

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6452129号
(P6452129)

(45) 発行日 平成31年1月16日 (2019. 1. 16)

(24) 登録日 平成30年12月21日 (2018. 12. 21)

(51) Int. Cl.

F I

B 3 2 B 27/36 (2006. 01)

B 3 2 B 27/36

B 3 2 B 27/32 (2006. 01)

B 3 2 B 27/32

C

B 3 2 B 27/28 (2006. 01)

B 3 2 B 27/28

1 O 2

B 3 2 B 27/34 (2006. 01)

B 3 2 B 27/34

B 3 2 B 27/30 (2006. 01)

B 3 2 B 27/30

A

請求項の数 5 (全 17 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2014-539016 (P2014-539016)
 (86) (22) 出願日 平成24年10月25日 (2012. 10. 25)
 (65) 公表番号 特表2014-532573 (P2014-532573A)
 (43) 公表日 平成26年12月8日 (2014. 12. 8)
 (86) 国際出願番号 PCT/US2012/061980
 (87) 国際公開番号 W02013/063310
 (87) 国際公開日 平成25年5月2日 (2013. 5. 2)
 審査請求日 平成27年10月26日 (2015. 10. 26)
 (31) 優先権主張番号 61/551, 625
 (32) 優先日 平成23年10月26日 (2011. 10. 26)
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

(73) 特許権者 390023674
 イー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・
 アンド・カンパニー
 E. I. DU PONT DE NEMO
 URS AND COMPANY
 アメリカ合衆国デラウェア州19805.
 ウィルミントン、センターロード974.
 ピー・オー・ボックス2915、チェスナ
 ット・ラン・プラザ
 (74) 代理人 100092093
 弁理士 辻居 幸一
 (74) 代理人 100082005
 弁理士 熊倉 禎男
 (74) 代理人 100084663
 弁理士 箱田 篤

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 再生可能資源材料を含む多層フィルム構造

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

一軸または二軸延伸ポリ(ヒドロキシアルカン酸)組成物の少なくとも1つの層、少なくとも1つのタイ層、および少なくとも1つのシーラント層を含む、共押出し多層構造であって、

前記構造が延伸されていてもよく、かつフィルムまたはシートであり；

前記構造が、縦方向、横方向、又は縦方向及び横方向の両方において、90 水浴中で1分間、1～60%、または30～50%の熱収縮を有し；

前記構造が、縦方向、横方向、又は縦方向及び横方向の両方において、1分間120 熱風循環オープン中で1～10%、または1～3%の熱収縮を有し、

前記ポリ(ヒドロキシアルカン酸)組成物が、グリコール酸、乳酸、ヒドロキシ酪酸、またはそれらの2種類以上の組み合わせの縮合重合体を含み；

前記構造が、ポリ乳酸、無水物修飾エチレンアクリレート、ポリエチレン、ポリエチレン、無水物修飾エチレンアクリレート、ポリアミド、エチレンビニルアルコール、ポリアミド、無水物修飾エチレンアクリレート、ポリエチレンの層と、シーラント層と、を含む共押出し多層構造。

【請求項 2】

蓋用フィルムまたは包装物品である、請求項 1 に記載の多層構造を含む物品。

【請求項 3】

共押出し円筒形多層構造を製造するのに有効な条件下にて、ポリ(ヒドロキシアルカン

酸)組成物の層、タイ層、およびシーラント層を共押出しする工程；第1バブルにおいて前記共押出し円筒形多層構造を冷却する工程；第2バブルにおいて加熱下にて、前記共押出し円筒形多層構造を延伸して、延伸円筒形多層構造を製造する工程；第3バブルにおいて加熱下にて、前記延伸円筒形多層構造を緩和して、多層構造を製造する工程；を含むプロセスであって、

前記多層構造が、請求項1において特徴付けられるとおりであり；

前記タイ層が、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレンコポリマー、修飾ポリエチレン、修飾ポリプロピレン、修飾エチレンアルキル(メタ)アクリレートコポリマー、およびそれらの2種類以上の組み合わせからなる群から選択され、前記エチレンアルキル(メタ)アクリレートコポリマーが、コポリマーに対してアルキル(メタ)アクリレートから誘導される反復単位を4～28重量%含有し；

10

前記修飾ポリエチレンにおけるポリエチレン、前記修飾ポリプロピレンにおけるポリプロピレン、または前記修飾エチレンアルキル(メタ)アクリレートコポリマーにおけるエチレンアルキル(メタ)アクリレートコポリマーが、酸、無水物、またはエポキシドで修飾されており；

前記シーラント層が、ポリエチレン、エチレンコポリマー、ポリプロピレン、及びプロピレンコポリマーからなる群から選択される少なくとも一種を含む、プロセス。

【請求項4】

前記シーラント層が、エチレン(メタ)アクリル酸コポリマー、又は、エチレン(メタ)アクリル酸コポリマーのイオノマーを含む、請求項3に記載のプロセス。

20

【請求項5】

前記延伸が、前記ポリ(ヒドロキシアルカン酸)ポリマー組成物のガラス転移温度と融点の間の温度で行われ；

前記緩和が、前記ポリ(ヒドロキシアルカン酸)ポリマー組成物のガラス転移温度と融点の間の温度で行われる、請求項3又は4に記載のプロセス。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、包装用途、特に食品包装用途で 사용할 ことができる、再生可能資源材料を含む共押出し多層フィルム構造に関する。

30

【背景技術】

【0002】

共押出し多層フィルム構造は、目的の最終製品を得るために、複数の機能性層の注意深い組み合わせを必要とし得る、複雑な集合体である。

【0003】

過去に、多層フィルム構造を製造するために、圧延、押出しコーティング、フィルムブロー成形および(押出し)ラミネーションなどのプロセスが開発されており、現在まで使用されている。

【0004】

圧延およびラミネーションプロセスにおいて、最終構造を構成し得る個々の層が、所望の順序で互いの上に積み重ねられ、次いで熱および圧力にさらされる。かけられた熱は、個々の層を溶融し、または少なくとも十分に軟化するのに対して、かけられた圧力は、溶融または軟化層を互いに押し付け合う。圧力および熱がゆるめられた時に、個々の層は、様々な用途で 사용할 ことができる、1つの連続的な共押出し多層フィルム構造を形成し得る。

40

【0005】

押出しコーティングまたは押出しラミネーションにおいて、様々な層の組み合わせは、予め設定された速度でスリットダイ押出機の下に単層または多層フィルムを通すことによって達成される。溶融ポリマーのベールはスリットダイを出て、ポリマーを固化するために冷却されているニップ内の通過フィルム上に付着される。

50

【0006】

上記の方法は、酸素バリア、透湿率、機械的安定性などの個々の層に属する特性が1つの構造に一体化され、組み合わせられる、多層フィルムの製造にうまく使用することができる。

