(19)日本国特許庁(JP)　(12)公開特許公報(A)　(11)特許出願公開番号
特開2018-51790
(P2018-51790A)
(43)公開日　平成30年4月5日(2018.4.5)

(51)Int.Cl.		F I			テーマコード（参考）
B32B 27/32	(2006.01)	B32B	27/32	C	3E086
B32B 27/40	(2006.01)	B32B	27/40		4F100
B65D 65/40	(2006.01)	B65D	65/40	ZABD	

審査請求 未請求　請求項の数 9　ＯＬ　（全 18 頁）

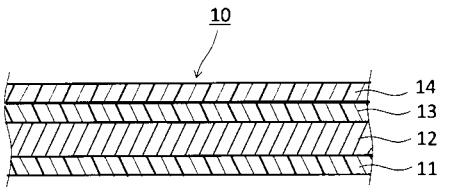
(21)出願番号　特願2016-187127 (P2016-187127)
(22)出願日　平成28年9月26日 (2016.9.26)

(71)出願人　000002897
大日本印刷株式会社
東京都新宿区市谷加賀町一丁目１番１号
(74)代理人　100091982
弁理士　永井　浩之
(74)代理人　100091487
弁理士　中村　行孝
(74)代理人　100082991
弁理士　佐藤　泰和
(74)代理人　100105153
弁理士　朝倉　悟
(74)代理人　100120617
弁理士　浅野　真理
(74)代理人　100152423
弁理士　小島　一真

最終頁に続く

(54)【発明の名称】積層体およびそれを備える包装製品

(57)【要約】
【課題】基材層、印刷層、接着層、およびシーラント層が順に積層された積層体であって、バイオマス度がより高められた積層体の提供。
【解決手段】本発明による積層体は、少なくとも、基材層、印刷層、接着層、およびシーラント層が順に積層された積層体であって、
印刷層が、着色剤と、ポリオールとイソシアネート化合物との硬化物とを含み、ポリオールまたはイソシアネート化合物の少なくともいずれかがバイオマス由来成分を含み、かつ、接着層が、バイオマス由来のエチレンを含むモノマーの重合体であるバイオマスポリオレフィンを含む、ものである。
【選択図】図１



【特許請求の範囲】
【請求項１】
少なくとも、基材層、印刷層、接着層、およびシーラント層が順に積層された積層体であって、
印刷層が、着色剤と、ポリオールとイソシアネート化合物との硬化物とを含み、ポリオールまたはイソシアネート化合物の少なくともいずれかがバイオマス由来成分を含み、かつ、接着層が、バイオマス由来のエチレンを含むモノマーの重合体であるバイオマスポリオレフィンを含む、積層体。
【請求項２】
前記基材層が、バイオマス由来のエチレングリコールをジオール単位とし、化石燃料由来のジカルボン酸をジカルボン酸単位とするバイオマスポリエステルを含むか、あるいは、前記シーラント層が、バイオマス由来のエチレンを含むモノマーの重合体であるバイオマスポリオレフィンを含む、請求項１に記載の積層体。
【請求項３】
前記基材層が、バイオマス由来のエチレングリコールをジオール単位とし、化石燃料由来のジカルボン酸をジカルボン酸単位とするバイオマスポリエステルを含み、かつ、シーラント層が、バイオマス由来のエチレンを含むモノマーの重合体であるバイオマスポリオレフィンを含む、請求項１に積層体。
【請求項４】
前記印刷層のバイオマス度が、１０％以上３０％以下である、請求項１～３のいずれか一項に記載の積層体。
【請求項５】
前記接着層のバイオマス度が、１０％以上５０％以下である、請求項１～３のいずれか一項に記載の積層体。
【請求項６】
前記基材層のバイオマス度が、３０％以上５０％以下である、請求項１～３のいずれか一項に記載の積層体。
【請求項７】
前記シーラント層のバイオマス度が、１０％以上６０％以下である、請求項１～３のいずれか一項に記載の積層体。
【請求項８】
前記積層体全体のバイオマス度が、５％以上６０％以下である、請求項１～７のいずれか一項に記載の積層体。
【請求項９】
請求項１～８のいずれか一項に記載の積層体を備える、包装製品。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、少なくとも、基材層、印刷層、接着層、およびシーラント層が順に積層された積層体に関し、より詳細には、基材層およびシーラント層の少なくともいずれか１層がバイオマス由来成分を含み、かつ、印刷層および接着層の少なくともいずれか１層がバイオマス由来成分を含む積層体に関する。さらには、該積層体を備える包装製品に関する。
【背景技術】
【０００２】
近年、循環型社会の構築を求める声の高まりとともに、材料分野においてもエネルギーと同様に化石燃料からの脱却が望まれており、バイオマスの利用が注目されている。バイオマスは、二酸化炭素と水から光合成された有機化合物であり、それを利用することにより、再度二酸化炭素と水になる、いわゆるカーボンニュートラルな再生可能エネルギーである。昨今、これらバイオマスを原料としたバイオマスプラスチックの実用化が急速に進んでおり、各種の樹脂をバイオマス原料から製造する試みも行われている。

【０００３】
バイオマス由来の樹脂としては、乳酸発酵を経由して製造されるポリ乳酸（ＰＬＡ）が先行して商業生産が始まったが、生分解性であることをはじめ、プラスチックとしての性能が現在の汎用プラスチックとは大きく異なるため、製品用途や製品製造方法に限界があり広く普及するには至っていない。また、ＰＬＡに対しては、ライフサイクルアセスメント（ＬＣＡ）評価が行われており、ＰＬＡ製造時の消費エネルギーおよび汎用プラスチック代替時の等価性等について議論がなされている。
【０００４】
ここで、汎用プラスチックとしては、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル、ポリスチレン、ポリエステル等、様々な種類が用いられている。特に、ポリエチレンは、フィルム、シート、ボトル等に成形され、包装材等の種々の用途に供されており、世界中での使用量が多い。そのため、従来の化石燃料由来のポリエチレンを用いることは環境負荷が大きい。そのため、ポリエチレンの製造にバイオマス由来の原料を用いて、化石燃料の使用量を削減することが望まれている。例えば、現在までに、ポリオレフィン樹脂の原料となるエチレンやブチレンを、再生可能な天然原料から製造することが研究されてきた（特許文献１参照）。
【０００５】
また、ポリエステルは、その機械的特性、化学的安定性、耐熱性、透明性などに優れ、かつ安価であることから、各種産業用途に広く使用されている。ポリエステルは、ジオール単位とジカルボン酸単位とを重縮合して得られ、例えば、ポリエチレンテレフタレート（以下、ＰＥＴと略す場合がある）は、エチレングリコールとテレフタル酸とを原料として、これらをエステル化反応させた後に重縮合反応させて製造されている。これらの原料は化石資源である石油から生産され、例えば、エチレングリコールはエチレンから、テレフタル酸はキシレンから工業的に生産されている。
【０００６】
昨今、ポリエステルをバイオマス原料から製造する試みも行われている。例えば、モノマー成分であるエチレングリコールとしてバイオマス由来のものを用いたものが実用化されている。このようなバイオマス由来原料を含むポリエステル樹脂を、包装材料に適用することが提案されている（特許文献２参照）。
【先行技術文献】
【特許文献】
【０００７】
【特許文献１】特表２０１１－５０６６２８号公報
【特許文献２】特開２０１２－９６４１０号公報
【発明の概要】
【発明が解決しようとする課題】
【０００８】
従来、基材層、印刷層、接着層、およびシーラント層が順に積層された積層体において、印刷層は化石燃料由来の材料により形成されており、積層体全体のバイオマス度を低下させる原因であった。そのため、基材層、印刷層、接着層、およびシーラント層が順に積層された積層体において、積層体全体のバイオマス度をより高めることが求められている。
【０００９】
本発明者らは、少なくとも、基材層、印刷層、接着層、およびシーラント層が順に積層された積層体において、印刷層および接着層の両方をバイオマス由来成分を含む材料により形成することで、積層体全体のバイオマス度をより高められるとの知見を得た。本発明はかかる知見によるものである。
【００１０】
したがって、本発明の目的は、基材層、印刷層、接着層、およびシーラント層が順に積層された積層体であって、バイオマス度がより高められた積層体を提供することである。

