

(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  
2022年9月1日(01.09.2022)



(10) 国際公開番号

WO 2022/181549 A1

(51) 国際特許分類:  
*B32B 9/00* (2006.01)      *B32B 27/40* (2006.01)  
*B32B 27/00* (2006.01)      *B32B 7/02* (2019.01)  
*B32B 27/32* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2022/006986

(22) 国際出願日: 2022年2月21日(21.02.2022)

(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 2021-028367 2021年2月25日(25.02.2021) JP

(71) 出願人: 凸版印刷株式会社 (TOPPAN INC.)  
[JP/JP]; 〒1100016 東京都台東区台東1丁目5番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 福上 美季 (FUKUGAMI Miki);  
〒1100016 東京都台東区台東1丁目5番1号 凸版印刷株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外 (HASEGAWA Yoshiki et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二

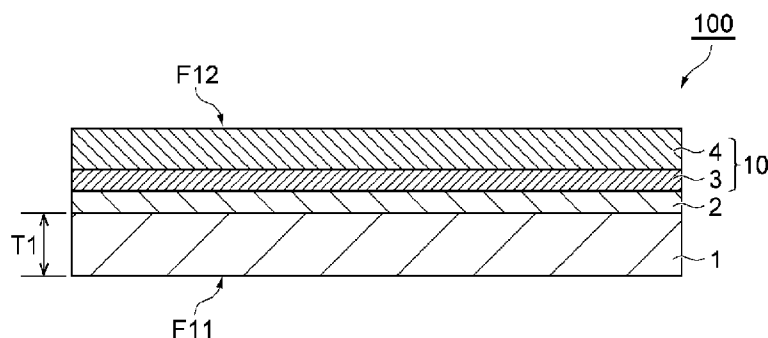
丁目1番1号丸の内 M Y P L A Z A  
(明治安田生命ビル) 9階 創英国際特許法律事務所 Tokyo (JP).

(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, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ,

(54) Title: BARRIER FILM AND LAMINATE

(54) 発明の名称: バリアフィルム及び積層体



(57) Abstract: A barrier film comprising a base material film that contains a polyolefin, wherein when both surfaces of the barrier film are analyzed by means of an x-ray fluorescence spectrometer, the value obtained by dividing the sum of the x-ray fluorescence intensities from chlorine detected on both surfaces by the thickness of the base material film ([the sum of the x-ray fluorescence intensities from chlorine]/[the thickness of the base material film]) is 0.015 kcps/ $\mu$ m or lower.

(57) 要約: ポリオレフィンを含む基材フィルムを備えるバリアフィルムであって、バリアフィルムの両面を蛍光X線分析装置にて分析した時に、両面から検出される塩素の蛍光X線強度の和を基材フィルムの厚さで割った値(塩素の蛍光X線強度の和/基材フィルムの厚さ)が0.015 kcps/ $\mu$ m以下である、バリアフィルム。



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, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

- 一 国際調査報告（条約第21条(3)）

## 明 細 書

発明の名称：バリアフィルム及び積層体

### 技術分野

[0001] 本開示は、バリアフィルム及び積層体に関し、特にリサイクルに適したバリアフィルム及び積層体に関する。

### 背景技術

[0002] 近年、世界的にプラスチックごみによる海洋汚染等の環境問題、廃棄物問題が深刻化し、地球規模の脅威になりつつあるとの認識が全世界で共有されるようになってきている。国内においても、2019年5月に環境省にてプラスチックの資源循環を総合的に推進するための「プラスチック資源循環戦略」が策定され、2035年までに使用済みプラスチックを100%リユース・リサイクル等により有効活用することが明文化された。

[0003] このような社会情勢に対応するため、マテリアルリサイクルに適した包装材料への要求は高まっている。リサイクルにおいては、回収された包装材料を裁断し、必要に応じて分別・洗浄した後に、押出機を用いて熔融混合する工程が一般的に採用される。

[0004] マテリアルリサイクルにおいて、ナイロン、ポリエチレンテレフタレート、ポリオレフィンなど複数の樹脂を積層させた包装材料は、各層の樹脂の分離回収が困難であるという問題がある。そこで、最近では包装材料のモノマテリアル化（単一素材化）の動きが加速しつつある。

[0005] 一方、包装材料の分野において、内容物の品質劣化を抑制するために、ガスバリア性の機能を要求されることが多い。このような場合、アルミ箔や透明ガスバリア性フィルムが使用されるが、アルミ箔は環境面、内容物視認性の面から問題となる場合があり、透明ガスバリアフィルムの使用が一般的になってきている。包装材料のモノマテリアル化の観点から、基材にポリプロピレンフィルムを使用したバリアフィルムの要求が高まっており、特許文献1及び特許文献2のように、それに対応するための提案もなされている。

## 先行技術文献

### 特許文献

- [0006] 特許文献1：特開2000-254994号公報  
特許文献2：国際公開第2016/158794号

### 発明の概要

#### 発明が解決しようとする課題

- [0007] しかしながら、バリアフィルムをマテリアルリサイクルする際に、樹脂が劣化して着色し、リサイクルに適さない場合があるという問題があった。樹脂の劣化は、包装材料を熔融混合する工程において起こりやすい。
- [0008] そこで、本開示は、リサイクル時の着色を抑制することができる、リサイクル性に優れたバリアフィルム及び積層体を提供することを目的とする。

#### 課題を解決するための手段

- [0009] 上記目的を達成するために、本開示は、ポリオレフィンを含有する基材フィルムを備えるバリアフィルムであって、上記バリアフィルムの両面を蛍光X線分析装置にて分析した時に、両面から検出される塩素の蛍光X線強度の和を上記基材フィルムの厚さで割った値（塩素の蛍光X線強度の和／基材フィルムの厚さ）が $0.015 \text{ kcps} / \mu\text{m}$ 以下である、バリアフィルムを提供する。
- [0010] バリアフィルムの基材フィルムに用いられるポリプロピレンやポリエチレンなどのオレフィン系樹脂は、熱によって酸化され易く、高温下で熔融する際に酸化分解反応が起こり易い。酸化分解反応に伴い、樹脂の機械的性質、物理的性質が劣化し、更に反応が進むと樹脂が炭化して茶色や黒色に外観の変色が見られることになる。このように酸化分解反応が起こった樹脂はリサイクル品として使用することが困難である。本発明者は鋭意研究を重ねた結果、バリアフィルム中に存在する塩素が、オレフィン系樹脂の酸化分解反応の触媒となって、酸化分解反応を促進させる働きがあること、及び、酸化分解が促進されるのに必要な塩素の存在量が、フィルムの厚さによって変わる

ことを見出した。そして、バリアフィルムの両面を蛍光X線分析装置にて分析した時に、両面から検出される塩素の蛍光X線強度の和を基材フィルムの厚さで割った値（塩素の蛍光X線強度の和／基材フィルムの厚さ）が $0.015 \text{ kcps} / \mu\text{m}$ 以下となるようにすることで、リサイクル時にバリアフィルム中のポリオレフィンが酸化分解されることを抑制することができ、着色を抑制できることを見出した。そのため、上記条件を満たすバリアフィルムは、リサイクル時の着色が抑制され、優れたリサイクル性を有することができる。

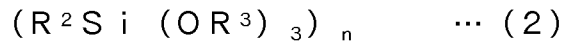
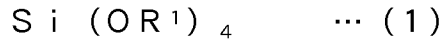
[0011] 上記バリアフィルムは、上記基材フィルムの少なくとも一方の面上に形成されたガスバリア層を更に備えていてもよい。上記ガスバリア層を備えることで、バリアフィルムのガスバリア性が向上する。また、バリアフィルム中に存在する塩素は、基材フィルム自体に由来するほか、ガスバリア層にも由来する。しかしながら、上記値（塩素の蛍光X線強度の和／基材フィルムの厚さ）を $0.015 \text{ kcps} / \mu\text{m}$ 以下とすることで、ガスバリア層に由来する塩素が存在しても、リサイクル時の着色を抑制することができる。そのため、リサイクル性及びガスバリア性に優れたバリアフィルムを提供することができる。

