(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
2024年5月10日(10.05.2024)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2024/095940 A1

(51) 国際特許分類:
B32B 27/36 (2006.01) *C08J 5/18* (2006.01)
B29B 17/02 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2023/039010

(22) 国際出願日： 2023年10月30日(30.10.2023)

(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 2022-174685 2022年10月31日(31.10.2022) JP

(71) 出願人: 東洋紡株式会社(**TOYOBO CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒5300001 大阪府大阪市北区梅田一丁目１３番１号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 池内 祐介 (**IKEUCHI,Yusuke**); 〒5200292 滋賀県大津市堅田二丁目１番１号 東洋紡株式会社内 Shiga (JP). 稲垣 潤 (**INAGAKI,Jun**); 〒5200292 滋賀県大津市堅田二丁目１番１号 東洋紡株式会社内 Shiga (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人ユニアス国際特許事務所 (**UNIUS PATENT ATTORNEYS OFFICE**); 〒5320011 大阪府大阪市淀川区西中島５丁目１３－９ 新大阪ＭＴビル１号館２階 Osaka (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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, 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, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, 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, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, 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：
— 国際調査報告（条約第21条(3)）

(54) **Title:** LAMINATED FILM, RESIN COMPOSITION, AND METHOD FOR PRODUCING SAME

(54) 発明の名称： 積層フィルム、樹脂組成物、及びその製造方法

(57) **Abstract:** Provided are: a laminated film that exhibits less deposition of cyclic oligomers, that has excellent transparency after being heated, and that has excellent recycling characteristics and is sustainable; a resin composition; and a resin composition production method. A laminated film according to the present invention includes a base material layer A formed of a first composition containing a polyethylene terephthalate resin, and a decomposition layer B formed of a second composition containing an aliphatic polyester resin. In the laminated film, the base material layer A is in contact with the decomposition layer B, and at least one of the outermost layers is the base material layer A. Preferably, the base material layer A is provided in contact with both surfaces of the decomposition layer B, and both of the outermost layers are the base material layer A.

(57) 要約：環状オリゴマーの析出が少ない、加熱加工後の透明性に優れ、リサイクル性に優れた持続可能な積層フィルム、樹脂組成物、樹脂組成物の製造方法を提供する。本発明の積層フィルムは、ポリエチレンテレフタレート樹脂を含む第１組成物で構成される基材層Ａと、脂肪族ポリエステル樹脂を含む第２組成物で構成される分解層Ｂとを含む。積層フィルムにおいて、前記基材層Ａが前記分解層Ｂに接しており、少なくとも一方の最外層が前記基材層Ａである。好ましくは、前記基材層Ａが、前記分解層Ｂの両表面に接して設けられ、両方の最外層が前記基材層Ａである。

WO 2024/095940 A1

明　細　書

発明の名称 ： 積層フィルム、樹脂組成物、及びその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、ポリエチレンテレフタレート樹脂で構成される積層フィルム、この積層フィルムをマテリアルリサイクルした樹脂組成物、及びこの樹脂組成物の製造方法に関する。

背景技術

[0002] ポリエチレンテレフタレート（以下、「ＰＥＴ」と称することもある）樹脂で構成されるフィルムは、機械的強度、寸法安定性、平坦性、耐熱性、耐薬品性、光学特性等に優れた特性を有し、コストパフォーマンスに優れる。

[0003] しかし、例えば、非特許文献１に記載のように、従来から公知のＰＥＴ樹脂は、数質量％の環状３量体等を含む環状オリゴマーを含有している。モノマーからＰＥＴに重合する際、環状オリゴマーが副生成物として生成される。環状オリゴマーのうち環状３量体の含有量が最も多いことが知られている。

[0004] 環状オリゴマーに関しては、ＰＥＴフィルムを加熱処理すると、ＰＥＴフィルム中に含まれる環状オリゴマーが表面に析出するという問題があった。例えば、ＰＥＴフィルムの表面への環状オリゴマーの析出は、工業用途等の高度に透明性や品位が要求される場合、ＰＥＴフィルムの加熱工程時に白化してＰＥＴフィルムの透明性が損なわれ、優れた品位が得られないという問題があった。また食品など包装用途として用いる場合には、印刷時の抜けやラミネート不良などを発生させ、パッケージ加工時の歩留まりに大きく悪影響を及ぼすという問題があった。

[0005] このような問題を解決するために、ＰＥＴ原料から改善する方法が従来よりあった。例えば、特許文献１、２は、重縮合反応により得られたポリエステルを減圧条件下または不活性ガス流通下で、１８０℃から該ポリエステルの融点までの温度で加熱処理して環状オリゴマーを０．５重量％以下に減少

させる固相重合法を開示している。

先行技術文献

非特許文献

[0006] 非特許文献1：Ｄ．Ｒ．Ｃｏｏｐｅｒａｎｄ，Ｊ．Ａ．Ｓｅｍｌｙｅｎ；Ｐｏｌｙｍｅｒ，１４，１８５－１９２（１９７３）

特許文献

[0007] 特許文献1：特開昭５１－４８５０５号公報

特許文献2：特開昭５３－１０１０９２号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] しかしながら、ＳＤＧｓの観点から、環状オリゴマーを大きなエネルギーを使用して低減させる方法は好ましくない。リサイクルフィルム業界では近年、ＳＤＧｓの観点から大きなエネルギーを使用した特殊な処理をＰＥＴ原料へ行う必要がない、リサイクル性に優れた持続可能な積層フィルムが求められている。

[0009] 本発明は、環状オリゴマーの析出が少ない、加熱加工後の透明性に優れ、リサイクル性に優れた持続可能な積層フィルム、樹脂組成物、及びその製造方法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

[0010] リサイクル性に優れた持続可能な積層フィルムに関して本願発明者らが鋭意研究した結果、環状オリゴマーの含有量が高い一般的なＰＥＴ樹脂を含む基材層Ａに脂肪族ポリエステル樹脂を含む分解層Ｂを隣接させて積層することで、環状オリゴマーの析出を抑制できることを見出した。

[0011] またポリ乳酸を含む脂肪族ポリエステル樹脂は、加水分解性を有する。そこで本願発明者らは、積層フィルムから分解層Ｂを水蒸気又は熱水で分解してから基材層Ａ層を取り出しマテリアルリサイクルし、ポリエチレンテレフタレート樹脂を含有する樹脂組成物を生成する樹脂組成物の製造方法を発明

した。そのため、本発明の積層フィルムはリサイクル性に優れた持続可能な構成も有している。

[0012] 本発明は上記課題を解決するため、以下の構成を有する。

［１］ ポリエチレンテレフタレート樹脂を含む第１組成物で構成される基材層Ａと、脂肪族ポリエステル樹脂を含む第２組成物で構成される分解層Ｂとを含む積層フィルムであって、

