(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
2023年10月12日(12.10.2023)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2023/195376 A1

(51) 国際特許分類:
B29B 17/02 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2023/012308

(22) 国際出願日： 2023年3月27日(27.03.2023)

(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 2022-064642 2022年4月8日(08.04.2022) JP

(71) 出願人: 三菱瓦斯化学株式会社(**MITSUBISHI GAS CHEMICAL COMPANY, INC.**) [JP/JP]; 〒1008324 東京都千代田区丸の内二丁目５番２号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 河野 和起(**KOUNO Kazuki**); 〒2540016 神奈川県平塚市東八幡五丁目６番２号 三菱瓦斯化学株式会社 平塚研究所内 Kanagawa (JP). 野平 一樹(**NOHIRA Itsuki**); 〒2540016 神奈川県平塚市東八幡五丁目６番２号 三菱瓦斯化学株式会社 平塚研究所内 Kanagawa (JP). 小林 菜穂子(**KOBAYASHI Naoko**); 〒2540016 神奈川県平塚市東八幡五丁目６番２号 三菱瓦斯化学株式会社 平塚研究所内 Kanagawa (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人大谷特許事務所(**OHTANI PATENT OFFICE**); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目２５番２号 虎ノ門ＥＳビル７階 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, 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：

一 国際調査報告（条約第21条(3)）

(54) **Title:** METHOD FOR RECOVERING PLASTIC FILM

(54) 発明の名称： プラスチックフィルムを回収する方法

(57) **Abstract:** The present invention provides a method for recovering a plastic film from a multilayer body, wherein: the multilayer body comprises a plastic film (I), an inorganic layer (II) which is composed of at least one substance that is selected from the group consisting of silicon oxides, aluminum and aluminum oxides, and a resin cured layer (III); and the resin cured layer (III) is composed of a cured product of an epoxy resin composition that contains an epoxy resin and an epoxy resin curing agent including an amine-based curing agent. This method comprises a step in which the multilayer body is brought into contact with an acid aqueous solution or an alkaline aqueous solution.

(57) 要約：積層体からプラスチックフィルムを回収する方法であって、前記積層体は、プラスチックフィルム（Ｉ）、ケイ素酸化物、アルミニウム、及びアルミニウム酸化物からなる群から選ばれる少なくとも１種の無機層（ＩＩ）、及び樹脂硬化層（ＩＩＩ）、を含み、前記樹脂硬化層（ＩＩＩ）は、エポキシ樹脂と、アミン系硬化剤を含むエポキシ樹脂硬化剤とを含有するエポキシ樹脂組成物の硬化物であり、前記方法は、前記積層体を酸水溶液又はアルカリ水溶液に接触させる工程を有する方法である。

WO 2023/195376 A1

明　細　書

発明の名称 ： プラスチックフィルムを回収する方法

技術分野

[0001] 本発明は、積層体からプラスチックフィルムを回収する方法に関する。

背景技術

[0002] 熱可塑性プラスチックフィルムにアルミナやシリカなどの無機物を蒸着した無機蒸着フィルムは、高いガスバリア性を有することから、ガスバリア性包装材に用いられている。ガスバリア性包装材は無機蒸着フィルム以外に、印刷層を有するものがある。また、無機蒸着フィルムとプラスチックフィルムとを接着剤層を介して積層したラミネートフィルムの形態の包装材も知られている。

しかしながら近年、資源エネルギーの有効活用、並びに環境汚染問題に配慮して、世界各国でプラスチック材料のリサイクルを推進する法律が整備されつつある。これに伴い、プラスチックフィルムを含む包装材からプラスチックフィルムを回収する方法が検討されている。

[0003] 例えば特許文献１には、積層体を塩基性水溶液に浸漬する工程を含むリサイクル基材製造方法であって、該積層体がプラスチック基材と、アルミニウム、酸化アルミニウムおよびシリカからなる群より選ばれる少なくとも一種を含有する脱離層と、印刷層とをこの順に有してなり、前記塩基性水溶液の塩基性化合物の濃度及び水温が所定の範囲である製造方法が、印刷物またはラミネートされた積層体などから効率的かつ簡便に、積層体を構成したプラスチック基材をリサイクル基材として得ることができる旨開示されている。

[0004] 特許文献２には、第１の基材と、第１の基材を脱離させて第１の基材をリサイクルするための第１の脱離層と、並びに、第２の基材と、第２の基材を脱離させて第２の基材をリサイクルするための第２の脱離層と、を備えた包装材であって、前記第１の脱離層形成組成物は、アルミニウム、酸化アルミニウム及びシリカからなる群より選ばれる無機物質を少なくとも一種、且つ

所定量含み、前記第２の脱離層形成組成物が、所定のポリオール成分と、ポリイソシアネート成分とを含む接着剤組成物である包装材が開示されている。該包装材は、包装材として必要な基材接着性に優れ、かつ、パッケージ外側の印刷層だけでなく内側の印刷層の除去が可能で、包装材を構成する２種両方の基材の脱離性に優れ、プラスチックリサイクルに適した包装材であることが記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開２０２０－１７５６２０号公報

特許文献2：特開２０２１－１０７１５９号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 特許文献１の開示技術では、脱離層に含有させるバインダー樹脂として、ポリウレタン樹脂、アクリル樹脂、ポリエステル樹脂及びポリビニルアルコールから選ばれる樹脂を例示し、接着剤層として、アンカー層、溶融ポリオレフィン樹脂から形成される樹脂層、ウレタン接着剤層、アクリル接着剤等を例示している。また特許文献２に開示されている第２の脱離層形成組成物は、ポリオール成分と、ポリイソシアネート成分とを含む接着剤組成物である。

しかしながらこれらの樹脂からなる層を含む積層体はガスバリア性が十分でなく、更に、プラスチックフィルムの回収条件の自由度が低いという問題があった。特に、プラスチックフィルムを２枚以上有するラミネート形態の積層体からもプラスチックフィルムを容易に回収する技術が望まれていた。

[0007] 本発明の課題は、プラスチックフィルムを含む積層体から、効率よくプラスチックフィルムを回収する方法を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明者らは、プラスチックフィルム及び所定の層を有する積層体を、酸

水溶液又はアルカリ水溶液に接触させる工程を有する方法により、上記課題を解決できることを見出した。

すなわち本発明は、積層体からプラスチックフィルムを回収する方法であって、前記積層体は、

プラスチックフィルム（Ｉ）、

ケイ素酸化物、アルミニウム、及びアルミニウム酸化物からなる群から選ばれる少なくとも１種の無機層（ＩＩ）、及び

樹脂硬化層（ＩＩＩ）、を含み、

前記樹脂硬化層（ＩＩＩ）は、エポキシ樹脂と、アミン系硬化剤を含むエポキシ樹脂硬化剤とを含有するエポキシ樹脂組成物の硬化物であり、

前記方法は、前記積層体を酸水溶液又はアルカリ水溶液に接触させる工程を有する方法に関する。

発明の効果

[0009] 本発明の方法によれば、プラスチックフィルムを含む積層体から、効率よくプラスチックフィルムを回収することができる。本発明の方法は、プラスチックフィルムの回収条件の自由度が高く、特に、プラスチックフィルムを２枚以上有するラミネート形態の積層体からもプラスチックフィルムを容易に回収することができる。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]実施例３２において、乾式粉砕機により粉砕した積層体の写真である。

発明を実施するための形態

[0011] ［プラスチックフィルムを回収する方法］

本発明は積層体からプラスチックフィルムを回収する方法（以下「本発明の方法」ともいう）であって、前記積層体は、

プラスチックフィルム（Ｉ）、

ケイ素酸化物、アルミニウム、及びアルミニウム酸化物からなる群から選ばれる少なくとも１種の無機層（ＩＩ）、及び

樹脂硬化層（ＩＩＩ）、を含み、前記樹脂硬化層（ＩＩＩ）は、エポキシ

樹脂と、アミン系硬化剤を含むエポキシ樹脂硬化剤とを含有するエポキシ樹脂組成物の硬化物であり、前記方法は、前記積層体を酸水溶液又はアルカリ水溶液に接触させる工程を有する。

[0012] 本発明の方法は上記構成を有することにより、プラスチックフィルムを含む積層体から、効率よくプラスチックフィルムを回収することができる。この理由については定かではないが、以下のように考えられる。

[0013] ケイ素酸化物、アルミニウム、及びアルミニウム酸化物からなる群から選ばれる少なくとも１種の無機層（ＩＩ）（以下、単に「無機層（ＩＩ）」ともいう）は、酸水溶液又はアルカリ水溶液と接触すると溶解する。そのため無機層（ＩＩ）を有する積層体からはプラスチックフィルムを回収しやすい。但し、プラスチックフィルムを２枚以上有するラミネート形態の積層体は、酸又はアルカリ水溶液が層間に浸透し難く、プラスチックフィルムを回収し難いという問題があった。

プラスチックフィルムを２枚以上有する積層体においては、該フィルムを接着剤層等の樹脂硬化層を介して積層するのが一般的である。さらに該積層体が包装材である場合には、プライマー層、アンカーコート層、着色インキにより形成される着色層、着色剤を含まないインキにより形成されるメジウム層、表面保護のためのオーバーコート層等、複数の層が含まれる。

本発明者らの検討によれば、上記のような多種の層を含む積層体からプラスチックフィルムを回収するに際し、無機層（ＩＩ）の有無だけでなく、他の層、とりわけ樹脂硬化層の種類がプラスチックフィルムの回収しやすさに影響を与えることが見出された。換言すれば、同じ無機層（ＩＩ）を含み、且つ同一の層構成を有する積層体であっても、樹脂硬化層の種類によりプラスチックフィルムの回収しやすさに差異があることが判明した。

[0014] 本発明で規定する積層体は、エポキシ樹脂と、アミン系硬化剤を含むエポキシ樹脂硬化剤とを含有するエポキシ樹脂組成物の硬化物である樹脂硬化層（ＩＩＩ）を有する。樹脂硬化層（ＩＩＩ）はエポキシ樹脂組成物の硬化物であることから、酸又はアルカリ水溶液、溶剤等に溶解可能な樹脂層とは異

なる。しかしながら、エポキシ樹脂組成物においてアミン系硬化剤を含むエポキシ樹脂硬化剤を用いると、形成された樹脂硬化層（ＩＩＩ）の層間に酸水溶液及びアルカリ水溶液が浸透しやすく、無機層（ＩＩ）の溶解を促進するとともに、樹脂硬化層（ＩＩＩ）の層間剥離も容易になると考えられる。特許文献１，２の開示技術とは異なり、本発明では積層体をアルカリ水溶液だけでなく酸水溶液と接触させた場合でもプラスチックフィルムを回収できる点で有利である。

無機層（ＩＩ）と樹脂硬化層（ＩＩＩ）とが隣接又は近接している場合には、樹脂硬化層（ＩＩＩ）の存在により酸又はアルカリ水溶液が積層体の層間により浸透しやすくなり、その結果プラスチックフィルムの回収が容易になると推察される。ここで「無機層（ＩＩ）と樹脂硬化層（ＩＩＩ）とが近接している」とは、無機層（ＩＩ）と樹脂硬化層（ＩＩＩ）とが１又は２の層を隔てて存在していることを意味する。

[0015] 以下、本発明の方法について説明する。

＜積層体＞

本発明で規定する積層体は、プラスチックフィルム（Ｉ）、ケイ素酸化物、アルミニウム、及びアルミニウム酸化物からなる群から選ばれる少なくとも１種の無機層（ＩＩ）、及び樹脂硬化層（ＩＩＩ）、を含み、樹脂硬化層（ＩＩＩ）は、エポキシ樹脂と、アミン系硬化剤を含むエポキシ樹脂硬化剤とを含有するエポキシ樹脂組成物の硬化物である。

[0016]（プラスチックフィルム（Ｉ））

プラスチックフィルム（Ｉ）としては、包装材等に通常用いられるプラスチックフィルムであればよく、例えば、低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン系フィルム；ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリブチレンテレフタレート等のポリエステル系フィルム；ナイロン６、ナイロン６，６、ポリメタキシリレンアジパミド（Ｎ－ＭＸＤ６）等のポリアミド系フィルム；ポリイミド系フィルム；ポリ乳酸等の生分解性フィルム；ポリ

アクリロニトリル系フィルム；ポリ（メタ）アクリル系フィルム；ポリスチレン系フィルム；ポリカーボネート系フィルム；エチレン－酢酸ビニル共重合体けん化物（ＥＶＯＨ）系フィルム、ポリビニルアルコール系フィルム等が挙げられる。

これらの中でも、積層体の透明性、強度、耐熱性、並びに酸又はアルカリ水溶液に対する耐性の観点から、プラスチックフィルムとしてはポリオレフィン系フィルム、ポリエステル系フィルム、ポリアミド系フィルム、及びポリイミド系フィルムからなる群から選ばれる少なくとも１種が好ましく、ポリオレフィン系フィルム及びポリエステル系フィルムからなる群から選ばれる少なくとも１種がより好ましく、ポリプロピレンフィルム及びポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）フィルムからなる群から選ばれる少なくとも１種がさらに好ましい。

上記フィルムは無延伸でもよく、一軸ないし二軸方向に延伸されているものでもよい。

[0017] プラスチックフィルム（Ｉ）の厚さは特に制限されないが、透明性、強度、耐熱性、並びに、プラスチックフィルム（Ｉ）の回収に用いる酸又はアルカリ水溶液に対する耐性の観点から、好ましくは５～３００μｍ、より好ましくは５～１００μｍ、さらに好ましくは５～５０μｍである。上記厚さは、プラスチックフィルム（Ｉ）１枚あたりの厚さである。

[0018] （無機層（ＩＩ））

無機層（ＩＩ）は、ケイ素酸化物、アルミニウム、及びアルミニウム酸化物からなる群から選ばれる少なくとも１種からなる層である。積層体が無機層（ＩＩ）を有することで、酸水溶液又はアルカリ水溶液と接触させることによりプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収することができる。

ケイ素酸化物としてはシリカ（SiO_x）、アルミニウム酸化物としてはアルミナ（Al_2O_x）を例示できる。

酸性水溶液によるプラスチックフィルム（Ｉ）の回収容易性の観点からは、無機層（ＩＩ）は好ましくはアルミニウム及びアルミニウム酸化物（アル

ミナ）からなる群から選ばれる少なくとも１種からなる層であり、より好ましくはアルミニウムからなる層である。また、アルカリ水溶液によるプラスチックフィルム（Ｉ）の回収容易性の観点からは、無機層（ＩＩ）は好ましくはシリカを含む層である。シリカを含む層としては、シリカからなる層、及び、シリカ－アルミナからなる層等が挙げられる。

