

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4289920号
(P4289920)

(45) 発行日 平成21年7月1日 (2009.7.1)

(24) 登録日 平成21年4月10日 (2009.4.10)

(51) Int.Cl.

F I

G 0 9 F 3/04 (2006.01)

G O 9 F 3/04 Z B P Z

B 3 2 B 27/08 (2006.01)

B 3 2 B 27/08

B 6 5 D 65/40 (2006.01)

B 6 5 D 65/40 D

B 6 5 D 65/46 (2006.01)

B 6 5 D 65/46

請求項の数 8 (全 15 頁)

(21) 出願番号 特願2003-130266 (P2003-130266)
 (22) 出願日 平成15年5月8日 (2003.5.8)
 (65) 公開番号 特開2004-46100 (P2004-46100A)
 (43) 公開日 平成16年2月12日 (2004.2.12)
 審査請求日 平成18年5月1日 (2006.5.1)
 (31) 優先権主張番号 特願2002-133896 (P2002-133896)
 (32) 優先日 平成14年5月9日 (2002.5.9)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(73) 特許権者 000005968
 三菱化学株式会社
 東京都港区芝4丁目14番1号
 (73) 特許権者 000122313
 株式会社ユボ・コーポレーション
 東京都千代田区神田駿河台4丁目3番地
 (74) 代理人 100084320
 弁理士 佐々木 重光
 (72) 発明者 西澤 孝利
 茨城県鹿島郡神栖町東和田23番地 株式
 会社ユボ・コーポレーション鹿島工場内
 (72) 発明者 笠井 厚
 東京都千代田区神田駿河台4丁目3番地
 株式会社ユボ・コーポレーション内

最終頁に続く

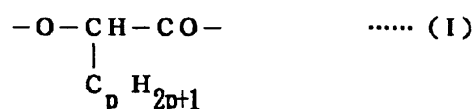
(54) 【発明の名称】 生分解性インモールド成形用ラベル、およびこのラベルを貼着した生分解性容器

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

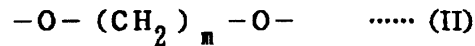
生分解性樹脂 (A) を含むフィルム (a) と、ヒートシール性生分解性樹脂 (B) を含む層 (b) を設けた積層フィルム (a / b) を構成層として含む生分解性インモールド成形用ラベルであって、ヒートシール性生分解性樹脂 (B) が、下記 [I] 式で表される脂肪族オキシカルボン酸単位 0.02 ~ 30 モル%、下記 [II] 式で表される脂肪族ジオール単位 35 ~ 49.99 モル%、および下記 [III] 式で表される脂肪族ジカルボン酸単位 35 ~ 49.99 モル%を含む脂肪族ポリエステルを含むものであることを特徴とする、生分解性インモールド成形用ラベル。

【化1】



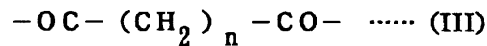
{ (I) 式中、p は 0 または 1 ~ 10 の整数である。 }

【化 2】



{ (II) 式中、mは2～10の整数である。}

【化 3】



{ (III)式中、nは0または1～12の整数である。}

10

【請求項 2】

ヒートシール性生分解性樹脂 (B) の融点が、生分解性樹脂 (A) の融点より 5 以上低いものである、請求項 1 に記載の生分解性インモールド成形用ラベル。

【請求項 3】

フィルム(a)が、生分解性樹脂 (A) と、無機微細粉末 (E 1) および有機フィラー (E 2) のうち少なくとも一種を含むものである、請求項 1 または請求項 2 に記載の生分解性インモールド成形用ラベル。

20

【請求項 4】

生分解性樹脂 (A) 製フィルム(a)が、少なくとも一軸延伸された層を含む積層フィルムである、請求項 1 ないし請求項 3 のいずれか一項に記載の生分解性インモールド成形用ラベル。

【請求項 5】

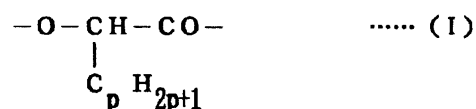
生分解性樹脂 (A) が、脂肪族オキシカルボン酸 (共) 重合体、ラクトン (共) 重合体、および、脂肪族または脂環式ジカルボン酸単位と、脂肪族または脂環式ジオール単位を必須成分として含むポリエステル樹脂のうち少なくとも一種を含むものである、請求項 1 ないし請求項 4 のいずれか一項に記載の生分解性インモールド成形用ラベル。

30

【請求項 6】

生分解性樹脂 (A) が、ポリ乳酸および/または下記[I]式で表される脂肪族オキシカルボン酸単位 0.02～30モル%、下記[II]式で表される脂肪族ジオール単位 35～49.99モル%、および下記[III]式で表される脂肪族ジカルボン酸単位 35～49.99モル%を含む脂肪族ポリエステルを含むものである、請求項 1 ないし請求項 5 のいずれか一項に記載の生分解性インモールド成形用ラベル。

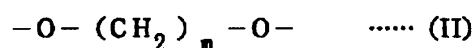
【化 4】



{ (I) 式中、pは0または1～10の整数である。}

40

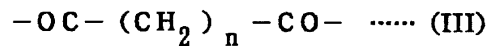
【化 5】



{ (II) 式中、mは2～10の整数である。}

50

【化 6】



{ (III)式中、nは0または1～12の整数である。}

【請求項 7】

ヒートシール性生分解性樹脂（B）が、脂肪族オキシカルボン酸（共）重合体、ラクトン（共）重合体、および、脂肪族または脂環式ジカルボン酸単位と、脂肪族または脂環式ジオール単位を必須成分として含むポリエステル樹脂のうち少なくとも一種を含むものである、請求項 1 ないし請求項 6 のいずれか一項に記載の生分解性インモールド成形用ラベル。

