

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号

特許第7548008号

(P7548008)

(45)発行日 令和6年9月10日(2024.9.10)

(24)登録日 令和6年9月2日(2024.9.2)

(51)国際特許分類

F I

B 3 2 B 27/32 (2006.01)

B 3 2 B 27/32

E

B 3 2 B 27/00 (2006.01)

B 3 2 B 27/00

A

B 4 4 C 1/17 (2006.01)

B 4 4 C 1/17

E

請求項の数 12 (全22頁)

(21)出願番号 特願2020-536825(P2020-536825)
 (86)(22)出願日 令和2年6月26日(2020.6.26)
 (86)国際出願番号 PCT/JP2020/025213
 (87)国際公開番号 WO2021/014883
 (87)国際公開日 令和3年1月28日(2021.1.28)
 審査請求日 令和5年5月26日(2023.5.26)
 (31)優先権主張番号 特願2019-136070(P2019-136070)
 (32)優先日 令和1年7月24日(2019.7.24)
 (33)優先権主張国・地域又は機関
 日本国(JP)

(73)特許権者 000003159
 東レ株式会社
 東京都中央区日本橋室町2丁目1番1号
 (72)発明者 北村 豊
 滋賀県大津市大江1丁目1番1号 東レ
 株式会社 瀬田工場内
 審査官 芦原 ゆりか

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 積層フィルム及びそれを用いた成型転写箔

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

ポリプロピレン系及びポリエチレン系樹脂を合計で50質量%より多く100質量%以下含む層をA層とし、主成分が環状オレフィン系樹脂であり、かつオレフィン系エラストマーを含む層をB層としたときに、A層及びB層を有し、B層が両側の最表面に位置することを特徴とする、積層フィルム。

【請求項2】

積層フィルムを構成する全成分を100質量%としたときに、環状オレフィン系樹脂を5質量%以上40質量%以下含有することを特徴とする、請求項1に記載の積層フィルム。

【請求項3】

75 における貯蔵弾性率が101MPa以上1,000MPa未満であり、かつ120 における貯蔵弾性率が100MPa以下であることを特徴とする、請求項1又は2に記載の積層フィルム。

【請求項4】

少なくとも一方の最表面の表面自由エネルギーが35mN/m以上45mN/m以下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積層フィルム。

【請求項5】

前記B層の少なくとも一方が、オレフィン系エラストマーを1質量%以上40質量%以下含むことを特徴とする、請求項1～4のいずれかに記載の積層フィルム。

【請求項6】

10

20

80 における熱収縮率が最も大きい方向をX1方向、X1方向とフィルム面内で直行する方向をY1方向としたときに、X1方向及びY1方向の80 における熱収縮率が共に-0.50%以上0.50%以下であることを特徴とする、請求項1~5のいずれかに記載の積層フィルム。

【請求項7】

25 におけるヤング率が最も大きい方向をX2方向、X2方向とフィルム面内で直行する方向をY2方向としたときに、X2方向及びY2方向の25 におけるヤング率が共に50MPa以上500MPa以下であることを特徴とする、請求項1~6のいずれかに記載の積層フィルム。

【請求項8】

前記積層フィルムが、無配向フィルムであることを特徴とする、請求項1~7のいずれかに記載の積層フィルム。

【請求項9】

前記積層フィルムが成型用フィルムであることを特徴とする、請求項1~8のいずれかに記載の積層フィルム。

【請求項10】

前記成型用フィルムが成型転写箔用フィルムであることを特徴とする、請求項9に記載の積層フィルム。

【請求項11】

請求項1~10のいずれかに記載の積層フィルム、意匠層、及び接着層がこの順に位置することを特徴とする、成型転写箔。

【請求項12】

前記積層フィルムと前記意匠層との間に保護層が位置することを特徴とする、請求項11に記載の成型転写箔。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、成型加飾用途に適した積層フィルム、及びそれを用いた成型転写箔に関する。

【背景技術】

【0002】

近年、環境意識の向上により、建材、自動車部品、携帯電話、及び電機製品等の分野で溶剤レス塗装やメッキの代替となる加飾手段への要望が高まっており、フィルムを使用した成型加飾方法の導入が進んでいる。フィルムを使用した三次元形状部材を加飾する方法としては、例えば、熱可塑性樹脂フィルムに意匠層等を積層し、成型と同時に意匠層等を部材に転写させる方法が知られている。

【0003】

このような加飾方法においては、ポリオレフィン樹脂を主成分とするフィルムが用いられているものの、加飾用途に適用すると表面外観の品位や深絞成型性に欠ける点が問題となる。