[0019] 無機層（ＩＩ）は、金属箔からなるもの、蒸着法により形成されたもの等を挙げることができるが、積層体にガスバリア性等を付与できる観点から、蒸着法により形成された無機蒸着層であることが好ましい。すなわち無機層（ＩＩ）は、より好ましくはシリカ蒸着層、アルミニウム蒸着層、及びアルミナ蒸着層からなる群から選ばれる少なくとも１種であり、酸性水溶液によるプラスチックフィルム（Ｉ）の回収容易性の観点からは、さらに好ましくはアルミニウム蒸着層及びアルミナ蒸着層からなる群から選ばれる少なくとも１種、よりさらに好ましくはアルミニウム蒸着層である。アルカリ水溶液によるプラスチックフィルム（Ｉ）の回収容易性の観点からは、無機層（ＩＩ）は好ましくはシリカを含む蒸着層であり、より好ましくはシリカ蒸着層、及び、シリカ－アルミナ２元蒸着層からなる群から選ばれる少なくとも１種である。

無機層（ＩＩ）の厚さは特に制限されないが、プラスチックフィルム（Ｉ）の回収容易性の観点、及び、ガスバリア性等を付与する観点から、好ましくは５ｎｍ以上である。また、無機層（ＩＩ）が無機蒸着層である場合、積層体の透明性及び耐屈曲性向上の観点、並びに経済性の観点からは、好ましくは１００ｎｍ以下、より好ましくは５０ｎｍ以下である。上記厚さは、無機層（ＩＩ）の１層あたりの厚さである。

[0020] 無機層（ＩＩ）の形成方法は特に制限されず、例えば蒸着法としては、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等の物理気相成長法、あるいはプラズマ化学気相成長法、熱化学気相成長法、光化学気相成長法等の化学気相成長法等の、公知の蒸着法が挙げられる。また、アルミニウム箔等の金属箔を他の層と積層して無機層（ＩＩ）を形成することもできる。

[0021]（樹脂硬化層（ＩＩＩ））

樹脂硬化層（ＩＩＩ）は、エポキシ樹脂と、アミン系硬化剤を含むエポキシ樹脂硬化剤とを含有するエポキシ樹脂組成物の硬化物である。以下、該エポキシ樹脂組成物に含有される成分について説明する。

[0022]〔エポキシ樹脂〕

エポキシ樹脂組成物に用いられるエポキシ樹脂は、飽和又は不飽和の脂肪族化合物や脂環式化合物、芳香族化合物、あるいは複素環式化合物のいずれであってよい。ガスバリア性を付与することを考慮した場合には、芳香環又は脂環式構造を分子内に含むエポキシ樹脂が好ましい。

当該エポキシ樹脂の具体例としては、メタキシリレンジアミンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂、パラキシリレンジアミンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂、１，３－ビス（アミノメチル）シクロヘキサンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂、１，４－ビス（アミノメチル）シクロヘキサンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂、ジアミノジフェニルメタンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂、パラアミノフェノールから誘導されたグリシジルアミノ基及び／又はグリシジルオキシ基を有するエポキシ樹脂、ビスフェノールＡから誘導されたグリシジルオキシ基を有するエポキシ樹脂、ビスフェノールＦから誘導されたグリシジルオキシ基を有するエポキシ樹脂、フェノールノボラックから誘導されたグリシジルオキシ基を有するエポキシ樹脂及びレゾルシノールから誘導されたグリシジルオキシ基を有するエポキシ樹脂から選ばれる少なくとも１つの樹脂が挙げられる。柔軟性や耐衝撃性、耐湿熱性などの諸性能を向上させるために、上記のエポキシ樹脂を適切な割合で２種以上混合して用いることもできる。

上記の中でも、ガスバリア性を付与する観点から、エポキシ樹脂としてはメタキシリレンジアミンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂、パラキシリレンジアミンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂、及びビスフェノールＦから誘導されたグリシジルオキシ基

を有するエポキシ樹脂からなる群から選ばれる少なくとも１種を主成分とするものが好ましく、メタキシリレンジアミンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂を主成分とするものがより好ましい。

なお、ここでいう「主成分」とは、本発明の趣旨を逸脱しない範囲で他の成分を含みうることを意味し、好ましくは全体の５０～１００質量%、より好ましくは７０～１００質量%、さらに好ましくは９０～１００質量%を意味する。

[0023] 〔アミン系硬化剤を含むエポキシ樹脂硬化剤〕

エポキシ樹脂組成物に用いられるエポキシ樹脂硬化剤は、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点、並びに、ガスバリア性を付与する観点から、アミン系硬化剤を含むものである。

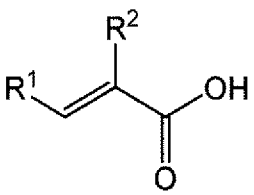
アミン系硬化剤としては、従来エポキシ樹脂硬化剤として用いられているポリアミン又はその変性物を用いることができる。積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点、接着性向上の観点、並びに、ガスバリア性を付与する観点からは、アミン系硬化剤はポリアミンの変性物であることが好ましく、下記のアミン系硬化剤（ｉ）及びアミン系硬化剤（ｉｉ）からなる群から選ばれる少なくとも１種であることがより好ましく、下記アミン系硬化剤（ｉ）を含むことがさらに好ましい。

（ｉ）下記の（Ａ）成分と（Ｂ）成分との反応生成物：

（Ａ）メタキシリレンジアミン及びパラキシリレンジアミンからなる群から選ばれる少なくとも１種

（Ｂ）下記一般式（１）で表される不飽和カルボン酸及びその誘導体からなる群から選ばれる少なくとも１種

[化1]



(1)

（式（１）中、Ｒ^{1}、Ｒ^{2}はそれぞれ独立に、水素原子、炭素数１～８のアル

キル基、炭素数６～１２のアリール基、又は炭素数７～１３のアラルキル基を表す。）

（ｉｉ）エピクロロヒドリンと、メタキシリレンジアミン及びパラキシリレンジアミンからなる群から選ばれる少なくとも１種との反応生成物

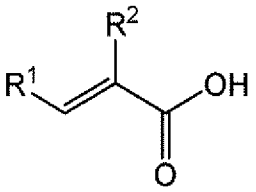
[0024] ≪アミン系硬化剤（ｉ）≫

アミン系硬化剤（ｉ）は、下記の（Ａ）成分と（Ｂ）成分との反応生成物である。本明細書において「ＸとＹとの反応生成物」とは、ＸとＹとの反応物（付加物）の他、該反応物以外の副生成物、未反応原料であるＸ、Ｙ等も含むものである。

（Ａ）メタキシリレンジアミン及びパラキシリレンジアミンからなる群から選ばれる少なくとも１種

（Ｂ）下記一般式（１）で表される不飽和カルボン酸及びその誘導体からなる群から選ばれる少なくとも１種

[化2]



(1)

（式（１）中、Ｒ[1]、Ｒ[2]はそれぞれ独立に、水素原子、炭素数１～８のアルキル基、炭素数６～１２のアリール基、又は炭素数７～１３のアラルキル基を表す。）

前記（Ａ）成分は積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点、他の層との接着性向上、及びガスバリア性向上の観点から用いられ、ガスバリア性の観点からはメタキシリレンジアミンが好ましい。（Ａ）成分は、１種を単独で用いてもよく、２種類を混合して用いてもよい。

[0025] 前記（Ｂ）成分は前記一般式（１）で表される不飽和カルボン酸及びその誘導体からなる群から選ばれる少なくとも１種であり、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点、他の層との接着性向上、及びガスバリア性向上の観点から、前記一般式（１）におけるＲ[1]は水素原子又は炭

素数１～８のアルキル基であることが好ましく、水素原子又は炭素数１～３のアルキル基であることがより好ましく、水素原子又はメチル基であることがさらに好ましく、水素原子であることがよりさらに好ましい。

また、上記と同様の観点から、前記一般式（１）におけるR^2は水素原子又は炭素数１～８のアルキル基であることが好ましく、水素原子又は炭素数１～３のアルキル基であることがより好ましく、水素原子又はメチル基であることがさらに好ましく、水素原子であることがよりさらに好ましい。

[0026] 前記一般式（１）で表される不飽和カルボン酸の誘導体としては、例えば当該不飽和カルボン酸のエステル、アミド、酸無水物、酸塩化物が挙げられる。不飽和カルボン酸のエステルとしてはアルキルエステルが好ましく、良好な反応性を得る観点から、当該アルキル炭素数は好ましくは１～６、より好ましくは１～３、さらに好ましくは１～２である。

[0027] 前記一般式（１）で表される不飽和カルボン酸及びその誘導体としては、アクリル酸、メタクリル酸、α－エチルアクリル酸、α－プロピルアクリル酸、α－イソプロピルアクリル酸、α－ｎ－ブチルアクリル酸、α－ｔ－ブチルアクリル酸、α－ペンチルアクリル酸、α－フェニルアクリル酸、α－ベンジルアクリル酸、クロトン酸、２－ペンテン酸、２－ヘキセン酸、４－メチル－２－ペンテン酸、２－ヘプテン酸、４－メチル－２－ヘキセン酸、５－メチル－２－ヘキセン酸、４，４－ジメチル－２－ペンテン酸、４－フェニル－２－ブテン酸、桂皮酸、ｏ－メチル桂皮酸、ｍ－メチル桂皮酸、ｐ－メチル桂皮酸、２－オクテン酸等の不飽和カルボン酸、及びこれらのエステル、アミド、酸無水物、酸塩化物等が挙げられる。

上記の中でも、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点、他の層との接着性向上、及びガスバリア性向上の観点から、前記（Ｂ）成分はアクリル酸、メタクリル酸、クロトン酸及びこれらの誘導体からなる群から選ばれる少なくとも１種が好ましく、アクリル酸、メタクリル酸、クロトン酸及びこれらのアルキルエステルからなる群から選ばれる少なくとも１種がより好ましく、アクリル酸、メタクリル酸、及びこれらのアルキル

エステルからなる群から選ばれる少なくとも１種がさらに好ましく、アクリル酸のアルキルエステルがよりさらに好ましく、アクリル酸メチルがよりさらに好ましい。

（Ｂ）成分は、１種を単独で用いてもよく、２種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0028] 前記（Ａ）成分と前記（Ｂ）成分との反応は、前記（Ｂ）成分として不飽和カルボン酸、エステル、アミドを使用する場合には、０～１００℃、より好ましくは０～７０℃の条件下で（Ａ）成分と（Ｂ）成分とを混合し、１００～３００℃、好ましくは１３０～２５０℃の条件下でマイケル付加反応及び脱水、脱アルコール、脱アミンによるアミド基形成反応を行うことにより実施される。

この場合、アミド基形成反応の際には、反応を完結させるために、必要に応じて反応の最終段階において反応装置内を減圧処理することもできる。また、必要に応じて非反応性の溶剤を使用して希釈することもできる。さらに脱水剤、脱アルコール剤として、亜リン酸エステル類などの触媒を添加することもできる。

[0029] 一方、前記（Ｂ）成分として不飽和カルボン酸の酸無水物、酸塩化物を使用する場合には、０～１５０℃、好ましくは０～１００℃の条件下で混合後、マイケル付加反応及びアミド基形成反応を行うことにより実施される。この場合、アミド基形成反応の際には、反応を完結させるために、必要に応じて反応の最終段階において反応装置内を減圧処理することもできる。また、必要に応じて非反応性の溶剤を使用して希釈することもできる。さらにピリジン、ピコリン、ルチジン、トリアルキルアミンなどの３級アミンを添加することもできる。

[0030] 前記（Ａ）成分と前記（Ｂ）成分との反応により形成されるアミド基部位は高い凝集力を有しているため、当該（Ａ）成分と（Ｂ）成分との反応生成物であるエポキシ樹脂硬化剤を含有するエポキシ樹脂組成物を用いて形成される樹脂硬化層（ＩＩＩ）は、高いガスバリア性と良好な接着性とを有する

。

[0031] 前記（Ａ）成分に対する前記（Ｂ）成分の反応モル比［（Ｂ）／（Ａ）］は、０．３～１．０の範囲であることが好ましい。上記反応モル比が０．３以上であれば、エポキシ樹脂硬化剤中に十分な量のアミド基が生成し、高いレベルのガスバリア性が発現する。一方、上記反応モル比が１．０以下の範囲であれば、エポキシ樹脂中のエポキシ基との反応に必要なアミノ基の量が十分であり、耐熱性に優れ、有機溶剤や水に対する溶解性にも優れる。

ガスバリア性向上を特に考慮する場合には、前記（Ａ）成分に対する前記（Ｂ）成分の反応モル比［（Ｂ）／（Ａ）］が０．６～１．０の範囲であることがより好ましい。

[0032] 上記アミン系硬化剤は、前記（Ａ）成分と（Ｂ）成分と、さらに下記（Ｃ）成分、（Ｄ）成分及び（Ｅ）成分からなる群から選ばれる少なくとも１種の化合物との反応生成物であってもよい。

（Ｃ）R^3－ＣＯＯＨで表される一価のカルボン酸及びその誘導体からなる群から選ばれる少なくとも１種（R^3は水素原子、水酸基を有していてもよい炭素数１～７のアルキル基又は炭素数６～１２のアリール基を表す。）

（Ｄ）環状カーボネート

（Ｅ）炭素数２～２０のモノエポキシ化合物

[0033] 前記（Ｃ）成分である、R^3－ＣＯＯＨで表される一価のカルボン酸及びその誘導体は、必要に応じてエポキシ樹脂硬化剤とエポキシ樹脂との反応性を低下させ、作業性を改善する観点から用いられる。

R^3は水素原子、水酸基を有していてもよい炭素数１～７のアルキル基又は炭素数６～１２のアリール基を表し、R^3は、好ましくは炭素数１～３のアルキル基又はフェニル基である。

またR^3－ＣＯＯＨで表される一価のカルボン酸の誘導体としては、例えば当該カルボン酸のエステル、アミド、酸無水物、酸塩化物が挙げられる。当該カルボン酸のエステルとしてはアルキルエステルが好ましく、当該アルキル炭素数は、好ましくは１～６、より好ましくは１～３、さらに好ましくは

１～２である。

前記（Ｃ）成分としては、蟻酸、酢酸、プロピオン酸、酪酸、乳酸、グリコール酸、安息香酸等の一価のカルボン酸及びその誘導体が挙げられる。

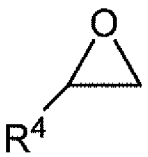
前記（Ｃ）成分は、１種を単独で用いてもよく、２種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0034] 前記（Ｄ）成分である環状カーボネートは、エポキシ樹脂硬化剤とエポキシ樹脂との反応性を低下させ作業性を改善する観点から、必要に応じて用いられるものであり、前記（Ａ）成分との反応性の観点から、六員環以下の環状カーボネートであることが好ましい。例えば、エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、グリセリンカーボネート、１，２－ブチレンカーボネート、ビニレンカーボネート、４－ビニル－１，３－ジオキソラン－２－オン、４－メトキシメチル－１，３－ジオキソラン－２－オン、１，３－ジオキサン－２－オンなどが挙げられる。これらの中でも、ガスバリア性向上の観点から、エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート及びグリセリンカーボネートからなる群から選ばれる少なくとも１種が好ましい。

