202348388

(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本 (11)公開編號：TW 202348388 A

(43)公開日： 中華民國 112 (2023) 年 12 月 16 日

(21)申請案號：112112394 (22)申請日： 中華民國 112 (2023) 年 03 月 31 日

(51)Int. Cl.： *B29B17/02 (2006.01)*

(30)優先權：2022/04/08 日本 2022-064642

(71)申請人：日商三菱瓦斯化學股份有限公司 (日本) MITSUBISHI GAS CHEMICAL COMPANY, INC. (JP)
日本

(72)發明人：河野和起 KOUNO, KAZUKI (JP) ；野平一樹 NOHIRA, ITSUKI (JP) ；小林菜穗子 KOBAYASHI, NAOKO (JP)

(74)代理人：周良吉；林郁君；周宜新

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：9 項 圖式數：1 共 68 頁

(54)名稱

回收塑膠薄膜的方法

(57)摘要

本發明為一種方法，係從疊層體回收塑膠薄膜的方法，其中該疊層體包含：塑膠薄膜(I)、選自由矽氧化物、鋁、及鋁氧化物構成之群組中之至少 1 種的無機層(II)、及樹脂硬化層(III)，且該樹脂硬化層(III)係含有環氧樹脂和包含胺系硬化劑之環氧樹脂硬化劑的環氧樹脂組成物之硬化物，該方法具有使該疊層體和酸水溶液或鹼水溶液接觸之步驟。

A method for recovering plastic film from a laminate, wherein the laminate includes a plastic film (I), at least one type of inorganic layer (II) selected from the group consisting of silicon oxide, aluminum, and aluminum oxide, and a cured resin layer (III), the cured resin layer (III) is a cured product of an epoxy resin composition containing an epoxy resin and an epoxy resin curing agent that includes an amine-based curing agent, and the method includes a step of bringing the laminate into contact with an aqueous acid solution or an aqueous alkali solution.

專利案號：112112394

【發明摘要】

【中文發明名稱】　回收塑膠薄膜的方法

【英文發明名稱】　METHOD FOR RECOVERING PLASTIC FILM

【中文】

本發明為一種方法，係從疊層體回收塑膠薄膜的方法，其中該疊層體包含：塑膠薄膜(I)、選自由矽氧化物、鋁、及鋁氧化物構成之群組中之至少1種的無機層(II)、及樹脂硬化層(III)，且該樹脂硬化層(III)係含有環氧樹脂和包含胺系硬化劑之環氧樹脂硬化劑的環氧樹脂組成物之硬化物，該方法具有使該疊層體和酸水溶液或鹼水溶液接觸之步驟。

【英文】

A method for recovering plastic film from a laminate, wherein the laminate includes a plastic film (I), at least one type of inorganic layer (II) selected from the group consisting of silicon oxide, aluminum, and aluminum oxide, and a cured resin layer (III), the cured resin layer (III) is a cured product of an epoxy resin composition containing an epoxy resin and an epoxy resin curing agent that includes an amine-based curing agent, and the method includes a step of bringing the laminate into contact with an aqueous acid solution or an aqueous alkali solution.

【指定代表圖】　無

【代表圖之符號簡單說明】

無

【特徵化學式】

無

【發明說明書】

【中文發明名稱】　回收塑膠薄膜的方法

【英文發明名稱】　METHOD FOR RECOVERING PLASTIC FILM

【技術領域】

【0001】

本發明關於從疊層體回收塑膠薄膜的方法。

【先前技術】

【0002】

於熱塑性塑膠薄膜蒸鍍氧化鋁、二氧化矽等無機物而成的無機蒸鍍薄膜，由於具有高氣體阻隔性，故被使用於氣體阻隔性包裝材。氣體阻隔性包裝材除了具有無機蒸鍍薄膜之外，還有具有印刷層者。又，亦已知有將無機蒸鍍薄膜與塑膠薄膜藉由黏接劑層疊層而成的層合薄膜形態之包裝材。

但是，近年考慮資源能量的有效活用以及環境污染問題，世界各國逐漸整合完善促進塑膠材料的再生之法律。伴隨於此，已有人探討從包含塑膠薄膜之包裝材回收塑膠薄膜的方法。

【0003】

例如專利文獻1揭示一種再生基材製造方法，包含將疊層體浸漬於鹼性水溶液中之步驟，其中，該疊層體係按順序具有塑膠基材、含有選自由鋁、氧化鋁及二氧化矽構成之群組中之至少一種的脫離層、及印刷層而成，且前述鹼性水溶液之鹼性化合物的濃度及水溫落在預定範圍內之製造方法，其可從印刷物或

層合而成的疊層體等有效率且簡便地獲得構成疊層體之塑膠基材作為再生基材。

【0004】

專利文獻2揭示一種包裝材，具備第1基材、用以使第1基材脫離並再生第1基材之第1脫離層、以及第2基材、用以使第2基材脫離並再生第2基材之第2脫離層，其中，前述第1脫離層形成組成物含有至少一種之選自由鋁、氧化鋁及二氧化矽構成之群組中之無機物質且係含有預定量，前述第2脫離層形成組成物係含有預定的多元醇成分及多異氰酸酯成分之黏接劑組成物。並記載該包裝材其作為包裝材之必要的基材黏接性優良，且不僅可去除包裝體外側的印刷層，內側的印刷層亦能去除，構成包裝材的2種兩側基材之脫離性優良，且適於塑膠再生。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0005】

[專利文獻1]日本特開2020-175620號公報

[專利文獻2]日本特開2021-107159號公報

【發明內容】

[發明所欲解決之課題]

【0006】

專利文獻1之揭示內容技術中，作為脫離層所含有的黏結劑樹脂，係例示選自聚胺甲酸酯樹脂、丙烯酸系樹脂、聚酯樹脂及聚乙烯醇之樹脂，作為黏接劑層，係例示增黏層(anchor layer)、由熔融聚烯烴樹脂形成的樹脂層、胺甲酸酯系

黏接劑層、丙烯酸系黏接劑等。又，專利文獻2所揭示的第2脫離層形成組成物，係含有多元醇成分及多異氰酸酯成分之黏接劑組成物。

但是，包含由這些樹脂構成的層之疊層體，會有氣體阻隔性不足，且塑膠薄膜之回收條件的自由度低之問題。期望尤其從具有2片以上之塑膠薄膜的層合形態之疊層體仍可輕易地回收塑膠薄膜之技術。

【0007】

本發明之課題係提供從包含塑膠薄膜之疊層體有效率地回收塑膠薄膜的方法。

[解決課題之手段]

【0008】

本發明人們發現利用具有使具有塑膠薄膜及預定之層的疊層體和酸水溶液或鹼水溶液接觸之步驟的方法，可解決上述課題。

亦即本發明關於一種方法，係從疊層體回收塑膠薄膜的方法，其中，前述疊層體包含：

塑膠薄膜(I)，

選自由矽氧化物、鋁、及鋁氧化物構成之群組中之至少1種的無機層(II)，及

樹脂硬化層(III)；

前述樹脂硬化層(III)係含有環氧樹脂和包含胺系硬化劑之環氧樹脂硬化劑的環氧樹脂組成物之硬化物，

前述方法具有使前述疊層體和酸水溶液或鹼水溶液接觸之步驟。

[發明之效果]

【0009】

根據本發明之方法，可從包含塑膠薄膜之疊層體有效率地回收塑膠薄膜。本發明之方法中，塑膠薄膜之回收條件的自由度高，尤其從具有2片以上之塑膠薄膜的層合形態之疊層體仍可輕易地回收塑膠薄膜。

【圖式簡單說明】

【0010】

[圖1]係實施例32中，利用乾式粉碎機粉碎後之疊層體的照片。

【實施方式】

【0011】

[回收塑膠薄膜的方法]

本發明為從疊層體回收塑膠薄膜的方法(以下也稱「本發明之方法」)，其中，前述疊層體包含：

塑膠薄膜(I)，

選自由矽氧化物、鋁、及鋁氧化物構成之群組中之至少1種的無機層(II)，及

樹脂硬化層(III)，前述樹脂硬化層(III)係含有環氧樹脂和包含胺系硬化劑之環氧樹脂硬化劑的環氧樹脂組成物之硬化物，前述方法具有使前述疊層體和酸水溶液或鹼水溶液接觸之步驟。

【0012】

本發明之方法藉由具有上述構成，可從包含塑膠薄膜之疊層體有效率地回收塑膠薄膜。其理由尚未闡明，但據認為如下。

【0013】

選自由矽氧化物、鋁、及鋁氧化物構成之群組中之至少1種的無機層(II)(以下也簡稱「無機層(II)」)，和酸水溶液或鹼水溶液接觸的話即會溶解。因此，從具有無機層(II)之疊層體可輕易回收塑膠薄膜。但，具有2片以上之塑膠薄膜的層合形態之疊層體，會有酸或鹼水溶液不易滲透至層間，而不易回收塑膠薄膜的問題。

具有2片以上之塑膠薄膜的疊層體中，該薄膜通常藉由黏接劑層等樹脂硬化層而疊層。此外，該疊層體為包裝材時，會包含底漆層、增黏塗層、由著色印墨形成的著色層、由不含著色劑之印墨形成的中介(medium)層、用以表面保護之外覆層等多種層。

根據本發明人們的探討，發現在從含有如上所述之多種層的疊層體回收塑膠薄膜時，不僅是否具有無機層(II)會影響塑膠薄膜之回收容易性，其它層尤其樹脂硬化層的種類也會影響塑膠薄膜之回收容易性。換言之，發現即使含有相同的無機層(II)且具有相同的層結構之疊層體，取決於樹脂硬化層的種類，塑膠薄膜之回收容易性仍有差異。

【0014】

本發明所界定的疊層體具有樹脂硬化層(III)，該樹脂硬化層(III)係含有環氧樹脂及包含胺系硬化劑之環氧樹脂硬化劑的環氧樹脂組成物之硬化物。樹脂硬化層(III)係環氧樹脂組成物之硬化物，故和可溶解於酸或鹼水溶液、溶劑等之樹脂層不同。但是，據認為在環氧樹脂組成物中使用包含胺系硬化劑之環氧樹脂硬化劑的話，酸水溶液及鹼水溶液容易滲透進所形成的樹脂硬化層(III)之層間，促進無機層(II)溶解，同時樹脂硬化層(III)也容易進行層間剝離。和專利文獻1、

2之揭示技術不同，本發明具有如下益處：不僅將疊層體和鹼水溶液接觸時可回收塑膠薄膜，將疊層體和酸水溶液接觸時也可回收塑膠薄膜。

據推測無機層(II)和樹脂硬化層(III)相鄰或接近時，因樹脂硬化層(III)的存在，以至於酸或鹼水溶液更容易滲透進疊層體之層間，其結果，使塑膠薄膜之回收變得容易。在此，「無機層(II)和樹脂硬化層(III)接近」係指無機層(II)和樹脂硬化層(III)介隔1或2層而存在之意。

【0015】

以下，針對本發明之方法進行說明。

<疊層體>

本發明界定的疊層體包含：塑膠薄膜(I)、選自由矽氧化物、鋁、及鋁氧化物構成之群組中之至少1種的無機層(II)、及樹脂硬化層(III)，且樹脂硬化層(III)係含有環氧樹脂和包含胺系硬化劑之環氧樹脂硬化劑的環氧樹脂組成物之硬化物。

【0016】

(塑膠薄膜(I))

塑膠薄膜(I)若為通常用於包裝材等之塑膠薄膜即可，例如可列舉：低密度聚乙烯、高密度聚乙烯、直鏈狀低密度聚乙烯、聚丙烯等聚烯烴系薄膜；聚對苯二甲酸乙二酯、聚萘二甲酸乙二酯、聚對苯二甲酸丁二酯等聚酯系薄膜；尼龍6、尼龍6,6、聚己二醯間苯二甲胺(N-MXD6)等聚醯胺系薄膜；聚醯亞胺系薄膜；聚乳酸等生物降解性薄膜；聚丙烯腈系薄膜；聚(甲基)丙烯酸系薄膜；聚苯乙烯系薄膜；聚碳酸酯系薄膜；乙烯-乙酸乙烯酯共聚物皂化物(EVOH)系薄膜、聚乙烯醇系薄膜等。

它們之中，考慮疊層體的透明性、強度、耐熱性、以及對酸或鹼水溶液之耐性的觀點，塑膠薄膜宜為選自由聚烯烴系薄膜、聚酯系薄膜、聚醯胺系薄膜、及聚醯亞胺系薄膜構成之群組中之至少1種，為選自由聚烯烴系薄膜及聚酯系薄膜構成之群組中之至少1種更佳，為選自由聚丙烯薄膜及聚對苯二甲酸乙二酯(PET)薄膜構成之群組中之至少1種再更佳。

