(19)日本国特許庁(JP)　(12)公開特許公報(A)　(11)特許出願公開番号
特開2004-262149
(P2004-262149A)
(43)公開日　平成16年9月24日(2004.9.24)

(51)Int.Cl.[7]	F I		テーマコード（参考）
B32B 27/30	B32B 27/30	ZABB	3E033
B65D 1/09	B65D 53/00	A	3E084
B65D 53/00	B65D 65/40	D	3E086
B65D 65/40	C08L 23/10		4F100
C08L 23/10	C08L 25/04		4J002

審査請求 未請求　請求項の数 7　ＯＬ　（全 14 頁）　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2003-56134(P2003-56134)
(22)出願日　平成15年3月3日(2003.3.3)

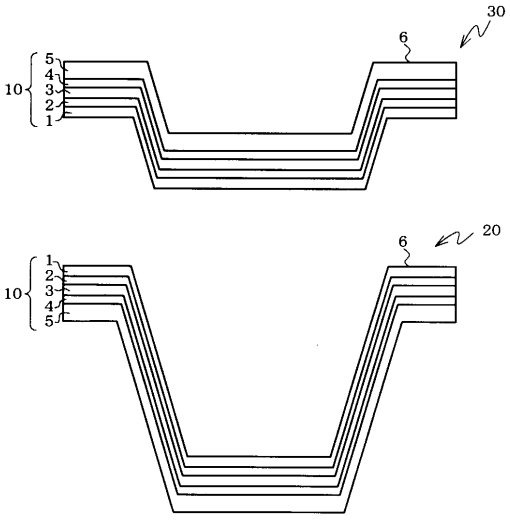
(71)出願人　500163366
出光ユニテック株式会社
東京都文京区小石川一丁目２番１号
(74)代理人　100086759
弁理士　渡辺　喜平
(72)発明者　板谷　均
三重県亀山市布気町字牛櫃１０５９番地１
(72)発明者　山田　豊和
三重県亀山市布気町字牛櫃１０５９番地１
(72)発明者　新井　庸介
千葉県袖ヶ浦市上泉１６６０番地

Ｆターム(参考)　3E033 AA08 BA15 BA16 BA22 BB08 CA20 DA07 DA08 DD01 FA04 GA03

最終頁に続く

(54)【発明の名称】多層構造体及び包装体

(57)【要約】
【課題】ヒートシール性、リサイクル性に優れたポリスチレン系多層構造体及び包装体を提供する。
【解決手段】ポリスチレン系樹脂からなる基材層３に、ポリスチレン系樹脂、ポリプロピレン系樹脂及び相溶化剤からなる接着層２を介して、ポリエチレン系樹脂からなる第一の表面層１が形成され、接着層４を介して、第一の表面層よりも高融点のポリプロピレン系樹脂からなる第二の表面層５が形成された多層構造体１０。基材層３を、ポリスチレン系樹脂及びポリオレフィン系樹脂から形成してもよい。第二の表面層５を、ポリスチレン系樹脂、ポリプロピレン系樹脂及び相溶化剤から形成してもよい。この多層構造体１０は、ヒートシール性、リサイクル性に優れ、食品や医薬品の包装材料や容器２０、蓋３０に適する。
【選択図】　図２



【特許請求の範囲】
【請求項１】
ポリスチレン系樹脂からなる基材層に、ポリスチレン系樹脂、ポリプロピレン系樹脂及び相溶化剤からなる接着層を介して、ポリエチレン系樹脂からなる第一の表面層、及びポリプロピレン系樹脂からなる第二の表面層が形成された多層構造体。
【請求項２】
ポリスチレン系樹脂からなる基材層に、ポリスチレン系樹脂、ポリプロピレン系樹脂及び相溶化剤からなる接着層を介して、ポリエチレン系樹脂からなる第一の表面層、並びにポリスチレン系樹脂、ポリプロピレン系樹脂及び相溶化剤からなる第二の表面層が形成された多層構造体。
【請求項３】
ポリスチレン系樹脂からなる基材層に、ポリスチレン系樹脂２５～７５重量％とポリプロピレン系樹脂７５～２５重量％、及び結合芳香族ビニル含有量が３０～８０重量％であり、共役ジエンに基づく二重結合を３５％以上水素によって飽和させた、芳香族ビニルと共役ジエンのブロック共重合体からなる相溶化剤を、前記ポリスチレン系樹脂と前記ポリプロピレン系樹脂合わせて１００重量部について１～２０重量部配合した接着層を介して、ポリエチレン系樹脂からなる第一の表面層、及びポリプロピレン系樹脂からなる第二の表面層が形成された請求項１に記載の多層構造体。
【請求項４】
ポリスチレン系樹脂からなる基材層に、ポリスチレン系樹脂２５～７５重量％とポリプロピレン系樹脂７５～２５重量％、及び結合芳香族ビニル含有量が３０～８０重量％であり、共役ジエンに基づく二重結合を３５％以上水素によって飽和させた、芳香族ビニルと共役ジエンのブロック共重合体からなる相溶化剤を、前記ポリスチレン系樹脂と前記ポリプロピレン系樹脂合わせて１００重量部について１～２０重量部配合した接着層を介して、ポリエチレン系樹脂からなる第一の表面層、並びにポリスチレン系樹脂２５～７５重量％とポリポリプロピレン系樹脂７５～２５重量％、及び結合芳香族ビニル含有量が３０～８０重量％であり、共役ジエンに基づく二重結合を３５％以上水素によって飽和させた、芳香族ビニルと共役ジエンのブロック共重合体からなる相溶化剤を、前記ポリスチレン系樹脂と前記ポリプロピレン系樹脂合わせて１００重量部について１～２０重量部配合した第二の表面層が形成された請求項２に記載の多層構造体。
【請求項５】
前記接着層及び／又は第二の表面層の相溶化剤が、芳香族ビニルと共役ジエンのブロック共重合体の水素添加物である請求項１～４のいずれか一項に記載の多層構造体。
【請求項６】
前記接着層及び／又は第二の表面層の相溶化剤のガラス転移温度が、－６０℃以下である請求項１～５のいずれか一項に記載の多層構造体。
【請求項７】
前記第一の表面層が、内容物の側にある請求項１～６のいずれか一項に記載の多層構造体から形成された容器、蓋、包装体。
【発明の詳細な説明】
【０００１】
【発明の属する技術分野】
本発明は、主としてポリスチレン系樹脂からなる多層構造体及びその用途に関する。特に、食品や医薬品の容器、蓋、包装材料等の包装体に適する、ポリスチレン系樹脂多層構造体及びそれを用いた容器、蓋、包装体に関する。
【０００２】
【従来の技術】
従来、樹脂製シートから成形された容器に対する蓋材として、容器内の残留酸素を減らすため、成形された落し蓋が用いられてきた。このような落し蓋を外部からヒートシールする場合、加熱側と融着側の樹脂の融点が同じだと、融着可能温度では、加熱側が溶融し外