[0012] 上記ガスバリア層は、無機酸化物を含有する蒸着層を含んでいてもよい。上記無機酸化物は、酸化アルミニウム、酸化珪素又はそれらの混合物を含んでいてもよい。ガスバリア層が上記蒸着層を備えることで、バリアフィルムのガスバリア性をより向上させることができる。

[0013] 上記ガスバリア層は、ガスバリア性被覆層を含んでいてもよい。ガスバリア層が上記ガスバリア性被覆層を備えることで、バリアフィルムのガスバリア性をより向上させることができる。また、ガスバリア性被覆層を蒸着層上に形成することで、蒸着層を保護することができる。

[0014] 上記ガスバリア性被覆層は、下記一般式（1）で表されるケイ素化合物及びその加水分解物のうちの少なくとも一種と、下記一般式（2）で表されるケイ素化合物及びその加水分解物のうちの少なくとも一種と、水酸基を有す

る水溶性高分子と、を含有するガスバリア性被覆層形成用組成物を用いて形成された層であってもよい。



[一般式(1)及び(2)中、 $\text{R}^1$ 及び $\text{R}^3$ はそれぞれ独立に、 $\text{CH}_3$ 、 $\text{C}_2\text{H}_5$ 、又は、 $\text{C}_2\text{H}_4\text{OCH}_3$ を示し、 $\text{R}^2$ は有機官能基を示し、 $n$ は1以上の整数を示す。]

[0015] また、上記ガスバリア性被覆層は、ポリウレタン樹脂と、水酸基を有する水溶性高分子と、硬化剤とを含有するガスバリア性被覆層形成用組成物を用いて形成された層であってもよい。ここで、上記ポリウレタン樹脂は、酸基を含有する酸基含有ポリウレタン樹脂と、アミノ基を有するポリアミン化合物との反応生成物を含んでいてもよい。

[0016] ガスバリア性被覆層が上記いずれかのガスバリア性被覆層形成用組成物を用いて形成された層である場合、上記値（塩素の蛍光X線強度の和／基材フィルムの厚さ）を低減することができ、リサイクル性をより高めることができると共に、より優れたガスバリア性を得ることができる。

[0017] 上記バリアフィルムにおいて、上記ポリオレフィンがポリプロピレンであってもよい。この場合、バリアフィルムの耐熱性を向上させることができる。

[0018] 本開示はまた、ポリオレフィンを含む樹脂フィルムを2以上備える積層体であって、上記積層体から各樹脂フィルムを剥離し、全ての上記樹脂フィルムの両面を蛍光X線分析装置にて分析した時に、全ての上記樹脂フィルムの全ての面から検出される塩素の蛍光X線強度の和を上記積層体の厚さで割った値（塩素の蛍光X線強度の和／積層体の厚さ）が $0.015 \text{ kcps} / \mu\text{m}$ 以下である、積層体を提供する。

[0019] ポリオレフィンを含む樹脂フィルムを2以上備える積層体において、各樹脂フィルムの全ての面から検出される塩素の蛍光X線強度の和を積層体の厚さで割った値（塩素の蛍光X線強度の和／積層体の厚さ）が $0.015$

k c p s /  $\mu$  m以下となるようにすることで、リサイクル時にバリアフィルム中のポリオレフィンが酸化分解されることを抑制することができ、着色を抑制することができる。そのため、上記条件を満たす積層体は、リサイクル時の着色が抑制され、優れたリサイクル性を有することができる。

### 発明の効果

[0020] 本開示によれば、リサイクル時の着色を抑制することができる、リサイクル性に優れたバリアフィルム及び積層体を提供することができる。

### 図面の簡単な説明

[0021] [図1]本開示のバリアフィルムの一実施形態を示す模式断面図である。

[図2]本開示の積層体の一実施形態を示す模式断面図である。

### 発明を実施するための形態

[0022] 以下、本開示の実施形態について詳細に説明する。

[0023] 本実施形態のバリアフィルムは、ポリオレフィンを含有する基材フィルムを備える。また、バリアフィルムの両面を蛍光X線分析装置にて分析した時に、両面から検出される塩素の蛍光X線強度の和を上記基材フィルムの厚さで割った値（塩素の蛍光X線強度の和/基材フィルムの厚さ）が0.015 k c p s /  $\mu$  m以下である。

[0024] 本実施形態の積層体は、ポリオレフィンを含有する樹脂フィルムを2以上備える。また、上記積層体から各樹脂フィルムを剥離し、全ての上記樹脂フィルムの両面を蛍光X線分析装置にて分析した時に、全ての上記樹脂フィルムの全ての面から検出される塩素の蛍光X線強度の和を上記積層体の厚さで割った値（塩素の蛍光X線強度の和/積層体の厚さ）が0.015 k c p s /  $\mu$  m以下である。

[0025] 本明細書において、上記（塩素の蛍光X線強度の和/基材フィルムの厚さ）の値、及び、上記（塩素の蛍光X線強度の和/積層体の厚さ）の値を、「塩素量」（単位：k c p s /  $\mu$  m）と呼ぶ。

[0026] <バリアフィルム>

本実施形態のバリアフィルムは、ポリオレフィンを含有する基材フィルム

を少なくとも備えるものであり、基材フィルム以外の他の層を有していてもよい。バリアフィルムは、基材フィルムの少なくとも一方の面上に形成されたガスバリア層を更に備えていてもよい。このガスバリア層は、無機酸化物を含有する蒸着層、及び、ガスバリア性被覆層の一方又は両方を有していてもよい。更に、バリアフィルムは、基材フィルムとガスバリア層との間に、アンカーコート層を備えていてもよい。

[0027] 図1は、一実施形態に係るバリアフィルムを示す模式断面図である。図1に示すバリアフィルム100は、基材フィルム1と、アンカーコート層2と、ガスバリア層10とをこの順に備える。ガスバリア層10は、蒸着層3とガスバリア性被覆層4とを備える。以下、バリアフィルムを構成する各層について説明する。

[0028] [基材フィルム1]

基材フィルム1は支持体となる層であり、ポリオレフィンを含有する。基材フィルム1は、ポリオレフィンを主成分とするポリオレフィンフィルムであってよい。ここで、「主成分」とは、フィルム中の含有率が50質量%以上である成分をいう。基材フィルム1中のポリオレフィンの含有量は、基材フィルム1全量を基準として50質量%以上であってよく、80質量%以上であってよく、100質量%であってよい。基材フィルム1中のポリオレフィンの含有量が高いほど、リサイクル性が向上する。

[0029] ポリオレフィンとしては、ポリエチレン及びポリプロピレンなどが挙げられるが、耐熱性の観点からは、ポリプロピレンが好ましい。ポリプロピレンとしては、耐熱性の観点から、プロピレンの単独重合体であるホモポリプロピレンを用いることが好ましい。但し耐熱性を損なわない範囲であれば、 $\alpha$ -オレフィンを含んだ共重合体、あるいは、ホモポリプロピレンとそれ以外のポリプロピレンとのブレンド物を使用することもできる。また、密着性を向上させるという目的で、ポリプロピレンフィルムの表面層に上記共重合体やブレンド物を配置してもよい。

[0030] 基材フィルム1は延伸されたものであっても、未延伸のものであってもよ

い。基材フィルム1として用いられるポリプロピレンフィルムは、上記ポリプロピレン樹脂をシート化して該シートを通常的手段により延伸し、一軸又は二軸に配向したフィルムであっても、未延伸フィルムであってもよい。

[0031] 基材フィルム1には、公知の添加剤、例えば、酸化防止剤、安定剤、ステアリン酸カルシウム、脂肪酸アミド、エルカ酸アミド等の滑剤、帯電防止剤などの有機添加剤、シリカ、ゼオライト、サイロイド、ハイドロタルサイト、シリコン粒子などの粒子状滑剤などが、目的に応じて添加されてもよい。