【0004】

上記の問題点を改善する方法として、特許文献1には、環状オレフィン系樹脂を主成分としたフィルムを適用することにより、優れた表面外観、加工性、及び深絞成型性を実現する方法が開示されている。また、特許文献2には、ポリプロピレン樹脂にポリウレタン樹脂を積層することにより、加工性と成型性を両立する方法が開示されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【文献】国際公開第2012/035956号

【文献】特開2014-198414号公報

【発明の概要】

10

20

30

40

50

【発明が解決しようとする課題】**【0006】**

しかしながら、前述の特許文献1に記載の技術では、加工工程（特にフィルムを断裁する工程や端部をスリットしながら巻き取る工程）において、靱性の不足によるフィルムの端部不良や折れ、破断等が生じることがあり、品位や生産性の面で課題がある。一方、特許文献2に記載の技術では、加工工程（特にフィルムのコーティング、ラミネート、印刷、蒸着等の工程）において、フィルムの寸法変化が生じ、成型性も劣ることが問題となる。

【0007】

本発明は、かかる従来技術の背景に鑑み、品位や生産性、加工工程における寸法安定性、及び成型性に優れる積層フィルム、及び該積層フィルムを用いた成型転写箔を提供することをその課題とする。

10

【課題を解決するための手段】**【0008】**

本発明は、上記課題を解決するために鋭意検討した結果、次によって解決することを見出し、本発明に至った。すなわち、本発明の積層フィルム及び成型転写箔は以下の構成をとる。

【0009】

(1) ポリプロピレン系及びポリエチレン系樹脂を合計で50質量%より多く100質量%以下含む層をA層とし、主成分が環状オレフィン系樹脂であり、かつ熱可塑性エラストマーを含む層をB層としたときに、A層及びB層を有し、B層が両側の最表面に位置することを特徴とする、積層フィルム。

20

【0010】

(2) 積層フィルムを構成する全成分を100質量%としたときに、環状オレフィン系樹脂を5質量%以上40質量%以下含有することを特徴とする、(1)に記載の積層フィルム。

【0011】

(3) 75 における貯蔵弾性率が101MPa以上1,000MPa未満であり、かつ120 における貯蔵弾性率が100MPa以下であることを特徴とする、(1)又は(2)に記載の積層フィルム。

【0012】

(4) 少なくとも一方の最表面の表面自由エネルギーが35mN/m以上45mN/m以下であることを特徴とする、(1)～(3)のいずれかに記載の積層フィルム。

30

【0013】

(5) 前記B層の少なくとも一方が、熱可塑性エラストマーを1質量%以上40質量%以下含むことを特徴とする、(1)～(4)のいずれかに記載の積層フィルム。

【0014】

(6) 前記熱可塑性エラストマーがオレフィン系エラストマーであることを特徴とする、(1)～(5)のいずれかに記載の積層フィルム。

【0015】

(7) 80 における熱収縮率が最も大きい方向をX1方向、X1方向とフィルム面内で直行する方向をY1方向としたときに、X1方向及びY1方向の80 における熱収縮率が共に-0.50%以上0.50%以下であることを特徴とする、(1)～(6)のいずれかに記載の積層フィルム。

40

【0016】

(8) 25 におけるヤング率が最も大きい方向をX2方向、X2方向とフィルム面内で直行する方向をY2方向としたときに、X2方向及びY2方向の25 におけるヤング率が共に50MPa以上500MPa以下であることを特徴とする、(1)～(7)のいずれかに記載の積層フィルム。

【0017】

(9) 前記積層フィルムが、無配向フィルムであることを特徴とする、(1)～(8)

50

のいずれかに記載の積層フィルム。

【0018】

(10) 前記積層フィルムが成型用フィルムであることを特徴とする、(1)~(9)のいずれかに記載の積層フィルム。

【0019】

(11) 前記成型用フィルムが成型転写箔用フィルムであることを特徴とする、(10)に記載の積層フィルム。

【0020】

(12) (1)~(11)のいずれかに記載の積層フィルム、意匠層、及び接着層がこの順に位置することを特徴とする、成型転写箔。

【0021】

(13) 前記積層フィルムと前記意匠層との間に保護層が位置することを特徴とする、(12)に記載の成型転写箔。

【発明の効果】

【0022】

本発明により、品位や生産性、加工工程における寸法安定性、及び成型性に優れる積層フィルム、及び該積層フィルムを用いた成型転写箔を提供することができる。また、本発明の積層フィルム及び成型転写箔を用いることにより、真空成型、圧空成型、及びプレス成型といった各種成型方法において製品部材(成型加飾後の部材)に高い意匠性を付与することができる。そのため、本発明の積層フィルム及び成型転写箔は、例えば、建材、自動車部品、携帯電話、電機製品、及び遊技機部品などの部材の加飾に好適に用いることができる。