上述薄膜可為無延伸，也可為沿單軸或雙軸方向延伸者。

【0017】

塑膠薄膜(I)的厚度並無特別限制，考慮透明性、強度、耐熱性、以及對塑膠薄膜(I)之回收所使用的酸或鹼水溶液之耐性的觀點，宜為5~300μm，為5~100μm更佳，為5~50μm再更佳。上述厚度為每1片塑膠薄膜(I)的厚度。

【0018】

(無機層(II))

無機層(II)係由選自由矽氧化物、鋁、及鋁氧化物構成之群組中之至少1種構成的層。疊層體由於具有無機層(II)，可藉由使其和酸水溶液或鹼水溶液接觸來輕易地回收塑膠薄膜(I)。

矽氧化物可例示：二氧化矽(SiO_x)；鋁氧化物可例示：氧化鋁(Al_2O_x)。

考慮酸性水溶液所為之塑膠薄膜(I)之回收容易性的觀點，無機層(II)宜為由選自由鋁及鋁氧化物(氧化鋁)構成之群組中之至少1種構成的層，為由鋁構成的層更佳。又，考慮鹼水溶液所為之塑膠薄膜(I)之回收容易性的觀點，無機層(II)宜為含二氧化矽之層。含二氧化矽之層可列舉：由二氧化矽構成的層、及由二氧化矽-氧化鋁構成的層等。

【0019】

無機層(II)可列舉：由金屬箔構成者、利用蒸鍍法形成者等，考慮可對疊層體賦予氣體阻隔性等之觀點，宜為利用蒸鍍法形成的無機蒸鍍層。亦即，無機層(II)為選自由二氧化矽蒸鍍層、鋁蒸鍍層、及氧化鋁蒸鍍層構成之群組中之至少1種更佳，考慮酸性水溶液所為之塑膠薄膜(I)之回收容易性的觀點，為選自由鋁蒸鍍層及氧化鋁蒸鍍層構成之群組中之至少1種再更佳，為鋁蒸鍍層又更佳。考慮鹼水溶液所為之塑膠薄膜(I)之回收容易性的觀點，無機層(II)宜為含二氧化矽之蒸鍍層，為選自由二氧化矽蒸鍍層、及二氧化矽-氧化鋁2元蒸鍍層構成之群組中之至少1種更佳。

無機層(II)的厚度並無特別限制，考慮塑膠薄膜(I)之回收容易性的觀點及賦予氣體阻隔性等之觀點，宜為5nm以上。又，無機層(II)為無機蒸鍍層時，考慮疊層體之透明性及耐彎曲性改善的觀點以及經濟性之觀點，宜為100nm以下，為50nm以下更佳。上述厚度為每1層無機層(II)的厚度。

【0020】

無機層(II)之形成方法並無特別限制，例如蒸鍍法可列舉：真空蒸鍍法、濺鍍法、離子鍍敷法等物理氣相沉積法；或電漿化學氣相沉積法、熱化學氣相沉積法、光化學氣相沉積法等化學氣相沉積法等公知的蒸鍍法。又，也可將鋁箔等金屬箔和其它層進行疊層來形成無機層(II)。

【0021】

(樹脂硬化層(III))

樹脂硬化層(III)係含有環氧樹脂和包含胺系硬化劑之環氧樹脂硬化劑的環氧樹脂組成物之硬化物。以下，針對該環氧樹脂組成物所含有的成分進行說明。

【0022】

[環氧樹脂]

環氧樹脂組成物所使用的環氧樹脂，為飽和或不飽和脂肪族化合物、脂環族化合物、芳香族化合物、或雜環狀化合物中任一皆可。考慮賦予氣體阻隔性時，宜為在分子內含有芳香環或脂環族結構之環氧樹脂。

該環氧樹脂之具體例可列舉選自衍生自間苯二甲胺之具有環氧丙基胺基之環氧樹脂、衍生自對苯二甲胺之具有環氧丙基胺基之環氧樹脂、衍生自1,3-雙(胺基甲基)環己烷之具有環氧丙基胺基之環氧樹脂、衍生自1,4-雙(胺基甲基)環己烷之具有環氧丙基胺基之環氧樹脂、衍生自二胺基二苯基甲烷之具有環氧丙基胺基之環氧樹脂、衍生自對胺基苯酚之具有環氧丙基胺基及/或環氧丙基氧基之環氧樹脂、衍生自雙酚A之具有環氧丙基氧基之環氧樹脂、衍生自雙酚F之具有環氧丙基氧基之環氧樹脂、衍生自苯酚酚醛清漆之具有環氧丙基氧基之環氧樹脂及衍生自間苯二酚之具有環氧丙基氧基之環氧樹脂中之至少1種樹脂。為了使柔軟性、耐衝擊性、耐濕熱性等諸多性能改善，也可將上述環氧樹脂以適當的比例混合使用2種以上。

上述之中，考慮賦予氣體阻隔性之觀點，環氧樹脂宜以選自由衍生自間苯二甲胺之具有環氧丙基胺基之環氧樹脂、衍生自對苯二甲胺之具有環氧丙基胺基之環氧樹脂、及衍生自雙酚F之具有環氧丙基氧基之環氧樹脂構成之群組中之至少1種作為主成分者，為以衍生自間苯二甲胺之具有環氧丙基胺基之環氧樹脂作為主成分者更佳。

另外，在此所謂「主成分」係指在不悖離本發明之概念的範圍內可含有其它成分之意，且宜為整體的50~100質量%，為70~100質量%更佳，為90~100質量%再更佳之意。

【0023】

[包含胺系硬化劑之環氧樹脂硬化劑]

環氧樹脂組成物所使用的環氧樹脂硬化劑，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點以及賦予氣體阻隔性之觀點，為包含胺系硬化劑者。

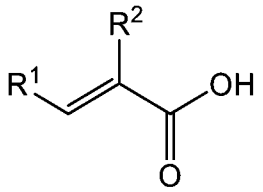
胺系硬化劑可使用習知使用作為環氧樹脂硬化劑之多元胺或其改性物。考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點、黏接性改善之觀點以及賦予氣體阻隔性之觀點，胺系硬化劑宜為多元胺的改性物，為選自由下述胺系硬化劑(i)及胺系硬化劑(ii)構成之群組中之至少1種更佳，包含下述胺系硬化劑(i)再更佳。

(i)下述(A)成分和(B)成分之反應產物：

(A)選自由間苯二甲胺及對苯二甲胺構成之群組中之至少1種

(B)選自由下式(1)表示之不飽和羧酸及其衍生物構成之群組中之至少1種

[化1]



(1)

式(1)中，R^1、R^2分別獨立地表示氫原子、碳數1~8之烷基、碳數6~12之芳基、或碳數7~13之芳烷基。

(ii)環氧氯丙烷與選自由間苯二甲胺及對苯二甲胺構成之群組中之至少1種的反應產物

【0024】

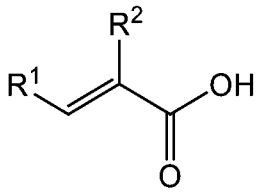
<<胺系硬化劑(i)>>

胺系硬化劑(i)為下述(A)成分和(B)成分之反應產物。本說明書中「X和Y之反應產物」係指包含X和Y之反應產物(加成物)之外，還包含該反應產物以外之副產物、未反應原料之X、Y等。

(A)選自由間苯二甲胺及對苯二甲胺構成之群組中之至少1種

(B)選自由下式(1)表示之不飽和羧酸及其衍生物構成之群組中之至少1種

[化2]



(1)

式(1)中，R^1、R^2分別獨立地表示氫原子、碳數1~8之烷基、碳數6~12之芳基、或碳數7~13之芳烷基。

前述(A)成分係考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點、和其它層之黏接性改善及氣體阻隔性改善之觀點而被使用，考慮氣體阻隔性之觀點，宜為間苯二甲胺。(A)成分可單獨使用1種，也可混合使用2種。

【0025】

前述(B)成分係選自由前述通式(1)表示之不飽和羧酸及其衍生物構成之群組中之至少1種，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點、和其它層之黏接性改善及氣體阻隔性改善之觀點，前述通式(1)中的R^1宜為氫原子或碳數1~8之烷基，為氫原子或碳數1~3之烷基更佳，為氫原子或甲基再更佳，為氫原子又更佳。

又，考慮和上述同樣的觀點，前述通式(1)中的R^2宜為氫原子或碳數1~8之烷基，為氫原子或碳數1~3之烷基更佳，為氫原子或甲基再更佳，為氫原子又更佳。

【0026】

前述通式(1)表示之不飽和羧酸的衍生物可列舉例如：該不飽和羧酸之酯、醯胺、酸酐、醯氯。不飽和羧酸之酯宜為烷基酯，考慮獲得良好的反應性之觀點，該烷基碳數宜為1~6，為1~3更佳，為1~2再更佳。

【0027】

前述通式(1)表示之不飽和羧酸及其衍生物可列舉：丙烯酸、甲基丙烯酸、α-乙基丙烯酸、α-丙基丙烯酸、α-異丙基丙烯酸、α-正丁基丙烯酸、α-三級丁基丙烯酸、α-戊基丙烯酸、α-苯基丙烯酸、α-苄基丙烯酸、巴豆酸、2-戊烯酸、2-己烯酸、4-甲基-2-戊烯酸、2-庚烯酸、4-甲基-2-己烯酸、5-甲基-2-己烯酸、4,4-二甲基-2-戊烯酸、4-苯基-2-丁烯酸、桂皮酸、鄰甲基桂皮酸、間甲基桂皮酸、對甲基桂皮酸、2-辛烯酸等不飽和羧酸及它們之酯、醯胺、酸酐、醯氯等。

上述之中，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點、和其它層之黏接性改善及氣體阻隔性改善之觀點，前述(B)成分宜為選自由丙烯酸、甲基丙烯酸、巴豆酸及它們的衍生物構成之群組中之至少1種，為選自由丙烯酸、甲基丙烯酸、巴豆酸及它們的烷基酯構成之群組中之至少1種更佳，為選自由丙烯酸、甲基丙烯酸、及它們的烷基酯構成之群組中之至少1種再更佳，為丙烯酸之烷基酯又更佳，為丙烯酸甲酯再更佳。

(B)成分可單獨使用1種，也可組合使用2種以上。

【0028】

前述(A)成分和前述(B)成分之反應，在使用不飽和羧酸、酯、醯胺作為前述(B)成分時，係藉由在0~100℃，更佳為0~70℃之條件下將(A)成分和(B)成分進行

混合，並於100~300℃，宜為130~250℃之條件下實施麥可(Michael)加成反應及脫水、脫醇、脫胺所為之醯胺基形成反應來實施。

此時，在醯胺基形成反應時，為了使反應結束，也可因應需要在反應的最終階段對反應裝置內進行減壓處理。又，也可因應需要使用非反應性之溶劑來進行稀釋。此外，也可添加亞磷酸酯類等觸媒作為脫水劑、脫醇劑。

【0029】

另一方面，使用不飽和羧酸之酸酐、醯氯作為前述(B)成分時，係藉由在0~150℃，宜為0~100℃之條件下進行混合後，實施麥可加成反應及醯胺基形成反應來實施。此時，在醯胺基形成反應時，為了使反應結束，也可因應需要在反應的最終階段對反應裝置內進行減壓處理。又，也可因應需要使用非反應性之溶劑來進行稀釋。此外，也可添加吡啶、甲吡啶、二甲吡啶、三烷基胺等3級胺。

【0030】

利用前述(A)成分和前述(B)成分之反應而形成的醯胺基部位具有高凝聚力，故使用含有該(A)成分和(B)成分之反應產物之環氧樹脂硬化劑的環氧樹脂組成物而形成的樹脂硬化層(III)，具有高氣體阻隔性及良好的黏接性。

【0031】

前述(B)成分相對於前述(A)成分之反應莫耳比[(B)/(A)]宜為0.3~1.0之範圍。上述反應莫耳比若為0.3以上，則在環氧樹脂硬化劑中會生成足夠量之醯胺基，並展現高水平之氣體阻隔性。另一方面，上述反應莫耳比若為1.0以下之範圍，則和環氧樹脂中之環氧基的反應所需要的胺基量充足、耐熱性優良、對有機溶劑或水之溶解性亦優良。

尤其考慮氣體阻隔性改善時，前述(B)成分相對於前述(A)成分之反應莫耳比[(B)/(A)]為0.6~1.0之範圍更佳。

【0032】

上述胺系硬化劑也可為前述(A)成分和(B)成分並進一步和選自由下述(C)成分、(D)成分及(E)成分構成之群組中之至少1種化合物之反應產物。

(C)選自由R^3-COOH表示之一元羧酸及其衍生物構成之群組中之至少1種(R^3表示氫原子、也可具有羥基之碳數1~7之烷基或碳數6~12之芳基)