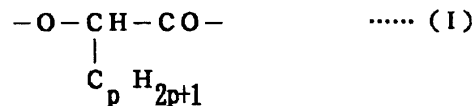
10

【請求項 8】

生分解性樹脂（C）よりなる容器の表面に、生分解性樹脂（A）を含むフィルム（a）と、ヒートシール性生分解性樹脂（B）を含む層（b）を設けた積層フィルム（a/b）を構成層として含むインモールド成形用ラベルが貼着されている生分解性容器であって、ヒートシール性生分解性樹脂（B）が、下記 [I] 式で表される脂肪族オキシカルボン酸単位 0.02～30 モル%、下記 [II] 式で表される脂肪族ジオール単位 35～49.99 モル%、および下記 [III] 式で表される脂肪族ジカルボン酸単位 35～49.99 モル%を含む脂肪族ポリエステルを含むものであることを特徴とする、生分解性容器。

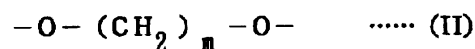
20

【化 7】



{ (I) 式中、pは0または1～10の整数である。}

【化 8】



{ (II) 式中、mは2～10の整数である。}

30

【化 9】



{ (III)式中、nは0または1～12の整数である。}

40

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、生分解性インモールド成形用ラベル、およびこのラベルを貼着した生分解性容器に関する。さらに詳しくは、生分解性樹脂を原料とし、射出成形法、射出吹込（インジェクションブロー）成形法、吹込（ブロー）成形法、真空成形法または圧空成形法などによって製造される生分解性容器表面への貼着用ラベル、およびこのラベルを貼着してなる生分解性容器に関する。

50

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

近年、使用済み合成樹脂成形品（製品）を廃棄物として埋立て処理する場合や、焼却処理する場合に環境汚染問題を発生することがある。この環境汚染問題を解決する手法として、成形品製造用の材料として、生分解性樹脂の使用が注目されている。各種の包装容器の製造用の原料樹脂にも、これらの生分解性樹脂の使用が検討されている。例えば、自然環境下で生分解性を有し、透明性と衝撃強度が優れた容器として、ポリ乳酸または乳酸とその他のヒドロキシカルボン酸の共重合体を主成分とした組成物よりなる生分解性容器（特許文献 1 参照）や、脂肪族多価アルコール類と脂肪族多塩基酸類を主成分とした組成物からなる生分解性容器（特許文献 2 参照）などが提案されている。

10

【 0 0 0 3 】

一方、包装容器表面に貼着するラベルも、自然環境下で生分解性を有し、焼却処理する場合に燃焼熱の低い材料が要求されている。この要請に応えるものとして、生分解性樹脂からなる容器外周面を、同じ生分解性樹脂製の収縮性ラベルで巻いた容器（特許文献 3 参照）、生分解性ポリエステルを用いて容器を成形する際に、あらかじめ紙製のラベルを金型内にインサートして容器を成形する方法（特許文献 4、特許文献 5 参照）などが提案されている。

【 0 0 0 4 】

しかし、紙ラベルは生分解性を有し燃焼熱も低いですが、水分に弱く、使用中に損傷を受けやすいなどの欠点がある。紙ラベルの欠点を改良したものとして、例えば、ポリプロピレンおよびポリエチレンからなるラベル用合成紙が提案されている（特許文献 6 参照）が、生分解性でないため、依然として環境汚染の問題が残る。生分解性樹脂製フィルムよりなるインモールド成形用ラベル、およびこのラベルを貼着した生分解性容器は、これまでのところ提案されていない。

20

【 0 0 0 5 】

【特許文献 1】

特開平 6 - 2 3 8 2 8 号公報

【特許文献 2】

特開平 7 - 1 7 2 4 2 5 号公報

【特許文献 3】

特開平 8 - 5 8 7 9 7 号公報

【特許文献 4】

特開平 8 - 5 8 7 9 6 号公報

【特許文献 5】

特開平 1 0 - 2 9 1 2 4 7 号公報

【特許文献 6】

特開平 2 - 8 4 3 1 9 号公報

【 0 0 0 6 】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、耐水性に優れ、文字などを各種の印刷法により印刷が可能で、自然環境下で分解可能である生分解性インモールド成形用ラベル、およびこのラベルを貼着した生分解性容器を提供すべく鋭意検討した結果、本発明を完成するに至ったものである。

40

【 0 0 0 7 】

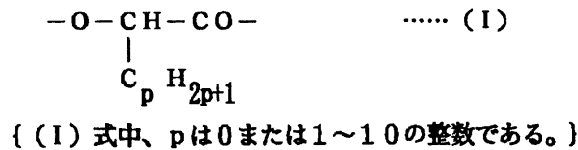
【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するために、第 1 発明では、生分解性樹脂（A）を含むフィルム（a）と、ヒートシール性生分解性樹脂（B）を含む層（b）を設けた積層フィルム（a/b）を構成層として含む生分解性インモールド成形用ラベルであって、ヒートシール性生分解性樹脂（B）が、下記〔I〕式で表される脂肪族オキシカルボン酸単位 0.02 ~ 30 モル%、下記〔II〕式で表される脂肪族ジオール単位 35 ~ 49.99 モル%、および下記〔III〕式で表される脂肪族ジカルボン酸単位 35 ~ 49.99 モル%を含む脂肪族ポリ

