

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2012年8月16日(16.08.2012)



(10) 国際公開番号

WO 2012/108534 A1

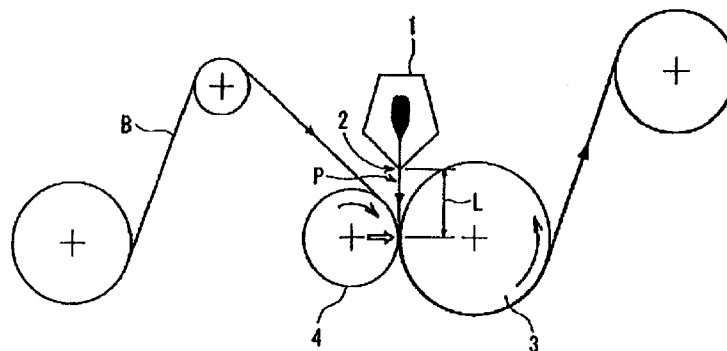
- (51) 国際特許分類:
B32B 27/10 (2006.01) B32B 27/36 (2006.01)
B29C 47/02 (2006.01) B65D 65/40 (2006.01)
B29C 47/92 (2006.01) B29K 67/00 (2006.01)
B32B 27/32 (2006.01) B29L 9/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/053166
- (22) 国際出願日: 2012年2月10日(10.02.2012)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2011-027968 2011年2月11日(11.02.2011) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 日清食品ホールディングス株式会社(NISSIN FOODS HOLDINGS CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5328524 大阪府大阪市淀川区西中島4丁目1番1号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 山内 邦夫(YAMAUCHI, Kunio) [JP/JP]; 〒5328524 大阪府大阪市淀川区西中島4丁目1番1号 日清食品ホールディングス株式会社内 Osaka (JP). 岩屋 功男(IWAYA, Isao) [JP/JP]; 〒6360905 奈良県生駒郡平群町上庄1丁目5番4号 Nara (JP).
- (74) 代理人: 小野 尚純, 外(ONO, Hisazumi et al.); 〒1050003 東京都港区西新橋1丁目1番21号 日本酒造会館 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) Title: LAMINATE BODY WITH HEAT SEALING PROPERTIES AND METHOD OF PRODUCING SAME

(54) 発明の名称: ヒートシール性積層体及びその製造方法

[図1]



(57) Abstract: The present invention relates to a laminate body comprising at least three layers, paper / polyethylene / polyethylene terephthalate, wherein said polyethylene terephthalate is coated directly onto the polyethylene surface without an intermediate adhesive layer, and the polyethylene terephthalate layer has heat sealing properties. The present invention also relates to a method of producing the aforementioned laminate body in which a laminate body comprises a paper substrate coated on at least one surface with polyethylene, and when polyethylene terephthalate is extrusion-laminated onto the polyethylene surface of the laminate body, the air gap represented by the distance from the lip opening of a die to the polyethylene surface is 25cm or less.

(57) 要約: 本発明は、少なくとも紙／ポリエチレン／ポリエチレンテレフタレートから成り、該ポリエチレンテレフタレートがポリエチレン面に対して接着剤層等を介することなく直接被膜され、ポリエチレンテレフタレート層がヒートシール性を有する積層体、及び紙製基材の少なくとも一方の面にポリエチレンが被膜されている積層体のポリエチレン面に対して、ポリエチレンテレフタレートを押出ラミネートするに際して、ダイのリップ開口部からポリエチレンの面までの距離で表されるエアギャップを25cm以下とする前記積層体の製造方法に関する。

WO 2012/108534 A1



添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称： ヒートシール性積層体及びその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、ヒートシール性積層体及びその製造方法に関するものであり、より詳細には、紙製基材／ポリエチレン／ポリエチレンテレフタレーートの少なくとも３層から成り、ポリエチレンテレフタレート層がヒートシール性を有する積層体及びその製造方法に関する。

背景技術

[0002] 紙製基材にポリエチレンを被膜した積層体は食品等の種々の分野で包装用の容器等として用いられている。

しかし、ポリエチレンは水蒸気バリア性に優れているがガスバリア性が劣る。そこで、これを補うためにガスバリア性に優れたポリエチレンテレフタレーートをさらに積層することが、食品包装用途として保存性及び保香性等に優れた手段と想定できる。

また、包装用容器の基材として用いるには、積層体の外層はヒートシール性を備える必要があるが、従来からの加工方法に於いては延伸ポリエチレンテレフタレートフィルムを使用するためヒートシール性を有しない。このため包装用容器の基材として用いるには、当該ポリエチレンテレフタレート層の上にさらにポリエチレン層をラミネート等で被膜する必要があった。