[0032] 基材フィルム1に用いるホモポリプロピレン及びプロピレン共重合体等のポリオレフィン樹脂としては、リサイクルされた樹脂を使用してもよく、また植物などのバイオマス由来の原料を重合して得られた樹脂を使用してもよい。これらの樹脂を使用する場合、単独で使用しても、通常の化石燃料から重合された樹脂と混合して使用しても構わない。

[0033] 基材フィルム1の厚さ（図1中の厚さT1）は特に限定されない。用途に応じ、当該厚さを6～200 $\mu\text{m}$ とすることができるが、優れたリサイクル性と優れた耐衝撃性とを得る観点から、9～50 $\mu\text{m}$ であってよく、12～38 $\mu\text{m}$ であってよい。

[0034] [アンカーコート層2]

基材フィルム1の蒸着層3を積層する面には、アンカーコート層（下引層）2が設けられてもよい。アンカーコート層2は、基材フィルム1と蒸着層3との密着性能向上、基材フィルム1表面の平滑性向上、及び、基材フィルム1の伸びに起因した蒸着層3の割れの発生の抑制、といった効果を奏することができる。なお、平滑性が向上することで蒸着層3を欠陥なく均一に成膜し易くなり、高いバリア性を発現し易い。アンカーコート層2はアンカーコート層形成用組成物（アンカーコート剤）を用いて形成することができる。

[0035] アンカーコート剤に用いられる樹脂としては、例えば、アクリル樹脂、エポキシ樹脂、アクリルウレタン系樹脂、ポリエステル系ポリウレタン樹脂、ポリエーテル系ポリウレタン樹脂等が挙げられる。これらの樹脂、又は、反

応してこれらの樹脂を形成する成分を含むアンカーコート剤を用いて、アンカーコート層2を形成することができる。

[0036] アンカーコート層2の厚さは特に限定されないが、0.01~5 $\mu$ mの範囲であることが好ましく、0.03~3 $\mu$ mの範囲であることがより好ましく、0.05~2 $\mu$ mの範囲であることが特に好ましい。アンカーコート層2の厚さが上記下限値以上であると、より十分な層間接着強度が得られる傾向にあり、他方、上記上限値以下であると所望のガスバリア性が発現し易い傾向にある。

[0037] [蒸着層3]

基材フィルム1の少なくとも片方の面に、バリア性を付与するために無機酸化物を含む蒸着層3を積層させることができる。無機酸化物を含む蒸着層3は、酸化アルミニウム、酸化珪素、酸化錫、酸化マグネシウム、或いはそれらの混合物などの無機酸化物の蒸着膜からなり、透明性を有し、且つ酸素、水蒸気等のガスバリア性を有する層であればよい。各種殺菌耐性を配慮すると、これらの中では、特に酸化アルミニウム及び酸化珪素を用いることがより好ましい。但し、本実施形態の蒸着層3に使用する材料は、上述した無機酸化物に限定されず、上記条件に適合する材料であれば用いることが可能である。

[0038] 蒸着層3の厚さは、用いられる無機酸化物の種類や構成により最適条件が異なるが、一般的には5~300nmの範囲内が望ましく、その値は適宜選択される。蒸着層3の厚さは、5~100nmであってもよい。膜厚が5nm以上であると均一な膜が得られやすく、また、膜厚が十分であるためガスバリア層としての機能を十分に果たすことができる傾向がある。一方、膜厚が300nm以下であると、薄膜にフレキシビリティを保持させやすく、成膜後に折り曲げ、引っ張りなどの外的要因により、薄膜に亀裂が生じることを抑制できる傾向がある。これらの効果がより得られ易いことから、蒸着層3の厚さは、10~150nmの範囲内であることがより好ましい。

[0039] 蒸着層3を基材フィルム1上に形成する方法としては種々在り、通常の真

空蒸着法により形成することができる。また、その他の薄膜形成方法であるスパッタリング法やイオンプレーティング法、プラズマ気相成長法（CVD）などを用いることも可能である。但し、生産性を考慮すれば、現時点では真空蒸着法が最も優れている。真空蒸着法の加熱手段としては、電子線加熱方式や抵抗加熱方式、誘導加熱方式のいずれかの方式を用いることが好ましいが、蒸発材料の選択性の幅広さを考慮すると電子線加熱方式を用いることがより好ましい。また、蒸着層3と基材フィルム1との密着性及び蒸着層3の緻密性を向上させるために、プラズマアシスト法やイオンビームアシスト法を用いて蒸着することも可能である。また、蒸着膜の透明性を上げるために、蒸着の際、酸素等の各種ガスなどを吹き込む反応蒸着を用いても一向に構わない。

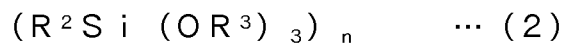
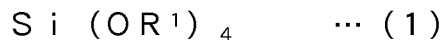
[0040] 基材フィルム1と蒸着層3との密着性を強化するために、基材フィルム1の表面にプラズマ処理、コロナ処理等の表面処理を行ってもよく、また基材フィルム1と蒸着層3との間に上述したアンカーコート層2を設けても構わない。これらの表面処理を施す、又は、アンカーコート層2を設けることで、加熱殺菌後の密着性やバリア性などの性能が向上する。

[0041] [ガスバリア性被覆層4]

蒸着層3上に、蒸着層3を保護し、バリア性を補完する目的で、ガスバリア性被覆層4を設けることもできる。ガスバリア性被覆層4は、上記目的を達成でき、且つ、リサイクル適性が備わっている材質であれば、特に限定されない。ガスバリア性被覆層4を形成するためのガスバリア性被覆層形成用組成物としては、例えば、ケイ素化合物又はその加水分解物を1種類以上と水溶性高分子とを混合した溶液、ケイ素化合物又はその加水分解物を1種類以上と水溶性高分子と無機層状化合物とシランカップリング剤とを混合した溶液、あるいは、水性ポリウレタン樹脂と水溶性高分子とを混合した溶液などを用いることができる。これらのガスバリア性被覆層形成用組成物を蒸着層3上にコーティングした後、加熱乾燥することで、ガスバリア性被覆層4を形成することができる。ガスバリア性被覆層形成用組成物中には、ガスバ

リア性を損なわない範囲で、イソシアネート化合物、シランカップリング剤、分散剤、安定化剤、粘度調整剤、着色剤などの公知の添加剤を必要に応じて加えることも可能である。

[0042] ガスバリア性被覆層形成用組成物の例としては、下記一般式（１）で表されるケイ素化合物及びその加水分解物のうちの少なくとも一種と、下記一般式（２）で表されるケイ素化合物及びその加水分解物のうちの少なくとも一種と、水酸基を有する水溶性高分子と、を含有する組成物が挙げられる。上記ガスバリア性被覆層形成用組成物を用いることで、バリアフィルム及び積層体は、それらの塩素量を低減することができ、リサイクル性を高めることができると共に、優れたガスバリア性を有することができる。



[一般式（１）及び（２）中、 $\text{R}^1$ 及び $\text{R}^3$ はそれぞれ独立に、 $\text{CH}_3$ 、 $\text{C}_2\text{H}_5$ 、又は、 $\text{C}_2\text{H}_4\text{OCH}_3$ を示し、 $\text{R}^2$ は有機官能基を示し、 $n$ は１以上の整数を示す。]

[0043] 上記一般式（１）で表される化合物としては、 $\text{R}^1$ が $\text{CH}_3$ 、 $\text{C}_2\text{H}_5$ 、又は、 $\text{C}_2\text{H}_4\text{OCH}_3$ で表されるものであればいずれも使用することができるが、中でも、テトラエトキシシランが好ましい。