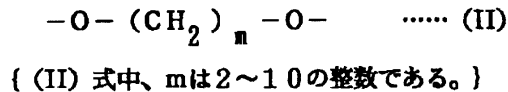
50

エステルを含むものであることを特徴とする、生分解性インモールド成形用ラベルを提供する。

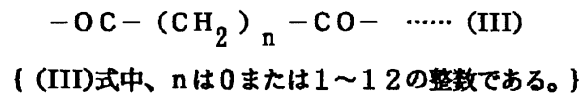
【化 1】



【化 2】



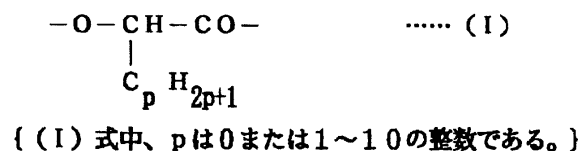
【化 3】



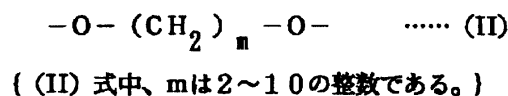
【 0 0 0 8 】

また、第 2 発明では、生分解性樹脂 (C) よりなる容器の表面に、生分解性樹脂 (A) を含むフィルム (a) と、ヒートシール性生分解性樹脂 (B) を含む層 (b) を設けた積層フィルム (a / b) を構成層として含むインモールド成形用ラベルが貼着されている生分解性容器であって、ヒートシール性生分解性樹脂 (B) が、下記 [I] 式で表される脂肪族オキシカルボン酸単位 0 . 0 2 ~ 3 0 モル %、下記 [II] 式で表される脂肪族ジオール単位 3 5 ~ 4 9 . 9 9 モル %、および下記 [III] 式で表される脂肪族ジカルボン酸単位 3 5 ~ 4 9 . 9 9 モル % を含む脂肪族ポリエステルを含むものであることを特徴とする、生分解性容器を提供する。

【化 4】



【化 5】



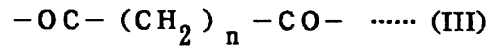
【化 6】

10

20

30

40



{ (III)式中、nは0または1～12の整数である。}

【0009】

【発明の実施の形態】

以下、本発明を詳細に説明する。

本発明においてインモールド成形とは、射出成形法、射出吹込成形法、吹込成形法、真空成形法または圧空成形法などによって各種容器を製造する際に、金型キャビティ表面または金型表面に直接ラベルを配置し、このラベルを製品容器の壁面の一部に貼着する成形法をいう。

10

【0010】

本発明の第1発明に係る生分解性インモールド成形用ラベルは、生分解性樹脂(A)を含むフィルム(a){以下、フィルム(a)または(a)と略称することがある}と、ヒートシール性生分解性樹脂(B)を含む層(b){以下、ヒートシール性層(b)または(b)と略称することがある}とを構成層とする積層フィルム(a/b)によって構成される。本発明において、生分解性樹脂(A)および生分解性樹脂(B)とは、自然環境下で分解性を有する熱可塑性樹脂をいう。

【0011】

20

生分解性樹脂としては、自然環境下で分解性を有する熱可塑性樹脂であれば特に制限がない。例えば、1 脂肪族オキシカルボン酸の重縮合体および共重縮合体である脂肪族オキシカルボン酸(共)重合体、2 ラクトンの開環重合体および共重合体であるラクトン(共)重合体、中でもラクトン(共)重合体(ポリカプロラクトンやカプロラクトンの共重合体など)、3 脂肪族または脂環式ジオールと、脂肪族または脂環式ジカルボン酸との重縮合体および共重縮合体、ならびに、これらのジオールとジカルボン酸、およびラクトン、ヒドロキシカルボン酸との共重縮合体であるポリエステル樹脂などが挙げられる。また、これら生分解性樹脂の諸物性を改善する目的で、イソシアネートのような鎖延長剤、3官能以上の多官能性化合物を含ませることもできる。

【0012】

30

脂肪族オキシカルボン酸としては、例えば、グリコール酸、乳酸、2-ヒドロキシ-n-酪酸、2-ヒドロキシ-3-メチル-n-酪酸、2-ヒドロキシ-3,3-ジメチル-n-酪酸、3-ヒドロキシ-n-酪酸、4-ヒドロキシ-n-酪酸、2-ヒドロキシ-n-吉草酸、3-ヒドロキシ-n-吉草酸、4-ヒドロキシ-n-吉草酸、5-ヒドロキシ-n-吉草酸、2-ヒドロキシ-n-ヘキサン酸、2-ヒドロキシ-1-ヘキサン酸、3-ヒドロキシ-n-ヘキサン酸、4-ヒドロキシ-n-ヘキサン酸などが挙げられる。ラクトンとしては、例えば、プロピオラクトン、ブチロラクトン、バレロラクトン、カプロラクトン、ラウロラクトンなどが挙げられる。

【0013】

40

脂肪族または脂環式ジオールとしては、例えば、エチレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、1,8-オクタンジオール、1,10-デカンジオール、1,2-シクロヘキサンジオール、1,4-シクロヘキサンジオール、1,2-シクロヘキサンジメタノール、1,4-シクロヘキサンジメタノールなどが挙げられる。脂肪族または脂環式ジカルボン酸としては、例えば、シュウ酸、マロン酸、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、ウンデカジカルボン酸、ドデカジカルボン酸、ヘキサヒドロフタル酸、ヘキサヒドロイソフタル酸、ヘキサヒドロテレフタル酸が挙げられる。ポリエステル製造の際には、これらジカルボン酸の炭素数が1～4程度のアルキルエステル、無水物などの誘導体を用いることもできる。

【0014】

50

なお、前記脂肪族または脂環式ポリエステル樹脂は、生分解性を損なわない範囲で、共重合成成分として芳香族ジオール、芳香族ジカルボン酸、芳香族オキシカルボン酸を含ませることができる。芳香族ジオールとしては、2,2-ビス(4'-ヒドロキシフェニル)プロパンなどが、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、ナフタレンジカルボン酸など、および芳香族オキシカルボン酸としては、ヒドロキシ安息香酸などが、それぞれ挙げられる。

【0015】

これらの脂肪族または脂環式ポリエステル樹脂の製造方法は、特に限定されるものではなく、例えば、環状モノマーから開環重合法による方法、特開平8-239461号公報に記載されているような熔融重縮合法、または有機溶媒中で脱水重縮合する方法などが挙げられる。