前記基材層Ａが前記分解層Ｂに接しており、

少なくとも一方の最外層が前記基材層Ａである積層フィルム。

［２］ 前記基材層Ａが、前記分解層Ｂの両表面に接して設けられ、両方の最外層が前記基材層Ａである［１］に記載の積層フィルム。

［３］ １５０℃、６０分間加熱したときのフィルム外部ヘイズＸが３．０％以下である［１］又は［２］に記載の積層フィルム。

［４］ 前記基材層Ａの全質量に対してポリエチレンテレフタレート樹脂中の環状３量体の含有量が０．９質量％以上である［１］～［３］何れかに記載の積層フィルム。

［５］ 積層フィルムの厚みに対する、全ての前記基材層Ａの厚みの合計の比率が３５％以下である［１］～［４］何れかに記載の積層フィルム。

［６］ 前記基材層Ａと前記分解層Ｂとの剥離強度が２０ｍＮ／１５ｍｍ以上である、［１］～［５］何れかに記載の積層フィルム。

［７］ 前記脂肪族ポリエステルがポリ乳酸である［１］～［６］何れかに記載の積層フィルム。

［８］ ［１］～［７］のいずれか１項に記載の積層フィルムから前記分解層Ｂを除去してから前記基材層Ａを取り出しマテリアルリサイクルした、ポリエチレンテレフタレート樹脂を含有する樹脂組成物。

［９］ ［１］～［７］のいずれか１項に記載の積層フィルムから前記分解層Ｂを水蒸気又は熱水で分解してから前記基材層Ａを取り出しマテリアルリサイクルし、ポリエチレンテレフタレート樹脂を含有する樹脂組成物を生成する樹脂組成物の製造方法。

発明の効果

[0013] 本発明の積層フィルムは、加熱加工後の透明性に優れ、環状オリゴマーの析出を抑制できる。そのため、高温での後加工処理が可能で、且つ、製膜工程内の汚染も少ないため、高品位が必要とされる光学用途をはじめとした工業用途および精密な印刷やラミネート加工を行う包装用材料として好適である。さらに、大きなエネルギーを使用した特殊な原料を用いず、ＳＤＧｓに配慮した優れたリサイクル性を有する。

発明を実施するための形態

[0014] （積層フィルムの層構成）

本発明は少なくとも、ポリエチレンテレフタレート（以下、単にＰＥＴという）樹脂を含む第１組成物で構成される基材層Ａと、脂肪族ポリエステル樹脂を含む第２組成物で構成される分解層Ｂとを含む積層フィルムである。

[0015] 積層フィルムの層構成としては、少なくとも一方の最外層にＰＥＴ層（基材層Ａ）を有し、これと隣接して中間に脂肪族ポリエステル層（分解層Ｂ）を有する複層構成である必要がある。層構成はＢ／ＡやＡ／ＢやＡ／Ｂ／ＡやＡ／Ｂ／Ａ／Ｂ／Ａ、Ａ／Ｂ＋Ａ／Ａ、Ａ／Ｂ／Ａ＋Ｂ／Ｂ／Ａなどを取ることができる。ここで、「Ｂ＋Ａ」又は「Ａ＋Ｂ」は、ポリエチレンテレフタレート樹脂と脂肪族ポリエステル樹脂とを含む層であって、主成分である前者に後者が配合されていることを意味する。また、基材層Ａ同士又は分解層Ｂ同士は、同一の組成でも異なる組成でもよいが、同一の組成であることが好ましい。なお、最外層にＰＥＴ層があり、ＰＥＴ層に脂肪族ポリエステル層が接していれば、他の構成をとってもよい。

[0016] ここで、ＰＥＴ樹脂は、数％の環状３量体等を含む環状オリゴマーを含有している。モノマーからＰＥＴに重合する際、環状オリゴマーが副生成物として生成される。環状オリゴマーのうち環状３量体の含有量が最も多いことが知られている。

[0017] 環状オリゴマーに関しては、ＰＥＴフィルムを加熱処理すると、ＰＥＴフィルム中に含まれる環状オリゴマーが表面に析出するという問題がある。Ｐ

ＥＴ中の環状３量体は加熱処理により分子運動性が高まるとＰＥＴフィルム内部を移行し、ＰＥＴフィルム表面に析出した場合、結晶化することにより白色化すると考えられる。

[0018] しかしながら、本発明の積層フィルムでは、ＰＥＴ樹脂より嵩密度の小さい脂肪族ポリエステル樹脂を含む分解層ＢがＰＥＴ樹脂を含む基材層Ａに積層している。

[0019] そのため、基材層Ａ内の環状３量体は分解層Ｂに優先的に移行すると考えられる。このため本発明は、ＰＥＴフィルムの表面へ環状オリゴマーが析出することを抑制できる。

[0020] 本発明では、特に、基材層Ａが、分解層Ｂの両表面に接して設けられ、両方の最外層が基材層Ａであることが好ましい。基材層Ａが、分解層Ｂの両表面に接して設けられることで、加熱加工時に効率良く環状３量体を分解層Ｂへ移行させることができる。また、両方の最外層が基材層Ａであることにより、環状３量体が表面に析出するのを抑制しつつ、ＰＥＴ層の有する高い機械特性、耐薬品性などを発現させ易くすることができる。このような観点から、Ａ／Ｂ／Ａの層構成を有することが、最も好ましい。

[0021] 層比率について、積層フィルムの厚みに対する全てのＰＥＴ層（基材層Ａ）の厚みの合計の比率は５％以上３５％以下が好ましく、１０％以上２５％以下がより好ましい。全てのＰＥＴ層（基材層Ａ）の厚みの合計の比率が５％以上の場合は、ＰＥＴ層の有する高い機械特性、耐薬品性などが発現する。一方、全てのＰＥＴ層（基材層Ａ）の厚みの合計の比率が３５％以下の場合、加熱白化特性が低下することを抑制できる。

[0022] （ポリエチレンテレフタレート）

基材層Ａは、ＰＥＴ樹脂を含む第１組成物で構成される。ＰＥＴ樹脂の優れた特性を発現させる観点から、第１組成物を構成する樹脂１００質量％中に、ＰＥＴ樹脂は９０質量％以上含有されることが好ましく、９８質量％以上含有されることがより好ましく、１００質量％含有されることが最も好ましい。

[0023] ＰＥＴ樹脂の重合法としては、テレフタル酸とエチレングリコール、および必要に応じて他のジカルボン酸成分およびジオール成分を直接反応させる直接重合法、およびテレフタル酸のジメチルエステル（必要に応じて他のジカルボン酸のメチルエステルを含む）とエチレングリコール（必要に応じて他のジオール成分を含む）とをエステル交換反応させるエステル交換法等の任意の製造方法が利用され得る。

