

(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2019-199568

(P2019-199568A)

(43) 公開日 令和1年11月21日(2019.11.21)

(51) Int. Cl.		F I		テーマコード (参考)
C O 8 L 23/04 (2006.01)		C O 8 L 23/04		4 F 1 0 0
B 3 2 B 27/32 (2006.01)		B 3 2 B 27/32	Z	4 J 0 0 2
C O 8 L 45/00 (2006.01)		C O 8 L 45/00		
C O 8 L 65/00 (2006.01)		C O 8 L 65/00		

審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 15 頁)

(21) 出願番号	特願2018-96065 (P2018-96065)	(71) 出願人	000206185
(22) 出願日	平成30年5月18日 (2018. 5. 18)		大成化工株式会社
			大阪府大阪市北区豊崎6丁目8番1号
		(74) 代理人	110001070
			特許業務法人 S S I N P A T
		(72) 発明者	白石 保行
			大阪府茨木市藤の里2丁目11番6号 大
			成化工株式会社内
		(72) 発明者	岩橋 一也
			大阪府茨木市藤の里2丁目11番6号 大
			成化工株式会社内
		(72) 発明者	早野 信吾
			大阪府茨木市藤の里2丁目11番6号 大
			成化工株式会社内
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 バイオマスプラスチックシートおよびP T Pシート

(57) 【要約】

【課題】透明性およびブリスター成形性に優れるバイオマスプラスチックシートを提供すること。

【解決手段】環状オレフィン系樹脂、高密度ポリエチレンおよび低密度ポリエチレンを含む層Aを有するバイオマスプラスチックシートであって、該シート全体におけるバイオマス由来の樹脂の量が25重量%以上である、バイオマスプラスチックシート。

【選択図】なし

【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

環状オレフィン系樹脂、高密度ポリエチレンおよび低密度ポリエチレンを含む層 A を有するバイオマスプラスチックシートであって、

該シート全体におけるバイオマス由来の樹脂の量が 25 重量%以上である、バイオマスプラスチックシート。

【請求項 2】

第 1 層、第 2 層および第 3 層をこの順で有し、該第 2 層が前記層 A である、請求項 1 に記載のバイオマスプラスチックシート。

【請求項 3】

共押出し法で形成された積層シートである、請求項 2 に記載のバイオマスプラスチックシート。

【請求項 4】

前記層 A 中の環状オレフィン系樹脂の含有量が、前記環状オレフィン系樹脂、高密度ポリエチレンおよび低密度ポリエチレンの合計 100 重量%に対し、1～75 重量%である、請求項 1～3 のいずれか 1 項に記載のバイオマスプラスチックシート。

【請求項 5】

前記層 A 中の高密度ポリエチレンの含有量が、前記環状オレフィン系樹脂、高密度ポリエチレンおよび低密度ポリエチレンの合計 100 重量%に対し、1～98 重量%である、請求項 1～4 のいずれか 1 項に記載のバイオマスプラスチックシート。

【請求項 6】

前記層 A 中の低密度ポリエチレンの含有量が、前記環状オレフィン系樹脂、高密度ポリエチレンおよび低密度ポリエチレンの合計 100 重量%に対し、1～98 重量%である、請求項 1～5 のいずれか 1 項に記載のバイオマスプラスチックシート。

【請求項 7】

前記バイオマスプラスチックシートが表層を有し、

該表層がプロピレン系樹脂を含む、請求項 1～6 のいずれか 1 項に記載のバイオマスプラスチックシート。

【請求項 8】

前記バイオマスプラスチックシートが表層を有し、

該表層が直鎖状低密度ポリエチレンを含む、請求項 1～7 のいずれか 1 項に記載のバイオマスプラスチックシート。

【請求項 9】

請求項 1～8 のいずれか 1 項に記載のバイオマスプラスチックシートを含む PTP シート。

【発明の詳細な説明】**【技術分野】****【0001】**

本発明は、バイオマスプラスチックシートおよび PTP シートに関する。

【背景技術】**【0002】**

医薬品、食料品、飲料水等の被包装物を包装する包装体は、水蒸気バリア性、ガスバリア性などの内容物保存性、透明性などの意匠性、内容物の取出し性などの操作性等の特性を有することが要求されている。こうした要求に応えるため、ポリ塩化ビニル（PVC）やポリプロピレン（PP）からなる単層シートや、ポリエチレン（PE）の両面に PVC 層や PP 層をドライラミネート法や熱ラミネート法等により積層した包装体が用いられてきた。

【0003】

しかしながら、PVC または PP の単層シートで形成した包装体は、水蒸気バリア性に劣るという問題があった。また、PE と PVC または PP との積層体は、水蒸気バリア性

10

20

30

40

50

については解決することができたものの、ブリスターパックの成形性や得られたブリスターパックの分割容易性については問題があった。さらに、P E層とP P層とを融着によって層間接着し積層することは困難であり、実用に供し得ないという問題があった。

【0004】

前記従来の包装体は、化石資源由来の材料から構成されているが、化石資源の使用量の低減を目指して、植物由来のバイオマスプラスチックを用いた包装体の開発が近年盛んになってきている。

このようなバイオマスプラスチックを用いた包装体として、特許文献1には、高密度ポリエチレン(HDPE)、バイオマスHDPEおよび環状オレフィン系樹脂を含有する中心層を有するバイオマスプラスチックシートが記載されている。

