

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6942530号  
(P6942530)

(45) 発行日 令和3年9月29日 (2021.9.29)

(24) 登録日 令和3年9月10日 (2021.9.10)

(51) Int.Cl.	F I
<b>B 3 2 B 27/32</b> (2006.01)	B 3 2 B 27/32 Z
<b>C O 8 F 210/14</b> (2006.01)	B 3 2 B 27/32 E
<b>G O 2 B 5/30</b> (2006.01)	C O 8 F 210/14
	G O 2 B 5/30

請求項の数 5 (全 18 頁)

(21) 出願番号	特願2017-120321 (P2017-120321)	(73) 特許権者	000005887
(22) 出願日	平成29年6月20日 (2017.6.20)		三井化学株式会社
(65) 公開番号	特開2019-1139 (P2019-1139A)		東京都港区東新橋一丁目5番2号
(43) 公開日	平成31年1月10日 (2019.1.10)	(74) 代理人	110001070
審査請求日	令和2年4月27日 (2020.4.27)		特許業務法人 S S I N P A T
		(72) 発明者	津金 靖仁
			千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化学株式会社内
		(72) 発明者	多田 貴則
			千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化学株式会社内
		(72) 発明者	田茂 克正
			千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化学株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 多層二軸延伸フィルムおよび転写フィルム

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

A層とB層とが積層されてなる多層二軸延伸フィルムであって、

A層が4-メチル-1-ペンテン系重合体(A1)と4-メチル-1-ペンテン共重合体(A2)とを含む樹脂組成物から構成され、

前記A層において4-メチル-1-ペンテン系重合体(A1)の含有量が、A層の全質量に対して5質量%以上50質量%以下であり、前記4-メチル-1-ペンテン共重合体(A2)の含有量がA層の全質量に対して50質量%以上95質量%以下であり、

かつ前記4-メチル-1-ペンテン系重合体(A1)が下記要件(A1-I)~(A1-II)を満たし、前記4-メチル-1-ペンテン共重合体(A2)が下記要件(A2-I)~(A2-II)を満たし、

B層が、ポリプロピレン(B1)を含む樹脂組成物から形成されている、  
多層二軸延伸フィルム。

(A1-I) 4-メチル-1-ペンテンに由来する構成単位を90モル%~100モル%含有する。

(A1-II) DSCで測定した融点(Tm)が200 ~ 250 の範囲にある。

(A2-I) 4-メチル-1-ペンテンから導かれる構成単位(P)の含有率が65モル%以上96モル%未満であり、炭素原子数2~20の - オレフィン(4-メチル-1-ペンテンを除く)から導かれる構成単位(BQ)の含有率が4モル%を超え35モル%以下である。

10

20

(A2-II) DSCで測定した融点(Tm)が観察されないか100 ~ 199 の範囲にある。

【請求項2】

前記4-メチル-1-ペンテン系重合体(A1)がさらに下記要件(A1-III)を満たす、請求項1に記載の多層二軸延伸フィルム。

(A1-III) 135 デカリン中で測定した極限粘度[ ]が0.5 ~ 5.0 dl / gである。

【請求項3】

前記4-メチル-1-ペンテン共重合体(A2)がさらに下記要件(A2-III)を満たす、請求項1または2に記載の多層二軸延伸フィルム。

(A2-III) 135 デカリン中で測定した極限粘度[ ]が0.5 ~ 4.0 dl / gである。

【請求項4】

層構成が、A層/B層/A層、またはA層/B層/C層(ここで、C層は、A層およびB層のいずれとも異なる層である)の三層構成であることを特徴とする請求項1~3のいずれかに記載の多層二軸延伸フィルム。

【請求項5】

多層二軸延伸フィルムが、転写フィルムである、請求項1~4のいずれかに記載の多層二軸延伸フィルム。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、離型性に優れた多層二軸延伸フィルムに関する。特に、離型層に4-メチル-1-ペンテン系重合体を含むことにより離型性に優れ、かつ二軸延伸時にデラミを発生し難い多層二軸延伸フィルムに関する。さらに詳しくは、剥離フィルム、剥離ライナー、セパレータフィルム、転写フィルム等に有用な多層二軸延伸フィルムに関する。

【背景技術】

【0002】

建材用や光学用の樹脂製品、金属製品、ガラス製品等は表面に表面保護フィルムを貼り付け、輸送、保管や加工による表面の傷や異物混入を防ぐのが一般的である。表面保護フィルムには、柔軟性、機械特性等の性質のほか、保護対象、保護目的、使用環境等に応じて種々の特性が求められる。このため様々な観点から表面保護フィルムの開発が進められている。例えば、ポリエチレン成分を主体とした表面保護フィルム(特許文献1)や、ポリプロピレン成分を主体とした4-メチル-1-ペンテンと1-デセンとのオリゴマーを含む樹脂組成物の表面保護フィルムが検討されている(特許文献2)。

【0003】

二軸延伸ポリプロピレンフィルムは、軽量性、熱的安定性及び機械特性に優れているので包装用、工業用材料フィルムとして広く用いられている。特に近年は非シリコン系の離型材料として、電子部品、電子基板の製造工程、繊維強化プラスチック等の熱硬化性材料の製造工程フィルムとして広く用いられているが、更なる改良が要望されていた。離型性の改良方法として、例えばポリプロピレンにポリメチルペンテン重合体を配合することで剥離力をより高めることができる(特許文献3、4)ことが提案されている。しかしながら、ポリメチルペンテンの含有量を増やすことで二軸延伸性が悪化したり、多層フィルムの場合はデラミ(層間剥離)することが知られており、更に、-オレフィン共重合体を相容化材的に配合するなどの改良が提案されている(特許文献5)。

【0004】

本発明者らは、離型性に優れ、成形可能温度が比較的低いことを特徴としたポリ4メチル-1-ペンテン系共重合体を含んでなる離型フィルムを既に開示しているが、成形可能温度を下げると、実用使用では問題ないもののフィルムの透明性が悪くなる傾向があることを確認している(特許文献6)。

10

20

30

40

50

以上のように、近年では特に、二軸延伸などの加工性に優れ、外観に優れ、かつ離型性が良いフィルムの開発が求められていた。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献1】特開2006-116769号公報

【特許文献2】特開2010-275340号公報

【特許文献3】特開2008-189795号公報

【特許文献4】特開平7-070384号公報

【特許文献5】特開2015-120331号公報

【特許文献6】特開2014-125496号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明者らは、離型層に4-メチル-1-ペンテン系重合体を含む上記公知の多層フィルムを転写フィルムとして用いる場合に、得られる転写物の光沢を向上させるために、離型層の表面平滑性を向上させることができないかと考えた。そして、従来のフィルムの優れた離型性、耐熱性を維持しつつ、より優れた表面平滑性をもつ多層二軸延伸フィルムの開発を目指した。すなわち本発明の課題は、デラミ（層間剥離）し難く、表面平滑性に特に優れ、離型性および耐熱性に優れたフィルムを提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意検討した結果、特定の4-メチル-1-ペンテン系重合体と4-メチル-1-ペンテン共重合体とを含む組成物から形成される層を有する多層二軸延伸フィルムが上記課題を解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0008】