観不良となる。また、加熱側の樹脂より低い融点の樹脂を融着側に用いてシール性と外観の両立を図ることが検討されているが、一般に融点の低い樹脂は、剛性が低く、成形蓋として剛性が不足し、取扱いにくい物であった。

【０００３】

一方、ポリスチレン系樹脂シートは、剛性、熱成形性に優れるが、耐油性、耐薬品性、耐熱性に劣り、ポリオレフィン系容器とヒートシールできない問題点があり、ポリオレフィン系容器とヒートシール可能で外観不良が無く、剛性、熱成形に優れた熱成形落し蓋用シートの開発が求められていた。

【０００４】

ポリスチレン系樹脂シートの熱成形性、剛性を活かし、ポリオレフィン系樹脂との接着性を向上させる手法として、ポリスチレンにポリオレフィンをブレンドあるいは相溶化する検討が行われてきた。しかし、単にブレンドあるいは相溶化しただけでは、加熱側と融着側の樹脂の融点に差が無いため、融着可能な温度でヒートシールすると、加熱部分が溶融し外観不良の問題は解決できない。

【０００５】

また、加熱側の樹脂と融着側の樹脂に融点差をつけるために、ポリオレフィンを共押出法で積層する方法も検討されてきた。ポリスチレンとポリオレフィンを接着するための技術として、エチレン－酢酸ビニル共重合体（ＥＶＡ）系接着樹脂、スチレン－ブタジエン系共重合体、スチレン－イソプレン系共重合体等の接着層を用いる方法がある。しかし、一般的に行われるシート製造時のリサイクルにより、異種材料の混入のため性能低下や、リサイクルによる熱履歴等で接着層の成分が劣化するため、ゲル化による外観不良等実用が困難であった（例えば、特許文献１参照）。

一方、ポリプロピレンフィルムを接着させる方法もあるが、直接ポリプロピレンとポリスチレンは熱接着できないため、接着性樹脂を介したり、接着剤を必要とした。しかし、接着性樹脂又は接着剤として用いられるエチレン－酢酸ビニル共重合体組成物は、十分な層間強度を得るためには、酢酸ビニル含有量が高い方が好ましいが、リサイクル時のゲル化等の問題があり、ゲル化を抑制するために酢酸ビニル含有量を低下させると、層間強度が不足する問題があった。エチレン系多元共重合体又はグラフト変性ポリオレフィン重合体を接着樹脂として用いる方法もあるが、高価であり汎用的でない。（例えば、特許文献２参照）。

【０００６】

【特許文献１】

特開昭５８－１９７０４９号公報

【特許文献２】

特開平０９－２９０４９２号公報

【０００７】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は上記課題に鑑み、ヒートシール性、リサイクル性に優れたポリスチレン系多層構造体及び包装体を提供することを目的とする。

本発明者らは鋭意研究の結果、接着性樹脂や接着剤の代わりに、ポリスチレン系樹脂、ポリプロピレン系樹脂及び相溶化剤からなる接着層を介して、ポリスチレン系樹脂層に、ポリエチレン系樹脂からなる第一の表面層と、ポリプロピレン系樹脂からなる第二の表面層とを形成することにより、優れた特性の多層構造体が得られることを見出し、本発明を完成させた。

【０００８】

【課題を解決するための手段】

本発明の第一の態様によれば、ポリスチレン系樹脂からなる基材層に、ポリスチレン系樹脂、ポリプロピレン系樹脂及び相溶化剤からなる接着層を介して、ポリエチレン系樹脂からなる第一の表面層、及びポリプロピレン系樹脂からなる第二の表面層が形成された多層構造体が提供される。

