

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公開特許公報(A)

(11)公開番号
特開2024-116045
(P2024-116045A)

(43)公開日 令和6年8月27日(2024.8.27)

(51)国際特許分類	F I	テーマコード (参考)
B 3 2 B 27/32 (2006.01)	B 3 2 B 27/32	E 3 E 0 8 6
B 2 9 C 55/02 (2006.01)	B 2 9 C 55/02	4 F 1 0 0
B 6 5 D 65/40 (2006.01)	B 6 5 D 65/40	D 4 F 2 1 0

審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全23頁)			
(21)出願番号	特願2023-22038(P2023-22038)	(71)出願人	000005887
(22)出願日	令和5年2月15日(2023.2.15)		三井化学株式会社 東京都中央区八重洲二丁目2番1号
		(74)代理人	110001070 弁理士法人エスエス国際特許事務所
		(72)発明者	塩崎 七央 千葉県市原市千種海岸3 三井化学株式 会社内
		(72)発明者	江川 真 千葉県市原市千種海岸3 三井化学株式 会社内
		(72)発明者	神谷 希美 千葉県市原市千種海岸3 三井化学株式 会社内
		(72)発明者	水間 貴大
最終頁に続く			

(54)【発明の名称】 延伸フィルム、積層体、および包装体

(57)【要約】

【課題】本発明の目的は、リサイクル性と、機械的強度、透明性等のフィルムとして好ましい性能とを両立するだけでなく、延伸性能に優れた延伸ポリオレフィンフィルム、ならびにこの延伸フィルムを用いた積層体およびこの積層体を用いた包装袋を提供することである。

【解決手段】中間層と、その中間層の片面または両面に形成されたスキン層を有する延伸フィルムであって、下記の要件（１）および要件（２）を満たす延伸フィルム；

要件（１）：中間層はエチレン系重合体（Ａ）とプロピレン系重合体（Ｂ）を含む；

要件（２）：スキン層はプロピレン系重合体（Ｃ）を含む。

【選択図】なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

中間層と、その中間層の片面または両面に形成されたスキン層を有する延伸フィルムであって、下記の要件（１）および要件（２）を満たす延伸フィルム；

要件（１）：中間層はエチレン系重合体（Ａ）とプロピレン系重合体（Ｂ）を含む；

要件（２）：スキン層はプロピレン系重合体（Ｃ）を含む。

【請求項 2】

前記の中間層のプロピレン系重合体（Ｂ）が、

要件（b 1）DSCで測定される融点が120℃未満または融点が観測されない。

要件（b 2）プロピレン由来の構成単位を51～90モル%、

エチレン由来の構成単位を7～24モル%、および

炭素原子数4～20の α -オレフィン由来の構成単位を3～25モル%含むを満たすプロピレン・エチレン・ α -オレフィン共重合体

（ここで、プロピレン由来の構成単位、エチレン由来の構成単位、および炭素原子数4～20の α -オレフィン由来の構成単位の合計を100モル%とする）であることを特徴とする請求項1に記載の延伸フィルム。

【請求項 3】

前記の中間層のプロピレン系重合体（Ｂ）が、プロピレン・エチレン共重合体およびプロピレン・1-ブテン共重合体からなる群より選ばれる1種以上のプロピレン・ α -オレフィン共重合体を含む請求項1に記載の延伸フィルム。

【請求項 4】

前記のスキン層がエチレン系重合体（Ｄ）を3から40質量%含む（ただし、プロピレン系重合体（Ｃ）およびエチレン系重合体（Ｄ）の合計は100質量%である。）含む請求項1に記載の延伸フィルム。

【請求項 5】

縦方向に2から8倍、横方向に2から16倍延伸された請求項1に記載の延伸フィルム。

【請求項 6】

請求項1に記載の延伸フィルム、およびシーラントフィルム層を有する積層体。

【請求項 7】

前記のシーラントフィルム層が、エチレン系重合体（Ｅ）からなる請求項7に記載の積層体。

【請求項 8】

前記の積層体が、さらに、印刷層、バリア層およびエンボス加工層から選ばれる少なくとも一つの機能層を有し、その機能材層が、前記の中間層、スキン層、およびシーラントフィルム層から選ばれる少なくとも一つの層に、隣接しているか、または接着剤層を介して接している請求項7に記載の積層体。

【請求項 9】

請求項6に記載の積層体からなる包装体。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、延伸フィルム、積層体、ならびに包装体に関する。

【背景技術】

【0002】

包装材料として、基材フィルムとシーラントフィルムとを備える積層体が知られている。基材フィルムには、剛性等の機械的強度の観点で延伸フィルムが採用される傾向にある。例えば、特許文献1には基材フィルムに二軸延伸ポリエチレンテレフタレート（PET）フィルムと、シーラントフィルムとしてポリエチレン（PE）やポリプロピレン（PP）等のポリオレフィンフィルムとを備える積層体が記載されている。

【0003】

一方で、環境負荷低減等の観点から、高いリサイクル性を有する包装材料が求められている。リサイクルにおいては、プラスチック材料が単一種の高分子から構成されている、いわゆるモノマテリアルであることが好ましい。そのため、エチレン系重合体またはプロピレン系重合体を主成分とした基材フィルム、シーラントフィルム、および積層体が好ましい。しかしながら、エチレン系重合体のみで構成されるフィルムは、その延伸加工性が必ずしも優れたものではなく、その解決が検討されていた。

【0004】

例えば特許文献2では、PE樹脂シートの架橋度を厚み方向に変化させることで、特に低温での延伸加工性の向上を実現している。しかし、架橋度を厚み方向に変化させたフィルムの製造は工程を複雑化し、コスト面でも不利であり、また架橋を行うことはリサイクル性の観点からも望ましいものではない。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献1】特開2017-178357号公報

【特許文献2】特開昭61-74819号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明の目的は、リサイクル性と、機械的強度、透明性等のフィルムとして好ましい性能とを両立するだけでなく、延伸性能に優れた延伸ポリオレフィンフィルム、ならびにこの延伸フィルムを用いた積層体およびこの積層体を用いた包装袋などの包装体を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明の概要は、以下の[1]～[9]に関する。

[1]

中間層と、前記の中間層の片面または両面に形成されたスキン層を有する延伸フィルムであって、下記の要件(1)および要件(2)を満たす延伸フィルム；

要件(1)：中間層はエチレン系重合体(A)とプロピレン系重合体(B)を含む；

要件(2)：スキン層はプロピレン系重合体(C)を含む。

[2]

前記の中間層のプロピレン系重合体(B)が、

要件(b1) DSCで測定される融点が120℃未満または融点が観測されない。

要件(b2) プロピレン由来の構成単位を51～90モル%、

エチレン由来の構成単位を7～24モル%、および

炭素原子数4～20の α -オレフィン由来の構成単位を3～25モル%含むを満たすプロピレン・エチレン・ α -オレフィン共重合体

(ここで、プロピレン由来の構成単位、エチレン由来の構成単位、および炭素原子数4～20の α -オレフィン由来の構成単位の合計を100モル%とする)であることを特徴とする[1]に記載の延伸フィルム。

[3]

前記の中間層のプロピレン系重合体(B)が、プロピレン・エチレン共重合体およびプロピレン・1-ブテン共重合体からなる群より選ばれる1種以上のプロピレン・ α -オレフィン共重合体を含む、[1]または[2]のいずれかに記載の延伸フィルム。

[4]

前記のスキン層がエチレン系重合体(D)を3から40質量%含む(ただし、プロピレン系重合体(C)およびエチレン系重合体(D)の合計は100質量%である。)含む[1]～[3]のいずれかに記載の延伸フィルム。

[5]

縦方向に 2 から 8 倍、横方向に 2 から 1 6 倍延伸された [1] ～ [4] のいずれかに記載の延伸フィルム。

[6]