すなわち、本発明は、次の[1]～[6]に関する。

[1] A層とB層とが積層されてなる多層二軸延伸フィルムであって、

A層が4-メチル-1-ペンテン系重合体(A1)と4-メチル-1-ペンテン共重合体(A2)とを含む樹脂組成物から構成され、

前記A層において4-メチル-1-ペンテン系重合体(A1)の含有量が、A層の全質量に対して5質量%以上50質量%以下であり、前記4-メチル-1-ペンテン共重合体(A2)の含有量がA層の全質量に対して50質量%以上95質量%以下であり、

かつ前記4-メチル-1-ペンテン系重合体(A1)が下記要件(A1-I)～(A1-II)を満たし、前記4-メチル-1-ペンテン共重合体(A2)が下記要件(A2-I)～(A2-II)を満たし、

B層が、ポリプロピレン(B1)を含む樹脂組成物から形成されている、  
多層二軸延伸フィルム。

(A1-I) 4-メチル-1-ペンテンに由来する構成単位を90モル%～100モル%含有する。

(A1-II) DSCで測定した融点(Tm)が200～250の範囲にある。

(A2-I) 4-メチル-1-ペンテンから導かれる構成単位(P)の含有率が65モル%以上96モル%未満であり、炭素原子数2～20の-オレフィン(4-メチル-1-ペンテンを除く。)から導かれる構成単位(BQ)の含有率が4モル%を超え35モル%以下である。

(A2-II) DSCで測定した融点(Tm)が観察されないか100～199の範囲にある。

[2] 前記4-メチル-1-ペンテン系重合体(A1)がさらに下記要件(A1-III)を満たす、[1]に記載の多層二軸延伸フィルム。

( A 1 - I I I ) 1 3 5 デカリン中で測定した極限粘度 [ ] が 0 . 5 ~ 5 . 0 d l / g である。

[ 3 ] 前記 4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 ( A 2 ) がさらに下記要件 ( A 2 - I I I ) を満たす、[ 1 ] または [ 2 ] に記載の多層二軸延伸フィルム。

( A 2 - I I I ) 1 3 5 デカリン中で測定した極限粘度 [ ] が 0 . 5 ~ 4 . 0 d l / g である。

[ 4 ] 層構成が、A 層 / B 層 / A 層、または A 層 / B 層 / C 層 ( ここで、C 層は、A 層および B 層のいずれとも異なる層である ) の三層構成であることを特徴とする [ 1 ] ~ [ 3 ] のいずれかに記載の多層二軸延伸フィルム。

[ 5 ] 多層二軸延伸フィルムが、転写フィルムである、[ 1 ] ~ [ 4 ] のいずれかに記載の多層二軸延伸フィルム。

【発明の効果】

【 0 0 0 9 】

本発明によれば、二軸延伸時にデラミ等を発生し難く、表面平滑性に特に優れ、離型性および耐熱性に優れる多層二軸延伸フィルムを提供する。

【発明を実施するための形態】

【 0 0 1 0 】

以下、本発明の具体的な実施形態について詳細に説明するが、本発明は、以下の実施形態に何ら限定されるものではなく、本発明の目的の範囲内において、適宜変更を加えて実施することができる。なお本明細書において、「 ~ 」を用いて表される数値範囲は、「 ~ 」の前後に記載される数値を下限値及び上限値として含む範囲を意味する。

【 0 0 1 1 】

また、本明細書において、組成物中の各成分の量について言及する場合、組成物中に各成分に該当する物質が複数存在する場合には、特に断らない限り、組成物中に存在する複数の物質の合計量を意味する。

【 0 0 1 2 】

本発明の多層二軸延伸フィルムは A 層と B 層とが積層されてなり、A 層が 4 - メチル - 1 - ペンテン系重合体 ( A 1 ) ( 以下、単に重合体 ( A 1 ) ともいう ) と 4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 ( A 2 ) ( 以下、単に共重合体 ( A 2 ) ともいう ) とを含む樹脂組成物から構成されている。

以下、A 層と B 層を詳説し、次いで層構成、フィルム製造方法について述べる。

【 0 0 1 3 】

A 層

A 層は、4 - メチル - 1 - ペンテン系重合体 ( A 1 ) と、4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 ( A 2 ) を含む。A 層において 4 - メチル - 1 - ペンテン系重合体 ( A 1 ) の含有量が、A 層の全質量に対して 5 質量 % 以上 5 0 質量 % 以下であり、前記 4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 ( A 2 ) の含有量が A 層の全質量に対して 5 0 質量 % 以上 9 5 質量 % 以下である。好ましくは、4 - メチル - 1 - ペンテン系重合体 ( A 1 ) の含有量が、A 層の全質量に対して 1 0 質量 % 以上 4 0 質量 % 以下であり、前記 4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 ( A 2 ) の含有量が A 層の全質量に対して 6 0 質量 % 以上 9 0 質量 % 以下である。上記範囲にあると、A 層中に 4 - メチル - 1 - ペンテン系重合体 ( A 1 ) を微分散させることが可能となる。また、4 - メチル - 1 - ペンテン系重合体 ( A 1 ) の含有量が上記下限値以上であることで、A 層の耐熱性が優れる。4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 ( A 2 ) の含有量が上記下限値以上であることで、層間強度に優れデラミし難くなる。

【 0 0 1 4 】

また、後述するように、重合体 ( A 1 ) と共重合体 ( A 2 ) とがいずれも 4 - メチル - 1 - ペンテンに由来する構成単位を特定量以上含有することにより、重合体 ( A 1 ) と共重合体 ( A 2 ) との相容性が優れ、得られるフィルムのグロスが優れると考えられる。

【 0 0 1 5 】

[ 4 - メチル - 1 - ペンテン系重合体 ( A 1 ) ]

以下、A層を構成する成分である4-メチル-1-ペンテン系重合体(A1)について説明する。4-メチル-1-ペンテン系重合体(A1)は下記要件(A1-I)~(A1-II)を満たす。

【0016】

<要件(A1-I)>

4-メチル-1-ペンテン系重合体(A1)は、4-メチル-1-ペンテンから導かれる構成単位を90モル%~100モル%含む。好ましくは炭素原子数2~20のオレフィン(4-メチル-1-ペンテンを除く)から導かれる構成単位(AQ)を0モル%~10モル%の割合で含む。なお、炭素原子数2~20のオレフィンとしては、1種類に限定されることなく、2種以上を組み合わせてもよい。