10

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献1】特開2014-226829号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

前記特許文献1に記載のバイオマスプラスチックシートは、水蒸気バリア性には優れるものの、透明性の点および該シートからPTP (press through pack) シートを形成する際の成形性(以下「ブリスター成形性」ともいう。)の点で、改良の余地があった。

20

【0007】

本発明は、前記問題に鑑みてなされたものであり、透明性およびブリスター成形性に優れるバイオマスプラスチックシートを提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明者らは前記課題を解決するため鋭意研究を行った結果、特定のバイオマスプラスチックシートによれば、前記課題を解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。

本発明の構成例は以下のとおりである。

【0009】

30

[1] 環状オレフィン系樹脂、高密度ポリエチレンおよび低密度ポリエチレンを含む層Aを有するバイオマスプラスチックシートであって、

該シート全体におけるバイオマス由来の樹脂の量が25重量%以上である、バイオマスプラスチックシート。

【0010】

[2] 第1層、第2層および第3層をこの順で有し、該第2層が前記層Aである、[1]に記載のバイオマスプラスチックシート。

[3] 共押出し法で形成された積層シートである、[2]に記載のバイオマスプラスチックシート。

【0011】

40

[4] 前記層A中の環状オレフィン系樹脂の含有量が、前記環状オレフィン系樹脂、高密度ポリエチレンおよび低密度ポリエチレンの合計100重量%に対し、1~75重量%である、[1]~[3]のいずれかに記載のバイオマスプラスチックシート。

[5] 前記層A中の高密度ポリエチレンの含有量が、前記環状オレフィン系樹脂、高密度ポリエチレンおよび低密度ポリエチレンの合計100重量%に対し、1~98重量%である、[1]~[4]のいずれかに記載のバイオマスプラスチックシート。

[6] 前記層A中の低密度ポリエチレンの含有量が、前記環状オレフィン系樹脂、高密度ポリエチレンおよび低密度ポリエチレンの合計100重量%に対し、1~98重量%である、[1]~[5]のいずれかに記載のバイオマスプラスチックシート。

【0012】

50

〔 7 〕 前記バイオマスプラスチックシートが表層を有し、
該表層がプロピレン系樹脂を含む、〔 1 〕 ～ 〔 6 〕 のいずれかに記載のバイオマスプラスチックシート。

〔 8 〕 前記バイオマスプラスチックシートが表層を有し、
該表層が直鎖状低密度ポリエチレンを含む、〔 1 〕 ～ 〔 7 〕 のいずれかに記載のバイオマスプラスチックシート。

【 0 0 1 3 】

〔 9 〕 〔 1 〕 ～ 〔 8 〕 のいずれかに記載のバイオマスプラスチックシートを含む P T P シート。

【 発 明 の 効 果 】

10

【 0 0 1 4 】

本発明によれば、透明性およびブリスター成形性に優れるバイオマスプラスチックシートを容易に得ることができる。

また、本発明によれば、水蒸気バリア性や被包装物の保存性にも優れるバイオマスプラスチックシートを容易に得ることができる。

【 発 明 を 実 施 す る た め の 形 態 】

【 0 0 1 5 】

《 バイオマスプラスチックシート 》

本発明に係るバイオマスプラスチックシート（以下「本シート」ともいう。）は、環状オレフィン系樹脂、高密度ポリエチレンおよび低密度ポリエチレンを含む層 A を有するバイオマスプラスチックシートであって、

20

該シート全体におけるバイオマス由来の樹脂の量が 2 5 重量 % 以上である。

本シートは、前記層 A を有するため、バイオマス由来の樹脂の量が 2 5 重量 % 以上であっても、透明性およびブリスター成形性に優れ、さらに、水蒸気バリア性や被包装物の保存性にも優れる。

また、本シートは、従来に比べて化石資源の使用量を大幅に削減することができ、大気中の二酸化炭素濃度の上昇の抑制に寄与し、環境負荷を減らすことに寄与する。

【 0 0 1 6 】

本シートの用途は特に制限されないが、医薬品、食料品、飲料水等の被包装物を包装する包装シートなどが挙げられ、より好適には、医薬品を包装する P T P シートに用いられる。

30

【 0 0 1 7 】

＜ 環状オレフィン系樹脂 ＞

前記層 A に含まれる環状オレフィン系樹脂は、環状オレフィンに由来する構造単位を含む（共）重合体であれば特に制限されない。

前記層 A が環状オレフィン系樹脂を含むことで、水蒸気バリア性、ブリスター成形性、透明性および平滑性等に優れるシートを容易に得ることができ、さらに、環状オレフィン系樹脂を含む本シートを用いることで、分割容易性（P T P シート使用評価）に優れる P T P シートを得ることもできる。

前記層 A に含まれる環状オレフィン系樹脂は、1 種でもよく、2 種以上でもよい。

40

【 0 0 1 8 】

環状オレフィン系樹脂としては、環状オレフィンの開環（共）重合体、環状オレフィンの付加（共）重合体、これら（共）重合体の水素添加物、前記（共）重合体またはその水素添加物を不飽和カルボン酸やその誘導体等で変性したグラフト変性体等が挙げられる。