前記（Ｄ）成分は１種を単独で用いてもよく、２種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0035] 前記（Ｅ）成分であるモノエポキシ化合物は、炭素数２～２０のモノエポキシ化合物であり、エポキシ樹脂硬化剤とエポキシ樹脂との反応性を低下させ作業性を改善する観点から、必要に応じて用いられる。ガスバリア性の観点から、炭素数２～１０のモノエポキシ化合物であることが好ましく、下記式（２）で示される化合物であることがより好ましい。

[0036] [化3]



(2)

（式（２）中、R^4は水素原子、炭素数１～８のアルキル基、アリール基、又はR^5-O-CH_2-を表し、R^5はフェニル基又はベンジル基を表す。）

前記式（２）で示されるモノエポキシ化合物としては、例えば、エチレンオキシド、プロピレンオキシド、１，２－ブチレンオキシド、スチレンオキシド、フェニルグリシジルエーテル、及びベンジルグリシジルエーテル等が挙げられる。前記（Ｅ）成分は１種を単独で用いてもよく、２種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0037] 上記アミン系硬化剤に前記（Ｃ）成分、（Ｄ）成分又は（Ｅ）成分を用いる場合には、前記（Ｃ）成分、（Ｄ）成分及び（Ｅ）成分からなる群から選ばれるいずれか１種の化合物を単独で用いてもよく、２種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0038] なお、上記アミン系硬化剤は、前記（Ａ）～（Ｅ）成分のほか、本発明の効果を損なわない範囲で、さらに他の成分と反応させた反応生成物であってもよい。ここでいう他の成分としては、例えば芳香族ジカルボン酸又はその誘導体などが挙げられる。

但し、該「他の成分」の使用量は、上記アミン系硬化剤を構成する反応成分の合計量の３０質量％以下であることが好ましく、１０質量％以下であることがより好ましく、５質量％以下であることがさらに好ましい。

[0039] 前記（Ａ）成分及び（Ｂ）成分と、さらに前記（Ｃ）成分、（Ｄ）成分及び（Ｅ）成分からなる群から選ばれる少なくとも１種の化合物との反応生成物は、前記（Ｃ）成分、（Ｄ）成分及び（Ｅ）成分からなる群から選ばれる少なくとも１種の化合物を、前記（Ｂ）成分と併用して、ポリアミン化合物である前記（Ａ）成分と反応させて得られる。該反応は、前記（Ｂ）～（Ｅ）成分を任意の順序で添加して前記（Ａ）成分と反応させてもよく、前記（Ｂ）～（Ｅ）成分を混合して前記（Ａ）成分と反応させてもよい。

前記（Ａ）成分と前記（Ｃ）成分との反応は、前記（Ａ）成分と（Ｂ）成分との反応と同様の条件で行うことができる。前記（Ｃ）成分を用いる場合には、前記（Ｂ）成分及び（Ｃ）成分を混合して前記（Ａ）成分と反応させてもよく、初めに前記（Ａ）成分と（Ｂ）成分とを反応させてから前記（Ｃ）成分を反応させてもよい。

一方、前記（Ｄ）成分及び／又は（Ｅ）成分を用いる場合には、初めに前記（Ａ）成分と（Ｂ）成分とを反応させてから、前記（Ｄ）成分及び／又は（Ｅ）成分と反応させることが好ましい。

前記（Ａ）成分と前記（Ｄ）成分及び／又は（Ｅ）成分との反応は、２５～２００℃の条件下で（Ａ）成分と（Ｄ）成分及び／又は（Ｅ）成分とを混合し、３０～１８０℃、好ましくは４０～１７０℃の条件下で付加反応を行うことにより実施される。また、必要に応じナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、カリウムｔ－ブトキシドなどの触媒を使用することができる。

上記反応の際には、反応を促進するために、必要に応じて（Ｄ）成分及び／又は（Ｅ）成分を溶融させるか、もしくは非反応性の溶剤で希釈して使用することもできる。

[0040] 上記アミン系硬化剤が、前記（Ａ）成分及び（Ｂ）成分と、さらに前記（Ｃ）成分、（Ｄ）成分及び（Ｅ）成分からなる群から選ばれる少なくとも１種の化合物の反応生成物である場合にも、前記（Ａ）成分に対する前記（Ｂ）成分の反応モル比［（Ｂ）／（Ａ）］は、前記と同様の理由で０．３～１．０の範囲であることが好ましく、０．６～１．０の範囲であることがより好ましい。一方、前記（Ａ）成分に対する、前記（Ｃ）成分、（Ｄ）成分及び（Ｅ）成分の反応モル比［｛（Ｃ）＋（Ｄ）＋（Ｅ）｝／（Ａ）］は、０．０５～３．１の範囲であることが好ましく、０．０７～２．５の範囲であることがより好ましく、０．１～２．０の範囲であることがより好ましい。

ただし、ガスバリア性向上の観点から、前記（Ａ）成分に対する、前記（Ｂ）～（Ｅ）成分の反応モル比［｛（Ｂ）＋（Ｃ）＋（Ｄ）＋（Ｅ）｝／（Ａ）］は、０．３５～２．５の範囲であることが好ましく、０．３５～２．０の範囲であることがより好ましい。

[0041] アミン系硬化剤（ｉ）は、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点、並びに、ガスバリア性を付与する観点から、前記（Ａ）成分と（Ｂ）成分のみを反応させて得られる反応生成物であることがより好ま

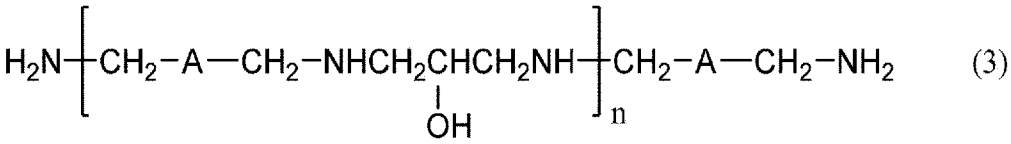
しい。

[0042] （アミン系硬化剤（ｉｉ））

アミン系硬化剤（ｉｉ）は、エピクロロヒドリンと、メタキシリレンジアミン及びパラキシリレンジアミンからなる群から選ばれる少なくとも１種との反応生成物である。

アミン系硬化剤（ｉｉ）は、下記一般式（３）で表される化合物を主成分として含むことが好ましい。ここでいう「主成分」とは、アミン系硬化剤（ｉｉ）中の全構成成分を１００質量％とした場合、その含有量が５０質量％以上である成分をいう。

[化4]



(3)

（式（３）中、Ａは１，３－フェニレン基又は１，４－フェニレン基である。ｎは１～１２の数である。）

Ａは１，３－フェニレン基であることがより好ましい。

アミン系硬化剤（ｉｉ）中、上記一般式（３）で示される化合物の含有量は、好ましくは６０質量％以上、より好ましくは７０質量％以上、さらに好ましくは７５質量％以上、よりさらに好ましくは８５質量％以上である。また、上限は１００質量％である。

硬化剤としての良好な硬化性能を得る観点からは、上記一般式（３）で表される化合物の中でも、ｎ＝１の化合物が占める割合が高いことが好ましい。アミン系硬化剤（ｉｉ）中の、上記一般式（３）で表されるｎ＝１の化合物の含有量としては、好ましくは１５質量％以上、より好ましくは２０質量％以上、さらに好ましくは２５質量％以上である。また、上限は１００質量％である。

アミン系硬化剤（ｉｉ）中の上記一般式（３）で表される化合物の含有量、及び上記一般式（３）で示される化合物の組成は、ＧＣ分析及びゲルろ過クロマトグラフィー（ＧＰＣ）分析により求めることができる。

[0043] アミン系硬化剤（ｉｉ）はエピクロロヒドリンと、メタキシリレンジアミン及びパラキシリレンジアミンからなる群から選ばれる少なくとも１種とを、常法で付加反応させることにより得られる。

[0044] アミン系硬化剤中の、アミン系硬化剤（ｉ）及びアミン系硬化剤（ｉｉ）の合計含有量は、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点、並びに、ガスバリア性を付与する観点から、好ましくは５０質量％以上、より好ましくは７０質量％以上、さらに好ましくは８０質量％以上、よりさらに好ましくは９０質量％以上であり、１００質量％以下である。

[0045] エポキシ樹脂硬化剤は、アミン系硬化剤以外の硬化剤成分を含有していてもよいが、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点、他の層との接着性向上、及びガスバリア性向上の観点からはアミン系硬化剤の含有量が高いことが好ましい。エポキシ樹脂硬化剤中のアミン系硬化剤の含有量は、上記観点から、好ましくは５０質量％以上、より好ましくは７０質量％以上、さらに好ましくは８０質量％以上、よりさらに好ましくは９０質量％以上であり、また、１００質量％以下である。

[0046] エポキシ樹脂組成物において、エポキシ樹脂とエポキシ樹脂硬化剤の含有割合は、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点、他の層との接着性向上、及びガスバリア性向上の観点から、エポキシ樹脂中のエポキシ基の数に対するエポキシ樹脂硬化剤中の活性水素数の比（エポキシ樹脂硬化剤中の活性水素数／エポキシ樹脂中のエポキシ基の数）が好ましくは０．２～１２．０、より好ましくは０．２～１０．０の範囲であり、樹脂硬化層（ＩＩＩ）が酸又はアルカリ水溶液に接触した際に積層体から剥離されやすく、プラスチックフィルム（Ｉ）をより容易に回収できるという観点から、さらに好ましくは０．２～８．０、よりさらに好ましくは０．２～５．０、よりさらに好ましくは０．５～５．０、よりさらに好ましくは０．８～５．０の範囲である。

[0047] エポキシ樹脂組成物は、得られる樹脂硬化層（ＩＩＩ）と、他の層との接着性向上の観点から、さらに、カップリング剤を含有していてもよい。該カ

ップリング剤としては、シランカップリング剤、チタネート系カップリング剤、アルミネート系カップリング剤等が挙げられ、他の層との接着性向上の観点からはシランカップリング剤が好ましい。

シランカップリング剤としては、例えば、ビニル基を有するシランカップリング剤、アミノ基を有するシランカップリング剤、エポキシ基を有するシランカップリング剤、（メタ）アクリル基を有するシランカップリング剤、メルカプト基を有するシランカップリング剤等が挙げられる。これらの中でも、得られる樹脂硬化層（ＩＩＩ）と、他の層との接着性向上の観点からはアミノ基を有するシランカップリング剤及びエポキシ基を有するシランカップリング剤からなる群から選ばれる少なくとも１種が好ましい。

カップリング剤を用いる場合、エポキシ樹脂組成物中のカップリング剤の含有量は、エポキシ樹脂硬化剤１００質量部に対し、好ましくは０．１～１０質量部、より好ましくは１～８質量部である。

[0048] エポキシ樹脂組成物は有機溶剤を含有していてもよく、該有機溶剤としては非反応性溶剤が好ましい。その具体例としては、好ましくはメタノール、エタノール、１－プロパノール、２－プロパノール、１－ブタノール、２－ブタノール、２－メトキシエタノール、２－エトキシエタノール、２－プロポキシエタノール、２－ブトキシエタノール、１－メトキシ－２－プロパノール、１－エトキシ－２－プロパノール、１－プロポキシ－２－プロパノール等のプロトン性極性溶剤の他、酢酸エチル、酢酸ブチル、メチルイソブチルケトン、トルエン等を、１種又は２種以上用いることができる。

上記の中でも、乾燥速度向上の観点からは、メタノール、エタノール、及び酢酸エチルからなる群から選ばれる少なくとも１種が好ましい。

[0049] エポキシ樹脂組成物が有機溶剤を含有する場合、エポキシ樹脂組成物の固形分濃度は特に制限されないが、塗工性の観点からは、好ましくは１０質量％以上、より好ましくは２０質量％以上、さらに好ましくは３０質量％以上である。また、塗工性の観点、及び、得られる樹脂硬化層（ＩＩＩ）を所望の厚さに調整する観点から、好ましくは６０質量％以下、より好ましくは５

０質量％以下、さらに好ましくは４０質量％以下である。

[0050] エポキシ樹脂組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、必要に応じて熱硬化性樹脂、湿潤剤、粘着付与剤、消泡剤、硬化促進剤、防錆添加剤、顔料、酸素捕捉剤等の添加剤を配合してもよい。

エポキシ樹脂組成物中の上記添加剤の合計含有量は、より高い接着性を発現する観点から、エポキシ樹脂及びエポキシ樹脂硬化剤の合計量１００質量部に対し、好ましくは２０．０質量部以下、より好ましくは０．００１～１５．０質量部である。

[0051] 但し本発明の効果を得る観点から、エポキシ樹脂組成物の固形分中のエポキシ樹脂及びエポキシ樹脂硬化剤の合計含有量は、好ましくは６０質量％以上、より好ましくは７０質量％以上、さらに好ましくは８０質量％以上、よりさらに好ましくは８５質量％以上であり、上限は１００質量％である。「エポキシ樹脂組成物の固形分」とは、エポキシ樹脂組成物中の水及び有機溶剤を除いた成分を意味する。

[0052] エポキシ樹脂組成物は、得られる樹脂硬化層（ＩＩＩ）がより高い接着性を発現する観点から、滑剤の含有量が少ないことが好ましい。具体的には、エポキシ樹脂組成物中の滑剤の含有量は、エポキシ樹脂組成物中のエポキシ樹脂及びエポキシ樹脂硬化剤の合計量１００質量部に対し、好ましくは１０質量部未満、より好ましくは５質量部未満、さらに好ましくは２質量部未満、よりさらに好ましくは１質量部未満、よりさらに好ましくは０．１質量部未満、よりさらに好ましくは０．０１質量部未満であり、よりさらに好ましくは０質量部である。

上記滑剤には、滑剤として従来公知の成分の他、エルカ酸アミド、オレイン酸アミド等の、炭素数１４～２４の不飽和脂肪酸アミドも含まれる。

[0053] エポキシ樹脂組成物は、得られる樹脂硬化層（ＩＩＩ）がより高い接着性を発現する観点から、有機又は無機粉体、有機又は無機繊維等の、充填材の含有量が少ないことが好ましい。具体的には、エポキシ樹脂組成物中の充填材の含有量は、エポキシ樹脂組成物中のエポキシ樹脂及びエポキシ樹脂硬化

剤の合計量１００質量部に対し、好ましくは１０質量部未満、より好ましくは５質量部未満、さらに好ましくは２質量部未満、よりさらに好ましくは１質量部未満、よりさらに好ましくは０．１質量部未満、よりさらに好ましくは０．０１質量部未満であり、よりさらに好ましくは０質量部である。

[0054]（エポキシ樹脂組成物の調製）

エポキシ樹脂組成物は、例えばエポキシ樹脂、アミン系硬化剤を含むエポキシ樹脂硬化剤、及び、必要に応じ用いられる添加剤並びに有機溶剤をそれぞれ所定量配合した後、公知の方法及び装置を用いて攪拌、混合することにより調製できる。なおエポキシ樹脂とエポキシ樹脂硬化剤とは、使用する直前に混合して用いてもよい。