[1] ～ [5] のいずれかに記載の延伸フィルム、およびシーラントフィルム層を有する積層体。

[7]

前記のシーラントフィルム層が、エチレン系重合体 (E) からなる [6] に記載の積層体。

[8]

前記の積層体が、さらに、印刷層、バリア層およびエンボス加工層から選ばれる少なくとも一つの機能材層を有し、その機能材層が、前記の中間層、スキン層、およびシーラントフィルム層から選ばれる少なくとも一つの層に、隣接しているか、または接着剤層を介して接している [6] または [7] に記載の積層体。

[9]

[6] ～ [9] に記載の積層体からなる包装体。

【発明の効果】

【 0 0 0 8 】

本発明の延伸フィルムは、中間層に所定の割合で特定のエチレン系重合体とプロピレン系重合体を含む樹脂組成物を用い、スキン層にポリプロピレン樹脂を用いることにより、優れた延伸加工性が得られ、層の間の接着強度が向上した延伸ポリオレフィンフィルムとすることができる。

【 0 0 0 9 】

また、本発明の延伸フィルムを用いた積層体は、シーラントフィルム層との間の層間接着性に優れることで、シーラントフィルム層のヒートシール強度に優れ、剥離（デラミネーション）によるヒートシール強度の低下が発生しにくいという優れた性能を発揮することができる。

【発明を実施するための形態】

【 0 0 1 0 】

〔延伸フィルム〕

本発明の延伸フィルムは、中間層、および中間層の片面または両面に形成されたスキン層を有する。

【 0 0 1 1 】

《中間層》

中間層は、エチレン系重合体 (A) とプロピレン系重合体 (B) を含む樹脂組成物からなる。

本発明における中間層を構成する樹脂組成物は、エチレン系重合体 (A) 5 0 ～ 9 7 質量%と、プロピレン系重合体 (B) を 3 ～ 5 0 質量%とを含むことが好適である。

さらに、好ましくは、エチレン系重合体 (A) 6 0 ～ 9 5 質量%と、プロピレン系重合体 (B) を 5 ～ 4 0 質量%とを含むことである（ただし、エチレン系重合体 (A) およびプロピレン系重合体 (B) の合計は 1 0 0 質量%である。）。

【 0 0 1 2 】

＜エチレン系重合体 (A) ＞

エチレン系重合体 (A) はエチレン由来の構成単位を 5 0 モル%超を含有しており、例えば、エチレンの単独重合体、エチレンを主要モノマーとし、それと炭素原子数 3 以上、好ましくは炭素原子数 3 ～ 2 0 の α -オレフィンの少なくとも 1 種類以上との共重合体、エチレン・酢酸ビニル共重合体、そのケン化物及びアイオノマー等が挙げられる。

【 0 0 1 3 】

具体的には、ポリエチレン、エチレン・プロピレン共重合体、エチレン・1-ブテン共重合体、エチレン・1-ペンテン共重合体、エチレン・1-ヘキセン共重合体、エチレン

10

20

30

40

50

・ 4-メチル-1-ペンテン共重合体、エチレン・1-オクテン共重合体等のエチレンを主要モノマーとし、これと炭素原子数3~20の α -オレフィンの少なくとも1種類以上との共重合体が挙げられる。これらの α -オレフィン含量は、好ましくは0.1~15モル%、より好ましくは、0.5~10モル%である。ただし、エチレン含量および α -オレフィン含量の合計を100モル%とする。

【0014】

エチレン系重合体(A)における、エチレン由来の構成単位の割合は50モル%超となり、この点において後述のプロピレン系重合体(B)から区別される。

エチレン系重合体(A)は1種類の重合体でもよく、2種類以上の重合体でもよい。

【0015】

本発明に係るエチレン系重合体(A)の密度(ASTM D 1505)は、好ましくは900~970 kg/m³であり、さらに好ましくは930~965 kg/m³である。

【0016】

密度が900 kg/m³以上であることにより、剛性が向上する。また、密度が970 kg/m³以下であることにより、延伸加工性、強靱性および透明性が向上する。

エチレン系重合体(A)のメルトフローレート(ASTM D 1238、190℃、2.1 kg 荷重)は、いずれも、好ましくは0.1~15 g/10分、より好ましくは0.5~10 g/10分、さらに好ましくは1.0~5.0 g/10分である。メルトフローレートがこの範囲内にあると、既存の成形機を用いて高い成形速度で成形できるとともに、成形安定性が向上するので好ましい。

【0017】

エチレン系重合体(A)の具体例としては、ポリエチレンの名称で製造・販売されているエチレンの重合体が挙げられる。具体的には、高圧法低密度ポリエチレン(LDPE)、直鎖状低密度ポリエチレン(LLDPE)、高密度ポリエチレン(HDPE)が好ましく、直鎖状低密度ポリエチレン及び高密度ポリエチレンがより好ましい。

【0018】

高密度ポリエチレン

エチレン系重合体(A)として好ましく用いられる高密度ポリエチレン(HDPE)は、エチレン単独重合体であってもよく、またはエチレンと α -オレフィンの共重合体であってもよい。

【0019】

高密度ポリエチレンの密度(ASTM D 1505)は、940~970 kg/m³が好ましく、さらに好ましくは940~965 kg/m³である。密度が970 kg/m³以下であることにより、延伸加工性、強靱性および透明性が向上する。

【0020】

好ましく用いられる高密度ポリエチレンとしては、市販品であれば、たとえばハイゼックス 3300F(MFR=1.1 g/10分、密度=950 kg/m³、(株)プライムポリマー製)が挙げられる。

【0021】

高密度ポリエチレンは、例えば気相法、溶液法、バルク法、スラリー法などの公知の重合合法により、チーグラ-ナッタ系触媒などの公知の触媒の存在下に、エチレンを単独重合またはエチレンと炭素原子数が3~20の α -オレフィンを共重合することにより製造することができる。炭素原子数が3~20の α -オレフィンの具体例としては、プロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-デセン、1-ウンデセン、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ヘキセンおよび4,4-ジメチル-1-ヘキセン等が挙げられる。これらは1種単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。また、エチレンおよび α -オレフィンはバイオマス由来のものであってもよいし、化石燃料由来のものであってもよいし、バイオマス由来モノマーと化石燃料由来モノマーの両方を用いてもよい。

10

20

30

40

50

【0022】

直鎖状低密度ポリエチレン

直鎖状低密度ポリエチレンの密度 (ASTM D 1505) は、 $900 \sim 940 \text{ kg/m}^3$ が好ましく、さらに好ましくは $930 \sim 940 \text{ kg/m}^3$ である。密度が 900 kg/m^3 以上であることにより、剛性が向上する。

【0023】

好ましく用いられる高密度ポリエチレンとしては、市販品であれば、たとえばエボリュース P 4020 (MFR = 1.8 g/10分 、密度 = 936 kg/m^3 、(株) プライムポリマー製) が挙げられる。

【0024】

直鎖状低密度ポリエチレンは、例えば気相法、溶液法、バルク法、スラリー法などの公知の重合法により、チーグラー触媒等のマルチサイト触媒や、メタロセン触媒等のシングルサイト触媒をはじめとする従来公知の触媒の存在下に、エチレンと炭素原子数が $3 \sim 20$ の α -オレフィンとを共重合することにより製造することができる。炭素原子数が $3 \sim 20$ の α -オレフィンの具体例としては、プロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-デセン、1-ウンデセン、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ヘキセンおよび4,4-ジメチル-1-ヘキセン等が挙げられる。これらは1種単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。また、エチレンおよび α -オレフィンはバイオマス由来のものであってもよいし、化石燃料由来のものであってもよいし、バイオマス由来モノマーと化石燃料由来モノマーの両方を用いてもよい。