(D)環狀碳酸酯

(E)碳數2~20之單元環氧化合物

【0033】

前述(C)成分之R^3-COOH表示之一元羧酸及其衍生物，係因應需要考慮使環氧樹脂硬化劑和環氧樹脂之反應性降低並改善作業性之觀點而被使用。

R^3表示氫原子、也可具有羥基之碳數1~7之烷基或碳數6~12之芳基，R^3宜為碳數1~3之烷基或苯基。

又，R^3-COOH表示之一元羧酸的衍生物可列舉例如：該羧酸之酯、醯胺、酸酐、醯氯。該羧酸之酯宜為烷基酯，該烷基碳數宜為1~6，為1~3更佳，為1~2再更佳。

前述(C)成分可列舉：甲酸、乙酸、丙酸、丁酸、乳酸、乙醇酸、苯甲酸等一元羧酸及其衍生物。

前述(C)成分可單獨使用1種，也可組合使用2種以上。

【0034】

前述(D)成分之環狀碳酸酯，係考慮使環氧樹脂硬化劑和環氧樹脂之反應性降低並改善作業性之觀點，因應需要而被使用者，考慮和前述(A)成分之反應性的觀點，宜為六員環以下之環狀碳酸酯。可列舉例如：碳酸伸乙酯、碳酸伸丙酯、碳酸甘油酯、碳酸-1,2-伸丁酯、碳酸伸乙烯酯、4-乙烯基-1,3-二氧雜環戊烷-2-酮、4-甲氧基甲基-1,3-二氧雜環戊烷-2-酮、1,3-二噁烷-2-酮等。它們之中，考慮氣體阻隔性改善之觀點，宜為選自由碳酸伸乙酯、碳酸伸丙酯及碳酸甘油酯構成之群組中之至少1種。

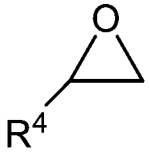
前述(D)成分可單獨使用1種，也可組合使用2種以上。

【0035】

前述(E)成分之單元環氧化合物為碳數2~20之單元環氧化合物，係考慮使環氧樹脂硬化劑和環氧樹脂之反應性降低並改善作業性之觀點，因應需要而被使用。考慮氣體阻隔性之觀點，宜為碳數2~10之單元環氧化合物，為下式(2)表示之化合物更佳。

【0036】

[化3]



(2)

式(2)中，R^4表示氫原子、碳數1~8之烷基、芳基、或R^5-O-CH_2-，R^5表示苯基或苄基。

前述式(2)表示之單元環氧化合物可列舉例如：環氧乙烷、環氧丙烷、1,2-環氧丁烷、氧化苯乙烯、苯基環氧丙醚、及苄基環氧丙醚等。前述(E)成分可單獨使用1種，也可組合使用2種以上。

【0037】

在上述胺系硬化劑中使用前述(C)成分、(D)成分或(E)成分時，選自由前述(C)成分、(D)成分及(E)成分構成之群組中任1種化合物可單獨使用，也可組合使用2種以上。

【0038】

另外，上述胺系硬化劑也可為除了使前述(A)~(E)成分進行反應之外，在不損及本發明之效果的範圍內，更和其它成分進行反應而成的反應產物。在此所謂其它成分可列舉例如：芳香族二羧酸或其衍生物等。

惟，該「其它成分」的使用量，宜為構成上述胺系硬化劑之反應成分的合計量之30質量%以下，為10質量%以下更佳，為5質量%以下再更佳。

【0039】

前述(A)成分及(B)成分、進一步和選自由前述(C)成分、(D)成分及(E)成分構成之群組中之至少1種化合物之反應產物，可將選自由前述(C)成分、(D)成分及(E)成分構成之群組中之至少1種化合物和前述(B)成分合併使用，並使其和多元胺化合物即前述(A)成分進行反應而獲得。該反應可將前述(B)~(E)成分以任意順序添加再和前述(A)成分進行反應，也可將前述(B)~(E)成分混合再和前述(A)成分進行反應。

前述(A)成分和前述(C)成分之反應能以與前述(A)成分和(B)成分之反應同樣的條件實施。使用前述(C)成分時，可將前述(B)成分及(C)成分混合再和前述(A)成分進行反應，也可先使前述(A)成分和(B)成分進行反應後再和前述(C)成分進行反應。

另一方面，使用前述(D)成分及/或(E)成分時，宜先使前述(A)成分和(B)成分進行反應後，再使其和前述(D)成分及/或(E)成分進行反應。

前述(A)成分和前述(D)成分及/或(E)成分之反應，係藉由在25~200℃之條件下將(A)成分和(D)成分及/或(E)成分混合，並於30~180℃，宜為40~170℃之條件下實施加成反應來實施。又，可因應需要使用甲醇鈉、乙醇鈉、三級丁醇鉀等觸媒。

在上述反應時，為了促進反應，也可因應需要使(D)成分及/或(E)成分熔融、或以非反應性之溶劑進行稀釋來使用。

【0040】

上述胺系硬化劑為前述(A)成分及(B)成分進一步和選自由前述(C)成分、(D)成分及(E)成分構成之群組中之至少1種化合物之反應產物時，前述(B)成分相對於前述(A)成分之反應莫耳比[(B)/(A)]亦和前述同樣的理由宜為0.3~1.0之範圍，為0.6~1.0之範圍更佳。另一方面，前述(C)成分、(D)成分及(E)成分相對於前述(A)成分之反應莫耳比{[(C)+(D)+(E)]/(A)}宜為0.05~3.1之範圍，為0.07~2.5之範圍更佳，為0.1~2.0之範圍再更佳。

惟，考慮氣體阻隔性改善之觀點，前述(B)~(E)成分相對於前述(A)成分之反應莫耳比{[(B)+(C)+(D)+(E)]/(A)}宜為0.35~2.5之範圍，為0.35~2.0之範圍更佳。

【0041】

胺系硬化劑(i)，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點以及賦予氣體阻隔性之觀點，為僅使前述(A)成分和(B)成分進行反應而得的反應產物更佳。

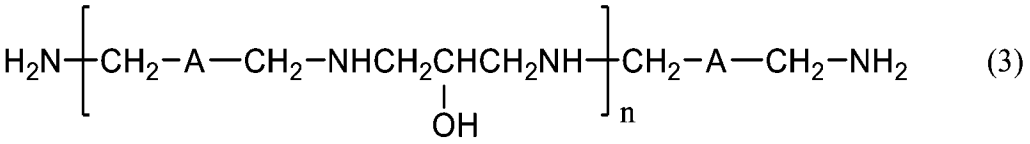
【0042】

(胺系硬化劑(ii))

胺系硬化劑(ii)為環氧氯丙烷與選自由間苯二甲胺及對苯二甲胺構成之群組中之至少1種的反應產物。

胺系硬化劑(ii)宜含有下式(3)表示之化合物作為主成分。在此所謂「主成分」係指令胺系硬化劑(ii)中之全部構成成分為100質量%時，其含量為50質量%以上之成分。

[化4]



(3)

式(3)中，A為1,3-伸苯基或1,4-伸苯基。n為1~12之數。

A為1,3-伸苯基更佳。

胺系硬化劑(ii)中，上述通式(3)表示之化合物的含量宜為60質量%以上，為70質量%以上更佳，為75質量%以上再更佳，為85質量%以上又更佳。又，上限為100質量%。

考慮獲得作為硬化劑之良好的硬化性能之觀點，上述通式(3)表示之化合物之中，n=1之化合物所占的比例宜高。胺系硬化劑(ii)中之上述通式(3)表示之n=1之化合物的含量宜為15質量%以上，為20質量%以上更佳，為25質量%以上再更佳。又，上限為100質量%。

胺系硬化劑(ii)中之上述通式(3)表示之化合物的含量及上述通式(3)表示之化合物的組成，可利用GC分析及凝膠過濾層析(GPC)分析來求得。

【0043】

胺系硬化劑(ii)可藉由使環氧氯丙烷與選自由間苯二甲胺及對苯二甲胺構成之群組中之至少1種，以常用方法進行加成反應來獲得。

【0044】

胺系硬化劑中之胺系硬化劑(i)及胺系硬化劑(ii)的合計含量，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點以及賦予氣體阻隔性之觀點，宜為50質量%以上，為70質量%以上更佳，為80質量%以上再更佳，為90質量%以上又更佳，且為100質量%以下。

【0045】

環氧樹脂硬化劑也可含有胺系硬化劑以外的硬化劑成分，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點、和其它層之黏接性改善及氣體阻隔性改善之觀點，胺系硬化劑的含量宜高。環氧樹脂硬化劑中之胺系硬化劑的含量，考慮上述之觀點，宜為50質量%以上，為70質量%以上更佳，為80質量%以上再更佳，為90質量%以上又更佳，又，為100質量%以下。

【0046】

環氧樹脂組成物中，環氧樹脂與環氧樹脂硬化劑的含有比例，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點、和其它層之黏接性改善及氣體阻隔性改善之觀點，環氧樹脂硬化劑中的活性氫數相對於環氧樹脂中的環氧基數之比(環氧樹脂硬化劑中的活性氫數/環氧樹脂中的環氧基數)宜為0.2~12.0，為0.2~10.0之範圍更佳，考慮樹脂硬化層(III)和酸或鹼水溶液接觸時可輕易從疊層體剝離，且可更輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點，為0.2~8.0再更佳，為0.2~5.0又更佳，為0.5~5.0再更佳，為0.8~5.0之範圍又更佳。

【0047】

環氧樹脂組成物，考慮得到的樹脂硬化層(III)和其它層之黏接性改善的觀點，也可更含有偶聯劑。該偶聯劑可列舉：矽烷偶聯劑、鈦酸酯系偶聯劑、鋁酸酯系偶聯劑等，考慮和其它層之黏接性改善的觀點，宜為矽烷偶聯劑。

矽烷偶聯劑可列舉例如：具有乙烯基之矽烷偶聯劑、具有胺基之矽烷偶聯劑、具有環氧基之矽烷偶聯劑、具有(甲基)丙烯酸基之矽烷偶聯劑、具有巰基之矽烷偶聯劑等。它們之中，考慮得到的樹脂硬化層(III)和其它層之黏接性改善的觀點，宜為選自由具有胺基之矽烷偶聯劑及具有環氧基之矽烷偶聯劑構成之群組中之至少1種。

使用偶聯劑時，環氧樹脂組成物中之偶聯劑的含量，相對於環氧樹脂硬化劑100質量份，宜為0.1~10質量份，為1~8質量份更佳。

【0048】

環氧樹脂組成物也可含有有機溶劑，該有機溶劑宜為非反應性溶劑。就其具體例而言，可理想地使用1種或2種以上之甲醇、乙醇、1-丙醇、2-丙醇、1-丁醇、2-丁醇、2-甲氧基乙醇、2-乙氧基乙醇、2-丙氧基乙醇、2-丁氧基乙醇、1-甲氧基-2-丙醇、1-乙氧基-2-丙醇、1-丙氧基-2-丙醇等質子性極性溶劑、以及乙酸乙酯、乙酸丁酯、甲基異丁基酮、甲苯等。

上述之中，考慮乾燥速度改善之觀點，宜為選自由甲醇、乙醇、及乙酸乙酯構成之群組中之至少1種。

【0049】

環氧樹脂組成物含有有機溶劑時，環氧樹脂組成物的固體成分濃度並無特別限制，考慮塗覆性之觀點，宜為10質量%以上，為20質量%以上更佳，為30質量%以上再更佳。又，考慮塗覆性之觀點以及將得到的樹脂硬化層(III)調整至期

望的厚度之觀點，宜為60質量%以下，為50質量%以下更佳，為40質量%以下再更佳。

【0050】

環氧樹脂組成物中，在不損及本發明之效果的範圍內，也可因應需要摻合熱硬化性樹脂、濕潤劑、賦黏劑、消泡劑、硬化促進劑、防鏽添加劑、顏料、氧捕捉劑等添加劑。

環氧樹脂組成物中之上述添加劑的合計含量，考慮展現更高黏接性之觀點，相對於環氧樹脂及環氧樹脂硬化劑之合計量100質量份，宜為20.0質量份以下，為0.001~15.0質量份更佳。

【0051】

惟，考慮獲得本發明之效果的觀點，環氧樹脂組成物的固體成分中之環氧樹脂及環氧樹脂硬化劑的合計含量宜為60質量%以上，為70質量%以上更佳，為80質量%以上再更佳，為85質量%以上又更佳，上限為100質量%。「環氧樹脂組成物的固體成分」係指將環氧樹脂組成物中之水及有機溶劑去除後的成分之意。

【0052】

環氧樹脂組成物，考慮得到的樹脂硬化層(III)會展現更高黏接性之觀點，潤滑劑的含量宜少。具體而言，環氧樹脂組成物中之潤滑劑的含量，相對於環氧樹脂組成物中之環氧樹脂及環氧樹脂硬化劑之合計量100質量份，宜未達10質量份，未達5質量份更佳，未達2質量份再更佳，未達1質量份又更佳，未達0.1質量份再更佳，未達0.01質量份又更佳，為0質量份再更佳。