[0044] 水酸基を有する水溶性高分子としては、ポリビニルアルコール及びその変性体、ポリアクリル酸、でんぷん、セルロース類等が挙げられる。中でも、より優れたガスバリア性を得る観点から、ポリビニルアルコール及びその変性体が好ましい。水溶性高分子を用いることで、ガスバリア性被覆層に柔軟性を付与し、クラックの発生を抑制することができる。

[0045] ガスバリア性被覆層形成用組成物が上記一般式（２）で表される化合物又はその加水分解物を含むことで、ガスバリア性被覆層の耐水性を高めることができる。上記一般式（２）で表される化合物において、 $\text{R}^2$ で表される有機官能基は、ビニル基、エポキシ基、メタクリロキシ基、ウレイド基、及びイソシアネート基等の疎水性官能基を含むことが好ましい。 $\text{R}^2$ が疎水性官能基

を含むことで、ガスバリア性被覆層の耐水性をより高めることができる。また、一般式(2)中の $n$ は、1以上の整数であってよい。

[0046] 一般式(2)で表される化合物が多量体である場合は、三量体が好ましく、耐水性をより高める観点から、一般式  $(\text{NCO}-\text{R}^4\text{Si}(\text{OR}_3)_3)_3$  (式中、 $\text{R}^4$ は  $(\text{CH}_2)_m$ を示し、 $m$ は1以上の整数を示す)で表される1, 3, 5-トリス(3-トリアルコキシシリルアルキル)イソシアヌレートがより好ましい。これは、3-イソシアネートアルキルアルコキシシランの縮合体である。

[0047] ガスバリア性被覆層形成用組成物において、上記各成分の配合量は特に限定されないが、 $\text{Si}(\text{OR}^1)_4$ を $\text{SiO}_2$ に、 $\text{R}^2\text{Si}(\text{OR}_3)_3$ を $\text{R}^2\text{Si}(\text{OH})_3$ に換算した場合、固形分の配合比が質量比で、 $\text{SiO}_2 / (\text{R}^2\text{Si}(\text{OH})_3 / \text{水溶性高分子}) = 100 / 100 \sim 100 / 30$ の範囲内であってもよい。

[0048] また、ガスバリア性被覆層形成用組成物の別の例としては、ポリウレタン樹脂と、水酸基を有する水溶性高分子と、硬化剤とを含有し、ポリウレタン樹脂が、酸基を含有する酸基含有ポリウレタン樹脂と、アミノ基を有するポリアミン化合物との反応生成物を含む、組成物が挙げられる。上記ガスバリア性被覆層形成用組成物を用いることで、バリアフィルム及び積層体は、それらの塩素量を低減することができ、リサイクル性を高めることができると共に、優れたガスバリア性を有することができる。

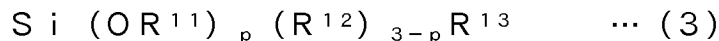
[0049] 上記酸基含有ポリウレタン樹脂は、上記ポリウレタン樹脂を構成する上記ポリアミン化合物のアミノ基と結合可能なものであればよく、酸基としては、カルボキシ基及びスルホン酸基等が挙げられる。酸基含有ポリウレタン樹脂としては、例えば環状炭化水素を含む構成単位と、鎖状炭化水素を含む構成単位とを有するものが用いられる。酸基含有ポリウレタン樹脂としては、具体的には、カルボン酸変性ポリウレタン樹脂及びスルホン酸変性ポリウレタン樹脂などが挙げられる。これらは単独で又は2種以上を組み合わせ用いることができる。

[0050] 上記ポリアミン化合物のアミノ基は、第1級アミノ基、第2級アミノ基、第3級アミノ基のいずれでもよい。ポリアミン化合物としては、具体的には、アルキレンジアミン類、ポリアルキレンポリアミン類などが挙げられる。これらは単独で又は2種以上を組み合わせる用いることができる。

[0051] 水酸基を有する水溶性高分子としては、ポリビニルアルコール及びその変性体、ポリアクリル酸、でんぷん、セルロース類等が挙げられる。中でも、より優れたガスバリア性を得る観点から、ポリビニルアルコール及びその変性体が好ましい。

[0052] 硬化剤としては、ガスバリア性被覆層形成用組成物を硬化させることが可能な硬化剤であれば限定されない。硬化剤は、シランカップリング剤であってもよい。

[0053] シランカップリング剤としては、例えば下記一般式(3)で表される化合物が挙げられる。



上記一般式(3)中、 $\text{R}^{11}$ はメチル基、エチル基等のアルキル基を示し、 $\text{R}^{12}$ はアルキル基、アラルキル基、アリール基、アルケニル基、アクリロキシ基、メタクリロキシ基で置換されたアルキル基等の1価の有機基を示し、 $\text{R}^{13}$ は1価の有機官能基を示し、 $p$ は1~3の整数を示す。なお、 $\text{R}^{11}$ 又は $\text{R}^{12}$ が複数存在する場合、 $\text{R}^{11}$ 同士又は $\text{R}^{12}$ 同士は同一でも異なってもよい。 $\text{R}^{13}$ で示される1価の有機官能基としては、ビニル基、エポキシ基、メルカプト基、アミノ基、又は、イソシアネート基を含有する1価の有機官能基が挙げられる。中でも、1価の有機官能基としては、エポキシ基を含有するものが好ましい。この場合、組成物が、硬化によって、より優れた熱水耐性を有することが可能となる。

[0054] シランカップリング剤としては、例えば、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン等のビニル基を持つシランカップリング剤；3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-グ

リシドキシプロピルエチルジエトキシシラン等のエポキシ基を持つシランカップリング剤；3-メルカプトプロピルトリメトキシシラン、3-メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン等のメルカプト基を持つシランカップリング剤；3-アミノプロピルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルトリエトキシシラン等のアミノ基を持つシランカップリング剤；3-イソシアネートプロピルトリエトキシシラン等のイソシアネート基を持つシランカップリング剤が挙げられる。これらのシランカップリング剤は、単独で又は2種類以上を組み合わせて用いてもよい。

[0055] ガスバリア性被覆層形成用組成物において、上記各成分の配合量は特に限定されないが、ガスバリア性被覆層形成用組成物の固形分全量を基準として、上記ポリウレタン樹脂の含有率が45質量%以上75質量%以下であり、上記水溶性高分子の含有率が20質量%以上35質量%以下であり、且つ、上記硬化剤の含有率が5質量%以上20質量%以下であることが好ましい。この含有率を満たすことで、得られるガスバリア性被覆層は、優れた耐虐待性を有し、且つ、優れた熱水耐性を有することができる。

[0056] 上記ガスバリア性被覆層形成用組成物は、無機層状化合物として、無機層状鉱物を含含有していてもよく、含含有していなくてもよい。無機層状鉱物は、単位結晶層が重なって1つの層状粒子を形成している無機化合物をいう。

[0057] 無機層状鉱物としては、例えばフィロケイ酸塩鉱物等の含水ケイ酸塩が挙げられる。含水ケイ酸塩としては、具体的には、ハロイサイト、カオリナイト、エンデライト等のカオリナイト族粘土鉱物；アンチゴライト、クリソタイル等のアンチゴライト族粘土鉱物；モンモリロナイト、バイデライト等のスメクタイト族粘土鉱物；バーミキュライト等のバーミキュライト族粘土鉱物；合成雲母、白雲母、金雲母等の雲母等が挙げられる。これらは単独で又は2種以上を組み合わせて用いることができる。

[0058] ガスバリア性被覆層形成用組成物の固形分全量を基準として、無機層状鉱物の含有率は2質量%未満であることが好ましい。この場合、無機層状鉱物の含有率が2質量%以上である場合に比べて、得られるガスバリア性被覆層