[0024] また、ＰＥＴ樹脂の固有粘度は、０．４５以上０．７０以下の範囲が好ましい。固有粘度が０．４５以上の場合、ＰＥＴフィルムが裂けることを防止できる。０．７０以下の場合、濾圧上昇が小さくなって高精度濾過が容易となる。

[0025] 本発明では、ＰＥＴ中の環状３量体の含有量がある程度大きくても、加熱加工後に環状３量体が表面に析出するのを抑制することができる。従って、ＰＥＴ中の環状３量体含有量は、大きなエネルギーを使用しなくても済むため、基材層Ａの全質量に対して０．９質量％以上であることが好ましい。樹脂溶融温度によって平衡オリゴマー濃度は変化するが、通常２７０～３１０℃で溶融押出しすることを踏まえると環状３量体の含有量の上限は１．１質量％である。環状３量体の含有量を０．９質量％未満にするためには、大きなエネルギーを使用した特殊な処理をＰＥＴ原料に施すことが必要となる。更に、ＰＥＴ原料に特殊な処理を施したとしても、ＰＥＴ原料を溶融押出してＰＥＴフィルムを製膜する際、最終的に環状オリゴマーが再生成してしまうため、ＳＤＧｓの観点から好ましくない。

[0026] （脂肪族ポリエステル）

分解層Ｂは、脂肪族ポリエステル樹脂を含む第２組成物で構成され、水蒸気又は熱水による加水分解性を有している。加水分解性の観点から、第２組成物を構成する樹脂１００質量％中に、脂肪族ポリエステル樹脂は６０質量％以上含有されることが好ましく、

８０質量％以上含有されることがより好ましく、１００質量％含有されることが最も好ましい。

[0027] 本発明に用いられる脂肪族ポリエステルとしては、ポリグリコール酸、ポリ－Ｌ－乳酸、ポリ－Ｄ－乳酸、ポリ（β－ヒドロキシ酪酸）、ポリ（ε－カプロラクトン）、ポリエチレンサクシネート、ポリブチレンサクシネート、ポリ（ブチレンサクシネート－ブチレンアジペート）などを用いることができる。なかでも、脂肪族ポリエステル樹脂としては、加水分解性、加熱時の物性、生分解性、バイオマス原料由来などの観点から、ポリ－Ｌ－乳酸、及び／又はポリ－Ｄ－乳酸が好ましい。

[0028] 本発明で用いるポリエステル中には、使用する目的に応じて、無機粒子、耐熱性高分子粒子、架橋高分子粒子などの不活性粒子、蛍光増白剤、紫外線防止剤、赤外線吸収色素、熱安定剤、界面活性剤、酸化防止剤などの各種添加剤を１種もしくは２種以上含有させることができる。酸化防止剤としては、芳香族アミン系、フェノール系などの酸化防止剤が使用可能であり、安定剤としては、リン酸やリン酸エステル系等のリン系、イオウ系、アミン系などの安定剤が使用可能である。

[0029] （積層フィルムの製造方法）

本発明に使用される積層フィルムは、機械的強度、耐薬品性、耐熱性などの点から、配向積層フィルムであることが好ましく、より好ましくは二軸配向積層フィルムである。

[0030] 本発明の積層フィルムは、配向積層フィルムの場合、前記ポリエステルチップを押出機において溶融する溶融工程、押出機から溶融樹脂を押出すことにより未延伸フィルムを形成するフィルム化工程、未延伸フィルムの少なくとも一方向に延伸する延伸工程、および、延伸したフィルムを熱処理する熱固定工程を経ることにより製造することが望ましい。

[0031] 本発明の積層フィルムの延伸方法は特に限定されず、逐次二軸延伸方法、または同時二軸延伸方法が適宜使用される。

[0032] 基材層ＡであるＰＥＴ層と、分解層Ｂである脂肪族ポリエステル層とを共押出し積層するためには、２台以上の押出し機を用いて、各層の原料を押出し、多層フィードブロック（例えば角型合流部を有する合流ブロック）を用

いて両層を合流させ、スリット状のダイからシート状に押出し、キャスティングロール上で冷却固化せしめて未延伸フィルムを作る。あるいは多層フィードブロックを用いる代わりにマルチマニホールドダイを用いても良い。

[0033] 次いで、該未延伸フィルムを延伸・配向処理するが、以下では、最も一般的に用いられる逐次二軸延伸方法、特に未延伸フィルムを長手方向に縦延伸し、次いで幅方向に横延伸する方法を例に説明する。まず、長手方向への縦延伸工程では、フィルムを加熱し、周速が異なる２本あるいは多数本のロール間で１．１～６倍に延伸する。このときの加熱手段としては、加熱ロールを用いる方法でも非接触の加熱媒体を用いる方法でもよく、これらを併用してもよい。この際、フィルムの温度を（Ｔｇ－１０℃）～（Ｔｇ＋５０℃）の範囲とすることが好ましい。次いで１軸延伸フィルムをテンターに導入し、幅方向に（Ｔｇ－１０℃）～（Ｔｍ－１０℃）以下の温度で１．１～６倍に延伸することで２軸延伸フィルムが得られる。

[0034] さらに、延伸終了後、ＰＥＴフィルムの熱収縮率を低減させるために、熱固定工程において、３０秒以内、好ましくは１０秒以内で熱固定処理を行い、０．５～１０％の縦弛緩処理、横弛緩処理などを施すことが好ましい。

[0035] 熱固定温度は特に限定されないが、脂肪族ポリエステルの融点＋２０℃以上であることがより好ましく、脂肪族ポリエステルの融点＋４０℃以上であることが更に好ましい。熱固定温度の上限はＰＥＴの融点である２６０℃である。脂肪族ポリエステルの融点以上である場合、フィルム層間の剥離強度が向上するため好ましい。また、熱固定温度が脂肪族ポリエステルの融点以上である場合、嵩密度のより小さい非晶領域が増加することにより加熱時白化性が抑制されるため好ましい。

[0036] （積層フィルムの物性）

本発明の積層フィルムの厚みは、２μｍ以上５００μｍ以下であることが好ましく、より好ましく１５μｍ以上４００μｍ以下であり、さらに好ましくは２０μｍ以上２５０μｍ以下である。積層フィルムの厚みが２μｍ以上の場合、積層フィルムが最低限の剛性を有し取り扱いが容易である。また積

層フィルムの厚みが５００μｍ以下の場合、積層フィルムを複数のロールで搬送する際の積層フィルムの搬送性や製造された積層フィルムの取扱い性が向上し、取り扱いが容易となる。