【図面の簡単な説明】

【0023】

【図1】積層フィルムのスリット性評価における長手方向の周期と幅方向の振幅を示す図である(フィルム面と垂直な方向から見たときの上面図)。

【発明を実施するための形態】

【0024】

本発明の積層フィルムは、ポリプロピレン系及びポリエチレン系樹脂を合計で50質量%より多く100質量%以下含む層をA層とし、主成分が環状オレフィン系樹脂であり、かつ熱可塑性エラストマーを含む層をB層としたときに、A層及びB層を有し、B層が両側の最表面に位置することを特徴とする積層フィルムである。このような様態とすることにより、積層フィルムは、品位や生産性、加工工程における寸法安定性、及び成型性に優れたものとなる。以下、本発明の積層フィルムについて具体的に説明する。

【0025】

(A層)

本発明の積層フィルムは、靱性を向上させる観点から、ポリプロピレン系及びポリエチレン系樹脂を合計で50質量%より多く100質量%以下含む層をA層としたときに、A層を有することが重要である。ポリプロピレン系やポリエチレン系樹脂は、フィルムとしたときの靱性に優れる。そのため、積層フィルムがA層を有することにより、成型性を保持しつつ、積層フィルムを断裁する工程や端部をスリットしながら巻き取る工程等における端部不良、折れ、及び破断等を軽減することができる。上記観点からA層は、ポリプロピレン系及びポリエチレン系樹脂を合計で75質量%以上100質量%以下含むことが好ましい。

【0026】

ここで、「ポリプロピレン系及びポリエチレン系樹脂を合計で50質量%より多く100質量%以下含む層」とは、ポリプロピレン系樹脂とポリエチレン系樹脂とを含み、かつその含有量の合計が層を構成する全成分の50質量%より多い層、若しくはポリプロピレン系樹脂とポリエチレン系樹脂のいずれか一方を含み、その含有量が層を構成する全成分の50質量%より多い層をいう。なお、層中のポリプロピレン系樹脂が複数種類である場

10

20

30

40

50

合、ポリプロピレン樹脂の含有量は、全てのポリプロピレン系樹脂を合計して算出するものとする。また、層中にポリエチレン系樹脂が複数種類含まれる場合も同様とする。

【0027】

積層フィルムが当該定義を満たす層（A層）を有するか否かは、積層フィルムを構成する少なくとも1つの層が上記要件を満たすか否かを評価することにより行うものとする。すなわち、積層フィルム全体に占めるポリプロピレン系及びポリエチレン系樹脂の含有量が合計で50質量%以下であっても、上記要件を満たす層が1つでも存在する場合はA層を有するものとする。なお、ポリプロピレン系樹脂とポリエチレン系樹脂とを含む場合、両者の比率や組み合わせは、本発明の効果を損なわない限り特に限定されない。

【0028】

ポリプロピレン系樹脂とは、樹脂を構成する全構成単位100モル%中に、プロピレン単位を50モル%以上100モル%以下含む樹脂をいう。A層におけるポリプロピレン系樹脂は、本発明の効果を損なわない限り特に限定されず、例えば、プロピレンの単重合体であるホモポリプロピレン樹脂、エチレンを共重合したランダムポリプロピレン樹脂、ポリプロピレン重合時にエチレン・プロピレン共重合体のエラストマー成分をブレンドしたブロックポリプロピレン樹脂等を単独で又は複数種類組み合わせ用いることができる。中でも、A層と後述するB層との密着性を向上させる観点から、ランダムポリプロピレン樹脂、ブロックポリプロピレン樹脂を単独で又は組み合わせ用いることが好ましく、ランダムポリプロピレン樹脂を単独で用いることがより好ましい。

【0029】

ポリエチレン系樹脂とは、樹脂を構成する全構成単位100モル%中に、エチレン単位を50モル%以上100モル%以下含む樹脂（但し、樹脂を構成する全構成単位100モル%中に、エチレン単位とプロピレン単位を共に50モル%含むものを除く）をいう。A層におけるポリエチレン系樹脂は、本発明の効果を損なわない限り特に限定されず、例えば、低密度ポリエチレン（LDPE：高圧法により測定される密度（以下、単に密度ということがある）が $900 \sim 945 \text{ kg/m}^3$ であるポリエチレン）、高密度ポリエチレン（HDPE：密度が 945 kg/m^3 より大きいポリエチレン）、及び線状低密度ポリエチレン（LLDPE：シングルサイト又はマルチサイト触媒を用いて低圧法により製造され、かつ密度が $900 \sim 945 \text{ kg/m}^3$ であるポリエチレン）からなる群から選ばれる少なくとも一つのポリエチレン系樹脂を好ましく用いることができる。中でも、高密度ポリエチレン及び線状低密度ポリエチレンを単独で又は組み合わせ用いることが好ましく、線状低密度ポリエチレンを単独で用いることがより好ましい。