【０００９】
本発明の第二の態様によれば、ポリスチレン系樹脂からなる基材層に、ポリスチレン系樹脂、ポリプロピレン系樹脂及び相溶化剤からなる接着層を介して、ポリエチレン系樹脂からなる第一の表面層、並びにポリスチレン系樹脂、ポリプロピレン系樹脂及び相溶化剤からなる第二の表面層が形成された多層構造体が提供される。
【００１０】
本発明の第三の態様によれば、第一の表面層が、内容物の側にある上記の多層構造体から形成された容器、蓋、包装体が提供される。
【００１１】
【発明の実施の態様】
以下、本発明を詳細に説明する。
本発明の多層構造体は、基材層、接着層並びに第一及び第二の表面層から形成されたものである。
基材層に用いられるポリスチレン系樹脂としては、例えば、スチレン、メチルスチレン、エチルスチレン、イソプロピルスチレン、ジメチルスチレン、パラメチルスチレン、クロロスチレン、ブロモスチレン、ビニルキシレン等の単独重合体又は共重合体、スチレン－無水マレイン酸共重合体、スチレン－アクリル酸共重合体、スチレン－アクリル酸エステル共重合体、スチレン－メタクリル酸共重合体、スチレン－アクリルニトリル共重合体、アクリルニトリル－ブタジエン－スチレン共重合体等が挙げられる。また、上記のスチレン系樹脂に、ブタジエンゴム、スチレンブタジエンゴム、エチレン－プロピレンゴム等のゴムを混合又はグラフト重合した耐衝撃性ポリスチレンを使用することができる。ポリスチレン、ゴム変性した耐衝撃性ポリスチレンが好ましく、特にゴム変性した耐衝撃性ポリスチレンがより好ましい。
また、スチレン系樹脂のメルトフローレート（ＭＦＲ：ＪＩＳ　Ｋ　７２１０）は、０．５～２０ｇ／１０分が好ましく、１～１０ｇ／１０分がより好ましい。
【００１２】
さらに、基材層に、ポリスチレン系樹脂とポリオレフィン系樹脂の組成物を用いると、軽量化と耐熱性が向上し好ましい。その際、２つの樹脂の相溶性を改善するために相溶化剤を用いることができる。
組成物は、好ましくはポリスチレン系樹脂３０～１００重量％、ポリオレフィン系樹脂７０～０重量％からなる。より好ましくは、ポリスチレン系樹脂５０～９０重量％、ポリオレフィン系樹脂５０～１０重量％からなる。ポリスチレン系樹脂が３０重量％を下回ると、容器の剛性が低く、ポリスチレン系樹脂の特徴が得られない。
【００１３】
基材層に用いられるポリオレフィン系樹脂としては、α－オレフィン、例えば、エチレン、プロピレン、１－ブテン、イソブチレン、４－メチル－１－ペンテン等を単独重合又は共重合して得られる樹脂であれば特に限定されるものではない。共重合体は、ランダム共重合体、ブロック共重合体のいずれでもよい。α－オレフィンの２種又は３種以上の共重合体ゴム、又はα－オレフィンと他のモノマーとの共重合体等のオレフィン系熱可塑性エラストマーを含有してもよい。これら共重合体ゴムとしては、エチレン－プロピレン共重合体ゴム（ＥＰＲ）、エチレン－ブテン共重合体ゴム（ＥＢＲ）、エチレン－プロピレン－ジエン共重合体ゴム（ＥＰＤＭ）等が挙げられる。ポリオレフィン系樹脂としては、高密度ポリエチレンが、耐油性、耐薬品性が高く好ましい。また、ポリプロピレン系樹脂が、耐熱性が高く、耐油性、耐薬品性に加えて耐熱性も合わせて向上させられるのでより好ましい。
メルトフローレート（ＭＦＲ：ＪＩＳ　Ｋ　７２１０）は、０．１～６０ｇ／１０分が好ましく、０．３～２０ｇ／１０分がより好ましい。
【００１４】
第一の表面層に使用するポリエチレン系樹脂は、エチレンの単独重合体、又はエチレンとα－オレフィン、例えば、プロピレン、１－ブテン、イソブチレン、４－メチル－１－ペ

ンテン等を共重合して得られる樹脂であれば特に限定されるものではない。共重合体は、ランダム共重合体、ブロック共重合体のいずれでもよい。
第一の表面層のポリエチレン系樹脂としては、密度９００ｋｇ／ｍ^{3}以上のものが好ましく、さらに好ましくは、密度９２０ｋｇ／ｍ^{3}以上のものが、耐薬品性が高く、内容物の保護の観点から優れている。
メルトフローレート（ＭＦＲ：ＪＩＳ　Ｋ　７２１０）は、０．１～６０ｇ／１０分が好ましく、０．３～２０ｇ／１０分がより好ましい。
【００１５】
第二の表面層に使用するポリプロピレン系樹脂は、プロピレンの単独重合体、又はプロピレンとα－オレフィン、例えば、エチレン、１－ブテン、イソブチレン、４－メチル－１－ペンテン等を共重合して得られる樹脂であれば特に限定されるものではない。共重合体は、ランダム共重合体、ブロック共重合体のいずれでもよい。また、第二の表面層に、ポリスチレン系樹脂、ポリプロピレン系樹脂及び相溶化剤からなる組成物を用いることもできる。ただし、第一の表面層に使用するポリエチレン系樹脂より融点の高い成分が必要である。融点の違いとしては、好ましくは１０℃以上、より好ましくは２０℃以上である。
第二の表面層としては、ポリプロピレン単独重合体（ホモＰＰ）が、ポリプロピレン系樹脂の中でも融点が高く耐熱性に優れている。
メルトフローレート（ＭＦＲ：ＪＩＳ　Ｋ　７２１０）は、０．１～６０ｇ／１０分が好ましく、０．３～２０ｇ／１０分がより好ましい。
本発明では、第一の表面層と第二の表面層に融点の異なる樹脂を用いることで、ヒートシール時の外観不良を防止することができる。
【００１６】
基材層と表面層に介在する接着層は、ポリスチレン系樹脂、ポリプロピレン系樹脂及び相溶化剤からなる。
接着層に使用するポリスチレン系樹脂は、基材層及び／又は第二の表面層で使用するポリスチレン系樹脂と同様である。接着層のポリスチレン系樹脂は、基材層及び／又は第二の表面層のポリスチレン系樹脂と同じでも異なってもよい。
ポリプロピレン系樹脂は、第二の表面層と同種のものが好ましく、さらに好ましくは同一のものがよい。
本発明では、接着層にポリプロピレン系樹脂を用いることで、第一と第二の両方の表面層を優れた界面強度で積層することが可能となる。
【００１７】
接着層の配合量は、ポリスチレン系樹脂２５～７５重量％、好ましくは５０～７０重量％、ポリプロピレン系樹脂は、７５～２５重量％、好ましくは５０～３０重量％である。相溶化剤は、ポリスチレン系樹脂とポリプロピレン系樹脂合わせて１００重量部について１～２０重量部である。好ましくは２～１０重量部である。ポリスチレン系樹脂が２５重量％を下回ると、基材層との層間強度が不足し、また、ポリスチレン系樹脂が７５重量％を上回ると、表面層との層間強度が不足する。
【００１８】
ポリスチレン系樹脂とポリプロピレン系樹脂の相溶性を改善するために、接着層に相溶化剤を添加する。相溶化剤としては、芳香族ビニルと共役ジエン、即ち、ブタジエン、イソプレンとのブロック共重合体が挙げられる。ブロック共重合体とは、結合芳香族ビニル含有量が３０～８０重量％であり、ゴム弾性を示すものである。例えば、スチレン－ブタジエン－スチレン共重合体（ＳＢＳ）、スチレン－イソプレン－スチレン共重合体（ＳＩＳ）等がある。中でも、ＳＢＳの水添物であるスチレン－エチレン－ブチレン－スチレン共重合体（ＳＥＢＳ）やＳＢＳの部分水添物であるスチレン－ブタジエン－ブチレン－スチレン共重合体（ＳＢＢＳ）が、構造上側鎖に二重結合を持たないので、熱履歴を受けた場合に架橋しにくいのでよい。
本発明では、接着層に用いる相溶化剤として、特に、ＳＢＳの部分水添物であるＳＢＢＳを用いることで、安価であり、従来のＥＶＡ系接着剤で発生するリサイクル時のゲル化の