10

【0016】

生分解性樹脂(A)の好ましい構成として、ポリ乳酸および/または下記[I]式で表される脂肪族オキシカルボン酸単位0.02~30モル%、下記[II]式で表される脂肪族ジオール単位35~49.99モル%、および下記[III]式で表される脂肪族ジカルボン酸単位35~49.99モル%を含む脂肪族ポリエステルを含有するものが挙げられる。

【0017】

【化7】

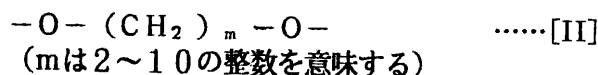


20

{ (I) 式中、pは0または1~10の整数である。}

【0018】

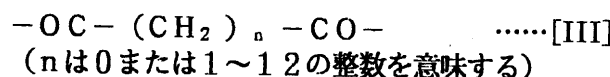
【化8】



30

【0019】

【化9】



【0020】

これらの内、[I]式がグリコール酸単位および/または乳酸単位、[II]式がエチレングリコール単位および/または1,4-ブタンジオール単位、[III]式がコハク酸単位および/またはアジピン酸単位であるのが、さらに好ましい。生分解性樹脂(A)の融点は、80~200の範囲で選ぶことができる。中でも好ましいのは90~180であり、とりわけ好ましいのは100~130である。

40

【0021】

生分解性樹脂(A)の分子量は、数平均分子量で5000~500000の範囲のものが好ましい。数平均分子量が5000未満であると、ラベルとしての機械的強度が不足し、また、500000を越えると成形が困難となり、いずれも好ましくない。ここで数平均分子量とは、GPC法により測定し、ポリスチレン換算した値を意味する。

【0022】

これらの生分解性樹脂(A)からフィルム(a)を製造する際には、生分解性樹脂(A)のみ、二種以上の生分解性樹脂(A)の混合物であってもよいし、生分解性樹脂と非生分解性樹脂(D)

50

との混合物であってもよい。生分解性樹脂(A)と非生分解性樹脂(D)との混合物の場合は、生分解性樹脂(A)の割合が少ないと、ラベルの生分解性が劣るので、50重量%以上とするのが好ましい。生分解性樹脂(A)同士、生分解性樹脂(A)と非生分解性樹脂(D)とで混合物とする場合であって相溶性に乏しい組合せのときは、相溶化剤を配合することもできる。さらに、必要に応じて、無機微細粉末(E1)および/または有機フィラー(E2)、可塑剤、軟化剤、滑剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤などの添加剤を配合することもできる。

【0023】

無機微細粉末(E1)としては、炭酸カルシウム、焼成クレー、シリカ、けいそう土、白土、タルク、酸化チタン、硫酸バリウム、アルミナ、ゼオライト、マイカ、セリサイト、ベントナイト、セピオライト、パーミキュライト、ドロマイト、ワラストナイト、ガラスファイバーなどが挙げられる。これら無機微細粉末(E1)は、粒径が $0.01 \sim 15 \mu\text{m}$ の範囲のものが好ましく、中でも $0.1 \sim 5 \mu\text{m}$ のものが特に好ましい。

10

【0024】

有機フィラー(E2)としては、生分解性樹脂(A)の融点よりも高い融点ないしはガラス転移温度を有する樹脂よりなり、主成分である生分解性樹脂(A)とは異なる種類の樹脂よりなるものを選択することが好ましい。具体的には、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリカーボネート、ポリアミド6、ポリアミドナイロン6・6などが挙げられる。

【0025】

20

フィルム(a)の不透明度は、無機微細粉末(E1)および/または有機フィラー(E2)の配合量、フィルム化する際の延伸倍率などを組合せることにより調節することができる。延伸することにより、無機微細粉末(E1)および/または有機フィラー(E2)を起点として、フィルム(a)表面には微細な空隙を、フィルム(a)内部には微細な空孔(ボイド)を形成できる。フィルム(a)表面の微細な空隙により、筆記性や印刷適性(インク密着性、インク転移性など)が向上する。また、フィルム(a)内部の微細な空孔(ボイド)により、得られるフィルムを軽量化できる。フィルム(a)の不透明度は、これに印刷されている文字(容器に収納される製品の商品名、製品の使用方法、バーコード、製造元、販売会社名などを含む)、キャラクター、模様(以下、これらを併せて「文字など」と略称する)などと色相との組合せによって、生分解性容器の視認される外観を向上させることができる。

30

【0026】

フィルム(a)の不透明度は、例えば無機微細粉末(E1)および/または有機フィラー(E2)の配合量を10重量%未満とすると、不透明度20%未満の透明度の高いフィルム(a)とすることができる。また、無機微細粉末(E1)および/または有機フィラー(E2)の配合量を10~30重量%の範囲とすると、不透明度が20~50%の範囲の半透明フィルム(a)とすることができる。さらに無機微細粉末(E1)および/または有機フィラー(E2)の含有量を30重量%以上とすると、不透明度50%以上の不透明度の高いフィルム(a)とすることもできる。さらにまた、無機微細粉末(E1)および/または有機フィラー(E2)を配合したフィルムを延伸することにより、より不透明度の高いフィルム(a)とすることもできる。

【0027】

40

フィルム(a)は、樹脂成分として生分解性樹脂(A)のみ、または生分解性樹脂(A)と非生分解性樹脂(D)との混合物を原料として、熱可塑性樹脂をフィルム化する従来から知られている方法によって製造することができる。例えば、従来から知られているフィルム化方法としては、押出成形法、カレンダー成形法が挙げられる。押出成形法では、押出機先端に円形ダイを装着して、押出したチューブを吹込んだ空気によって膨らませるインフレーション法、押出機先端にTダイまたはIダイを装着してフィルム化する方法などが挙げられる。TダイまたはIダイからのフィルムは、無延伸フィルム、一軸方向に延伸した一軸延伸フィルム、二軸方向に延伸した二軸延伸フィルムなどのいずれであってもよい。フィルムを一軸延伸するにはロール延伸方式が好ましく、二軸延伸するにはテンター方式が好ましい。