[0055]（樹脂硬化層（ＩＩＩ）の形成）

樹脂硬化層（ＩＩＩ）は、前記エポキシ樹脂組成物を用いて形成される。エポキシ樹脂組成物は前記エポキシ樹脂及び前記エポキシ樹脂硬化剤を含有する熱硬化性樹脂組成物であり、例えば積層体の作製において、プラスチックフィルム（Ｉ）又は他の層上にエポキシ樹脂組成物を塗工し、必要に応じ有機溶剤を除去した後、別のプラスチックフィルム又は層を貼り合わせ、次いで硬化させて樹脂硬化層（ＩＩＩ）が形成される。エポキシ樹脂組成物の硬化方法は特に制限されず、その硬化物を得るのに十分なエポキシ樹脂組成物の濃度及び温度において公知の方法により行われる。

樹脂硬化層（ＩＩＩ）の形成方法の詳細については「積層体の製造方法」において後述する。

[0056] 樹脂硬化層（ＩＩＩ）の厚さは、接着性向上の観点、及び、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点から、好ましくは０．０５～２０μｍ、より好ましくは０．１～１５μｍ、さらに好ましくは０．２～１０μｍ、よりさらに好ましくは０．５～７μｍ、よりさらに好ましくは１～５μｍ、よりさらに好ましくは２～５μｍである。上記厚さは、樹脂硬化層（ＩＩＩ）の１層あたりの厚さである。

[0057]（積層体の層構成）

本発明に用いる積層体は、前記プラスチックフィルム（Ｉ）、無機層（ＩＩ）、及び樹脂硬化層（ＩＩＩ）をそれぞれ１以上有していればよく、２以上有していてもよい。プラスチックフィルム（Ｉ）、無機層（ＩＩ）、及び樹脂硬化層（ＩＩＩ）を２以上有する場合、複数のプラスチックフィルム（Ｉ）の種類及び厚さはすべて同一でもよく、異なっていてもよい。無機層（ＩＩ）及び樹脂硬化層（ＩＩＩ）の種類及び厚さについても同様である。

なお、プラスチックフィルム（Ｉ）を２以上含む場合、プラスチックフィルム（Ｉ）の回収容易性の観点からは、すべてのプラスチックフィルム（Ｉ）を構成する樹脂が同一種の樹脂であることが好ましい。

[0058] プラスチックフィルム（Ｉ）、無機層（ＩＩ）、及び樹脂硬化層（ＩＩＩ）の積層順序は特に制限されないが、積層体はプラスチックフィルム（Ｉ）を２以上含むことが好ましい。また、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点からは、無機層（ＩＩ）及び樹脂硬化層（ＩＩＩ）は、任意の２枚のプラスチックフィルム（Ｉ）の間に積層されていることが好ましい。

[0059] 積層体は、プラスチックフィルム（Ｉ）、無機層（ＩＩ）、及び樹脂硬化層（ＩＩＩ）以外の層を有していてもよい。当該層としては、プライマー層、アンカーコート層、オーバーコート層、インキ層、プラスチックフィルム（Ｉ）以外の熱可塑性樹脂層、光硬化性又は熱硬化性樹脂組成物の硬化物である樹脂硬化層、樹脂硬化層（ＩＩＩ）以外の接着剤層等が挙げられ、これらのうち１種又は２種以上を含むことができる。

上記の中でも、例えば包装材由来の積層体を用いる場合には、該積層体として、さらにインキ層を含むものが挙げられる。インキ層としては、着色剤を含むインキにより形成される着色層、着色剤を含まないインキにより形成されるメジウム層が挙げられる。

[0060] インキ層のうち着色層は、例えば顔料等の着色剤とバインダー樹脂とを含有する印刷インキを用いて形成することができる。メジウム層は、着色剤を含まない印刷インキ（メジウム）を用いて形成することができる。

インキ層は積層体の全面に形成されていてもよく、部分的に形成されていてもよい。また、文字、ロゴ、絵柄等が施されたものであってもよい。

[0061] インキ層の厚さは、通常０．０５～２０μｍ、好ましくは０．１～１５μｍ、より好ましくは０．２～５μｍ、さらに好ましくは０．４～２μｍである。上記厚さは、インキ層の１層あたりの厚さである。

[0062] インキ層は、印刷インキを用いて公知の印刷法により形成されることが好ましく、該印刷法としては、グラビア印刷法、フレキソ印刷法、スクリーン印刷法等が挙げられ、生産性の観点からはグラビア印刷法が好ましい。

[0063] プラスチックフィルム（Ｉ）を２以上含む積層体としては、プラスチックフィルム（Ｉ）、無機層（ＩＩ）、樹脂硬化層（ＩＩＩ）、及びプラスチックフィルム（Ｉ）を順に有する積層体が挙げられる。

プラスチックフィルム（Ｉ）を２以上含む積層体の好ましい層構成としては、下記が例示される。以下の記載において、Ｉ／ＩＩ／ＩＩＩと記載されている場合、各層が上からＩ、ＩＩ、ＩＩＩの順に積層されていることを意味する。

（１）：プラスチックフィルム（Ｉ）／無機層（ＩＩ）／樹脂硬化層（ＩＩＩ）／プラスチックフィルム（Ｉ）

（２）：プラスチックフィルム（Ｉ）／無機層（ＩＩ）／着色層／メジウム層／樹脂硬化層（ＩＩＩ）／プラスチックフィルム（Ｉ）

（３）：プラスチックフィルム（Ｉ）／着色層／メジウム層／樹脂硬化層（ＩＩＩ）／無機層（ＩＩ）／プラスチックフィルム（Ｉ）

（４）：プラスチックフィルム（Ｉ）／接着剤層／樹脂硬化層（ＩＩＩ）／無機層（ＩＩ）／プラスチックフィルム（Ｉ）

（５）：プラスチックフィルム（Ｉ）／樹脂硬化層（ＩＩＩ）／接着剤層／無機層（ＩＩ）／プラスチックフィルム（Ｉ）

（６）：プラスチックフィルム（Ｉ）／無機層（ＩＩ）／着色層／メジウム層／樹脂硬化層（ＩＩＩ）／接着剤層／プラスチックフィルム（Ｉ）

（７）：プラスチックフィルム（Ｉ）／着色層／メジウム層／接着剤層／樹

脂硬化層（ＩＩＩ）／無機層（ＩＩ）／プラスチックフィルム（Ｉ）

（８）：プラスチックフィルム（Ｉ）／無機層（ＩＩ）／樹脂硬化層（ＩＩＩ）／無機層（ＩＩ）／プラスチックフィルム（Ｉ）

（９）：プラスチックフィルム（Ｉ）／無機層（ＩＩ）／着色層／メジウム層／樹脂硬化層（ＩＩＩ）／無機層（ＩＩ）／プラスチックフィルム（Ｉ）

（１０）プラスチックフィルム（Ｉ）／無機層（ＩＩ）／接着剤層／樹脂硬化層（ＩＩＩ）／無機層（ＩＩ）／プラスチックフィルム（Ｉ）

[0064] 但し積層体の層構成は上記に限定されず、上記層の任意の層間に、プライマー層、アンカーコート層、オーバーコート層等を有していてもよい。また、（８）～（１０）の構成に限られず、２以上の無機層（ＩＩ）を含んでもよく、また、２以上の樹脂硬化層（ＩＩＩ）を含むこともできる。

[0065] 積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点からは、積層体は、無機層（ＩＩ）と樹脂硬化層（ＩＩＩ）とが隣接、又は、１又は２の層を隔てて存在している構成であることが好ましく、無機層（ＩＩ）と樹脂硬化層（ＩＩＩ）とが隣接、又は、１層のみを隔てて存在している構成であることがより好ましく、無機層（ＩＩ）と樹脂硬化層（ＩＩＩ）とが隣接していることがさらに好ましい。

[0066] 積層体はフィルム形状であってもよい。また、プラスチックフィルム（Ｉ）、無機層（ＩＩ）、及び樹脂硬化層（ＩＩＩ）を含む積層構造を有している限り、袋、ボトル、又はこれらの蓋材、シール材、円筒状のプラスチックラベル等の、フィルム以外の形状であってもよい。

[0067] ＜積層体の製造方法＞

積層体の製造方法は特に限定されず、公知の方法を用いることができる。

例えば前記（１）：プラスチックフィルム（Ｉ）／無機層（ＩＩ）／樹脂硬化層（ＩＩＩ）／プラスチックフィルム（Ｉ）の構成の積層体の製造方法としては、いずれかのプラスチックフィルム（Ｉ）の片面に無機層（ＩＩ）を前述の方法で形成し、該無機層（ＩＩ）側の面に、前記エポキシ樹脂組成物を所望の厚さとなるよう塗布し、直ちにその塗布面に、もう１枚のプラス

チックフィルム（Ｉ）をニップロール等により貼り合わせ、次いで、前述の方法でエポキシ樹脂組成物を硬化させて樹脂硬化層（ＩＩＩ）を形成する方法が挙げられる。なお、プラスチックフィルム（Ｉ）上に予め無機層（ＩＩ）が形成されたフィルムを用いて、該無機層（ＩＩ）面に樹脂硬化層（ＩＩＩ）を形成してもよい。

エポキシ樹脂組成物を塗布する際の塗布方法としては、例えば、バーコート、メイヤーバーコート、エアナイフコート、グラビアコート、リバースグラビアコート、マイクログラビアコート、マイクロリバースグラビアコート、ダイコート、スロットダイコート、バキュームダイコート、ディップコート、スピンコート、ロールコート、スプレーコート、はけ塗り等が挙げられる。これらの中でもバーコート、ロールコート又はスプレーコートが好ましく、工業的にはグラビアコート、リバースグラビアコート、マイクログラビアコート、又はマイクロリバースグラビアコートが好ましい。

[0068] エポキシ樹脂組成物を塗布した後、必要に応じて溶剤を揮発させる工程（乾燥工程）を行う。乾燥工程における条件は適宜選択できるが、例えば、乾燥温度４０～１８０℃、乾燥時間５～１８０秒の条件で行うことができる。

乾燥工程を行った後、エポキシ樹脂組成物を硬化させて樹脂硬化層（ＩＩＩ）を形成する。硬化温度は、例えば１０～１４０℃の範囲で選択でき、好ましくは１０～８０℃の範囲である。また硬化時間は、例えば１分～７日間の範囲で選択でき、好ましくは２～１００時間の範囲である。

[0069] ＜酸水溶液又はアルカリ水溶液＞

本発明の方法は、前記積層体を酸水溶液又はアルカリ水溶液に接触させる工程を有する。

酸水溶液に用いる酸は、無機酸、有機酸のいずれでもよい。

無機酸としては、塩酸、硫酸、硝酸、リン酸等が挙げられる。

有機酸としては、カルボン酸化合物、スルホン酸化合物、有機リン酸化合物が挙げられ、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点からは、カルボン酸化合物及びスルホン酸化合物からなる群から選ばれる

少なくとも１種が好ましい。カルボン酸化合物としては、ギ酸、酢酸、クエン酸、リンゴ酸、乳酸、アジピン酸、セバシン酸、ステアリン酸、マレイン酸、コハク酸、酒石酸、フマル酸、グルコン酸等が挙げられる。スルホン酸化合物としては、メタンスルホン酸、エタンスルホン酸、ｐ－トルエンスルホン酸等が挙げられる。

[0070] 上記酸は１種又は２種以上を用いることができる。

上記の中でも、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点、及び、経済性の観点からは、酸水溶液に用いる酸は塩酸及びカルボン酸化合物からなる群から選ばれる少なくとも１種が好ましく、塩酸、酢酸、クエン酸、及び乳酸からなる群から選ばれる少なくとも１種がより好ましく、塩酸、酢酸、及び乳酸からなる群から選ばれる少なくとも１種がさらに好ましく、酢酸及び乳酸からなる群から選ばれる少なくとも１種がよりさらに好ましい。

[0071] 酸水溶液中の酸の濃度は、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点、及び、プラスチックフィルム（Ｉ）の劣化を抑制する観点から、好ましくは０．１～４Ｎ、より好ましくは０．２～３Ｎ、さらに好ましくは０．５～２Ｎである。

[0072] 酸水溶液の２５℃におけるｐＨは、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点から、好ましくは６．０以下、より好ましくは５．０以下、さらに好ましくは４．０以下、よりさらに好ましくは３．０以下であり、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点、及び、プラスチックフィルム（Ｉ）の劣化を抑制する観点から、好ましくは０．２以上、より好ましくは０．５以上、さらに好ましくは１．０以上、よりさらに好ましくは１．８以上である。

[0073] アルカリ水溶液に用いるアルカリ化合物は、無機アルカリ化合物、有機アルカリ化合物のいずれでもよい。

無機アルカリ化合物としては、水酸化リチウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等のアルカリ金属水酸化物；炭酸リチウム、炭酸水素リチウム、

炭酸カリウム、炭酸水素カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム等のアルカリ金属炭酸塩又は重炭酸塩、並びにアンモニアが挙げられる。

有機アルカリ化合物としては、アミン化合物、テトラアルキルアンモニウムヒドロキシド等が挙げられる。アミン化合物としては、アルカノールアミン、アルキルアミン、アラルキルアミン等が挙げられ、これらの炭素数は、水溶性の観点から、好ましくは１０以下、より好ましくは８以下である。

アルカノールアミンとしては、モノ－、ジ－又はトリメタノールアミン、モノ－、ジ－又はトリエタノールアミンが挙げられ、アルキルアミンとしては、メチルアミン、ジメチルアミン、エチルアミン、ジエチルアミン、Ｎ－メチルエチルアミン、プロピルアミン、ブチルアミン等が挙げられる。アラルキルアミンとしてはベンジルアミン等が挙げられる。

テトラアルキルアンモニウムヒドロキシドとしては、テトラメチルアンモニウムヒドロキシド、テトラエチルアンモニウムヒドロキシド等が挙げられる。

[0074] 上記アルカリ化合物は１種又は２種以上を用いることができる。

上記の中でも、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点、及び、経済性の観点からは、アルカリ水溶液に用いるアルカリ化合物は無機アルカリ化合物が好ましく、アルカリ金属水酸化物がより好ましく、水酸化ナトリウム及び水酸化カリウムからなる群から選ばれる少なくとも１種がさらに好ましい。

[0075] アルカリ水溶液中のアルカリ化合物の濃度は、アルカリ化合物の種類によっても異なるが、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点、及び、プラスチックフィルム（Ｉ）の劣化を抑制する観点から、好ましくは０．１～２０質量％、より好ましくは１～１５質量％、さらに好ましくは２～１０質量％である。

[0076] アルカリ水溶液の２５℃におけるｐＨは、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点から、好ましくは８．０以上、より好ましくは９．０以上、さらに好ましくは１０．０以上であり、プラスチックフィル

ム（Ｉ）の劣化を抑制する観点から、好ましくは１５．０以下である。

[0077] 積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）をより容易に回収する観点、特に、無機層（ＩＩ）がアルミニウム及びアルミニウム酸化物（アルミナ）からなる群から選ばれる少なくとも１種からなる層である場合には、本発明の方法は、積層体を酸水溶液に接触させる工程を有することが好ましく、酸水溶液に浸漬させる工程を有することがより好ましい。

[0078] 前記積層体を酸水溶液又はアルカリ水溶液に接触させる方法としては、浸漬、噴霧、流延等が挙げられるが、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点からは、浸漬が好ましい。