【0007】

例えば、多層フィルムにおける低温封止挙動と機械抵抗の組み合わせは、機械的抵抗性の二軸延伸ポリエチレンテレフタレート（PET）シートを低温封止ポリオレフィンシーラントのシートに約160℃の温度でラミネートまたは圧延することによって、あるいは二軸延伸ポリエチレンテレフタレートフィルム上に熔融ポリオレフィンシーラントの層を160℃を超える温度で押出しコーティングすることによって得られる。

10

【0008】

しかしながら、PETは大部分が、石油化学成分から誘導されており、したがって、再生可能な資源から誘導することができ、かつ生分解性である代替のポリマーに比べて望ましくない。

【0009】

ポリ乳酸（PLA）は、付加的な利点を有する、または生分解性である、トウモロコシ、コムギおよび他の植物資源に由来する再生可能な材料から、一部または全体的に誘導することができるポリ（ヒドロキシアルカン酸）（PHA）である。

【0010】

さらに、PLAが二軸延伸される場合、例えばPETなどの石油化学資源ポリマーと比較して、少なくとも同等なバリア機能、および向上した機械的安定性が提供される。

20

【0011】

延伸されたポリ乳酸は、例えばポリオレフィンシーラント層をフィルム上にラミネート、押出しラミネートまたは押出しコーティングするのに一般的かつ必要な温度である、160℃を超える温度など一般的なラミネーション温度に加熱した場合に、少なくとも一方向で10%を超える収縮をし得る。

【0012】

この固有の熱収縮挙動のために、上記の圧延、熱ラミネーションまたは押出しコーティング法を使用して、厳しい問題を生じることなく、一軸または二軸延伸ポリ乳酸層を他の機能性層と組み合わせることは難しい。

30

【0013】

一方、延伸ポリ乳酸フィルムの広範囲の熱収縮は、ポリ乳酸フィルムのしわ、折れ目およびふくらみ、ならびに不均一な厚さを生じ得るのに対して、もう一方では、熱収縮が原因の結晶化度の低下によって、バリア性が著しく低下し得る。

【0014】

さらに、ポリ乳酸とポリオレフィンシーラント層との付着が、収縮のためにより悪くなり得る。

【0015】

延伸ポリ乳酸フィルムの熱収縮の問題は、ポリ乳酸フィルムを他の機能性層に溶剤型接着剤を使用してラミネートすることによって回避することができるが、これは追加の作業工程が必要であり、溶媒による汚染について、かつラミネートからの接着反応生成物の包装物品への移動についての問題がさらに生じる。

40

【0016】

二軸延伸PETなどの延伸ポリエステルフィルムと併せて使用されるポリオレフィンシーラントの大部分が、通常約100℃であるその融解温度を十分に超える、ラミネーション、圧延または押出し温度を必要とすることから、延伸ポリ乳酸フィルムの熱収縮の問題を回避するのは容易ではない。

【0017】

したがって、他の機能性層と併せて延伸ポリ乳酸ポリマーの少なくとも1つの層を含み、工業プロセスで容易かつ経済的に製造することができ、上記の熱収縮問題を少なくとも

50

一部改善する、多層フィルム構造が必要とされている。

【発明の概要】

【課題を解決するための手段】

【0018】

上記で開示される問題は、少なくとも1つのPHA（ポリ（ヒドロキシアルカン酸）ポリマー組成物）層、少なくとも1つのタイ層、および少なくとも1つのシーラント層を含む、またはそれらから本質的に構成される、または構成される共押出し多層構造であって、PHA層または多層構造が（一軸または二軸）延伸され、かつその構造がフィルムまたはシートであり得る、共押出し多層構造を提供する本発明によって解決することができる。

10

【0019】

一軸または二軸延伸PHA組成物の少なくとも1つの層、少なくとも1つのタイ層、および少なくとも1つのシーラント層を含む、またはそれらから本質的に構成される、または構成される、トリプルバブルプロセスによって得られる共押出し多層フィルム構造も提供される。

【0020】

上記で開示される共押出し多層フィルム構造の製造に使用することができるトリプルバブルプロセスも提供され、そのプロセスは、PHA組成物、タイ層組成物、およびシーラント層組成物を共押出しして、多層構造を形成する工程；第1バブルにおいて多層フィルム構造を冷却して、円筒形多層構造を形成する工程；第2バブルにおいてその円筒形多層構造を加熱下にて延伸し、延伸円筒形多層構造を形成する工程；および第3バブルにおいて加熱下にて延伸円筒形多層構造を緩和する工程；を含み得、またはそれらから本質的に構成され得、または構成され得る。

20

【0021】

多層構造を含む包装物品などの物品がさらに提供される。

【図面の簡単な説明】

【0022】

【図1】本発明のトリプルバブルプロセスの概略図を示す。

【発明を実施するための形態】

【0023】

「再生可能なポリマー」という用語は、例えば植物性出発原料など、好ましくは持続可能な手法で短期間または数年以内に補充することができる、再生可能資源出発原料から全体的または一部製造されるポリマーを意味する。ポリマーにおける再生可能資源出発原料の含有量は、ASTM 6686-08に記載のC14法によって決定することができる。

30

【0024】

共押出しおよび延伸（一軸または二軸延伸）多層構造はトリプルバブルプロセスで製造することができ、PHA組成物の少なくとも1つの層の厚さが2～3マイクロメートルに低減されると同時に、PETなどの従来の半芳香族ポリエステル少なくとも1つの層を有することによって、PHA組成物のガラス転移温度と融点の間の温度、例えば60～85の温度範囲に、第2バブルにおけるブロー成形および延伸温度を設定することによって付与されるものと同等のバブル安定性を有する。

40

【0025】

共押出し多層構造は、再生可能資源出発原料から部分的または全体的に、製造され得る。

【0026】

PHA組成物は、再生可能資源出発原料から全体的に誘導することができ、PHA組成物は少なくとも1種類のPHAポリマーを含み得る。

【0027】

PHAポリマーは生分解性ポリマーであり、その多数が、工業的規模で発酵プロセスによって製造されるか、トウモロコシ、サツマイモ等を含む植物性物質から単離される。

50

【 0 0 2 8 】

P H A ポリマーは、1 種類以上のヒドロキシアリカン酸の縮合重合体であることもできる。P H A ポリマーに含まれてもよい、かかるヒドロキシアリカン酸の例は、グリコール酸、ヒドロキシプロパン酸（乳酸としても知られる）、ヒドロキシ酪酸、ヒドロキシイソブタン酸、ヒドロキシペンタン酸（ヒドロキシ吉草酸としても知られる）、ヒドロキシヘキサン酸（ポリカプロラクトン、P C L としても知られる）、ヒドロキシヘプタン酸、ヒドロキシオクタン酸、ヒドロキシデカン酸、ヒドロキシドデカン酸、ヒドロキシテトラデカン酸、またはそれらの2 種類以上の組み合わせである。