50

【0028】

延伸倍率は特に制限されるものではなく、本発明に係るフィルム(a)の使用目的と、使用する原料樹脂の特性、使用する延伸装置の形式などを勘案して決定する。通常は、1.2 ~ 1.1 倍の範囲で選ばれる。この範囲では1.5 ~ 1.0 倍が好ましく、中でも2 ~ 7 倍が特に好ましい。テンター方式で延伸する場合は、2 ~ 1.1 倍の範囲が好ましい。延伸する際の面積倍率は、1.5 ~ 8.0 倍の範囲で選ぶことができる。面積倍率の好ましい範囲は2 ~ 6.0 倍であり、とりわけ好ましいのは2 ~ 5.0 倍である。

【0029】

フィルム(a)は、単層でも二層以上に積層された積層フィルムであってもよい。積層フィルムとする際には、(1)複数の原料樹脂を複数の押出機で熔融し、共押出ダイ内で複数層に積層する方法、(2)原料樹脂の一種を先にフィルム化し、このフィルムに、他の押出機で熔融させた他の樹脂を押出機ダイから押出してフィルム化し、他のフィルムが熔融状態にある間に積層する方法、(3)先にフィルム化した複数のフィルムを再加熱して積層する方法、などのいずれによってもよい。

【0030】

積層フィルムとする際の構成層の組合せとしては、例えば、無延伸フィルム（以下、単に無延伸という）/無延伸、無延伸/一軸延伸フィルム（以下、単に一軸伸という）、無延伸/二軸延伸フィルム（以下、単に二軸伸という）、一軸延伸/一軸延伸、一軸延伸/二軸延伸、二軸延伸/二軸延伸などが挙げられる。三層以上の積層フィルムとするには、単層フィルムと上記二層フィルムとの組合せる方法、上記二層フィルム同士の組合せる方法によることができる。積層フィルムは、一軸延伸フィルムを含む積層フィルムが特に好ましい。なお、「/」は積層フィルムの層間の界面を意味し、フィルム(a)の厚さは2.0 μ m ~ 1.0 mmの範囲、好ましくは3.5 μ m ~ 0.5 mmの範囲で選ぶことができる。

【0031】

上記フィルム(a)の少なくとも片面には、ヒートシール性生分解性樹脂(B)を含む層(b)が設けられる。生分解性樹脂(B)は、前記[I]式で表される脂肪族オキシカルボン酸単位0.02 ~ 3.0 モル%、前記[II]式で表される脂肪族ジオール単位3.5 ~ 4.9.99 モル%、および前記[III]式で表される脂肪族ジカルボン酸単位3.5 ~ 4.9.99 モル%を含む脂肪族ポリエステルを含むものである。このものは上記生分解性樹脂(A)と同種の樹脂、異なる樹脂のいずれでもよい。生分解性樹脂(B)の融点は、60 ~ 180 の範囲で選ぶことができる。中でも好ましいのは70 ~ 160 であり、とりわけ好ましいのは80 ~ 120 である。生分解性樹脂(A)の融点と生分解性樹脂(B)の融点との関係は、後者が前者より5 以上低いものが好ましい。生分解性樹脂(A)および生分解性樹脂(B)が、それぞれ二種以上の生分解性樹脂の混合物である場合は、生分解性樹脂(A)に最も多量に含まれる生分解性樹脂の融点より、生分解性樹脂(B)に最も多量に含まれる生分解性樹脂の融点が、5 以上低いものが好ましい。後者が前者より5 以上低いものとする、生分解性樹脂(C)よりなる容器製造時に、積層フィルム(a/b)を構成するフィルム(a)は軟化せずヒートシール性層(b)のみが軟化し、積層フィルム(a/b)は生分解性樹脂(C)よりなる容器表面に熱接着（または熱融着）される。これにより、フィルム(a)表面に印刷された文字などの印刷面の退色することがなく、好ましい。生分解性樹脂(B)と上記生分解性樹脂(A)と同じ組成である場合には、生分解性樹脂(B)の分子量を小さくしたり、生分解性樹脂(B)に可塑剤や軟化剤を配合したりすることにより、融点を低くすることができる。

【0032】

フィルム(a)の少なくとも片面にヒートシール性層(b)を設けるには、多層のフィルム(a)を製造する上記(1) ~ (3)の手法に準じて設けることができる。フィルム(a)の裏面と、ヒートシール性層(b1)との接着性を向上させる目的で、コロナ放電処理、火炎処理、プラズマ処理などを施すこともできる。フィルム(a)とヒートシール性層(b)との界面に、空気が抱き込まれるのを防止する目的で、ヒートシール性層(b)に微細なエンボスを施すこともできる。なお、ヒートシール性層(b)の厚さは、5 μ m ~ 200 μ mの範囲で選ぶことが

10

20

30

40

50

できる。

【0033】

フィルム(a)の表面には、あらかじめ文字などを印刷するが、印刷性を向上させる目的で、必要があればコロナ放電処理、火炎処理、プラズマ処理を施すこともできる。フィルム(a)の表面に文字などを印刷する方法は特に制約はなく、グラビア印刷法、オフセット印刷法、フレキソ印刷法、スクリーン印刷法などによることができる。この際使用される印刷インクは、その展色剤(ビヒクル)も含めて、生分解性樹脂(C)とヒートシール性層(b)とが熱接着する際の温度で変質しない程度に、耐熱性の優れたものが好ましい。印刷面は、ラベルの全体にわたってもよいし、ラベルの一部であってもよい。