【課題を解決するための手段】
【００１１】
本発明の態様においては、
少なくとも、基材層、印刷層、接着層、およびシーラント層が順に積層された積層体であって、
印刷層が、着色剤と、ポリオールとイソシアネート化合物との硬化物とを含み、ポリオールまたはイソシアネート化合物の少なくともいずれかがバイオマス由来成分を含み、かつ、接着層が、バイオマス由来のエチレンを含むモノマーの重合体であるバイオマスポリオレフィンを含む、積層体が提供される。
【００１２】
本発明の態様においては、前記基材層が、バイオマス由来のエチレングリコールをジオール単位とし、化石燃料由来のジカルボン酸をジカルボン酸単位とするバイオマスポリエステルを含むか、あるいは、前記シーラント層が、バイオマス由来のエチレンを含むモノマーの重合体であるバイオマスポリオレフィンを含むことが好ましい。
【００１３】
本発明の態様においては、前記基材層が、バイオマス由来のエチレングリコールをジオール単位とし、化石燃料由来のジカルボン酸をジカルボン酸単位とするバイオマスポリエステルを含み、かつ、シーラント層が、バイオマス由来のエチレンを含むモノマーの重合体であるバイオマスポリオレフィンを含むことが好ましい。
【００１４】
本発明の態様においては、前記印刷層のバイオマス度が、１０％以上３０％以下であることが好ましい。
【００１５】
本発明の態様においては、前記接着層のバイオマス度が、１０％以上５０％以下であることが好ましい。
【００１６】
本発明の態様においては、前記基材層のバイオマス度が、３０％以上５０％以下であることが好ましい。
【００１７】
本発明の態様においては、前記シーラント層のバイオマス度が、１０％以上６０％以下であることが好ましい。
【００１８】
本発明の態様においては、前記積層体全体のバイオマス度が、５％以上６０％以下であることが好ましい。
【００１９】
本発明の別の態様においては、前記積層体を備える包装製品が提供される。
【発明の効果】
【００２０】
本発明による積層体は、少なくとも、基材層、印刷層、接着層、およびシーラント層が順に積層された積層体であって、印刷層および接着層の両方をバイオマス由来成分を含む材料により形成することで、積層体全体のバイオマス度をより高めることができる。
【図面の簡単な説明】
【００２１】
【図１】本発明による積層体の一例を示す模式断面図である。
【図２】本発明による積層体の一例を示す模式断面図である。
【発明を実施するための形態】
【００２２】
＜積層体＞
本発明による積層体は、少なくとも、基材層、印刷層、接着層、およびシーラント層が順に積層されたものである。積層体において印刷層および接着層の両方をバイオマス由来

成分を含む材料により形成することで、従来に比べて化石燃料の使用量を削減することができ、環境負荷を減らすことができる。

【００２３】

本発明においては、積層体全体で、下記で説明するバイオマス度が、好ましくは５％以上、より好ましくは５％以上６０％以下、さらに好ましくは１０％以上６０％以下である。バイオマス度が上記範囲であれば、化石燃料の使用量を削減することができ、環境負荷を減らすことができる。

【００２４】

積層体は、好ましくは１０μｍ以上５００μｍ以下、より好ましくは３０μｍ以上３００μｍ以下、さらに好ましくは４０μｍ以上２００μｍ以下の厚さを有するものである。

【００２５】

本発明による該積層体は、上記の層以外に、バリア層や樹脂層等の他の層を少なくとも１層さらに有してもよい。その他の層を２層以上有する場合、それぞれが、同一の組成であってもよいし、異なる組成であってもよい。

【００２６】

本発明による積層体について、図面を参照しながら説明する。本発明による積層体の模式断面図の例を図１～２に示す。

図１に示される積層体１０は、基材層１１と、印刷層１２と、接着層１３と、シーラント層１４とを備えるものである。

図２に示される積層体２０は、基材層１１と、印刷層１２と、接着層１３と、バリア層１５、第２の基材層１６、接着層１３と、シーラント層１４とをこの順に備える。

以下、積層体を構成する各層について説明する。

【００２７】

［基材層］

基材層はプラスチックフィルムである。基材層は、バイオマス由来成分を含む材料により形成する場合、下記のバイオマスポリエステルを用いて形成することができる。

【００２８】

（バイオマスポリエステル）

バイオマスポリエステルは、バイオマス由来のエチレングリコールをジオール単位とし、化石燃料由来のジカルボン酸をジカルボン酸単位とするものである。基材層は、バイオマスポリエステルに加えて、化石燃料由来のエチレングリコールをジオール単位とし、化石燃料由来のジカルボン酸をジカルボン酸単位とする化石燃料由来のポリエステルをさらに含んでもよい。基材層全体として、下記のバイオマス度を実現できればよい。本発明においては、基材層がバイオマスポリエステルを含むことで、従来に比べて化石燃料由来のポリエステルの量を削減し環境負荷を減らすことができる。

【００２９】

本発明において、「バイオマス度」とは、バイオマス由来成分の重量比率を示すものである。

【００３０】

ポリエチレンテレフタレートを例にとると、ポリエチレンテレフタレートは、２炭素原子を含むエチレングリコールと８炭素原子を含むテレフタル酸とがモル比１：１で重合したものであるため、エチレングリコールとしてバイオマス由来のもののみを使用した場合、ポリエステル中のバイオマス由来成分の重量比率は約３０％であるため、バイオマス度は約３０％となる。また、化石燃料由来のエチレングリコールと、化石燃料由来のジカルボン酸とを用いて製造した化石燃料由来のポリエステル中のバイオマス由来成分の重量比率は０％であり、化石燃料由来のポリエステルのバイオマス度は０％となる。

【００３１】

本発明において、基材層中のバイオマス度は、５％以上であり、好ましくは１０％以上３０％以下であり、より好ましくは１５％以上２５％以下である。基材層中のバイオマス度が５％以上であれば、従来に比べて化石燃料由来のポリエステルの量を削減し環境負荷

を減らすことができる。

【００３２】

バイオマス由来のエチレングリコールは、バイオマスを原料として製造されたエタノール（バイオマスエタノール）を原料としたものである。例えば、バイオマスエタノールを、従来公知の方法により、エチレンオキサイドを経由してエチレングリコールを生成する方法等により、バイオマス由来のエチレングリコールを得ることができる。また、市販のバイオマスエチレングリコールを使用してもよく、例えば、インディアグライコール社から市販されているバイオマスエチレングリコールを好適に使用することができる。