のラミネート強度を向上させることができる。無機層状鉱物の含有率は0質量%であってもよい。

[0059] ガスバリア性被覆層4の厚さは、0.05~2 $\mu\text{m}$ であることが好ましく、0.1~1 $\mu\text{m}$ であることがより好ましく、0.3~0.5 $\mu\text{m}$ であることが更に好ましい。ガスバリア性被覆層4の厚さが2 $\mu\text{m}$ 以下であると、バリアフィルム及び積層体における塩素量を低減し易く、且つ、バリアフィルム及び積層体をリサイクルした際の着色を抑制し易い傾向がある。ガスバリア性被覆層4の厚さが0.05 $\mu\text{m}$ 以上であると、バリアフィルム及び積層体のガスバリア性を高めることができる。

[0060] <積層体>

本実施形態の積層体は、ポリオレフィンを含有する樹脂フィルムを2以上備えるものであり、樹脂フィルム以外の他の層を有していてもよい。積層体は、一方の樹脂フィルムの少なくとも一方の面上に形成されたガスバリア層を更に備えていてもよい。このガスバリア層は、無機酸化物を含有する蒸着層、及び、ガスバリア性被覆層の一方又は両方を有していてもよい。更に、積層体は、樹脂フィルムとガスバリア層との間に、アンカーコート層を備えていてもよい。積層体は、上述した本実施形態のバリアフィルム的一方の面上に、樹脂フィルムを更に積層したものであってよい。この場合、バリアフィルムに含まれる基材フィルムが第1の樹脂フィルムであり、バリアフィルムに更に積層される樹脂フィルムが第2の樹脂フィルムである。第2の樹脂フィルムは、接着剤層を介してバリアフィルムに積層してもよい。第2の樹脂フィルムは、シーラント層であってよい。

[0061] 図2は、一実施形態に係る積層体を示す模式断面図である。図2に示す積層体200は、バリアフィルム100のガスバリア性被覆層4側の面上に、樹脂フィルムとしてのシーラント層6を、接着剤層5を介して積層した構造を有する。積層体200は、ポリオレフィンを含有する樹脂フィルムとして、基材フィルム1及びシーラント層6の2つの層を備える。

[0062] [接着剤層5]

接着剤層5の材料としては、例えば、ポリエステルーイソシアネート系樹脂、ウレタン樹脂、ポリエーテル系樹脂などを用いることができる。熱水耐性を高める観点からは、2液硬化型のウレタン系接着剤を好ましく用いることができる。

[0063] [シーラント層6]

シーラント層6は、積層体200にヒートシールによる封止性を付与する層であり、ポリオレフィンを含む。シーラント層6は、ポリオレフィンを主成分とするポリオレフィンフィルムであってよい。ここで、「主成分」とは、フィルム中の含有率が50質量%以上である成分をいう。シーラント層6中のポリオレフィンの含有量は、シーラント層6全量を基準として50質量%以上であってよく、80質量%以上であってよく、100質量%であってよい。シーラント層6中のポリオレフィンの含有量が高いほど、リサイクル性が向上する。

[0064] ポリオレフィンとしては、ポリエチレン及びポリプロピレンなどが挙げられるが、耐熱性の観点からは、ポリプロピレンが好ましい。ポリプロピレンとしては、ヒートシール性の観点から、プロピレンと $\alpha$ -オレフィンとの共重合体、あるいは、ブレンド物を使用することが好ましい。その中でも、プロピレンーエチレンランダム共重合体もしくはプロピレンーエチレンブロック共重合体を用いることが好ましい。また、シーラント層6と基材フィルム1とは、同じ種類のポリオレフィンを用いることが好ましく、例えば基材フィルム1にホモポリプロピレンを用いた場合には、シーラント層6にもホモポリプロピレンを用いることが好ましい。

[0065] シーラント層6に用いられるポリオレフィンフィルムは、延伸されたものであっても、未延伸のものであってもよいが、基材フィルム1よりも熱融着温度を低くしてヒートシール性を良好にする観点から、未延伸フィルムであることが好ましい。この場合、基材フィルム1は延伸フィルムであることが好ましい。

[0066] シーラント層6には、公知の添加剤、例えば、酸化防止剤、安定剤、ステ

アリン酸カルシウム、脂肪酸アミド、エルカ酸アミド等の滑剤、帯電防止剤などの有機添加剤、シリカ、ゼオライト、サイロイド、ハイドロタルサイト、シリコン粒子などの粒子状滑剤などが、目的に応じて添加されてもよい。

[0067] シーラント層6に用いるホモポリプロピレン及びプロピレン共重合体等のポリオレフィン樹脂としては、リサイクルされた樹脂を使用してもよく、また植物などのバイオマス由来の原料を重合して得られた樹脂を使用してもよい。これらの樹脂を使用する場合、単独で使用しても、通常の化石燃料から重合された樹脂と混合して使用しても構わない。

[0068] シーラント層6の厚さは特に限定されない。用途に応じ、当該厚さを6～200 $\mu\text{m}$ とすることができるが、優れたリサイクル性と優れた耐衝撃性を得る観点から、10～150 $\mu\text{m}$ であってよく、20～100 $\mu\text{m}$ であってよい。

[0069] 積層体200全体の厚さ（図2中の厚さT2）は特に限定されない。用途に応じ、当該厚さを10～400 $\mu\text{m}$ とすることができるが、20～200 $\mu\text{m}$ であってよく、50～150 $\mu\text{m}$ であってよい。

[0070] バリアフィルム100又は積層体200をマテリアルリサイクルする場合、回収したバリアフィルム100又は積層体200を粉砕し、粉砕物を押出機に投入して融点以上の温度で熔融し、この熔融物をペレット化して再使用するという方法がある。その他、熔融物をそのまま成形して他の用途に使用することも可能である。

[0071] ポリプロピレンやポリエチレンなどのオレフィン系樹脂は熱によって酸化され易く、高温下で熔融する際に酸化分解反応が起こり易い。酸化分解反応に伴い、樹脂の機械的性質、物理的性質が劣化し、更に反応が進むと樹脂が炭化して茶色や黒色に外観の変色が見られることになる。このように酸化分解反応が起こった樹脂は、リサイクル品として使用することができない。

[0072] 本実施形態に係るリサイクル適性のあるバリアフィルム100は、バリアフィルム100の両面（図1中のF11及びF12）を蛍光X線分析装置にて分析した時に、両面から検出される塩素（Cl）の蛍光X線強度の和を基

材フィルム1の厚さ（図1中のT1）で割った値（塩素の蛍光X線強度の和／基材フィルム1の厚さ）が $0.015 \text{ kcps} / \mu\text{m}$ 以下である必要がある。

[0073] また、本実施形態に係るリサイクル適性のある積層体200は、積層体200から各樹脂フィルムとして基材フィルム1及びシーラント層6を剥離し、基材フィルム1及びシーラント層6のそれぞれの両面（図2中のF21及びF22、並びに、F23及びF24）を蛍光X線分析装置にて分析した時に、基材フィルム1及びシーラント層6の全ての面から検出される塩素の蛍光X線強度の和を積層体200の厚さ（図2中のT2）で割った値（塩素の蛍光X線強度の和／積層体200の厚さ）が $0.015 \text{ kcps} / \mu\text{m}$ 以下である必要がある。

[0074] バリアフィルム100及び積層体200において、上記方法で求められる塩素量が $0.015 \text{ kcps} / \mu\text{m}$ 以下であることで、上述したリサイクル時（溶融時）の着色を抑制することができ、バリアフィルム100は優れたリサイクル適性を有するものとなる。また、上記塩素量が $0.015 \text{ kcps} / \mu\text{m}$ 以下であることで、リサイクル時（溶融時）の樹脂の機械的性質及び物理的性質の劣化も抑制することができる。

[0075] 蛍光X線分析には、例えば、装置としてリガク社製の波長分散型蛍光X線分析装置Superminiを使用することができる。測定前にPHA調整試料（リガク社製）を使用して、PC検出器の分解能が45%以下であることを確認する。測定は以下に示す条件にて行う。