上述潤滑劑除了包含作為潤滑劑之習知成分之外，亦包含芥醯胺、油醯胺等碳數14~24之不飽和脂肪醯胺。

【0053】

環氧樹脂組成物，考慮得到的樹脂硬化層(III)會展現更高黏接性之觀點，有機或無機粉體、有機或無機纖維等填充材的含量宜少。具體而言，環氧樹脂組成物中之填充材的含量，相對於環氧樹脂組成物中之環氧樹脂及環氧樹脂硬化劑之合計量100質量份，宜未達10質量份，未達5質量份更佳，未達2質量份再更佳，未達1質量份又更佳，未達0.1質量份再更佳，未達0.01質量份又更佳，為0質量份再更佳。

【0054】

(環氧樹脂組成物之製備)

環氧樹脂組成物，例如可藉由將環氧樹脂、包含胺系硬化劑之環氧樹脂硬化劑、及因應需要使用的添加劑以及有機溶劑，分別以預定量摻合後，使用公知之方法及裝置進行攪拌、混合來製備。另外，環氧樹脂和環氧樹脂硬化劑也可在即將使用前才混合使用。

【0055】

(樹脂硬化層(III)之形成)

樹脂硬化層(III)係使用前述環氧樹脂組成物來形成。環氧樹脂組成物係含有前述環氧樹脂及前述環氧樹脂硬化劑之熱硬化性樹脂組成物，例如在疊層體之製作時，將環氧樹脂組成物塗覆於塑膠薄膜(I)或其它層上，並將因應需要之有機溶劑去除後，貼合另一塑膠薄膜或層，然後使其硬化來形成樹脂硬化層(III)。

環氧樹脂組成物之硬化方法並無特別限制，係於足以獲得其硬化物之環氧樹脂組成物的濃度及溫度下，利用公知的方法實施。

針對樹脂硬化層(III)之形成方法的詳細內容，係如後於「疊層體之製造方法」中敘述。

【0056】

樹脂硬化層(III)的厚度，考慮黏接性改善之觀點及從疊層體輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點，宜為0.05~20μm，為0.1~15μm更佳，為0.2~10μm再更佳，為0.5~7μm又更佳，為1~5μm再更佳，為2~5μm又更佳。上述厚度為每1層樹脂硬化層(III)的厚度。

【0057】

(疊層體之層結構)

本發明所使用的疊層體，若分別具有1層以上之前述塑膠薄膜(I)、無機層(II)、及樹脂硬化層(III)即可，也可具有2層以上。具有2層以上之塑膠薄膜(I)、無機層(II)、及樹脂硬化層(III)時，多層塑膠薄膜(I)之種類及厚度可全部相同，也可相異。針對無機層(II)及樹脂硬化層(III)之種類及厚度亦同樣。

另外，含有2層以上之塑膠薄膜(I)時，考慮塑膠薄膜(I)之回收容易性的觀點，全部的構成塑膠薄膜(I)之樹脂宜為相同種類之樹脂。

【0058】

塑膠薄膜(I)、無機層(II)、及樹脂硬化層(III)之疊層順序並無特別限制，疊層體宜含有2層以上之塑膠薄膜(I)。又，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點，無機層(II)及樹脂硬化層(III)宜疊層於任意2片之塑膠薄膜(I)之間。

【0059】

疊層體也可具有塑膠薄膜(I)、無機層(II)、及樹脂硬化層(III)以外之層。該層可列舉：底漆層、增黏塗層、外覆層、印墨層、塑膠薄膜(I)以外之熱塑性樹脂層、光硬化性或熱硬化性樹脂組成物之硬化物之樹脂硬化層、樹脂硬化層(III)以外之黏接劑層等，可含有它們中之1種或2種以上。

上述之中，例如使用來自包裝材之疊層體時，該疊層體可列舉更含有印墨層者。印墨層可列舉：由含有著色劑之印墨形成的著色層、由不含著色劑之印墨形成的中介層。

【0060】

印墨層中之著色層，例如可使用含有顏料等著色劑及黏結劑樹脂之印刷印墨來形成。中介層可使用不含著色劑之印刷印墨(中介)來形成。

印墨層可形成在疊層體之全面，也可部分地形成。又，也可為施加文字、標誌、花樣等而成者。

【0061】

印墨層的厚度通常為0.05~20μm，宜為0.1~15μm，為0.2~5μm更佳，為0.4~2μm再更佳。上述厚度為每1層印墨層的厚度。

【0062】

印墨層宜使用印刷印墨並利用公知的印刷法來形成，該印刷法可列舉：凹版印刷法、柔版印刷法、網版印刷法等，考慮生產性之觀點，宜為凹版印刷法。

【0063】

含有2層以上之塑膠薄膜(I)的疊層體，可列舉按順序具有塑膠薄膜(I)、無機層(II)、樹脂硬化層(III)、及塑膠薄膜(I)之疊層體。

含有2層以上之塑膠薄膜(I)的疊層體之理想層結構，係如下所例示。下列記載中，記載I/II/III時，意指各層從上方起按順序疊層I、II、III之意。

(1)：塑膠薄膜(I)/無機層(II)/樹脂硬化層(III)/塑膠薄膜(I)

(2)：塑膠薄膜(I)/無機層(II)/著色層/中介層/樹脂硬化層(III)/塑膠薄膜(I)

(3)：塑膠薄膜(I)/著色層/中介層/樹脂硬化層(III)/無機層(II)/塑膠薄膜(I)

(4)：塑膠薄膜(I)/黏接劑層/樹脂硬化層(III)/無機層(II)/塑膠薄膜(I)

(5)：塑膠薄膜(I)/樹脂硬化層(III)/黏接劑層/無機層(II)/塑膠薄膜(I)

(6)：塑膠薄膜(I)/無機層(II)/著色層/中介層/樹脂硬化層(III)/黏接劑層/塑膠薄膜(I)

(7)：塑膠薄膜(I)/著色層/中介層/黏接劑層/樹脂硬化層(III)/無機層(II)/塑膠薄膜(I)

(8)：塑膠薄膜(I)/無機層(II)/樹脂硬化層(III)/無機層(II)/塑膠薄膜(I)

(9)：塑膠薄膜(I)/無機層(II)/著色層/中介層/樹脂硬化層(III)/無機層(II)/塑膠薄膜(I)

(10)塑膠薄膜(I)/無機層(II)/黏接劑層/樹脂硬化層(III)/無機層(II)/塑膠薄膜(I)

【0064】

惟，疊層體之層結構不限於上述，上述層之任意層間也可具有底漆層、增黏塗層、外覆層等。又，不限於(8)~(10)之結構，也可含有2層以上之無機層(II)，又，也可含有2層以上之樹脂硬化層(III)。

【0065】

考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點，疊層體宜為無機層(II)和樹脂硬化層(III)相鄰、或介隔1或2層而存在之結構，為無機層(II)和樹脂硬化層(III)

相鄰、或僅介隔1層而存在之結構更佳，為無機層(II)和樹脂硬化層(III)相鄰再更佳。

【0066】

疊層體也可為薄膜形狀。又，只要具有含有塑膠薄膜(I)、無機層(II)、及樹脂硬化層(III)之疊層結構，則亦可為袋、瓶、或它們的蓋材、密封材、圓筒狀的塑膠標籤等薄膜以外的形狀。

【0067】

<疊層體之製造方法>

疊層體之製造方法並無特別限制，可使用公知的方法。

例如前述(1)：塑膠薄膜(I)/無機層(II)/樹脂硬化層(III)/塑膠薄膜(I)之結構的疊層體之製造方法可列舉在任一塑膠薄膜(I)之單面利用前述之方法形成無機層(II)，並於該無機層(II)側之面，以成為期望的厚度之方式塗佈前述環氧樹脂組成物，立刻於該塗佈面利用夾輥等貼合另1片塑膠薄膜(I)，然後，利用前述之方法使環氧樹脂組成物硬化來形成樹脂硬化層(III)之方法。另外，也可使用事先於塑膠薄膜(I)上形成有無機層(II)之薄膜，並於該無機層(II)面形成樹脂硬化層(III)。

塗佈環氧樹脂組成物時的塗佈方法可列舉例如：棒塗、繞線棒塗佈、氣刀塗佈、凹版塗佈、反向凹版塗佈、微凹版塗佈、微反向凹版塗佈、口模塗佈、狹縫口模塗佈、真空口模塗佈、浸塗、旋塗、輥塗、噴塗、刷塗等。它們之中，宜為棒塗、輥塗或噴塗，工業上宜為凹版塗佈、反向凹版塗佈、微凹版塗佈、或微反向凹版塗佈。

【0068】

塗佈環氧樹脂組成物後，因應需要實施使溶劑揮發之步驟(乾燥步驟)。乾燥步驟中的條件可適當選擇，例如可於乾燥溫度40~180℃、乾燥時間5~180秒之條件實施。

實施乾燥步驟後，使環氧樹脂組成物硬化來形成樹脂硬化層(III)。硬化溫度例如可在10~140℃之範圍內選擇，宜為10~80℃之範圍。又，硬化時間例如可在1分鐘~7天之範圍內選擇，宜為2~100小時之範圍。

【0069】

<酸水溶液或鹼水溶液>

本發明之方法具有使前述疊層體和酸水溶液或鹼水溶液接觸之步驟。

酸水溶液所使用的酸為無機酸、有機酸中任一皆可。

無機酸可列舉：鹽酸、硫酸、硝酸、磷酸等。

有機酸可列舉：羧酸化合物、磺酸化合物、有機磷酸化合物，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點，宜為選自由羧酸化合物及磺酸化合物構成之群組中之至少1種。羧酸化合物可列舉：甲酸、乙酸、檸檬酸、蘋果酸、乳酸、己二酸、癸二酸、硬脂酸、馬來酸、琥珀酸、酒石酸、富馬酸、葡萄糖酸等。磺酸化合物可列舉：甲磺酸、乙磺酸、對甲苯磺酸等。

【0070】

上述酸可使用1種或2種以上。

上述之中，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點及經濟性之觀點，酸水溶液所使用的酸宜為選自由鹽酸及羧酸化合物構成之群組中之至少1種，為選自由鹽酸、乙酸、檸檬酸、及乳酸構成之群組中之至少1種更佳，為選

自由鹽酸、乙酸、及乳酸構成之群組中之至少1種再更佳，為選自由乙酸及乳酸構成之群組中之至少1種又更佳。

【0071】

酸水溶液中之酸的濃度，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點及抑制塑膠薄膜(I)之劣化的觀點，宜為0.1~4N，為0.2~3N更佳，為0.5~2N再更佳。

【0072】

酸水溶液在25℃時的pH，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點，宜為6.0以下，為5.0以下更佳，為4.0以下再更佳，為3.0以下又更佳，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點及抑制塑膠薄膜(I)之劣化的觀點，宜為0.2以上，為0.5以上更佳，為1.0以上再更佳，為1.8以上又更佳。

【0073】

鹼水溶液所使用的鹼化合物為無機鹼化合物、有機鹼化合物中任一皆可。

無機鹼化合物可列舉：氫氧化鋰、氫氧化鈉、氫氧化鉀等鹼金屬氫氧化物；碳酸鋰、碳酸氫鋰、碳酸鉀、碳酸氫鉀、碳酸鈉、碳酸氫鈉等鹼金屬碳酸鹽或重碳酸鹽、以及氨。

有機鹼化合物可列舉：胺化合物、四烷基銨氫氧化物等。胺化合物可列舉：烷醇胺、烷基胺、芳烷基胺等，它們的碳數，考慮水溶性之觀點，宜為10以下，為8以下更佳。

烷醇胺可列舉：單、二或三甲醇胺；單、二或三乙醇胺，烷基胺可列舉：甲胺、二甲胺、乙胺、二乙胺、N-甲基乙胺、丙胺、丁胺等。芳烷基胺可列舉：苄胺等。

四烷基銨氫氧化物可列舉：氫氧化四甲銨、氫氧化四乙銨等。

【0074】

上述鹼化合物可使用1種或2種以上。

上述之中，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點及經濟性之觀點，鹼水溶液所使用的鹼化合物宜為無機鹼化合物，為鹼金屬氫氧化物更佳，為選自由氫氧化鈉及氫氧化鉀構成之群組中之至少1種再更佳。

【0075】

鹼水溶液中之鹼化合物的濃度，取決於鹼化合物之種類而不同，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點及抑制塑膠薄膜(I)之劣化的觀點，宜為0.1~20質量%，為1~15質量%更佳，為2~10質量%再更佳。

【0076】

鹼水溶液在25℃時的pH，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點，宜為8.0以上，為9.0以上更佳，為10.0以上再更佳，考慮抑制塑膠薄膜(I)之劣化的觀點，宜為15.0以下。