積層体を酸水溶液又はアルカリ水溶液に接触させる際の水溶液の温度は特に制限されないが、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点、及び、プラスチックフィルム（Ｉ）の劣化を抑制する観点から、好ましくは５～９０℃、より好ましくは５～７０℃、さらに好ましくは１０～６０℃、よりさらに好ましくは１５～４５℃である。

積層体を酸水溶液又はアルカリ水溶液に接触させる時間も特に制限されないが、プラスチックフィルム（Ｉ）の回収効率の観点から、好ましくは３０分～７日間、より好ましくは１時間～５日間である。

[0079] 積層体を酸水溶液又はアルカリ水溶液に接触させる際の、酸水溶液又はアルカリ水溶液の使用量は、積層体からプラスチックフィルム（Ｉ）を容易に回収する観点、及び、経済性の観点から、好ましくは積層体の質量の２～２，０００倍量、より好ましくは２～５００倍量、さらに好ましくは２～１００倍量である。

[0080] 酸水溶液又はアルカリ水溶液に接触させた後の積層体、及び該積層体から剥離したプラスチックフィルム（Ｉ）は、水洗、乾燥させ、回収することができる。

[0081] なお、本発明の方法において、プラスチックフィルム（Ｉ）を１枚のみ含む積層体においては、該フィルムが他の１以上の層（好ましくは無機層（ＩＩ））と分離可能である場合、プラスチックフィルム（Ｉ）を２以上含む積

層体においては、該フィルム同士が分離可能である場合に、プラスチックフィルムの回収が容易であると判断する。

上記分離されたプラスチックフィルム（Ｉ）上には他の層が残存していてもよく、この場合には、本発明の方法は、さらに当該他の層を除去する工程を有してもよい。例えばプラスチックフィルム（Ｉ）上に前記インキ層が残存している場合には、公知の脱墨処理により、該インキ層を容易に除去することができる。

実施例

[0082] 次に実施例により本発明を具体的に説明する。但し、本発明はこれらの実施例により何ら制限されるものではない。

[0083] 製造例１（アミン系硬化剤を含むエポキシ樹脂硬化剤溶液Ａの調製）

反応容器に１ｍｏｌのメタキシリレンジアミン（ＭＸＤＡ）を仕込んだ。窒素気流下６０℃に昇温し、０．９３ｍｏｌのアクリル酸メチルを１時間かけて滴下した。生成するメタノールを留去しながら１６５℃に昇温し、２．５時間１６５℃を保持することで、アミン系硬化剤を得た。そこに、メタノールを１．５時間かけて滴下し、さらに、シランカップリング剤である３－アミノプロピルトリエトキシシラン（信越化学工業（株）製「ＫＢＥ－９０３」）を添加して、アミン系硬化剤が６２．２質量％、３－アミノプロピルトリエトキシシランが２．８質量％、メタノールが３５質量％のエポキシ樹脂硬化剤溶液Ａを得た。

[0084] 製造例２（アミン系硬化剤を含むエポキシ樹脂硬化剤溶液Ｂの調製）

反応容器に１ｍｏｌのメタキシリレンジアミン（ＭＸＤＡ）を仕込んだ。窒素気流下６０℃に昇温し、０．９３ｍｏｌのアクリル酸メチルを１時間かけて滴下した。生成するメタノールを留去しながら１６５℃に昇温し、２．５時間１６５℃を保持することで、アミン系硬化剤を得た。そこに、工業用エタノール（今津薬品工業（株）製「エコノールＨ」）を１．５時間かけて滴下し、さらに、シランカップリング剤である３－アミノプロピルトリエトキシシラン（信越化学工業（株）製「ＫＢＥ－９０３」）を添加して、アミ

ン系硬化剤が６２．２質量％、３－アミノプロピルトリエトキシシランが２．８質量％、エタノールが３５質量％の溶液を調製した。

希釈溶剤であるエタノール３５．２ｇ及び酢酸エチル４２．６ｇ、並びに、上記溶液２１．２ｇを加えて撹拌した。ここに、エルカ酸アミド１ｇを加えて撹拌し、固形分濃度１４．７質量％のエポキシ樹脂硬化剤溶液Ｂを得た。

[0085] 製造例３（エポキシ樹脂組成物Ａの調製）

希釈溶剤であるメタノール１．９８ｇ及び酢酸エチル３．２５ｇ、並びに、製造例１で得られたエポキシ樹脂硬化剤溶液Ａ　３．６４ｇを加えて撹拌した。ここに、エポキシ樹脂としてメタキシリレンジアミンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂（三菱瓦斯化学（株）製「ＴＥＴＲＡＤ－Ｘ」）１．１３ｇ（エポキシ樹脂硬化剤中の活性水素数／エポキシ樹脂中のエポキシ基の数＝１．２）を加えて撹拌し、固形分濃度３５質量％の、樹脂硬化層（ＩＩＩ）－１形成用のエポキシ樹脂組成物Ａを調製した。

[0086] 製造例４（エポキシ樹脂組成物Ｂの調製）

希釈溶剤であるメタノール１．５６ｇ及び酢酸エチル３．２５ｇ、並びに、製造例１で得られたエポキシ樹脂硬化剤溶液Ａ　４．８３ｇを加えて撹拌した。ここに、エポキシ樹脂としてメタキシリレンジアミンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂（三菱瓦斯化学（株）製「ＴＥＴＲＡＤ－Ｘ」）０．３６ｇ（エポキシ樹脂硬化剤中の活性水素数／エポキシ樹脂中のエポキシ基の数＝５．０）を加えて撹拌し、固形分濃度３５質量％の、樹脂硬化層（ＩＩＩ）－２形成用のエポキシ樹脂組成物Ｂを調製した。

[0087] 製造例５（エポキシ樹脂組成物Ｃの調製）

希釈溶剤であるメタノール２．１５ｇ及び酢酸エチル３．２５ｇ、並びに、製造例１で得られたエポキシ樹脂硬化剤溶液Ａ　３．１３ｇを加えて撹拌した。ここに、エポキシ樹脂としてメタキシリレンジアミンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂（三菱瓦斯化学（株）製「ＴＥＴＲＡＤ－Ｘ」）１．４６ｇ（エポキシ樹脂硬化剤中の活性水素数／エポキシ

樹脂中のエポキシ基の数＝０．８）を加えて撹拌し、固形分濃度３５質量％の、樹脂硬化層（ＩＩＩ）－３形成用のエポキシ樹脂組成物Ｃを調製した。

[0088] 製造例６（エポキシ樹脂組成物Ｄの調製）

希釈溶剤であるエタノール８．８３ｇ、及び、製造例２で得られたエポキシ樹脂硬化剤溶液Ｂ　１．１４ｇを加えて撹拌した。ここに、エポキシ樹脂としてメタキシリレンジアミンから誘導されたグリシジルアミノ基を有するエポキシ樹脂（三菱瓦斯化学（株）製「ＴＥＴＲＡＤ－Ｘ」）０．０３ｇ（エポキシ樹脂硬化剤中の活性水素数／エポキシ樹脂中のエポキシ基の数＝３．０）を加えて撹拌し、固形分濃度２質量％の、樹脂硬化層（ＩＩＩ）－４形成用のエポキシ樹脂組成物Ｄを調製した。

[0089] 実施例１（積層体の作製及びプラスチックフィルムの回収）

（積層体の作製）

以下の手順で、表１に示す層構成の積層体を作製した。

二軸延伸ポリプロピレンフィルム（ＯＰＰ）（フタムラ化学（株）製「ＦＯＲ」、厚さ：２５μｍ）の一方の面に、白色インキ（サカタインクス（株）製「ベルカラー　Ｒ１１５」を希釈溶剤（サカタインクス（株）製「Ｌ溶剤」）で２倍希釈したもの）をバーコーターＮｏ．８を用いて塗布し、８０℃で１０秒加熱して乾燥させ（乾燥後の厚さ：約０．５μｍ）、着色層を形成した。該着色層上に、裏刷り用グラビアインキ（サカタインクス（株）製「ベルフローラＲ　メジューム」を希釈溶剤（サカタインクス（株）製「Ｋ溶剤」）で２倍希釈したもの）をバーコーターＮｏ．８を用いて塗布し、８０℃で１０秒加熱して乾燥させ（乾燥後の厚さ：約０．５μｍ）、メジウム層を形成した。以下の表中において、着色層及びメジウム層を纏めて「インキ層」と表記した。

次に、メジウム層上に、製造例３で得られたエポキシ樹脂組成物Ａをバーコーターｎｏ．８を用いて塗布し、８０℃で１０秒加熱して乾燥させた（乾燥後の厚さ：約３μｍ）。該エポキシ樹脂組成物の塗布面と、無延伸ポリプロピレンフィルム（ＣＰＰ）の一方の面にアルミニウムが蒸着されたアルミ

ニウム蒸着ＣＰＰ（中井工業（株）製「Ｓ－Ｆ－１」、厚さ：２５μｍ）のアルミニウム蒸着面とを対向させてニップロールにて貼り合わせ、４０℃で２日間加熱して樹脂硬化層（ＩＩＩ）－１を形成し、表１に示す層構成の積層体を得た。

[0090]（プラスチックフィルムの回収及び評価）

作製した積層体を１．５ｃｍ×５ｃｍの短冊状にカットし、短冊状の積層体１枚を４０℃の１Ｎ－酢酸水溶液（約１０ｇ）に１６時間浸漬させた。浸漬後に積層体を回収し、以下の評価を行った。

＜剥離界面＞

１Ｎ－酢酸水溶液への浸漬後に回収した積層体において、いずれの層の界面で剥離が生じているかを目視観察し、表１に示した。表１に記載の「剥離界面」は、「／／」で示された界面で剥離していたことを示す。

[0091]＜蒸着層の状態＞

積層体中のアルミニウム蒸着層の溶解の有無を目視観察し、表１に示した。表中、蒸着層の少なくとも一部が溶解していることが認められた場合、「溶解」と記載した。

[0092]＜ＣＰＰの分離＞

積層体からのＣＰＰフィルムの分離状態について以下の基準で評価し、表１に示した。

〔評価基準〕

Ａ：積層体からＣＰＰフィルムが剥離し、回収したＣＰＰフィルムの表面をＳＥＭ－ＥＤＸ（走査型電子顕微鏡－エネルギー分散型Ｘ線分光法）測定により元素分析した結果、フィルム表面にアルミニウムが残存していない

Ｂ：積層体からＣＰＰフィルムが剥離したが、回収したＣＰＰフィルム表面にアルミニウムが残存している

Ｃ：積層体からＣＰＰフィルムが剥離せず、回収不可

〔ＳＥＭ－ＥＤＸ測定条件〕

使用機器：（株）日立ハイテク製走査型電子顕微鏡「ＳＵ－８０２０」

測定条件：

加速電圧　１０ｋＶ

プローブ電流　１０μＡ、Ｈｉｇｈ

コンデンサレンズ１　１

作動距離　１５ｍｍ

導電処理　Ａｕ－Ｐｄ蒸着

[0093] ＜ＯＰＰ＋インキ層の分離＞

１Ｎ－酢酸水溶液への浸漬後に回収した積層体において、ＯＰＰフィルム＋インキ層の分離状態について、目視観察により以下の基準で評価し、表１に示した。

〔評価基準〕

Ａ：積層体からＯＰＰフィルム＋インキ層が剥離し、且つ、樹脂硬化層がインキ層上に残存していない

Ｂ：積層体からＯＰＰフィルム＋インキ層が剥離したが、樹脂硬化層がインキ層上に残存している

Ｃ：積層体からＯＰＰフィルム＋インキ層が剥離したが、樹脂硬化層及び一部の蒸着層がインキ層上に残存している

Ｄ：積層体からＯＰＰフィルム＋インキ層が剥離せず、回収不可

[0094] 実施例２～４

実施例１において、積層体を浸漬する水溶液を表１に記載のものに変更したこと以外は、実施例１と同様の方法で評価を行った。結果を表１に示す。

[0095] 実施例５

実施例１において、製造例３で得られたエポキシ樹脂組成物Ａに替えて、製造例４で得られたエポキシ樹脂組成物Ｂを用いたこと以外は、実施例１と同様の方法で表１に示す層構成の積層体を作製し、評価を行った。結果を表１に示す。

[0096] 実施例６～８

実施例５において、積層体を浸漬する水溶液を表１に記載のものに変更し

たこと以外は、実施例５と同様の方法で評価を行った。結果を表１に示す。

[0097] 比較例１

実施例２において、製造例３で得られたエポキシ樹脂組成物Ａに替えて、ウレタン接着剤（東洋モートン（株）製「ＴＭ－５６９／ＣＡＴ－ＲＴ３７」）を用いたこと以外は、実施例２と同様の方法で表１に示す層構成の積層体を作製し、評価を行った。結果を表１に示す。

[0098] 比較例２～３

比較例１において、積層体を浸漬する水溶液を表１に記載のものに変更したこと以外は、比較例１と同様の方法で評価を行った。結果を表１に示す。

[0099]

[表1]

表 1

	積層体			浸漬水溶液※	剥離界面	蒸着層の状態	CPPの分離	OPP+インキ層の分離
	層構成	樹脂硬化層						
		種類	厚さ(μm)					
実施例1	OPP/インキ層/変性硬化層(III)/Al蒸着層/CPP	(III)-1	3	1N -酢酸	インキ層//樹脂硬化層(III)//Al蒸着層//CPP	溶解	A	A
実施例2	OPP/インキ層/変性硬化層(III)/Al蒸着層/CPP	(III)-1	3	1N-乳酸	インキ層//樹脂硬化層(III)//Al蒸着層//CPP	溶解	A	A
実施例3	OPP/インキ層/変性硬化層(III)/Al蒸着層/CPP	(III)-1	3	1N-クエン酸	インキ層//樹脂硬化層(III)//Al蒸着層	溶解せず	B	A
実施例4	OPP/インキ層/後脂硬化層(III)/Al蒸着層/CPP	(III)-1	3	1N-塩酸	インキ層//樹脂硬化層(III)//Al蒸着層//CPP	溶解	A	A
実施例5	OPP/インキ層/変性硬化層(III)/Al蒸着層/CPP	(III)-2	3	1N-酢酸	インキ層//樹脂硬化層(III)//Al蒸着層//CPP	溶解	A	A
実施例6	OPP/インキ層/変性硬化層(III)/Al蒸着層/CPP	(III)-2	3	1N-乳酸	インキ層//樹脂硬化層(III)//Al蒸着層//CPP	溶解	A	A
実施例7	OPP/インキ層/変性硬化層(III)/Al蒸着層/CPP	(III)-2	3	1N-クエン酸	インキ層//樹脂硬化層(III)//Al蒸着層	溶解せず	B	A
実施例8	OPP/インキ層/後脂硬化層(III)/Al蒸着層/CPP	(III)-2	3	1N-塩酸	インキ層//樹脂硬化層(III)//Al蒸着層//CPP	溶解	A	A
比較例1	OPP/インキ層/ウレタン接着剤層/Al蒸着層/CPP	ウレタン接着剤層	3	1N-乳酸	剥離せず	溶解せず	C	D
比較例2	OPP/インキ層/ウレタン接着剤層/Al蒸着層/CPP	ウレタン接着剤層	3	1N-クエン酸	剥離せず	溶解せず	C	D
比較例3	OPP/インキ層/ウレタン接着剤層/Al蒸着層/CPP	ウレタン接着剤層	3	1N-塩酸	剥離せず	周縁部のみわずかに溶解	C	D