検出スペクトル：C1-KA

X線間励起条件：ターゲットPb、管電圧50kV、管電流4.00mA

分光結晶：PET

検出器：PC（プロポーショナルカウンター）

スキャン条件：開始角度 $62.0 \text{ deg}$ 、終了角度 $69.0 \text{ deg}$ 、ステップ $0.05 \text{ deg}$ 、時間 $0.2 \text{ sec}$ 、速度 $15 \text{ deg} / \text{min}$ 、ピーク角度 $65.44 \text{ deg}$

上記条件にて測定を実施し、求められた塩素原子（Cl）のネット強度（k cps）をフィルム表面のX線強度とする。

[0076] 塩素は、上述したような樹脂の酸化分解反応の触媒となって、酸化分解反応を促進させる働きがある。酸化分解が促進されるのに必要な塩素の存在量は、フィルムの厚さによっても変わるため、蛍光X線分析により検出される塩素原子（Cl）の和をフィルムの厚さで割る必要がある。この値（塩素量＝塩素の蛍光X線強度の和／基材フィルム又は積層体の厚さ）が0.015 k cps /  $\mu\text{m}$ より高くなると、バリアフィルム又は積層体中の塩素の存在量が多すぎて酸化分解が進み、着色が生じてリサイクルが困難となる。リサイクル性をより高める観点から、上記塩素量は、0.012 k cps /  $\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましい。上記塩素量は、例えば、基材フィルム1、シーラント層6及びガスバリア性被覆層4のそれぞれの厚さ、組成及び作製方法等によって調整することができる。

[0077] 本実施形態のバリアフィルム及び積層体は、容器や袋等の包装製品、化粧シートやトレー等のシート成形品、光学フィルム、樹脂板、各種ラベル材料、蓋材、及び、ラミネートチューブ等の各種用途に好適に使用することができる。特に、包装製品に好適に使用することができる。包装製品としては、ピロー袋、スタンディングパウチ、3方シール袋、4方シール袋等が挙げられる。また、本実施形態のバリアフィルム及び積層体は、ボイル処理やレトルト処理等が施される包装製品にも使用することができる。

## 実施例

[0078] 以下、実施例を挙げて本開示を具体的に説明するが、本開示はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0079] <コーティング液の調製>

実施例及び比較例で用いるガスバリア性被覆層形成用組成物として、以下のコーティング液A～Dを調製した。

[0080] (コーティング液A)

以下に示す(a)液、(b)液及び(c)液を、(a)液 / (b)液 / (

c) 液 = 70 / 20 / 10 (固形分質量比) となるように混合した溶液。

(a) 液 : テトラエトキシシラン 17.9 g 及びメタノール 10 g に、0.1 N 塩酸 72.1 g を加えて 30 分間攪拌して加水分解させた、固形分 5 質量% (SiO<sub>2</sub> 換算) の加水分解溶液

(b) 液 : ポリビニルアルコールを 5 質量% 含有する、水 / メタノール (水 : メタノールの質量比は 95 : 5) 溶液

(c) 液 : 1, 3, 5-トリス (3-トリアルコキシシリルプロピル) イソシアヌレート、水 / イソプロピルアルコールの混合液 (水 : イソプロピルアルコールの質量比は 1 : 1) で固形分 5 質量% に希釈した加水分解溶液

[0081] (コーティング液 B)

ポリウレタン樹脂の水性分散体 (水性ポリウレタンディスパージョン、商品名「タケラック (登録商標) WPB-341」、三井化学株式会社製、固形分濃度 : 30 質量%) と、5 質量% ポリビニルアルコール水溶液と、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシランとを、固形分質量比が 75 : 20 : 5 となるように混合した溶液。

[0082] (コーティング液 C)

下記に示す (d) 液、(e) 液を、(d) 液 / (e) 液 = 45 / 55 (固形分質量比) となるように混合した溶液。

(d) 液 : ポリビニルアルコールとモンモリロナイトとを質量比 15 / 1 となるように配合し、水 / イソプロピルアルコール = 95 / 5 (質量比) の混合液で固形分 6.5 質量% に希釈した溶液

(e) 液 : テトラエトキシシランと 3-グリシドキシプロピルトリメトキシシランとを質量比 10 (SiO<sub>2</sub> 換算) / 1 で配合し、0.3 N 塩酸を加えて加水分解させ、水 / メタノール = 1 / 1 (質量比) の混合液で固形分 11 質量% に希釈した加水分解溶液

[0083] (コーティング液 D)

ポリ塩化ビニリデン系樹脂 (旭化成社製、商品名「サランレジン F216」) をトルエンとメチルエチルケトンとの混合有機溶媒 (質量比 : トルエン

／メチルエチルケトン＝1／2)に溶解させた、ポリ塩化ビニリデン系樹脂溶液（固形分5質量％）。

[0084] [実施例1、2及び比較例1～4]

<バリアフィルムの作製>

基材フィルムとして、厚さ20 $\mu\text{m}$ の延伸ポリプロピレンフィルムを準備した。基材フィルムの一方向の面に、アクリルポリオールにトリレンジイソシアネートをアクリルポリオールのOH基に対しNCO基が等量となるように加え、全固形分が5質量％になるよう酢酸エチルで希釈し、 $\beta$ -（3，4エポキシシクロヘキシル）トリメトキシシランを全固形分に対し、5質量％添加して混合した溶液をグラビアコートにより塗布乾燥し、厚さ0.1 $\mu\text{m}$ のアンカーコート層を形成した。次にアンカーコート層上に、減圧下の酸素雰囲気中で高周波励起イオンプレーティングによる反応性蒸着により、厚さ30nmの酸化ケイ素の薄膜を蒸着し、蒸着層を形成した。更に蒸着層上に、ガスバリア性被覆層を形成した。ガスバリア性被覆層としては、コーティング液A～Dのいずれかの溶液を、グラビアコート法により塗布した後、80 $^{\circ}\text{C}$ 20秒の条件下にて乾燥して形成した。コーティング液の種類及びガスバリア性被覆層の厚さは表1に示す。

[0085] [実施例3]

<積層体の作製>

実施例1で作製したバリアフィルムのガスバリア性被覆層側の面に、シーラント層としての厚さ60 $\mu\text{m}$ の未延伸ポリプロピレンフィルムを、2液硬化型ウレタン系接着剤を介してドライラミネート法により貼り合わせ、積層体を作製した。

[0086] [実施例4]

<積層体の作製>

比較例1で作製したバリアフィルムを用いたこと以外は実施例3と同様にして、積層体を作製した。

[0087] [比較例5]

### <積層体の作製>

比較例4で作製したバリアフィルムを用いたこと以外は実施例3と同様にして、積層体を作製した。

#### [0088] (塩素量の測定)

実施例及び比較例で得られたバリアフィルム及び積層体の塩素量の測定を、蛍光X線分析装置(リガク社製、波長分散型蛍光X線分析装置Supermini)を用いて行った。測定前にPHA調整試料(リガク社製)を使用して、PC検出器の分解能が45%以下であることを確認した。測定は以下に示す条件にて行った。下記条件にて測定を実施し、求められた塩素原子(C1)のネット強度(kcps)をフィルム表面のX線強度とした。

検出スペクトル: C1-KA

X線間励起条件: ターゲットPb、管電圧50kV、管電流4.00mA

分光結晶: PET

検出器: PC(プロポーショナルカウンター)

スキャン条件: 開始角度62.0deg、終了角度69.0deg、ステップ0.05deg、時間0.2sec、速度15deg/min、ピーク角度65.44deg

[0089] バリアフィルムについては、その両面から検出される塩素原子の蛍光X線強度(kcps)を測定し、両面の塩素原子の蛍光X線強度の和を求めた。求めた塩素原子の蛍光X線強度の和をバリアフィルムの厚さで割った値を、塩素量(kcps/ $\mu$ m)とした。積層体については、積層体から基材フィルム及びシーラント層を剥離し、それぞれの樹脂フィルムの両面から検出される塩素原子の蛍光X線強度(kcps)を測定し、全ての面の塩素原子の蛍光X線強度の和を求めた。求めた塩素原子の蛍光X線強度の和を積層体の厚さで割った値を塩素量(kcps/ $\mu$ m)とした。結果を表1及び表2に示す。