10

【0017】

ここで、耐熱性の観点から、4-メチル-1-ペンテンから導かれる構成単位は93モル%以上含まれることが好ましい。

一方、炭素原子数2~20のオレフィン(4-メチル-1-ペンテンを除く)から導かれる構成単位(AQ)は10モル%以下、好ましくは7モル%以下含まれる。

【0018】

4-メチル-1-ペンテン系重合体(A1)に含まれる炭素原子数2~20のオレフィンとしては、エチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、1-オクテン、1-デセン、1-ドデセン、1-テトラデセン、1-ヘキサデセン、1-ヘプタデセン、1-オクタデセン、1-エイコセンなどが好適な例として挙げられる。これらの炭素原子数2~20のオレフィンは、単独で、あるいは2種以上組み合わせて用いることができる。適度な弾性率と柔軟性、可とう性を付与するという観点から、炭素数8以上18以下のオレフィン(たとえば1-オクテン、1-デセン、1-テトラデセン、1-ヘキサデセン、1-ヘプタデセン及び1-オクタデセン)が好ましい。

20

【0019】

なお、4-メチル-1-ペンテン系重合体(A1)は、本発明の目的を損なわない範囲で、4-メチル-1-ペンテンと炭素原子数2~20のオレフィン(4-メチル-1-ペンテンを除く)以外の重合性化合物(以下、重合性化合物ともいう)に由来する構造単位を含んでいてもよい。

30

【0020】

このような前記重合性化合物としては、例えばスチレン、ビニルシクロペンテン、ビニルシクロヘキサン、ビニルノルボルナン等の環状構造を有するビニル化合物；酢酸ビニル等のビニルエステル類；無水マレイン酸等の不飽和有機酸またはその誘導体；ブタジエン、イソプレン、ペンタジエン、2,3-ジメチルブタジエン等の共役ジエン類；1,4-ヘキサジエン、1,6-オクタジエン、2-メチル-1,5-ヘキサジエン、6-メチル-1,5-ヘプタジエン、7-メチル-1,6-オクタジエン、ジシクロペンタジエン、シクロヘキサジエン、ジシクロオクタジエン、メチレンノルボルネン、5-ビニルノルボルネン、5-エチリデン-2-ノルボルネン、5-メチレン-2-ノルボルネン、5-イソプロピリデン-2-ノルボルネン、6-クロロメチル-5-イソプロペニル-2-ノルボルネン、2,3-ジイソプロピリデン-5-ノルボルネン、2-エチリデン-3-イソプロピリデン-5-ノルボルネン、2-プロペニル-2,2-ノルボルナジエン等の非共役ポリエン類などが挙げられる。

40

【0021】

本発明における4-メチル-1-ペンテン系重合体(A1)は、前記重合性化合物から導かれる単位を、4-メチル-1-ペンテン系重合体(A1)に含まれる全ての重合性化合物構造単位に対して、10モル%以下含有されていてよく、5モル%以下、3モル%以下の量で含有していてもよい。

【0022】

<要件(A1-II)>

50

本発明における４－メチル－１－ペンテン系重合体（Ａ１）は、ＤＳＣで測定した融点（ $T_m$ ）が、２００～２５０の範囲にある。好ましくは２００～２４５、より好ましくは２００～２４０の範囲にある。上記、融点（ $T_m$ ）の値は、重合体の立体規則性ならびに共に重合する－オレフィン量に依存して変化する値であり、後述するオレフィン重合用触媒を用いて所望の組成に制御調整することが可能である。

【００２３】

融点（ $T_m$ ）の値が上記範囲にある４－メチル－１－ペンテン系重合体（Ａ１）を含む重合体組成物は耐熱性の観点から好ましい。

４－メチル－１－ペンテン系重合体（Ａ１）は、上記要件（Ａ１－Ⅰ）～（ＡⅠ－ⅠⅠ）に加え、下記要件（Ａ１－ⅠⅠⅠ）を満たすことが好ましい。

10

【００２４】

<要件（Ａ１－ⅠⅠⅠ）>

４－メチル－１－ペンテン系重合体（Ａ１）の１３５デカリン中で測定した極限粘度〔 〕が、０．５～５．０ｄＬ／ｇであることが好ましい。

【００２５】

ここで、極限粘度〔 〕は、１．０～４．０ｄＬ／ｇの範囲であることがより好ましく、１．２～３．５ｄＬ／ｇの範囲であることがさらに好ましい。

上記極限粘度〔 〕の値は、４－メチル－１－ペンテン系重合体（Ａ１）を製造する際の、重合時の水素の添加量により調整することが可能である。

【００２６】

20

極限粘度〔 〕の値が上記範囲にある４－メチル－１－ペンテン系重合体（Ａ１）は、樹脂組成物製造時や各種成形時において良好な流動性を示し、また４－メチル－１－ペンテン共重合体（Ａ２）への分散性が良好となり、得られる多層二軸延伸フィルムの外観において好ましい。

【００２７】

〔４－メチル－１－ペンテン系重合体（Ａ１）の製造方法〕

４－メチル－１－ペンテン系重合体（Ａ１）は、オレフィン類を重合して製造してもよく、高分子量の４－メチル－１－ペンテン系重合体を、熱分解して製造してもよい。また、溶媒に対する溶解度の差で分別する溶媒分別、あるいは沸点の差で分取する分子蒸留などの方法で精製されていてもよい。

30

【００２８】

重合反応により製造する場合、例えば４－メチル－１－ペンテンおよび必要に応じて共重合させる－オレフィンの仕込量、重合触媒の種類、重合温度、重合時の水素添加量等を調整することで、得られる４－メチル－１－ペンテン系重合体（Ａ１）の融点、立体規則性および分子量等を制御する。重合反応により製造する方法は、公知の方法であってもよい。例えば、チーグラナッタ触媒、メタロセン系触媒等の公知の触媒を用いた方法により製造され得る。

重合体（Ａ１）は、前述のように製造したもの以外にも、例えば三井化学株式会社製ＴＰＸ等、市販の重合体であってもよい。

【００２９】

40

〔４－メチル－１－ペンテン共重合体（Ａ２）〕

４－メチル－１－ペンテン共重合体（Ａ２）は、以下の要件（Ａ２－Ⅰ）～（Ａ２－ⅠⅠ）を満たす。

【００３０】

<要件（Ａ２－Ⅰ）>

４－メチル－１－ペンテン共重合体（Ａ２）は、４－メチル－１－ペンテンに由来する構成単位（Ｐ）を６５モル％以上９６モル％未満の割合で、及び４－メチル－１－ペンテン以外の炭素数２以上２０以下の－オレフィンに由来する構成単位（ＢＱ）を、４モル％を超え３５モル％以下の割合で有する。

【００３１】

50

構成単位 (P) の含有率は、65モル%以上96モル%未満であり、好ましくは68モル%以上92モル%未満であり、より好ましくは68モル%以上90モル%未満であり、特に好ましくは80モル%以上88モル%未満である。

【0032】

構成単位 (P) の含有率が65モル%以上であることにより、耐熱性に優れ、また、重合体 (A1) との相容性にすぐれ得られるフィルムのグロスに優れる。

構成単位 (BQ) の含有率 (構成単位 (BQ) が2種以上である場合は当該2種以上の合計の含有率) は、4モル%を超え35モル%以下であり、好ましくは8モル%を超え32モル%以下であり、より好ましくは10モル%を超え32モル%以下であり、特に好ましくは12モル%を超え20モル%以下である。