【 0 0 2 9 】

好ましいP H A は、グリコール酸、乳酸、ヒドロキシ酪酸、またはそれらの2 種類以上の組み合わせの縮合重合体を含み得る。さらに好ましくは、P H A は乳酸の縮合重合体を含む。

10

【 0 0 3 0 】

乳酸の縮合重合体としては、ポリ（乳酸）（P L A）ホモポリマー、および平均分子量3, 000 ~ 1, 000, 000 g / モル、10, 000 ~ 800, 000 g / モル、20, 000 ~ 700, 000 g / モル、20, 000 ~ 600, 000 g / モル、または30, 000 ~ 700, 000 g / モルを有する、乳酸と、乳酸、その誘導体およびそれらの混合物から誘導される少なくとも50モル%の反復単位を含有する他のモノマーと、のコポリマーが挙げられる。

【 0 0 3 1 】

20

例えば、P L A は、乳酸またはその誘導体から誘導された（によって生成された）反復単位を少なくとも70モル%を含有し得る。P L A は、d - 乳酸、l - 乳酸、またはそのラセミ混合物から誘導することができる。

【 0 0 3 2 】

P H A ポリマーは塊状重合によって製造され得る。塊状重合は通常、特開平3 - 502115号公報、特開平7 - 26001号公報、および特開平7 - 53684号公報に記載の連続プロセス、または米国特許第2668162号明細書および米国特許第3297033号明細書に記載のバッチプロセスのいずれかを用いて行われる。P H A ポリマーは、相当するヒドロキシアリカン酸の脱水重縮合によって合成され得る。P H A ポリマーは、ヒドロキシアリカン酸のアルキルエステルの脱アルコール重縮合を介して、または相当するラクトンまたは環状二量体エステルなどの環状誘導体の開環重合によって合成され得る。P H A ポリマーおよびコポリマーは、生体によって生成されるか、または植物性物質から単離することもできる。米国特許第6323010号明細書には、遺伝子組換え生物から製造される多くのP H A コポリマーが開示されている。

30

【 0 0 3 3 】

共押出し多層フィルム構造のP H A 組成物はさらに、改質剤および他の添加剤、限定されないが、可塑剤、耐衝撃性改良剤、粘度安定剤および加水分解安定剤などの安定剤、潤滑剤、酸化防止剤、紫外線光安定剤、防曇剤、帯電防止剤、染料、顔料または他の着色剤、充填剤、難燃剤、補強剤、発泡剤および膨張剤、および例えば粘着防止剤および剥離剤などポリマー配合の分野で公知の加工助剤を含み得る。

40

【 0 0 3 4 】

これらの添加剤は、本発明のP H A 組成物において20重量%までの量、好ましくは0.01 ~ 7重量%、およびさらに好ましくは0.01 ~ 5重量%の量で存在することができ、重量パーセントはP H A 組成物の全重量に対する%である。

【 0 0 3 5 】

P H A 層の厚さは共押出し多層構造の最終用途に応じて異なり、1 ~ 1000 μ m の範囲であることができ、1 ~ 100 μ m の範囲は、軽量化のために商業的に適切である。一般に、可撓性多層包装構造で使用される場合には、P L A 層であると考えられる最外層は、1 ~ 50 μ m、好ましくは1 ~ 10 μ m の厚さを有し、剛性多層構造で使用される場合には、最外層は10 ~ 1000 μ m の厚さを有し得る。

50

【 0 0 3 6 】

タイ層は、P H A 層をシーラント層に付着させ、シーラント層と P H A 層の両方と直接接触し得る。タイ層は、1 種類以上のオレフィンポリマー（ホモポリマーおよび／またはコポリマー）を含み得る。例えば、そのオレフィンポリマーは、ポリエチレン、プロピレンホモポリマーおよび／またはコポリマー、エチレンコポリマー、およびそれらの2 種類以上の組み合わせからなる群から選択され得る。

【 0 0 3 7 】

ポリエチレンは、好ましくはエチレンのホモポリマーおよびコポリマーから選択される。例えば、超低密度ポリエチレン、極低密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、またはメタロセンポリエチレンなど、様々な種類のポリエチレンホモポリマーをタイ層に使用することができる。

10

【 0 0 3 8 】

ポリエチレンは、従来のチーグラ－・ナッタ、メタロセン、および後期遷移金属錯体触媒システムを用いた、高圧ガス、低圧ガス、溶液およびスラリープロセスなど、当技術分野で公知の利用可能なプロセスによって製造することができる。

【 0 0 3 9 】

ポリプロピレンとしては、プロピレンのホモポリマー、ランダムコポリマー、ブロックポリマー、ターポリマー、またはそれらの2 種類以上の組み合わせが挙げられる。プロピレンのコポリマーとしては、プロピレンと、エチレン、1 - ブテン、2 - ブテンおよび種々のペンテン異性体等の他のオレフィンとのコポリマー、好ましくはプロピレンとエチレンとのコポリマーが挙げられる。プロピレンのターポリマーとしては、プロピレンと、エチレンおよび他の1 つのオレフィンとのコポリマーが挙げられる。ランダムコポリマー（統計コポリマー）は、プロピレンとモノマーの供給比に相当する比で、プロピレンと、高分子鎖全体にランダムに分布するモノマーと、を有する。ブロックコポリマーは、プロピレンホモポリマーからなる鎖セグメントと、例えばプロピレンとエチレンとのランダムコポリマーからなる鎖セグメントと、で構成される。

20

【 0 0 4 0 】

ポリプロピレンホモポリマーまたはランダムコポリマーは、公知のプロセス（例えば、有機金属化合物または三塩化チタンを含有する固体をベースとする、チーグラ－・ナッタ触媒を使用して）によって製造することができる。プロピレンが一般に、第1 段階でそれ自体で最初に重合され、プロピレンおよびエチレンなどの更なるモノマーが次いで、第1 段階中に得られるポリマーの存在下にて、第2 段階で重合されることを除いては、ブロックコポリマーを同様に製造することができる。

30

【 0 0 4 1 】

オレフィンポリマーを製造するプロセスは当業者にはよく知られていることから、その説明は簡略化のために、本明細書で省略される。

【 0 0 4 2 】

エチレンコポリマーとは、エチレンおよび少なくとも1 種類の更なるモノマーから誘導される反復単位を含むポリマーを意味する。

【 0 0 4 3 】

エチレンコポリマーは、エチレン - オレフィンコポリマー、エチレン酢酸ビニルコポリマー、エチレンアルキル（メタ）アクリレートコポリマー、またはそれらの2 種類以上の組み合わせの中から選択され得る。