[0037] 積層フィルムの破断強度は、ＭＤ方向及びＴＤ方向とも７５ＭＰａ以上であることが好ましい。破断強度の好ましい下限は１００ＭＰａ、より好ましい下限は１２５ＭＰａ、さらに好ましい下限は１５０ＭＰａ、よりさらに好ましい下限は１７５ＭＰａである。破断強度が７５ＭＰａ以上では、積層フィルムの力学的強度が十分となり、積層フィルムの加工工程で伸び、ズレ等の不具合を生じることを抑制できるので好ましい。製造上の点を考慮して、上限は４００ＭＰａであると考えられる。

[0038] 積層フィルムの破断伸度は、ＭＤ方向及びＴＤ方向とも１０％以上であることが好ましい。破断伸度が１０％以上では、積層フィルムの力学的伸度が十分となり、積層フィルムの加工工程で割れ、破れ等の不具合が生じることを抑制できるので好ましい。製造上の点を考慮して、上限は３００％であると考えられる。

[0039] 積層フィルムにおいて、PET樹脂を含む基材層Ａと脂肪族ポリエステル樹脂を含む分解層Ｂとの剥離強度が２０ｍＮ／１５ｍｍ以上であることが好ましい。より好ましくは１００ｍＮ／１５ｍｍ以上である。剥離強度が２０ｍＮ／１５ｍｍ以上では、基材層Ａと分解層Ｂが容易に剥がれず、積層構成を維持できるので好ましい。剥離強度は高ければ高いほど良いが、製造上の観点から上限は１０００ｍＮ／１５ｍｍであると考えられる。

[0040] 積層フィルムのインパクト強度（耐衝撃性）は、０．１Ｊ／１５μｍ以上であることが好ましい。インパクト強度（耐衝撃性）が０．１Ｊ／１５μｍ以上では、衝撃を受けた際に容易に破れず、積層フィルムは、フィルムとしての形状を保つことができるので好ましい。インパクト強度（耐衝撃性）は高ければ高いほど良いが、製造上の観点から上限は３．０Ｊ／１５μｍであると考えられる。

[0041] 積層フィルムは、１５０℃で３０分間加熱したときの熱収縮率がＭＤ方向

およびＴＤ方向とも５０％以下であることが好ましく、より好ましくは３０％以下であり、さらに好ましくは２０％以下であり、さらにより好ましくは１０％以下であり、特に好ましくは８％以下であり、最も好ましくは４．５％以下である。熱収縮率が大きいとコーティング実施が困難になること、および高熱化でのフィルムの変形による外観不良などが発生する。上記熱収縮率は低いことが好ましいが、製造上の点から０．０１％が下限と考えられる。

[0042] 積層フィルムの全光線透過率は、７５％以上であることが好ましい。積層フィルムの欠点となる内部異物の検出精度を向上させるためには、透明性が高いことが好ましい。そのため、本発明の積層フィルムの全光線透過率は７５％以上が好ましく、８０％以上がより好ましく、８５％以上がさらに好ましく、８８％以上が特に好ましい。積層フィルムの欠点となる内部異物の検出精度を向上させるためには、全光線透過率は高ければ高いほどよいが、１００％の全光線透過率は技術的に達成困難である。製造上の観点から全光線透過率は１００％未満であることが好ましい。

[0043] 積層フィルムを１５０℃、６０分間加熱したときのフィルム外部ヘイズＸは、３．０％以下であることが好ましく、２．０％以下であることがより好ましい。Ｘが３．０％以下である場合、積層フィルムはフィルムの後加工工程において環状オリゴマーが析出することを抑制でき、積層フィルムを製造する機器（ロール等）が汚染することを防止できる。また積層フィルムは透明性に優れる。本発明における好ましいＸの下限は１．０％であり、より好ましくは０．５％である。実質的な下限は０％であると考えられる。なお、加熱処理前の全ヘイズは約０．２％以下であり、外部ヘイズはこれより小さいため、加熱処理の前後における外部ヘイズの変化量は、加熱処理後のフィルム外部ヘイズＸと同程度になる。

[0044] （樹脂組成物及びその製造方法）

本発明の樹脂組成物は、以上のような本発明の積層フィルムから分解層Ｂを除去してから基材層Ａを取り出しマテリアルリサイクルした、ポリエチレ

ンテレフタレート樹脂を含有する樹脂組成物である。また、本発明の樹脂組成物の製造方法は、以上のような本発明の積層フィルムから前記分解層Ｂを水蒸気又は熱水で分解してから前記基材層Ａを取り出しマテリアルリサイクルし、ポリエチレンテレフタレート樹脂を含有する樹脂組成物を生成するものである。

[0045] ポリ乳酸のような脂肪族ポリエステル樹脂は、加水分解性を有する。そこで、積層フィルムから分解層Ｂを水蒸気又は熱水で分解してから基材層Ａを取り出しマテリアルリサイクルし、ポリエチレンテレフタレート樹脂を含有する樹脂組成物を生成することができる。樹脂組成物は例えばペレット状であり、ポリエチレンテレフタレート樹脂を含有する。そのため、本発明の積層フィルムはリサイクル性に優れた構成も有している。

[0046] なお、マテリアルリサイクルする際のリサイクル処理においては、水蒸気の温度は例えば、常温である２５℃以上、ＰＥＴの融点２５０℃未満である。水蒸気の温度の上限は、２４０℃であることが好ましく、１５０℃であることがより好ましく、１２０℃であることが特に好ましい。水蒸気の温度の下限は、２５℃であることが好ましく、５０℃であることがより好ましく、１００℃であることが特に好ましい。湿度ＲＨの上限は、１００％であることが好ましく、９０％であることがより好ましく、８０％であることが特に好ましい。湿度ＲＨの下限は、５０％であることが好ましく、６０％であることがより好ましく、７０％であることが特に好ましい。水蒸気の圧力の上限は、ゲージ圧で０．５０ＭＰａであることが好ましく、０．３０ＭＰａであることがより好ましく、０．２０ＭＰａであることが特に好ましい。水蒸気の圧力の下限は、ゲージ圧で０．０２ＭＰａであることが好ましく、０．０１ＭＰａであることがより好ましい。

[0047] リサイクル処理は、ロール状態の積層フィルムに対して、バッチ処理で行なうことも可能であるが、水分が内部に拡散しにくいため、フィルム状態で行なうことが好ましい。フィルム状態の積層フィルムに対して、リサイクル処理（加水分解）を行なう場合、長尺体を用いて連続処理する方法の他、枚

葉体、小片切断物、粉末体、スラリー体、フレークなどを用いて、バッチ処理又は連続処理により行なうことができる。

[0048] 効率よく連続処理を行なう観点から、使用後の積層フィルムを粉砕機でフレーク状に粉砕した後に、これを連続的に供給しながら、熱水等で処理することが好ましい。具体的には、加圧下で加熱可能な撹拌槽を具備した装置内に、フレーク状に粉砕した積層フィルムを連続的に撹拌槽に供給して、熱水等で処理した後、ベルトコンベアー方式の金網等でフレークをすくい取り、オーブン等で加熱乾燥することで、連続的に基材層を回収することができる。