【００３３】

バイオマスポリエステルのジカルボン酸単位は、化石燃料由来のジカルボン酸を使用する。ジカルボン酸としては、芳香族ジカルボン酸、脂肪族ジカルボン酸、およびそれらの誘導体を制限なく使用することができる。芳香族ジカルボン酸としては、テレフタル酸及びイソフタル酸等が挙げられ、芳香族ジカルボン酸の誘導体としては、芳香族ジカルボン酸の低級アルキルエステル、具体的には、メチルエステル、エチルエステル、プロピルエステル及びブチルエステル等が挙げられる。これらの中でも、テレフタル酸が好ましく、芳香族ジカルボン酸の誘導体としては、ジメチルテレフタレートが好ましい。

【００３４】

また、脂肪族ジカルボン酸としては、具体的には、シュウ酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、セバシン酸、ドデカン二酸、ダイマー酸ならびにシクロヘキサンジカルボン酸等の、通常炭素数が２以上４０以下の鎖状或いは脂環式ジカルボン酸が挙げられる。また、脂肪族ジカルボン酸の誘導体として、上記脂肪族ジカルボン酸のメチルエステル、エチルエステル、プロピルエステル及びブチルエステル等の低級アルキルエステルや例えば無水コハク酸等の上記脂肪族ジカルボン酸の環状酸無水物が挙げられる。これらのなかでも、アジピン酸、コハク酸、ダイマー酸又はこれらの混合物が好ましく、コハク酸を主成分とするものが特に好ましい。脂肪族ジカルボン酸の誘導体としては、アジピン酸及びコハク酸のメチルエステル、又はこれらの混合物がより好ましい。これらのジカルボン酸は単独でも２種以上混合して使用することもできる。

【００３５】

バイオマスポリエステルは、上記のジオール成分とジカルボン酸成分に加えて、第３成分として共重合成分を加えた共重合ポリエステルであっても良い。共重合成分の具体的な例としては、２官能のオキシカルボン酸や、架橋構造を形成するために３官能以上の多価アルコール、３官能以上の多価カルボン酸及び／又はその無水物並びに３官能以上のオキシカルボン酸からなる群から選ばれる少なくとも１種の多官能化合物が挙げられる。これらの共重合成分の中では、高重合度の共重合ポリエステルが容易に製造できる傾向があるため、特に２官能及び／又は３官能以上のオキシカルボン酸が好適に使用される。その中でも、３官能以上のオキシカルボン酸の使用は、後述する鎖延長剤を使用することなく、極少量で容易に高重合度のポリエステルを製造できるので最も好ましい。

【００３６】

バイオマスポリエステルは、上記したジオール単位とジカルボン酸単位とを重縮合させる従来公知の方法により得ることができる。具体的には、上記のジカルボン酸成分とジオール成分とのエステル化反応及び／又はエステル交換反応を行った後、減圧下での重縮合反応を行うといった溶融重合の一般的な方法や、有機溶媒を用いた公知の溶液加熱脱水縮合方法によって製造することができる。バイオマスポリエステルを製造する際に用いるジオールの使用量は、ジカルボン酸又はその誘導体１００モルに対し、実質的に等モルであるが、一般には、エステル化及び／又はエステル交換反応及び／又は縮重合反応中の留出があることから、０．１モル％以上２０モル％以下の量を過剰に用いることが好ましい。

【００３７】

バイオマスポリエステルの樹脂組成物、または、バイオマスポリエステルと化石燃料由来のポリエステルを含む樹脂組成物を用いて、例えば、Ｔダイ法によってフィルム化することにより基材層を形成することができる。具体的には、上記した樹脂組成物を乾燥させ

た後、樹脂組成物の融点Ｔｍ以上の温度～Ｔｍ＋７０℃の温度に加熱された溶融押出機に供給して、樹脂組成物を溶融し、例えばＴダイなどのダイよりシート状に押出し、押出されたシート状物を回転している冷却ドラムなどで急冷固化することにより基材層のフィルムを成形することができる。溶融押出機としては、一軸押出機、二軸押出機、ベント押出機、タンデム押出機等を目的に応じて使用することができる。

【００３８】

基材層は２軸延伸されていることが好ましい。２軸延伸は従来公知の方法で行うことができる。例えば、上記のようにして冷却ドラム上に押し出された基材層のフィルムを、続いて、ロール加熱、赤外線加熱などで加熱し、縦方向に延伸して縦延伸フィルムとする。この延伸は２個以上のロールの周速差を利用して行うのが好ましい。縦延伸は、通常、５０℃以上１００℃以下の温度範囲で行われる。また、縦延伸の倍率は、フィルム用途の要求特性にもよるが、２．５倍以上４．２倍以下とするのが好ましい。延伸倍率が２．５倍未満の場合は、フィルムの厚み斑が大きくなり良好なフィルムを得ることが難しい。

【００３９】

縦延伸されたフィルムは、続いて横延伸、熱固定、熱弛緩の各処理工程を順次施して二軸延伸フィルムとなる。横延伸は、通常、５０℃以上１００℃以下の温度範囲で行われる。横延伸の倍率は、この用途の要求特性にもよるが、２．５倍以上５．０倍以下が好ましい。２．５倍未満の場合はフィルムの厚み斑が大きくなり良好なフィルムが得られにくく、５．０倍を超える場合は製膜中に破断が発生しやすくなる。

【００４０】

基材層のフィルムの破断強度は、ＭＤ方向で５ｋｇ／ｍｍ^{2}以上４０ｋｇ／ｍｍ^{2}以下、ＴＤ方向で５ｋｇ／ｍｍ^{2}以上３５ｋｇ／ｍｍ^{2}以下であり、また、破断伸度は、ＭＤ方向で５０％以上３５０％以下、ＴＤ方向で５０％以上３００％以下である。また、１５０℃の温度環境下に３０分放置した時の収縮率は、０．１％以上５％以下である。

【００４１】

基材層は、好ましくは５μｍ以上４０μｍ以下、より好ましくは８μｍ以上２５μｍ以下、さらに好ましくは９μｍ以上２０μｍ以下の厚さを有するものである。基材層の厚さが上記範囲程度であれば、成形加工が容易であり、また包装材料として好適に用いることができる。

【００４２】

基材層がバイオマス由来成分を含まない材料により形成する場合、例えば、ポリエチレンテレフタレートフィルムやポリブチレンテレフタレート等のポリエステルフィルム、ポリエチレンフィルムやポリプロピレンフィルム等のポリオレフィンフィルム、ナイロンフィルムやナイロン６／メタキシリレンジアミンナイロン６共押共延伸フィルム等のポリアミドフィルム、またはポリプロピレン／エチレン－ビニルアルコール共重合体共押共延伸フィルム、またはこれらの２以上のフィルムを積層した複合フィルムなどのプラスチックフィルムを用いることができる。なお、プラスチックフィルムには、ポリビニルアルコールなどがコーティングされていてもよい。