40

【 0 0 4 4 】

アルキル（メタ）アクリレートとは、アルキルアクリレートおよび／またはアルキルメタクリレートを意味する。

【 0 0 4 5 】

エチレンアルキル（メタ）アクリレートコポリマーは、エチレンモノマーと少なくとも1 種類のアルキル（メタ）アクリレートモノマーとの共重合から誘導される熱可塑性エチレンコポリマーであり、そのアルキル基は、炭素原子1 ~ 1 0 個、好ましくは炭素原

50

子 1 ~ 4 個を含有する。

【 0 0 4 6 】

好ましくは、エチレンコポリマーは、エチレン - オレフィンコポリマー、エチレン酢酸ビニルコポリマー、エチレンメチル (メタ) アクリレートコポリマー、エチレンエチル (メタ) アクリレートコポリマー、エチレンブチル (メタ) アクリレートコポリマー、またはそれらの 2 種類以上の組み合わせである。

【 0 0 4 7 】

タイ層がエチレンコポリマーを含む場合には、エチレンコポリマーは好ましくは、エチレンと、炭素原子 3 ~ 20 個、好ましくは炭素原子 4 ~ 8 個の - オレフィンと、を含むエチレン - オレフィンコポリマーである。

【 0 0 4 8 】

エチレン - オレフィンコポリマーの密度は、 $0.86 \sim 0.925 \text{ g/cm}^3$ 、 $0.86 \sim 0.91 \text{ g/cm}^3$ 、 $0.86 \sim 0.9 \text{ g/cm}^3$ 、 $0.860 \sim 0.89 \text{ g/cm}^3$ 、 $0.860 \sim 0.88 \text{ g/cm}^3$ 、または $0.88 \sim 0.905 \text{ g/cm}^3$ の範囲である。記載の密度範囲内にあるという条件で、チーグラ - ナッタ型触媒によって、およびメタロセンまたは一部位触媒によって製造される樹脂が含まれる。本明細書において有用なメタロセンまたは一部位樹脂は、(i) 5.63 未満の $I - 10 / I - 2$ 比および $(I - 10 / I - 2) - 4.63$ を超える M_w / M_n (多分散性) を有する樹脂、および (ii) 5.63 以上の $I - 10 / I - 2$ 比および $(I - 10 / I - 2) - 4.63$ 以下の多分散性を有する樹脂である。好ましくは、グループ (ii) のメタロセン樹脂は 1.5 を超えるが、 $(I - 10 / I - 2) - 4.63$ 以下の多分散性を有し得る。実質的に直鎖状のメタロセン樹脂を生成することができる、適切な条件および触媒は、米国特許第 5278272 号明細書に記述されている。この参考文献に、異なる荷重下、したがってせん断条件下でのフロー値である、既知の流動学的パラメーター $I - 10$ および $I - 2$ の測定に関する完全な説明が示されている。ゲル浸透クロマトグラフィーによって決定される、既知の M_w / M_n 比決定の測定の詳細も提供されている。

【 0 0 4 9 】

タイ層がエチレン酢酸ビニルコポリマーを含む場合には、共重合酢酸ビニル単位の相対量は、 $2 \sim 40$ 重量%、好ましくは $10 \sim 40$ 重量%であり、その重量パーセントは、エチレン酢酸ビニルコポリマーの全重量に対する%であり得る。単一コポリマーの代わりに、2 種類以上の異なるエチレン酢酸ビニルコポリマーの混合物をタイ層の成分として使用してもよい。

【 0 0 5 0 】

タイ層がエチレンアルキル (メタ) アクリレートコポリマーを含む場合、共重合アルキル (メタ) アクリレート単位の相対量は、 $0.1 \sim 45$ 重量%、好ましくは $5 \sim 35$ 重量%、またさらに好ましくは $8 \sim 28$ 重量%であってもよく、その重量パーセントは、エチレンアルキル (メタ) アクリレートコポリマーの全重量に対する%である。

【 0 0 5 1 】

オレフィンポリマーは、そのコポリマーが、有機官能基でグラフト化および共重合されていることを意味する、修飾されたコポリマーであってもよい。タイ層で使用される修飾ポリマーは、酸、無水物および/またはエポキシド官能基で修飾され得る。モノ、ジまたはポリカルボン酸であり得る、ポリマーの修飾に使用される酸および無水物の例は、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、マレイン酸モノエチルエステル、フマル酸、フマル酸、イタコン酸、クロトン酸、イタコン酸無水物、無水マレイン酸および置換無水マレイン酸、例えばジメチル無水マレイン酸またはシトロニック無水物 (citronic anhydride)、ナディック酸無水物、ナディックメチル無水物、およびテトラヒドロフタル酸無水物、またはそれらの 2 種類以上の組み合わせであり、その無水マレイン酸が好ましい。

【 0 0 5 2 】

1 種類以上のオレフィンホモポリマーおよび/またはコポリマーが酸修飾される場合に

10

20

30

40

50

は、酸を 0.05 ~ 25 重量%を含有し得、その重量パーセントは、修飾ポリマーの全重量に対する%である。

【0053】

無水物修飾ポリマーが使用される場合には、無水物を 0.03 ~ 10 重量%、0.05 ~ 5 重量%、または 0.05 ~ 3 重量%含有し得、その重量パーセントは、修飾ポリマーの全重量に対する%である。

【0054】

ポリマーの修飾に使用されるエポキシドの例は、グリシジル(メタ)アクリレート、アリルグリシジルエーテル、ビニルグリシジルエーテルおよびイタコン酸グリシジルなど、炭素原子 4 ~ 11 個を含む不飽和エポキシドであり、グリシジル(メタ)アクリレートが特に好ましい。

【0055】

エポキシド修飾エチレンコポリマーは好ましくは、エポキシドを 0.03 ~ 15 重量%、0.03 ~ 10 重量%、0.05 ~ 5 重量%、または 0.05 ~ 3 重量%含有し、その重量パーセントは、修飾エチレンコポリマーの全重量に対する%である。好ましくは、エチレンコポリマーの修飾に使用されるエポキシドは、グリシジル(メタ)アクリレートである。エチレン/グリシジル(メタ)アクリレートコポリマーはさらに、炭素原子 1 ~ 6 個を有するアルキル(メタ)アクリレートおよび炭素原子 1 ~ 8 個を有する - オレフィンの共重合単位を含有し得る。代表的なアルキル(メタ)アクリレートとしては、メチル(メタ)アクリレート、エチル(メタ)アクリレート、プロピル(メタ)アクリレート、ブチル(メタ)アクリレート、イソブチル(メタ)アクリレート、ヘキシル(メタ)アクリレート、またはそれらの2種類以上の組み合わせが挙げられる。エチルアクリレートおよびブチルアクリレートが注目される。 - オレフィンは、プロピレン、オクテン、ブテンおよびヘキサン、特にプロピレンの群から選択され得る。