これらの中でも、環状オレフィンと、該オレフィンと共重合可能なモノマー、特にエチレンやプロピレンなどの α -オレフィンとの共重合体が好ましい。

【 0 0 1 9 】

前記環状オレフィンとしては特に限定されず、例えば、ノルボルネン、6-メチルノルボルネン、6-エチルノルボルネン、5-プロピルノルボルネン、6-n-ブチルノルボルネン、1-メチルノルボルネン、7-メチルノルボルネン、5, 6-ジメチルノルボル

50

ネン、5-フェニルノルボルネン、5-ベンジルノルボルネンなどのノルボルネン系化合物；8-メチルテトラシクロ-3-ドデセン、8-エチルテトラシクロ-3-ドデセン、5,10-ジメチルテトラシクロ-3-ドデセンなどのテトラシクロドデセン系化合物；シクロブテン、シクロペンテン、シクロヘキセン、3,4-ジメチルシクロペンテン、3-メチルシクロヘキセン、2-(2-メチルブチル)-1-シクロヘキセン、シクロオクテン、3a,5,6,7a-テトラヒドロ-4,7-メタノ-1H-インデンなどのシクロアルケン系化合物；等の特開2005-263287号公報に記載の化合物が挙げられる。

【0020】

前記環状オレフィンと共重合可能なモノマーとしては、例えば、エチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、3-エチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ヘキセン、4,4-ジメチル-1-ヘキセン、4,4-ジメチル-1-ペンテン、4-エチル-1-ヘキセン、3-エチル-1-ヘキセン、1-オクテン、1-デセン、1-ドデセン、1-テトラデセン、1-ヘキサデセン、1-オクタデセン、1-エイコセンなどの炭素数2~20の α -オレフィン；1,4-ヘキサジエン、4-メチル-1,4-ヘキサジエン、5-メチル-1,4-ヘキサジエン、1,7-オクタジエンなどの非共役ジエン；が挙げられる。

【0021】

環状オレフィン系樹脂としては、例えば、特開昭60-168708号公報、特開昭61-115916号公報、特開昭61-271308号公報、特開平3-14882号公報、特開平3-122137号公報、特開2005-263287号公報に記載されている公知の樹脂や公知の方法などに準じて製造される樹脂を挙げることができる。

【0022】

環状オレフィン系樹脂としては、市販品を用いてもよく、該市販品としては、「ZEONOR」シリーズ（日本ゼオン（株）製）、「アベル」シリーズ（三井化学（株）製）、「TOPAS」シリーズ（ポリプラスチックス（株）製）等が挙げられる。

【0023】

環状オレフィン系樹脂のISO 1133（190℃、2.16kg）に従い測定されるメルトボリュームレート（MVR）は、本シートを層Aと他の層との積層体とする場合、他の層の流動性等を考慮して適宜選択すればよいが、好ましくは0.5~5cm³/10分、より好ましくは1~3cm³/10分である。

【0024】

前記層A中の環状オレフィン系樹脂の含有量は、水蒸気バリア性、ブリスター成形性、透明性および平滑性により優れるシートを容易に得ることができる等の点から、環状オレフィン系樹脂、高密度ポリエチレンおよび低密度ポリエチレンの合計100重量%に対し、好ましくは1~75重量%、より好ましくは3~60重量%、さらに好ましくは5~40重量%、特に好ましくは10~30重量%である。

【0025】

<高密度ポリエチレン>

前記層Aは、高密度ポリエチレン（以下「HDPE」ともいう。）を含むため、強度、透明性、水蒸気バリア性および内容物の取り出し容易性等に優れるシートを得ることができる。

前記層Aに含まれるHDPEは、1種でもよく、2種以上でもよい。

【0026】

HDPEのJIS K 7112に従い測定される密度は、0.942g/cm³以上であり、高い水蒸気バリア性を有するシートを容易に得ることができる等の点から、好ましくは0.945~0.970g/cm³であり、より好ましくは0.95~0.967g/cm³である。

【0027】

H D P E の J I S K 7 2 1 0 に従い測定される M F R は、ブリスター成形にて良好なポケット成形性を有するシートを容易に得ることができる等の点から、好ましくは 0.1 ~ 1.0 g / 10 分、より好ましくは 0.5 ~ 6 g / 10 分である。

【0028】

H D P E としては、エチレンの単独重合体のみならず、エチレンとプロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、4-メチル-1-ペンテン、1-オクテンなどの α -オレフィンとの共重合体であってもよい。

H D P E は、従来公知の方法で合成することで得ることができる。また、H D P E としては、市販品を用いてもよい。

【0029】

H D P E は、大気中の C O ₂ 量の増加を抑制し、かつ、石油資源の節約にもつながる等の点から、バイオマス由来の H D P E であってもよい。

【0030】

前記バイオマスとしては特に制限されないが、サトウキビ（バガスを含む）、とうもろこし、デンプン、ひまし油、畳（使用済みの廃畳）の破碎物、木材チップ、木粉、おが屑、紙屑、草本ソルガム、甜菜の絞りかす、稲わら等の草本質、針葉樹材料、広葉樹材料、非樹木系材料、これら材料の廃棄物等が挙げられる。

【0031】

前記バイオマス由来の H D P E としては、バイオマス由来のエチレンを原料として得られる H D P E であれば特に制限されないが、具体的には、植物を発酵させて得られたアルコールを原料として合成したエチレンを用いた植物由来の H D P E が挙げられる。