[0049] なお、フレークの大きさとしては、最長部の長さを１０ｃｍ以下とするのが好ましく、より好ましくは最長部の長さが５ｃｍ以下である。粉砕機として、クラッシャーやシュレッダーを用いてもよい。

実施例

[0050] 次に、本発明の効果を実施例および比較例を用いて説明する。まず、本発明で使用した特性値の評価方法を下記に示す。

［評価方法］

（１）ヘイズ

ＪＩＳ　Ｋ　７１３６に準拠して、日本電色工業社製ＮＤＨ－７０００II型濁度計を用いて積層フィルムのヘイズを測定した。

[0051] （２）厚み

テスター産業株式会社製ＴＨ－１０４を用いて積層フィルムの厚みを測定した。積層フィルム各層の厚みは、ミクロトームで切り出したフィルム断面を走査型電子顕微鏡（ＳＥＭ）を用いて観察することで、測定した。

[0052] （３）破断強度、破断伸度

積層フィルムの破断強度及び破断伸度は、ＪＩＳ　Ｃ　２３１８に準拠して測定した。積層フィルムのＭＤ方向及びＴＤ方向に対して、それぞれ長さ１２０ｍｍ及び幅１０ｍｍの短冊状に試料を片刃カミソリで切り出した。次いで、株式会社島津製作所製オートグラフＡＧ－ＩＳを用いて短冊状試料を

引っ張り、得られた荷重－歪曲線から各方向の破断強度（ＭＰａ）および破断伸度（％）を求めた。

[0053] （４）剥離強度

積層フィルムを幅１５ｍｍ、長さ１５０ｍｍに切り出して試験片とし、株式会社島津製作所製オートグラフＡＧＳ－Ｘを用いて、積層フィルム層間の剥離強度を引張速度３００ｍｍ／ｍｉｎの条件下で、剥離角度９０度で剥離させたときの強度とした。

[0054] （５）インパクト強度

株式会社東洋精機製作所製のインパクトテスターを用い、２３℃の雰囲気下における積層フィルムの衝撃打ち抜きに対する強度を測定した。衝撃球面は、直径１／２インチのものを用いた。単位はＪであり、測定した積層フィルムの厚みで測定値を割り、厚み１５μｍあたりの評価値を用いた。

[0055] （６）熱収縮率

積層フィルムの熱収縮率はＪＩＳ　Ｃ　２３１８に準拠して測定した。測定すべき方向に対し、積層フィルムを幅１０ｍｍ、長さ１９０ｍｍに切り取り、１５０ｍｍ間隔で印を付け、印の間隔（Ａ）を測定した。次いで、積層フィルムを１５０℃の雰囲気中のオーブンに入れ、無荷重下で１５０±３℃で３０分間加熱処理した後、印の間隔（Ｂ）を測定した。そして、以下の式より熱収縮率を求めた。

熱収縮率（％）＝（Ａ－Ｂ）／Ａ×１００

[0056] （７）全光線透過率

ＪＩＳ　Ｋ　７１３６に準拠して、日本電色工業社製ＮＤＨ－７０００　II型濁度計を用いて積層フィルムの全光線透過率を測定した。

[0057] （８）フィルム外部ヘイズＸ

積層フィルムを１５０℃の雰囲気中のオーブンに入れ、無荷重下で１５０±３℃で６０分間加熱処理した後、測定サンプルとした。測定サンプルを縦５０ｍｍ、横５０ｍｍに切り出し、日本電色工業株式会社製ＮＤＨ－５０００の濁度計を用いて、ＪＩＳ－Ｋ７１３６に準拠して、全ヘイズを測定した

。次いで、測定サンプルの両表面にシリコーンオイルを塗布した後、同様に測定し内部ヘイズを得た。下記式に従って、外部ヘイズＸ（％）を求めた。

外部ヘイズＸ（％）＝全ヘイズ－内部ヘイズ

[0058] （９）環状３量体の含有量

積層フィルムまたはポリエステル樹脂を細かく粉砕し、０．１ｇをヘキサフルオロイソプロパノールール（ＨＦＩＰ）／クロロホルム（２／３（容量比））の混合溶媒３ｍｌに溶解した。得られた溶液にクロロホルム２０ｍｌを加えて均一に混合した。得られた混合液にメタノール１０ｍｌを加え、線状ポリエステルを再沈殿させた。次いで、この混合液を濾過し、沈殿物をクロロホルム／メタノール（２／１（容量比））の混合溶媒３０ｍｌで洗浄し、さらに濾過した。得られた濾液をロータリーエバポレーターで濃縮乾固した。濃縮乾固物にジメチルホルムアミド１０ｍｌを加え、環状オリゴマー測定溶液とした。この測定溶液を横河電機（株）社製ＬＣ１００型の高速液体クロマトグラフィーを使用して定量した。

[0059] （１０）固有粘度

ポリエステル０．２ｇをフェノール／１，１，２，２－テトラクロルエタン（６０／４０（重量比））の混合溶媒５０ｍｌ中に溶解し、３０℃でオストワルド粘度計を用いて測定した。単位はｄｌ／ｇ。

[0060] （実施例１）

（１）ポリエチレンテレフタレート樹脂（ＰＥＴ樹脂１）の製造

エステル化反応缶を昇温し、２００℃に到達した時点で、テレフタル酸を８６．４質量部及びエチレングリコールを６４．４質量部からなるスラリーを仕込み、攪拌しながら触媒として三酸化アンチモンを０．０１７質量部及びトリエチルアミンを０．１６質量部添加した。次いで、加圧昇温を行いゲージ圧３．５ｋｇｆ／ｃｍ^2、２４０℃の条件で、加圧エステル化反応を行った。その後、エステル化反応缶内を常圧に戻し、酢酸マグネシウム４水和物０．０７１質量部、次いでリン酸トリメチル０．０１４質量部を添加した。さらに、１５分かけて２６０℃に昇温し、リン酸トリメチル０．０１２質量

部、次いで酢酸ナトリウム０．００３６質量部を添加した。１５分後、得られたエステル化反応生成物を重縮合反応缶に移送し、減圧下２６０℃から２８０℃へ徐々に昇温し、２８５℃で重縮合反応を行った。