【0025】

<プロピレン系重合体 (B)>

プロピレン系重合体 (B) はプロピレン由来の構成単位を50モル%超を含有しており、例えばプロピレンの単独重合体、プロピレンを主要モノマーとし、それと炭素原子数2以上、好ましくは $2 \sim 20$ の α -オレフィン (ただしプロピレンを除く) の少なくとも1種類以上との共重合体等が挙げられる。具体的にはプロピレン・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プロピレンを主要モノマーとし、これと炭素原子数 $2 \sim 20$ の α -オレフィンの少なくとも1種類以上との共重合体等が挙げられる。

【0026】

これらの共重合体中の α -オレフィンの割合は、好ましくは $10 \sim 49$ モル%、より好ましくは、 $20 \sim 35$ モル%である。ただし、プロピレン含量および α -オレフィン含量の合計を100モル%とする。

【0027】

プロピレン系重合体 (B) における、プロピレン由来の構成単位の割合は50モル%超となり、この点においてエチレン系重合体 (A) から区別される。

プロピレン系重合体 (B) は1種類の重合体でもよく、2種類以上の重合体でもよい。

【0028】

プロピレン系重合体 (B) のメルトフローレート (ASTM D 1238、 230°C 、 2.1 kg 荷重) は、いずれも、好ましくは $0.1 \sim 15 \text{ g/10分}$ 、より好ましくは $0.5 \sim 15 \text{ g/10分}$ である。メルトフローレートがこの範囲内にあると、既存の成形機を用いて高い成形速度で成形できるとともに、成形安定性が向上するので好ましい。

【0029】

プロピレン系重合体 (B) としては、プロピレン・エチレン共重合体、プロピレン・エチレン・ α -オレフィン共重合体等が好ましい。

これらの共重合体はエチレンを含むことで、柔軟性に優れ、中間層とスキン層との層間の強度を向上することができる。プロピレン・エチレン・ α -オレフィン共重合体は好ましくは下記の要件 (b1) および要件 (b2) を満たすものであり、より好ましくは下記の要件 (b3) ~ 要件 (b5) を更に満たし、さらに好ましくは下記の要件 (b6) ~ 要

10

20

30

40

50

件 (b 7) をも更に満たす。

【0030】

要件 (b 1) 示差走査熱量計 (DSC) で測定される融点 (T_m) が 120°C 未満であるか、または示差走査熱量計 (DSC) で融点が観測されない。

この融点 (T_m) は 100°C 以下であるか、または融点が観測されないことが好ましい。

【0031】

ここで、融点が観測されないとは、示差走査熱量計 (DSC) 測定で $-150\sim 200^{\circ}\text{C}$ の範囲において、結晶融解熱量が 1 J/g 以上の結晶融解ピークが観測されないことをいう。なお、融点とは、 $23^{\circ}\text{C}\pm 2^{\circ}\text{C}$ で 72 時間以上の状態調節を実施した後の試験体を、 -40°C まで冷却してから昇温速度 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ で測定したときに得られる DSC 曲線上で検出された融点のことである。

10

【0032】

プロピレン系重合体 (B) は柔軟性とスキン層を構成するプロピレン系共重合体 (C) との相溶性の両方の観点から、プロピレン系重合体 (B) は、プロピレンとエチレンと炭素原子数 4~20 の α -オレフィンとの三元共重合体であることが好ましく、より具体的には下記の要件 (b 2) を満たすものである。

【0033】

要件 (b 2) プロピレン由来の構成単位を 51~90 モル%、エチレン由来の構成単位を 7~24 モル%、炭素原子数 4~20 の α -オレフィン由来の構成単位を 3~25 モル%含む。

20

【0034】

この範囲は、好ましくはプロピレン由来の構成単位を 60~85 モル%、エチレン由来の構成単位を 10~20 モル%、炭素原子数 4~20 の α -オレフィン由来の構成単位を 3~23 モル%を含み、より好ましくはプロピレン由来の構成単位を 65~80 モル%、エチレン由来の構成単位を 11~19 モル%、炭素原子数 4~20 の α -オレフィン由来の構成単位を 4~21 モル%を含む (ここで、プロピレン由来の構成単位とエチレン由来の構成単位と炭素原子数 4~20 の α -オレフィン由来の構成単位の合計を 100 モル%とする)。

炭素原子数 4~20 の α -オレフィンとしては、その入手容易性から 1-ブテン、1-ヘキセン、1-オクテン、または 1-デセンが好ましく、1-ブテンが特に好ましい。

30

【0035】

要件 (b 3) ショアー A 硬度が 20~90 の範囲にある。

ショアー A 硬度がこの範囲にあると、柔軟性の観点で好ましい。ショアー A 硬度は 20~90 の範囲にあることがより好ましく、23~85 の範囲にあることがさらに好ましく、25~80 にあることが特に好ましい。ショアー A 硬度は、プロピレン系重合体 (B) を $190\sim 230^{\circ}\text{C}$ で加熱溶融させた後 $15\sim 25^{\circ}\text{C}$ の冷却温度でプレス成形して得られた試験体を、 $23^{\circ}\text{C}\pm 2^{\circ}\text{C}$ の環境下で 72 時間以上保管した後、A 型測定器を用い、押針接触後直ちに目盛りを読むことによって得られる値である (ASTM D-2240 に準拠)。

40

【0036】

要件 (b 4) ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) により測定した重量平均分子量 (M_w) と数平均分子量 (M_n) との比 (M_w/M_n) (分子量分布) が 1.2~3.5 である。

【0037】

この比 (M_w/M_n) は 1.5~2.9 であることが好ましく、1.8~2.4 であることがさらに好ましい。このような分子量分布を有することが、低分子量成分が少ないためべた付き感が抑制されるなどの点で好ましい。前記重量平均分子量 (M_w) および数平均分子量 (M_n) は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) によりポリスチレン換算で得られた数値である。

50

【0038】

要件 (b5) ^{13}C -NMRにより算出したアイソタクティックトライアド分率 (mm) が85～99.9%である。

アイソタクティックトライアド分率 (mm) は、好ましくは85～97.5%、特に好ましくは90～97%である。アイソタクティックトライアド分率 (mm) がこの範囲にあると、エチレンや1-ブテンなどのモノマーを多く共重合させた場合でも、完全に結晶性が失われないため、機械物性などの観点で本発明において好適である。アイソタクティックトライアド分率 (mm) は、国際公開2004-087775号パンフレットの第21頁第7行から第26頁第6行までに記載された方法を用いて測定することができる。

10

【0039】

要件 (b6) 示差走査熱量計 (DSC) によりガラス転移温度 (T_g) が -50°C ～ -10°C の範囲に観測される。

ガラス転移温度 (T_g) がこの範囲内であると、低温での機械物性の観点で好ましい。ガラス転移温度 (T_g) は、示差走査熱量計 (DSC) により、上記の要件 (b1) に記載の条件により求めることができる。

【0040】

要件 (b7) MFR (ASTMD1238、 230°C 、2.16 kg 荷重) が0.5～500 g/10分である。

MFRがこの範囲内であると、加工性や機械物性の観点で好ましい。MFRは、1～100 g/10分が好ましく、2～50 g/10分がより好ましく、3～30 g/10分がさらに好ましく、4～20 g/10分が特に好ましい。

20

【0041】

プロピレン系重合体 (B) は、例えば気相法、溶液法、バルク法、スラリー法などの公知の重合法により、チーグラ-ナッタ系触媒、メタロセン系触媒などの公知の触媒の存在下に、プロピレンを単独重合またはプロピレンと炭素原子数が2～20 (ただしプロピレンを除く) の α -オレフィンを共重合することにより製造することができる。炭素原子数が2～20の α -オレフィンの具体例としては、エチレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-ヘブテン、1-オクテン、1-デセン、1-ウンデセン、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ヘキセンおよび4, 4-ジメチル-1-ヘキセン等が挙げられる。これらは1種単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。また、プロピレンおよび α -オレフィンはバイオマス由来のものであってもよいし、化石燃料由来のものであってもよいし、バイオマス由来モノマーと化石燃料由来モノマーの両方を用いてもよい。