【００４３】

基材層は単層フィルムであってもよいし、２層以上の共押しフィルムであってもよい。また、積層体中に基材層は一つであってもよいし、二つ以上が含まれるようにしてもよい。例えば、積層体中に二つの基材層が含まれる場合、一の基材層を基材層、他の基材層を第２の基材層と言うことがある。

【００４４】

［印刷層］

印刷層は、装飾、内容物の表示、賞味期間の表示、製造者、販売者などの表示、その他などの表示や美感の付与のために、文字、数字、絵柄、図形、記号、模様などの所望の任意の印刷模様を形成する層である。印刷層は、着色剤と、ポリオールとイソシアネート化合物との硬化物とを含むものであり、ポリオールとイソシアネート化合物の少なくともいずれかがバイオマス由来成分を含む硬化物を用いて形成することができる。

【００４５】
（ポリオール）
本発明において、バイオマス由来成分を含むポリオールは、例えば、バイオマス由来の多官能アルコールおよび／または化石燃料由来の多官能アルコールと、バイオマス由来の多官能カルボン酸および／または化石燃料由来の多官能カルボン酸とを反応させて得たポリエステルポリオールを用いることができ、多官能アルコールおよび多官能カルボン酸の少なくともいずれか一方がバイオマス由来成分を含むものである。
【００４６】
バイオマス由来の多官能アルコールとしては、トウモロコシ、サトウキビ、キャッサバ、およびサゴヤシ等の植物原料から得られる脂肪族多官能アルコールを用いることができる。バイオマス由来の脂肪族多官能アルコールとしては、例えば、下記のような方法によって植物原料から得られる、１，３－プロパンジオール、１，４－ブタンジオール、エチレングリコール等があり、いずれも使用し得る。これらは、単独で用いても併用してもよい。
【００４７】
バイオマス由来の１，３－プロパンジオール（$HOCH_2CH_2CH_2OH$）は、植物原料を分解してグルコースが得られる発酵法により、グリセロールから３－ヒドロキシプロピルアルデヒド（ＨＰＡ）を経て製造される。上記発酵法のようなバイオ法で製造された１，３－プロパンジオール化合物は、ＥＯ製造法の１，３－プロパンジオール化合物と比較し、安全性面から乳酸等の有用な副生成物が得られ、しかも製造コストも低く抑えることが可能であることも好ましい。
バイオマス由来の１，４－ブタンジオールは、植物原料からグリコールを製造し発酵することで得られたコハク酸を得て、これを水添することによってバイオマス１，４－ブタンジオールが製造できる。
バイオマス由来のエチレングリコールは、例えば、常法によって得られるバイオエタノールからエチレンを経て製造することができる。
【００４８】
化石燃料由来の多官能アルコールとしては、１分子中に２個以上、好ましくは２～８個の水酸基を有する化合物を用いることができる。具体的には、化石燃料由来の多官能アルコールとしては、特に限定されず従来公知の物を使用することができ、例えば、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、１，６－ヘキサンジオール、ネオペンチルグリコール、１，４－ブタンジオール、１，４－シクロヘキサンジメタノール、トリメチロールプロパン、グリセリン、１，９－ノナンジオール、３－メチル－１，５－ペンタンジオール、ポリエーテルポリオール、ポリカーボネートポリオール、ポリオレフィンポリオール、アクリルポリオール等を使用することができる。これらは、単独でも２種以上を併用してもよい。
【００４９】
バイオマス由来の多官能カルボン酸としては、再生産可能な大豆油、亜麻仁油、桐油、ヤシ油、パーム油、ひまし油等の植物由来の油、及びそれらを主体とした廃食用油等をリサイクルした再生油等の植物原料から得られる脂肪族多官能カルボン酸を用いることができる。バイオマス由来の脂肪族多官能カルボン酸としては、例えば、セバシン酸、コハク酸、グルタル酸、ダイマー酸等が挙げられる。例えば、セバシン酸は、ひまし油から得られるリシノール酸をアルカリ熱分解することにより、ヘプチルアルコールを副生成物として生成される。本発明では、特に、バイオマス由来のコハク酸又はバイオマス由来のセバシン酸を用いることが好ましい。
【００５０】
化石燃料由来の多官能カルボン酸としては、脂肪族多官能カルボン酸や芳香族多官能カルボン酸を用いることができる。化石燃料由来の脂肪族多官能カルボン酸としては、特に限定されず従来公知の物を使用することができ、例えば、アジピン酸、ドデカン二酸、無水テトラヒドロフタル酸、無水ヘキサヒドロフタル酸、無水マレイン酸、および無水イタ

コン酸、ならびにそれらのエステル化合物等が挙げられる。また、化石燃料由来の芳香族多官能カルボン酸としては、特に限定されず従来公知の物を使用することができ、例えば、イソフタル酸、テレフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、無水フタル酸、トリメリット酸、およびピロメリット酸、ならびにそれらのエステル化合物等を用いることができる。

【００５１】

（イソシアネート化合物）

本発明において、バイオマス由来成分を含むイソシアネート化合物は、植物原料から得られるポリイソシアネートを用いることができる。バイオマス由来のポリイソシアネートは、バイオマス由来の二価カルボン酸を酸アミド化し、還元することで末端アミノ基に変換し、さらに、ホスゲンと反応させ、該アミノ基をイソシアネート基に変換することにより得られる。バイオマス由来のポリイソシアネートとしては、ダイマー酸ジイソシアネート（ＤＤＩ）、オクタメチレンジイソシアネート、デカメチレンジイソシアネート等が挙げられる。また、バイオマス由来のアミノ酸を原料として、そのアミノ基をイソシアネート基に変換することによってもバイオマス由来のイソシアネート化合物を得ることができる。例えば、リシンジイソシアネート（ＬＤＩ）は、リシンのカルボキシル基をメチルエステル化した後、アミノ基をイソシアネート基に変換することにより得られる。また、１，５－ペンタメチレンジイソシアネート（ＰＤＩ）はリシンのカルボキシル基を脱炭酸した後、アミノ基をイソシアネート基に変換することにより得られる。

【００５２】

１，５－ペンタメチレンジイソシアネートの他の合成方法としては、ホスゲン化法やカルバメート化法が挙げられる。より具体的には、ホスゲン化方法は、１，５－ペンタメチレンジアミンまたはその塩を直接ホスゲンと反応させる方法や、ペンタメチレンジアミンの塩酸塩を不活性溶媒中に懸濁させてホスゲンと反応させる方法により、１，５－ペンタメチレンジイソシアネートを合成するものである。また、カルバメート化法は、まず、１，５－ペンタメチレンジアミンまたはその塩をカルバメート化し、ペンタメチレンジカルバメート（ＰＤＣ）を生成させた後、熱分解することにより、１，５－ペンタメチレンジイソシアネートを合成するものである。本発明において、好適に使用されるポリイソシアネートとしては、三井化学株式会社製の１，５－ペンタメチレンジイソシアネート系ポリイソシアネート（商品名：スタビオ（登録商標））が挙げられる。

【００５３】

（着色剤）

着色剤としては、特に限定されず、従来公知の顔料や染料を用いることができる。

【００５４】

印刷層は、好ましくは５％以上、より好ましくは５％以上５０％以下、さらに好ましくは１０％以上５０％以下のバイオマス度を有するものである。バイオマス度が上記範囲であれば、化石燃料の使用量を削減することができ、環境負荷を減らすことができる。