より具体的には、従来公知の方法で、前記バイオマスから得られる糖液やデンプンを、酵母等の微生物により発酵させてバイオエタノールを製造し、これを触媒存在下で加熱し、分子内脱水反応等させることで得られたエチレンおよび必要により α -オレフィン（例：1-ブテン、1-ヘキセン）等を共重合モノマーとして用い、化石燃料由来の H D P E の合成と同様に、慣用の触媒の存在下で（共）重合させることにより得られる、H D P E が挙げられる。

前記共重合モノマーとしては、バイオマス由来の α -オレフィンの他に、従来の高密度ポリエチレンの合成において一般に用いられる化石燃料由来のコモノマーを用いてもよい。

【0032】

また、前記バイオマス由来の H D P E としては、市販品を用いてもよい。

【0033】

前記層 A 中の H D P E の含有量は、強度、透明性、水蒸気バリア性および内容物の取り出し容易性等により優れるシートを容易に得ることができる等の点から、環状オレフィン系樹脂、高密度ポリエチレンおよび低密度ポリエチレンの合計 100 重量%に対し、好ましくは 1 ~ 98 重量%、より好ましくは 5 ~ 90 重量%、さらに好ましくは 10 ~ 80 重量%、特に好ましくは 30 ~ 75 重量%である。

【0034】

<低密度ポリエチレン>

前記層 A は、低密度ポリエチレン（以下「L D P E」ともいう。）を含むため、透明性およびブリスター成形性に優れるシートを得ることができる。

前記層 A に含まれる L D P E は、1 種でもよく、2 種以上でもよい。

【0035】

L D P E の A S T M D 1505 に従い測定される密度は、透明性により優れるシートを容易に得ることができる等の点から、好ましくは 0.910 ~ 0.930 g / c m ³ であり、より好ましくは 0.915 ~ 0.924 g / c m ³ である。

【0036】

L D P E の A S T M D 1238 に従い測定される M F R は、ブリスター成形にて良好なポケット成形性を有するシートを容易に得ることができる等の点から、好ましくは 0

10

20

30

40

50

． 1 ～ 1 0 g / 1 0 分、より好ましくは 0 . 5 ～ 6 g / 1 0 分である。

【 0 0 3 7 】

L D P E としては、市販品を用いてもよく、従来公知の方法で合成して得てもよい。

【 0 0 3 8 】

L D P E は、エチレンの単独重合体であってもよいし、エチレンを主成分とし、 α -オレフィンを副成分として、メタロセン触媒等の存在下に重合することにより得られる低密度ポリエチレンであってもよい。 α -オレフィンとしては、炭素数 3 ～ 4 0、好ましくは 4 ～ 3 5、より好ましくは 4 ～ 3 0 の α -オレフィンの 1 種または 2 種以上が使用され、例えば、炭素数 3 ～ 8 の α -オレフィンと炭素数 1 0 ～ 2 6 の α -オレフィンとを併用することができる。低密度ポリエチレンが共重合体である場合、 α -オレフィンの含有量は、共重合体に対し、好ましくは 3 ～ 1 5 モル % である。

10

【 0 0 3 9 】

L D P E は、大気中の CO_2 量の増加を抑制し、かつ、石油資源の節約にもつながる等の点から、バイオマス由来の L D P E であってもよい。

バイオマス由来の L D P E は、前記 H D P E の欄で挙げたバイオマス由来の原料を用い、従来公知の L D P E を合成する方法に従って合成することができる。

また、バイオマス由来の L D P E としては、市販品を用いてもよい。

【 0 0 4 0 】

前記層 A 中の L D P E の含有量は、水蒸気バリア性や被包装物の保存性にも優れながらも、透明性およびブリスター成形性により優れるシートを容易に得ることができる等の点から、環状オレフィン系樹脂、高密度ポリエチレンおよび低密度ポリエチレンの合計 1 0 0 重量 % に対し、好ましくは 1 ～ 9 8 重量 %、より好ましくは 5 ～ 9 0 重量 %、さらに好ましくは 1 0 ～ 8 0 重量 %、特に好ましくは 1 5 ～ 6 0 重量 %、さらに好ましくは 3 0 ～ 6 0 重量 % である。

20

【 0 0 4 1 】

< 他の成分 >

前記層 A は、本シートを、医薬品、食料品、飲料水等の被包装物を包装する包装体として用いることを考慮すると、前記環状オレフィン系樹脂、H D P E および L D P E からなる層であることが好ましいが、必要に応じて、前記環状オレフィン系樹脂、H D P E および L D P E 以外の他の成分を、本発明の効果を損なわない範囲で含んでいてもよい。