[0003] また、延伸ポリエチレンテレフタレートフィルムを積層するためには、接着剤層を付加する必要があるが、この接着剤を用いるが故にコスト増という難点があった。さらには、接着剤に用いる有機溶剤等の残留問題もあった。

特許文献１は、接着剤を用いずに、紙製基材にポリエチレンテレフタレート層とポリエチレン層を接着する加工方法が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献１：特開２０１１－１０８７号公報

[0005] しかし、上記文献記載の積層体を食品包装容器として用いた場合、食品がポリエチレン層に接触することになり、ポリエチレン層からのオレフィン臭及び香気成分の吸着等の問題も残される。

また、上記文献によれば、容器自体のガスバリア性改良のために延伸ポリエチレンテレフタレートフィルムを使用しているが、そのために紙製基材との接着工程が必要となり、更にはヒートシールを目的とするポリエチレン押出し工程を併せて2工程4層の積層体となるため、製造コストの低減を図りにくいという難点がある。

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] そこで、本発明は紙製基材上に被膜したポリエチレン面上に、アンカーコート剤や接着剤を介在することなしに、ポリエチレンテレフタレートの溶融押出しラミネートを特定の条件で実施することにより、包装体として必要なヒートシール性を保持すると共に、食品包装用途としての長期保存性及び保香性に優れ、且つ、接着剤層を必要としないために残留溶剤等による臭気問題を回避した、少なくとも三層以上の積層体を提案するものである。

[0007] 従来、ポリエチレンのようなポリオレフィン系樹脂とポリエチレンテレフタレートのようなエステル系樹脂とは、分子的官能基等の違いにより接着が困難なものとして一般的に認知されている。即ち両方の樹脂を接合するためには接着剤を介して接着する方法、又は前処理として接着改質アンカーコートをインライン加工した上に、高オゾン及びコロナ処理併用でポリエチレンの溶融押出しラミネートを実施する方法もある。

しかしながら、何れの方法にせよ前述の接着剤に於ける残存溶剤問題、或いはコスト増問題は解決されない。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明は、紙製基材にポリエチレンを溶融押出しラミネートした二層の積層体に対し、当該ポリエチレン面上に接着剤及び前処理アンカーコート等を施す工程を必要とせずに、特定の条件下にてポリエチレンテレフタレートを

押出しラミネートすることによりポリエチレンとの接着を可能にすることが出来た。

又、ポリエチレンテレフタレートを特定の条件で溶融押出しラミネートすることにより均質且つ安定した製膜を得ることが出来、ポリエチレンテレフタレート面同士のヒートシールが可能となった。

すなわち、本願第一の発明は、紙製基材の少なくとも一方の面に、ポリエチレンが被膜されており、当該ポリエチレン被膜に対してポリエチレンテレフタレートが直接に被膜されていることを特徴とするヒートシール性積層体、である。

[0009] また、上記第一の発明においては、

1. ポリエチレンテレフタレートがホモポリエチレンテレフタレートであること、
 2. ポリエチレンテレフタレートからなる被膜が、押出しラミネート法により施されたものであること、
 3. ポリエチレンテレフタレートの固有粘度が0.72ないし0.88 dL/gの範囲あること、
 4. ポリエチレンテレフタレートからなる被膜が10ないし60 μ mの厚みを有すること、
- が好適である。

[0010] 本願第二の発明は、上記ヒートシール性積層体のポリエチレンテレフタレート被膜同士を重ね合わせ、ヒートシールすることにより成形される容器、である。

本願第三の発明は、紙製基材の少なくとも一方の面にポリエチレンが被膜され、該ポリエチレン被膜に押出しラミネート法によりポリエチレンテレフタレートを被膜する紙製積層体の製造方法において、ダイのリップ開口部からポリエチレンの面までの距離で表されるエアギャップが25 cm以下であることを特徴とするヒートシール性積層体の製造方法、である。

上記第三の発明においては、前記押出しラミネート法において、溶融押出

し時のポリエチレンテレフタレート押出し温度が、ポリエチレンテレフタレートの融点 (T_m) を基準として、 $T_m + 25^{\circ}\text{C}$ 以上、 $T_m + 70^{\circ}\text{C}$ 未満の範囲にあり、押出し圧力が 3.5 ないし 6.5 MPa の範囲内であることが好適である。

発明の効果

[0011] 本発明のヒートシール性積層体は、アンカーコート剤及び接着剤を用いることなく積層されているため残留溶剤等による臭気問題がなく、またポリエチレンテレフタレート層がヒートシール性を有しているため、オレフィン臭や香氣成分の吸着等のポリオレフィンをヒートシール層とする問題も回避されており、優れた保香性を有している。