【0034】

表面側に文字などを印刷し、裏面に微細なエンボスを施したインモールド用ラベルは、打抜き加工によって必要な形状・寸法とする。このインモールド用ラベルの大きさは、生分解性樹脂(C)よりなる容器壁面(側壁、底壁)の一部、または側壁全体に貼着される大きさとしてすることができる。一個の容器に貼着されるインモールド用ラベルは、生分解性容器の壁面の大きさ、形状などに応じて、一枚でも二枚以上の複数枚とすることもできる。

【0035】

本発明の第2発明に係る生分解性容器は、上記インモールド用ラベルを金型の適所に挿入または配置し、インモールド用ラベルは容器の製造時に容器の表面に貼着される。製品容器の製造法としては、射出成形法、射出吹込成形法、吹込成形法、真空成形法または圧空成形法などが挙げられる。射出成形法、射出吹込成形法、吹込成形法では、金型キャビティの表面にラベルを挿入し、静電気または真空適用などによってラベルを固定する。このあと、射出成形法では金型キャビティに溶融した生分解性樹脂(C)を射出して、表面にインモールド用ラベルが壁面に熱接着した容器を製造することができる。

【0036】

射出吹込成形法および吹込成形法では、金型キャビティにパリソンを押し出し、このパリソンに圧空を吹込んで膨らませ、膨らんだ容器壁面にラベルを熱接着させて、中空容器とすることができる。真空成形法および圧空成形法では、金型の表面にラベルを配置し、加熱軟化させた生分解性樹脂(C)製シートに真空または圧空を適用し、金型の形状に沿った容器を製造することができる。この際、ラベルは加熱軟化させた生分解性樹脂(C)製シート容器の壁面に熱接着される。

【0037】

生分解性容器を製造する際に使用される生分解性樹脂(C)は、自然環境下で分解性を有する熱可塑性樹脂であれば特に制限がなく、生分解性樹脂(A)と同種であってもよいし、異なる樹脂であってもよい。生分解性樹脂(C)は、単独でも、生分解性樹脂(C)と非生分解性樹脂(D)との混合物であってもよい。生分解性樹脂と非生分解性樹脂(D)との混合物の場合は、生分解性樹脂(A)の割合が少ないと、容器の生分解性が劣るので、50重量%以上とするのが好ましい。

【0038】

本発明の第2発明に係る生分解性容器の形状、大きさなどは、射出成形法、射出吹込成形法、吹込成形法、真空成形法、圧空成形法などで製造できるものであれば、特に制限はない。例えば、形状としては、桶または樽型、コップ型、瓶型などが挙げられる。大きさとしては、収納容量が百リットルを越える大型のものから、数ミリリットルの小型のものなどいずれであってもよい。生分解性容器の用途は、特に制限はなく塗料、農薬、医薬品、洗剤などの化学品用容器、食用油、調味料などの食品用容器、化粧品、シャンプー、リンスなどの香粧品用容器、飲料容器、燃料油容器などが挙げられる。用途は、これら例示したものに限定されるものではない。

【0039】

【実施例】

以下、本発明を実施例に基づいてさらに詳細に説明するが、本発明はその要旨を越えない限り、以下の記載例に限定されるものではない。

【0040】

なお、以下に記載の例において使用した原料樹脂、フィルム、製品容器などについての特性値は、次に記載の方法により測定した。

(1)生分解性樹脂の組成：¹H-NMR法により、スペクトルの面積比によって計算した。

(2)分子量：GPC法によった（ポリスチレン換算）。

(3)融点：DSC法（窒素気流下、昇温速度16 /min）によった。

(4)不透明度：JIS P-8138に準拠して測定した。

(5)土中埋没試験：神奈川県横浜市青葉区の三菱化学社、科学技術研究センター内の試験圃場であって、黒ボク土で構成される土壤に、平成13年4月から平成13年9月までの6カ月間、容器のラベル面を上側にし、土壤表面からラベル面までの深さを10cmとして埋め、試験期間経過後これを取り出して生分解性容器の外観を目視観察する方法によった。

10

【0041】

[実施例1]

<フィルム(a)の調製>

1,4-ブタンジオールに由来する構成単位47.8モル%、コハク酸に由来する構成単位47.8モル%、および乳酸に由来する構成単位4.4モル%からなり、数平均分子量が69,000の脂肪族ポリエステル樹脂(A1)(融点110)80重量%と、数平均分子量が80000のポリ乳酸樹脂(A2)(融点173)を20重量%とをブレンダーによって混合し、得られた混合物をシリンダー温度を180 に設定した押出機（三鈴エリー社製、型式：MK-40）によって混練した後、押出機先端に装着したTダイからシート状に押出し、冷却ロールにより冷却して厚さが100 μmのフィルム(a)を得た。

20

【0042】

<ヒートシール性生分解性樹脂(B)製層(b)と、積層フィルム(a/b)の調製>

一方、1,4-ブタンジオール単位に由来する構成単位48.6モル%、コハク酸に由来する構成単位41.0モル%、アジピン酸に由来する構成単位7.6モル%、および乳酸に由来する構成単位2.8モル%からなり、数平均分子量が51,000の脂肪族ポリエステル樹脂(B)(融点95)を、シリンダー温度を140 に設定した押出機（三鈴エリー社製、型式：MK-40）によって熔融混練し、押出機先端に装着したTダイからシート状に押出し、前記フィルム(a)の裏側に重ね、金属ロールとゴムロールよりなる一対のエンボスロールの間に通し、ヒートシール性層(b1)の表面に、谷の深さが5 μmの微細なドット状エンボスを施した。得られた二層積層フィルムは幅が600mmであり、フィルム(a)/ヒートシール性層(b)の厚さは90 μm/10 μmであり、フィルムの不透明度は18%であった。