【0056】

好ましくは、タイ層に含まれる修飾エチレンコポリマーは、酸、無水物および/またはグリシジル(メタ)アクリレート官能基で修飾される。

【0057】

オレフィンポリマーおよびその修飾ポリマーは、E. I. du Pont de Nemours and Company, Wilmington, Delaware (Du Pont) から商標 APPEEL (登録商標)、BYNEL (登録商標)、ELVALOY (登録商標) AC、および ELVAX (登録商標) で市販されている。

【0058】

本発明の共押し多層フィルム構造のタイ層で使用するのに適したエチレンコポリマーは、オートクレーブまたは管型反応器のいずれかを使用して当業者に公知の手段によって製造することができる(例えば、米国特許第 3404134 号明細書、米国特許第 5028674 号明細書、米国特許第 6500888 号明細書、米国特許第 3350372 号明細書、および米国特許第 3756996 号明細書)。

【0059】

タイ層はさらに、PHA 組成物に関して上述のように、一般に使用される様々な添加剤および充填剤を含み得る。

【0060】

多層構造のタイ層の厚さは 1 ~ 100 μm 、5 ~ 50 μm 、または 5 ~ 30 μm であり得る。

【0061】

シーラント層は、ヒートシールの従来手段によって、もう1つの層上に融着することができる、1種類以上のオレフィンホモポリマーおよび/またはコポリマーを含み得る。好ましくは、1種類以上のオレフィンホモポリマーおよび/またはコポリマーは、ポリエチレン、プロピレンホモポリマーおよび/またはコポリマー、エチレンコポリマー、例えばエチレン(メタ)アクリル酸コポリマーおよびそれに相当するイオノマー、および/ま

たはその混合物の中から選択される。

【0062】

最も好ましくは、シーラント層は、少なくとも1つのイオノマーを含む。

【0063】

イオノマーはE/X/Yコポリマーであることができ、Eはエチレンであり、Xは $C_3 \sim C_8$ 、-エチレン性不飽和カルボン酸であり、Yは、アルキルアクリレートおよびアルキルメタクリレートから選択される任意選択のコモノマーである。

【0064】

$C_3 \sim C_8$ 、-エチレン性不飽和カルボン酸は、イオノマーの全重量に対して2~30重量%、好ましくは5~20重量%、最も好ましくは12~19重量%で存在し得る。

10

【0065】

適切な $C_3 \sim C_8$ 、-エチレン性不飽和カルボン酸は、メタクリル酸およびアクリル酸の中から選択してもよく、メタクリル酸が好ましい。

【0066】

アルキルアクリレートおよびアルキルメタクリレートから選択されるコモノマーは任意選択的に、0.1~40重量%、好ましくは0.1~10重量%で存在してもよく、最も好ましくは存在しない。

【0067】

シーラント層の少なくとも1つのイオノマー中に存在するカルボン酸官能基は、1種類以上のアルカリ金属、遷移金属、またはアルカリ土類金属カチオン、例えばナトリウム、亜鉛、リチウム、マグネシウム、およびカルシウム；さらに好ましくは亜鉛またはナトリウムによって少なくとも一部中和される。

20

【0068】

したがって、好ましいイオノマーは、E/Xコポリマーの中から選択され得、Eはエチレンであり、Xは、亜鉛またはナトリウムによって一部中和されたメタクリル酸である。

【0069】

さらに、共押し多層構造は、バリア層などの1つ以上の追加の機能性層と、PHA組成物の少なくとも1つの層と少なくとも1つのシーラント層との間に位置する他の機能性層と、を含み得る。

【0070】

適切なバリア層は、エチレンビニルアルコールコポリマー(EVOH)、環状オレフィンコポリマー、およびポリエチレン、ポリビニルアルコール、ならびにポリアミドとのそのブレンドを含む層から選択され得る。

30

【0071】

例えば、共押し多層構造は、PHA組成物の少なくとも1つの層と少なくとも1つのシーラント層との間に位置する、その各側にあるポリアミドの2層間に挟まれたEVOHの層を含み得る。

【0072】

共押し多層構造は、PHA組成物の少なくとも1つの層、少なくとも1つのタイ層、および少なくとも1つのシーラント層を含む円筒形多層フィルム構造を共押しする工程と、第1バブルにおいて共押し円筒形多層フィルム構造を冷却する工程と、第2バブルにおいて加熱下にて、共押し円筒形多層フィルム構造を一軸または二軸延伸する工程と、第3バブルにおいて加熱下にて、一軸または二軸延伸された共押し円筒形多層フィルム構造を緩和する工程と、を含み得るトリプルバブルプロセスによって製造することができる。

40

【0073】

トリプルバブルプロセスにおいて、第2バブルにおいて、PHA組成物のガラス転移温度と融点の間の温度に、共押し多層構造を加熱することができる。

【0074】

第3バブルにおいて、PHA組成物のガラス転移温度と融点の間の温度に、共押し多

50

層構造を加熱することができる。

【0075】

このトリプルバブルプロセスは、他の機能性層と併せて、優れたバリア性ならびに良好な機械的性質を有するPHA組成物の少なくとも1つの一軸または二軸延伸層を含む共押し多層構造の製造を可能にする。

【0076】

同時押し成形は、一般に顆粒状の相当する材料を処理する複数の押出機を、円形または環状ダイに連結して、円筒形多層フィルムを形成することによって実施され得る。

【0077】

円筒形多層フィルムの最外層を形成するように、当技術分野で公知の方法によって、多層フィルムにおける少なくとも1つの相当する層を構成するPHA組成物を押出機1(E1)に供給することができる。

10

【0078】

円筒形多層フィルムの中間層を形成するように、当技術分野で公知の方法によって、本発明の多層フィルムにおけるタイ層を構成するポリマーを押出機2(E2)に供給することができ、その少なくとも1つのタイ層は、PHA組成物とシーラント層に隣接する。

【0079】

円筒形多層フィルムの中間層を形成するように、当技術分野で公知の方法によって、本発明の多層フィルムにおけるシーラント層を構成するポリマーを押出機3(E3)に供給することができる。

20

【0080】

図1を参照すると、第1バブル(B1)は、ダイを出る直径(D1)を有する円筒形多層フィルムによって一方の端上に形成され、第1バブルB1の気密封止された端を形成するロールR1のセットによってもう一方の端上に形成される。

【0081】

第1バブルB1において、ダイを出る、かつ初期直径D1を有する円筒形多層フィルムは、構造において結晶化が最小限の量になるような方法で迅速に冷却される。

【0082】

迅速な冷却は、温度0.1~50、さらに好ましくは0.1~25 および長さ0.4~5m、好ましくは1~3mを有する第1水浴W1を通じて出てくる円筒形共押し多層フィルムを急冷することによって得ることができる。急冷水浴中での滞留時間は、1~20秒の範囲に調整される。