また本発明のヒートシール性積層体は、水蒸気バリア性及びガスバリア性にも優れていると共に、ポリエチレンテレフタレート層がヒートシール性を有しているため、この積層体をヒートシールにより容器等に成形でき、この容器等は食品包装用材料に要求される長期保存性にも優れている。

更に本発明のヒートシール性積層体の製造方法においては、ポリエチレンテレフタレートを特定の条件で押出しラミネートすることにより均質且つ安定して製膜することができるため、紙／ポリエチレン／ポリエチレンテレフタレートをアンカーコート剤及び接着剤を用いることなく積層でき、上記積層体を安価に提供することができる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]本発明の積層体の製造方法に用いられる装置の一例の配置を示す概略図である。

発明を実施するための形態

[0013] 本発明の積層体においては、紙製基材の少なくとも一方の面にポリエチレンが被膜されており、当該ポリエチレン面上に接着剤等を介することなくポリエチレンテレフタレートが溶融押出しラミネートにより被膜されていることが主要な特徴である。

[0014] (ポリエチレンテレフタレート)

ポリエチレンテレフタレート（以下、「PET」という場合がある。）とは、ジオール成分としてエチレングリコールとジカルボン酸成分としてテレフタル酸の脱水縮合により作られ、エステル結合が連なっているポリエステルを主成分とする。

尚、このエステル結合の生成は、テレフタル酸ジメチルとのエステル交換反応でも可能である。

本発明の積層体に用いるポリエチレンテレフタレートとしては、汎用性があり安価で要求が容易なホモポリエチレンテレフタレートであることが好ましい。

ホモポリエチレンテレフタレートは、ジオール成分としてエチレングリコールとジカルボン酸成分としてテレフタル酸を重縮合してなる成るものであり、積極的に他の共重合成分を含有しない、汎用のポリエチレンテレフタレートを意味するものであり、ポリエチレンテレフタレート調製の際に副生する不純物成分まで排除するものではない。

[0015] すなわち、ホモポリエチレンテレフタレートにおける“ホモ”とは共重合ポリエステル樹脂やブレンド樹脂のような特別なポリエステル樹脂は除く趣旨である。例えば、特別なポリエステル樹脂の例として日本国特許第3749000号が挙げられる。

尚、本発明の技術的範囲の問題から意図的に微量の第三成分を混入するような場合も本発明にいう“ホモポリエチレンテレフタレート”に含まれることはいうまでもない。

また本発明の積層体に用いるホモポリエチレンテレフタレートは、固有粘度（IV）が0.72ないし0.88 dL/g、特に0.80ないし0.83 dL/gの範囲にあることが製膜性の点で重要であり、上記範囲よりも固有粘度が低い場合には製膜性に劣るようになり、一方、上記範囲よりも固有粘度が高い場合には、押出性に劣るようになる。

[0016] 更に、本発明の積層体に用いるホモポリエチレンテレフタレートは、それ自体公知のフィルム用配合剤、例えば、アンチブロッキング剤、帯電防止剤

、滑剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤等を公知の処方に従って配合することもできる。

[0017] (紙製基材)

積層体に用いる紙製基材は、従来、紙器等に使用されている板紙であれば、全て使用することができ、用途に応じて種々のものを採用することができる。

例えば、これに限定されないが、アイボリー原紙、カップ原紙、マニラボール紙、カード紙等の他、合成紙等も使用することができる。

使用する原紙の坪量は、特に限定されないが、概ね $180 \sim 500 \text{ g/m}^2$ の範囲であることが好適である。

[0018] 上記範囲よりも坪量が小さい場合には、上記範囲にある場合に比して得られる容器の機械的強度が劣るようになるおそれがあり、一方上記範囲よりも坪量が多い場合には容器が重くなり、取扱性や経済性に劣ると共に成形性に劣るようになるおそれがある。

また、紙製基材には、後述するようにポリエチレンが溶融押出しラミネートされているが、その上にポリエチレンテレフタレートを押出しラミネートする際、ポリエチレンとの接着性を向上させるため該基材に対して、コロナ放電処理、フレイム処理、プラズマ処理、オゾン処理等の表面処理を施すことが好ましい。

[0019] (紙製基材に対するポリエチレンの被膜)

本発明においては紙製基材にポリエチレン（以下、「PE」という場合がある。）を溶融押出しラミネートした面上に、ポリエチレンテレフタレートの溶融押出しラミネート加工を実施して製造する。

紙製基材にポリエチレンを被膜する方法は溶融押出しラミネーション法として汎用されており、これらの方法に従って行えばよい。

紙製基材にラミネートするポリエチレンとしては、紙製基材に押出ラミネート可能である限り、従来公知の高密度ポリエチレン（HDPE）、中密度ポリエチレン（MDPE）、低密度ポリエチレン（LDPE）、線状低密度