発生を抑制し、従来のＳＩＳ、ＳＢＳ系相溶化剤を使用した場合より、優れた界面強度が得られる。

【００１９】

相溶化剤は、リサイクル時に繰り返し熱履歴を受けるので、水素添加されているものが、ゲル化防止のため好ましい。

かかる相溶化剤の例として、部分水添ブロック共重合体が挙げられる。部分水添ブロック共重合体は、少なくとも１個の芳香族ビニルを主体とする重合体ブロックＸと、少なくとも１個の共役ジエンを主体とする重合体ブロックＹを有する。

【００２０】

芳香族ビニルを主体とする重合体ブロックＸは、芳香族ビニルと共役ジエンとの重量比が１００／０～６０／４０、好ましくは１００／０～８０／２０の組成範囲からなる重合体ブロックである。芳香族ビニルと共役ジエンが共重合した場合、このブロックにおける共役ジエンの分布は、ランダム、テーパー（分子鎖に沿ってモノマー成分が増加又は減少するもの）、一部ブロック状又はこれらの任意の組合せのいずれであってもよい。

ここで供する芳香族ビニルとしては、例えば、スチレン、α－メチルスチレン、ｐ－メチルスチレン、ｐ－ターシャリブチルスチレン等のアルキルスチレン、パラメトキシスチレン、ビニルナフタレン、１、１－ジフェニルエチレン、ジビニルベンゼン等のうちから１種又は２種以上が選ばれ、中でもスチレンが好ましい。

【００２１】

また、共役ジエンを主体とする重合体ブロックＹは、共役ジエンと芳香族ビニルとの重量比が１００／０～６０／４０、好ましくは１００／０～８０／２０の組成範囲からなる重合体ブロックである。共役ジエンと芳香族ビニルが共重合した場合、このブロックにおける芳香族ビニルの分布は、ランダム、テーパー（分子鎖に沿ってモノマー成分が増加又は減少するもの）、一部ブロック状又はこれらの任意の組合せのいずれであってもよい。

ここで供する共役ジエンとしては、例えば、ブタジエン、イソプレン、ピペリレン、メチルペンタジエン、フェニルブタジエン、３、４－ジメチル－１、３－ヘキサジエン、４、５－ジエチル－１、３－オクタジエン等のうちから１種又は２種以上が選ばれ、中でもブタジエン及び／又はイソプレンが好ましい。

【００２２】

上記ブロック共重合体の分子構造は、直鎖状、分岐状、放射状又はこれらの組合せ等いずれでもよいが、直鎖状が好ましい。その中でもＸが２個以上の構造が好ましく、例えば、Ｘ－Ｙ－Ｘ、Ｘ－Ｙ－Ｘ－Ｙ、Ｙ－Ｘ－Ｙ－Ｘ－Ｙ構造が好ましく、Ｘ－Ｙ－Ｘ構造が特に好ましい。

ブロックＸ又はブロックＹのそれぞれは、同一の構造であってもよいし、モノマー成分含有量、それらの分子鎖における分布、ブロックの分子量、ミクロ構造等の各構造が異なるものであってもよい。例えば、両末端のＸが分子量の異なるＸ－Ｙ－Ｘ’であってもよい。

【００２３】

部分水添ブロック共重合体の芳香族ビニル含有量は、３０～８０重量％、好ましくは４０～８０重量％、より好ましくは４５～７５重量％である。芳香族ビニル含有量が３０重量％未満では、ブロック共重合体とスチレン系樹脂との親和性が不足して、スチレン系樹脂相とプロピレン系樹脂相の界面に存在するブロック共重合体が不十分となり、相溶化効果に欠ける。一方、８０重量％を越えると、スチレン系樹脂との親和性が過剰となり、ブロック共重合体は、スチレン系樹脂相に取り込まれてしまうため、やはり相溶化剤効果が不十分となる。

【００２４】

部分水添ブロック共重合体の、水素添加前の共役ジエンブロック中のビニル結合量は、２０～９０重量％、好ましくは３０～８０重量％、より好ましくは４０～７５重量％である。ここに、水素添加前の共役ジエンブロック中のビニル結合量とは、ブロック共重合体中に１、２－結合、３、４－結合及び１、４－結合の結合様式で組み込まれている共役ジエ

ンのうち、１、２－結合及び３、４－結合で組み込まれているものの割合とする。水素添加前の共役ジエンブロック中のビニル結合量が２０重量％未満では、ブロック共重合体とプロピレン系樹脂との親和性が不足し、相溶化効果が不十分となる。一方、９０重量％を越えると、プロピレン系樹脂との親和性が過剰となり、ブロック共重合体は、プロピレン系樹脂相に取り込まれてしまうため、やはり相溶化効果が不十分となる。