【0077】

從疊層體更輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點，尤其，無機層(II)係由選自由鋁及鋁氧化物(氧化鋁)構成之群組中之至少1種構成的層時，本發明之方法宜具有使疊層體和酸水溶液接觸之步驟，具有浸漬於酸水溶液之步驟更佳。

【0078】

使前述疊層體和酸水溶液或鹼水溶液接觸之方法可列舉：浸漬、噴霧、澆流等，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點，宜為浸漬。

使疊層體和酸水溶液或鹼水溶液接觸時之水溶液的溫度並無特別限制，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點及抑制塑膠薄膜(I)之劣化的觀點，宜為5~90℃，為5~70℃更佳，為10~60℃再更佳，為15~45℃又更佳。

使疊層體和酸水溶液或鹼水溶液接觸之時間亦無特別限制，考慮塑膠薄膜(I)之回收效率的觀點，宜為30分鐘~7天，為1小時~5天更佳。

【0079】

使疊層體和酸水溶液或鹼水溶液接觸時之酸水溶液或鹼水溶液的使用量，考慮從疊層體可輕易地回收塑膠薄膜(I)之觀點及經濟性之觀點，宜為疊層體之質量的2~2,000倍量，為2~500倍量更佳，為2~100倍量再更佳。

【0080】

和酸水溶液或鹼水溶液接觸後之疊層體、及從該疊層體剝離之塑膠薄膜(I)，可進行水洗、使其乾燥、並予以回收。

【0081】

另外，本發明之方法中，在僅含1片塑膠薄膜(I)之疊層體中，該薄膜可與其它1層以上之層(宜為無機層(II))分離時，判斷為塑膠薄膜之回收係容易，在含有2層以上之塑膠薄膜(I)的疊層體中，該薄膜彼此可分離時，判斷為塑膠薄膜之回收係容易。

上述經分離之塑膠薄膜(I)上也可殘存其它層，此時，本發明之方法也可更具有將該其它層去除之步驟。例如於塑膠薄膜(I)上殘存前述印墨層時，可利用公知的脫墨處理將該印墨層輕易地去除。

[實施例]

【0082】

然後，利用實施例具體地說明本發明。惟，本發明不受這些實施例任何限制。

【0083】

製造例1(包含胺系硬化劑之環氧樹脂硬化劑溶液A之製備)

於反應容器中進料1mol之間苯二甲胺(MXDA)。於氮氣氣流下昇溫至60℃，歷時1小時滴加0.93mol之丙烯酸甲酯。邊將生成的甲醇餾去，邊昇溫至165℃，於165℃保持2.5小時，藉此獲得胺系硬化劑。於其中，歷時1.5小時滴加甲醇，再添加作為矽烷偶聯劑之3-胺基丙基三乙氧基矽烷(信越化學工業(股)製「KBE-903」)，獲得胺系硬化劑為62.2質量%、3-胺基丙基三乙氧基矽烷為2.8質量%、甲醇為35質量%之環氧樹脂硬化劑溶液A。

【0084】

製造例2(包含胺系硬化劑之環氧樹脂硬化劑溶液B之製備)

於反應容器中進料1mol之間苯二甲胺(MXDA)。於氮氣氣流下昇溫至60℃，歷時1小時滴加0.93mol之丙烯酸甲酯。邊將生成的甲醇餾去，邊昇溫至165℃，於165℃保持2.5小時，藉此獲得胺系硬化劑。於其中，歷時1.5小時滴加工業用乙醇(今津藥品工業(股)製「ECONOL H」)，再添加作為矽烷偶聯劑之3-胺基丙基三乙氧基矽烷(信越化學工業(股)製「KBE-903」)，製得胺系硬化劑為62.2質量%、3-胺基丙基三乙氧基矽烷為2.8質量%、乙醇為35質量%之溶液。

添加作為稀釋溶劑之乙醇35.2g及乙酸乙酯42.6g、以及上述溶液21.2g並進行攪拌。於其中添加芥醯胺1g並進行攪拌，獲得固體成分濃度14.7質量%之環氧樹脂硬化劑溶液B。

【0085】

製造例3(環氧樹脂組成物A之製備)

添加作為稀釋溶劑之甲醇1.98g及乙酸乙酯3.25g、以及製造例1得到的環氧樹脂硬化劑溶液A 3.64g並進行攪拌。於其中添加作為環氧樹脂之衍生自間苯二甲胺之具有環氧丙基胺基之環氧樹脂(三菱瓦斯化學(股)製「TETRAD-X」)1.13g(環氧樹脂硬化劑中的活性氫數/環氧樹脂中的環氧基數=1.2)並進行攪拌，製得固體成分濃度35質量%之樹脂硬化層(III)-1形成用之環氧樹脂組成物A。

【0086】

製造例4(環氧樹脂組成物B之製備)

添加作為稀釋溶劑之甲醇1.56g及乙酸乙酯3.25g、以及製造例1得到的環氧樹脂硬化劑溶液A 4.83g並進行攪拌。於其中添加作為環氧樹脂之衍生自間苯二甲胺之具有環氧丙基胺基之環氧樹脂(三菱瓦斯化學(股)製「TETRAD-X」)0.36g(環氧樹脂硬化劑中的活性氫數/環氧樹脂中的環氧基數=5.0)並進行攪拌，製得固體成分濃度35質量%之樹脂硬化層(III)-2形成用之環氧樹脂組成物B。

【0087】

製造例5(環氧樹脂組成物C之製備)

添加作為稀釋溶劑之甲醇2.15g及乙酸乙酯3.25g、以及製造例1得到的環氧樹脂硬化劑溶液A 3.13g並進行攪拌。於其中添加作為環氧樹脂之衍生自間苯二甲胺之具有環氧丙基胺基之環氧樹脂(三菱瓦斯化學(股)製「TETRAD-X」)1.46g(環氧樹脂硬化劑中的活性氫數/環氧樹脂中的環氧基數

=0.8)並進行攪拌，製得固體成分濃度35質量%之樹脂硬化層(III)-3形成用之環氧樹脂組成物C。

【0088】

製造例6(環氧樹脂組成物D之製備)

添加作為稀釋溶劑之乙醇8.83g、及製造例2得到的環氧樹脂硬化劑溶液B 1.14g並進行攪拌。於其中添加作為環氧樹脂之衍生自間苯二甲胺之具有環氧丙基胺基之環氧樹脂(三菱瓦斯化學(股)製「TETRAD-X」)0.03g(環氧樹脂硬化劑中的活性氫數/環氧樹脂中的環氧基數=3.0)並進行攪拌，製得固體成分濃度2質量%之樹脂硬化層(III)-4形成用之環氧樹脂組成物D。

【0089】

實施例1(疊層體之製作及塑膠薄膜之回收)

(疊層體之製作)

按以下程序製作如表1所示之層結構的疊層體。

於雙軸延伸聚丙烯薄膜(OPP)(FUTAMURA CHEMICAL(股)製「FOR」，厚度：25μm)之其中一面，使用8號塗佈棒塗佈白色印墨(將SAKATA INX(股)製「Belle Color R115」以稀釋溶劑(SAKATA INX(股)製「L溶劑」)予以2倍稀釋而成者)，並以80°C加熱10秒使其乾燥(乾燥後的厚度：約0.5μm)，形成著色層。於該著色層上，使用8號塗佈棒塗佈反向印刷用凹版印墨(將SAKATA INX(股)製「BelleFlora R medium」以稀釋溶劑(SAKATA INX(股)製「K溶劑」)予以2倍稀釋而成者)，並以80°C加熱10秒使其乾燥(乾燥後的厚度：約0.5μm)，形成中介層。於以下之表中，將著色層及中介層一起標記為「印墨層」。

然後，於中介層上，使用8號塗佈棒塗佈製造例3得到的環氧樹脂組成物A，並以80℃加熱10秒使其乾燥(乾燥後的厚度：約3μm)。使該環氧樹脂組成物之塗佈面與於無延伸聚丙烯薄膜(CPP)之其中一面蒸鍍有鋁之鋁蒸鍍CPP(中井工業(股)製「S-F-1」，厚度：25μm)之鋁蒸鍍面相向並利用夾輥進行貼合，以40℃加熱2天，形成樹脂硬化層(III)-1，獲得表1所示之層結構的疊層體。

【0090】

(塑膠薄膜之回收及評價)

將製得的疊層體裁切成1.5cm×5cm之條狀，使1片條狀之疊層體浸漬於40℃之1N-乙酸水溶液(約10g)中16小時。浸漬後回收疊層體，並實施下列評價。

<剝離界面>

於浸漬到1N-乙酸水溶液後並予以回收之疊層體中，目視觀察任一層之界面是否發生剝離，並表示於表1。表1所記載之「剝離界面」表示以「//」表示之界面發生剝離。

【0091】

<蒸鍍層之狀態>

目視觀察疊層體中之鋁蒸鍍層是否有溶解，並表示於表1。表中，將觀察到蒸鍍層之至少一部溶解的情況，記載為「溶解」。

【0092】

<CPP之分離>

針對CPP薄膜從疊層體分離之狀態利用下列基準進行評價，並表示於表1。

[評價基準]

A：CPP薄膜從疊層體剝離，且回收的CPP薄膜之表面利用SEM-EDX(掃描型電子顯微鏡-能量分散型X射線分光法)測定進行元素分析之結果，於薄膜表面未殘存鋁

B：CPP薄膜從疊層體剝離，但於回收的CPP薄膜表面殘存鋁

C：CPP薄膜並未從疊層體剝離，無法回收

[SEM-EDX測定條件]

使用設備：Hitachi High-Tech(股)製掃描型電子顯微鏡「SU-8020」

測定條件：

加速電壓　10kV

探頭電流　10μA，High

聚光鏡1　1

作動距離　15mm

導電處理　Au-Pd蒸鍍

【0093】

<OPP+印墨層之分離>

於浸漬到1N-乙酸水溶液後並予以回收之疊層體中，針對OPP薄膜+印墨層之分離狀態，利用目視觀察以下列基準進行評價，並表示於表1。

[評價基準]

A：OPP薄膜+印墨層從疊層體剝離，且樹脂硬化層未殘存於印墨層上

B：OPP薄膜+印墨層從疊層體剝離，但樹脂硬化層殘存於印墨層上

C：OPP薄膜+印墨層從疊層體剝離，但樹脂硬化層及一部分之蒸鍍層殘存於印墨層上

D：OPP薄膜+印墨層並未從疊層體剝離，無法回收

【0094】

實施例2~4

將實施例1中之浸漬疊層體之水溶液變更為表1所記載者，除此之外，以和實施例1同樣的方法實施評價。結果如表1所示。

【0095】

實施例5

將實施例1中之製造例3得到的環氧樹脂組成物A替換成使用製造例4得到的環氧樹脂組成物B，除此之外，以和實施例1同樣之方法製得表1所示之層結構的疊層體，並實施評價。結果如表1所示。

【0096】

實施例6~8

將實施例5中之浸漬疊層體之水溶液變更為表1所記載者，除此之外，以和實施例5同樣之方法實施評價。結果如表1所示。

【0097】

比較例1

將實施例2中之製造例3得到的環氧樹脂組成物A替換成使用胺甲酸酯系黏接劑(Toyo-Morton(股)製「TM-569/CAT-RT37」)，除此之外，以和實施例2同樣之方法製得表1所示之層結構的疊層體，並實施評價。結果如表1所示。

【0098】

比較例2~3

將比較例1中之浸漬疊層體之水溶液變更為表1所記載者，除此之外，以和比較例1同樣的方法實施評價。結果如表1所示。

【0099】

[表1]