#### [0090] (溶融物の着色及びメルトマスフローレイトの評価)

実施例及び比較例で得られたバリアフィルム及び積層体を適度なサイズに

カットし、溶融粘度測定装置（東洋精機製作所社製、商品名「メルトインデックサ F-F01」）を使用して、JIS K7210に示される方法に準拠して、温度230℃、2.16kgfの条件にて溶融押出を行った。押し出された溶融樹脂の外観を目視にて観察し、着色の有無及びリサイクル性を下記の通り評価した。

A：着色が確認されず、リサイクル性に優れる

B：着色が確認され、リサイクル性が劣る

C：着色が酷く、リサイクル不可

[0091] また、上記条件で溶融押出を行った際の溶融樹脂のメルトマスフローレート（MFR、単位：g/10min.）を測定した。MFRは5回測定を行い、その平均値を用いた。MFRが6.0g/min.以上の値の場合はポリプロピレンの酸化分解が始まっているため、リサイクル適性に劣る。着色の有無及びMFRの評価結果を表1及び表2に示す。

[0092]（酸素透過度の測定）

バリアフィルム及び積層体の酸素透過度の測定を行った。測定は、酸素透過度測定装置（Modern Control社製、商品名「OXTRAN 2/20」）を用いて、温度30℃、相対湿度70%の条件で測定した。測定方法は、JIS K7126-2（等圧法）、及び、ASTM D3985-81に準拠し、測定値は単位 [cm<sup>3</sup> (STP) / m<sup>2</sup> · day · MPa] で表記した。結果を表1及び表2に示す。

[0093] [表1]

	コーティング液	ガスバリア性被覆層の厚さ (μm)	塩素量 (kcps/μm)	着色評価	MFR (g/10min.)	酸素透過度 (cm <sup>3</sup> /m <sup>2</sup> · day · MPa)
実施例1	A	0.3	0.012	A	4.5	0.5
実施例2	B	0.4	0.011	A	2.1	0.3
比較例1	C	0.5	0.036	B	7.8	0.3
比較例2	C	0.3	0.026	B	6.9	0.5
比較例3	A	0.6	0.016	B	6.3	0.2
比較例4	D	1.0	9.4	C	11	8

[0094]

[表2]

	コーティング液	ガスバリア性被覆層の厚さ ( $\mu\text{m}$ )	塩素量 (kcps/ $\mu\text{m}$ )	着色評価	MFR (g/10min.)	酸素透過度 ( $\text{cm}^3/\text{m}^2 \cdot \text{day} \cdot \text{MPa}$ )
実施例3	A	0.3	0.005	A	3.3	0.2
実施例4	C	0.5	0.010	A	4.2	0.2
比較例5	D	1.0	2.3	B	7.5	7

### 産業上の利用可能性

[0095] 本開示のバリアフィルム又は積層体を使用することでリサイクル性が向上し、マテリアルリサイクルに適したモノマテリアル包材を作製することが可能になるため、環境問題、廃棄物問題解決の一助となることが期待できる。

### 符号の説明

[0096] 1…基材フィルム、2…アンカーコート層、3…蒸着層、4…ガスバリア性被覆層、5…接着剤層、6…シーラント層、10…ガスバリア層、100…バリアフィルム、200…積層体。

## 請求の範囲

- [請求項1]           ポリオレフィンを含有する基材フィルムを備えるバリアフィルムであって、
- 前記バリアフィルムの両面を蛍光X線分析装置にて分析した時に、両面から検出される塩素の蛍光X線強度の和を前記基材フィルムの厚さで割った値（塩素の蛍光X線強度の和／基材フィルムの厚さ）が0.015 kcps／ $\mu\text{m}$ 以下である、バリアフィルム。
- [請求項2]           前記基材フィルムの少なくとも一方の面上に形成されたガスバリア層を更に備える、請求項1に記載のバリアフィルム。
- [請求項3]           前記ガスバリア層が、無機酸化物を含有する蒸着層を含む、請求項2に記載のバリアフィルム。
- [請求項4]           前記無機酸化物が、酸化アルミニウム、酸化珪素又はそれらの混合物を含む、請求項3に記載のバリアフィルム。
- [請求項5]           前記ガスバリア層がガスバリア性被覆層を含む、請求項2～4のいずれか一項に記載のバリアフィルム。
- [請求項6]           前記ガスバリア性被覆層が、下記一般式（1）で表されるケイ素化合物及びその加水分解物のうちの少なくとも一種と、下記一般式（2）で表されるケイ素化合物及びその加水分解物のうちの少なくとも一種と、水酸基を有する水溶性高分子と、を含有するガスバリア性被覆層形成用組成物を用いて形成された層である、請求項5に記載のバリアフィルム。
- $$\text{Si}(\text{OR}^1)_4 \quad \dots (1)$$
- $$(\text{R}^2\text{Si}(\text{OR}^3)_3)_n \quad \dots (2)$$
- [一般式（1）及び（2）中、 $\text{R}^1$ 及び $\text{R}^3$ はそれぞれ独立に、 $\text{CH}_3$ 、 $\text{C}_2\text{H}_5$ 、又は、 $\text{C}_2\text{H}_4\text{OCH}_3$ を示し、 $\text{R}^2$ は有機官能基を示し、 $n$ は1以上の整数を示す。]
- [請求項7]           前記ガスバリア性被覆層が、ポリウレタン樹脂と、水酸基を有する水溶性高分子と、硬化剤とを含有するガスバリア性被覆層形成用組成

物を用いて形成された層であり、

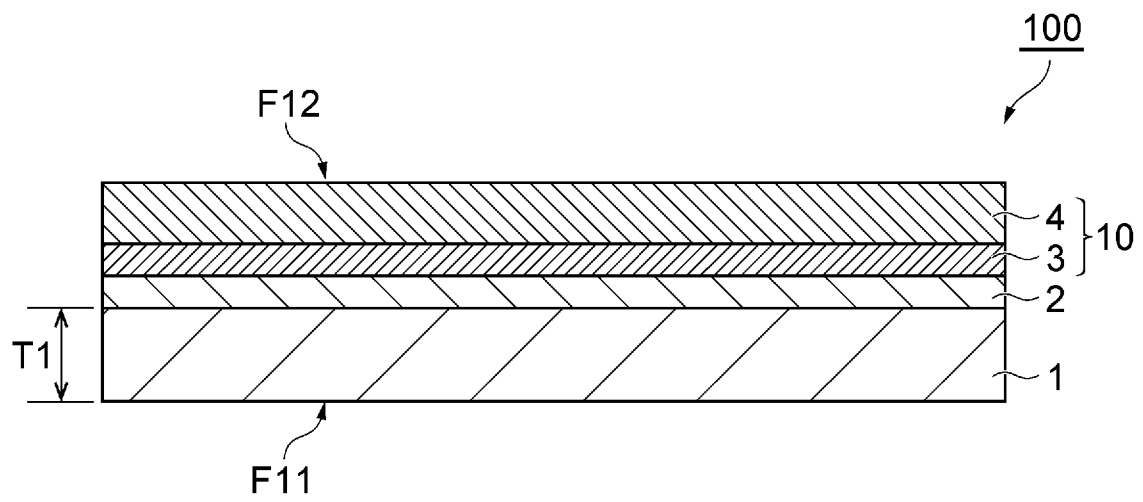
前記ポリウレタン樹脂が、酸基を含有する酸基含有ポリウレタン樹脂と、アミノ基を有するポリアミン化合物との反応生成物を含む、請求項5に記載のバリアフィルム。