30

【0083】

冷却後、次いで、固化された円筒形共押し多層フィルムを一セットのロール間に通し得、温度60~95を有する第2水浴W2に浸漬される。第2水浴は1~2メートルの可変長さを有し、フィルムラインの速度に応じて、この浴中での滞留時間は、1~20秒であることができる。

【0084】

水浴W2は、熱風送風機、赤外線ヒーターまたは加熱コイルなど、いずれかの適切な加熱手段に取り替えてもよいし、またはその手段で補うことができる。

40

【0085】

水浴W2は、フィルムが引き裂かれることなく延伸される、60より高い、好ましくは60~85、さらに好ましくは65~75の温度に、通ってきた固化円筒形共押し多層フィルムを予熱することができる。さらに一般的な言い方では、固化円筒形共押し多層フィルムは、最も高いガラス転移温度を有する層のガラス転移温度を超える温度に加熱される。第2水浴W2中で予熱された後、次いで軟化された円筒形共押し多層フィルムを膨張させ、第2バブルを形成する。軟化円筒形構造を膨張させることによって、第2バブルB2のMD方向とTD方向の両方に同時に延伸することによって構造を延伸させることが可能となる。

【0086】

50

M D方向の延伸は、第2バブルの上流（押出機に向かって）端を形成する、第2セットのニップロールR 2の速度V 2、および第2バブルの下流（押出機から離れて）端を形成する、第3セットのニップロールR 3の速度V 3を調節することによって達成することができる。一般に、V 3はV 2を超え、好ましくはV 2の2～4倍を超える。その代わりに述べると、 $V 3 / V 2$ により示される比は延伸比に等しく、好ましくは2～3である。

【0087】

T D方向の延伸は、第2バブルB 2内の圧力P 1を調節することによって達成することができる。圧力P 1を調節するために、第2バブルB 2の気密上流（押出機に向かって）端を形成する第1セットのニップロールR 2と、第2バブルB 2の気密下流（押出機から離れて）端を形成する第2セットのニップロールR 3との間の距離L 1が調節される。2セットのニップロール（R 2、R 3）間の距離L 1を短くすることによって、圧力P 1が増加し得るのに対して、距離L 1を長くすることによって、第2バブル内の圧力P 1が低くなり得る。T D方向に延伸した後、軟化円筒形多層フィルムの初期直径D 1を直径D 2に増加することができ、D 2とD 1の比は2～5、好ましくは2.5～3.5である。

【0088】

円筒形多層フィルムは、加熱下にて第2バブルB 2で延伸することによって延伸される。ニップロールR 2をセットする前に、円筒形多層フィルムを水浴W 2に通すことによって、加熱が提供され、第2バブルにおいてP H A組成物のガラス転移温度と融点の間の温度で円筒形多層フィルムを維持するために、代替の熱源で補うことができる。好ましくは、第2バブルB 2における共押出し多層フィルムの温度は、60～85 または65～75 であり得る。

【0089】

第2水浴W 2が、熱風送風機、赤外線ヒーターまたは加熱コイルなど、代替の熱源に取り替えられる、またはそれで補われる場合には、代替の熱源は好ましくは、第2バブルの上流（押出機に向かって）を封止する第2セットのニップロールR 2の直後に位置付けられる。

【0090】

第3セットのニップロールR 3を通過する間に、さらに容易に運搬されるように、延伸された円筒形共押出し多層フィルムを平らにすることができる。

【0091】

ロールR 3のセットを通過した後、円筒形共押出し多層フィルムは、第3バブルB 3の気密上流（押出機に向かって）端を形成するニップロールR 4の第4セット、および第3バブルB 3の気密下流（押出機から離れて）端を形成するニップロールR 5の第5セットに通される。

【0092】

ニップロール（R 4、R 5）の第4および第5セットは、予め延伸された円筒形共押出し多層フィルムをT D方向に緩和させるために、第3バブルB 3内の圧力P 2を増加または減少させるために調節される距離L 2によって分離されている。

【0093】

一般に、これは、圧力P 2が圧力P 1よりも低くなるように、第3バブルB 3における圧力P 2を調節することによって達成することができる。その圧力は、第3バブルB 3、のニップロール（R 4、R 5）の第4セットと第5セットの間の距離L 2を変更することによって調節され、その圧力は直径D 3を変更し得る。その緩和比は $D 3 / D 2$ の比によって示されるのに対して、D 3は通常、D 2よりも小さく、同時に $D 3 / D 2$ の比は1よりも小さい。一般的に、 $D 3 / D 2$ 比は0.8～0.95または0.85～0.9であることができる。

【0094】

予め延伸された円筒形共押出し多層フィルムをM D方向に緩和させるために、ニップロールR 4の第4セットの速度V 4およびニップロールの第5セットの速度V 5が調節され得る。

【 0 0 9 5 】

一般に、これはV 5 がV 4 よりも小さくなるように、ニップロールR 5 の第5セットの速度V 5 を調節することによって達成することができる。その緩和比はV 5 / V 4 よって示されるのに対して、V 5 は通常、V 4 よりも小さく、同時にV 5 / V 4 の比は1 よりも小さい。一般的に、V 5 / V 4 比は0 . 8 ~ 0 . 9 5、さらに好ましくは0 . 8 5 ~ 0 . 9 であることができる。

【 0 0 9 6 】

第3バブルの温度、圧力P 2 およびV 5 / V 4 の比は個々に、または並行して調節され、温度4 0 ~ 1 0 0 で測定された場合に、1 ~ 6 0 %、5 ~ 5 0 %、1 0 ~ 4 0 %、または1 5 ~ 3 0 %の範囲の熱収縮を示す円筒形共押し多層フィルムが得られる。

10

【 0 0 9 7 】

第3バブルの温度は、赤外線ヒーター、スチームまたは熱風ヒーターによって調節することができ、第3バブルに関して設定された温度を超える温度に加熱した場合に、MD方向および/またはTD方向での完成円筒形共押し多層フィルムに存在する所望の熱収縮に応じて選択することができる。一方、円筒形共押し多層フィルムは、第3バブルB 3に関して設定された温度を下回る温度に加熱すると、熱収縮を全く示さない場合がある。

【 0 0 9 8 】

円筒形多層フィルムは、加熱下にて第3バブルB 3において緩和される。第2バブルにおいて、PHA組成物の少なくとも1つの層のガラス転移温度と、PHA組成物の少なくとも1つの層の融点との間の温度で円筒形多層フィルムを維持するために、赤外線ヒーター、スチームまたは熱風ヒーターなどの適切な加熱手段が使用され得る。好ましくは、第3バブルB 3における共押し多層フィルムの温度は、第2バブルにおける温度よりも高く、さらに好ましくは7 0 ~ 1 2 0 である。

20

【 0 0 9 9 】

第3バブルにおいて選択される設定に応じて、共押し多層フィルム構造は、9 0 の熱水浴に1分間かけられた場合に、1 ~ 6 0 %、5 ~ 5 0 %、1 0 ~ 4 0 %、1 5 ~ 3 0 %、または3 0 ~ 5 0 %の熱収縮を示し得る。