	疊層體			浸漬水溶液※	剝離界面	蒸鍍層之狀態	CPP之分離	OPP+印墨層之分離
	層結構	樹脂硬化層						
		種類	厚度(μm)					
實施例1	OPP/印墨層/樹脂硬化層(II)/Al蒸鍍層/CPP	(III)-1	3	1N-乙酸	印墨層//樹脂硬化層(III)//Al蒸鍍層//CPP	溶解	A	A
實施例2	OPP/印墨層/樹脂硬化層(II)/Al蒸鍍層/CPP	(III)-1	3	1N-乳酸	印墨層//樹脂硬化層(III)//Al蒸鍍層//CPP	溶解	A	A
實施例3	OPP/印墨層/樹脂硬化層(II)/Al蒸鍍層/CPP	(III)-1	3	1N-檸檬酸	印墨層//樹脂硬化層(III)//Al蒸鍍層	未溶解	B	A
實施例4	OPP/印墨層/樹脂硬化層(II)/Al蒸鍍層/CPP	(III)-1	3	1N-鹽酸	印墨層//樹脂硬化層(III)//Al蒸鍍層//CPP	溶解	A	A
實施例5	OPP/印墨層/樹脂硬化層(II)/Al蒸鍍層/CPP	(III)-2	3	1N-乙酸	印墨層//樹脂硬化層(III)//Al蒸鍍層//CPP	溶解	A	A
實施例6	OPP/印墨層/樹脂硬化層(II)/Al蒸鍍層/CPP	(III)-2	3	1N-乳酸	印墨層//樹脂硬化層(III)//Al蒸鍍層//CPP	溶解	A	A
實施例7	OPP/印墨層/樹脂硬化層(II)/Al蒸鍍層/CPP	(III)-2	3	1N-檸檬酸	印墨層//樹脂硬化層(III)//Al蒸鍍層	未溶解	B	A
實施例8	OPP/印墨層/樹脂硬化層(II)/Al蒸鍍層/CPP	(III)-2	3	1N-鹽酸	印墨層//樹脂硬化層(III)//Al蒸鍍層//CPP	溶解	A	A
比較例1	OPP/印墨層/胺甲酸酯系黏接劑層/Al蒸鍍層/CPP	胺甲酸酯系黏接劑層	3	1N-乳酸	未剝離	未溶解	C	D
比較例2	OPP/印墨層/胺甲酸酯系黏接劑層/Al蒸鍍層/CPP	胺甲酸酯系黏接劑層	3	1N-檸檬酸	未剝離	未溶解	C	D
比較例3	OPP/印墨層/胺甲酸酯系黏接劑層/Al蒸鍍層/CPP	胺甲酸酯系黏接劑層	3	1N-鹽酸	未剝離	僅周邊部些微溶解	C	D

※ 1N-乙酸：pH2.26，1N-乳酸：pH1.8，1N-檸檬酸：pH1.75，1N-鹽酸：pH0.22 (均為25℃時的值)

【0100】

由表1可知，藉由使具有OPP薄膜及CPP薄膜、鋁蒸鍍層、及預定的樹脂硬化層(III)之疊層體浸漬於酸水溶液，可將CPP薄膜、及OPP薄膜+印墨層分離(實施例1~8)。尤其使疊層體浸漬於1N-乙酸水溶液、1N-乳酸水溶液、或1N-鹽酸之實施例1、2、4~6、8中，於CPP薄膜無蒸鍍層殘存，對CPP薄膜之回收係為有利。相對於此，比較例1~3中，塑膠薄膜無法分離。

【0101】

實施例9(疊層體之製作及塑膠薄膜之回收)

(疊層體之製作)

按以下程序製作如表2所示之層結構的疊層體。

於雙軸延伸聚對苯二甲酸乙二酯薄膜(PET)之其中一面蒸鍍有氧化鋁之氧化鋁蒸鍍PET(東麗薄膜加工(股)製「Barrialox1011HG」，厚度：12μm)之氧化鋁蒸鍍面，使用8號塗佈棒塗佈白色印墨(將SAKATA INX(股)製「Belle Color R115」以稀釋溶劑(SAKATA INX(股)製「L溶劑」)予以2倍稀釋而成者)，並以80°C加熱10秒使其乾燥(乾燥後的厚度：約0.5μm)，形成著色層。於該著色層上，使用8號塗佈棒塗佈反向印刷用凹版印墨(將SAKATA INX(股)製「BelleFlora R medium」以稀釋溶劑(SAKATA INX(股)製「K溶劑」)予以2倍稀釋而成者)，並以80°C加熱10秒使其乾燥(乾燥後的厚度：約0.5μm)，形成中介層。

然後，於前述中介層上使用8號塗佈棒塗佈製造例5得到的環氧樹脂組成物C，並以80°C加熱10秒使其乾燥(乾燥後的厚度：約3μm)。使該環氧樹脂組成物之塗佈面與無延伸聚丙烯薄膜(CPP)(東洋紡(股)製「PYLEN薄膜-CT P1146」，

厚度：50μm)相向並以夾輥進行貼合，以40°C加熱2天，形成樹脂硬化層(III)-3，獲得表2所示之層結構的疊層體。

【0102】

(塑膠薄膜之回收及評價)

將製得的疊層體裁切成1.5cm×5cm之條狀，使1片條狀之疊層體浸漬於40°C之1N-乙酸水溶液(約10g)中16小時。浸漬後回收疊層體，並實施下列評價。

【0103】

<剝離界面、蒸鍍層之狀態>

以和實施例1同樣的方法進行評價。

【0104】

<PET之分離>

針對PET薄膜從疊層體分離之狀態利用下列基準進行評價，並表示於表2。SEM-EDX測定條件和前述相同。

[評價基準]

A：PET薄膜從疊層體剝離，且回收的PET薄膜之表面利用SEM-EDX測定進行元素分析之結果，於薄膜表面未殘存氧化鋁

B：PET薄膜從疊層體剝離，但於回收的PET薄膜表面殘存氧化鋁

C：PET薄膜並未從疊層體剝離，無法回收

【0105】

<CPP+樹脂硬化層之分離>

於浸漬到1N-乙酸水溶液後並予以回收之疊層體中，針對CPP+樹脂硬化層之分離狀態，利用目視觀察以下列基準進行評價，並表示於表2。

[評價基準]

A：CPP薄膜+樹脂硬化層從疊層體剝離，且印墨層未殘存於樹脂硬化層上

B：CPP薄膜+樹脂硬化層從疊層體剝離，但印墨層殘存於樹脂硬化層上

C：CPP薄膜+樹脂硬化層並未從疊層體剝離，無法回收

【0106】

實施例10~11

將實施例9中之浸漬疊層體之水溶液變更為表2所記載者，除此之外，以和實施例9同樣之方法實施評價。結果如表2所示。

【0107】

比較例4

將實施例9中之製造例5得到的環氧樹脂組成物C替換成使用胺甲酸酯系黏接劑(Toyo-Morton(股)製「TM-569/CAT-RT37」)，除此之外，以和實施例9同樣之方法製得表2所示之層結構的疊層體，並實施評價。結果如表2所示。

【0108】

比較例5~6

將比較例4中之浸漬疊層體之水溶液變更為表2所記載者，除此之外，以和比較例4同樣之方法實施評價。結果如表2所示。

【0109】

[表2]

	疊層體			浸漬水溶液	剝離界面	蒸鍍層之狀態	PET之分離	CPP+樹脂硬化層之分離
	層結構	樹脂硬化層						
		種類	厚度(μm)					
實施例9	PET/Al_2O_x蒸鍍層/印墨層/樹脂硬化層(III)/CPP	(III)-3	3	1N-乙酸	PET//Al_2O_x蒸鍍層//印墨層//樹脂硬化層(III)	溶解	A	A
實施例10	PET/Al_2O_x蒸鍍層/印墨層/樹脂硬化層(III)/CPP	(III)-3	3	1N-乳酸	PET//Al_2O_x蒸鍍層//印墨層//樹脂硬化層(III)	溶解	A	A
實施例11	PET/Al_2O_x蒸鍍層/印墨層/樹脂硬化層(III)/CPP	(III)-3	3	1N-鹽酸	PET//Al_2O_x蒸鍍層//印墨層	溶解	A	B
比較例4	PET/Al_2O_x蒸鍍層/印墨層/胺甲酸酯系黏接劑層/CPP	胺甲酸酯系黏接劑層	3	1N-乙酸	未剝離	未溶解	C	C
比較例5	PET/Al_2O_x蒸鍍層/印墨層/胺甲酸酯系黏接劑層/CPP	胺甲酸酯系黏接劑層	3	1N-乳酸	未剝離	未溶解	C	C
比較例6	PET/Al_2O_x蒸鍍層/印墨層/胺甲酸酯系黏接劑層/CPP	胺甲酸酯系黏接劑層	3	1N-鹽酸	未剝離	未溶解	C	C

【0110】

實施例12(疊層體之製作及塑膠薄膜之回收)

(疊層體之製作)

按以下程序製作如表3所示之層結構的疊層體。

於雙軸延伸聚對苯二甲酸乙二酯薄膜(PET)之其中一面蒸鍍有二氧化矽之二氧化矽蒸鍍PET(三菱化學(股)製「TECHBARRIER L」，厚度：12μm)之二氧化矽蒸鍍面，使用8號塗佈棒塗佈製造例3得到的環氧樹脂組成物A，並以80℃加熱10秒使其乾燥(乾燥後的厚度：約3μm)。使該環氧樹脂組成物之塗佈面與無延伸聚丙烯薄膜(CPP)(東洋紡(股)製「PYLEN薄膜-CT P1146」，厚度：25μm)相向並以夾輥進行貼合，以40℃加熱2天，形成樹脂硬化層(III)-1，獲得表3所示之層結構的疊層體。

【0111】

(塑膠薄膜之回收及評價)

將製得的疊層體裁切成1.5cm×5cm之條狀，使1片條狀之疊層體浸漬於40℃之1N-乙酸水溶液(約10g)中16小時。浸漬後回收疊層體，並實施下列評價。

【0112】

<剝離界面、蒸鍍層之狀態>

以和實施例1同樣的方法進行評價。

【0113】

<PET之分離>

針對PET薄膜從疊層體分離之狀態利用下列基準進行評價，並表示於表3。SEM-EDX測定條件和前述相同。

[評價基準]

A：PET薄膜從疊層體剝離，且回收的PET薄膜之表面利用SEM-EDX測定進行元素分析之結果，於薄膜表面未殘存二氧化矽

B：PET薄膜從疊層體剝離，但回收的PET薄膜表面殘存二氧化矽

C：PET薄膜並未從疊層體剝離，無法回收

【0114】

<CPP+樹脂硬化層之分離>

於浸漬到1N-乙酸水溶液後並予以回收之疊層體中，針對CPP+樹脂硬化層之分離狀態，利用目視觀察以下列基準進行評價，並表示於表3。

[評價基準]

A：CPP薄膜+樹脂硬化層從疊層體剝離

C：CPP薄膜+樹脂硬化層並未從疊層體剝離，無法回收

【0115】

實施例13~14

將實施例12中之浸漬疊層體之水溶液變更為表3所記載者，除此之外，以和實施例12同樣之方法實施評價。結果如表3所示。

【0116】

比較例7

將實施例12中之製造例3得到的環氧樹脂組成物A替換成使用胺甲酸酯系黏接劑(Toyo-Morton(股)製「TM-569/ CAT-RT37」)，除此之外，以和實施例12同樣之方法製得表3所示之層結構的疊層體，並實施評價。結果如表3所示。

【0117】

比較例8~9

將比較例7中之浸漬疊層體之水溶液變更為表3所記載者，除此之外，以和比較例7同樣之方法實施評價。結果如表3所示。

【0118】

[表3]

	疊層體			浸漬水溶液	剝離界面	蒸鍍層之狀態	PET之分離	CPP+樹脂硬化層之分離
	層結構	樹脂硬化層						
		種類	厚度（μm）					
實施例12	PET/SiO_x蒸鍍層/樹脂硬化層(III)/CPP	(III)-1	3	1N-乙酸	SiO_x蒸鍍層//樹脂硬化層(III)	溶解	B	A
實施例13	PET/SiO_x蒸鍍層/樹脂硬化層(III)/CPP	(III)-1	3	1N-乳酸	SiO_x蒸鍍層//樹脂硬化層(III)	溶解	B	A
實施例14	PET/SiO_x蒸鍍層/樹脂硬化層(III)/CPP	(III)-1	3	1N-檸檬酸	SiO_x蒸鍍層//樹脂硬化層(III)	溶解	B	A
比較例7	PET/SiO_x蒸鍍層/胺甲酸酯系黏接劑層/CPP	胺甲酸酯系黏接劑層	3	1N-乙酸	未剝離	未溶解	C	C
比較例8	PET/SiO_x蒸鍍層/胺甲酸酯系黏接劑層/CPP	胺甲酸酯系黏接劑層	3	1N-乳酸	未剝離	未溶解	C	C
比較例9	PET/SiO_x蒸鍍層/胺甲酸酯系黏接劑層/CPP	胺甲酸酯系黏接劑層	3	1N-檸檬酸	未剝離	未溶解	C	C

【0119】

實施例15(疊層體之製作及塑膠薄膜之回收)

(疊層體之製作)

按以下程序製作如表4所示之層結構的疊層體。

於雙軸延伸聚丙烯薄膜(OPP)(FUTAMURA CHEMICAL(股)製「FOR」，厚度：25μm)之其中一面使用8號塗佈棒塗佈製造例3得到的環氧樹脂組成物A，並以80℃加熱10秒使其乾燥(乾燥後的厚度：約3μm)。使該環氧樹脂組成物之塗佈面與於無延伸聚丙烯薄膜(CPP)之其中一面蒸鍍有鋁之鋁蒸鍍CPP(中井工業(股)製「S-F-1」，厚度：25μm)之鋁蒸鍍面相向並利用夾輥進行貼合，以40℃加熱2天，形成樹脂硬化層(III)-1，獲得表4所示之層結構的疊層體。

【0120】

(塑膠薄膜之回收及評價)