10

【0033】

4-メチル-1-ペンテン共重合体 (A2) における構成単位 (BQ) の含有率が4モル%を超えることにより、得られる積層フィルムの層間強度に優れデラミし難くなる。

構成単位 (BQ) を形成する、4-メチル-1-ペンテン以外の炭素数2以上20以下の -オレフィンとしては、エチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-オクテン、1-デセン、1-ヘキサデセン、1-オクタデセンが好ましく、炭素原子数2~4の -オレフィン、すなわちエチレン、プロピレン、1-ブテンが更に好ましく、プロピレンが特に好ましい。

【0034】

また、構成単位 (BQ) は、前記重合体 (A1) が構成単位 (AQ) を含む場合、構成単位 (AQ) と同じであってもよく、異なってもよい。

20

4-メチル-1-ペンテン共重合体 (A2) は、本発明の効果を損なわない範囲で、4-メチル-1-ペンテンに由来する構成単位 (P) 及び4-メチル-1-ペンテン以外の炭素数2以上20以下の -オレフィンに由来する構成単位 (BQ) 以外のその他の構成単位を含んでいてもよい。その他の構成単位の含有率は、たとえば0~10モル%である。

【0035】

上記その他の構成単位を形成するモノマーとしては、環状オレフィン、芳香族ビニル化合物、共役ジエン、非共役ポリエン、官能ビニル化合物、水酸基含有オレフィン、ハロゲン化オレフィン等が含まれる。

30

【0036】

環状オレフィン、芳香族ビニル化合物、共役ジエン、非共役ポリエン、官能ビニル化合物、水酸基含有オレフィン、及びハロゲン化オレフィンとしては、例えば、特開2013-169685号公報の段落0034~0041に記載の化合物を用いることができる。

【0037】

上記その他の構成単位を形成するモノマーとしては、ビニルシクロヘキサン、スチレンが特に好ましい。

4-メチル-1-ペンテン共重合体 (A2) に、上記その他の構成単位が含まれる場合、上記その他の構成単位は、1種のみ含まれていてもよく、また、2種以上含まれていてもよい。

40

【0038】

4-メチル-1-ペンテン共重合体 (A2) における各構成単位の含有率 (モル%) の値は、<sup>13</sup>C-NMRによる測定法により測定され、具体的な測定方法については実施例の項に記載の通りである。

【0039】

<要件 (A2-II)>

4-メチル-1-ペンテン共重合体 (A2) の融点 (Tm) は、観察されないか、又は100~199の範囲にあり、より好ましくは観察されないか、又は110~180の範囲にあり、さらに好ましくは110~160の範囲にあり、特に好ましくは125~150の範囲にある。

50

## 【0040】

4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 (A2) の融点 (Tm) は、前記重合体 (A1) の融点 (Tm) と同様の方法により測定される値である。

4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 (A2) は上記要件 (A2 - I) ~ (A2 - III) に加えて、好ましくは下記要件のうち一つ以上を満たす。

## 【0041】

< 要件 (A2 - III) >

4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 (A2) の、デカリン溶媒中、135 で測定される極限粘度 [ ] は、0.5 ~ 4.0 dl / g であり、好ましくは 0.5 dl / g ~ 3.5 dl / g であり、より好ましくは 1.0 dl / g ~ 3.5 dl / g である。4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 (A2) の極限粘度 [ ] が上記範囲内であると、成形性の点で好ましい。

10

4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 (A2) の極限粘度 [ ] は、前記重合体 (A1) の極限粘度 [ ] と同様の方法で測定される値である。

## 【0042】

< 要件 (A2 - IV) >

4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 (A2) の分子量分布 (Mw / Mn) は、好ましくは 1.0 ~ 3.5 であり、好ましくは 1.1 ~ 3.0 である。

4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 (A2) の重量平均分子量 (Mw) は、組成物からなる層の成形性の観点から、好ましくは  $1 \times 10^4 \sim 2 \times 10^6$  であり、より好ましくは  $1 \times 10^4 \sim 1 \times 10^6$  である。

20

なお、4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 (A2) の重量平均分子量 (Mw) 及び分子量分布 (Mw / Mn) は、実施例記載の方法により算出される値である。

## 【0043】

< 要件 (A2 - V) >

4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 (A2) の、ASTM D1238 に準拠して 230 で 2.16 kg の荷重にて測定されるメルトフローレート (MFR) は、組成物の成形時の流動性の観点から、好ましくは 0.1 g / 10 分 ~ 100 g / 10 分であり、より好ましくは 0.5 g / 10 分 ~ 50 g / 10 分であり、さらに好ましくは 0.5 g / 10 分 ~ 30 g / 10 分である。

30

## 【0044】

[ 4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 (A2) の製造方法 ]

4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 (A2) は、従来知られているメタロセン触媒系により、例えば、国際公開第 2005 / 121192 号、国際公開第 2011 / 055803 号、国際公開第 2014 / 050817 等に記載された方法により合成することができる。

## 【0045】

[ その他の樹脂 ]

本発明の多層二軸延伸フィルムの A 層を構成する樹脂組成物には、本発明の目的を損なわない範囲内において、上述の 4 - メチル - 1 - ペンテン系重合体 (A1) 及び 4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 (A2) 以外のその他の樹脂を含有していてもよい。その他の樹脂としては例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ 1 - ブテン、スチレン系樹脂、エチレン・オレフィン共重合体等のポリオレフィン系重合体を添加することも可能である。その他の樹脂の含有量は、A 層の全質量に対して好ましくは 20 質量% 以下、より好ましくは 10 質量% 以下、さらに好ましくは 5 質量% 以下である。

40

## 【0046】

[ 添加剤 ]

本発明の多層二軸延伸フィルムの A 層を構成する樹脂組成物は、特定量の 4 - メチル - 1 - ペンテン系重合体 (A1) と特定量の 4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体 (A2) とを含有し、更に、本発明の目的を損なわない範囲内において、例えば、耐候安定剤、耐熱

50



安定剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、帯電防止剤、スリップ防止剤、アンチブロッキング剤、防曇剤、核剤、滑剤、顔料、染料、老化防止剤、塩酸吸収剤、無機又は有機の充填剤、有機系又は無機系の発泡剤、架橋剤、架橋助剤、粘着剤、軟化剤、難燃剤等の各種添加剤を含有していてもよい。

【0047】

本発明におけるA層を構成する樹脂組成物には、その成形性をさらに改善させる、すなわち結晶化温度を高め結晶化速度を速めるために、特定の任意成分である核剤が配合されていてもよい。この場合、例えば核剤はジベンジリデンソルビトール系核剤、リン酸エステル塩系核剤、ロジン系核剤、安息香酸金属塩系核剤、フッ素化ポリエチレン、2,2-メチレンビス(4,6-ジ-*t*-ブチルフェニル)リン酸ナトリウム、ピメリン酸やその塩、2,6-ナフタレン酸ジカルボン酸ジシクロヘキシルアミド等であり、配合量は特に制限されないが、該樹脂組成物100質量部に対して0.1~1質量部程度があることが好ましい。配合タイミングに特に制限は無く、重合中、重合後、あるいは成形加工時での添加が可能である。