【００５５】

印刷層の乾燥後の重量は、好ましくは０．１ｇ／ｍ^{2}以上１０ｇ／ｍ^{2}以下、より好ましくは１ｇ／ｍ^{2}以上５ｇ／ｍ^{2}以下、さらに好ましくは１ｇ／ｍ^{2}以上３ｇ／ｍ^{2}以下である。

【００５６】

印刷層は、好ましくは０．１μｍ以上１０μｍ以下、より好ましくは１μｍ以上５μｍ以下、さらに好ましくは１μｍ以上３μｍ以下の厚さを有するものである。

【００５７】

［接着層］

接着層は、積層体を構成するいずれか２層、例えば、印刷層とシーラント層とを接着する機能を果たす層である。接着層は、バイオマス由来のエチレンを含むモノマーの重合体であるバイオマスポリオレフィンを用いて形成することができる。

【００５８】

バイオマスポリオレフィンは、バイオマス由来のエチレン等のオレフィンを含むモノマ

ーの重合体である。原料であるモノマーとしてバイオマス由来のオレフィンを用いているため、重合されてなるポリオレフィンはバイオマス由来となる。なお、ポリオレフィンの原料モノマーは、バイオマス由来のオレフィンを１００質量％含むものでなくてもよい。

【００５９】

例えば、バイオマス由来のエチレンは、バイオマス由来のエタノールを原料として製造することができる。特に、植物原料から得られるバイオマス由来の発酵エタノールを用いることが好ましい。植物原料は、特に限定されず、従来公知の植物を用いることができる。例えば、トウモロコシ、サトウキビ、ビート、およびマニオクを挙げることができる。

【００６０】

本発明において、バイオマス由来の発酵エタノールとは、植物原料より得られる炭素源を含む培養液にエタノールを生産する微生物またはその破砕物由来産物を接触させ、生産した後、精製されたエタノールを指す。培養液からのエタノールの精製は、蒸留、膜分離、および抽出等の従来公知の方法が適用可能である。例えば、ベンゼン、シクロヘキサン等を添加し、共沸させるか、または膜分離等により水分を除去する等の方法が挙げられる。

【００６１】

バイオマスポリオレフィンの原料であるモノマーは、化石燃料由来のエチレンのモノマーおよび／または化石燃料由来のα－オレフィンのモノマーをさらに含んでもよいし、バイオマス由来のα－オレフィンのモノマーをさらに含んでもよい。

【００６２】

上記のα－オレフィンは、炭素数は特に限定されないが、通常、炭素数３～２０のものを用いることができ、ブチレン、ヘキセン、またはオクテンであることが好ましい。ブチレン、ヘキセン、またはオクテンであれば、バイオマス由来の原料であるエチレンの重合により製造することが可能となるからである。また、このようなα－オレフィンを含むことで、重合されてなるポリオレフィンはアルキル基を分岐構造として有するため、単純な直鎖状のものよりも柔軟性に富むものとすることができる。

【００６３】

バイオマスポリオレフィンとしては、ポリエチレンや、エチレンとα－オレフィンの共重合体を単独で用いてもよいし、二種以上混合して用いてもよい。特に、バイオマスポリオレフィンはポリエチレンであることが好ましい。バイオマス由来の原料であるエチレンを用いることで、理論上１００％バイオマス由来成分により製造することが可能となるからである。

【００６４】

バイオマスポリオレフィンは、異なるバイオマス度のバイオマスポリオレフィンを２種以上含むものであってもよく、ポリオレフィン樹脂層全体として、バイオマス度が、上記範囲内であればよい。

【００６５】

バイオマスポリオレフィンは、好ましくは０．９１ｇ／ｃｍ^{3}以上０．９３ｇ／ｃｍ^{3}以下、より好ましくは０．９１２ｇ／ｃｍ^{3}以上０．９２８ｇ／ｃｍ^{3}以下、さらに好ましくは０．９１５ｇ／ｃｍ^{3}以上０．９２５ｇ／ｃｍ^{3}以下の密度を有するものである。バイオマスポリオレフィンの密度は、ＪＩＳ Ｋ６７６０－１９９５に記載のアニーリングを行った後、ＪＩＳ Ｋ７１１２－１９８０のうち、Ａ法に規定された方法に従って測定される値である。バイオマスポリオレフィンの密度が０．９１ｇ／ｃｍ^{3}以上あれば、バイオマスポリオレフィンを含むポリオレフィン樹脂層の剛性を高めることができ、包装製品の内層として好適に用いることができる。また、バイオマスポリオレフィンの密度が０．９３ｇ／ｃｍ^{3}以下であれば、バイオマスポリオレフィンを含むポリオレフィン樹脂層の透明性や機械的強度を高めることができ、包装製品の内層として好適に用いることができる。

【００６６】

バイオマスポリオレフィンは、０．１ｇ／１０分以上１０ｇ／１０分以下、好ましくは

０．２ｇ／１０分以上９ｇ／１０分以下、より好ましくは１ｇ／１０分以上８．５ｇ／１０分以下のメルトフローレート（ＭＦＲ）を有するものである。メルトフローレートとは、ＪＩＳ Ｋ７２１０－１９９５に規定された方法において、温度１９０℃、荷重２１．１８Ｎの条件で、Ａ法により測定される値である。バイオマスポリオレフィンのＭＦＲが０．１ｇ／１０分以上であれば、成形加工時の押出負荷を低減することができる。また、バイオマスポリオレフィンのＭＦＲが１０ｇ／１０分以下であれば、バイオマスポリオレフィンを含むポリオレフィン樹脂層の機械的強度を高めることができる。

【００６７】

本発明において、好適に使用されるバイオマスポリオレフィンとしては、Ｂｒａｓｋｅｍ社製のバイオマス由来の低密度ポリエチレン（商品名：ＳＢＣ８１８、密度：０．９１８ｇ／ｃｍ^3、ＭＦＲ：８．１ｇ／１０分、バイオマス度９５％）、Ｂｒａｓｋｅｍ社製のバイオマス由来の低密度ポリエチレン（商品名：ＳＰＢ６８１、密度：０．９２２ｇ／ｃｍ^3、ＭＦＲ：３．８ｇ／１０分、バイオマス度９５％）、Ｂｒａｓｋｅｍ社製のバイオマス由来の直鎖状低密度ポリエチレン（商品名：ＳＬＬ１１８、密度：０．９１６ｇ／ｃｍ^3、ＭＦＲ：１．０ｇ／１０分、バイオマス度８７％）等が挙げられる。

【００６８】

接着層は、好ましくは１０％以上、より好ましくは５０％以上、さらに好ましくは８０％以上１００％以下のバイオマス度を有するものである。バイオマス度が上記範囲であれば、化石燃料の使用量を削減することができ、環境負荷を減らすことができる。

【００６９】

接着層は、好ましくは３μｍ以上５０μｍ以下、より好ましくは５μｍ以上３０μｍ以下、さらに好ましくは１０μｍ以上２０μｍ以下の厚さを有するものである。

【００７０】

積層体中に接着層は一つであってもよいし、二つ以上が含まれるようにしてもよい。例えば、積層体中に二つの接着層が含まれる場合、一の接着層を接着層、他の接着層を第２の接着層と言うことがある。