30

【0043】

<生分解性インモールド成形用ラベルの調製>

上記積層フィルムであって、フィルム(a)の表側にコロナ放電処理機（春日電機社製、型式：AGI-20）で処理した後、フィルム(a)の表面に、オフセット印刷機（三菱重工社製、型式：ダイヤII型）を使用し、UVオフセットインキ（T&K TOKA社製、商品名：ベストキュア161S）によって文字などを印刷し、次いでこれを打抜き加工して横70mm、縦90mmの生分解性インモールド成形用ラベルを得た。

40

【0044】

<生分解性容器の製造>

上記生分解性インモールド成形用ラベルを、吹込成形機（プラコー社製、型式：V-50）のラベルマガジンにセットし、ラベル自動供給装置（ぺんてる社製）によって、容量が800ml（直径80mm、長さ200mm）の瓶型キャビティを有する割り型の一方の型に送り、真空を適用してキャビティ面に固定した。型開き状態とされた割り型に、シリンダー温度120 として上記脂肪族ポリエステル樹脂(A1)を熔融させ、パリソン（直径40mm、厚さ4mm）を押出し、次いで割型を型締めした後、パリソン内に4.2kg/cm²Gの圧空を供給し、パリソンを膨張させて容器状とするとともにラベルと貼着させ、次いで製品

50

容器を冷却し、型開きして製品の生分解性中空容器を得た。得られた生分解性中空容器は、ラベル印刷面の退色、収縮、剥離、ラベルの膨れなどは認められなかった。

【 0 0 4 5 】

< 土中埋没試験 >

得られた製品の生分解性中空容器につき、上に記載の方法で土中埋没試験を行なった。試験期間経過後の生分解性中空容器の外観を目視観察した結果、ラベル貼着部分、ラベルが貼着されていない容器壁面に、虫食い状の穴が認められ、生分解が進行していることが確認された。

【 0 0 4 6 】

[実施例 2]

< 積層フィルムの調製 >

1, 4 - ブタンジオールに由来する構成単位 48.5 モル%、コハク酸に由来する構成単位 48.5 モル%、および乳酸に由来する構成単位 3.0 モル% からなり、数平均分子量が 62,000 の脂肪族ポリエステル樹脂 (A2) (融点 112) 82 重量%、平均粒径 1.5 μm の重質炭酸カルシウム 18 重量% からなる組成物 (F1) を調製した。さらに、脂肪族ポリエステル樹脂 (A2) 65 重量% と平均粒径 1.5 μm の重質炭酸カルシウム 35 重量% からなる組成物 (F2) を調製した。上記組成物 (F1)、組成物 (F2) および脂肪族ポリエステル樹脂 (B) (融点 95) (実施例 1 の記載参照) を、それぞれ押出機 (実施例 1 で使用したもの) で溶融し、140 に温度設定した一台の共押出ダイに供給してダイ内で積層し、この共押出ダイからフィルム状に押出し、金属ロールとゴムロールよりなる一対のエンボスロールの間に通し、脂肪族ポリエステル樹脂 (B) 製層 (b) の表面に、谷の深さが 10 μm の微細なドット状エンボスを施し、(f2) / (f1) / (f2) / (b) の四層よりなる積層フィルムを得た。ここで、(f1)、(f2) は組成物 (F1)、組成物 (F2) から形成される層を意味する。

【 0 0 4 7 】

次いで、この積層フィルムを 90 まで再加熱した後、縦方向に 2.5 倍延伸し、次いで (F2) 製層 (f2) の表側に実施例 1 におけると同様の手順でコロナ放電処理した後冷却し、耳部をスリットした。得られた四層積層フィルムは、幅が 600 mm であり、(f2) / (f1) / (f2) / (b) の各層の厚さが 22 μm / 66 μm / 22 μm / 10 μm であった。この積層フィルムの不透明度は 85 % だった。

【 0 0 4 8 】

< 生分解性インモールド成形用ラベルの調製 >

上記四層の積層フィルムの (F2) 製層 (f2) の表側に、実施例 1 におけると同様の手順でコロナ放電処理した後、(F2) 製層 (f2) の表面に、実施例 1 におけると同様の手順でオフセット印刷法によって文字などを印刷し、次いでこれを打抜き加工して横 70 mm、縦 90 mm の生分解性インモールド成形用ラベルを得た。

【 0 0 4 9 】

< 生分解性容器の製造、土中埋没試験 >

上で得た生分解性インモールド成形用ラベルを使用し、実施例 1 におけると同様の手順で生分解性中空容器を製造した。この生分解性中空容器は、ラベルの印刷面の退色、収縮、剥離、剥離した部分の膨れなども認められなかった。得られた製品の生分解性中空容器につき、上に記載の方法で土中埋没試験を行なったところ、ラベル貼着部分、ラベルが貼着されていない容器壁面に、虫食い状の穴が認められ、生分解が進行していることが確認された。

【 0 0 5 0 】

[実施例 3]

< フィルムの調製 >

脂肪族ポリエステル樹脂 (A2) (実施例 2 の記載参照) 70 重量%、ポリ乳酸樹脂 (A3) を 12 重量%、平均粒径 1.5 μm の重質炭酸カルシウム 18 重量% を配合した組成物 (F3) を調製した。この組成物 (F3) を、シリンダー温度を 180 に設定した押出機で混練した後

10

20

30

40

50

、押出機先端に装着したＴダイからシート状に押出し、冷却ロールによって冷却して厚さが $600\mu\text{m}$ の無延伸シートを得た。この無延伸シートを 90° に加熱した後、縦方向に２倍に延伸し、厚さが $140\mu\text{m}$ の延伸フィルム(f3)を得た。