10

【0048】

該樹脂組成物には、本発明の目的を損なわない範囲で、さらに必要に応じて、二次抗酸化剤、耐熱安定剤、耐候安定剤、帯電防止剤、スリップ剤、防曇剤、滑剤、染料、顔料、天然油、合成油、ワックス、充填剤、塩酸吸収剤や、他のオレフィン重合体などを配合することができる。配合量は特に制限されないが、該樹脂組成物100質量部に対して、通常0~50質量部であり、0~30質量部が好ましく、0~10質量部がさらに好ましく、0~1質量部が特に好ましい。

20

【0049】

酸化防止剤としては、公知の酸化防止剤が使用可能である。具体的には、ヒンダードフェノール化合物、イオウ系酸化防止剤、ラクトーン系酸化防止剤、有機ホスファイト化合物、有機ホスフォナイト化合物、あるいはこれらを数種類組み合わせたものが使用できる。

【0050】

滑剤としては、例えばラウリル酸、パルミチン酸、オレイン酸、ステアリン酸などの飽和または不飽和脂肪酸およびそのナトリウム、カルシウム、マグネシウム塩などがあげられ、これらは単独でまたは2種以上を混合して用いることができる。またかかる滑剤の配合量は、該樹脂組成物100質量部に対して通常0.1~3質量部が好ましく、0.1~2質量部がさらに好ましい。

30

【0051】

スリップ剤としては、ラウリル酸、パルミチン酸、オレイン酸、ステアリン酸、エルカ酸、ヘベニン酸などの飽和または不飽和脂肪酸のアミド、あるいはこれらの飽和または不飽和脂肪酸のビスアミドを用いることが好ましい。これらのうちでは、エルカ酸アミドおよびエチレンビスステアロアミドが特に好ましい。これらの脂肪酸アミドは本発明に係る樹脂組成物100質量部に対して、通常0.01~5質量部の範囲で配合することが好ましい。

【0052】

本発明に係るA層が、成分(A1)および成分(A2)以外の前記任意成分を含んでなるときは、A層の全質量から当該任意成分を差し引いた質量を100質量%として、前記成分(A1)含有量定義(5~95質量%)と成分(A2)含有量(5~95質量%)定義が適用される。

40

【0053】

B層

本発明の多層二軸延伸フィルムにおけるB層は、本発明の多層二軸延伸フィルムに優れた機械特性を付与するために設けられる層である。B層は、ポリプロピレン(B1)を含む樹脂組成物から形成されることが好ましい。当該ポリプロピレン(B1)はプロピレンを主体とする公知の重合体であり、そのような例としては、プロピレン単独重合体、プロ

50

ピレンとプロピレン以外の - オレフィンとのプロピレン・ オレフィン共重合体（プロピレン・エチレン共重合体、プロピレン・1-ブテン共重合体、プロピレン・エチレン・1-ブテン共重合体などのランダム共重合体、ブロック共重合体又はこれらの混合物）等を挙げることができる。ポリプロピレンとしてはアイソタクチックポリプロピレン、シンジオタクチックポリプロピレンが好適に用いられ、立体規則性を示すアイソタクチックメソペンダッド分率（mmmm）またはシンジオタクチックメソペンダッド分率（rrrr）が90%以上であることが好ましく、92%以上であることがより好ましく、93%以上であることがさらに好ましい。立体規則性が高いと、樹脂の結晶性が向上し、高い熱安定性、機械特性を付与することができる。

【0054】

10

プロピレン・ オレフィン共重合体における オレフィンの共重合比率としては、5質量%以下であることが好ましい。また、プロピレン・ オレフィン共重合体は、ランダム共重合体であってもブロック共重合体であってもよく、核剤（結晶化核剤）を含んでいても良い。核剤としては、特に限定されず、各種無機化合物、各種カルボン酸又はその金属塩、ジベンジリデンソルビトール系化合物、アリールフォスフェート系化合物、環状多価金属アリールフォスフェート系化合物と脂肪族モノカルボン酸アルカリ金属塩又は塩基性アルミニウム・リチウム・ヒドロキシ・カーボネート・ハイドレートとの混合物、各種高分子化合物等の 晶核剤等が挙げられる。これらの結晶化核剤は単独の材料でも使用でき、また二種以上の材料を併用することもできる。

【0055】

20

上記ポリプロピレン（B1）のMFRは、JIS K7210に準じて測定できる。具体的には、温度230、荷重2.16kg荷重の測定条件で、0.5～25g/10分であることが好ましく、1～15g/10分であることがより好ましく、2～10g/10分であることがさらに好ましい。ポリプロピレン（B1）のMFRが前記範囲にあると、押出成形に好適である。

【0056】

ポリプロピレン（B1）に含まれる重合触媒残渣等に起因する灰分は、微小異物（フィッシュアイ）を低減するため、可能な限り少ないことが好ましく、50ppm以下であることが好ましい。さらに好ましくは、40ppm以下である。

30

【0057】

また、B層を形成する樹脂組成物には、A層を形成する樹脂組成物に配合するものと同様の熱安定剤、酸化防止剤、すべり剤、塩素捕獲剤、帯電防止剤等が添加されていてもよい。

【0058】

多層二軸延伸フィルム

本発明の多層二軸延伸フィルムの層構成としては、A層とB層が積層された2層構造、A層/B層/A層の順に積層されてなる3層構造、A層及びB層のいずれとも異なるC層（例えば、エチレン変性アイソタクティックポリプロピレン樹脂（ランダムコポリマーやブロックコポリマー）、アタクチックポリプロピレン、シンジオタクチックポリプロピレン等を含む組成物、オレフィン系重合体やスチレン系重合体、アクリル系重合体等から得られる粘着性を発現する粘着材料から形成される層など）が、A層/B層/C層の順に積層されてなる3層構造等が挙げられる。積層時における成形性の観点からは、A層/B層の2層構造または、A層/B層/A層の3層構造が好ましい。

40

【0059】

このような多層フィルムを得る方法については特に制限は無いが、通常、まず、A層とB層と、必要に応じてその他の層とが積層されてなる原反フィルム（原反シートともいう）を成形し、次に、その原反フィルムを二軸延伸することによって得られる。原反フィルムの成形方法は例えば、あらかじめT-ダイ成形またはインフレーション成形にて得られ

50

た表面層フィルム上に、押出ラミネーション、押出コーティング等の公知の積層法により積層する方法や、複数のフィルムを独立して成形した後、各々のフィルムをドライラミネーションにより積層する方法等が挙げられるが、生産性の点から、複数の成分を多層の押出機に供して成形する共押出成形が好ましい。

【0060】

本発明に係る延伸前のフィルム、すなわち原反フィルムの厚みは特に限定されないが、通常100 $\mu$ m～1000 $\mu$ mであり、150～800 $\mu$ mが好ましく、更に好ましくは、200～500 $\mu$ mである。