※ 1N-酢酸：pH2.26, 1N-乳酸：pH1.8, 1N-クエン酸：pH1.75, 1N-塩酸：pH0.22 （いずれも25℃における値）

[0100] 表１より、ＯＰＰフィルム及びＣＰＰフィルム、アルミニウム蒸着層、及び所定の樹脂硬化層（ＩＩＩ）を有する積層体を酸水溶液に浸漬させることで、ＣＰＰフィルム、及びＯＰＰフィルム＋インキ層を分離可能であったことがわかる（実施例１～８）。特に積層体を１Ｎ－酢酸水溶液、１Ｎ－乳酸水溶液、又は１Ｎ－塩酸に浸漬させた実施例１，２，４～６，８では、ＣＰＰフィルムに蒸着層が残存せず、ＣＰＰフィルムの回収に有利であった。これに対し比較例１～３では、プラスチックフィルムの分離ができなかった。

[0101] 実施例９（積層体の作製及びプラスチックフィルムの回収）

（積層体の作製）

以下の手順で、表２に示す層構成の積層体を作製した。

二軸延伸ポリエチレンテレフタレートフィルム（ＰＥＴ）の一方の面にアルミナが蒸着されたアルミナ蒸着ＰＥＴ（東レフィルム加工（株）製「バリアロックス１０１１ＨＧ」、厚さ：１２μｍ）のアルミナ蒸着面に、白色インキ（サカタインクス（株）製「ベルカラー　Ｒ１１５」を希釈溶剤（サカタインクス（株）製「Ｌ溶剤」）で２倍希釈したもの）をバーコーターＮｏ．８を用いて塗布し、８０℃で１０秒加熱して乾燥させ（乾燥後の厚さ：約０．５μｍ）、着色層を形成した。該着色層上に、裏刷り用グラビアインキ（サカタインクス（株）製「ベルフローラＲ　メジューム」を希釈溶剤（サカタインクス（株）製「Ｋ溶剤」）で２倍希釈したもの）をバーコーターＮｏ．８を用いて塗布し、８０℃で１０秒加熱して乾燥させ（乾燥後の厚さ：約０．５μｍ）、メジウム層を形成した。

次に、前記メジウム層上に、製造例５で得られたエポキシ樹脂組成物Ｃをバーコーターｎｏ．８を用いて塗布し、８０℃で１０秒加熱して乾燥させた（乾燥後の厚さ：約３μｍ）。該エポキシ樹脂組成物の塗布面と無延伸ポリプロピレンフィルム（ＣＰＰ）（東洋紡（株）製「パイレンフィルム－ＣＴＰ１１４６」、厚さ：５０μｍ）とを対向させてニップロールにて貼り合わせ、４０℃で２日間加熱して樹脂硬化層（ＩＩＩ）－３を形成し、表２に示す層構成の積層体を得た。

[0102] （プラスチックフィルムの回収及び評価）

作製した積層体を１．５ｃｍ×５ｃｍの短冊状にカットし、短冊状の積層体１枚を４０℃の１Ｎ－酢酸水溶液（約１０ｇ）に１６時間浸漬させた。浸漬後に積層体を回収し、以下の評価を行った。

[0103] ＜剥離界面、蒸着層の状態＞

実施例１と同様の方法で評価した。

[0104] ＜ＰＥＴの分離＞

積層体からのＰＥＴフィルムの分離状態について以下の基準で評価し、表２に示した。ＳＥＭ－ＥＤＸ測定条件は前記と同じである。

〔評価基準〕

Ａ：積層体からＰＥＴフィルムが剥離し、回収したＰＥＴフィルムの表面をＳＥＭ－ＥＤＸ測定により元素分析した結果、フィルム表面にアルミナが残存していない

Ｂ：積層体からＰＥＴフィルムが剥離したが、回収したＰＥＴフィルム表面にアルミナが残存している

Ｃ：積層体からＰＥＴフィルムが剥離せず、回収不可

[0105] ＜ＣＰＰ＋樹脂硬化層の分離＞

１Ｎ－酢酸水溶液への浸漬後に回収した積層体において、ＣＰＰ＋樹脂硬化層の分離状態について、目視観察により以下の基準で評価し、表２に示した。

〔評価基準〕

Ａ：積層体からＣＰＰフィルム＋樹脂硬化層が剥離し、且つ、インキ層が樹脂硬化層上に残存していない

Ｂ：積層体からＣＰＰフィルム＋樹脂硬化層が剥離したが、インキ層が樹脂硬化層上に残存している

Ｃ：積層体からＣＰＰフィルム＋樹脂硬化層が剥離せず、回収不可

[0106] 実施例１０～１１

実施例９において、積層体を浸漬する水溶液を表２に記載のものに変更し

たこと以外は、実施例９と同様の方法で評価を行った。結果を表２に示す。

[0107] 比較例４

実施例９において、製造例５で得られたエポキシ樹脂組成物Ｃに替えて、ウレタン接着剤（東洋モートン（株）製「ＴＭ－５６９／ＣＡＴ－ＲＴ３７」）を用いたこと以外は、実施例９と同様の方法で表２に示す層構成の積層体を作製し、評価を行った。結果を表２に示す。

[0108] 比較例５～６

比較例４において、積層体を浸漬する水溶液を表２に記載のものに変更したこと以外は、比較例４と同様の方法で評価を行った。結果を表２に示す。

[0109]

[表2]

表 2

	積層体			浸漬水溶液	剥離界面	蒸着層の状態	PETの分離	CPP+樹脂硬化層の分離
	層構成	樹脂硬化層						
		種類	厚さ(μm)					
実施例9	PET/Al_2O_x蒸着層/インキ層/樹脂硬化層(III)/CPP	(III)-3	3	1N-酢酸	PET//Al_2O_x蒸着層//インキ層//樹脂硬化層(III)	溶解	A	A
実施例10	PET/Al_2O_x蒸着層/インキ層/樹脂硬化層(III)/CPP	(III)-3	3	1N-乳酸	PET//Al_2O_x蒸着層//インキ層//樹脂硬化層(III)	溶解	A	A
実施例11	PET/Al_2O_x蒸着層/インキ層/樹脂硬化層(III)/CPP	(III)-3	3	1N-塩酸	PET//Al_2O_x蒸着層//インキ層	溶解	A	B
比較例4	PET/Al_2O_x蒸着層/インキ層/ウレタン接着剤層/CPP	ウレタン接着剤層	3	1N-酢酸	剥離せず	溶解せず	C	C
比較例5	PET/Al_2O_x蒸着層/インキ層/ウレタン接着剤層/CPP	ウレタン接着剤層	3	1N-乳酸	剥離せず	溶解せず	C	C
比較例6	PET/Al_2O_x蒸着層/インキ層/ウレタン接着剤層/CPP	ウレタン接着剤層	3	1N-塩酸	剥離せず	溶解せず	C	C

[0110] 実施例１２（積層体の作製及びプラスチックフィルムの回収）

（積層体の作製）

以下の手順で、表３に示す層構成の積層体を作製した。

二軸延伸ポリエチレンテレフタレートフィルム（ＰＥＴ）の一方の面にシリカが蒸着されたシリカ蒸着ＰＥＴ（三菱ケミカル（株）製「テックバリアＬ」、厚さ：１２μｍ）のシリカ蒸着面に、製造例３で得られたエポキシ樹脂組成物Ａをバーコーターｎｏ．８を用いて塗布し、８０℃で１０秒加熱して乾燥させた（乾燥後の厚さ：約３μｍ）。該エポキシ樹脂組成物の塗布面と無延伸ポリプロピレンフィルム（ＣＰＰ）（東洋紡（株）製「パイレンフィルム－ＣＴ　Ｐ１１４６」、厚さ：２５μｍ）とを対向させてニップロールにて貼り合わせ、４０℃で２日間加熱して樹脂硬化層（ＩＩＩ）－１を形成し、表３に示す層構成の積層体を得た。

[0111] （プラスチックフィルムの回収及び評価）

作製した積層体を１．５ｃｍ×５ｃｍの短冊状にカットし、短冊状の積層体１枚を４０℃の１Ｎ－酢酸水溶液（約１０ｇ）に１６時間浸漬させた。浸漬後に積層体を回収し、以下の評価を行った。

[0112] ＜剥離界面、蒸着層の状態＞

実施例１と同様の方法で評価した。

[0113] ＜ＰＥＴの分離＞

積層体からのＰＥＴフィルムの分離状態について以下の基準で評価し、表３に示した。ＳＥＭ－ＥＤＸ測定条件は前記と同じである。

〔評価基準〕

Ａ：積層体からＰＥＴフィルムが剥離し、回収したＰＥＴフィルムの表面をＳＥＭ－ＥＤＸ測定により元素分析した結果、フィルム表面にシリカが残存していない

Ｂ：積層体からＰＥＴフィルムが剥離したが、回収したＰＥＴフィルム表面にシリカが残存している

Ｃ：積層体からＰＥＴフィルムが剥離せず、回収不可

[0114] ＜ＣＰＰ＋樹脂硬化層の分離＞

１Ｎ－酢酸水溶液への浸漬後に回収した積層体において、ＣＰＰ＋樹脂硬化層の分離状態について、目視観察により以下の基準で評価し、表２に示した。

〔評価基準〕

Ａ：積層体からＣＰＰフィルム＋樹脂硬化層が剥離した

Ｃ：積層体からＣＰＰフィルム＋樹脂硬化層が剥離せず、回収不可

[0115] 実施例１３～１４

実施例１２において、積層体を浸漬する水溶液を表３に記載のものに変更したこと以外は、実施例１２と同様の方法で評価を行った。結果を表３に示す。

[0116] 比較例７

実施例１２において、製造例３で得られたエポキシ樹脂組成物Ａに替えて、ウレタン接着剤（東洋モートン（株）製「ＴＭ－５６９／　ＣＡＴ－ＲＴ３７」）を用いたこと以外は、実施例１２と同様の方法で表３に示す層構成の積層体を作製し、評価を行った。結果を表３に示す。

[0117] 比較例８～９

比較例７において、積層体を浸漬する水溶液を表３に記載のものに変更したこと以外は、比較例７と同様の方法で評価を行った。結果を表３に示す。

[0118]

[表3]

表 3

	積層体			浸漬水溶液	剥離界面	蒸着層の状態	PETの分離	CPP+樹脂硬化層の分離
	層構成	樹脂硬化層						
		種類	厚さ(μm)					
実施例12	PET/SiOx蒸着層/樹脂硬化層(III)/CPP	(III)-1	3	1N-酢酸	SiOx蒸着層//樹脂硬化層(III)	溶解	B	A
実施例13	PET/SiOx蒸着層/樹脂硬化層(III)/CPP	(III)-1	3	1N-乳酸	SiOx蒸着層//樹脂硬化層(III)	溶解	B	A
実施例14	PET/SiOx蒸着層/樹脂硬化層(III)/CPP	(III)-1	3	1N-クエン酸	SiOx蒸着層//樹脂硬化層(III)	溶解	B	A
比較例7	PET/SiOx蒸着層/ウレタン接着剤層/CPP	ウレタン接着剤層	3	1N-酢酸	剥離せず	溶解せず	C	C
比較例8	PET/SiOx蒸着層/ウレタン接着剤層/CPP	ウレタン接着剤層	3	1N-乳酸	剥離せず	溶解せず	C	C
比較例9	PET/SiOx蒸着層/ウレタン接着剤層/CPP	ウレタン接着剤層	3	1N-クエン酸	剥離せず	溶解せず	C	C

[0119] 実施例１５（積層体の作製及びプラスチックフィルムの回収）

（積層体の作製）

以下の手順で、表４に示す層構成の積層体を作製した。

二軸延伸ポリプロピレンフィルム（ＯＰＰ）（フタムラ化学（株）製「ＦＯＲ」、厚さ：２５μｍ）の一方の面に、製造例３で得られたエポキシ樹脂組成物Ａをバーコーターｎｏ．８を用いて塗布し、８０℃で１０秒加熱して乾燥させた（乾燥後の厚さ：約３μｍ）。該エポキシ樹脂組成物の塗布面と、無延伸ポリプロピレンフィルム（ＣＰＰ）の一方の面にアルミニウムが蒸着されたアルミニウム蒸着ＣＰＰ（中井工業（株）製「Ｓ－Ｆ－１」、厚さ：２５μｍ）のアルミニウム蒸着面とを対向させてニップロールにて貼り合わせ、４０℃で２日間加熱して樹脂硬化層（ＩＩＩ）－１を形成し、表４に示す層構成の積層体を得た。

[0120] （プラスチックフィルムの回収及び評価）

作製した積層体を１．５ｃｍ×５ｃｍの短冊状にカットし、短冊状の積層体１枚を２３℃の１Ｎ－塩酸（約１０ｇ）に９６時間浸漬させた。浸漬後に積層体を回収し、以下の評価を行った。

[0121] ＜剥離界面、蒸着層の状態＞

実施例１と同様の方法で評価した。

[0122] ＜ＣＰＰの分離＞

実施例１と同様の方法で評価した。

[0123] ＜ＯＰＰ＋樹脂硬化層の分離＞

１Ｎ－塩酸への浸漬後に回収した積層体において、ＯＰＰフィルム＋樹脂硬化層の分離状態について、目視観察により以下の基準で評価し、表４に示した。

〔評価基準〕

Ａ：積層体からＯＰＰフィルム＋樹脂硬化層が剥離した

Ｃ：積層体からＯＰＰフィルム＋樹脂硬化層が剥離せず、回収不可

[0124] 実施例１６

実施例１５において、積層体を浸漬する水溶液を５％－ＫＯＨ水溶液（２５℃におけるｐＨ：１４．７）に変更したこと以外は、実施例１５と同様の方法で評価を行った。結果を表４に示す。

[0125] 実施例１７（積層体の作製及びプラスチックフィルムの回収）

（積層体の作製）

以下の手順で、表４に示す層構成の積層体を作製した。

無延伸ポリプロピレンフィルム（ＣＰＰ）の一方の面にアルミニウムが蒸着されたアルミニウム蒸着ＣＰＰ（中井工業（株）製「Ｓ－Ｆ－１」、厚さ：２５μｍ）のアルミニウム蒸着面に、製造例６で得られたエポキシ樹脂組成物Ｄをバーコーターｎｏ．３を用いて塗布し、８０℃で３０秒加熱して乾燥させた（乾燥後の厚さ：約０．１μｍ）。