【 0 1 0 0 】

第3バブルにおいて選択される設定に応じて、共押し多層フィルム構造は、1 2 0 の熱風循環オープンに1分間かけられた場合に、1 ~ 1 0 %、1 ~ 8 %、1 ~ 7 %、1 ~ 5 %、または1 ~ 3 %の熱収縮を示し得る。

30

【 0 1 0 1 】

ニップロールR 5 の第5セットを通過した後、円筒形共押し多層フィルムは、1セットのロールを通り、ロールS上で平坦化され、保管される。

【 0 1 0 2 】

任意選択的に、ニップロールR 5 の第5セットを出る円筒形共押し多層フィルムは、一方の面でスリットナイフKによってスリットを入れられてもよく、ロールS上に保管され得る平面共押し多層フィルムが得られる。

【 0 1 0 3 】

上記のプロセスは、一軸または二軸延伸PHA組成物の少なくとも1つの層、少なくとも1つのタイ層および少なくとも1つのシーラント層を含む共押し多層フィルムの製造を提供する。

40

【 0 1 0 4 】

この共押し多層フィルム構造は、特に包装用途で 사용할 ことができるが、例えば建築物、敷地整備、または衣料品用途のテープまたは生地 の製造等の非包装用途に使用することもできる。例えば、共押し多層フィルム構造は、蓋用フィルムとして、または収縮フィルムとして包装物品に使用されることができる。

【 0 1 0 5 】

上記で開示される共押し多層フィルム構造を含む物品も提供される。この物品は、鋭い、先細の、かつ/または鋭利なエッジを有する食品成分、例えばコーヒー、米、骨また

50

は骨の破片を含有する肉、乾燥麺などの包装に使用することができる。

【実施例】

【0106】

共押出し多層フィルムは、K u h n e A n l a g e n b a u G m b H , G e r m a n y から、トリプルバブル（3B）製造ラインで製造された。

【0107】

11個の押出機を円形ダイに連結して、11層を有する円筒形多層構造が共押出し成形された。

【0108】

円形ダイを230の温度に設定し、外側（a）から内側（k）へと以下の順序で層が
押出されるように構成した：

【0109】

【表1】

(a)	NatureWorks LLCから商標INGEOで市販されているポリ乳酸樹脂
(b)	E. I. du Pont de Nemours and Companyから商標BYNEL® Series 2100で市販されている、無水物修飾エチレンアクリレート樹脂
(c)	Lyondell Basellから商標LUPOLEN2420/COCで市販されている、低密度ポリエチレン樹脂
(d)	Lyondell Basellから商標LUPOLEN2420/COCで市販されている、低密度ポリエチレン樹脂
(e)	E. I. du Pont de Nemours and Companyから商標BYNEL® Series 2100で市販されている、無水物修飾エチレンアクリレート樹脂
(f)	UBE Groupから6/6.6 PAの商標UBE 6034Bで市販されている、ナイロン6とナイロン6.6のブレンド
(g)	Nippon Gihseiから商標SOARNOL 2904で市販されている、エチレンビニルアルコールコポリマー(EVOH)
(h)	UBE Groupから商標UBE 6034Bで市販されている、ナイロン6とナイロン6.6のブレンド
(i)	E. I. du Pont de Nemours and Companyから商標BYNEL® Series 2100で市販されている、無水物修飾エチレンアクリレート樹脂
(j)	Lyondell Basellから商標LUPOLEN2420/COCで市販されている、低密度ポリエチレン樹脂
(k)	ポリエチレン樹脂95重量%とポリプロピレン樹脂5重量%のブレンドからなるシーラント組成物

【0110】

円形ダイを出る円筒形多層構造は、急冷するために温度10の水浴へと向けられ、直径を74.5mmに設定する口径測定器（c a l i b r a t o r）に通された。次いで、円筒形多層構造は、構造を予熱するために温度88の水浴中へとローラーを通して運搬され、続いて、縦方向（MD）および横方向（TD）両方同時に二軸延伸された。

【0111】

横方向の延伸は、熱風送風機を用いて温度70に円筒形多層構造を加熱し、加熱された円筒形多層構造を74.5mmから245mmの直径へと膨張させることによって達成され、横方向の延伸比3.29が得られた。

【0112】

縦方向の延伸は、熱風送風機を用いて温度70に円筒形多層構造を加熱し、上流ローラー速度の2.5倍に下流ローラー速度を設定することによって、加熱された円筒形多層構造を延伸し、その結果、縦方向の延伸比2.5が得られることによって達成された。

【 0 1 1 3 】

次いで、その二軸延伸円筒形多層構造を平坦化し、室温に冷却し、ローラーによって運搬し、続いて縦方向（MD）と横方向（TD）両方で同時に緩和にかけた。

【 0 1 1 4 】

横方向の緩和は、熱風送風機で温度 97 に円筒形多層構造を加熱し、加熱された円筒形多層構造を膨張させ、直径 245 mm から直径 191 mm にその直径を減らし、その結果、横方向の延伸比 0.78 が得られることによって達成された。

【 0 1 1 5 】

縦方向の緩和は、熱風送風機で温度 97 に円筒形多層構造を加熱し、上流ローラー速度の 0.92 倍に下流ローラー速度を設定することによって、加熱された円筒形多層構造を収縮させ、その結果、縦方向の延伸比 0.92 が得られることによって達成された。

10

【 0 1 1 6 】

このようにして得られた円筒形二軸延伸共押出し多層フィルム構造を次いで、スリットナイフによって一方の面にスリットを入れて、ロール上に巻かれた平坦な共押出し多層フィルム構造が形成された。

【 0 1 1 7 】

総厚 75 μm を有する、このようにして得られた円筒形二軸延伸共押出し多層フィルム構造において、個々の層は以下の厚さを有した：

【 0 1 1 8 】

【表 2】

20

	(a)	(b)	(c)	(d)	(e)	(f)	(g)	(h)	(i)	(j)	(k)
厚さ (μm)	7.5	5.25	21	3	3.75	6	4.5	6	3.75	3	11.25

【 0 1 1 9 】

比較実験において、厚さ 20 ミクロンを有し、かつ Treofan France (Mantes-la-Jolie) から商品名 PLA121 で市販されている、予め作製された二軸延伸ポリ乳酸フィルムを、ポリ乳酸フィルム上にシーラント組成物の溶融物を付着させることによって押出しコーティングした。

【 0 1 2 0 】

押出ダイを出る際に、溶融物は 300 の温度を有し、溶融物と接触すると、ポリ乳酸フィルムは 120 まで加熱される。ポリ乳酸フィルムと溶融物が接触すると、ポリ乳酸フィルムは横方向および縦方向に収縮し、折り目およびしわを示した。さらに、シーラント組成物との間の付着力は、1 N / 15 mm を下回った。