30

【0042】

中間層は、本発明の目的を損なわない範囲で、エチレン系重合体 (A) およびプロピレン系重合体 (B) 以外の樹脂、粘着付与剤、耐候安定剤、耐熱安定剤、帯電防止剤、スリップ剤、アンチブロッキング剤、滑剤、顔料、染料、可塑剤、老化防止剤、塩酸吸収剤、酸化防止剤などの添加剤を必要に応じて含むことができる。

中間層は、1層からなっているとしてもよく、複数の層からなっているとしてもよい。

40

【0043】

《スキン層》

スキン層は、プロピレン系重合体 (C) を含む樹脂組成物からなる。

スキン層を構成する樹脂組成物は、プロピレン系重合体 (C) とともに、エチレン系重合体 (D) を含むことも好ましい。スキン層の樹脂組成物はプロピレン系重合体 (C) 60～97質量%と、エチレン系重合体 (D) を3～40質量%とを含むことが好ましい。(ただし、プロピレン系重合体 (C) およびエチレン系重合体 (D) の合計は100質量%である。)

【0044】

<プロピレン系重合体 (C)>

50

本発明のスキン層を構成するプロピレン系重合体（C）はプロピレン由来の構成単位を50モル%超を含有しており、例えば、プロピレンの単独重合体、プロピレンを主要モノマーとし、それと炭素原子数2以上、好ましくは2～20の α -オレフィン（ただし、プロピレンを除く）、ジエン化合物の少なくとも1種類以上との共重合体等が挙げられる。共重合体の場合、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い。具体的にはプロピレン・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-ブテン共重合体等のプロピレンを主要モノマーとし、これと炭素原子数2～20の α -オレフィンの少なくとも1種類以上との共重合体が挙げられる。これらの共重合体中の α -オレフィンの割合は、好ましくは0～15モル%、より好ましくは、0.5～10モル%である。ただし、プロピレン含量および α -オレフィン含量の合計を100モル%とする。プロピレン系重合体（C）は1種類の重合体でもよく、2種類以上の重合体でもよい。

10

【0045】

プロピレン系重合体（C）としては、ASTM D1238に準拠して230℃、2.16kg荷重の条件で測定したMFRが好ましくは0.1～30g/10分、より好ましくは0.5～20g/10分であり、融点（Tm）が好ましくは120～165℃、より好ましくは135～165℃である。

【0046】

プロピレン系重合体（C）は、チーグラ-ナッタ系触媒、メタロセン系触媒などの公知の触媒の存在下に、モノマーを気相法、バルク法、スラリー法などの公知の重合法により重合させることにより製造することができる。モノマーはバイオマス由来のものであってもよいし、化石燃料由来のものであってもよい。また、バイオマス由来モノマーと化石燃料由来モノマーの両方を用いてもよい。

20

【0047】

<エチレン系重合体（D）>

エチレン系重合体（D）はエチレン由来の構成単位を50モル%超を含有しており、例えば、エチレンを主要モノマーとし、それと炭素原子数3以上、好ましくは炭素原子数3～20、の α -オレフィンの少なくとも1種類以上との共重合体、エチレン・酢酸ビニル共重合体、そのケン化物及びアイオノマー等が挙げられる。具体的には、ポリエチレン、エチレン・プロピレン共重合体、エチレン・1-ブテン共重合体、エチレン・1-ペンテン共重合体、エチレン・1-ヘキセン共重合体、エチレン・4-メチル-1-ペンテン共重合体、エチレン・1-オクテン共重合体などのエチレンを主要モノマーとし、これと炭素原子数3～20の α -オレフィンの少なくとも1種類以上との共重合体が挙げられる。これらの α -オレフィン含量は、好ましくは2～20モル%、より好ましくは、5～15モル%である。ただし、エチレン含量および α -オレフィン含量の合計を100モル%とする。

30

【0048】

エチレン系重合体（D）の密度（ASTM D1505）は、870～900kg/m³が好ましく、さらに好ましくは875～895kg/m³である。該密度が875kg/m³以上であることにより、スリップ性、ブロッキング性等の表面特性が向上する。また、該密度が900kg/m³以下であることにより、柔軟性に優れ、中間層とスキン層との層間強度を向上することができる。

40

【0049】

エチレン系重合体（D）のメルトフローレート（ASTM D1238、190℃、2.1kg荷重）は、いずれも、好ましくは0.1～15g/10分、より好ましくは0.5～10g/10分、さらに好ましくは1.0～5.0g/10分である。メルトフローレートがこの範囲内にあると、既存の成形機を用いて高い成形速度で成形できるとともに、成形安定性が向上するので好ましい。

【0050】

エチレン系重合体（D）は、例えば気相法、溶液法、バルク法、スラリー法などの公知

50

の重合法により、チーグラ触媒等のマルチサイト触媒や、メタロセン触媒等のシングルサイト触媒をはじめとする従来公知の触媒の存在下に、エチレンと α -オレフィンを共重合することにより製造することができる。 α -オレフィンは、炭素原子数が3～20の α -オレフィンであり、その例としては、プロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-デセン、1-ウンデセン、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ヘキセンおよび4,4-ジメチル-1-ヘキセン等が挙げられる。これらは1種単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。また、エチレンおよび α -オレフィンはバイオマス由来のものであってもよいし、化石燃料由来のものであってもよいし、バイオマス由来モノマーと化石燃料由来モノマーの両方を用いてもよい。

10

【0051】

スキン層は、本発明の目的を損なわない範囲で、プロピレン系重合体（C）の他に、エチレン系重合体（D）、それ以外の樹脂、粘着付与剤、耐候安定剤、耐熱安定剤、帯電防止剤、スリップ剤、アンチブロッキング剤、滑剤、顔料、染料、可塑剤、老化防止剤、塩酸吸収剤、酸化防止剤などの添加剤を必要に応じて含むことができる。

【0052】

本発明の延伸フィルムは、中間層およびスキン層を有する積層フィルムである。本発明の延伸フィルムにおいては、中間層とスキン層とが直接積層される。

本発明の延伸フィルムにおいては、スキン層の厚み（スキン層が中間層の両面に存在する場合には、両スキン層の厚みの和）が、延伸フィルム総厚みの5～60%であることが好ましい。

20

【0053】

スキン層の厚みがフィルム総厚みの5%以上を占めることで、延伸加工性が向上し、高い延伸倍率で安定した延伸が可能となる。この観点から、スキン層の厚み（スキン層が中間層の両面に存在する場合には、両スキン層の厚みの和）は、延伸フィルム総厚みの5%以上であることが好ましく、10%以上であることが特に好ましい。

【0054】

スキン層の厚みがフィルム総厚みの60%以下であることで、本発明の延伸フィルムはリサイクル性に優れたものとなる。この観点から、スキン層の厚み（スキン層が中間層両面に存在する場合には、両スキン層の厚みの和）は、延伸フィルム総厚みの30%以下であることが好ましく、10%以下であることが特に好ましい。

30

【0055】

本発明の延伸フィルムは原反を延伸することで得られる。原反の製造方法としては、フィルム成形する公知の方法を用いることができる。具体的には、T-ダイキャストフィルム成形方法、インフレーションフィルム成形方法等を採用し得る。また原反の製造条件は特に限定されるものではないが、原反の厚みは0.3mm～2.5mmが好ましい。より好ましくは0.5mm～2.0mmである。

【0056】

延伸方法としては、延伸フィルムを製造する公知の方法を用いることができる。具体的には、ロール延伸、テンター延伸、チューブラー延伸あるいは当該延伸方法の組み合わせ等を挙げることができる。延伸（面）倍率としては、通常4～60倍、好ましくは10～50倍である。