【００７１】

［シーラント層］

シーラント層は、バイオマス由来成分を含む材料により形成する場合、バイオマスポリオレフィンを用いて形成することができる。また、シーラント層は、バイオマス由来成分を含まない材料により形成する場合、従来公知の化石燃料由来の熱可塑性樹脂を用いて形成することができる。シーラント層は、積層体において最内層となる層である。

【００７２】

バイオマスポリオレフィンとしては、上記の接着層と同様のバイオマスポリオレフィンを用いることができる。接着層とシーラント層の両方を、バイオマスポリオレフィンを用いて形成する場合、接着層のバイオマスポリオレフィンとシーラント層のバイオマスポリオレフィンは、同様の組成でも良いし、異なる組成でも良い。

【００７３】

シーラント層は、好ましくは５％以上、より好ましくは５％以上６０％以下、さらに好ましくは１０％以上６０％以下のバイオマス度を有するものである。バイオマス度が上記範囲であれば、化石燃料の使用量を削減することができ、環境負荷を減らすことができる。

【００７４】

シーラント層は、好ましくは１０μｍ以上３００μｍ以下、より好ましくは２０μｍ以上２００μｍ以下、さらに好ましくは３０μｍ以上１５０μｍ以下の厚さを有するものである。

【００７５】

上記の化石燃料由来の熱可塑性樹脂としては、例えば、低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、ポリプロピレン、プロピレン－エチレン共重合体、エチレン－酢酸ビニル共重合体、エチレン－アクリル酸共重合

体、エチレン－メタクリル酸共重合体、エチレン－メチルアクリレート共重合体、エチレン－エチルアクリレート共重合体、エチレン－メチルメタクリレート共重合体またはアイオノマー等が挙げられる。

【００７６】

［バリア層］

本発明による積層体は、バリア層をさらに備えてもよい。バリア層は、無機物および／または無機酸化物からなるものであり、無機物もしくは無機酸化物の蒸着膜または金属箔からなるものが好ましい。蒸着膜は、従来公知の無機物または無機酸化物を用いて、従来公知の方法により形成することができ、その組成および形成方法は特に限定されない。積層体が、バリア層をさらに有することで、酸素ガスおよび水蒸気等の透過を阻止するガスバリア性や、可視光および紫外線等の透過を阻止する遮光性を、付与ないし向上させることができる。なお、積層体は、バリア層を２層以上有してもよい。バリア層を２層以上有する場合、それぞれが、同一の組成であってもよいし、異なる組成であってもよい。

【００７７】

蒸着膜としては、例えば、ケイ素（Ｓｉ）、アルミニウム（Ａｌ）、マグネシウム（Ｍｇ）、カルシウム（Ｃａ）、カリウム（Ｋ）、スズ（Ｓｎ）、ナトリウム（Ｎａ）、ホウ素（Ｂ）、チタン（Ｔｉ）、鉛（Ｐｂ）、ジルコニウム（Ｚｒ）、イットリウム（Ｙ）等の無機物または無機酸化物の蒸着膜を使用することができる。特に、包装用材料（袋）等に適するものとしては、アルミニウム金属の蒸着膜、あるいは、ケイ素酸化物またはアルミニウム金属もしくはアルミニウム酸化物の蒸着膜を用いるのがよい。

【００７８】

無機酸化物の表記は、例えば、SiO_X、AlO_X等のようにMO_X（ただし、式中、Ｍは、無機元素を表し、Ｘの値は、無機元素によってそれぞれ範囲がことなる。）で表される。Ｘの値の範囲としては、ケイ素（Ｓｉ）は、０～２、アルミニウム（Ａｌ）は、０～１．５、マグネシウム（Ｍｇ）は、０～１、カルシウム（Ｃａ）は、０～１、カリウム（Ｋ）は、０～０．５、スズ（Ｓｎ）は、０～２、ナトリウム（Ｎａ）は、０～０．５、ホウ素（Ｂ）は、０～１、５、チタン（Ｔｉ）は、０～２、鉛（Ｐｂ）は、０～１、ジルコニウム（Ｚｒ）は０～２、イットリウム（Ｙ）は、０～１．５の範囲の値をとることができる。上記において、Ｘ＝０の場合、完全な無機単体（純物質）であり、透明ではなく、また、Ｘの範囲の上限は、完全に酸化した値である。包装用材料には、ケイ素（Ｓｉ）、アルミニウム（Ａｌ）が好適に使用され、ケイ素（Ｓｉ）は、１．０～２．０、アルミニウム（Ａｌ）は、０．５～１．５の範囲の値のものを使用することができる。

【００７９】

本発明において、上記のような無機物または無機酸化物の蒸着膜の膜厚としては、使用する無機物または無機酸化物の種類等によって異なるが、例えば、５０Å以上２０００Å以下、好ましくは、１００Å以上１０００Å以下の範囲内で任意に選択して形成することが望ましい。更に具体的に説明すると、アルミニウムの蒸着膜の場合には、膜厚５０Å以上６００Å以下、更に、好ましくは、１００Å以上４５０Å以下が望ましく、また、酸化アルミニウムあるいは酸化珪素の蒸着膜の場合には、膜厚５０Å以上５００Å以下、更に、好ましくは、１００Å以上３００Å以下が望ましいものである。

【００８０】

蒸着膜は、基材層などに以下の形成方法を用いて形成することができる。蒸着膜の形成方法としては、例えば、真空蒸着法、スパッタリング法、およびイオンプレーティング法等の物理気相成長法（Ｐｈｙｓｉｃａｌ　Ｖａｐｏｒ　Ｄｅｐｏｓｉｔｉｏｎ法、ＰＶＤ法）、あるいは、プラズマ化学気相成長法、熱化学気相成長法、および光化学気相成長法等の化学気相成長法（Ｃｈｅｍｉｃａｌ　Ｖａｐｏｒ　Ｄｅｐｏｓｉｔｉｏｎ法、ＣＶＤ法）等を挙げることができる。

【００８１】

また、他の態様によれば、バリア層は、金属を圧延して得られた金属箔であってもよい。金属箔としては、従来公知の金属箔を用いることができる。酸素ガスおよび水蒸気等の

透過を阻止するガスバリア性や、可視光および紫外線等の透過を阻止する遮光性の点からは、アルミニウム箔が好ましい。

【００８２】

（ガスバリア性塗布膜）

必要に応じて、蒸着膜の上にガスバリア性塗布膜を設けてもよい。ガスバリア性塗布膜は、酸素ガスおよび水蒸気などの透過を抑制する層として機能する層である。ガスバリア性塗布膜は、一般式$R^1{}_nM(OR^2)_m$（ただし、式中、R^1、R^2は、炭素数１～８の有機基を表し、Ｍは、金属原子を表し、ｎは、０以上の整数を表し、ｍは、１以上の整数を表し、ｎ＋ｍは、Ｍの原子価を表す。）で表される少なくとも一種以上のアルコキシドと、上記のようなポリビニルアルコール系樹脂および／またはエチレン・ビニルアルコール共重合体とを含有し、さらに、ゾルゲル法触媒、酸、水、および、有機溶剤の存在下に、ゾルゲル法によって重縮合するガスバリア性組成物により得られる。