【0030】

（B層）

本発明の積層フィルムは、韌性、品位、層間密着性、加工工程における寸法安定性、及び成型工程後の意匠層との離型性を良好とする観点から、主成分が環状オレフィン系樹脂であり、かつ熱可塑性エラストマーを含む層をB層としたときに、B層を有し、B層が両側の最表面に位置することが重要である。

【0031】

環状オレフィン系樹脂は、フィルムとしたときに優れた表面外観、加工性、及び成型性を実現することができる反面、脆性が高くフィルム自体が脆くなる点で課題がある。一方で、熱可塑性エラストマーは韌性に優れているため、B層にこれを加えることで環状オレフィン系樹脂の上記性質を改善することができる。すなわち、このような態様とすることにより、積層フィルムの韌性低下を抑えつつ、優れた表面外観、加工工程における寸法安定性、及び成型性を実現できる。また、積層フィルムがA層とB層とが直接積層された構造を有する場合、B層が熱可塑性エラストマーを含むことでA層とB層との密着性も向上する。

【0032】

ここで、「環状オレフィン系樹脂が主成分である」とは、層を構成する全成分を100質量%としたときに、環状オレフィン系樹脂を50質量%より多く99質量%以下含むこ

10

20

30

40

50

とをいう。積層フィルムが当該定義を満たす層（B層）を両側の最表面に有するか否かの判断は、積層フィルムの両側の最表面に位置する層が、上記要件を満たすか否かを評価することにより行うものとする。なお、本発明の積層フィルムはB層が両側の最表面に位置するため、少なくとも2つのB層を有するものであるが、主成分が環状オレフィン系樹脂であり、かつ熱可塑性エラストマーを含む限り、積層フィルムを構成するB層の組成は互いに同一であっても異なってもよい。但し、生産性や耐カール性等の観点から、積層フィルムを構成するB層の組成は互いに同一であることが好ましい。

【0033】

環状オレフィン系樹脂とは、主鎖に脂環構造を有する樹脂であって、樹脂の全構成単位100モル%中に、環状オレフィン単位を合計で50モル%以上100モル%以下含むものをいう。ここで、環状オレフィンとは、炭素原子で形成される環状構造を有し、かつ当該環構造中に炭素-炭素二重結合を有する炭化水素化合物をいい、環状オレフィン単位とは環状オレフィン由来の構成単位をいう。

10

【0034】

環状オレフィン系樹脂を得るためのモノマーは、本発明の効果を損なわない限り特に限定されないが、生産性、積層フィルムを加飾に用いた場合の表面外観の観点から、ビシクロ〔2, 2, 1〕ヘプト-2-エン（以下、ノルボルネンとする。）、シクロペンタジエン、1, 3-シクロヘキサジエン、及びこれらの誘導体が好ましく用いられ、ノルボルネンがより好ましく用いられる。

【0035】

また、環状オレフィン系樹脂は上記要件を満たす限り、1種類の環状オレフィン単位のみを含む樹脂、複数種類の環状オレフィン単位を含む樹脂、1種類又は複数種類の環状オレフィン単位と1種類又は複数種類の鎖状オレフィン単位とを含む樹脂のいずれであってもよい。ここで、鎖状オレフィンとは、炭素-炭素二重結合を有する炭化水素化合物であって、炭素原子で形成される環状構造を有さないものをいい、鎖状オレフィン単位とは鎖状オレフィン由来の構成単位をいう。鎖状オレフィンの例としては、例えばエチレンやプロピレン等が挙げられ、鎖状オレフィン単位の例としてはエチレン単位やプロピレン単位等が挙げられる。なお、環状オレフィン単位と鎖状オレフィン単位の組み合わせは、本発明の効果を損なわない限り特に限定されない。

20

【0036】

B層における環状オレフィン系樹脂は、本発明の効果を損なわない限り1種類のみであっても、複数種類であってもよい。なお、層中の環状オレフィン系樹脂が複数種類である場合、環状オレフィン系樹脂の含有量は、全ての環状オレフィン系樹脂を合計して算出するものとする。