40

【0057】

本発明の延伸フィルムの総厚みには特に限定はされないが、実用的な強度を確保する等の観点から、延伸を行った場合には延伸後において、通常15 μ m以上であり、好ましくは18 μ m以上、より好ましくは20 μ m以上である。一方、用途との関係で十分な可撓性を有する等の観点からは、通常500 μ m以下であり、好ましくは300 μ m以下、より好ましくは100 μ m以下である。

【0058】

<シーラントフィルム層>

50

シーラントフィルム層はエチレン系重合体（E）から構成されるフィルムである。

シーラントフィルム層は、通常厚みが10～200 μm 、好ましくは11～100 μm 、さらに好ましくは12～90 μm の範囲にある。

【0059】

積層体のうち、シーラントフィルム層は中間層とスキン層から構成される基材フィルム（延伸フィルム）よりも厚いことが好ましい。これにより積層体が単一素材に近づき、リサイクルが容易となる利点がある。シーラントフィルム層の厚みの合計は積層体の全体の厚みの通常50%以上であり、好ましくは60%以上であり、より好ましくは70%以上である。

シーラントフィルム層は、一層からなっているいてもよいが、複数の層からなっているいてもよい。

10

【0060】

＜エチレン系重合体（E）＞

エチレン系重合体（E）としては、エチレンの単独重合体、エチレンを主要モノマーとし、それと炭素原子数3以上、好ましくは炭素原子数3～20、の α -オレフィンの少なくとも1種類以上との共重合体、エチレン・酢酸ビニル共重合体、そのケン化物及びアイオノマー等が挙げられる。具体的には、ポリエチレン、エチレン・プロピレン共重合体、エチレン・1-ブテン共重合体、エチレン・1-ペンテン共重合体、エチレン・1-ヘキセン共重合体、エチレン・4-メチル-1-ペンテン共重合体、エチレン・1-オクテン共重合体などのエチレンを主要モノマーとし、これと炭素原子数3～20の α -オレフィンの少なくとも1種類以上との共重合体が挙げられる。

20

【0061】

これらの α -オレフィン含量は、好ましくは0.5～15モル%、より好ましくは、1.0～13モル%である。ただし、エチレン含量および α -オレフィン含量の合計を100モル%とする。

エチレン系重合体（E）は1種類の重合体でもよく、2種類以上の重合体でもよい。

【0062】

エチレン系重合体（E）の密度（ASTM D 1505）は、870～930 kg/m^3 が好ましい。該密度が875 kg/m^3 以上であることにより、スリップ性、ブロッキング性等の表面特性が向上する。また、密度が930 kg/m^3 以下であることにより、低温シール性に優れる。

30

【0063】

エチレン系重合体（E）のメルトフローレート（ASTM D 1238、190℃、2.1 kg 荷重）は、いずれも、好ましくは0.1～20 $\text{g}/10$ 分、より好ましくは0.3～15 $\text{g}/10$ 分、さらに好ましくは0.5～9.0 $\text{g}/10$ 分である。メルトフローレートがこの範囲内にあると、既存の成形機を用いて高い成形速度で成形できるとともに、成形安定性が向上するので好ましい。

【0064】

シーラントフィルム層を構成するエチレン系重合体（E）は、例えば気相法、溶液法、バルク法、スラリー法などの公知の重合法により、チーグラ触媒等のマルチサイト触媒や、メタロセン触媒等のシングルサイト触媒をはじめとする従来公知の触媒の存在下に、エチレンを単独重合またはエチレンと炭素原子数が3～20の α -オレフィンを共重合することにより製造することができる。炭素原子数が3～20の α -オレフィンの具体例としては、プロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-デセン、1-ウンデセン、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ヘキセンおよび4,4-ジメチル-1-ヘキセン等が挙げられる。これらは1種単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。また、エチレンおよび α -オレフィンはバイオマス由来のものであってもよいし、化石燃料由来のものであってもよいし、バイオマス由来モノマーと化石燃料由来モノマーの両方を用いてもよい。

40

50

【0065】

シーラントフィルム層の成形方法は、種々の公知の方法を用いることができる。無延伸フィルムの成形方法としては、具体的には、Ｔダイキャストフィルム成形方法、インフレーションフィルム成形方法等を採用し得る。延伸フィルムの成形方法としては、具体的には、ロール延伸、テンター延伸、チューブラー延伸あるいは当該延伸方法の組み合わせ等を挙げることができる。延伸（面）倍率としては、通常１．５～５０倍、好ましくは２～４０倍である。

【0066】

シーラントフィルム層には、エチレン系重合体（Ｅ）の他に、他の樹脂、粘着付与剤、耐候安定剤、耐熱安定剤、帯電防止剤、スリップ防止剤、アンチブロッキング剤、滑剤、顔料、染料、可塑剤、老化防止剤、塩酸吸収剤、酸化防止剤などの添加剤を含むことができる。

【0067】

〔積層体〕

本発明の積層体は基材フィルムとしての延伸フィルムとシーラントフィルム層が積層されてなる。積層体の態様としては、例えば、基材フィルム（延伸フィルム）／シーラントフィルム層のような構造が挙げられるが、これらに限定されない。例えば、基材フィルム（延伸フィルム）を複数用いる場合、１種単独で用いても２種以上でもよい。また、基材フィルム（延伸フィルム）とシーラントフィルム層との間に任意で接着剤層を設けることもできる。

【0068】

本発明の積層体は、ヒートシール強度に優れる。このヒートシール強度は、以下の方法で測定することができる。

すなわち、２体の同一の積層体のシーラントフィルム層の面同士を重ね合せ、下部のシールバーの温度を７０℃、上部のシールバーの温度を１２０℃で、０．２ＭＰａの圧力で１秒間、シールバーの幅５ｍｍで加熱した後、放冷し、次いで、ヒートシールされた試験体から、それぞれ１５ｍｍ幅の試験片を切り取り、各試験片について、積層体面に対して１８０°方向にクロスヘッドスピード３００ｍｍ／分でヒートシール部を剥離した際の剥離強度（Ｎ／ｍｍ）により示される。

【0069】

ヒートシール強度に優れるとは、上述したヒートシール強度の測定において、各試験片のヒートシール強度の中で最大の値が、好ましくは１９Ｎ／１５ｍｍ以上である。積層体のヒートシール強度の最大値が１９Ｎ／１５ｍｍ以上であると、シール部の密着性に優れ重量物の充填も可能となる。

【0070】

ここで、上述したヒートシール強度の測定において、シールされた２体の積層体は、中間層とスキン層の間で層間剥離（デラミネーション）が発生し、剥離強度が低下する。本発明においては、層間剥離が発生する点（最大剥離強度となる点）における剥離距離が１０ｍｍ以上、好ましくは２０ｍｍ以上であることが好ましい。積層体の層間剥離が発生するまでの剥離距離が１０ｍｍ以上であると、剥離強度の低下が抑制され、重量物の充填も可能となる。

【0071】

本発明の積層体は、ドライラミネーション、ノンソルベントラミネーション、サンドラミネーション等により、基材フィルム（延伸フィルム）とシーラントフィルム層とを積層して製造してもよく、溶融押出しラミネートにより基材フィルム（延伸フィルム）とシーラントフィルム層を積層して製造してもよい。中でも、ドライラミネーションまたは溶融押出しラミネーションで積層する方法が好適である。

【0072】

また、本発明の積層体は、基材フィルム（延伸フィルム）およびシーラントフィルム層に特定の機能を付与するため、印刷層、バリア層およびエンボス加工層から選ばれる少な

10

20

30

40

50

くとも一つの機能層をさらに有することができる。基材フィルム（延伸フィルム）およびシーラントフィルム層への機能材付与という観点から、これらの機能層は、基材フィルム（延伸フィルム）およびシーラントフィルム層から選ばれる少なくとも一つのフィルムと隣接しているか、接着剤層を介して接していることが好ましい。