次に、二軸延伸ポリプロピレンフィルム（ＯＰＰ）（フタムラ化学（株）製「ＦＯＲ」、厚さ：２５μｍ）の一方の面に、ウレタン接着剤（東洋モートン（株）製「ＴＭ－５６９／　ＣＡＴ－ＲＴ３７」）をバーコーターＮｏ．８を用いて塗布し、８０℃で１０秒加熱して乾燥させた（乾燥後の厚さ：約３μｍ）。前記エポキシ樹脂組成物の塗布面と該ウレタン接着剤層とを対向させてニップロールにて貼り合わせ、４０℃で２日間加熱して樹脂硬化層（ＩＩＩ）－４を形成し、表４に示す層構成の積層体を得た。

[0126] （プラスチックフィルムの回収及び評価）

作製した積層体を１．５ｃｍ×５ｃｍの短冊状にカットし、短冊状の積層体１枚を２３℃において１Ｎ－塩酸（約１０ｇ）に９６時間浸漬させた。浸漬後に積層体を回収し、実施例１２と同様の評価を行った。結果を表４に示す。

[0127] 実施例１８

実施例１７において、積層体を浸漬する水溶液を５％－ＫＯＨ水溶液（２５℃におけるｐＨ：１４．７）に変更したこと以外は、実施例１７と同様の方法で評価を行った。結果を表４に示す。

[0128]

[表4]

表 4

	積層体			浸漬水溶液	剥離界面	蒸着層の状態	CPPの分離	OPP＋樹脂硬化層の分離
	層構成	樹脂硬化層						
		種類	厚さ(μm)					
実施例15	OPP/樹脂硬化層(III)/Al蒸着層/CPP	(III)-1	3	1N-塩酸	樹脂硬化層(III)//Al蒸着層//CPP	溶解	A	A
実施例16	OPP/樹脂硬化層(III)/Al蒸着層/CPP	(III)-1	3	5%-KOH	樹脂硬化層(III)//Al蒸着層//CPP	溶解	A	A
実施例17	OPP/ウレタン接着剤層/樹脂硬化層(III)/Al蒸着層/CPP	ウレタン接着剤層＋(III)-4	0.1	1N-塩酸	樹脂硬化層(III)//Al蒸着層//CPP	溶解	A	B
実施例18	OPP/ウレタン接着剤層/樹脂硬化層(III)/Al蒸着層/CPP	ウレタン接着剤層＋(III)-4	0.1	5%-KOH	樹脂硬化層(III)//Al蒸着層//CPP	溶解	A	B

[0129] 表２～４より、本発明の方法によれば、層構成が異なる積層体を用いても、酸水溶液又はアルカリ水溶液によりプラスチックフィルムを分離することができる。

[0130] 実施例１９（積層体の作製及びプラスチックフィルムの回収）

（積層体の作製）

以下の手順で、表５に示す層構成の積層体を作製した。

ポリエチレンテレフタレートフィルム（ＰＥＴ）の一方の面にシリカが蒸着されたシリカ蒸着ＰＥＴ（三菱ケミカル（株）製「テックバリアＬ」、厚さ：１２μｍ）のシリカ蒸着面に、製造例３で得られたエポキシ樹脂組成物Ａをバーコーターｎｏ．８を用いて塗布し、８０℃で１０秒加熱して乾燥させた（乾燥後の厚さ：約３μｍ）。該エポキシ樹脂組成物の塗布面と、ＰＥＴシーラントの一方の面にシリカ－アルミナの２元蒸着層が形成された２元蒸着ＰＥＴシーラントフィルム（東洋紡（株）製「ＶＥ０３４」、厚さ：３０μｍ）の蒸着層面とを対向させてニップロールにて貼り合わせ、４０℃で２日間加熱して樹脂硬化層（ＩＩＩ）－１を形成し、表５に示す層構成の積層体を得た。

[0131] （プラスチックフィルムの回収及び評価）

作製した積層体を１．５ｃｍ×５ｃｍの短冊状にカットし、短冊状の積層体１枚を４０℃の５％－ＫＯＨ水溶液（約１０ｇ）に１６時間浸漬させた。浸漬後に積層体を回収し、以下の評価を行った。

[0132] ＜剥離界面、蒸着層の状態＞

実施例１と同様の方法で評価した。

[0133] ＜ＰＥＴの分離＞

積層体からのＰＥＴフィルムの分離状態について以下の基準で評価し、表５に示した。ＳＥＭ－ＥＤＸ測定条件は前記と同じである。

〔評価基準〕

Ａ：積層体からＰＥＴフィルムが剥離し、回収したＰＥＴフィルムの表面をＳＥＭ－ＥＤＸ測定により元素分析した結果、フィルム表面にシリカが残

存していない

Ｂ：積層体からＰＥＴフィルムが剥離したが、回収したＰＥＴフィルム表面にシリカが残存している

Ｃ：積層体からＰＥＴフィルムが剥離せず、回収不可

[0134] ＜ＰＥＴシーラントの分離＞

積層体からのＰＥＴシーラントの分離状態について以下の基準で評価し、表５に示した。

〔評価基準〕

Ａ：積層体からＰＥＴシーラントが剥離し、回収したＰＥＴシーラントの表面をＳＥＭ－ＥＤＸ測定により元素分析した結果、シーラント表面に２元蒸着層が残存していない

Ｂ：積層体からＰＥＴシーラントが剥離したが、回収したＰＥＴシーラント表面に２元蒸着層が残存している

Ｃ：積層体からＰＥＴシーラントが剥離せず、回収不可

[0135] 実施例２０～２２

実施例１９において、積層体を浸漬する水溶液を表５に記載のものに変更したこと以外は、実施例１９と同様の方法で評価を行った。結果を表５に示す。

[0136] 比較例１０

実施例１９において、製造例３で得られたエポキシ樹脂組成物Ａに替えて、ウレタン接着剤（東洋モートン（株）製「ＴＭ－５６９／ＣＡＴ－ＲＴ３７」）を用いたこと以外は、実施例１９と同様の方法で表５に示す層構成の積層体を作製し、評価を行った。結果を表５に示す。

[0137] 比較例１１～１３

比較例１０において、積層体を浸漬する水溶液を表５に記載のものに変更したこと以外は、比較例１０と同様の方法で評価を行った。結果を表５に示す。

[0138]

[表5]

表 5

	積層体			浸漬水溶液	剥離界面	蒸着層の状態	PETの分離	PETシーラントの分離
	層構成	樹脂硬化層						
		種類	厚さ(μm)					
実施例19	PET/SiOx蒸着層/樹脂硬化層(III)/2元系着層/PETシーラント	(III)-1	3	5%-KOH	PET//SiOx蒸着層//樹脂硬化層(III)//2元系着層//PETシーラント	どちらも溶解	A	A
実施例20	PET/SiOx蒸着層/樹脂硬化層(III)/2元系着層/PETシーラント	(III)-1	3	1N-塩酸	SiOx蒸着層//樹脂硬化層(III)//2元系着層	どちらも溶解	B	B
実施例21	PET/SiOx蒸着層/樹脂硬化層(III)/2元系着層/PETシーラント	(III)-1	3	1N-酢酸	SiOx蒸着層//樹脂硬化層(III)//2元系着層	どちらも溶解	B	B
実施例22	PET/SiOx蒸着層/樹脂硬化層(III)/2元系着層/PETシーラント	(III)-1	3	1N-乳酸	SiOx蒸着層//樹脂硬化層(III)//2元系着層	どちらも溶解	B	B
比較例10	PET/SiOx蒸着層/ウレタン接着剤/2元系着層/PETシーラント	ウレタン接着剤	3	5%-KOH	周縁部のみ剥離	-	C	C
比較例11	PET/SiOx蒸着層/ウレタン接着剤/2元系着層/PETシーラント	ウレタン接着剤	3	1N-塩酸	剥離せず	溶解せず	C	C
比較例12	PET/SiOx蒸着層/ウレタン接着剤/2元系着層/PETシーラント	ウレタン接着剤	3	1N-酢酸	剥離せず	溶解せず	C	C
比較例13	PET/SiOx蒸着層/ウレタン接着剤/2元系着層/PETシーラント	ウレタン接着剤	3	1N-乳酸	剥離せず	溶解せず	C	C

[0139] 実施例２３（積層体の作製及びプラスチックフィルムの回収）

（積層体の作製）

実施例１９において、２元蒸着ＰＥＴシーラントフィルムに替えて、ＰＥＴシーラントフィルム（日生化学（株）製「ＨＳ－ＰＥＴ（Ｃ）」）を用いたこと以外は、実施例１９と同様の方法で、表６に示す層構成の積層体を作製した。

[0140] （プラスチックフィルムの回収及び評価）

作製した積層体を１．５ｃｍ×５ｃｍの短冊状にカットし、短冊状の積層体１枚を４０℃の５％－ＫＯＨ水溶液（約１０ｇ）に９６時間浸漬させた。浸漬後に積層体を回収し、以下の評価を行った。

[0141] ＜剥離界面、蒸着層の状態＞

実施例１と同様の方法で評価した。

[0142] ＜ＰＥＴの分離＞

積層体からのＰＥＴフィルムの分離状態について以下の基準で評価し、表６に示した。ＳＥＭ－ＥＤＸ測定条件は前記と同じである。

〔評価基準〕

Ａ：積層体からＰＥＴフィルムが剥離し、回収したＰＥＴフィルムの表面をＳＥＭ－ＥＤＸ測定により元素分析した結果、フィルム表面にシリカが残存していない

Ｂ：積層体からＰＥＴフィルムが剥離したが、回収したＰＥＴフィルム表面にシリカが残存している

Ｃ：積層体からＰＥＴフィルムが剥離せず、回収不可

[0143] ＜ＰＥＴシーラント＋樹脂硬化層の分離＞

５％－ＫＯＨ水溶液への浸漬後に回収した積層体において、ＰＥＴシーラント＋樹脂硬化層の分離状態について、目視観察により以下の基準で評価し、表６に示した。

〔評価基準〕

Ａ：積層体からＰＥＴシーラント＋樹脂硬化層が剥離した

Ｃ：積層体からＰＥＴシーラント＋樹脂硬化層が剥離せず、回収不可

[0144] 実施例２４～２６

実施例２３において、積層体を浸漬する水溶液を表６に記載のものに変更したこと以外は、実施例１９と同様の方法で評価を行った。結果を表６に示す。

[0145] 比較例１４

実施例２４において、製造例３で得られたエポキシ樹脂組成物Ａに替えて、ウレタン接着剤（東洋モートン（株）製「ＴＭ－５６９／ＣＡＴ－ＲＴ３７」）を用いたこと以外は、実施例２４と同様の方法で表６に示す層構成の積層体を作製し、評価を行った。結果を表６に示す。

[0146] 比較例１５～１６

比較例１４において、積層体を浸漬する水溶液を表６に記載のものに変更したこと以外は、比較例１４と同様の方法で評価を行った。結果を表６に示す。

[0147]

[表6]

表 6

	積層体			浸漬水溶液	剥離界面	蒸着層の状態	PETの分離	PETシーラント＋樹脂硬化層の分離
	層構成	樹脂硬化層						
		種類	厚さ(μm)					
実施例23	PET/SiOx蒸着層/樹脂硬化層(III)/ PETシーラント	(III)-1	3	5%-KOH	PET//SiOx蒸着層//樹脂硬化層(III)	溶解	A	A
実施例24	PET/SiOx蒸着層/樹脂硬化層(III)/ PETシーラント	(III)-1	3	1N-塩酸	SiOx蒸着層//樹脂硬化層(III)	溶解	B	A
実施例25	PET/SiOx蒸着層/樹脂硬化層(III)/ PETシーラント	(III)-1	3	1N-酢酸	SiOx蒸着層//樹脂硬化層(III)	溶解	B	A
実施例26	PET/SiOx蒸着層/樹脂硬化層(III)/ PETシーラント	(III)-1	3	1N-乳酸	SiOx蒸着層//樹脂硬化層(III)	溶解	B	A
比較例14	PET/SiOx蒸着層/ウレタン接着剤/ PETシーラント	ウレタン接着剤	3	1N-塩酸	剥離せず	溶解せず	C	C
比較例15	PET/SiOx蒸着層/ウレタン接着剤/ PETシーラント	ウレタン接着剤	3	1N-酢酸	剥離せず	溶解せず	C	C
比較例16	PET/SiOx蒸着層/ウレタン接着剤/ PETシーラント	ウレタン接着剤	3	1N-乳酸	剥離せず	溶解せず	C	C

[0148] 実施例２７（積層体の作製及びプラスチックフィルムの回収）

（積層体の作製）

以下の手順で、表７に示す層構成の積層体を作製した。

二軸延伸ポリエチレンテレフタレートフィルム（ＰＥＴ）（東洋紡（株）製「Ｅ５１００」、厚さ：１２μｍ）の一方の面に、白色インキ（サカタインクス（株）製「ベルカラー　Ｒ１１５」を希釈溶剤（サカタインクス（株）製「Ｌ溶剤」）で２倍希釈したもの）をバーコーターＮｏ．８を用いて塗布し、８０℃で１０秒加熱して乾燥させ（乾燥後の厚さ：約０．５μｍ）、着色層を形成した。該着色層上に、裏刷り用グラビアインキ（サカタインクス（株）製「ベルフローラＲ　メジューム」を希釈溶剤（サカタインクス（株）製「Ｋ溶剤」）で２倍希釈したもの）をバーコーターＮｏ．８を用いて塗布し、８０℃で１０秒加熱して乾燥させ（乾燥後の厚さ：約０．５μｍ）、メジウム層を形成した。

次に、前記メジウム層上に、製造例３で得られたエポキシ樹脂組成物Ａをバーコーターｎｏ．８を用いて塗布し、８０℃で１０秒加熱して乾燥させた（乾燥後の厚さ：約３μｍ）。該エポキシ樹脂組成物の塗布面と、ＰＥＴシーラントの一方の面にシリカ－アルミナの２元蒸着層が形成された２元蒸着ＰＥＴシーラントフィルム（東洋紡（株）製「ＶＥ０３４」、厚さ：３０μｍ）の蒸着層面とを対向させてニップロールにて貼り合わせ、４０℃で２日間加熱して樹脂硬化層（ＩＩＩ）－１を形成し、表７に示す層構成の積層体を得た。

[0149] （プラスチックフィルムの回収及び評価）

作製した積層体を１．５ｃｍ×５ｃｍの短冊状にカットし、短冊状の積層体１枚を４０℃の５％－ＫＯＨ水溶液（約１０ｇ）に１６時間浸漬させた。浸漬後に積層体を回収し、以下の評価を行った。