30

【 0 1 2 1 】

シーラント組成物は、第 1 修飾エチレンアクリレート樹脂 (E. I. du Pont de Nemours and Company から商標 BYNEL (登録商標) 22E780 で市販されている) 80 重量% および第 2 修飾エチレンアクリレート樹脂 (E. I. du Pont de Nemours and Company から商標 APPEL (登録商標) 20D855 で市販されている) 20 重量% からなった。

【 0 1 2 2 】

40

比較実験の上記の説明から導かれるように、延伸ポリ乳酸フィルムが熱収縮するために、欠陥を生じることなく、延伸ポリ乳酸が加熱される従来の方法によって、延伸ポリ乳酸の層を含む商業的に存続可能な多層フィルム構造を製造することは現在のところ可能ではない。

【 0 1 2 3 】

対照的に、トリプルバブルプロセスによる、かかる多層構造の製造は、これらの問題を回避し、溶剤型接着剤を用いた「コールド」ラミネーション法の効率的な代替法を提供する。

本発明のまた別の態様は、以下のとおりであってもよい。

〔 1 〕 一軸または二軸延伸ポリ (ヒドロキシアルカン酸) 組成物の少なくとも 1 つの層と

50

、少なくとも１つのタイ層と、少なくとも１つのシーラント層と、ポリ（ヒドロキシアルカン酸）組成物層と、少なくとも１つのタイ層と、少なくとも１つのシーラント層とを含む共押し多層構造であって、延伸されていてもよく、かつフィルムまたはシートである、共押し多層構造。

〔２〕トリプルバブルプロセスによって得られる、前記〔１〕に記載の構造。

〔３〕９０ 水浴中で１分間、１～６０％、または３０～５０％の熱収縮を有する、前記〔１〕または〔２〕に記載の構造。

〔４〕１２０ 水浴中で１分間、１～１０％、または１～３％の熱収縮を有する、前記〔１〕または〔２〕に記載の構造。

〔５〕前記ポリ（ヒドロキシアルカン酸）組成物が、グリコール酸、乳酸、ヒドロキシ酪酸、またはそれらの２種類以上の組み合わせの縮合重合体を含む、前記〔１〕、〔２〕、〔３〕、または〔４〕に記載の構造。

〔６〕ポリ乳酸、無水物修飾エチレンアクリレート、ポリエチレン、ポリエチレン、無水物修飾エチレンアクリレート、ポリアミド、エチレンビニルアルコール、ポリアミド、無水物修飾エチレンアクリレート、ポリエチレンの層と、シーラント層と、を含む１１層を有する前記〔１〕に記載の構造。

〔７〕前記〔１〕、〔２〕、〔３〕、〔４〕、または〔６〕に記載の多層構造を含む物品。

〔８〕蓋用フィルムである、前記〔７〕に記載の物品。

〔９〕包装物品である、前記〔７〕に記載の物品。

〔１０〕前記多層構造が、前記包装物品の蓋用フィルムとして使用される、前記〔９〕に記載の物品。

〔１１〕ポリ（ヒドロキシアルカン酸）ポリマー組成物、タイ層組成物、およびシーラント層組成物を共押しして、多層構造を形成する工程；

第１バブルにおいて前記多層フィルム構造を冷却して、円筒形多層構造を形成する工程；

第２バブルにおいての加熱下で、前記円筒形多層構造を延伸して、延伸円筒形多層構造を形成する工程；

第３バブルにおいての加熱下で、前記延伸円筒形多層構造を緩和する工程；を含む、共押し多層構造を製造するプロセス。

〔１２〕前記延伸が、前記ポリ（ヒドロキシアルカン酸）ポリマー組成物のガラス転移温度と融点の間の温度で行われる、前記〔１１〕に記載のプロセス。

〔１３〕前記緩和が、前記ポリ（ヒドロキシアルカン酸）ポリマー組成物のガラス転移温度と融点の間の温度で行われる、前記〔１１〕または〔１２〕に記載のプロセス。

10

20

30

【図 1】

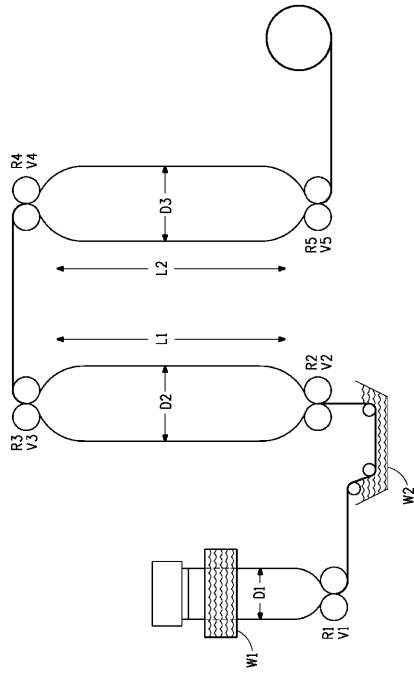


FIG. 1

フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I	
B 3 2 B	27/00	(2006.01)	B 3 2 B 27/00 H
B 3 2 B	7/028	(2019.01)	B 3 2 B 7/02 1 0 6
B 6 5 D	65/40	(2006.01)	B 6 5 D 65/40 D

(74)代理人 100093300

弁理士 浅井 賢治

(74)代理人 100119013

弁理士 山崎 一夫

(74)代理人 100123777

弁理士 市川 さつき

(74)代理人 100147588

弁理士 渡辺 浩司

(72)発明者 ハウスマン カールハインツ

スイス 2 0 1 2 アヴェルニエ アベス 2 1

(72)発明者 トゥルイエ イヴ エム

スイス ツェーハー 1 2 2 2 ベズナ シュマン ド タット 4 ベ

(72)発明者 シフマン イェルゲン

ドイツ連邦共和国 デーエー 5 3 7 7 3 ヘンネフ エールガルテンシュトラッセ 2 3

審査官 長谷川 大輔

(56)参考文献 再公表特許第 2 0 0 9 / 0 8 4 5 1 8 (J P , A 1)

特開昭 6 2 - 2 7 3 8 4 9 (J P , A)

特開平 1 1 - 3 0 0 9 1 4 (J P , A)

特開 2 0 0 7 - 1 6 0 5 7 4 (J P , A)

特開平 0 7 - 0 2 6 0 0 1 (J P , A)

米国特許出願公開第 2 0 0 3 / 0 0 3 9 7 7 5 (U S , A 1)

米国特許出願公開第 2 0 1 0 / 0 3 3 0 3 8 2 (U S , A 1)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

B 2 9 C 4 7 / 0 0 - 4 7 / 9 6

B 3 2 B 1 / 0 0 - 4 3 / 0 0

B 6 5 D 6 5 / 0 0 - 6 5 / 4 6