將製得的疊層體裁切成1.5cm×5cm之條狀，使1片條狀之疊層體浸漬於23℃之1N-鹽酸(約10g)中96小時。浸漬後回收疊層體，並實施下列評價。

【0121】

<剝離界面、蒸鍍層之狀態>

以和實施例1同樣的方法進行評價。

【0122】

<CPP之分離>

以和實施例1同樣的方法進行評價。

【0123】

<OPP+樹脂硬化層之分離>

於浸漬到1N-鹽酸後並予以回收之疊層體中，針對OPP薄膜+樹脂硬化層之分離狀態，利用目視觀察以下列基準進行評價，並表示於表4。

[評價基準]

A：OPP薄膜+樹脂硬化層從疊層體剝離

C：OPP薄膜+樹脂硬化層並未從疊層體剝離，無法回收

【0124】

實施例16

將實施例15中之浸漬疊層體之水溶液變更為5%-KOH水溶液(25℃中的pH：14.7)，除此之外，以和實施例15同樣之方法實施評價。結果如表4所示。

【0125】

實施例17(疊層體之製作及塑膠薄膜之回收)

(疊層體之製作)

按以下程序製作如表4所示之層結構的疊層體。

於無延伸聚丙烯薄膜(CPP)之其中一面蒸鍍有鋁之鋁蒸鍍CPP(中井工業(股)製「S-F-1」，厚度：25μm)之鋁蒸鍍面，使用3號塗佈棒塗佈製造例6得到的環氧樹脂組成物D，並以80℃加熱30秒使其乾燥(乾燥後的厚度：約0.1μm)。

然後，於雙軸延伸聚丙烯薄膜(OPP)(FUTAMURA CHEMICAL(股)製「FOR」，厚度：25μm)之其中一面，使用8號塗佈棒塗佈胺甲酸酯系黏接劑(Toyo-Morton(股)製「TM-569/ CAT-RT37」)，並以80℃加熱10秒使其乾燥(乾燥後的厚度：約3μm)。使前述環氧樹脂組成物之塗佈面與該胺甲酸酯系黏接劑層相向並利用夾輥進行貼合，以40℃加熱2天，形成樹脂硬化層(III)-4，獲得表4所示之層結構的疊層體。

【0126】

(塑膠薄膜之回收及評價)

將製得的疊層體裁切成1.5cm×5cm之條狀，使1片條狀之疊層體浸漬於23℃之1N-鹽酸(約10g)中96小時。浸漬後回收疊層體，並實施和實施例12同樣的評價。結果如表4所示。

【0127】

實施例18

將實施例17中之浸漬疊層體之水溶液變更為5%-KOH水溶液(25℃中的pH：14.7)，除此之外，以和實施例17同樣之方法實施評價。結果如表4所示。

【0128】

[表4]

	疊層體			浸漬水溶液	剝離界面	蒸鍍層之狀態	CPP之分離	OPP+樹脂硬化層之分離
	層結構	樹脂硬化層						
		種類	厚度(μm)					
實施例15	OPP/樹脂硬化層(III)/Al蒸鍍層/CPP	(III)-1	3	1N-鹽酸	樹脂硬化層(III)//Al蒸鍍層//CPP	溶解	A	A
實施例16	OPP/樹脂硬化層(III)/Al蒸鍍層/CPP	(III)-1	3	5%-KOH	樹脂硬化層(III)//Al蒸鍍層//CPP	溶解	A	A
實施例17	OPP/胺甲酸酯系黏接劑層/樹脂硬化層(III)/Al蒸鍍層/CPP	胺甲酸酯系黏接劑層+(III)-4	0.1	1N-鹽酸	樹脂硬化層(III)//Al蒸鍍層//CPP	溶解	A	B
實施例18	OPP/胺甲酸酯系黏接劑層/樹脂硬化層(III)/Al蒸鍍層/CPP	胺甲酸酯系黏接劑層+(III)-4	0.1	5%-KOH	樹脂硬化層(III)//Al蒸鍍層//CPP	溶解	A	B

【0129】

由表2~4可知，根據本發明之方法，即使使用層結構不同的疊層體，仍可利用酸水溶液或鹼水溶液將塑膠薄膜分離。

【0130】

實施例19(疊層體之製作及塑膠薄膜之回收)

(疊層體之製作)

按以下程序製作如表5所示之層結構的疊層體。

於聚對苯二甲酸乙二酯薄膜(PET)之其中一面蒸鍍有二氧化矽之二氧化矽蒸鍍PET(三菱化學(股)製「TECHBARRIER L」，厚度：12μm)之二氧化矽蒸鍍面，使用8號塗佈棒塗佈製造例3得到的環氧樹脂組成物A，並以80℃加熱10秒使其乾燥(乾燥後的厚度：約3μm)。使該環氧樹脂組成物之塗佈面與於PET密封膠之其中一面形成有二氧化矽-氧化鋁之2元蒸鍍層之2元蒸鍍PET密封膠薄膜(東洋紡(股)製「VE034」，厚度：30μm)之蒸鍍層面相向並以夾輥進行貼合，以40℃加熱2天，形成樹脂硬化層(III)-1，獲得表5所示之層結構的疊層體。

【0131】

(塑膠薄膜之回收及評價)

將製得的疊層體裁切成1.5cm×5cm之條狀，使1片條狀之疊層體浸漬於40℃之5%-KOH水溶液(約10g)16小時。浸漬後回收疊層體，並實施下列評價。

【0132】

<剝離界面、蒸鍍層之狀態>

以和實施例1同樣的方法進行評價。

【0133】

<PET之分離>

針對PET薄膜從疊層體分離之狀態利用下列基準進行評價，並表示於表5。SEM-EDX測定條件和前述相同。

[評價基準]

A：PET薄膜從疊層體剝離，且回收的PET薄膜之表面利用SEM-EDX測定進行元素分析之結果，於薄膜表面未殘存二氧化矽

B：PET薄膜從疊層體剝離，但回收的PET薄膜表面殘存二氧化矽

C：PET薄膜並未從疊層體剝離，無法回收

【0134】

<PET密封膠之分離>

針對PET密封膠從疊層體分離之狀態利用下列基準進行評價，並表示於表5。

[評價基準]

A：PET密封膠從疊層體剝離，且回收的PET密封膠之表面利用SEM-EDX測定進行元素分析之結果，於密封膠表面未殘存2元蒸鍍層

B：PET密封膠從疊層體剝離，但回收的PET密封膠表面殘存2元蒸鍍層

C：PET密封膠並未從疊層體剝離，無法回收

【0135】

實施例20~22

將實施例19中之浸漬疊層體之水溶液變更為表5所記載者，除此之外，以和實施例19同樣之方法實施評價。結果如表5所示。

【0136】

比較例10

將實施例19中之製造例3得到的環氧樹脂組成物A替換成使用胺甲酸酯系黏接劑(Toyo-Morton(股)製「TM-569/CAT-RT37」)，除此之外，以和實施例19同樣之方法製得表5所示之層結構的疊層體，並實施評價。結果如表5所示。

【0137】

比較例11~13

將比較例10中之浸漬疊層體之水溶液變更為表5所記載者，除此之外，以和比較例10同樣之方法實施評價。結果如表5所示。

【0138】

[表5]

	疊層體			浸漬水溶液	剝離界面	蒸鍍層之狀態	PET之分離	PET密封膠之分離
	層結構	樹脂硬化層						
		牌號	厚度(μm)					
實施例19	PET/SiO_x蒸鍍層/樹脂硬化層(III)/2元蒸鍍層/PET密封膠	(III)-1	3	5%-KOH	PET//SiO_x蒸鍍層//樹脂硬化層(III)//2元蒸鍍層//PET密封膠	任一皆溶解	A	A
實施例20	PET/SiO_x蒸鍍層/樹脂硬化層(III)/2元蒸鍍層/PET密封膠	(III)-1	3	1N-鹽酸	SiO_x蒸鍍層//樹脂硬化層(III)//2元蒸鍍層	任一皆溶解	B	B
實施例21	PET/SiO_x蒸鍍層/樹脂硬化層(III)/2元蒸鍍層/PET密封膠	(III)-1	3	1N-乙酸	SiO_x蒸鍍層//樹脂硬化層(III)//2元蒸鍍層	任一皆溶解	B	B
實施例22	PET/SiO_x蒸鍍層/樹脂硬化層(III)/2元蒸鍍層/PET密封膠	(III)-1	3	1N-乳酸	SiO_x蒸鍍層//樹脂硬化層(III)//2元蒸鍍層	任一皆溶解	B	B
比較例10	PET/SiO_x蒸鍍層/胺甲酸酯系黏接劑/2元蒸鍍層/PET密封膠	胺甲酸酯系黏接劑	3	5%-KOH	僅同邊部剝離	–	C	C
比較例11	PET/SiO_x蒸鍍層/胺甲酸酯系黏接劑/2元蒸鍍層/PET密封膠	胺甲酸酯系黏接劑	3	1N-鹽酸	未剝離	未溶解	C	C
比較例12	PET/SiO_x蒸鍍層/胺甲酸酯系黏接劑/2元蒸鍍層/PET密封膠	胺甲酸酯系黏接劑	3	1N-乙酸	未剝離	未溶解	C	C
比較例13	PET/SiO_x蒸鍍層/胺甲酸酯系黏接劑/2元蒸鍍層/PET密封膠	胺甲酸酯系黏接劑	3	1N-乳酸	未剝離	未溶解	C	C

【0139】

實施例23(疊層體之製作及塑膠薄膜之回收)

(疊層體之製作)

將實施例19中之2元蒸鍍PET密封膠薄膜替換成使用PET密封膠薄膜(日生化學(股)製「HS-PET(C)」)，除此之外，以和實施例19同樣之方法，製得表6所示之層結構的疊層體。

【0140】

(塑膠薄膜之回收及評價)

將製得的疊層體裁切成1.5cm×5cm之條狀，使1片條狀之疊層體浸漬於40℃之5%-KOH水溶液(約10g)96小時。浸漬後回收疊層體，並實施下列評價。

【0141】

<剝離界面、蒸鍍層之狀態>

以和實施例1同樣的方法進行評價。

【0142】

<PET之分離>

針對PET薄膜從疊層體分離之狀態利用下列基準進行評價，並表示於表6。SEM-EDX測定條件和前述相同。

[評價基準]

A：PET薄膜從疊層體剝離，且回收的PET薄膜之表面利用SEM-EDX測定進行元素分析之結果，於薄膜表面未殘存二氧化矽

B：PET薄膜從疊層體剝離，但回收的PET薄膜表面殘存二氧化矽

C：PET薄膜並未從疊層體剝離，無法回收

【0143】

<PET密封膠+樹脂硬化層之分離>

於浸漬到5%-KOH水溶液後並予以回收之疊層體中，針對PET密封膠+樹脂硬化層之分離狀態，利用目視觀察以下列基準進行評價，並表示於表6。

[評價基準]

A：PET密封膠+樹脂硬化層從疊層體剝離

C：PET密封膠+樹脂硬化層並未從疊層體剝離，無法回收

【0144】

實施例24~26

將實施例23中之浸漬疊層體之水溶液變更為表6所記載者，除此之外，以和實施例19同樣之方法實施評價。結果如表6所示。

【0145】

比較例14

將實施例24中之製造例3得到的環氧樹脂組成物A替換成使用胺甲酸酯系黏接劑(Toyo-Morton(股)製「TM-569/CAT-RT37」)，除此之外，以和實施例24同樣之方法製得表6所示之層結構的疊層體，並實施評價。結果如表6所示。

【0146】

比較例15~16

將比較例14中之浸漬疊層體之水溶液變更為表6所記載者，除此之外，以和比較例14同樣之方法實施評價。結果如表6所示。

【0147】

[表6]

	層層體			浸漬水溶液	剝離界面	蒸鍍層之狀態	PET之分離	PET密封膠+樹脂硬化層之分離
	層結構	樹脂硬化層						
		種類	厚度（μm）					
實施例23	PET/SiO_x蒸鍍層/樹脂硬化層(III)/PET密封膠	(III)-1	3	5%-KOH	PET//SiO_x蒸鍍層//樹脂硬化層(III)	溶解	A	A
實施例24	PET/SiO_x蒸鍍層/樹脂硬化層(III)/PET密封膠	(III)-1	3	1N-鹽酸	SiO_x蒸鍍層//樹脂硬化層(III)	溶解	B	A
實施例25	PET/SiO_x蒸鍍層/樹脂硬化層(III)/PET密封膠	(III)-1	3	1N-乙酸	SiO_x蒸鍍層//樹脂硬化層(III)	溶解	B	A
實施例26	PET/SiO_x蒸鍍層/樹脂硬化層(III)/PET密封膠	(III)-1	3	1N-乳酸	SiO_x蒸鍍層//樹脂硬化層(III)	溶解	B	A
比較例14	PET/SiO_x蒸鍍層/胺甲酸酯系黏接劑/PET密封膠	胺甲酸酯系黏接劑	3	1N-鹽酸	未剝離	未溶解	C	C
比較例15	PET/SiO_x蒸鍍層/胺甲酸酯系黏接劑/PET密封膠	胺甲酸酯系黏接劑	3	1N-乙酸	未剝離	未溶解	C	C
比較例16	PET/SiO_x蒸鍍層/胺甲酸酯系黏接劑/PET密封膠	胺甲酸酯系黏接劑	3	1N-乳酸	未剝離	未溶解	C	C