【００２５】

本発明に使用される部分水添ブロック共重合体は、上記ブロック共重合体を水素添加することによって、該ブロック共重合体中の共役ジエンに基づく二重結合の３５％以上を飽和したものである。水素添加率が３５％未満では、ブロック共重合体とプロピレン系樹脂との親和性が低下するために、ブロック共重合体は、スチレン系樹脂相に取り込まれ、相溶化効果が不十分となる。また、本発明に使用される部分水添ブロック共重合体中の残存ビニル結合量は、好ましくは１０％未満、より好ましくは５％以下、さらに好ましくは３％以下である。ここで、残存ビニル結合量とは、はじめの共役ジエン１００に対し、水素添加されずに残ったビニル構造の量である。ブロック共重合体中の残存ビニル結合量が１０％以上であると、相溶化効果が不十分となる。

【００２６】

部分水添ブロック共重合体の芳香族ビニルを主体とする重合体ブロックＸの重量平均分子量は、５０００～５００００、共役ジエンを主体とする重合体ブロックＹは、５０００～７００００が好ましい。重合体ブロックＸの分子量が５０００未満であると、スチレン系樹脂との親和性が低下し、重合体ブロックＹの分子量が５０００未満であると、プロピレン系樹脂との親和性が低下して相溶化効果が劣る。また、重合体ブロックＸの分子量が５００００を超えるか、重合体ブロックＹの分子量が７００００を超えると、ブロック共重合体としての分子量が過大となるために溶融粘度が上昇し、スチレン系樹脂とプロピレン系樹脂からなる樹脂組成物中での分散が不十分となり、相溶化効果が劣る。

【００２７】

部分水添ブロック共重合体のメルトフローレート（ＭＦＲ：ＪＩＳ　Ｋ　７２１０）は、好ましくは０．１～５０ｇ／１０分、より好ましくは０．５～３０ｇ／１０分、さらに好ましくは１～２０ｇ／１０分である。メルトフローレートが０．１ｇ／１０分未満であると、溶融粘度が高すぎて、充分な相溶化効果が得られず、また５０ｇ／１０分を超えると、スチレン系樹脂とプロピレン系樹脂の界面の強度が低下する。

【００２８】

尚、部分水添スチレン－ブタジエン－ブチレン－スチレンブロック共重合体を用いると、安価に製造できる効果もある。

【００２９】

相溶化剤のガラス転移温度は低い方が、低温衝撃性が良好で好ましい。ガラス転移温度は－６０℃以下が好ましく、－７０℃以下がさらに好ましい。

【００３０】

多層構造体の厚みは、特に限定されないが、０．１～２ｍｍ、好ましくは０．２～１．５ｍｍである。表面層が０．００５～０．１ｍｍ、好ましくは０．０１～０．１、介在する接着層が０．００５ｍｍ以上、好ましくは０．０１ｍｍ以上、残りが基材層である。

全体の厚みが０．１ｍｍを下回ると、容器成形時に膜切れし、実用上問題である。また、２ｍｍを上回ると、シートの巻取りが困難で、巻物に対応した容器成形機に使用できず現実的でない。

表面層の厚みが０．００５ｍｍを下回ると、容器成形時に膜切れし、実用上問題である。また、０．１ｍｍを上回ると、熱成形サイクルの著しい低下や剛性の低下を招く。

接着層の厚みが０．００５ｍｍを下回ると、容器とした場合膜切れし、表面層と基材層の接着強度が低下し、内容物の保護ができない。

蓋を熱成形により形成する場合も同様に、全体の厚みが０．１ｍｍを下回ると、蓋の成形時に膜切れし、実用上問題である。また、２ｍｍを上回ると、シートの巻取りが困難で、巻物に対応した熱成形機に使用できず現実的でない。

表面層の厚みが０．００５ｍｍを下回ると、蓋の成形時に膜切れし、実用上問題である。また、０．１ｍｍを上回ると、熱成形サイクルの著しい低下や剛性の低下を招く。
接着層の厚みが０．００５ｍｍを下回ると、蓋の成形において膜切れし、表面層と基材層の接着強度が低下し、内容物の保護ができない。

【００３１】

尚、基材層、接着層及び表面層は、その特性を損なわない範囲において、滑剤、軟化剤、可塑剤、酸化防止剤、帯電防止剤、炭酸カルシウム、タルク、燐酸マグネシウム、水酸化アルミニウム、硫酸バリウム、ケイ酸カルシウム、酸化チタン、離型剤等の他の成分を含むことができる。また、着色も可能である。

【００３２】

また、本発明の多層構造体は、上記の基材層の一部として、さらに他の層を積層することもできる。例えば、酸素ガスバリアー性の向上や、容器とした場合の変形を少なくする目的で、エチレン－ビニルアルコール共重合体、ポリ塩化ビニリデン、ポリアミド、ポリエチレンテレフタレート等の樹脂層を積層できる。これらの層は、無機充填剤を含有する樹脂層であってもよい。

【００３３】

本発明の多層構造体は、共押出又はラミネート加工等により製造することができる。共押出成形法としては、例えば、ポリスチレン基材層、表面層及びそれらの間に介在する接着層をそれぞれ異なった押出機を用いて溶融押出し、これをフィードブロックにて積層し、フラットダイにて製膜する方法や、多層ダイを用いてダイ内にて積層し、製膜する方法が挙げられる。ラミネート加工としては、エキストルージョンラミネートを用いることができる。通常、ポリプロピレン系樹脂フィルムと溶融状態のポリスチレン系樹脂の接着層、基材層、接着層及び表面層からなる共押出した四層構造体をラミネートする共押出ラミネート法が好適に用いられる。
成形中に発生するスクラップは、特性を損なわない範囲で基材層に回収してもよく、基材層の一部として新たな層を設けて回収してもよい。