【００８３】

上記の一般式$R^1{}_nM(OR^2)_m$で表されるアルコキシドとしては、アルコキシドの部分加水分解物、アルコキシドの加水分解の縮合物の少なくとも一種以上を使用することができる。また、上記のアルコキシドの部分加水分解物としては、アルコキシ基のすべてが加水分解されている必要はなく、１個以上が加水分解されているもの、および、その混合物であってもよい。アルコキシドの加水分解の縮合物としては、部分加水分解アルコキシドの２量体以上のもの、具体的には、２～６量体のものを使用される。

【００８４】

上記の一般式$R^1{}_nM(OR^2)_m$で表されるアルコキシドにおいて、Ｍで表される金属原子としては、ケイ素、ジルコニウム、チタン、アルミニウム、その他などを使用することができる。本実施形態において、好ましい金属としては、例えば、ケイ素、チタンなどを挙げることができる。また、本発明において、アルコキシドの用い方としては、単独または二種以上の異なる金属原子のアルコキシドを同一溶液中に混合して使うこともできる。

【００８５】

また、上記の一般式$R^1{}_nM(OR^2)_m$で表されるアルコキシドにおいて、R^1で表される有機基の具体例としては、例えば、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、ｉ－プロピル基、ｎ－ブチル基、ｉ－ブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔ－ブチル基、ｎ－ヘキシル基、ｎ－オクチル基、その他などのアルキル基を挙げることができる。また、上記の一般式$R^1{}_nM(OR^2)_m$で表されるアルコキシドにおいて、R^2で表される有機基の具体例としては、例えば、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、ｉ－プロピル基、ｎ－ブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、その他などを挙げることができる。なお、同一分子中にこれらのアルキル基は同一であっても、異なってもよい。

【００８６】

上記のガスバリア性組成物を調製する際、例えば、シランカップリング剤などを添加してもよい。上記のシランカップリング剤としては、既知の有機反応性基含有オルガノアルコキシシランを用いることができる。本実施形態においては、特に、エポキシ基を有するオルガノアルコキシシランが好適に用いられ、具体的には、例えば、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、または、β－（３、４－エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシランなどを使用することができる。上記のようなシランカップリング剤は、一種または二種以上を混合して用いてもよい。

【００８７】

本発明による積層体は、その他の層として、熱可塑性樹脂層をさらに備えていてもよい。熱可塑性樹脂層としては、シーラント層と同じ材料を用いることができる。

【００８８】

＜積層体の製造方法＞

本発明による積層体の製造方法は特に限定されず、ドライラミネート法、溶融押出しラ

ミネート法、サンドラミネート法等の従来公知の方法を用いて製造することができる。

【００８９】

本発明による積層体には、化学的機能、電気的機能、磁気的機能、力学的機能、摩擦／磨耗／潤滑機能、光学的機能、熱的機能、生体適合性等の表面機能等の付与を目的として、二次加工を施すことも可能である。二次加工の例としては、エンボス加工、塗装、接着、印刷、メタライジング（めっき等）、機械加工、表面処理（帯電防止処理、コロナ放電処理、プラズマ処理、フォトクロミズム処理、物理蒸着、化学蒸着、コーティング、等）等が挙げられる。また、本発明による積層体に、ラミネート加工（ドライラミネートや押し出しラミネート）、製袋加工、およびその他の後処理加工を施して、成型品を製造することもできる。

【００９０】

＜用途＞

本発明による積層体は、包装製品に使用することができ、包装製品としては、包装袋、ラミネートチューブ、蓋材、シート成形品、ラベル材料等が挙げられる。

【００９１】

以下に、実施例と比較例を挙げて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明は以下の実施例に限定解釈されるものではない。

【００９２】

［実施例１］

＜積層体１の作製＞

基材層として、化石燃料由来のテレフタル酸とバイオマス由来のエチレングリコールを用いて製膜した二軸延伸されたポリエステルフィルム１（バイオマス度：２０％、東洋紡社製、ＤＥ０３５、厚さ１２μｍ）を準備した。また、バリア性フィルム１として、アルミニウムの蒸着膜が形成されたバイオマス由来のポリエステルフィルム（バイオマス度：２０％、サイチ工業社製、厚さ１２μｍ）を準備した。次に、ポリエステルフィルム１（バイオマス度：２０％、厚さ１２μｍ）上に、主剤としてバイオマス由来成分を含むポリエステルポリオールと硬化剤として化石燃料由来のポリイソシアネートとを含み、着色剤（酸化チタン）をさらに添加したバイオマス由来のインキを用いて印刷層（バイオマス度２５％、乾燥後の重量２ｇ／ｍ^2）を形成した。続いて、印刷層上に、サンドラミネート法を用いて、バイオマス由来の低密度ポリエチレン（Ｂｒａｓｋｅｍ社製、ＳＢＣ８１８、密度：０．９１８ｇ／ｃｍ^3、ＭＦＲ：８．１ｇ／１０分、バイオマス度：９５％）を押し出しながら、この接着層（バイオマス度９５％、厚さ１３μｍ）を介して、上記のバリア性フィルム１の蒸着面を貼り合せた。続いて、バリア性フィルム１のポリエステルフィルム面上に、サンドラミネート法を用いて、バイオマス由来の低密度ポリエチレン（Ｂｒａｓｋｅｍ社製、ＳＢＣ８１８、密度：０．９１８ｇ／ｃｍ^3、ＭＦＲ：８．１ｇ／１０分、バイオマス度：９５％）を押し出しながら、この接着層（バイオマス度９５％、厚さ１３μｍ）を介して、バイオマス由来の直鎖状低密度ポリエチレンフィルム（バイオマス度１６％、厚さ５０μｍ）を貼り合わせて、基材層、印刷層、接着層、バリア層、第２の基材層、第２の接着層、およびシーラント層が順に積層された積層体１を得た。

【００９３】

［比較例１］

＜積層体２の作製＞

基材層として、化石燃料由来のテレフタル酸と化石燃料由来のエチレングリコールを用いて製膜した二軸延伸されたポリエステルフィルム２（バイオマス度：０％、東洋紡社製、Ｅ５１００、厚さ１２μｍ）を準備した。また、バリア性フィルム２として、アルミニウムの蒸着膜が形成された化石燃料由来のポリエステルフィルム（バイオマス度：０％、サイチ工業社製、厚さ１２μｍ）を準備した。次に、基材層としてポリエステルフィルム２（バイオマス度：０％、厚さ１２μｍ）上に、主剤として化石燃料由来成分を含むポリエステルポリオールと硬化剤として化石燃料由来のポリイソシアネートとを含み、着色剤（酸化チタン）をさらに添加した化石燃料由来のインキを用いて印刷層（バイオマス度０