【0073】

すなわち、機能材層が、延伸フィルムの中間層、スキン層、およびシーラントフィルム層から選ばれる少なくとも一つの層に、隣接しているか、または接着剤層を介して接している構成となる。

【0074】

機能材層には、無機化合物や無機酸化物を蒸着させた樹脂フィルム、金属箔、特殊な機能を有する樹脂の塗布膜、絵柄が印刷された樹脂フィルム等を用いることができる。

ここで、用いられる樹脂フィルムとしては、延伸フィルムに用いられた重合体と同様な重合体フィルムを用いることが可能であり、さらには、同様なプラスチック配合剤や添加剤等を、他の性能に悪影響を与えない範囲で目的に応じて、任意の量で添加することもできる。

【0075】

樹脂フィルムとしては、例えば、延伸フィルムに用いる重合体として上記された樹脂等の重合体の群から選ばれる1種又は2種以上の樹脂等の重合体を使用し、押し出し法、キャスト成形法、Tダイ法、切削法、インフレーション法等従来から使用されている製膜化法により、又は、2種以上の樹脂を使用して多層共押し出し製膜化法により、製造することができる。さらに、フィルムの強度、寸法安定性、耐熱性の観点から、例えば、テンター方式、あるいは、チューブラー方式等を利用して、1軸ないし2軸方向に延伸することができる。

【0076】

例えば、積層体が、機能材層としてバリア層を含む場合は、バリア層を金属蒸着、コーティング法または共押出法によって基材フィルム（延伸フィルム）およびシーラントフィルム層中の一層として形成する工程、および前述した基材フィルム（延伸フィルム）およびシーラントフィルム層とを積層する工程を含む積層体の製造方法と同様の方法により製造することができる。

本発明の積層体は、前述のとおりヒートシール強度に優れている。さらに、層間剥離が発生するまでの剥離距離が長く、重量物の充填も可能となる。

【0077】

〔包装体〕

本発明の積層体から包装体を得ることができる。本発明の積層体により形成された包装体はヒートシール性に優れている。

例えば、積層体のシーラントフィルム層同士を向かい合わせ、あるいは積層体のシーラントフィルム層と他のフィルムとを向かい合わせ、その後、外表面側から所望の容器形状になるようにその周囲の少なくとも一部をヒートシールすることによって、包装袋などの包装体を製造することができる。また、その周囲を全てヒートシールすることにより、密封された包装体を製造することができる。この包装体の成形加工を内容物の充填工程と組み合わせると、すなわち、包装体の底部および側部をヒートシールした後内容物を充填し、次いで上部をヒートシールすることで内容物入りの包装体を製造することができる。この包装体は、スナック菓子やパン等の固形物、粉体、あるいは液体材料の自動包装装置に利用することができる。

【0078】

また、積層体からなるシートを、予め真空成形や圧空成形等によりカップ状に成形した容器、射出成形等で得られた容器、あるいは紙基材から形成された容器等に内容物を充填し、その後本発明の積層体を蓋材として被覆し、容器上部ないし側部をヒートシールすることにより、内容物を包装した容器が得られる。この容器は、即席麺、味噌、ゼリー、プリン、スナック菓子等の包装に好適に利用される。

10

20

30

40

50

【0079】

積層体または包装体は、モノマテリアル構成をとる場合、リサイクル品としても有効利用することができる。積層体または包装体のリサイクル品である成形体は、新たに重合されたプラスチックの使用量を減らすことを可能にし、環境負荷低減に貢献可能な物品となる。

【実施例】

【0080】

次に、本発明の積層体について実施例を示してさらに詳細に説明するが、本発明はこれらによって限定されるものではない。

実施例および比較例に使用した材料を以下に示す。

【0081】

<延伸フィルム>

<中間層>

<エチレン系重合体(A)>

LLDPE-1:直鎖状低密度ポリエチレン

(MFR(190℃、2.16kg荷重、ASTM D1238に準拠):1.8g/10分、密度:936kg/m³、融点:127℃)

HDPE:高密度ポリエチレン

(MFR(190℃、2.16kg荷重、ASTM D1238に準拠):1.1g/10分、密度:950kg/m³、融点:132℃)

【0082】

<プロピレン系重合体(B)>

プロピレン系重合体1:

プロピレン樹脂組成物1は、プロピレン・エチレン・1-ブテン共重合体(以下、「PEBR-1」)90質量%およびプロピレン単独重合体10質量%を熔融混練した後、ペレットにして用いた。

【0083】

なお、PEBR-1は、WO2006/57361号パンフレットに記載された<第三の発明>の実施例欄に記載された方法に準じて調製された、エチレン含有量16モル%、プロピレン含有量78モル%、1-ブテン含有量6モル%からなり、通常法で測定した融点(Tm)が観測されず、MFR(230℃、2.16kg荷重、ASTM D1238に準拠)が6g/10分であり、ガラス転移温度が-21℃であり、GPCで測定した分子量分布(Mw/Mn)が2.0であり、ショアーA硬度(ASTM D-2240に準拠)が73であり、¹³C-NMRにより算出したアイソタクティックトライアド分率(mm)が92%である。

プロピレン単独重合体は、再昇温法により測定された融点(Tm)が160℃、MFR(230℃、2.16kg荷重、ASTM D1238に準拠)が7g/10分である。

【0084】

プロピレン系重合体2:

プロピレン樹脂組成物2は、プロピレン・エチレン・1-ブテン共重合体(以下、「PEBR-2」)85質量%およびプロピレン単独重合体15質量%を熔融混練した後、ペレットにして用いた。

なお、PEBR-2は、WO2006/57361号パンフレットに記載された<第三の発明>の実施例欄に記載された方法に準じて調製された、エチレン含有量14モル%、プロピレン含有量67モル%、1-ブテン含有量19モル%であり、通常法で測定した融点(Tm)が観測されず、MFR(230℃、2.16kg荷重、ASTM D1238に準拠)が6g/10分であり、ガラス転移温度が-29℃であり、GPCで測定した分子量分布(Mw/Mn)が2.1であり、ショアーA硬度(ASTM D-2240に準拠)が30であり、¹³C-NMRにより算出したアイソタクティックトライアド分率(mm)が92%である。

プロピレン単独重合体は、プロピレン樹脂組成物 1 と同様である。

【0085】

PER-1：プロピレン・エチレン共重合体

(MFR (230℃、2.16 kg 荷重、ASTM D1238 に準拠)：8 g / 10 分、融点：75℃、プロピレン含量：87モル%、エチレン含量：13モル%)

PER-2：プロピレン・エチレン共重合体

(MFR (190℃、2.16 kg 荷重、ASTM D1238 に準拠)：1.4 g / 10 分、融点：46℃、プロピレン含量：78モル%、エチレン含量：22モル%)

PBR-1：プロピレン・1-ブテン共重合体

(MFR (230℃、2.16 kg 荷重、ASTM D1238 に準拠)：7 g / 10 分、融点：75℃、プロピレン含量：75モル%、1-ブテン含量：25モル%)

PBR-2：プロピレン・1-ブテン共重合体

(MFR (230℃、2.16 kg 荷重、ASTM D1238 に準拠)：7 g / 10 分、MFR (190℃、2.16 kg 荷重、ASTM D1238 に準拠)：3 g / 10 分、融点：98℃、プロピレン含量：85モル%、1-ブテン含量：15モル%)

【0086】

<スキン層>

<プロピレン系重合体 (C)>

rPP：ランダムポリプロピレン

(MFR (230℃、2.16 kg 荷重、ASTM D1238 に準拠)：7 g / 10 分、融点：140℃、プロピレン含量：95モル%、エチレン含量：1モル%、1-ブテン含量：4モル%)

【0087】

<エチレン系重合体 (D)>

EBR-1：エチレン・1-ブテン共重合体

(MFR (190℃、2.16 kg 荷重) = 3.6 g / 10 分、密度 885 kg / m³、融点：66℃、エチレン含量：89モル%、1-ブテン含量：11モル%)