ポリエチレン（LLDPE）等を制限なく使用できるが、紙製基材に容易にラミネートできる点で中密度ポリエチレン又は低密度ポリエチレンを用いることが好ましい。

[0020] 尚、これらいずれのポリエチレンに対してもその被膜面に対して後述するポリエチレンテレフタレータの押出しラミネートは可能である。

ポリエチレン層の厚みは特に限定されないが、概ね10 μ m～60 μ mであれば好適である。

[0021] （ポリエチレン層の表面処理）

紙製基材及びポリエチレン積層体のポリエチレン面については、後述するポリエチレンテレフタレータの押出しラミネートの際の接着性を高めるために表面処理を実施することが好ましい。具体的には、コロナ放電処理、オゾン処理、フレイム処理、プラズマ処理等の表面処理が挙げられる。

[0022] （積層体）

本発明においては、上述したポリエチレンテレフタレータが、紙製基材に押出しラミネートされたポリエチレン層の上に押出しラミネートされ積層されている。

一般にポリエチレンは、水蒸気バリア性・耐薬品性が優れているが、ガスバリア性・臭気性に劣ることはよく知られている。

一方、ポリエチレンテレフタレータはガスバリア性に優れているが、水蒸気バリア性に劣る傾向にある。

そこで、このように紙製基材に対してポリエチレン及びポリエチレンテレフタレータを積層することで水蒸気バリア性及びガスバリア性等に優れた積層体とすることができる。

[0023] 従来までの方法に於ける積層体のポリエチレンテレフタレータ層については、延伸フィルムタイプを使用していたが、延伸ポリエチレンテレフタレータフィルムはその結晶性のためにヒートシール性を保持しない。このため延伸ポリエチレンテレフタレータが積層された積層体においては、ヒートシールが不可能なため、包装体として成形することが出来なかった。

このため、従来の積層体においては、ヒートシール性を付与するために、延伸ポリエチレンテレフタレート層上に更にポリエチレンを接着剤等によりラミネートする必要が生じていた。

本発明により得られる積層体は、当該ポリエチレンテレフタレート面がヒートシール性を有するため、更なるポリエチレン層を付加することなく、ポリエチレンテレフタレート面同士をヒートシールすることによって所定の形状に成形することが可能となった。

[0024] 尚、本発明の積層体は、紙／ポリエチレン／ポリエチレンテレフタレートの三層のみに限定されず、例えば、紙の他方の面にポリエチレンが被膜されていてもよい。どのような層を加えるかは用途に応じて任意に選択できる。

また、本発明においてはアンカーコート剤及び接着剤を使うことなく各層を接着することができるため、接着剤等、塗布工程を含むコスト増の課題、またアンカーコート剤及び接着剤に使用する有機溶剤等の問題を共に解決することができる。

[0025] (積層体の製造方法)

本発明の積層体の製造方法においては、上述したポリエチレンテレフタレートを、接着剤等を用いることなく直接、紙／ポリエチレンの積層体のポリエチレン面に安定して被覆させる必要がある。

このためには、押出ラミネート法（押出しラミネーション法）によりポリエチレンテレフタレートの溶融樹脂膜を、紙／ポリエチレンの積層体のポリエチレン面にラミネートする際の加工条件の選択が重要である。特にダイのリップ開口部と紙／ポリエチレンの積層体のポリエチレン面までの距離が重要になる。すなわち、ダイのリップ開口部からポリエチレン層の表面までの距離（エアギャップ）が25 cm以下、好ましくは5ないし20 cmの範囲に設定することが重要になる。

[0026] また、押出機からの溶融樹脂の押出しに際して、押出される溶融樹脂の押出温度を、用いるポリエチレンテレフタレートの融点（ T_m ）を基準として、概ね $T_m + 25$ 以上、 $T_m + 70^\circ\text{C}$ 未満の範囲に設定することが好ましい

。

さらに、押出しの際の押出圧力を3.5ないし6.5 MPa、特に4.0ないし6.0 MPaとすることが好ましい。

尚、各温度設定に対する実際の測定温度のずれは小さい方が好ましい。また、圧力調整についても精密に行うことが好ましい。

上記の範囲に設定することで、前述したように、膜揺れの発生が抑制され、膜厚の均一性、及び被覆の接着性に優れた積層体を製造することが可能になる。このことは後述する実施例の結果からも明らかである。

[0027] すなわち、後述する実施例の結果から明らかなように、エアギャップが25 cmよりも大きい場合には、膜の両端、すなわち耳部が左右に揺れる耳揺れが4 mm以上の幅で発生すると共に、膜厚の変動幅も目標とする厚みの±20%以上であり、均一な厚みの膜（PET層）を形成することができない（比較例1、表1）、また、ヒートシール性も充分でない（比較例1、表5）。