【0061】

本発明の多層二軸延伸フィルムの総厚みは、3～60 $\mu$ mであることが好ましく、より好ましくは10～50 $\mu$ m、さらに好ましくは20～50 $\mu$ mである。フィルムの総厚みが3～60 $\mu$ mであることにより、機械特性及び延伸性に優れたフィルムを得ることができる。

10

【0062】

本発明の多層二軸延伸フィルムにおけるA層1層の厚みは、B層1層の厚みに対し、2～250%であることが好ましく、より好ましくは25～200%である。本発明の多層二軸延伸フィルムが2つ以上のA層を含有する場合、各A層の厚みは同じであってもよいし、互いに異なってもよい。

【0063】

本発明の多層二軸延伸フィルムの、剥離速度300mm/分におけるテープ剥離力は、7N/50mm以下であることが好ましい。より好ましくは1～6.5N/50mmである。当該テープ剥離力は、4-メチル-1-ペンテン系重合体(A1)の融点および配合量により調節できる。テープ剥離力は、粘着シートの試験方法(JIS Z0237-2000)に準拠して測定される。測定方法の具体例としては、粘着材としてアクリル系粘着材(日東電工株式会社製、商品名ニットーテープ31B)を使用し、50mm幅×100mm長さにした試験フィルムと粘着テープを温度23℃、相対湿度50%の環境下に1時間放置した後、粘着フィルムを約2kgのゴムロールで圧力を加えながら2往復通過させて試験板に貼り付ける。貼り付け後、温度23℃または50℃、相対湿度50%の一定環境下に1日間置いた後、温度23℃、相対湿度50%の環境で、180°方向に、速度300mm/分で引き剥がした際の剥離力を測定することにより評価できる。

20

30

【0064】

本発明の多層二軸延伸フィルムの、45°グロス率は、70%以上であることが好ましい。より好ましくは80%以上である。上限については特に限定ないが、通常130%以下である。45°グロス率の測定方法は詳しくは実施例の項に記載したとおりである。

【0065】

多層二軸延伸フィルムの製造方法

各成分を混合して、A層用またはB層用の樹脂組成物ペレットを調製する方法については、種々公知の方法、例えば、多段重合法、プラストミル、ヘンシェルミキサー、V-ブレンダー、リボンプレンダー、タンブラー、ブレンダー、ニーダー、ニーダー等で混合する方法、あるいは混合後、一軸押出機、二軸押出機、ニーダー、バンバリーミキサー等で、例えば180～300℃で熔融混練後、造粒あるいは粉碎する方法を採用することができる。該方法により、各成分および添加剤が均一に分散混合された高品質の樹脂組成物ペレットを得ることができる。

40

【0066】

本発明の多層二軸延伸フィルム用の原反シートは、上述した樹脂組成物ペレットを、シリンドラ温度を通常180～300℃の範囲で熔融押出して得ることができる。

前記原反シートから多層二軸延伸フィルムを製造するには、バッチ式の二軸延伸でも、キャスト成形直後に逐次二軸延伸を施すこと、あるいは、同時二軸延伸することもできる。逐次二軸延伸ではキャスト原反シートを100～165℃に保ち、速度差を設けたロー

50

ル間に通して流れ方向に2～5倍に延伸し、直ちに室温に冷却する。次いで、当該フィルムをテンターに導き、150以上の温度で幅方向に5～10倍に延伸した後、緩和、熱固定を施し巻き取ることにより得られる。

#### 【0067】

##### 用途

本発明の多層二軸延伸フィルムの具体的な用途としては、例えば下記のような一般的なフィルム用途を挙げることができる。

包装用フィルム；例えば、食品包装用フィルム、ストレッチフィルム、ラップフィルム、シュリンクフィルム、イージーピールフィルム、アルミ蒸着フィルム、PVDコートフィルム、などが挙げられる。通気性フィルム；例えば、紙おむつ、生理用品、手術衣、手術用手袋、サージカルダウン、ハウスラップ（透湿防水シート）、使い捨てカイロ、家庭用除湿剤、乾燥剤、脱酸素剤、鮮度保持剤、堆肥化シート、簡易ジャンパー、などが挙げられる。防錆フィルム；例えば、自動車部品、ロックダウン用部品、機械・機械部品、鉄・クロム製品、鋼管、線材、ボルトナット、ベアリング、金型、工具、刃物、切削工具、建築用具などの輸送梱包、保管梱包、輸出梱包、などが挙げられる。防曇フィルム；例えば、青果物用フィルム、加工食品用フィルム、などが挙げられる。

10

#### 【0068】

方向性フィルム；菓子類のひねり包装、農業資材、ラミネート基材、コイン包装、電線束ね材、果菜類包装、段ボールカットテープ、洗剤詰め替え容器、おにぎり包装、ピロー包装、スティック包装、ボイル・レトルト包装、水物食品包装、輸液バッグ、などが挙げられる。

20

#### 【0069】

セルフクリーニングフィルム；例えば、道路標識、一般標識、看板、窓ガラス、道路資材、サイドミラーなどが挙げられる。

セパレーター；例えば、バッテリーセパレーター、リチウムイオン電池用セパレーター、燃料電池用電解質膜、粘着・接着材セパレーター。

延伸フィルム；例えば、フィルムコンデンサ用フィルム、キャパシターフィルム、燃料電池用キャパシターフィルム。

半導体工程フィルム；例えば、ダイシングテープ・バックグラインドテープ・ダイボンディングフィルム、偏光板用フィルム、表面保護フィルム；例えば、偏光板用保護フィルム、液晶パネル用保護フィルム、光学部品用保護フィルム、レンズ用保護フィルム、電気部品・電化製品用保護フィルム、携帯電話用保護フィルム、パソコン用保護フィルム、マスキングフィルム、タッチパネル用保護フィルム。

30

#### 【0070】

電子部材用フィルム；例えば、拡散フィルム、反射フィルム、耐放射線フィルム、耐線フィルム、多孔フィルム。

建材フィルム；例えば、建材用ウインドウフィルム、合わせガラス用フィルム、防弾材、防弾ガラス用フィルム、遮熱シート、遮熱フィルム、などが挙げられる。

転写フィルム；例えば、自動車・産業用転写フィルム、包装用転写フィルム。

離型フィルム；例えば、フレキシブルプリント基板用離型フィルム（FPC）、ACM基板用離型フィルム、リジッドフレキシブル基板用離型フィルム、先端複合材料用離型フィルム、炭素繊維複合材硬化用離型フィルム、ガラス繊維複合材硬化用離型フィルム、アラミド繊維複合材硬化用離型フィルム、ナノ複合材硬化用離型フィルム、フィラー充填材硬化用離型フィルム、半導体封止用離型フィルム、偏光板用離型フィルム、拡散シート用離型フィルム、プリズムシート用離型フィルム、反射シート用離型フィルム、離型フィルム用クッションフィルム、燃料電池用離型フィルム、各種ゴムシート用離型フィルム、ウレタン硬化用離型フィルム、エポキシ硬化用離型フィルム（金属バットやゴルフクラブなどの製造工程部材など）、などが挙げられる。