【００３４】

本発明の多層構造体は、接着性樹脂や接着剤を用いなくても、接着層を介して、ポリスチレン系樹脂からなる基材層に表面層を積層することにより、充分な層間強度を有し、ポリスチレン系樹脂の熱成形性、剛性を活かしつつ、ポリオレフィン系樹脂の有する耐油性、耐薬品性、耐熱性を付与できる。
また、本発明の多層構造体は、第一の表面層と、それより融点の高い第二の表面層を有するので、ヒートシール時の外観に優れる。
従って、本発明の多層構造体は、ポリオレフィン系の容器や包装体とヒートシールが可能でありながら、ポリスチレン系樹脂の熱成形性、剛性を併せ持つ。
さらに、本発明の多層構造体は、接着性樹脂や接着剤を使用しないので、リサイクル時のゲル化を防止できる。

【００３５】

本発明の容器、蓋、包装体は、上記のシート状多層構造体から形成される。
本発明の容器、蓋、包装体は、上記のシート状多層構造体を加熱溶融し、所望の形状に賦型したものであり、通常の真空成形、圧空成形等で好適に得られる。また、前記樹脂を用いて、射出成形、射出ブロー成形、ブロー成形等によって成形して得ることもできる。

【００３６】

図１に、本発明の一実施形態である多層構造体の断面図を示す。
図１に示される多層構造体１０は、第一の表面層１、接着層２、基材層３、接着層４、第二の表面層５からなる。
図２に、本発明の一実施形態である容器及び蓋の断面図を示す。
図２が示す容器２０及び蓋３０は、図１の多層構造体１０から製造され、多層構造体１０の第一の表面層１が内容物の側にある。多層構造体１０は延出してフランジ部６を形成している。

尚、容器２０及び蓋３０のフランジ部６の形状は特に限定されるものではないが、通常、円、四角等である。また、容器形状はカップ状であってもトレー状であってもよい。
【００３７】
本発明の容器及び／又は蓋は、耐油性、耐薬品性、耐熱性に優れているため、食品又は医薬品の包装体として優れている。具体的には、弁当、豆腐、惣菜等の包装体として用いられる。
また、リサイクル時にゲル化しにくいので、リサイクル性に優れる。
【００３８】
【実施例】
以下、本発明の実施例を説明するが、本発明はこれらの実施例によって限定されるものではない。
尚、実施例及び比較例に示した物性の測定方法及び評価方法は以下の通りである。
（１）シール外観
多層構造体の第一の表面層同士を向かい合わせにし、第二の表面層の側からヒートシールした。条件は１６０℃、５秒間、圧力０．２５ＭＰａで行った。
ヒートシール後の第二の表面層を目視観察し、溶融や糸引き、表面のザラツキ等の外観不良がないものは○、あるものは×とした。
（２）層間強度
多層構造体の第一の表面層同士を向かい合わせにし、第二の表面層の側からヒートシールした。条件は１６０℃、５秒間、圧力０．２５ＭＰａで行った。
シール部分を１５ｍｍ幅に切断し、強度測定用サンプルとした。
引張速度２００ｍｍ／分で、９０度剥離での強度を測定した。
（３）リサイクル性（ゲル化）
評価用シートをホーライ製粉砕機にて粉砕し、単層コートハンガーダイを設置した（株）日本製鋼所製ラボテックスにて溶融押出し、ダイ出口温度２３０℃で０．５ｍｍ厚みの単層シートを得た。
単層シートを森田精機工業（株）製ＪＣ－２型粉砕機にて粉砕し、再びラボテックスにてシートを作製した。
上記の方法でラボテックスでのシート成形を５回繰り返した後の、０．５ｍｍ厚みのシートの外観を目視検査した。
外観に問題が無い：　○
ゲル及び／又は焼けが発生：　×
【００３９】
実施例１
第一の表面層として、高密度ポリエチレン（ＨＤＰＥ）（出光石油化学（株）製：出光ＨＤ：１１０Ｙ：密度９６６ｋｇ／ｍ^3：ＭＦＲ＝１３ｇ／１０分：融点（Ｔｍ）＝１３１．７℃）（ＰＥ１）１００重量％、介在する接着層として、耐衝撃性ポリスチレン（ＨＩＰＳ）（出光石油化学（株）製：出光ＰＳ：ＥＴ６３：ＭＦＲ＝２．５ｇ／１０分）（ＰＳ１）５５重量％、ポリプロピレン（出光石油化学（株）製：出光ＰＰ：Ｆ－７０４ＮＴ：Ｔｍ＝１６４℃）（ＰＰ１）３５重量％、相溶化剤（旭化成（株）製：タフテックＰ２０００：スチレン－ブタジエン－ブチレン－スチレン共重合体（ＳＢＢＳ）：ガラス転移温度（Ｔｇ）＝－７７℃）（相溶化剤１）１０重量％からなる組成物、基材層として、耐衝撃性ポリスチレン（ＨＩＰＳ）（出光石油化学（株）製：出光ＰＳ：ＨＴ５２）（ＰＳ２）８０重量％、汎用ポリスチレン（ＧＰＰＳ）（出光石油化学（株）製：出光ＰＳ：ＨＨ３０）（ＰＳ３）２０重量％からなる組成物、第二の表面層として、耐衝撃性ポリスチレン（出光ＰＳ：ＥＴ６３）（ＰＳ１）５５重量％、ポリプロピレン（出光ＰＰ：Ｆ－７０４ＮＴ）（ＰＰ１）３５重量％、相溶化剤（タフテックＰ２０００）（相溶化剤１）１０重量％からなる組成物を用い、５層のシートを多層共押出法（ダイ出口温度２３０℃）で成形した。
シートの幅が８００ｍｍ、第一の表面層の厚さが２５μｍ、接着層の厚さが２５μｍ、第