[0028] また溶融押出時のポリエチレンテレフタレート押出温度が、 $T_m + 25^{\circ}\text{C}$ 以上、 $T_m + 70^{\circ}\text{C}$ 未満の範囲を外れる場合には、やはり均一な膜厚の被覆を形成することが難しくなると共に、耳揺れの点でも上記範囲にある場合に比して劣っていることが明らかである

（比較例2及び3、表2）。更に押出圧力が6.5 MPaを超える場合にも、この範囲にある場合に比して、耳揺れ及び膜厚の均一性の点で満足するものでないことが明らかである（比較例4、表3）。

[0029] これに対して上記条件を全て満足する本発明の積層体の製造方法においては、耳揺れ幅が4 mm未満に抑制されていると共に、膜厚の変動幅も目標とする膜厚の±20%未満と小さく、また接着性にも優れていることが明らかである（実施例1～19）。

図1は、本発明の積層体の製造方法に用いる装置の一例の概略図であり、ポリエチレンテレフタレートは押出機（図示せず）で溶融混練され、Tダイ1のリップ2から溶融樹脂膜Pとして紙／ポリエチレンの積層体Bのポリエ

チレン表面に押出される。その後チルロール3及びプレッシャーロール4の間でニップされて、本発明の積層体が製造される。尚、エアギャップは、Tダイのリップ2から紙／ポリエチレンの積層体Bのポリエチレン表面までの距離Lで表わされている。

[0030] 本発明においては、上述したように紙／ポリエチレンの積層体Bのポリエチレン表面にポリエチレンテレフタレート溶融樹脂膜Pが押出された後、チルロール3とプレッシャーロール4でニップするが、この際チルロールでPET層を急冷することにより、ポリエチレンテレフタレートの結晶化を抑制しておくことが望ましい。これにより、ポリエチレンテレフタレート層のヒートシール性を確保することが可能となる。チルロールの表面温度は概ね10ないし50℃の範囲にあることが好適である。

[0031] また溶融樹脂膜の押出圧力を一定に保持することも重要であり、図示していないが、押出機とダイとの間にギアポンプを設けることも望ましい。

ポリエチレンテレフタレートを押出するためのダイとしては、樹脂の押出ラミネートに一般に使用されているダイを用いることができ、ダイリップの開口幅が0.4ないし1.4mm、ダイの幅が90ないし180cmの範囲にあることが好ましい。

更に本発明条件においては、50ないし100m/minのライン速度でラミネートすることが、均一な膜厚やポリエチレンテレフタレート層の接着性の点から好適である。

[0032] (ヒートシール性)

本発明により得られる紙／ポリエチレン／ポリエチレンテレフタレート積層体については、ポリエチレンテレフタレート層がヒートシール性を有するので、当該ポリエチレンテレフタレート面同士をヒートシールすることで積層体同士を接着させることができる。

[0033] (容器)

本発明の積層体においては、ポリエチレンテレフタレート層同士を重ね合せ、この重ね合わせた部分をヒートシールする等により、カップ型、トレイ

型、パウチ型等従来公知の形状の容器に成形することができる。

実施例

[0034] 以下に本発明の実施例を挙げて説明する。尚、本発明は実施例の範囲に限定されるものではない。

(実施例 1)

(1) 紙に対するポリエチレンのラミネート

カップ原紙（坪量 320 g/m²）に対して常法により低密度ポリエチレン（密度：0.918、融点 108℃、宇部興産株式会社製の UBE ポリエチレン C410）を押出しラミネートし、カップ原紙の両面にポリエチレン層を形成させた。ポリエチレンのコーティング厚みは 40 μm 及び 60 μm とした。

[0035] (2) 紙／PE に対するポリエチレンテレフタレーートのラミネート

上記、紙／ポリエチレン積層体のポリエチレンコーティング厚み 40 μm の面に対しコロナ放電処理を施し、以下の条件でポリエチレンテレフタレーートを押出しラミネートした。

リップの開口巾を 0.8 mm に調整したダイ（幅約 110 cm）からエアギャップ（Tダイのリップ開口部からポリエチレンラミネート紙製積層体までの距離）が 10 cm、押出圧力 4.0 MPa に設定し、前記ダイから押出温度 315℃ としたホモポリエチレンテレフタレーートを、紙／ポリエチレン積層体のポリエチレン層（40 μm）面にコロナ放電処理を行いながら押出しラミネートを行った。

[0036] 尚、実施例 1～14 及び比較例 1～5 に用いたポリエチレンテレフタレーートは、ホモポリエチレンテレフタレーートであり、固有粘度 0.83 dL/g、融点 250℃ の樹脂（三菱化学株式会社製の NOVAPLEX BK6180）を用いた。