30

【 0 0 4 2 】

前記他の成分としては、着色剤、各種フィラー、熱安定剤、中和剤、紫外線吸収剤、光安定剤、帯電防止剤、滑剤、造核剤等が挙げられる。

【 0 0 4 3 】

着色顔料としてはアゾ系顔料、キナクリドン、イソインドリン、アントラキノン、イミダゾロン、コバルト、フタロシアニン、カーボン、酸化チタン、酸化鉄、雲母等のパール顔料などが挙げられる。フィラーとしてはタルク、炭酸カルシウム、シリカ、アルミナ、カーボンブラック、酸化亜鉛、ゼオライト、ハイドロタルサイト、ガラス繊維、紙粉、木粉等が挙げられる。熱安定剤としてはヒンダードフェノール系、硫黄系、リン系化合物等が挙げられる。中和剤としてはステアリン酸金属塩、ハイドロタルサイト等が挙げられる。紫外線吸収剤としてはベンゾトリアゾール系、ベンゾエート系、ベンゾフェノン系、ベンゾトリアジン系化合物等が挙げられる。光安定剤としてはヒンダードアミン系化合物等が挙げられる。滑剤としては炭化水素系、脂肪酸、脂肪酸アמיד系、金属石鹸系、エステル系、フッ素系化合物等が挙げられる。造核剤としてはソルビトール系化合物等が挙げられる。

40

【 0 0 4 4 】

< 層 A の製造方法 >

前記層 A は、例えば、前記環状オレフィン系樹脂、H D P E、L D P E および必要に応じて他の成分を（ドライ）ブレンドし、溶融成形法など公知の手法によってシート状に成形することで製造することができる。

50

【0045】

＜バイオマスプラスチックシートの構造等＞

本シートは、前記層Aを含めば特に制限されず、層Aの単層からなるシートであってもよいが、医薬品、食料品、飲料水等の被包装物を包装する包装体としてより好適に用いられる点、本シートを製造する際の成形性や本シートからPTPシートを製造する際のブリスター成形性により優れる等の点から、第1層、第2層および第3層をこの順で有し、該第2層が前記層Aである積層シートであることが好ましく、第1層、第2層および第3層からなる積層シートであることがより好ましい。この3層からなる積層シートの場合、第1層および／または第3層が本シートの表層となる。つまり、本発明では、本シートにおける最外層の少なくとも一方を表層という。

10

また、必要に応じて、前記積層シートの片面または両面に、酸素バリア層などのガスバリア層、ガス吸収層、防湿層、遮光層、ブリードアウト防止層などの層が積層された多層型シートとしてもよい。

【0046】

＜第2層＞

前記第2層は前記層Aである。

前記層Aを積層シートの第2層として用いることで、水蒸気バリア性や被包装物の保存性、透明性およびブリスター成形性にバランスよく優れ、医薬品、食料品、飲料水等の被包装物を包装する包装体として好適に用いられるバイオマスプラスチックシートを容易に得ることができる。

20

【0047】

該第2層の厚みは、本シートの用途に応じて適宜選択すればよいが、層Aの効果がより発揮される等の点から、好ましくは50～480 μm 、より好ましくは100～350 μm である。

また、第1層、第2層および第3層からなる積層シート中の第2層の厚みの割合は、好ましくは50～90%、より好ましくは60～80%である。

【0048】

＜第1層および第3層＞

前記第1層および第3層は、本シートの用途に応じて適宜選択すればよいが、外観（表面平滑性）に優れ、医薬品、食料品、飲料水等の被包装物を包装する包装体として好適に用いられるバイオマスプラスチックシートを容易に得ることができる等の点から、プロピレン系樹脂を含むことが好ましく、前記第2層との接着性により優れるバイオマスプラスチックシートを容易に得ることができる等の点から、直鎖状低密度ポリエチレン（以下「LLDPE」ともいう。）を含むことが好ましい。

30

前記第1層および第3層は、それぞれ異なる層であってもよいが、本シートの製造容易性、製造コスト等の点から、同様の層であることが好ましい。

【0049】

前記第1層および第3層の厚みは、それぞれ、本シートの用途に応じて適宜選択すればよいが、層Aの効果がより発揮される等の点から、好ましくは、積層シート中の第2層の厚みの割合が前記範囲となるような厚みであり、より好ましくは5～100 μm 、より好ましくは10～50 μm である。

40

【0050】

前記プロピレン系樹脂としては特に制限されず、プロピレン単独共重合体、プロピレンとエチレンおよび炭素数4以上の α -オレフィンから選ばれる少なくとも1種との共重合体等が挙げられる。該共重合体は、ランダム共重合体であっても、ブロック共重合体であってもよい。

炭素数4以上の α -オレフィンとしては、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-オクテン、1-ヘプテン、4-メチルーペンテン-1、4-メチルーヘキセン-1、4,4-ジメチルペンテン-1等が挙げられる。

前記共重合体中におけるプロピレンから誘導される構成単位の割合は、好ましくは80

50

重量%以上、より好ましくは85重量%以上である。

【0051】

プロピレン系樹脂のJIS K 7210 (230℃)に従い測定されるMFRは、好ましくは0.1~10g/10分、より好ましくは0.5~7g/10分である。

MFRが前記範囲にあるプロピレン系樹脂を用いることで、本シートを製造する際の成形性により優れるため好ましい。

【0052】

プロピレン系樹脂としては、市販品を用いてもよく、従来公知の方法で合成して得てもよい。

【0053】

前記第1層および第3層それぞれに含まれるプロピレン系樹脂の量は、プロピレン系樹脂の有する物性がより発揮される等の点から、それぞれの層100重量%に対し、好ましくは50~98重量%、より好ましくは70~90重量%である。