[0061] 重縮合反応終了後、９５％カット径が５μｍのナスロン製フィルターで濾過処理を行い、ノズルからストランド状に押出し、予め濾過処理（孔径：１μｍ以下）を行った冷却水を用いて冷却、固化させ、ペレット状にカットした。得られたＰＥＴ樹脂は、融点が２５７℃、固有粘度が０．６１６ｄｌ／ｇ、環状３量体の含有量が１．０質量％、不活性粒子及び内部析出粒子は実質上含有していなかった。

[0062] （２）脂肪族ポリエステル樹脂の製造

脂肪族ポリエステル樹脂としてＴｏｔａｌ　Ｃｏｒｂｉｏｎ製ポリ－Ｌ－乳酸　ＰＬＡ　Ｌ１７５を用いた。

[0063] （３）積層フィルムの製造

基材層Ａの原料としてＰＥＴ樹脂１を１３５℃で６時間減圧乾燥（１Ｔｏｒｒ）した後、押出機１に供給した。分解層Ｂの原料としてポリ－Ｌ－乳酸（Ｌ１７５）を１２０℃で６時間減圧乾燥（１Ｔｏｒｒ）した後、押出機２に供給した。

[0064] 押出機２、及び押出機１に供給された各原料を、Ａ／Ｂ／Ａとなるよう３層合流ブロックを用いて積層し、口金よりシート状に溶融押し出した。基材層Ａと分解層Ｂとの厚み比率は、５／９０／５となるように、各層のギアポンプを用いて制御した。また、フィルターには、いずれもステンレス焼結体の濾過粒子サイズ１０μｍの濾材（初期濾過効率：９５％）を用いた。

[0065] 押し出した樹脂を、表面温度３０℃の冷却ドラム上にキャスティングして静電印加法を用いて冷却ドラム表面に密着させて冷却固化し、厚さ３００μｍの未延伸フィルムを作成した。

[0066] 得られた未延伸シートを、加熱されたロール群でフィルム温度を７５℃に昇温した後、周速差のあるロール群で、長手方向に３．０倍に延伸した。

[0067] 次いで、得られた一軸延伸フィルムをクリップで把持し、横延伸を行った

。横延伸温度は８０℃、横延伸倍率は５．０倍とした。

[0068] 次いで、１４０℃で１５秒間の熱処理を行い、１４０℃で３％の弛緩処理を行い、３９μｍの二軸延伸積層フィルムを得た。得られた実施例１のフィルム物性を表２に示す。得られた積層フィルムの加熱後外部ヘイズは低く、実施例１は、環状オリゴマーの析出が少ない、加熱加工後の透明性に優れることが示された。

[0069] （実施例２～７）

実施例２～７は、表１に示す条件に変更する以外は実施例１と同様にして二軸延伸積層フィルムを得た。得られた実施例２～７のフィルム物性を表２に示す。得られた積層フィルムの加熱後外部ヘイズは低く、実施例２～７も、環状オリゴマーの析出が少ない、加熱加工後の透明性に優れることが示された。

[0070] （参考例３）

参考例３は、表１に示す条件に変更する以外は実施例１と同様にして二軸延伸積層フィルムを得た。得られた参考例３のフィルム物性を表２に示す。参考例３は、積層フィルムの厚みに対する、全ての基材層Ａの厚みの合計の比率が３５％より高い。参考例３は、１５０℃、６０分間加熱したときのフィルム外部ヘイズが３．０％以上であった。このような結果となった理由は、分解層Ｂの厚みが薄く、分解層Ｂが基材層Ａ内から移行した環状３量体を十分に保持できなかったためであると考えられる。

[0071] （比較例１）

原料としてＰＥＴ樹脂１を１３５℃で６時間減圧乾燥（１Ｔｏｒｒ）した後、押出機１に供給した後、口金よりシート状に溶融押し出した。フィルターには、いずれもステンレス焼結体の濾過粒子サイズ１０μｍの濾材（初期濾過効率：９５％）を用いた。

[0072] 押し出した樹脂を、表面温度３０℃の冷却ドラム上にキャスティングして静電印加法を用いて冷却ドラム表面に密着させて冷却固化し、厚さ３００μｍの未延伸フィルムを作成した。

[0073] 得られた未延伸シートを、加熱されたロール群でフィルム温度を１００℃に昇温した後、周速差のあるロール群で、長手方向に３．０倍に延伸した。

[0074] 次いで、得られた一軸延伸フィルムをクリップで把持し、横延伸を行った。横延伸温度は１００℃、横延伸倍率は４．０倍とした。次いで、１００℃で１５秒間の熱処理を行い、４１μｍの二軸延伸積層フィルムを得た。得られた比較例１のフィルム物性を表２に示す。比較例１は、脂肪族ポリエステル樹脂を含む分解層Ｂを有さないため、本発明の範囲外である。比較例１は、１５０℃、６０分間加熱したときのフィルム外部ヘイズが３．０％以上であった。

[0075] （比較例２）

表１に示す条件に変更する以外は比較例１と同様にして二軸延伸積層フィルムを得た。得られた比較例２のフィルム物性を表２に示す。比較例２は、脂肪族ポリエステル樹脂を含む分解層Ｂを有さないため、本発明の範囲外である。比較例１は、１５０℃、６０分間加熱したときのフィルム外部ヘイズが３．０％以上であった。

[0076] （比較例４）ポリエチレンテレフタレート樹脂（ＰＥＴ樹脂２）の製造

比較例４は、環状オリゴマーを大きなエネルギーを使用して低減させる方法を用いた。詳述すると、得られた上記ＰＥＴ１レジンを回転型真空重合装置を用い、０．５ｍｍＨｇの減圧下、２２０℃で時間を変えて固相重合を行い、ＰＥＴ樹脂２を得た。得られたＰＥＴ樹脂２は、融点が２５７℃、固有粘度が０．７３２ｄｌ／ｇ、環状３量体含有量が０．５質量％、不活性粒子及び内部析出粒子は実質上含有していなかった。

[0077] 原料としてＰＥＴ樹脂２を用いる以外は比較例２と同様にして二軸延伸積層フィルムを得た。得られた比較例４のフィルム物性を表２に示す。比較例４は、１５０℃、６０分間加熱したときのフィルム外部ヘイズが３．０％以下であり、加熱加工後の透明性に優れていた。このような結果となった理由は比較例４が、環状３量体含有量が０．５質量％のＰＥＴ樹脂２を用いたためであると考えられる。

[0078] （リサイクル性評価）

ポリ乳酸を含む脂肪族ポリエステル樹脂は、加水分解性を有するため、積層フィルムから分解層Ｂを水蒸気又は熱水で分解してから基材層Ａを取り出しマテリアルリサイクルし、ポリエチレンテレフタレート樹脂を含有する樹脂組成物を生成することができる。また、この樹脂組成物を用いて、マテリアルリサイクルされた積層フィルムを製造することができる。そのため、以下では、得られた積層フィルムのリサイクル性を評価した。