ポリエチレンテレフタレーートのコーティング厚みは 30 μm、コーティングライン速度は 63 m/min で行った。紙／ポリエチレン積層体へのコーティングと同時にチルロール（表面温度：35℃）とニップ（ゴム）ロール

の間を通して、紙／ポリエチレン／ポリエチレンテレフタレート積層体を完成させた。これらの工程について押出しラミネートの状態について評価した。さらに、押し出しの条件等を検討するため、エアギャップ、押出温度、押出圧力を以下のように変えて実験を行った。

[0037] (実施例 2～5、比較例 1)

エアギャップを表 1 に示す距離としたこと以外は実施例 1 と同様に行った。押出しラミネートの状態について評価した。結果を表 1 に示す。

[0038] (実施例 6)

エアギャップを 15 cm としたこと、及びホモポリエチレンテレフタレートの押出温度を 280℃ とすること以外は実施例 1 と同様に行った。押出しラミネートの状態について評価した。結果を表 2 に示す。

[0039] (実施例 7～9、比較例 2～3)

ポリエチレンテレフタレートの押出温度を表 2 に示す温度としたこと以外は実施例 6 と同様に行った。押出しラミネートの状態について評価した。結果を表 2 に示す。

[0040] (実施例 10)

エアギャップを 15 cm としたこと、及び押出圧力を 3.5 MPa としたこと以外は実施例 1 と同様に行った。押出しラミネートの状態について評価した。結果を表 3 に示す。

[0041] (実施例 11～15、比較例 4)

押出圧力を表 3 に示す圧力としたこと以外は実施例 10 と同様に行った。押出しラミネートの状態について評価した。結果を表 3 に示す。

[0042] (評価方法)

1. ラミネート膜の耳揺れ幅

○…耳揺れ幅 2 mm 以内

△…耳揺れ幅 4 mm 未満

×…耳揺れ幅 4 mm 以上

耳揺れ幅 4 mm 未満が実用可能

[0043] 2. 膜厚の均一性

- …PET層の膜厚の変動幅が目標膜厚の±15%以内
 - △…PET層の膜厚の変動幅が目標膜厚の±20%未満
 - ×…PET層の膜厚の変動幅が目標膜厚の±20%以上
- 変動幅が±20%未満のものが実用可能

[0044] 3. 接着性

- …PET層とポリエチレン層の間に十分な接着性がある
 - △…PET層とポリエチレン層の間に接着性がある
 - ×…PET層とポリエチレン層の間にやや剥がれる場合がある
- PET層とポリエチレン層の間に剥がれないものが実用可能

[0045] 4. ヒートシール性

実施例1～15及び比較例1～2で得られた各積層体について、ポリエチレンテレフタレートをラミネートした面同士を重ね合わせ、インパルスシーラーにより、160℃、170℃、190℃、220℃の各ヒートシール温度に調節された熱板を2秒間、圧力2kg/cm²で保持することにより、ヒートシールを行った。

次いで、ヒートシールを行った積層体のヒートシール面を引き剥がし、紙製基材との破

壊状態を観察した。評価基準は下記の通りである。

- ◎…紙製基材面での破壊が溶着面積の90%以上
- …紙製基材面での破壊が溶着面積の60%以上90%未満
- △…紙製基材面での破壊が溶着面積の30%以上60%未満
- ×…紙製基材面での破壊が溶着面積の30%未満

結果を表5に示す。

[0046]

[表1]

	エアギャップ (cm)	ラミネート膜 の耳揺れ幅	膜厚の 均一性	接着性
実施例 2	5	○	△	○
実施例 1	10	○	○	○
実施例 3	15	○	○	○
実施例 4	20	○	○	○
実施例 5	25	△	△	△
比較例 1	30	×	×	×

(押出温度 ; 315℃、 押出圧力 ; 4.0MPa)

[0047] [表2]

	押出温度 (℃)	ラミネート膜 の耳揺れ幅	膜厚の 均一性	接着性
比較例 2	270	△	△	×
実施例 6	280	○	○	△
実施例 7	290	○	○	○
実施例 8	300	○	○	○
実施例 9	315	○	○	○
比較例 3	325	△	△	○

(エアギャップ ; 15 c m、 押出圧力 ; 4.0MPa)

[0048]

[表3]

	圧力 (MPa)	ラミネート膜 の耳揺れ幅	膜厚の 均一性	接着性
実施例 1 0	3.5	○	○	○
実施例 1 1	4.0	○	○	○
実施例 1 2	4.5	○	○	○
実施例 1 3	5.0	○	○	○
実施例 1 4	5.5	○	○	○
実施例 1 5	6.0	△	△	○
比較例 4	6.5	△	△	△

(エアギャップ ; 15 c m、押出温度 ; 315℃)

[0049] [表4]