【0054】

前記第1層および第3層は、前記プロピレン系樹脂に加えて、必要に応じてその他のポリマーや、前記他の成分等を含んでいてもよい。

該その他のポリマーとして、バイオマス由来の樹脂を用いてもよい。

【0055】

前記積層シートは、前記第2層を介して、前記第1層および第3層が積層された積層シートであるが、環状オレフィン系樹脂、HDPEおよびLDPEを含む前記第2層と、プロピレン系樹脂を含む前記第1層および第3層とを、接着層を用いずに接着させる場合には、層間接着性が十分ではない傾向にある。

また、本シートを医薬品、食料品、飲料水等の被包装物を包装する包装体としてより好適に用いるには、接着層を含まないことが好ましく、また、製造コストや製造設備等の点からも、接着層を用いないことが好ましい。

接着層を用いずに、前記第2層を介して、プロピレン系樹脂を含む前記第1層および第3層を積層する場合、層間接着性により優れる積層シートを容易に得ることができる等の点から、前記その他のポリマーとして、LLDPEを用いることが好ましい。

【0056】

LLDPEは、エチレン単独重合体であってもよく、また、エチレンと炭素数3~10の α -オレフィンとの共重合体であってもよい。また、該共重合体は、ランダム共重合体であっても、ブロック共重合体であってもよい。

炭素数3~10の α -オレフィンとしては、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、4-メチル-1-ペンテン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン等が挙げられ、これらの α -オレフィンは1種であってもよく、2種以上でもよい。

【0057】

LLDPEのJIS K 7112に従い測定される密度は、衝撃強度、耐クラック性、引き裂き強度、透明性、低温シール性等により優れる積層シートが得られる等の点から、好ましくは0.900~0.920g/cm³、より好ましくは0.900~0.910g/cm³である。

【0058】

LLDPEのJIS K 7210に従い測定されるMFRは、好ましくは0.1~10g/10分、より好ましくは0.5~7g/10分である。

MFRが前記範囲にあると、積層シートの成形性がより優れるため好ましい。

【0059】

LLDPEとしては、市販品を用いてもよく、従来公知の方法で合成して得てもよい。

【0060】

前記第1層および第3層それぞれに含まれるLLDPEの量は、層間接着性により優れる積層シートを容易に得ることができる等の点から、各層100重量%に対し、好ましく

10

20

30

40

50

は2～50重量%、より好ましくは10～30重量%である。

【0061】

＜バイオマスプラスチックシートの物性等＞

本シートは、該シート全体100重量%におけるバイオマス由来の樹脂の量（バイオマスプラスチック度）が25重量%以上であり、好ましくは25～90重量%、より好ましくは25～80重量%である。

バイオマスプラスチック度が前記範囲にあるということは、従来に比べて化石資源の使用量を大幅に削減することができることを意味し、大気中の二酸化炭素濃度の上昇の抑制に寄与し、環境負荷を減らすことに寄与する。

化石資源の使用量を削減することからすれば、バイオマスプラスチック度の上限は大きい方がよいが、得られるシートのコスト等を考慮すると、その上限は前記範囲にあることが好ましい。

【0062】

前記バイオマスプラスチック度は、各層の原料から、具体的には、下記式（1）から算出することができる。

バイオマスプラスチック度＝本シートの製造に用いたバイオマス由来の樹脂の重量×該樹脂のバイオマス度（%）／本シートの製造に用いた樹脂の合計重量・・・（1）

【0063】

なお、バイオマス由来の樹脂の質量と化石燃料由来の樹脂の質量とは、含有される¹⁴Cの比率によって区別することが可能であり、具体的には、ASTM-D6866-12により区別することが可能である。

また、バイオマス由来の樹脂として市販品を用いる場合には、該市販品におけるバイオマス度が表示されているので、その値を使用すればよい。

【0064】

本シートのJIS K 7136に従い測定されるヘイズ値は、透明性に優れるシートとなり、ポケット部（医薬品等の収用部）においても透明性に優れ、内容物の視認性に優れるPTPシートを容易に得ることができる等の点から、好ましくは80%以下、より好ましくは50%以下である。ヘイズ値は小さければ小さい方が好ましいが、前記ヘイズ値の下限は、例えば、10%である。

【0065】

本シートの厚さは、所望の用途により適宜選択すればよいが、好ましくは100～500μm、より好ましくは200～400μmである。

このような厚さであれば、本シートから成形性よくPTPシートを製造することができる。

【0066】

＜バイオマスプラスチックシートの製造方法＞

本シートは、特に、前記積層シートや前記多層型シートは、従来公知の積層体の製造方法と同様の方法で製造することができる。例えば、前記積層シートや前記多層型シートは、層Aの両面に、前記第1層および第3層を形成するシートを重ね合せた後に熱融着したり、各層を形成するシートを接着剤層などを介して、接着することで製造してもよい。

ここで、得られる積層シートや前記多層型シートの層間接着性を良くするために、積層シートや前記多層型シートを形成するいずれかの層の表面を、予めコロナ処理、低温プラズマ処理、イオンボンバード処理、薬品処理、溶剤処理などの方法で前処理しておいてもよい。

【0067】

また、前記積層シートや前記多層型シートは、前記各層を形成する原料を用い、必要により、前記各層を形成する原料を予めブレンドした物を用い、多層Tダイ法や多層インフレーション法等の共押出し法、押出コーティング、ドライラミネーション、ヒートラミネーション、湿式流延法や乾式流延法等のキャスト法、カレンダー法などの一般的な多層シート成形法により製造することもできる。