[0150] ＜剥離界面、蒸着層の状態＞

実施例１と同様の方法で評価した。

[0151] ＜ＰＥＴの分離＞

積層体からのＰＥＴフィルムの分離状態について以下の基準で評価し、表７に示した。ＳＥＭ－ＥＤＸ測定条件は前記と同じである。

〔評価基準〕

Ａ：積層体からＰＥＴフィルムが剥離し、回収したＰＥＴフィルムの表面にインキ層が残存していない

Ｂ：積層体からＰＥＴフィルムが剥離したが、回収したＰＥＴフィルム表面にインキ層が残存している

Ｃ：積層体からＰＥＴフィルムが剥離せず、回収不可

[0152] ＜ＰＥＴシーラントの分離＞

積層体からのＰＥＴシーラントの分離状態について以下の基準で評価し、表７に示した。

〔評価基準〕

Ａ：積層体からＰＥＴシーラントが剥離し、回収したＰＥＴシーラントの表面をＳＥＭ－ＥＤＸ測定により元素分析した結果、シーラント表面に２元蒸着層が残存していない

Ｂ：積層体からＰＥＴシーラントが剥離したが、回収したＰＥＴシーラント表面に２元蒸着層が残存している

Ｃ：積層体からＰＥＴシーラントが剥離せず、回収不可

[0153] 実施例２８～３１

実施例２７において、積層体を浸漬する水溶液を表７に記載のものに変更したこと以外は、実施例２７と同様の方法で評価を行った。結果を表７に示す。

[0154] 比較例１７

実施例２７において、製造例３で得られたエポキシ樹脂組成物Ａに替えて、ウレタン接着剤（東洋モートン（株）製「ＴＭ－５６９／ＣＡＴ－ＲＴ３７」）を用いたこと以外は、実施例２７と同様の方法で表７に示す層構成の積層体を作製し、評価を行った。結果を表７に示す。

[0155] 比較例１８～２１

比較例１７において、積層体を浸漬する水溶液を表７に記載のものに変更したこと以外は、比較例１７と同様の方法で評価を行った。結果を表７に示す。

[0156]

[表7]

表 7

	積層体			浸漬水溶液	剥離界面	蒸着層の状態	PETの分離	PETシーラントの分離
	層構成	樹脂硬化層						
		種類	厚さ(μm)					
実施例27	PET/インキ層/樹脂硬化層(III)/ 2元蒸着層/PETシーラント	(III)-1	3	5%-KOH	PET//インキ層/樹脂硬化層(III)//2元蒸着層//PETシーラント	溶解	A	A
実施例28	PET/インキ層/樹脂硬化層(III)/ 2元蒸着層/PETシーラント	(III)-1	3	1N-塩酸	インキ層//樹脂硬化層(III)//2元蒸着層	溶解	B	B
実施例29	PET/インキ層/樹脂硬化層(III)/ 2元蒸着層/PETシーラント	(III)-1	3	1N-酢酸	インキ層//樹脂硬化層(III)//2元蒸着層	溶解	B	B
実施例30	PET/インキ層/樹脂硬化層(III)/ 2元蒸着層/PETシーラント	(III)-1	3	1N-乳酸	インキ層//樹脂硬化層(III)//2元蒸着層	溶解	B	B
実施例31	PET/インキ層/樹脂硬化層(III)/ 2元蒸着層/PETシーラント	(III)-1	3	1N-クエン酸	インキ層//樹脂硬化層(III)//2元蒸着層	溶解	B	B
比較例17	PET/インキ層/ウレタン接着剤/ 2元蒸着層/PETシーラント	ウレタン接着剤	3	5%-KOH	周縁部のみ剥離	–	C	C
比較例18	PET/インキ層/ウレタン接着剤/ 2元蒸着層/PETシーラント	ウレタン接着剤	3	1N-塩酸	剥離せず	溶解せず	C	C
比較例19	PET/インキ層/ウレタン接着剤/ 2元蒸着層/PETシーラント	ウレタン接着剤	3	1N-酢酸	剥離せず	溶解せず	C	C
比較例20	PET/インキ層/ウレタン接着剤/ 2元蒸着層/PETシーラント	ウレタン接着剤	3	1N-乳酸	剥離せず	溶解せず	C	C
比較例21	PET/インキ層/ウレタン接着剤/ 2元蒸着層/PETシーラント	ウレタン接着剤	3	1N-クエン酸	剥離せず	溶解せず	C	C

[0157] 表５～７より、本発明の方法によれば、層構成が異なる積層体を用いても、酸水溶液又はアルカリ水溶液によりプラスチックフィルム（ＰＥＴ又はＰＥＴシーラント）を分離することができる。また積層体中の蒸着層がシリカを含む場合には、アルカリ水溶液に接触させることが好ましいことがわかる。

[0158] 実施例３２（実機によるプラスチックフィルムの回収）

実施例１の層構成の積層体（ＯＰＰ／インキ層／樹脂硬化層（ＩＩＩ）／ＡＩ蒸着層／ＣＰＰ）を用いて、以下の方法でプラスチックフィルムを回収した。

固定刃と回転刃を有し、メッシュサイズ１２ｍｍのスクリーンを装着した乾式粉砕機に、実施例１の層構成の積層体（幅３００ｍｍのロールフィルム）を投入し、積層体を粉砕した。粉砕後の積層体の形状は図１に示す通りである。

５００ｍＬのセパラブルフラスコに１Ｎ－乳酸水溶液を３００ｍＬ入れ、オイルバスを用いて７５℃に加温した。７５℃まで昇温した後に、前記粉砕後の積層体１０ｇをフラスコに投入し、攪拌羽根を用いて２４０ｒｐｍで１時間攪拌した。なお、３０分間攪拌した時点でアルミニウム蒸着層が完全に溶解していることを確認した。

１時間攪拌後、オイルバスからフラスコを上げて放冷しながら、さらに１時間攪拌した。攪拌終了後、フラスコ底部に分離した樹脂硬化層が沈殿し、水溶液表面にはＯＰＰ／インキ層及びＣＰＰフィルムが浮いており、ＯＰＰ／インキ層及びＣＰＰフィルムを容易に回収することができた。

回収したフィルムを５００ｍＬの水中に投入し、室温、攪拌速度３００ｒｐｍで１時間攪拌して洗浄した。洗浄後のＯＰＰ／インキ層及びＣＰＰフィルムをＳＥＭ－ＥＤＸ分析したところ、アルミニウム蒸着層の残存は確認されなかった。

また、樹脂硬化層及びフィルムを回収した後の乳酸水溶液を用いて、前記と同様の方法で再度プラスチックフィルムの回収試験を行ったところ、前記

と同様の結果が得られた。このことから、乳酸水溶液は繰り返し利用が可能であるといえる。

産業上の利用可能性

[0159] 本発明の方法によれば、プラスチックフィルムを含む積層体から、効率よくプラスチックフィルムを回収することができる。本発明の方法は、プラスチックフィルムの回収条件の自由度が高く、特に、プラスチックフィルムを２枚以上有するラミネート形態の積層体からもプラスチックフィルムを容易に回収することができる。

請求の範囲

[請求項1] 積層体からプラスチックフィルムを回収する方法であって、

前記積層体は、

プラスチックフィルム（ｌ）、

ケイ素酸化物、アルミニウム、及びアルミニウム酸化物からなる群から選ばれる少なくとも１種の無機層（ｌｌ）、及び

樹脂硬化層（ｌｌｌ）、

を含み、

前記樹脂硬化層（ｌｌｌ）は、エポキシ樹脂と、アミン系硬化剤を含むエポキシ樹脂硬化剤とを含有するエポキシ樹脂組成物の硬化物であり、

前記方法は、前記積層体を酸水溶液又はアルカリ水溶液に接触させる工程を有する、方法。

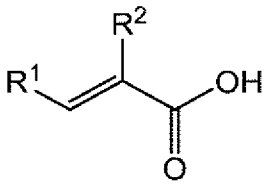
[請求項2] 前記アミン系硬化剤が下記アミン系硬化剤（ｉ）を含む、請求項１に記載の方法。

（ｉ）下記の（Ａ）成分と（Ｂ）成分との反応生成物：

（Ａ）メタキシリレンジアミン及びパラキシリレンジアミンからなる群から選ばれる少なくとも１種

（Ｂ）下記一般式（１）で表される不飽和カルボン酸及びその誘導体からなる群から選ばれる少なくとも１種

[化1]



(I)

（式（１）中、Ｒ[1]、Ｒ[2]はそれぞれ独立に、水素原子、炭素数１～８のアルキル基、炭素数６～１２のアリール基、又は炭素数７～１３のアラルキル基を表す。）

[請求項3] 前記無機層（ｌｌ）が無機蒸着層である、請求項１又は２に記載の

方法。

[請求項4] 前記無機層（ＩＩ）がアルミニウム蒸着層である、請求項１～３のいずれか１項に記載の方法。

[請求項5] 前記積層体がプラスチックフィルム（Ｉ）を２以上含む、請求項１～４のいずれか１項に記載の方法。

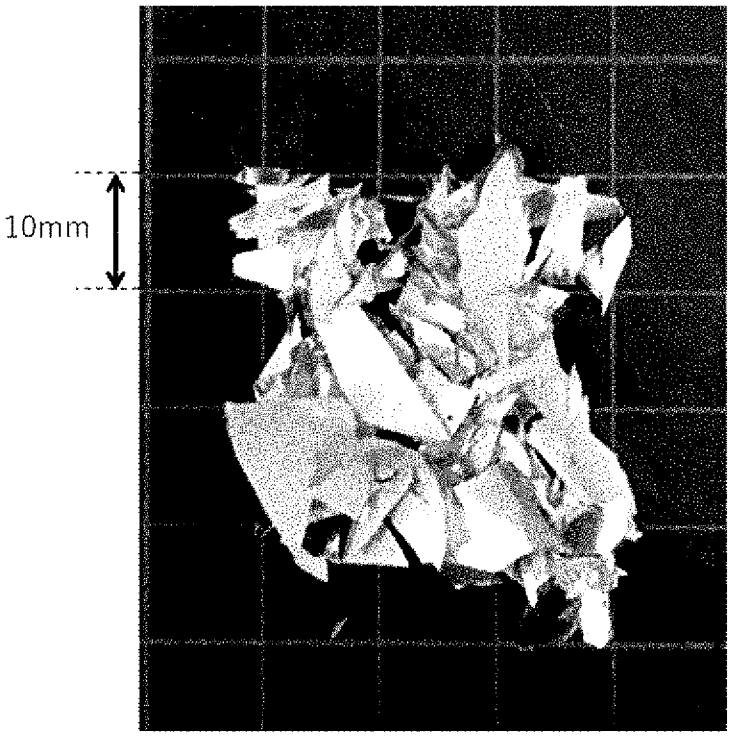
[請求項6] 前記エポキシ樹脂組成物において、前記エポキシ樹脂中のエポキシ基の数に対する前記エポキシ樹脂硬化剤中の活性水素数の比（エポキシ樹脂硬化剤中の活性水素数／エポキシ樹脂中のエポキシ基の数）が０．２～８．０の範囲である、請求項１～５のいずれか１項に記載の方法。

[請求項7] 前記樹脂硬化層（ＩＩＩ）の厚さが０．０５～２０μｍである、請求項１～６のいずれか１項に記載の方法。

[請求項8] 前記積層体がさらにインキ層を含む、請求項１～７のいずれか１項に記載の方法。

[請求項9] 前記積層体を酸水溶液に浸漬させる工程を有する、請求項１～８のいずれか１項に記載の方法。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2023/012308

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B29B 17/02(2006.01)i
FI: B29B17/02 ZAB

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)

B29B17/02

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.
Y	JP 2014-19003 A (FUJIMORI KOGYO CO., LTD.) 03 February 2014 (2014-02-03) claims, paragraphs [0023]-[0028], [0031], [0036]-[0039], fig. 1, 2	1-8
A		9
Y	WO 2018/105282 A1 (MITSUBISHI GAS CHEMICAL COMPANY, INC.) 14 June 2018 (2018-06-14) claims, paragraphs [0002], [0006], [0007], [0014]-[0042]	1-8
A		9
Y	WO 2013/161480 A1 (MITSUBISHI GAS CHEMICAL COMPANY, INC.) 31 October 2013 (2013-10-31) claims, paragraphs [0025]-[0052], [0066]-[0077], [0112]-[0129]	1-8
A		9
Y	JP 2009-101684 A (MITSUBISHI GAS CHEMICAL CO., INC.) 14 May 2009 (2009-05-14) claims, paragraphs [0013]-[0030], [0043], [0044]	1-8
A		9

☑ 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
23 May 2023	**06 June 2023**
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/JP2023/012308

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 57-20320 A (YAMADA, Suguru) 02 February 1982 (1982-02-02) entire text	1-9

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2023/012308

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2014-19003 A	03 February 2014	(Family: none)	
WO 2018/105282 A1	14 June 2018	US 2020/0071515 A1 claims, paragraphs [0002], [0007]-[0014], [0043]-[0113] EP 3552821 A1 CN 110035893 A KR 10-2019-0094157 A TW 201825589 A	
WO 2013/161480 A1	31 October 2013	US 2015/0082747 A1 claims, paragraphs [0036]-[0071], [0085]-[0096], [0132]-[0149] EP 2842982 A1 KR 10-2015-0015450 A CN 104487476 A BR 112014026668 A2 IN 8701DEN2014 A TW 201402637 A AR 91806 A1 CL 2014002849 A1	
JP 2009-101684 A	14 May 2009	(Family: none)	
JP 57-20320 A	02 February 1982	(Family: none)	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2023/012308

A.　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

B29B 17/02(2006.01)i
FI: B29B17/02 ZAB

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））

B29B17/02

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
Y	JP 2014-19003 A (藤森工業株式会社) 03.02.2014 (2014-02-03) 特許請求の範囲，［００２３］－［００２８］，［００３１］，［００３６］－［００３９］，図１－２	1-8
A		9
Y	WO 2018/105282 A1 (三菱瓦斯化学株式会社) 14.06.2018 (2018-06-14) 請求の範囲，［０００２］，［０００６］－［０００７］，［００１４］－［００４２］	1-8
A		9
Y	WO 2013/161480 A1 (三菱瓦斯化学株式会社) 31.10.2013 (2013-10-31) 請求の範囲，［００２５］－［００５２］，［００６６］－［００７７］，［０１１２］－［０１２９］	1-8
A		9
Y	JP 2009-101684 A (三菱瓦斯化学株式会社) 14.05.2009 (2009-05-14) 特許請求の範囲，［００１３］－［００３０］，［００４３］－［００４４］	1-8
A		9

☑ 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
23.05.2023	06.06.2023

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）
上坊寺　宏枝 4V 9834

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

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
A	JP 57-20320 A (山田卓) 02.02.1982 (1982-02-02) 文献全体	1-9

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/JP2023/012308

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2014-19003 A	03.02.2014	（ファミリーなし）	
WO 2018/105282 A1	14.06.2018	US 2020/0071515 A1 特許請求の範囲，［０００２］，［０００７］－［００１４］，［００４３］－［０１１３］ EP 3552821 A1 CN 110035893 A KR 10-2019-0094157 A TW 201825589 A	
WO 2013/161480 A1	31.10.2013	US 2015/0082747 A1 特許請求の範囲，［００３６］－［００７１］，［００８５］－［００９６］，［０１３２］－［０１４９］ EP 2842982 A1 KR 10-2015-0015450 A CN 104487476 A BR 112014026668 A2 IN 8701DEN2014 A TW 201402637 A AR 91806 A1 CL 2014002849 A1	
JP 2009-101684 A	14.05.2009	（ファミリーなし）	
JP 57-20320 A	02.02.1982	（ファミリーなし）	