【0148】

實施例27(疊層體之製作及塑膠薄膜之回收)

(疊層體之製作)

按以下程序製作如表7所示之層結構的疊層體。

於雙軸延伸聚對苯二甲酸乙二酯薄膜(PET)(東洋紡(股)製「E5100」，厚度：12μm)之其中一面，使用8號塗佈棒塗佈白色印墨(將SAKATA INX(股)製「Belle Color R115」以稀釋溶劑(SAKATA INX(股)製「L溶劑」)予以2倍稀釋而成者)，並以80℃加熱10秒使其乾燥(乾燥後的厚度：約0.5μm)，形成著色層。於該著色層上，使用8號塗佈棒塗佈反向印刷用凹版印墨(將SAKATA INX(股)製「BelleFlora R medium」以稀釋溶劑(SAKATA INX(股)製「K溶劑」)予以2倍稀釋而成者)，並以80℃加熱10秒使其乾燥(乾燥後的厚度：約0.5μm)，形成中介層。

然後，於前述中介層上使用8號塗佈棒塗佈製造例3得到的環氧樹脂組成物A，並以80℃加熱10秒使其乾燥(乾燥後的厚度：約3μm)。使該環氧樹脂組成物之塗佈面與於PET密封膠之其中一面形成有二氧化矽-氧化鋁之2元蒸鍍層之2元蒸鍍PET密封膠薄膜(東洋紡(股)製「VE034」，厚度：30μm)之蒸鍍層面相向並以夾輥進行貼合，以40℃加熱2天，形成樹脂硬化層(III)-1，獲得表7所示之層結構的疊層體。

【0149】

(塑膠薄膜之回收及評價)

將製得的疊層體裁切成1.5cm×5cm之條狀，使1片條狀之疊層體浸漬於40℃之5%-KOH水溶液(約10g)16小時。浸漬後回收疊層體，並實施下列評價。

【0150】

<剝離界面、蒸鍍層之狀態>

以和實施例1同樣的方法進行評價。

【0151】

<PET之分離>

針對PET薄膜從疊層體分離之狀態利用下列基準進行評價，並表示於表7。SEM-EDX測定條件和前述相同。

[評價基準]

A：PET薄膜從疊層體剝離，且回收的PET薄膜之表面未殘存印墨層

B：PET薄膜從疊層體剝離，但回收的PET薄膜表面殘存印墨層

C：PET薄膜並未從疊層體剝離，無法回收

【0152】

<PET密封膠之分離>

針對PET密封膠從疊層體分離之狀態以下列基準進行評價，並表示於表7。

[評價基準]

A：PET密封膠從疊層體剝離，且回收的PET密封膠之表面利用SEM-EDX測定進行元素分析之結果，於密封膠表面未殘存2元蒸鍍層

B：PET密封膠從疊層體剝離，但回收的PET密封膠表面殘存2元蒸鍍層

C：PET密封膠並未從疊層體剝離，無法回收

【0153】

實施例28~31

將實施例27中之浸漬疊層體之水溶液變更為表7所記載者，除此之外，以和實施例27同樣之方法實施評價。結果如表7所示。

【0154】

比較例17

將實施例27中之製造例3得到的環氧樹脂組成物A替換成使用胺甲酸酯系黏接劑(Toyo-Morton(股)製「TM-569/CAT-RT37」)，除此之外，以和實施例27同樣之方法製得表7所示之層結構的疊層體，並實施評價。結果如表7所示。

【0155】

比較例18~21

將比較例17中之浸漬疊層體之水溶液變更為表7所記載者，除此之外，以和比較例17同樣之方法實施評價。結果如表7所示。

【0156】

[表7]

	膜層體			浸漬次溶液	剝離界面	蒸鍍層之狀態	PET之分離	PET密封膠之分離
	層結構	樹脂硬化層						
		種類	厚度(μm)					
實施例27	PET/印墨層/樹脂硬化層(III)/2元蒸鍍層/PET密封膠	(III)-1	3	5%-KOH	PET//印墨層//樹脂硬化層(III)//2元蒸鍍層//PET密封膠	溶解	A	A
實施例28	PET/印墨層/樹脂硬化層(III)/2元蒸鍍層/PET密封膠	(III)-1	3	1N-鹽酸	印墨層//樹脂硬化層(III)//2元蒸鍍層	溶解	B	B
實施例29	PET/印墨層/樹脂硬化層(III)/2元蒸鍍層/PET密封膠	(III)-1	3	1N-乙酸	印墨層//樹脂硬化層(III)//2元蒸鍍層	溶解	B	B
實施例30	PET/印墨層/樹脂硬化層(III)/2元蒸鍍層/PET密封膠	(III)-1	3	1N-乳酸	印墨層//樹脂硬化層(III)//2元蒸鍍層	溶解	B	B
實施例31	PET/印墨層/樹脂硬化層(III)/2元蒸鍍層/PET密封膠	(III)-1	3	1N-檸檬酸	印墨層//樹脂硬化層(III)//2元蒸鍍層	溶解	B	B
比較例17	PET/印墨層/胺甲酸酯系黏接劑/2元蒸鍍層/PET密封膠	胺甲酸酯系黏接劑	3	5%-KOH	僅周邊部剝離	-	C	C
比較例18	PET/印墨層/胺甲酸酯系黏接劑/2元蒸鍍層/PET密封膠	胺甲酸酯系黏接劑	3	1N-鹽酸	未剝離	未溶解	C	C
比較例19	PET/印墨層/胺甲酸酯系黏接劑/2元蒸鍍層/PET密封膠	胺甲酸酯系黏接劑	3	1N-乙酸	未剝離	未溶解	C	C
比較例20	PET/印墨層/胺甲酸酯系黏接劑/2元蒸鍍層/PET密封膠	胺甲酸酯系黏接劑	3	1N-乳酸	未剝離	未溶解	C	C
比較例21	PET/印墨層/胺甲酸酯系黏接劑/2元蒸鍍層/PET密封膠	胺甲酸酯系黏接劑	3	1N-檸檬酸	未剝離	未溶解	C	C

【0157】

由表5~7可知，根據本發明之方法，即使使用層結構不同的疊層體，仍可利用酸水溶液或鹼水溶液將塑膠薄膜(PET或PET密封膠)分離。又，疊層體中之蒸鍍層含二氧化矽時，宜和鹼水溶液接觸。

【0158】

實施例32(實機所為之塑膠薄膜之回收)

使用實施例1之層結構之疊層體(OPP/印墨層/樹脂硬化層(III)/Al蒸鍍層/CPP)，利用如下之方法回收塑膠薄膜。

於具有固定刃與旋轉刃，且安裝有網目尺寸12mm之篩網的乾式粉碎機中，投入實施例1之層結構之疊層體(寬300mm之薄膜輥)，將疊層體粉碎。粉碎後之疊層體的形狀如圖1所示。

於500mL之可分離式燒瓶放入1N-乳酸水溶液300mL，使用油浴加溫至75°C。昇溫至75°C後，將前述粉碎後之疊層體10g投入燒瓶中，使用攪拌葉片以240rpm攪拌1小時。另外，於攪拌30分鐘時，確認鋁蒸鍍層已完全溶解。

攪拌1小時後，從油浴將燒瓶拿出並放冷，同時再攪拌1小時。攪拌結束後，分離的樹脂硬化層沉澱於燒瓶底部，OPP/印墨層及CPP薄膜浮在水溶液表面，可輕易地回收OPP/印墨層及CPP薄膜。

將回收的薄膜投入500mL之水中，於室溫以攪拌速度300rpm攪拌1小時進行清洗。將清洗後之OPP/印墨層及CPP薄膜進行SEM-EDX分析時，並未觀察到鋁蒸鍍層之殘存。

又，使用已回收樹脂硬化層及薄膜後之乳酸水溶液，以和前述同樣之方法再度實施塑膠薄膜之回收試驗時，得到和前述同樣的結果。由此可謂，乳酸水溶液可重複利用。

[產業上利用性]

【0159】

根據本發明之方法，可從包含塑膠薄膜之疊層體有效率地回收塑膠薄膜。本發明之方法中，塑膠薄膜之回收條件的自由度高，尤其從具有2片以上之塑膠薄膜的層合形態之疊層體仍可輕易地回收塑膠薄膜。

【發明申請專利範圍】

【請求項1】

一種方法，係從疊層體回收塑膠薄膜的方法，

該疊層體包含：

塑膠薄膜(I)，

選自由矽氧化物、鋁、及鋁氧化物構成之群組中之至少1種的無機層(II)，及

樹脂硬化層(III)；

該樹脂硬化層(III)係含有環氧樹脂和包含胺系硬化劑之環氧樹脂硬化劑的環氧樹脂組成物之硬化物，

該方法具有使該疊層體和酸水溶液或鹼水溶液接觸之步驟。

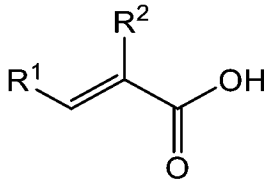
【請求項2】

如請求項1之方法，其中，該胺系硬化劑包含下述胺系硬化劑(i)；

(i)下述(A)成分和(B)成分之反應產物：

(A)選自由間苯二甲胺及對苯二甲胺構成之群組中之至少1種

(B)選自由下式(1)表示之不飽和羧酸及其衍生物構成之群組中之至少1種



(1)

式(1)中，R^1、R^2分別獨立地表示氫原子、碳數1~8之烷基、碳數6~12之芳基、或碳數7~13之芳烷基。

【請求項3】

如請求項1或2之方法，其中，該無機層(II)為無機蒸鍍層。

【請求項4】

如請求項1至3中任一項之方法，其中，該無機層(II)為鋁蒸鍍層。

【請求項5】

如請求項1至4中任一項之方法，其中，該疊層體包含2片以上之塑膠薄膜(I)。

【請求項6】

如請求項1至5中任一項之方法，其中，該環氧樹脂組成物中，該環氧樹脂硬化劑中的活性氫數相對於該環氧樹脂中的環氧基數之比(環氧樹脂硬化劑中的活性氫數/環氧樹脂中的環氧基數)為0.2~8.0之範圍。

【請求項7】

如請求項1至6中任一項之方法，其中，該樹脂硬化層(III)的厚度為0.05~20μm。

【請求項8】

如請求項1至7中任一項之方法，其中，該疊層體更包含印墨層。

【請求項9】

如請求項1至8中任一項之方法，其中，具有使該疊層體浸漬於酸水溶液之步驟。

(發明圖式)

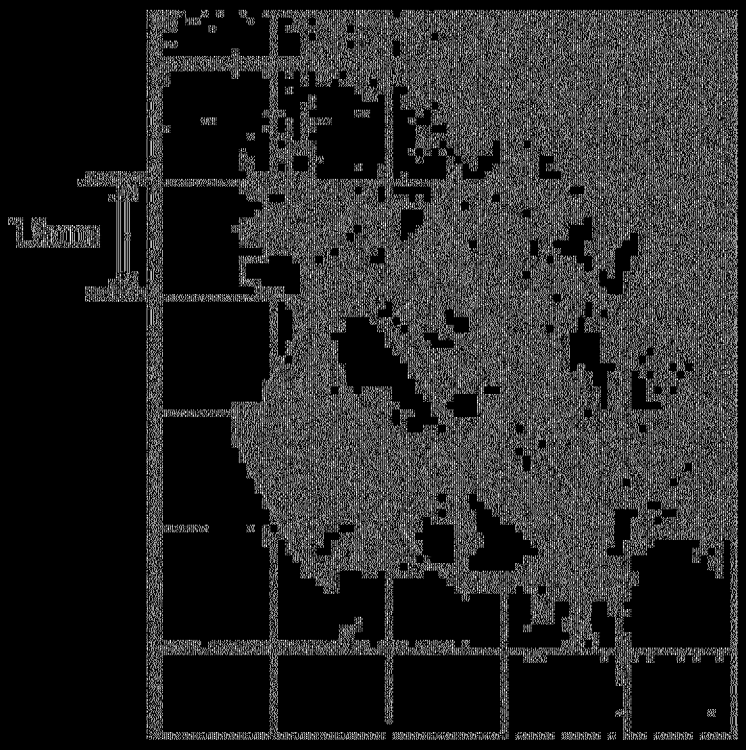


圖 1.