これらの中でも、ラミネート工程を削減できることで生産性が上がり、有機溶剤の使用を排除できる等の点から、共押出し法が好ましい。

【0068】

共押出しする際の温度は、用いる原料に応じて適宜選択すればよいが、好ましくは160～300℃、より好ましくは180～250℃である。

なお、例えば、前記第1層および第3層を押出す際の温度と、前記第2層を押出す際の温度とは異なってもよい。

【0069】

《PTPシート》

本発明に係るPTPシートは、前記本シートを含み、該本シートを用いて製造することができる。

該PTPシートは、前記本シートを含むため、PTPシートの成形性、特に、所望形状のPTPシートを形成できる温度範囲が広くなり、PTPシートの製造自由度が増し、また、透明性に優れるPTPシートを容易に得ることができる。

【0070】

本シートから、PTPシートを製造する方法は特に制限されないが、例えば、公知の成形方法でポケットを形成し、各ポケットに医薬品等の被包装物を装填し、装填された被包装物を密封するように、本シートとシール材（蓋材）とを接着することでPTPシートを製造することができる。

【0071】

ここで、本シートにポケットを形成する方法は、具体的には、以下の方法等が挙げられる。

- ・加熱圧空成形法：本シートを高温、高圧のエアが供給される孔を有する下型と、ポケット形状の凹部を有する上型との間に挟み、加熱軟化させながらエアを供給してポケットを形成する方法

- ・プレヒーター平板式圧空成形法：本シートを加熱し軟化させた後、高圧のエアが供給される孔を有する下型と、ポケット形状の凹部を有する上型との間に挟み、エアを供給してポケットを形成する方法

- ・ドラム式真空成形法：本シートをポケット形状の凹部を有する加熱ドラムで部分的に加熱し軟化させた後、前記凹部を真空引きしてポケットを成形する方法

- ・ピン成形法：本シートを加熱し軟化させた後、ポケット形状の凹凸金型で圧着する方法

- ・プレヒータープラグアシスト圧空成形法：本シートを加熱し軟化させた後、高圧のエアが供給される孔を有する下型と、ポケット形状の凹部を有する上型との間に挟み、エアを供給してポケットを形成する方法であって、成形の際に、凸形状のプラグを上昇および降下させて成形を補助する方法

【0072】

これらの中でも、本シートは、真空成形法のみならず、圧空成形法によっても成形不良を起こさないので、平板式圧空成形法やプラグアシスト圧空成形法などの圧空成形法で成形することができる。

【0073】

なお、前記PTPシートのポケット部の形状、大きさ、深さ、個数、配列等は医薬品の形状や用途によって適宜選択することができる。

【0074】

前記シール材（蓋材）としては、ヒートシール（加熱接着）によって、装填された被包装物を密封することから、ヒートシール性樹脂層を有するものが好ましい。ヒートシール性樹脂層とは、ヒートシールの際に、医薬品、食料品、飲料水等の被包装物が装填された本シートと融着する層である限り特に限定されないが、例えば、低密度ポリエチレン（LDPE）、中密度ポリエチレン（MDPE）、高密度ポリエチレン（HDPE）、直鎖状低密度ポリエチレン（LLDPE）、エチレン酢酸ビニル共重合体（EVA）、ポリブ

10

20

30

40

50

ロピレン（PP）、エチレン・アクリル酸共重合体（EAA）、エチレン・メタアクリル酸共重合体（EMA）、エチレン・メチルアクリレート共重合体（EMAA）、エチレン・エチルアクリレート共重合体（EEA）、エチレン・メチルメタアクリル酸共重合体（EMMA）、アイオノマー（IO）などを、１種または２種以上含む層が挙げられる。

【００７５】

また、シール材（蓋材）は、ガスバリア性が良好である点から、アルミニウム層などの金属蒸着膜層や金属箔層を有することが好ましい。

【実施例】

【００７６】

以下、本発明について実施例を挙げてさらに具体的に説明するが、本発明はこれらによって限定されない。

【００７７】

〔実施例１〕

第２層形成材料として、下記HDPE１（２０重量％）、HDPE２（５０重量％）、LDPE（２０重量％）およびCOC（１０重量％）をドライブレンドした後、φ６５mmの二軸押出機を用いて２００℃で溶融混練し、また、第１および第３層形成材料として、下記PP（８５重量％）およびLLDPE（１５重量％）をドライブレンドした後、φ６５mmの単軸押出機を用いて２１５℃で溶融混練し、２種３層のマルチマニホールド式の金口より、ダイス温度２１０℃で共押出した。

この時、それぞれの層の厚みが、第１層３０μm、第２層１９０μm、第３層３０μmとなるように溶融樹脂の吐出量を調整した。次いで、この共押出しシートをキャストロールにて冷却し、多層シートであるバイオマスプラスチックシートを作製した。