	圧力	ラミネート膜の耳揺れ 幅	膜圧の均一性	接着性
実施例 1 6	4. 0	○	○	○
実施例 1 7	4. 0	○	○	○
実施例 1 8	4. 0	○	○	○
実施例 1 9	4. 0	○	○	○

(エアギャップ ; 1 5 c m、押出温度 ; 3 1 5℃)

[0050]

[表5]

	PET面／PET面			
	160℃	170℃	190℃	220℃
実施例 1	◎	◎	◎	◎
実施例 2	◎	◎	◎	◎
実施例 3	◎	◎	◎	◎
実施例 4	◎	◎	◎	◎
実施例 5	△	○	◎	◎
実施例 6	○	○	◎	◎
実施例 7	◎	◎	◎	◎
実施例 8	◎	◎	◎	◎
実施例 9	◎	◎	◎	◎
実施例 10	◎	◎	◎	◎
実施例 11	◎	◎	◎	◎
実施例 12	◎	◎	◎	◎
実施例 13	◎	◎	◎	◎
実施例 14	◎	◎	◎	◎
比較例 1	×	×	△	○
比較例 2	△	△	○	◎

[0051] 上記表5に示したように、実施例のいずれにおいてもポリエチレンテレフタレート面同士をヒートシールした場合、良好な接着性を示した。

[0052] (実施例16～19)

ポリエチレンテレフタレート樹脂として、固有粘度0.88 dL/g及び融点250℃のホモポリエチレンテレフタレート（ユニチカ株式会社製NEH-2070）（実施例16）、固有粘度0.80 dL/g及び融点236℃のホモポリエチレンテレフタレート（SKケミカル株式会社製BR8040）（実施例17）、固有粘度0.76 dL/g及び融点252℃のホモポリエチレンテレフタレート（帝人化成株式会社製TRN-8550FF）（実施例18）、及び固有粘度0.72 dL/g及び融点251℃のホモポリエチレンテレフタレート（ユニチカ株式会社製NES-2040）（実施例19）を、それぞれ用いた。

また、押出し条件としては、全て実施例 1 と同様の条件で積層体を製作し、実施例 1 と同様にしてヒートシール性の評価を行った。結果を表 6 に示す。

[0053] [表6]

	PET 面／PET 面			
	160℃	170℃	190℃	220℃
実施例 1 6	◎	◎	◎	◎
実施例 1 7	◎	◎	◎	◎
実施例 1 8	◎	◎	◎	◎
実施例 1 9	◎	◎	◎	◎

[0054] 実施例 1 6 ～ 1 9 のいずれの実施例においてもポリエチレンテレフタレート面同士をヒートシールした場合、良好な接着性を示した。

産業上の利用可能性

[0055] 本発明のヒートシール性積層体は、水蒸気バリア性及びガスバリア性に優れ、ポリエチレンテレフタレート層がヒートシール性を有しているため、長期保存性及び保香性等に優れており、食品包装用材料として好適に使用できる。

また本発明の積層体の製造方法においては、アンカーコート剤及び接着剤を用いることなく紙／ポリエチレン／ポリエチレンテレフタレートの三層積層体を安価に提供することができるため、汎用包装材料の製造に好適に利用できる。

