル樹脂<br>(PET 1101)           |                    | 質量% | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   | 残部   |
|                         | 合計                               |                    | 質量% | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  |
| 多層<br>容器                | ポリエステル層                          | ポリエステル<br>樹脂組成物    | 質量% | 94   | 94   | 94   | 94   | 94   | 94   | 94   | 94   |
|                         | ポリアミド層                           | ポリアミド<br>樹脂(Y1)    | 質量% | 6    | 6    | 6    | 6    | 6    | 6    | 6    | 6    |
|                         | 合計                               |                    | 質量% | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  |
| 再生<br>ポリ<br>エステル<br>の評価 | ヘイズ                              |                    | %   | 20.1 | 20.0 | 35.4 | 37.8 | 32.4 | 39.8 | 19.5 | 19.6 |
|                         | b*                               |                    | －   | 9.1  | 10.4 | 8.7  | 9.5  | 6.5  | 7.4  | 18.9 | 9.7  |
|                         | Δb*                              |                    | －   | 5.0  | 6.3  | 4.6  | 5.4  | 2.4  | 3.3  | 14.8 | 5.6  |

[0105] 表 1 に示す通り、本発明の多層容器からリサイクルして得られた再生ポリ  
エステルの黄色度が小さく、無色性に優れ、かつ透明性にも優れることがわ  
かる。

### 請求の範囲

- [請求項1]        ポリエステル樹脂（X）、フェノール系酸化防止剤（A）及びリン系酸化防止剤（B）を含有するポリエステル層、又はポリエステル樹脂（X）、フェノール系酸化防止剤（A）、リン系酸化防止剤（B）及びアルデヒドキャッチャー（C）を含有するポリエステル層と、ポリアミド樹脂（Y）を含有するポリアミド層とを有し、
- ポリエステル層中のフェノール系酸化防止剤（A）、リン系酸化防止剤（B）及びアルデヒドキャッチャー（C）の合計含有量が0.05～0.22質量%であり、リン系酸化防止剤（B）が、ペンタエリスリトール骨格及び芳香環を有する化合物である多層容器。
- [請求項2]        ポリエステル層中のフェノール系酸化防止剤（A）及びリン系酸化防止剤（B）の合計含有量が0.05～0.22質量%である、請求項1に記載の多層容器。
- [請求項3]        リン系酸化防止剤（B）の含有量に対するフェノール系酸化防止剤（A）の含有量の質量比  $[(A)/(B)]$  が、 $2/8 \sim 5/5$  である、請求項1又は2に記載の多層容器。
- [請求項4]        前記ポリエステル層がアルデヒドキャッチャー（C）を含有する、請求項1～3のいずれか1つに記載の多層容器。
- [請求項5]        アルデヒドキャッチャー（C）がアントラニルアミドである、請求項1～4のいずれか1つに記載の多層容器。
- [請求項6]        ポリエステル層中のアルデヒドキャッチャー（C）の含有量が0.005～0.120質量%である、請求項1～5のいずれか1つに記載の多層容器。
- [請求項7]        ポリアミド樹脂（Y）が、キシリレンジアミンに由来する構成単位を80モル%以上含有するジアミンに由来する構成単位と、アジピン酸に由来する構成単位を80モル%以上含有するジカルボン酸に由来する構成単位とを有する、請求項1～6のいずれか1つに記載の多層容器。

- [請求項8]           ポリアミド樹脂（Ｙ）の含有量が、全ポリアミド層及び全ポリエステル層の合計量に対して、０．０５～１０．０質量％である、請求項１～７のいずれか１つに記載の多層容器。
- [請求項9]           ポリアミド層の含有量が、全ポリアミド層及び全ポリエステル層の合計量に対して、０．０５～１０．０質量％である、請求項１～８のいずれか１つに記載の多層容器。
- [請求項10]           ポリエステル樹脂（Ｘ）が、テレフタル酸に由来する構成単位を８０モル％以上含有するジカルボン酸に由来する構成単位と、エチレングリコールに由来する構成単位を８０モル％以上含有するジオールに由来する構成単位とを有する、請求項１～９のいずれか１つに記載の多層容器。
- [請求項11]           多層容器が中空容器である、請求項１～１０のいずれか１つに記載の多層容器。
- [請求項12]           多層容器が３～５層構造を有し、最外層と最内層がポリエステル層である、請求項１～１１のいずれか１つに記載の多層容器。
- [請求項13]           ポリエステル樹脂（Ｘ）、フェノール系酸化防止剤（Ａ）、リン系酸化防止剤（Ｂ）及びアルデヒドキャッチャー（Ｃ）を含有するポリエステル層と、ポリアミド樹脂（Ｙ）を含有するポリアミド層とを有し、  
                        リン系酸化防止剤（Ｂ）が、ペンタエリスリトール骨格及び芳香環を有する化合物であり、アルデヒドキャッチャー（Ｃ）がアントラニルアミドであり、  
                        ポリエステル層中のフェノール系酸化防止剤（Ａ）、リン系酸化防止剤（Ｂ）及びアルデヒドキャッチャー（Ｃ）の合計含有量が０．０５～０．２２質量％であり、  
                        ポリエステル層中のアルデヒドキャッチャー（Ｃ）の含有量が０．００５～０．１２０質量％であり、  
                        リン系酸化防止剤（Ｂ）の含有量に対するフェノール系酸化防止剤

(A) の含有量の質量比  $[(A) / (B)]$  が、 $2 / 8 \sim 5 / 5$  である、多層容器。

[請求項14] 請求項1～13のいずれか1つに記載の多層容器からポリエステルを回収する工程を有する、再生ポリエステルの製造方法。

[請求項15] ポリエステルを回収する工程の後に、結晶化工程及び固相重合工程から選ばれる1つ以上の工程を行う、請求項14に記載の再生ポリエステルの製造方法。

[請求項16] 多層容器から前記ポリアミド層の全部又は一部を除去して、前記ポリエステルを回収する工程を有する、請求項14又は15に記載の再生ポリエステルの製造方法。

[請求項17] 前記ポリアミド層の除去を、前記多層容器を粉碎した後、風選分離にて行う、請求項16に記載の再生ポリエステルの製造方法。

[請求項18] 前記多層容器又はその粉碎物をアルカリ性の水溶液で洗浄し、ポリエステルを回収する工程を有する、請求項15～17のいずれか1つに記載の再生ポリエステルの製造方法。