【００７８】

〔実施例２～４および比較例１～２〕

各層を形成する材料およびその含有量を、表１に記載の材料および含有量に変更した以外は実施例１と同様にしてバイオマスプラスチックシートを作製した。

各層を形成する材料（市販品）を以下に示す。

【００７９】

<第１および第３層形成材料>

・PP（ホモポリプロピレン）：MFR（JIS K 7210、２３０℃）；３．０g／１０min

・LLDPE（直鎖状低密度ポリエチレン）：密度（JIS K 7112）；０．９０３g／cm³、MFR（JIS K 7210）；１．２g／１０min

【００８０】

<第２層形成材料>

・HDPE１（バイオマス高密度ポリエチレン）：密度（ASTM D 792）；０．９５２g／cm³、MFR（ASTM D 1238）；２．０g／１０min、バイオマス度（ASTM D 6866）；９６％

・HDPE２（高密度ポリエチレン）：密度（JIS K 7112）；０．９５８g／cm³、MFR（JIS K 7210）；１g／１０min

・HDPE３（バイオマス高密度ポリエチレン）：密度（ASTM D 792）；０．９５９g／cm³、MFR（ASTM D 1238）；７．２g／１０min、バイオマス度（ASTM D 6866）；９４．５％

・HDPE４（高密度ポリエチレン）：密度（JIS K 7112）；０．９６４g／cm³、MFR（JIS K 7210）；５．２g／１０min

・LDPE（低密度ポリエチレン）：密度（ASTM D 1505）；０．９２３g／cm³、MFR（ASTM D 1238）；２．７g／１０min、バイオマス度（ASTM D 6866）；９５％

・COC（環状オレフィン系樹脂）：MVR（ISO 1133、１９０℃、２．１６kg）；２．０cm³／１０min

【0081】

＜透明性（ヘイズ値）＞

実施例および比較例で得られたバイオマスプラスチックシートを用い、J I S K 7 1 3 6に基づいて、該シートの透明性（ヘイズ値）を測定した。結果を表1に示す。

【0082】

＜プリスター成形性（成形可能温度）＞

実施例および比較例で得られたバイオマスプラスチックシートを用い、P T Pシートを成形する際の成形性を以下の方法で評価した。

プリスター成形性は、P T P成形機（シー・ケー・ディー（株）製、F B P－M 2）において、バイオマスプラスチックシートをピンポイント加熱板を用い、1 0 0～1 5 0℃の範囲の各温度において、φ 1 1． 0×H 4． 0用鋳剤型（直径1 1 m m φ、深さ4． 0 m m）およびプラグアシスト機構を用いて成形し、各温度における得られたシートの成形型（鋳剤型）への型追従性を評価した。なお、型追従性は、目視により、ポケット天部、コーナー部および側面部の外観ムラを評価した。

ポケット天部、コーナー部および側面部の外観ムラがないシートを得ることができた温度範囲を表1に示す。

【0083】

＜プリスター成形性（P T Pシート使用評価）＞

前記プリスター成形性で得られたP T Pシートに対して蓋材アルミ箔を、シール温度2 2 0℃でヒートシールし、次いで、スリットと呼ばれる1 0 鋳シートから2 鋳シートへの分割線を、スリット形成温度1 2 0℃、スリット形成速度2． 8 m／分の条件で形成した。このスリット部分を9 0 °に折り曲げて、2 鋳シートの切り離しを行い、以下の基準に基づき目視で評価した。

なお、P T Pシート使用評価が×の場合は、プリスター成形性が十分ではないことを示す。

○：切り離しの際に、中心層（第2層）と表層（第2層の鋳剤に接する側とは反対側の層〔第1層〕）とが剥離した

×：切り離しの際に層間剥離等が生じず問題なく分割できた

【0084】

10

20

【表 1】

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	比較例 1	比較例 2
第 1 層	PP(85) LLDPE(15)	PP(85) LLDPE(15)	PP(85) LLDPE(15)	PP(85) LLDPE(15)	PP(90) LLDPE(10)	PP(60) LDPE(40)
第 2 層	HDPE1(20) HDPE2(50) LDPE(20) COC(10)	HDPE1(10) HDPE2(50) LDPE(30) COC(10)	HDPE2(50) LDPE(40) COC(10)	HDPE2(40) LDPE(40) COC(20)	HDPE3(40) HDPE4(40) COC(20)	LDPE(80) COC(20)
第 3 層	PP(85) LLDPE(15)	PP(85) LLDPE(15)	PP(85) LLDPE(15)	PP(85) LLDPE(15)	PP(90) LLDPE(10)	PP(60) LDPE(40)
シートのバイオマス度(%)	29	29	29	29	29	60
ヘイズ値(%)	26.5	26.1	26.7	26.1	65.3	18.8
成形可能温度(°C)	118~135	118~135	118~135	118~135	120~130	100~130
PTPシート使用評価	○	○	○	○	○	×

10

20

30

フロントページの続き

(72)発明者 井口 博務

大阪府茨木市藤の里 2 丁目 1 1 番 6 号 大成化工株式会社内

(72)発明者 辰巳 聡史

大阪府茨木市藤の里 2 丁目 1 1 番 6 号 大成化工株式会社内

F ターム(参考) 4F100 AJ01A AK02A AK05A AK06A AK07B AK07C AK63A AK63B AK63C AT00B

AT00C BA03 BA10A EH20 GB15 GB16 JL01 JN01 YY00A

4J002 BB03W BB03X BB05W BB05X BB15W BB15X BK00Y CE00Y FD010 FD050

FD060 FD090 FD170 FD200 GG02