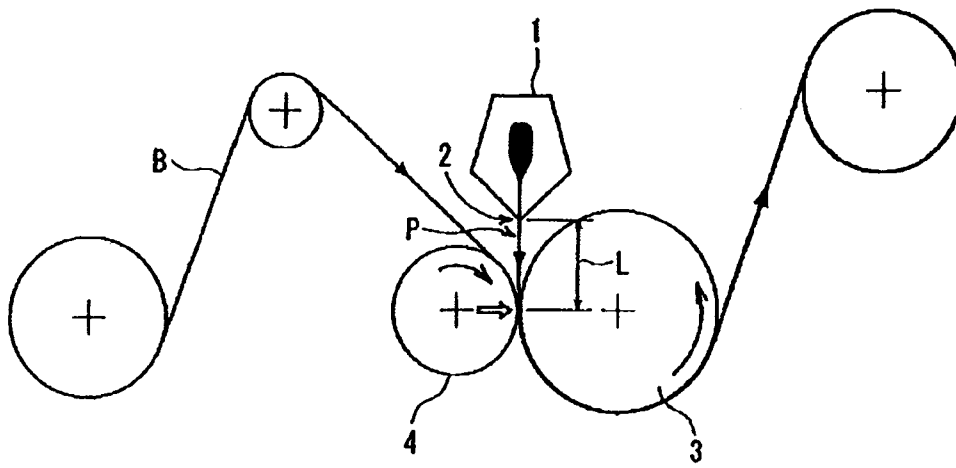
符号の説明

[0056] 1 ダイ、2 リップ、3 チルロール、4 プレッシャーロール

請求の範囲

- [請求項1] 紙製基材の少なくとも一方の面に、ポリエチレンが被膜されており、当該ポリエチレン被膜に対してポリエチレンテレフタレートが直接に被膜されていることを特徴とするヒートシール性積層体。
- [請求項2] 前記ポリエチレンテレフタレートがホモポリエチレンテレフタレートである請求項1に記載のヒートシール性積層体。
- [請求項3] 前記ポリエチレンテレフタレートからなる被膜が、押出しラミネート法により施されたものである請求項1に記載のヒートシール性積層体。
- [請求項4] 前記ポリエチレンテレフタレートの固有粘度が0.72ないし0.88 dL/gの範囲にある請求項1に記載のヒートシール性積層体。
- [請求項5] 前記ポリエチレンテレフタレートからなる被膜が10ないし60 μ mの厚みを有する請求項1に記載のヒートシール性積層体。
- [請求項6] 請求項1に記載のヒートシール性積層体のポリエチレンテレフタレート被膜同士を重ね合わせ、ヒートシールすることにより成形される容器。
- [請求項7] 紙製基材の少なくとも一方の面にポリエチレンが被膜され、該ポリエチレン被膜に押出しラミネート法によりポリエチレンテレフタレートを被膜する紙製積層体の製造方法において、ダイのリップ開口部からポリエチレンの面までの距離で表されるエアギャップが25 cm以下であることを特徴とするヒートシール性積層体の製造方法。
- [請求項8] 前記押出しラミネート法において、溶融押し時のポリエチレンテレフタレートの押し出し温度が、ポリエチレンテレフタレートの融点 (T_m) を基準として、 $T_m + 25^{\circ}\text{C}$ 以上、 $T_m + 70^{\circ}\text{C}$ 未満の範囲にあり、押し出し圧力が3.5ないし6.5 MPaの範囲内である請求項7記載の積層体の製造方法。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/053166

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B32B27/10(2006.01)i, B29C47/02(2006.01)i, B29C47/92(2006.01)i, B32B27/32(2006.01)i, B32B27/36(2006.01)i, B65D65/40(2006.01)i, B29K67/00(2006.01)n, B29L9/00(2006.01)n

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

B32B1/00-43/00, B29C47/00-47/96, B65D65/00-65/46, B29K67/00, B29L9/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 62-290534 A (International Paper Co.), 17 December 1987 (17.12.1987), claims; page 3, upper left column, line 1 to the last line; page 6, lower left column, line 8 to lower right column, 5th line from the bottom; fig. 7 to 10 & US 4698246 A claims 1 to 22; column 1, lines 7 to 15; column 5, lines 33 to 58; fig. 7 to 10	1, 3-6 2, 7, 8
A	JP 2004-160763 A (Toppan Printing Co., Ltd.), 10 June 2004 (10.06.2004), claims 1, 2; paragraphs [0001], [0011]; examples (Family: none)	1-8



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
17 April, 2012 (17.04.12)

Date of mailing of the international search report
24 April, 2012 (24.04.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/053166

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2005-289472 A (Lining Container Kabushiki Kaisha), 20 October 2005 (20.10.2005), claim 1; paragraph [0001]; examples (Family: none)	1-8

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. B32B27/10(2006.01)i, B29C47/02(2006.01)i, B29C47/92(2006.01)i, B32B27/32(2006.01)i,
B32B27/36(2006.01)i, B65D65/40(2006.01)i, B29K67/00(2006.01)n, B29L9/00(2006.01)n

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. B32B1/00-43/00, B29C47/00-47/96, B65D65/00-65/46, B29K67/00, B29L9/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 2 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 2 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 2 年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 62-290534 A (インターナショナル ペーパー コンパニー) 1987.12.17,	1, 3-6
A	特許請求の範囲、第3頁左上欄第1行-末行、 第6頁左下欄第8行-右下欄下から第5行、第7図-第10図 & US 4698246 A, Claims 1-22, Column 1 line 7-15, Column 5 line 33-58, FIG 7-10	2, 7, 8

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

1 7 . 0 4 . 2 0 1 2

国際調査報告の発送日

2 4 . 0 4 . 2 0 1 2

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

長谷川 大輔

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 7 4

4 S

4 7 7 3

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2004-160763 A (凸版印刷株式会社) 2004. 06. 10, 【請求項 1】、【請求項 2】、【0 0 0 1】、【0 0 1 1】、【実施例】 (ファミリーなし)	1 - 8
A	JP 2005-289472 A (ライニングコンテナ株式会社) 2005. 10. 20, 【請求項 1】、【0 0 0 1】、【実施例】 (ファミリーなし)	1 - 8