二の表面層の厚さが２５μｍ、基材層の厚さが４００μｍである、全体の厚さが５００μｍの評価用シートを得た。
得られたシートを（株）浅野研究所製真空圧空成形機（ＦＫ－０４３１－１０）にて、第一の表面層が内容物の側に配するように熱成形して、評価用容器（縦１４０ｍｍ×横１４０ｍｍ×高さ６０ｍｍの角型容器）を得た。
シール外観、層間強度、リサイクル性を評価した。評価結果を表１に示す。
【００４０】
実施例２
第二の表面層として、ポリプロピレン（出光ＰＰ：Ｆ－７０４ＮＴ）（ＰＰ１）１００重量％を用いた他は、実施例１の方法でシート及び容器を得た。評価結果を表１に示す。
【００４１】
実施例３
接着層及び第二の表面層の相溶化剤として、旭化成（株）製：タフテックＨ１０４３（スチレン－エチレン－ブチレン－スチレン共重合体（ＳＢＢＳ）：Ｔｇ＝－６４℃）（相溶化剤２）を用いた他は、実施例１の方法でシート及び容器を得た。評価結果を表１に示す。
【００４２】
実施例４
第二の表面層として、２５μｍの厚みの無延伸ポリプロピレンフィルム（ＣＰＰフィルム）（出光ユニテック（株）製：ユニラックスＲＳ－５１０Ｃ：融点１６３．７℃）（ＰＰ２）のラミネート面を接着層側に配して、実施例１に記載の方法で、第一の表面層、接着層、基材層、接着層のみを多層共押出法で押出した４層構造体を、エキストルージョンラミネート法にて積層して、５層の多層構造体を得た。シートの幅が８００ｍｍ、第一の表面層の厚さが２５μｍ、接着層の厚さが２５μｍ、第二の表面層の厚さが２５μｍ、基材層の厚さが４００μｍである、全体の厚さが５００μｍの評価用シートを得た。評価用容器については、実施例１の方法によった。評価結果を表１に示す。
【００４３】
比較例１
第一の表面層として、高密度ポリエチレン（出光ＨＤ：１１０Ｙ）（ＰＥ１）１００重量％、介在する接着層として、耐衝撃性ポリスチレン（出光ＰＳ：ＥＴ６３）（ＰＳ１）７８重量％、高密度ポリエチレン（出光ＨＤ：１１０Ｙ）（ＰＥ１）１２重量％、相溶化剤（旭化成（株）製：タフプレンＴＰ１２６：スチレン－ブタジエン－スチレン共重合体（ＳＢＳ）：Ｔｇ＝－７０℃）（相溶化剤３）１０重量％からなる組成物、基材層として、耐衝撃性ポリスチレン（出光ＰＳ：ＨＴ５２）（ＰＳ２）８０重量％、汎用ポリスチレン（出光ＰＳ：ＨＨ３０）（ＰＳ３）２０重量％からなる組成物、第二の表面層として、耐衝撃性ポリスチレン（出光ＰＳ：ＥＴ６３）（ＰＳ１）７８重量％、高密度ポリエチレン（出光ＨＤ：１１０Ｙ）（ＰＥ１）１２重量％、相溶化剤（タフプレンＴＰ１２６）（相溶化剤３）１０重量％からなる組成物を用い、５層のシートを多層共押出法（ダイ出口温度２３０℃）で成形した。
シートの幅が８００ｍｍ、第一の表面層の厚さが２５μｍ、接着層の厚さが２５μｍ、第二の表面層の厚さが２５μｍ、基材層の厚さが４００μｍである、全体の厚さが５００μｍの評価用シートを得た。評価用容器については、実施例１の方法によった。評価結果を表１に示す。
【００４４】
比較例２
第二の表面層として、ポリプロピレン（出光ＰＰ：Ｆ－７０４ＮＴ）（ＰＰ１）を用いた他は、実施例１の方法でシート及び容器を得た。評価結果を表１に示す。
【００４５】
比較例３
第二の表面層として、２５μｍの厚みの無延伸ポリプロピレンフィルム（ユニラックスＲ

Ｓ－５１０Ｃ）（ＰＰ２）のラミネート面を接着層側に配して、比較例１に記載の方法で、第一の表面層、接着層、基材層、接着層のみを多層共押出法で押出した４層構造体を、エキストルージョンラミネート法にて積層して、５層の多層構造体を得た。シートの幅が８００ｍｍ、第一の表面層の厚さが２５μｍ、接着層の厚さが２５μｍ、第二の表面層の厚さが２５μｍ、基材層の厚さが４００μｍである、全体の厚さが５００μｍの評価用シートを得た。評価用容器については、実施例１の方法によった。評価結果を表１に示す。

【００４６】

比較例４

第二の表面層として、２５μｍの厚みの無延伸ポリプロピレンフィルム（ユニラックスＲＳ－５１０Ｃ）（ＰＰ２）のラミネート面を接着層側に配して、比較例１に記載の方法で、第一の表面層、接着層、基材層、接着層のみを多層共押出法で押出した４層構造体を、ドライラミネート法にて積層して、５層の多層構造体を得た。シートの幅が８００ｍｍ、第一の表面層の厚さが２５μｍ、接着層の厚さが２５μｍ、第二の表面層の厚さが２５μｍ、基材層の厚さが４００μｍである、全体の厚さが５００μｍの評価用シートを得た。評価用容器については、実施例１の方法によった。評価結果を表１に示す。