【００５１】

<積層フィルムの調製>

一方、脂肪族ポリエステル樹脂(A2)（実施例２の記載参照） $65\text{重量}\%$ と、平均粒径 $1.5\mu\text{m}$ の重質炭酸カルシウム $35\text{重量}\%$ とからなる組成物(F4)と、脂肪族ポリエステル樹脂(B)(融点 95°)（実施例１の記載参照）を、それぞれ別々の押出機（実施例１で使用したもの）を用いて 140° で熔融混練し、一台の共押出ダイに供給してダイ内で積層し、この共押出ダイからフィルム状に押出し、金属ロールとゴムロールよりなる一対のエンボスロールの間に通し、脂肪族ポリエステル樹脂(B)層の表面に、谷の深さが $10\mu\text{m}$ の微細なドット状エンボスを施した。他方、組成物(F4)よりなるフィルム(f4)を、延伸フィルム(f3)の表面に積層した積層フィルムを得た。

【００５２】

次いで、この積層構造フィルムを 90° まで再加熱した後、横方向に２倍延伸し、次いで組成物(F3)よりのフィルムの表面に、実施例１におけると同様の手順でコロナ放電処理した後冷却し、耳部をスリットした。得られた四層積層フィルムは、幅が 600mm であり、(f4)/(f3)/(f4)/(b)の各層の厚さが $20\mu\text{m}/70\mu\text{m}/20\mu\text{m}/10\mu\text{m}$ であった。この積層フィルムの不透明度は 94% だった。

【００５３】

<ラベルの調製>

上記四層の複層フィルムであって、(F3)製フィルムの表側に実施例１におけると同様の手順でコロナ放電処理した後、(F4)製フィルム(f4)の表面に、実施例１におけると同様の手順でオフセット印刷法によって文字などの印刷を施し、次いでこれを打抜き加工して横 70mm 、縦 90mm の生分解性インモールド成形用ラベルを得た。

【００５４】

<生分解性容器の製造、土中埋没試験>

上で得た生分解性インモールド成形用ラベルを使用し、実施例１におけると同様の手順で生分解性中空容器を製造した。この生分解性中空容器は、ラベルの印刷面の退色、収縮、剥離、剥離した部分の膨れなども認められなかった。得られた製品の生分解中空容器につき、上に記載の方法で土中埋没試験を行なったところ、ラベル貼着部分、ラベルが貼着されていない容器壁面に、虫食い状の穴が認められ、生分解が進行していることが確認された。

【００５５】

[実施例４]

<積層フィルムの調製>

実施例１で使用したのと同種のポリ乳酸樹脂(A2)（融点 173° ）を、シリンダー設定温度を 190° とした押出機によって熔融させ、Ｔダイからシート状に押出し、冷却ロールによって冷却し、厚さが $90\mu\text{m}$ のシート(a2)を得た。これとは別に、脂肪族ポリエステル樹脂(B)(融点 95°)（実施例１の記載参照）を 180° で熔融混練し、上記シート(a2)の裏側に押出してヒートシール性層(b)を積層し、金属ロールとゴムロールよりなる一対のエンボスロールの間に通し、ヒートシール性層(b)の表面に、谷の深さ $5\mu\text{m}$ の微細なドット状エンボスを施した。この積層フィルムは、(a2)/(b)の厚さが $90\mu\text{m}/10\mu\text{m}$ の二層フィルムであり、不透明度は 10% であった。

【００５６】

<ラベルの調製>

上記二層フィルムのシート(a2)の表面にコロナ放電処理した後冷却し、耳部をスリットして、シート(a2)の表面に実施例１におけると同様の手順で、オフセット印刷法によって文字などを印刷し、ついでこれを打抜き加工して横 70mm 、縦 90mm の生分解性インモールド成形用ラベルを得た。

【 0 0 5 7 】

< 生分解性容器の製造、土中埋没試験 >

上で得た生分解性インモールド成形用ラベルを使用し、実施例 1 におけると同様の手順で生分解性中空容器を製造した。この生分解性中空容器は、ラベルの印刷面の退色、収縮、剥離、剥離した部分の膨れなども認められなかった。得られた生分解性中空容器につき、上に記載した方法で土中埋没試験を行なったところ、ラベル貼着部分、ラベルが貼着されていない容器壁面に、虫食い状の穴が認められ、生分解が進行していることが確認された。

【 0 0 5 8 】

【 発明の効果 】

本発明は、以上詳細に説明したとおりであり、次のような特別に優れた効果を奏し、その産業上の利用価値は極めて大である。

1 . 本発明の第 1 発明に係る生分解性インモールド成形用ラベルは、従来の紙製ラベルと異なり、耐水性に優れている。

2 . 本発明の第 1 発明に係る生分解性インモールド成形用ラベルは、オフセット印刷などの各種印刷法によって文字などを自由に印刷できる。

3 . 本発明の第 1 発明に係る生分解性インモールド成形用ラベルは、生分解性樹脂より構成されているので、自然環境下で分解され、環境汚染を防ぐことができる。

4 . 本発明の第 1 発明に係る生分解性インモールド成形用ラベルは、生分解性樹脂(A)を含むフィルム(a1)とヒートシール性生分解性樹脂(B)を含む層(b1)とで構成される積層フィルムとし、生分解性樹脂(B)を生分解性樹脂(A)より融点が 5 以上低いものとする、ラベルと容器壁面との熱接着を強固にすることができる。

5 . 本発明の第 2 発明に係る生分解性容器は、ラベルと容器本体の双方が生分解性樹脂より構成されているので、自然環境下で分解され、環境汚染を防ぐことができる。

10

20

フロントページの続き

(72)発明者 白浜 理恵

神奈川県横浜市青葉区鴨志田 1 0 0 0 番地 三菱化学株式会社内

審査官 櫻井 茂樹

(56)参考文献 特開平 0 8 - 3 2 3 9 4 6 (J P , A)

特開平 1 0 - 2 0 2 6 9 0 (J P , A)

特開平 0 5 - 0 0 8 2 8 9 (J P , A)

特開平 1 0 - 0 1 6 1 6 5 (J P , A)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

G09F 3/00- 3/20

B32B 1/00-43/00

B65D 65/00-65/46