[請求項8] 前記ポリオレフィンがポリプロピレンである、請求項1～7のいずれか一項に記載のバリアフィルム。

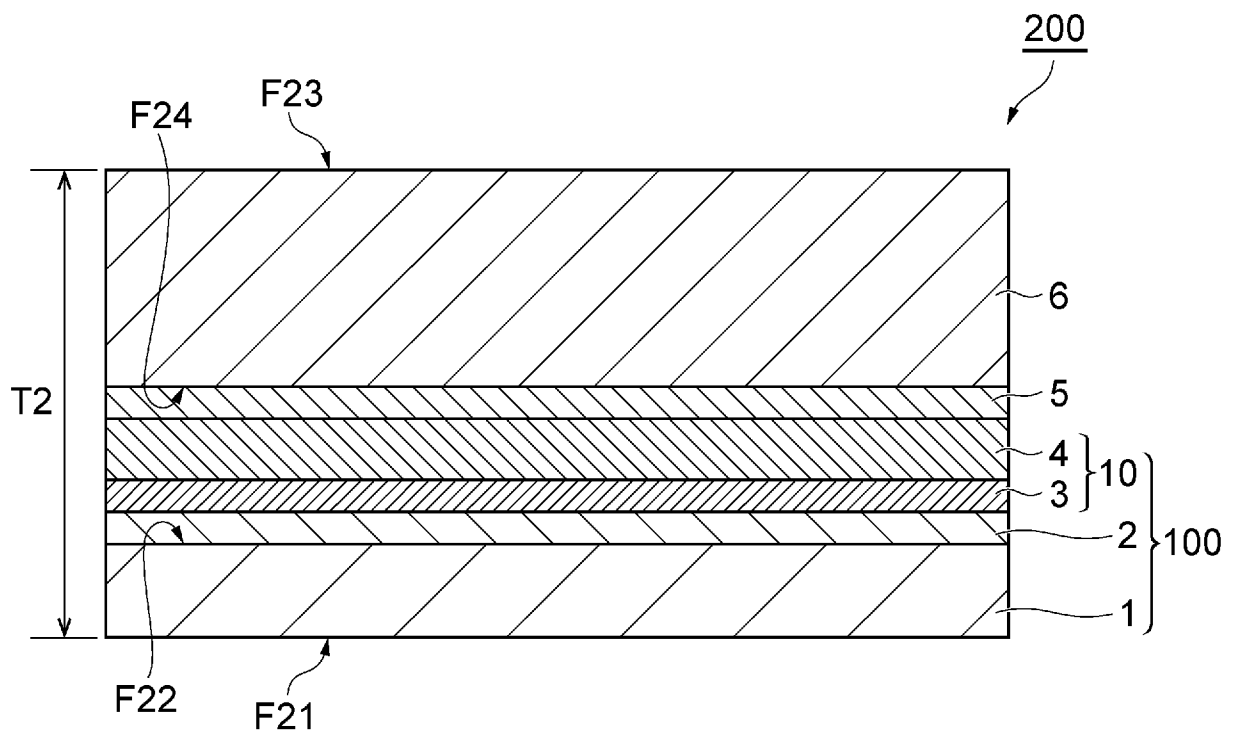
[請求項9] ポリオレフィンを含有する樹脂フィルムを2以上備える積層体であって、

前記積層体から各樹脂フィルムを剥離し、全ての前記樹脂フィルムの両面を蛍光X線分析装置にて分析した時に、全ての前記樹脂フィルムの全ての面から検出される塩素の蛍光X線強度の和を前記積層体の厚さで割った値（塩素の蛍光X線強度の和／積層体の厚さ）が0.015 kcps /  $\mu\text{m}$ 以下である、積層体。

[図1]



[図2]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/006986

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
<i>B32B 9/00</i> (2006.01)i; <i>B32B 27/00</i> (2006.01)i; <i>B32B 27/32</i> (2006.01)i; <i>B32B 27/40</i> (2006.01)i; <i>B32B 7/02</i> (2019.01)i FI: B32B27/32; B32B7/02; B32B9/00 A; B32B27/40; B32B27/00 101		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) B32B1/00-43/00		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2022 Registered utility model specifications of Japan 1996-2022 Published registered utility model applications of Japan 1994-2022		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2017-222151 A (TOPPAN PRINTING CO., LTD.) 21 December 2017 (2017-12-21) claims 1-7, paragraph [0001], examples 17, 18	1-5, 7-9
X	WO 2016/158794 A1 (TOPPAN PRINTING CO., LTD.) 06 October 2016 (2016-10-06) claims 1-21, paragraph [0006], examples 3-3, 3-4	1-6, 8-9
X	JP 2014-156017 A (TOPPAN PRINTING CO., LTD.) 28 August 2014 (2014-08-28) claims 1-4, paragraph [0001], examples 11, 12	1-2, 5, 7-9
P, X	JP 6962437 B1 (TOPPAN PRINTING CO., LTD.) 05 November 2021 (2021-11-05) claims 1-10, examples 1-9	1-5, 7-9
E, X	WO 2022/044502 A1 (TOPPAN PRINTING CO., LTD.) 03 March 2022 (2022-03-03) claims 1-8, examples 1-5	1-9
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> 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 <b>14 April 2022</b>		Date of mailing of the international search report <b>26 April 2022</b>
Name and mailing address of the ISA/JP <b>Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan</b>		Authorized officer  Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
**Information on patent family members**

International application No. <b>PCT/JP2022/006986</b>
---

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2017-222151 A	21 December 2017	(Family: none)	
WO 2016/158794 A1	06 October 2016	US 2018/0009206 A1 claims 1-21, paragraph [0008], examples 3-3, 3-4 EP 3275651 A1 CN 107405896 A	
JP 2014-156017 A	28 August 2014	(Family: none)	
JP 6962437 B1	05 November 2021	(Family: none)	
WO 2022/044502 A1	03 March 2022	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） B32B 9/00(2006.01)i; B32B 27/00(2006.01)i; B32B 27/32(2006.01)i; B32B 27/40(2006.01)i; B32B 7/02(2019.01)i FI: B32B27/32; B32B7/02; B32B9/00 A; B32B27/40; B32B27/00 101		
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（IPC）） B32B1/00-43/00 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 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2022年 日本国実用新案登録公報 1996-2022年 日本国登録実用新案公報 1994-2022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）		
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 2017-222151 A (凸版印刷株式会社) 21.12.2017 (2017-12-21) [請求項1] - [請求項7]、[0001]、実施例17-18	1-5, 7-9
X	WO 2016/158794 A1 (凸版印刷株式会社) 06.10.2016 (2016-10-06) [請求項1] - [請求項21]、[0006]、実施例3-3、3-4	1-6, 8-9
X	JP 2014-156017 A (凸版印刷株式会社) 28.08.2014 (2014-08-28) [請求項1] - [請求項4]、[0001]、実施例11-12	1-2, 5, 7-9
P, X	JP 6962437 B1 (凸版印刷株式会社) 05.11.2021 (2021-11-05) [請求項1] - [請求項10]、実施例1-9	1-5, 7-9
E, X	WO 2022/044502 A1 (凸版印刷株式会社) 03.03.2022 (2022-03-03) [請求項1] - [請求項8]、実施例1-5	1-9
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> 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	“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抵触するものではなく、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	
“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	
国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日	
14.04.2022	26.04.2022	
名称及びあて先	権限のある職員（特許庁審査官）	
日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	南 宏樹 4S 6288	
	電話番号 03-3581-1101 内線 3474	

国際調査報告  
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号  
 PCT/JP2022/006986

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2017-222151 A	21.12.2017	(ファミリーなし)	
WO 2016/158794 A1	06.10.2016	US 2018/0009206 A1 Claims 1-21, [0008], Examples 3-3, 3-4 EP 3275651 A1 CN 107405896 A	
JP 2014-156017 A	28.08.2014	(ファミリーなし)	
JP 6962437 B1	05.11.2021	(ファミリーなし)	
WO 2022/044502 A1	03.03.2022	(ファミリーなし)	