【００４７】

【表１】

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
第一の表面層	成分（重量%）	PE1(100)	PE1(100)	PE1(100)	PE1(100)	PE1(100)	PE1(100)	PE1(100)	PE1(100)
	厚み(μm)	25	25	25	25	25	25	25	25
接着層	成分（重量%）	PS1(55)+PP1(35)+相溶化剤1(10)	PS1(55)+PP1(35)+相溶化剤1(10)	PS1(55)+PP1(35)+相溶化剤2(10)	PS1(55)+PP1(35)+相溶化剤1(10)	PS1(78)+PE1(12)+相溶化剤3(10)	PS1(78)+PE1(12)+相溶化剤3(10)	PS1(78)+PE1(12)+相溶化剤3(10)	PS1(78)+PE1(12)+相溶化剤3(10)
	厚み(μm)	25	25	25	25	25	25	25	25
基材層	成分（重量%）	PS2(80)+PS3(20)	PS2(80)+PS3(20)	PS2(80)+PS3(20)	PS2(80)+PS3(20)	PS2(80)+PS3(20)	PS2(80)+PS3(20)	PS2(80)+PS3(20)	PS2(80)+PS3(20)
	厚み(μm)	400	400	400	400	400	400	400	400
接着層	成分（重量%）	PS1(55)+PP1(35)+相溶化剤1(10)	PS1(55)+PP1(35)+相溶化剤1(10)	PS1(55)+PP1(35)+相溶化剤2(10)	PS1(55)+PP1(35)+相溶化剤1(10)	PS1(78)+PE1(12)+相溶化剤3(10)	PS1(78)+PE1(12)+相溶化剤3(10)	PS1(78)+PE1(12)+相溶化剤3(10)	PS1(78)+PE1(12)+相溶化剤3(10)
	厚み(μm)	25	25	25	25	25	25	25	25
第二の表面層	成分（重量%）	PS1(55)+PP1(35)+相溶化剤1(10)	PP1(100)	PS1(55)+PP1(35)+相溶化剤2(10)	PP2(100)サーマルラミ	PS1(78)+PE1(12)+相溶化剤3(10)	PP1(100)	PP2(100)サーマルラミ	PP2(100)ドライラミ
	厚み(μm)	25	25	25	25	25	25	25	25
表面層の融点差（℃）		32.3	32.3	32.3	32.0	0	32.3	32.0	32.0
シール外観		○	○	○	○	×	○	○	○
層間強度（kg／15mm）		○	○	○	○	○	×	×	○
リサイクル性		○	○	○	○	○	○	○	×

ＰＥ１：　出光石油化学（株）製：出光ＨＤ：１１０Ｙ
ＰＰ１：　出光石油化学（株）製：出光ＰＰ：Ｆ－７０４ＮＴ
ＰＰ２：　出光ユニテック（株）製：ユニラックスＲＳ－５１０Ｃ
ＰＳ１：　出光石油化学（株）製：出光ＰＳ：ＥＴ６３
ＰＳ２：　出光石油化学（株）製：出光ＰＳ：ＨＴ５２
ＰＳ３：　出光石油化学（株）製：出光ＰＳ：ＨＨ３０
相溶化剤１：　旭化成（株）製：タフテックＰ２０００
相溶化剤２：　旭化成（株）製：タフテックＨ１０４３
相溶化剤３：　旭化成（株）製：タフプレンＴＰ１２６

【００４８】

表１から、実施例のシートは層間強度が十分高く、ヒートシール性に優れ、外観不良も無く、しかも、リサイクル時にはゲル化しないことが分かった。

【００４９】

【発明の効果】

本発明によれば、ヒートシール性、リサイクル性に優れたポリスチレン系多層構造体及び包装体が得られる。

【図面の簡単な説明】

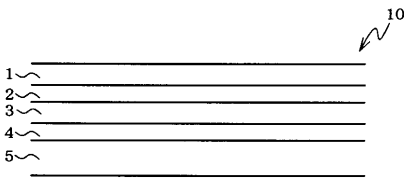
【図１】本発明の一実施形態である多層構造体を示す断面図である。

【図２】本発明の一実施形態である容器及び蓋を示す断面図である。

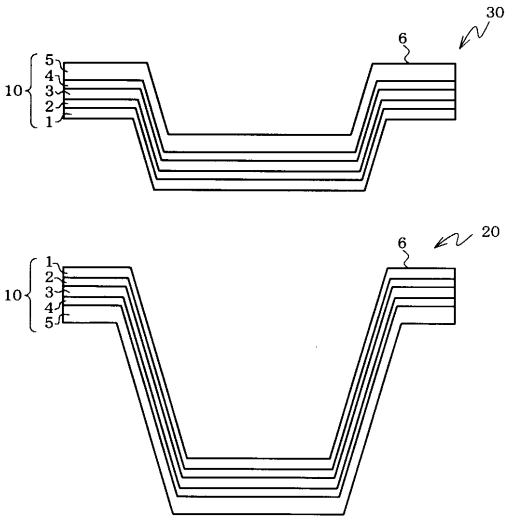
【符号の説明】

１　第一の表面層
２，４　接着層
３　基材層
５　第二の表面層
６　フランジ部
１０　多層構造体
２０　容器
３０　蓋

【図１】



【図２】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.[7]	F I	テーマコード（参考）
Ｃ０８Ｌ 25/04	Ｃ０８Ｌ 53/02	
Ｃ０８Ｌ 53/02	Ｂ６５Ｄ 1/00 Ｂ	

Ｆターム(参考) 3E084 AA02 AA12 AA37 BA01 BA09 CA01 CC08 FA09 FD13 GB08 HA01 HB01 HC08 HD01 KA12 LA01
3E086 AB01 AB02 AD24 AD30 BA15 BA40 BB51 BB77 BB90 CA01 CA28
4F100 AK04B AK07C AK07G AK11C AK11G AK12A AK12C AK12G AK28C AK28G AL02C AL02G AL06C AL06G BA03 BA07 BA10A BA10C BA15 CA30C CA30G GB15 GB16 GB18 JA05C JA05G JJ10 JL16 YY00C YY00G
4J002 BB03X BB05X BB12X BB15X BB17X BC03W BC04W BC06W BC07W BC08W BC11W BH01W BN14W BN15W BP013 BP02X GG01 GG02