【0088】

<シーラントフィルム>

<エチレン系重合体 (E)>

LLDPE-2：直鎖状低密度ポリエチレン

(MFR (190℃、2.16 kg 荷重、ASTM D1238 に準拠)：1.0 g / 10 分、密度：918 kg / m³、融点：121℃)

LLDPE-3：直鎖状低密度ポリエチレン

(MFR (190℃、2.16 kg 荷重、ASTM D1238 に準拠)：1.0 g / 10 分、密度：916 kg / m³、融点：122℃)

EBR-2：エチレン・1-ブテン共重合体

(MFR (190℃、2.16 kg 荷重) = 1.2 g / 10 分、密度：885 kg / m³、融点：66℃、エチレン含量：89モル%、1-ブテン含量：11モル%)

【0089】

各 (共) 重合体の融点、延伸加工性、引張特性、ヘイズ (透明性)、中間層とスキン層の層間剥離強度、ヒートシール強度、および層間剥離が発生するまでの剥離距離は、以下の測定方法により測定した。

【0090】

<融点の測定方法>

(エチレン系重合体 (A)、プロピレン系重合体 (C)、エチレン系重合体 (D)、およびエチレン系重合体 (E))

示差走査熱量計 (パーキンエルマー社製 DSC Pyris 1) を用いて、窒素雰囲気下 (20 mL / min)、約 5 mg の試料を 200℃まで昇温し 10 分間保持した後、10℃ / min で 30℃まで冷却し 5 分間保持し、次いで 10℃ / min で 200℃まで昇

10

20

30

40

50

温させた時の結晶熔融ピークのピーク頂点の温度を融点（ T_m ）とした。

【0091】

（プロピレン系重合体）

示差走査熱量計（セイコーインスツルメンツ社製 DSC）を用いて、窒素雰囲気下（ 20 mL/min ）、測定用アルミパンに約 10 mg の試料を詰めて、 100°C/min で 200°C まで昇温し 5 分間保持した後、 10°C/min で -100°C まで冷却し、次いで 10°C/min で 200°C まで昇温させた時の結晶熔融ピークのピーク頂点の温度を融点（ T_m ）とした。

【0092】

<延伸加工性の測定方法>

表 1 に示す層構成で、中間層およびスキン層が積層された延伸原反フィルムを作製した。バッチ式二軸延伸機を用い、表 1 に示す温度（ 124°C から 132°C 、 4°C 間隔）で、縦横 4 倍×4 倍または 4 倍×8 倍で延伸を行い、破断がなく延伸することができる倍率を評価した。

【0093】

<引張特性>

実施例等で作製された延伸フィルム（厚さ $25\text{ }\mu\text{m}$ ）から幅 15 mm ×長さ 150 mm の試験片を切り出した。次いで、JIS K 7127 に準拠し、（株）島津製作所製万能材料試験機「AG-X-5」を用いて、チャック間距離 50 mm 、引張速度 300 mm/分 、かつ温度 23°C の条件で、試験片の引張弾性率（ Y_M ）（単位： MPa ）を測定した。MD 方向、TD 方向について測定した。

【0094】

<ヘイズ（透明性）>

（株）村上色彩技術研究所製ヘイズメータ「HM-150」を用い、JIS K 7136 に準拠し、実施例等で作製された延伸フィルム（厚さ $25\text{ }\mu\text{m}$ ）について測定を行い、下式にヘイズを算出した。

$$\text{ヘイズ}(\%) = 100 \times (\text{拡散透過光量}) / (\text{全透過光量})$$

【0095】

<全光線透過率（%）>

（株）村上色彩技術研究所製ヘイズメータ「HM-150」を用い、実施例等で作製された延伸フィルム（厚さ $25\text{ }\mu\text{m}$ ）について全光線透過率（%）を測定した。

【0096】

<延伸フィルムの中間層とスキン層の層間剥離強度>

実施例等で作製された延伸フィルム 2 枚を重ね合せ、重ねたフィルムの両面を厚さ $50\text{ }\mu\text{m}$ のテフロン（登録商標）シートで挟んで試験体とした。

【0097】

次いで、ヒートシールテスター（テスター産業（株）製、TP-701-G 型）のヒートシールバーを幅 5 mm ×長さ 300 mm に設置し、下ヒートシールバーを 70°C に設定した。上ヒートシールバーを 150°C に設定し、その試験体（テフロンシート／延伸フィルム／延伸フィルム／テフロンシート）をシールバーで挟み、 0.2 MPa の圧力で 1.0 秒間ヒートシールした。

【0098】

その後、試験体のヒートシール部分を含むように 15 mm 幅のスリットを入れ、シールされていない部分を手で引っ張ることで一部界面を剥離し、引張試験機（「島津製作所社製、EZ-X」）を用いて、 300 mm/分 の速度で層間の接着強度（層間強度）を測定した。上記操作を 5 回行い、その平均値をヒートシール強度とした。

【0099】

すなわち、これが、延伸フィルムのスキン層と中間層の間の接着強度（層間強度）、すなわち、ヒートシール強度をとなる。

【0100】

10

20

30

40

50

＜積層体のヒートシール強度および層間剥離が発生するまでの剥離距離の測定方法＞

実施例等で作製された積層体2枚のシーラントフィルム層面同士を重ね合せ、重ねたフィルムの両面を厚さ50 μ mのテフロン（登録商標）シートで挟んで試験体とした。次いで、ヒートシールテスター（テスター産業（株）製、TP-701-G型）のヒートシールバーを幅5mm×長さ300mmに設置し、下ヒートシールバーを70℃に設定した。

【0101】

上ヒートシールバーを120℃に設定し、その試験体（テフロンシート／積層体／積層体／テフロンシート）をシールバーで挟み、0.2MPaの圧力で1.0秒間ヒートシールした。テフロンシートを外し、ヒートシールされたフィルム部分を約23℃で1日間放置した。

10

【0102】

その後、フィルムのヒートシール部分を含むように15mm幅のスリットを入れ、シールされていない部分を引張試験機（「島津製作所社製、EZ-X」）に固定し、300mm／分の速度でフィルムの剥離強度を測定した。上記操作を5回行い、その平均値をヒートシール強度（単位N／15mm）とした。

【0103】

上記ヒートシール強度の測定において、いずれの実施例、比較例も剥離途中に延伸フィルムの間層とスキン層の間で層間剥離が発生し、剥離強度が低下した。層間剥離が発生する点（最大剥離強度となる点）における剥離距離を、層間剥離が発生するまでの剥離距離（単位mm）とした。

20

【0104】

【実施例1】

（シーラントフィルムの作製）

以下に示すシーラントフィルム層用の樹脂組成物を押出機に供給し、インフレーション成形ダイ（ダイス径200mm ϕ 、リップギャップ2.0mm）を使用し、樹脂温度を200℃に、シーラントフィルム層の厚さが50 μ mになるように押出機の押出し量を設定し、シーラントフィルムを作製した。

【0105】

シーラントフィルム層用の樹脂組成物

LLDPE-3、EBR-2をそれぞれ70／30の重量比でブレンドして得られる樹脂組成物。

30

【0106】

（延伸原反フィルムの作製）

以下に示す中間層用の樹脂組成物、およびスキン層用のrPPをそれぞれの押出機に供給し、Tダイ法によって、スキン層／中間層／スキン層の厚み比比率8.0：84.0：8.0となるように層厚み800 μ mの3層共押出フィルムを成形し、延伸原反フィルムを作製した。

【0107】

得られた延伸原反フィルムを用いて、上記の方法にしたがって、延伸加工性を評価した。結果を表1に示す。

40

次いで、延伸原反フィルムを128℃で4×8倍に延伸して得られた延伸フィルムについて、上記の方法にしたがい、ヘイズ、全光線透過率、弾性率、中間層とスキン層の層間強度を測定した。結果を表2に示す。