40

#### 【0071】

特に好ましくは表面保護フィルム及び粘着テープ等を使用する剥離フィルム、剥離ライ

50

ナーまたはセパレータフィルム、転写フィルム、並びに複合材料製造時のキャリアーなどを挙げることができる。とりわけ好ましくは転写フィルムとして用いられる。

#### 【実施例】

#### 【0072】

以下、実施例に基づいて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。なお、実施例において各物性は以下のように測定した。

#### 〔組成〕

重合体中の4-メチル-1-ペンテン及び -オレフィンの含有率(モル%)は、 $^{13}\text{C}$ -NMRにより測定した。測定条件は、下記のとおりである。

- ・測定装置：核磁気共鳴装置(ＥＣＰ５００型、日本電子(株)製)
- ・観測核： $^{13}\text{C}$ (125MHz)
- ・シーケンス：シングルパルスプロトンデカップリング
- ・パルス幅：4.7μ秒(45°パルス)
- ・繰り返し時間：5.5秒
- ・積算回数：1万回以上
- ・溶媒：オルトジクロロベンゼン/重水素化ベンゼン(容量比：80/20)混合溶媒
- ・試料濃度：55mg/0.6mL
- ・測定温度：120
- ・ケミカルシフトの基準値：27.50ppm

#### 【0073】

#### 〔融点(Tm)〕

重合体の融点(Tm)は、測定装置として示差走査熱量計(DSC220C型、セイコーインスツル(株)製)を用いて測定した。

約5mgの重合体を測定用アルミニウムパン中に密封し、室温から10/minで280まで加熱した。共重合体を完全融解させるために、280で5分間保持し、次いで、10/minで-50まで冷却した。-50で5分間置いた後、10/minで280まで2度目の加熱を行なった。この2度目の加熱でのピーク温度( )を重合体の融点(Tm)とした。

#### 【0074】

#### 〔極限粘度[ ]〕

重合体の極限粘度[ ]は、測定装置としてウペローデ粘度計を用い、デカリン溶媒中、135で測定した。具体的には、約20mgの粉末状の共重合体をデカリン25mLに溶解させた後、ウペローデ粘度計を用い、135のオイルバス中で比粘度 $\eta_{sp}$ を測定した。このデカリン溶液にデカリンを5mL加えて希釈した後、上記と同様にして比粘度 $\eta_{sp}$ を測定した。この希釈操作を更に2回繰り返し、濃度(C)を0に外挿した時の $\eta_{sp}/C$ の値を極限粘度[ ](単位：dL/g)として求めた(下記の式1参照)。

$$[ ] = \lim_{C \rightarrow 0} (\eta_{sp}/C) \quad (C \rightarrow 0) \cdots \text{式1}$$

#### 【0075】

#### 〔メルトフローレート(MFR)〕

重合体のメルトフローレート(MFR：Melt Flow Rate)は、JIS K7210に準拠し、共重合体A2(A2-1, A2-1)およびポリプロピレンについては230で2.16kgの荷重にて測定した。単位は、g/10分である。なお、重合体A1(A1-1)については、260、5.0kgの荷重条件にて測定した。

#### 〔密度〕

重合体の密度は、JIS K7112(密度勾配管法)に準拠して、測定した。

#### 【0076】

#### 〔製造例1〕4-メチル-1-ペンテン系重合体の製造(A1-1)

国際公開2006/054613号の比較例7や比較例9に記載の重合方法に準じて、4-メチル-1-ペンテン、1-ヘキサデセン、1-オクタデセン、水素の割合を変更することによって、表1に示す物性を有する4-メチル-1-ペンテン系重合体A1-1を

得た。

【 0 0 7 7 】

[ 製造例 2 ] 4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体の製造 ( A 2 - 1 )

十分に窒素置換した容量 1 . 5 L の攪拌翼付の S U S 製オートクレーブに、3 0 0 m l の n - ヘキサン ( 乾燥窒素雰囲気下、活性アルミナ上で乾燥したもの )、及び 4 5 0 m l の 4 - メチル - 1 - ペンテンを 2 3 で装入した後、トリイソブチルアルミニウム ( T I B A L ) の 1 . 0 m m o l / m l トルエン溶液を 0 . 7 5 m l 装入し、攪拌機を回した。

【 0 0 7 8 】

次に、オートクレーブを内温が 6 0 になるまで加熱し、全圧 ( ゲージ圧 ) が 0 . 1 9 M P a となるようにプロピレンで加圧した。

10

続いて、予め調製しておいた、A 1 換算で 1 m m o l のメチルアルミノキサン、及び 0 . 0 1 m m o l のジフェニルメチレン ( 1 - エチル - 3 - t - ブチル - シクロペンタジエニル ) ( 2 , 7 - ジ - t - ブチル - フルオレニル ) ジルコニウムジクロリドを含むトルエン溶液 0 . 3 4 m l をオートクレーブに窒素で圧入し、重合反応を開始させた。重合反応中は、オートクレーブの内温が 6 0 になるように温度調整した。

【 0 0 7 9 】

重合開始から 6 0 分後、オートクレーブにメタノール 5 m l を窒素で圧入し、重合反応を停止させた後、オートクレーブ内を大気圧まで脱圧した。脱圧後、反応溶液に、該反応溶液を攪拌しながらアセトンを追加し、溶媒を含む重合反応生成物を得た。次いで、得られた溶媒を含む重合反応生成物を減圧下、1 3 0 で 1 2 時間乾燥させて、共重合体 ( B ) として、4 4 . 0 g の粉末状の重合体 A 2 - 1 を得た。各種物性の測定結果を表 1 に示す。

20

【 0 0 8 0 】

[ 製造例 3 ] 4 - メチル - 1 - ペンテン共重合体の製造 ( A 2 - 2 )

十分に窒素置換した容量 1 . 5 L の攪拌翼付の S U S 製オートクレーブに、3 0 0 m l の n - ヘキサン ( 乾燥窒素雰囲気下、活性アルミナ上で乾燥したもの )、及び 4 5 0 m l の 4 - メチル - 1 - ペンテンを 2 3 で装入した。このオートクレーブに、トリイソブチルアルミニウム ( T I B A L ) の 1 . 0 m m o l / m l トルエン溶液を 0 . 7 5 m l 装入し、攪拌機を回した。

【 0 0 8 1 】

30

次に、オートクレーブを内温が 6 0 になるまで加熱し、全圧 ( ゲージ圧 ) が 0 . 4 0 M P a となるようにプロピレンで加圧した。

続いて、予め調製しておいた、A 1 換算で 1 m m o l のメチルアルミノキサン、及び 0 . 0 1 m m o l のジフェニルメチレン ( 1 - エチル - 3 - t - ブチル - シクロペンタジエニル ) ( 2 , 7 - ジ - t - ブチル - フルオレニル ) ジルコニウムジクロリドを含むトルエン溶液 0 . 3 4 m l を、オートクレーブに窒素で圧入し、重合反応を開始させた。重合反応中は、オートクレーブの内温が 6 0 になるように温度調整した。