%、乾燥後の重量２ｇ／ｍ^2）を形成した。続いて、印刷層上に、サンドラミネート法を用いて、化石燃料由来の低密度ポリエチレン（日本ポリエチレン社製、ＬＣ６００Ａ、密度：０．９１８ｇ／ｃｍ^3、ＭＦＲ：７．０ｇ／１０分、バイオマス度：０％）を押出しながら、この接着層（バイオマス度０％、厚さ１３μｍ）を介して、上記のバリア性フィルム２の蒸着面を貼り合せた。続いて、バリア性フィルム２のポリエステルフィルム面上に、サンドラミネート法を用いて、化石燃料由来の低密度ポリエチレン（日本ポリエチレン社製、ＬＣ６００Ａ、密度：０．９１８ｇ／ｃｍ^3、ＭＦＲ：７．０ｇ／１０分、バイオマス度：０％）を押出しながら、この接着層（バイオマス度０％、厚さ１３μｍ）を介して、化石燃料由来の直鎖状低密度ポリエチレンフィルム（バイオマス度０％、厚さ５０μｍ）を貼り合わせて、基材層、印刷層、接着層、バリア層、第２の基材層、第２の接着層、およびシーラント層が順に積層された積層体２を得た。

【００９４】

［実施例２］

＜積層体３の作製＞

基材層としてポリエステルフィルム１（バイオマス度：２０％、厚さ１２μｍ）上に、主剤としてバイオマス由来成分を含むポリエステルポリオールと硬化剤として化石燃料由来のポリイソシアネートとを含み、着色剤（酸化チタン）をさらに添加したバイオマス由来のインキを用いて印刷層（バイオマス度２５％、乾燥後の重量２ｇ／ｍ^2）を形成した。続いて、印刷層上に、サンドラミネート法を用いて、バイオマス由来の低密度ポリエチレン（Ｂｒａｓｋｅｍ社製、ＳＢＣ８１８、密度：０．９１８ｇ／ｃｍ^3、ＭＦＲ：８．１ｇ／１０分、バイオマス度：９５％）を押し出しながら、この接着層（バイオマス度９５％、厚さ１３μｍ）を介して、アルミニウム箔（東洋アルミ社製、１Ｎ３０、厚さ７μｍ）を貼り合せた。続いて、アルミニウム箔上に、サンドラミネート法を用いて、バイオマス由来の低密度ポリエチレン（Ｂｒａｓｋｅｍ社製、ＳＢＣ８１８、密度：０．９１８ｇ／ｃｍ^3、ＭＦＲ：８．１ｇ／１０分、バイオマス度：９５％）を押し出しながら、この接着層（バイオマス度９５％、厚さ１３μｍ）を介して、バイオマス由来の直鎖状低密度ポリエチレンフィルム（バイオマス度１６％、厚さ５０μｍ）を貼り合わせて、基材層、印刷層、接着層、バリア層、第２の接着層、およびシーラント層が順に積層された積層体３を得た。

【００９５】

［比較例２］

＜積層体４の作製＞

基材層としてポリエステルフィルム２（バイオマス度：０％、厚さ１２μｍ）上に、主剤として化石燃料由来成分を含むポリエステルポリオールと硬化剤として化石燃料由来のポリイソシアネートとを含み、着色剤（酸化チタン）をさらに添加した化石燃料由来のインキを用いて印刷層（バイオマス度０％、乾燥後の重量２ｇ／ｍ^2）を形成した。続いて、印刷層上に、サンドラミネート法を用いて、化石燃料由来の低密度ポリエチレン（日本ポリエチレン社製、ＬＣ６００Ａ、密度：０．９１８ｇ／ｃｍ^3、ＭＦＲ：７．０ｇ／１０分、バイオマス度：０％）を押出しながら、この接着層（バイオマス度０％、厚さ１３μｍ）を介して、アルミニウム箔（東洋アルミ社製、１Ｎ３０、厚さ７μｍ）を貼り合せた。続いて、アルミニウム箔上に、サンドラミネート法を用いて、化石燃料由来の低密度ポリエチレン（日本ポリエチレン社製、ＬＣ６００Ａ、密度：０．９１８ｇ／ｃｍ^3、ＭＦＲ：７．０ｇ／１０分、バイオマス度：０％）を押出しながら、この接着層（バイオマス度０％、厚さ１３μｍ）を介して、化石燃料由来の直鎖状低密度ポリエチレンフィルム（バイオマス度０％、厚さ５０μｍ）を貼り合わせて、基材層、印刷層、接着層、バリア層、第２の接着層、およびシーラント層が順に積層された積層体４を得た。

【００９６】

【表１】

		基材層	印刷層	接着層	バリア層	第２の基材層	第２の接着層	シーラント層	層全体
実施例１	厚み[μm]	12		13		12	13	50	100
	密度[g/cm^3]	1.4		0.92		1.4	0.92	0.92	
	層重量[g/m2]	16.8	2	12.0		16.8	12.0	46	105.5
	バイオマス度[%]	20	25	95	0	20	95	16	35.4
	バイオマス重量	3.4	0.5	11.4	0	3.36	11.4	7.4	37.3
比較例１	バイオマス度[%]	0	0	0	0	0	0	0	0
実施例２	厚み[μm]	12		13	7		13	50	95
	密度[g/cm^3]	1.4		0.92	2.7		0.92	0.92	
	層重量[g/m^2]	16.8	2	12.0	18.9		12.0	46	107.6
	バイオマス度[%]	20	25	95	0	0	95	16	31.5
	バイオマス重量	3.4	0.5	11.4	0	0	11.4	7.4	33.9
比較例２	バイオマス度[%]	0	0	0	0	-	0	0	0

【符号の説明】

【００９７】

１０、２０　積層体

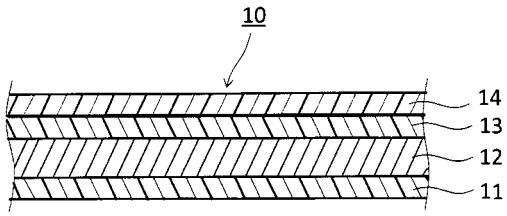
１１　基材層

１２　印刷層

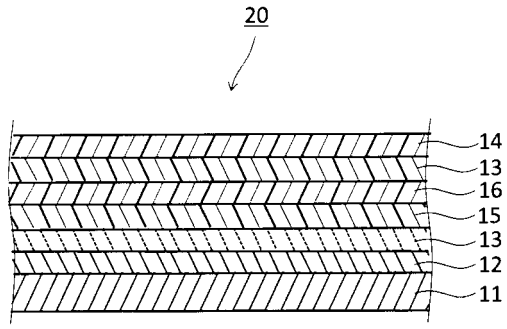
１３　接着層

１４　シーラント層
１５　バリア層
１６　樹脂層

【図１】



【図２】



フロントページの続き

(72)発明者 武 田 淳 彦
東京都新宿区市谷加賀町一丁目１番１号 大日本印刷株式会社内
(72)発明者 都 築 充 典
東京都新宿区市谷加賀町一丁目１番１号 大日本印刷株式会社内
(72)発明者 入 井 繁
東京都新宿区市谷加賀町一丁目１番１号 大日本印刷株式会社内
(72)発明者 北 野 寛 治
東京都新宿区市谷加賀町一丁目１番１号 大日本印刷株式会社内

Ｆターム(参考) 3E086 AA22 AA23 AB01 AB03 AD01 AD03 AD24 BA04 BA15 BA29
BA33 BB90 DA08
4F100 AA21B AA21H AB10 AK04C AK04D AK06 AK06C AK41A AK41B AK42
AK42A AK51B AK63D AR00D AT00A BA04 BA07 BA10A BA10D BA15
CA13B EH66 EJ38 GB15 GB16 GB17 GB18 HB31B JL11C YY00
YY00A YY00B YY00C YY00D