【0108】

中間層用の樹脂組成物

LLDPE-1、およびプロピレン樹脂組成物1をそれぞれ90／10の重量比でブレンドして得られる樹脂組成物。

【0109】

（積層体の作製）

シーラントフィルムの片面に延伸原反フィルムを128℃で4×8倍に延伸して得られ

50

た延伸フィルムを、ドライラミネーション法により接着剤層を介して積層し、積層フィルムを作製した。この積層フィルムを用いて上記方法にしたがい、ヒートシール強度、層間剥離が発生するまでの剥離距離を測定した。結果を表 3 に示す。

【0110】

〔実施例 2 ～ 13、比較例 1〕

中間層用の樹脂組成物の組成およびスキン層用の樹脂組成物の組成を表 1 に示した組成に変更したこと以外は実施例 1 と同様にして延伸原反フィルム（無延伸フィルム）を作製した。

得られた延伸原反フィルムを用いて、上記の方法にしたがって、延伸加工性を評価した。結果を表 1 に示す。

10

【0111】

次いで、延伸原反フィルムを 128℃で 4×8 倍に延伸して得られた延伸フィルムについて、上記方法にしたがい、ヘイズ、全光線透過率、弾性率、層間強度を測定した。結果を表 2 に示す。

【0112】

シーラントフィルムの片面に延伸原反フィルムを 128℃で 4×8 倍に延伸して得られた延伸フィルムを、ドライラミネーション法により接着剤層を介して積層し、積層フィルムを作製した。この積層フィルムを用いて上記の方法にしたがい、ヒートシール強度、層間剥離が発生するまでの剥離距離を測定した。結果を表 2 に示す。

【0113】

20

〔実施例 14 ～ 16、比較例 2 ～ 7〕

中間層用の樹脂組成物の組成およびスキン層用の樹脂組成物の組成を表 1 に示した組成に変更したこと、また延伸原反フィルムの厚みを表 1 に示した厚みに変更したこと以外は実施例 1 と同様にして延伸原反フィルムを作製した。

得られた延伸原反フィルムを用いて、上記の方法にしたがって、延伸加工性を評価した。結果を表 1 に示す。

【0114】

30

40

50

【表 1 - 1】

表 1 (前半)

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12
延伸 原反 フィルム	スキン層 (上面)	層比		8	8	8	8	8	8	8	8	8	8
		rPP	重量部	100	100	100	90	100	100	100	100	100	100
		LLDPE-1	重量部										
		HDPE	重量部										
	中間層	EBR-1	重量部			10							
		層比		84	84	84	84	84	84	84	84	84	84
		LLDPE-1	重量部	90	70	90	90	90	90	90	90	90	90
		HDPE	重量部										
		プロピレン樹脂組成物-1	重量部	10	30								
		プロピレン樹脂組成物-2	重量部			10	10						
		PER-1	重量部					10	30				
		PER-2	重量部							30			
		PBR-1	重量部								10	30	
		PBR-2	重量部										10
延伸温度	スキン層 (下面)	層比		8	8	8	8	8	8	8	8	8	8
		rPP	重量部	100	100	100	90	100	100	100	100	100	100
		LLDPE-1	重量部										
		HDPE	重量部										
	原反厚み	EBR-1	重量部				10						
		〔μm〕		800	800	800	800	800	800	800	800	800	800
		124℃		4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8
		128℃		4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8
		132℃		4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8

【 0 1 1 5 】

10

20

30

40

50

【表 1 - 2】

表 1 (後半)

		実施例13	実施例14	実施例15	実施例16	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7
延伸 原反 フィルム	スキン層 (上面)	層比										
		rPP	重量部	8	8	8	8	8	8	8	8	8
		LLDPE-1	重量部	100	100	100	100	100	100			
		HDPE	重量部						100	100	100	100
		EBR-1	重量部									
	中間層	層比										
		LLDPE-1	重量部	84	84	84	84	84	84	84	84	84
		HDPE	重量部	90			100		100	100		
		プロピレン樹脂組成物-1	重量部		90	70		100			100	100
		プロピレン樹脂組成物-2	重量部		10	30						
		PER-1	重量部									
		PER-2	重量部									
		PBR-1	重量部									
		PBR-2	重量部	30								
		層比										
	スキン層 (下面)	rPP	重量部	8	8	8	8	8	8	8	8	8
		LLDPE-1	重量部	100	100	100	100	100				
		HDPE	重量部						100	100	100	100
		EBR-1	重量部									
	原反厚み	[μm]										
延伸温度	124℃	4X8	4X8	800	800	800	4X8	4X8	4X4	800	400	800
	128℃	4X8	4X8	4X8	4X8	4X8	4X8	4X8	4X4	延伸不可	延伸不可	延伸不可
	132℃	4X8	4X8	4X8	4X8	4X8	4X8	4X8	4X4	延伸不可	4X4	延伸不可

【 0 1 1 6 】

10

20

30

40

50

表 2

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	実施例13	比較例1
延伸温度	128	128	128	128	128	128	128	128	128	128	128	128	128	128
延伸倍率	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8	4×8
厚み	25	27	26	26	27	26	27	26	27	23	25	25	25	23
へイズ	2.1	3.6	2.3	3.9	3.8	2.1	4.6	2.4	5.8	1.6	4.2	1.8	3.9	1.2
全光線透過率	91.1	90.2	91.0	89.8	90.9	91.2	90.3	91.1	89.6	91.3	90.3	90.5	90.8	91.6
延伸 フィルム の物性	MD [MPa]	1190	780	1140	730	1150	1240	930	1090	700	1340	1080	1240	1540
		TD [MPa]	1740	1130	1640	1200	1530	1740	1220	1080	1970	1560	1630	2080
	スキン層と中間層 の間の接着強度 (層間強度) [N/15mm]		3.6	4.2	3.1	3.6	4.7	2.4	3	3.3	3.4	2.1	3	1.6

【 0 1 1 7 】

10

20

30

40

50

【表 3】

表 3			実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	実施例13	比較例1	
積層体の構成	延伸フィルム	延伸温度 [°C]	128	128	128	128	128	128	128	128	128	128	128	128	128	128	
		延伸倍率	4 × 8	4 × 8	4 × 8	4 × 8	4 × 8	4 × 8	4 × 8	4 × 8	4 × 8	4 × 8	4 × 8	4 × 8	4 × 8	4 × 8	4 × 8
		厚み [μm]	25	27	26	26	27	26	27	26	26	27					23
	シーラントフィルム	厚み [μm]	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70
物性	ヒートシール強度 [N/15mm]		20.0	20.9	19.7	20.4	22.1	20.2	20.7	19.2	20.0	21.8	21.7	19.6	20.7	18.4	
	層間剥離が発生するまでの剥離距離 [mm]		22.1	44.4	13.4	33.4	37.0	10.8	45.9	16.3	55.2	11.4	12.1	11.6	12.3	8.2	

【産業上の利用可能性】
【0118】

本発明の延伸フィルム、積層体は、リサイクル性と、機械的強度、透明性等のフィルムとして好ましい性能を有すると共に、延伸加工性、層間の接着性も向上したしており、種々の用途に利用可能である。

フロントページの続き

千葉県市原市千種海岸3 三井化学株式会社内
(72)発明者 野田 公憲
千葉県市原市千種海岸3 三井化学株式会社内
(72)発明者 堤田 雄帆
千葉県市原市千種海岸3 三井化学株式会社内
Fターム(参考) 3E086 AB01 AC07 AD01 AD24 BA04 BA13 BA15 BA24 BA33 BB22
BB51 BB85 BB90 CA01 DA06
4F100 AK04A AK04B AK07A AK07B AK07E AK63B AK64B AK66B BA02 BA03
BA04 BA05 EJ39D GB15 HB31D JD02D JL12C YY00A YY00B
4F210 AA04 AA11 AG01 AG03 AH54 AR20 QC05 QG01