[0079] （実施例１１）

実施例１で得られた積層フィルムをエスペック社製ＥＨＳ－２２１を用いて１２１℃、１００％ＲＨ、０．２ＭＰａの水蒸気下に４時間、静置した。熱処理後の積層フィルムは、ＰＥＴフィルムを容易に剥離でき、剥離したＰＥＴフィルムから、分解したポリ乳酸を熱水で洗浄除去し、ＰＥＴフィルムを得た。取り出したＰＥＴフィルムをマテリアルリサイクルし、ポリエチレンテレフタレート樹脂を含有する樹脂組成物を生成した。詳述すると、取り出したＰＥＴフィルムを裁断し、２８０℃にて溶融押出しにより再ペレット化することでリサイクルＰＥＴペレットを得た。得られたＰＥＴペレットを再度２８０℃にて溶融押出しにより再ペレット化する加工を２回行い、計３回再溶融加工したペレット状の樹脂組成物（以下、リサイクルＰＥＴ樹脂１と称する）をリサイクル原料とした。リサイクル原料の環状３量体量を表３に示す。

[0080] 実施例１１は、原料としてリサイクルＰＥＴ樹脂１を用いる以外は実施例１と同様にして二軸延伸積層フィルムを得た。得られた実施例１１のフィルム物性を表３に示す。

[0081] 得られた積層フィルムの加熱後外部ヘイズは依然として低く、実施例１１は上記実施例１と同様に、環状オリゴマーの析出が少ない、加熱加工後の透明性に優れ、リサイクル性に優れた持続可能なフィルムであることが示された。

[0082] （実施例１２～１７）

実施例１２～１７は、上記実施例１１と同様に、実施例２～７で得られた各積層フィルムをリサイクルした、リサイクルＰＥＴ樹脂１を原料として用いる以外は実施例２～７と同様にして二軸延伸積層フィルムを得た。得られた実施例１２～１７のフィルム物性を表３に示す。

[0083] （比較例１１）

比較例１１は、上記実施例１１と同様に、比較例１で得られた各積層フィルムをリサイクルした、リサイクルＰＥＴ樹脂１を原料として用いる以外は比較例１と同様にして二軸延伸積層フィルムを得た。得られた比較例１１のフィルム物性を表３に示す。比較例１１も比較例１と同様に、１５０℃、６０分間加熱したときのフィルム外部ヘイズが３．０％以上であった。

[0084] （比較例１２）

比較例１２は、上記実施例１１と同様に、比較例２で得られた各積層フィルムをリサイクルした、リサイクルＰＥＴ樹脂１を原料として用いる以外は比較例２と同様にして二軸延伸積層フィルムを得た。得られた比較例１２のフィルム物性を表３に示す。比較例１２も比較例２と同様に、１５０℃、６０分間加熱したときのフィルム外部ヘイズが３．０％以上であった。

[0085] （参考例１３）

参考例１３は、上記実施例１１と同様に、参考例３で得られた各積層フィルムをリサイクルした、リサイクルＰＥＴ樹脂１を原料として用いる以外は参考例３と同様にして二軸延伸積層フィルムを得た。得られた参考例１３のフィルム物性を表３に示す。参考例１３も参考例３と同様に、１５０℃、６０分間加熱したときのフィルム外部ヘイズが３．０％以上であった。

[0086] （比較例１４）

比較例１４は、比較例４で得られた二軸延伸フィルムを上記実施例１１と同様の手法によりリサイクルして得たリサイクルＰＥＴ樹脂２を原料として用いる以外は比較例４と同様にして二軸延伸積層フィルムを得た。得られた比較例１４のフィルム物性を表３に示す。リサイクル前の比較例４では加熱による環状オリゴマーの析出は少ないものの、リサイクル後の比較例１４で

は透明性が大幅に悪化した。比較例１４は、工業用や包装用のフィルムとして用いることはできなかった。

[0087]

[表1]

			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	比較例1	比較例2	参考例3	比較例4
フィルム構成	A層原料		PET1	PET1	PET1	PET1	PET1	PET1	PET1	PET1	PET1	PET1	PET2
	B層原料		PLA	PLA	PLA	PLA	PLA	PLA	PLA	-	-	PLA	-
	層構成		A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	-	-	A/B/A	-
	層比率	%	5/90/5	10/80/10	10/80/10	10/80/10	10/80/10	10/80/10	15/70/15	-	-	20/60/20	-
	A層の比率	%	10	20	20	20	20	20	30	-	-	40	-
製造工程	熱固定温度	℃	140	140	180	200	220	240	240	100	230	140	230

[0088] [表2]

原料物性				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	比較例1	比較例2	参考例3	比較例4
フィルム物性	PETの環状3量体量		%	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	0.5
	厚み		μm	39	50	46	41	41	29	33	41	29	42	29
	150℃×30min収縮率	MD	%	13.5	13.0	4.0	4.0	2.5	1.9	2.1	19.0	1.3	14.0	1.3
		TD	%	9.2	10.7	1.6	3.8	2.4	2.7	2.8	29.9	0.1	10.1	0.1
	破断強度	MD	MPa	141	144	83	79	77	79	85	245	250	167	250
		TD	MPa	164	159	83	89	82	112	124	228	227	189	227
	破断伸度	MD	%	161	153	177	11	11	12	22	195	235	175	235
		TD	%	120	139	124	97	97	36	42	172	231	155	231
	インパクト強度		J/15μm	0.5	0.7	0.1	0.1	0.1	0.1	0.2	0.6	0.6	0.8	0.6
	剥離強度		mN／15mm	47	41	153	302	456	600	615	–	–	45	–
	ヘイズ		%	0.2	0.2	0.2	0.2	0.1	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
	全光線透過率		%	88	88	88	88	88	88	88	89	88	88	88
	150℃60min加熱後外部ヘイズ(X)		%	1.5	1.6	1.8	0.9	0.5	0.4	0.9	3.5	7.6	5.3	2.1

[0089] [表3]

原料物性				実施例11	実施例12	実施例13	実施例14	実施例15	実施例16	実施例17	比較例11	比較例12	参考例13	比較例14
PETの環状3量体量			%	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
フィルム物性	厚み		μm	39	50	46	41	41	29	33	41	29	42	29
	150℃×30min収縮率	MD	%	13.4	12.9	3.9	3.9	2.4	1.8	2.0	18.7	1.2	13.9	1.2
		TD	%	9.1	10.6	1.5	3.7	2.3	2.6	2.7	28.0	0.1	10.0	0.1
	破断強度	MD	MPa	130	132	76	73	71	73	78	238	243	154	243
		TD	MPa	151	146	76	82	75	103	114	221	220	174	220
	破断伸度	MD	%	148	141	163	10	10	11	20	189	228	161	228
		TD	%	110	128	114	89	89	33	39	167	224	143	224
	インパクト強度		J/15μm	0.5	0.6	0.1	0.1	0.1	0.1	0.2	0.6	0.6	0.7	0.6
	剥離強度		mN／15mm	43	38	141	308	420	552	610	–	–	610	–
	ヘイズ		%	0.2	0.2	0.2	0.2	0.1	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
	全光線透過率		%	88	88	88	88	88	88	88	89	88	88	88
	150℃60min加熱後外部ヘイズ(X)		%	1.5	1.6	1.8	0.9	0.5	0.4	0.9	4.2	7.6	5.3	7.8