【 0 0 8 2 】

重合開始から 6 0 分後、オートクレーブにメタノール 5 m l を窒素で圧入し、重合反応を停止させた後、オートクレーブ内を大気圧まで脱圧した。脱圧後、反応溶液に、該反応溶液を攪拌しながらアセトンを追加し、溶媒を含む重合反応生成物を得た。

40

次いで、得られた溶媒を含む重合反応生成物を減圧下、1 0 0 で 1 2 時間乾燥させて、3 6 . 9 g の粉末状の共重合体 A 2 - 2 を得た。各種物性の測定結果を表 1 に示す。

【 0 0 8 3 】

【表 1】

表 1

		A1-1	A2-1	A2-2
組成	4-メチル-1-ペンテンに由来する 構成単位の含有率	mol%	93.2	84.1
	$\alpha$ -オレフィン種	—	1-ヘキサデセン 1-オクタデセン	プロピレン
	$\alpha$ -オレフィンに由来する 構成単位の含有率	mol%	6.8	15.9
	融点(Tm)	°C	224	観測されない
極限粘度[ $\eta$ ]		dl/g	2.2	1.5
メルトフローレート(MFR)(260°C、5kgf)		g/10分	22	—
メルトフローレート(MFR)230°C、2.16kgf		g/10分	—	11
重量平均分子量(Mw)		—	—	337000
分子量分布(Mw/Mn)		—	—	2.1
密度		kg/m <sup>3</sup>	834	838

【0084】

〔実施例 1〕

A 層 / B 層 / A 層の順に積層されてなる 3 層二軸延伸フィルムを成形した。まず、A 層を形成する樹脂組成物として、重合体 A1-1 : 20 質量部と、共重合体 A2-1 : 80 質量部の割合で、2 軸押出機に供給し、270 で混練して樹脂組成物を調整し、A 層の

10

20

30

40

50

原料とした。また、B層を形成する樹脂はポリプロピレン（プライムポリプロ（登録商標）F113G（プロピレンのホモポリマー、密度： $910\text{ kg/m}^3$ 、MFR（230）： $3.0\text{ g/10分}$ 、（株）プライムポリマー製））を用いた。

【0085】

得られた樹脂組成物および樹脂を、リップ幅330mmのTダイを設置し、3つのホッパー投入口と30mmスクリーンを設置した3種3層式Tダイシート成形機を用いて、A層のシリンダー温度は270、B層のシリンダー温度は230、ダイス温度を270に設定し、Tダイから熔融混練物を厚み300 $\mu\text{m}$ （A層50 $\mu\text{m}$ /B層200 $\mu\text{m}$ /A層50 $\mu\text{m}$ ）で押し出し、キャスト成形することにより、実施例1の原反フィルムを得た。なお、各層の厚みは、押出量から算出した。

10

【0086】

次いで、ブルックナー社製バッチ式二軸延伸機KARO IVを用いて、予熱温度162、予熱時間2分、延伸温度162、延伸速度100%/秒の延伸条件、熱セット条件162、30秒にて、得られた原反フィルムを流れ方向（MD）に3倍、幅方向（TD）に5倍延伸し、フィルム総厚み20 $\mu\text{m}$ の多層二軸延伸フィルムを得た。

得られた多層二軸延伸フィルムの評価結果を表2に示した。具体的な試験方法は以下の通りである。

【0087】

〔延伸時のデラミ〕

多層二軸延伸した後の多層二軸延伸フィルムのA層とB層の層間での剥離を目視で確認し、デラミの有無を確認した。

20

【0088】

〔延伸後の均一性〕

二軸延伸した後の多層二軸延伸フィルムを目視で確認し、表面が滑らかで均一なフィルムである場合は、皺がよるなど不均一な部分がある場合は×とした。

【0089】

〔グロス(光沢度)〕

二軸延伸した後の多層二軸延伸フィルムをJIS Z8741に準拠し、入射角45°、受光角45°の条件で測定した5点のデータの平均値を光沢度とした。

【0090】

30

〔実施例2、比較例1～4〕

A層を形成する樹脂組成物を表2に記載の割合で混合（ドライブレンド）して調製した。また、各層の厚みを表2記載のように変更したこと以外は、実施例1と同様の方法により、多層二軸延伸フィルムを得た。得られた多層二軸延伸フィルムの評価結果を表2に示した。

【0091】

〔比較例5〕

表2に記載の組成にて、A層に重合体A1-1を単独で用いて二軸延伸フィルムを作成した。

【0092】

40



【表 2】

表 2

				実施例 1	実施例 2	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5
	重合体 (A1)	A1-1	質量%							
延伸前 フィルム 構成	A層	A2-1	質量%	80	70	10	40			
		A2-2	質量%				10	40		
		共重合体 (A2)								
	B層	ポリプロピレン F113G	質量%	100	100	100	100	100	100	100
延伸フイ ルム評価	各層厚み (A層/B層/A層)			50/200/50	50/200/50	50/200/50	50/200/50	50/200/50	50/200/50	50/200/50
	厚み比 (A層/B層)			25	25	25	25	25	25	25
	延伸倍率			3.0 × 5.0	3.0 × 5.0	3.0 × 5.0	3.0 × 5.0	3.0 × 5.0	3.0 × 5.0	3.0 × 5.0
	延伸後の均一性			○	○	○	○	○	○	×
	延伸後のフィルム厚み			20	20	20	20	20	20	
	延伸時のデラミ			○	○	○	○	○	○	×
	グロス, 45°			102	88	67	68	67	63	

10

20

30

40

---

フロントページの続き

(72)発明者 植草 貴行

千葉県袖ヶ浦市長浦 5 8 0 - 3 2 三井化学株式会社内

審査官 塩屋 雅弘

(56)参考文献 国際公開第 2 0 1 3 / 0 9 9 8 7 6 ( W O , A 1 )

特開 2 0 0 2 - 2 2 5 2 0 7 ( J P , A )

特開 2 0 1 5 - 0 9 3 9 1 8 ( J P , A )

国際公開第 2 0 1 4 / 2 0 8 5 6 4 ( W O , A 1 )

特開 2 0 1 5 - 2 1 4 6 5 8 ( J P , A )

特開 2 0 1 1 - 1 7 3 2 9 8 ( J P , A )

米国特許出願公開第 2 0 0 7 / 0 2 4 9 7 9 2 ( U S , A 1 )

中国特許出願公開第 1 0 1 4 7 9 3 2 7 ( C N , A )

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

B 3 2 B 1 / 0 0 - 4 3 / 0 0

B 4 4 C 1 / 1 6 - 1 / 1 7 5

C 0 8 C 1 9 / 0 0 - 1 9 / 4 4

C 0 8 F 6 / 0 0 - 2 4 6 / 0 0

3 0 1 / 0 0

G 0 2 B 5 / 3 0