請求の範囲

[請求項1] ポリエチレンテレフタレート樹脂を含む第１組成物で構成される基材層Ａと、脂肪族ポリエステル樹脂を含む第２組成物で構成される分解層Ｂとを含む積層フィルムであって、

前記基材層Ａが前記分解層Ｂに接しており、

少なくとも一方の最外層が前記基材層Ａである積層フィルム。

[請求項2] 前記基材層Ａが、前記分解層Ｂの両表面に接して設けられ、両方の最外層が前記基材層Ａである請求項１に記載の積層フィルム。

[請求項3] １５０℃、６０分間加熱したときのフィルム外部ヘイズＸが３．０％以下である請求項１に記載の積層フィルム。

[請求項4] 前記基材層Ａの全質量に対してポリエチレンテレフタレート樹脂中の環状３量体の含有量が０．９質量％以上である請求項１に記載の積層フィルム。

[請求項5] 積層フィルムの厚みに対する、全ての前記基材層Ａの厚みの合計の比率が３５％以下である請求項１に記載の積層フィルム。

[請求項6] 前記基材層Ａと前記分解層Ｂとの剥離強度が２０ｍＮ／１５ｍｍ以上である、請求項１に記載の積層フィルム。

[請求項7] 前記脂肪族ポリエステルがポリ乳酸である請求項１に記載の積層フィルム。

[請求項8] 請求項１～７のいずれか１項に記載の積層フィルムから前記分解層Ｂを除去してから前記基材層Ａを取り出しマテリアルリサイクルした、ポリエチレンテレフタレート樹脂を含有する樹脂組成物。

[請求項9] 請求項１～７のいずれか１項に記載の積層フィルムから前記分解層Ｂを水蒸気又は熱水で分解してから前記基材層Ａを取り出しマテリアルリサイクルし、ポリエチレンテレフタレート樹脂を含有する樹脂組成物を生成する樹脂組成物の製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2023/039010

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B32B 27/36(2006.01)i; ***B29B 17/02***(2006.01)i; ***C08J 5/18***(2006.01)i
FI: B32B27/36; B29B17/02; C08J5/18 CFD

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)

B32B27/36; B29B17/02; C08J5/18

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 1971-2023
Registered utility model specifications of Japan 1996-2023
Published registered utility model applications of Japan 1994-2023

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2001-058372 A (TORAY IND., INC.) 06 March 2001 (2001-03-06) examples 1-9, paragraphs [0033], [0034]	1-9
X	JP 2001-260281 A (TORAY IND., INC.) 25 September 2001 (2001-09-25) examples 1, 5, paragraphs [0009], [0049], [0061]	1-9
X	JP 2002-265665 A (TORAY IND., INC.) 18 September 2002 (2002-09-18) example 3, paragraphs [0011], [0019], [0022], [0035]	1, 4-9
A		2-3
X	JP 2001-038867 A (TORAY IND., INC.) 13 February 2001 (2001-02-13) examples 1-4, paragraphs [0012], [0020], [0040]	1, 4-9
A		2-3
X	JP 2006-232317 A (KUREHA CORP.) 07 September 2006 (2006-09-07) example 2, paragraphs [0017], [0018]	1-2, 4-6, 8-9
A		3, 7

☑ 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	Date of mailing of the international search report
28 December 2023	**16 January 2024**
Name and mailing address of the ISA/JP **Japan Patent Office (ISA/JP)** **3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915** **Japan**	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2023/039010

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2007-268841 A (FUJI SEAL INTERNATIONAL INC.) 18 October 2007 (2007-10-18) claims 1-3, paragraph [0051]	1-7
A		8-9

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2023/039010

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2001-058372 A	06 March 2001	(Family: none)	
JP 2001-260281 A	25 September 2001	(Family: none)	
JP 2002-265665 A	18 September 2002	(Family: none)	
JP 2001-038867 A	13 February 2001	(Family: none)	
JP 2006-232317 A	07 September 2006	(Family: none)	
JP 2007-268841 A	18 October 2007	(Family: none)	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2023/039010

A.　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

B32B 27/36(2006.01)i; B29B 17/02(2006.01)i; C08J 5/18(2006.01)i
FI: B32B27/36; B29B17/02; C08J5/18 CFD

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））

B32B27/36; B29B17/02; C08J5/18

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	１９７１－２０２３年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２３年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２３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 2001-058372 A (東レ株式会社) 06.03.2001 (2001-03-06) 実施例１－９、第［００３３］－［００３４］段落	1-9
X	JP 2001-260281 A (東レ株式会社) 25.09.2001 (2001-09-25) 実施例１、５、第［０００９］段落、第［００４９］段落、第［００６１］段落	1-9
X	JP 2002-265665 A (東レ株式会社) 18.09.2002 (2002-09-18) 実施例３、第［００１１］段落、第［００１９］段落、第［００２２］段落、第［００３５］段落	1,4-9
A		2-3
X	JP 2001-038867 A (東レ株式会社) 13.02.2001 (2001-02-13) 実施例１－４、第［００１２］段落、第［００２０］段落、第［００４０］段落	1,4-9
A		2-3
X	JP 2006-232317 A (株式会社クレハ) 07.09.2006 (2006-09-07) 実施例２、第［００１７］－［００１８］段落	1-2,4-6,8-9
A		3,7

☑ 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

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
28.12.2023	16.01.2024

名称及びあて先
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

権限のある職員（特許庁審査官）
印出　亮太 4S 6217
電話番号 03-3581-1101 内線 3474

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 2007-268841 A（株式会社フジシールインターナショナル）18.10.2007（2007-10-18） 請求項１－３、第［００５１］段落	1-7
A		8-9

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/JP2023/039010

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2001-058372 A	06.03.2001	（ファミリーなし）	
JP 2001-260281 A	25.09.2001	（ファミリーなし）	
JP 2002-265665 A	18.09.2002	（ファミリーなし）	
JP 2001-038867 A	13.02.2001	（ファミリーなし）	
JP 2006-232317 A	07.09.2006	（ファミリーなし）	
JP 2007-268841 A	18.10.2007	（ファミリーなし）	