30

【0037】

B層の環状オレフィン系樹脂としては、生産性、成型性、及び積層フィルムを加飾に用いた場合の表面外観の観点から、ポリノルボルネン、ポリシクロペンタジエン、ポリシクロヘキサジエン、及びノルボルネンとエチレンの共重合体のうち少なくとも1つ以上を用いることが好ましく、ポリノルボルネン、及びノルボルネンとエチレンの共重合体の少なくとも一方を用いることがより好ましい。

40

【0038】

続いて、環状オレフィン系樹脂を得るための方法について、例を挙げて説明する。環状オレフィンモノマーのみを重合させた樹脂の製造方法としては、環状オレフィンモノマーの付加重合、あるいは開環重合などの公知の方法を用いることができる。より具体的な例としては、ノルボルネンを開環メタセシス重合させた後に水素化させることや、ノルボルネンを付加重合させることによりポリノルボルネンを得る方法が挙げられる。また、シクロペンタジエン、シクロヘキサジエンを1, 2-, 1, 4-付加重合させた後に水素化させる方法により、ポリシクロペンタジエン、ポリシクロヘキサジエンを得ることができる。

【0039】

環状オレフィンモノマーと鎖状オレフィンモノマーとを共重合させた樹脂の製造方法と

50

しては、環状オレフィンモノマーと鎖状オレフィンモノマーの付加重合等、公知の方法を用いることができる。例えば、ノルボルネンとエチレンを付加重合させる方法により、ノルボルネンとエチレンの共重合体を得ることができる。

【0040】

B層における環状オレフィン系樹脂の含有量は、本発明の効果を損なわない限り特に制限されないが、離型性、加工工程における寸法安定性と成型性の観点から、B層を構成する全成分を100質量%としたときに、60質量%以上90質量%以下であることがより好ましい。

【0041】

B層における熱可塑性エラストマーは、本発明の効果を損なわない限り特に限定されないが、A層とB層とが直接積層されている場合におけるA層とB層との密着性と靱性を向上させる観点、及び環状オレフィン系樹脂との相溶性の観点から、オレフィン系エラストマー、スチレン系エラストマー、及びポリエステル系エラストマーを単独で又は2種類以上組み合わせ用いることが好ましい。

10

【0042】

中でも、環状オレフィン系樹脂との相溶性の観点から、熱可塑性エラストマーがオレフィン系エラストマーであることがより好ましく、エチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、4-メチル-ペンテン等のオレフィンの共重合体(オレフィン系エラストマー)等を用いることがさらに好ましく、エチレン-オレフィン系エラストマー、プロピレン-オレフィン系エラストマーが特に好ましく用いられ、エチレン-オレフィン系エラストマーが最も好ましく用いられる。

20

【0043】

B層における熱可塑性エラストマーの含有量は、本発明の効果を損なわない限り特に制限されないが、積層フィルムの層間密着性や靱性を向上させ、A層とB層との脆性の差を小さくする観点から、B層の少なくとも一方が、熱可塑性エラストマーを1質量%以上40質量%以下含むことが好ましく、1質量%以上39質量%以下含むことがより好ましく、3質量%以上30質量%以下含むことがさらに好ましく、5質量%以上25質量%以下含むことが特に好ましい。なお、B層における熱可塑性エラストマーの含有量は、各B層を構成する全成分を100質量%として算出するものとする。また、生産性や耐カール性等の観点から、両表面のB層における熱可塑性エラストマーの含有量の差が小さいことが好ましく、両表面のB層における熱可塑性エラストマーの含有量が等しいことがより好ましい。

30

【0044】

さらに積層フィルムの靱性を向上させる観点から、B層がポリエチレン系樹脂を含有することが好ましい。このときB層におけるポリエチレン系樹脂の含有量は、積層フィルムの品位を向上させる観点から、B層を構成する全成分を100質量%としたときに、1質量%以上40質量%以下であることが好ましく、1質量%以上39質量%以下であることがより好ましく、3質量%以上20質量%以下であることがさらに好ましい。なお、B層におけるポリエチレン系樹脂としては、前述したA層において好適に用いることができるものと同様のものを好適に用いることができる。

40

【0045】

(積層フィルムの層構成、組成、厚み)

本発明の積層フィルムは、靱性、及び成型性を向上させる観点から、積層フィルムを構成する全成分を100質量%としたときに、環状オレフィン系樹脂を5質量%以上40質量%以下含有することが好ましい。積層フィルムを構成する全成分を100質量%としたときに、環状オレフィン系樹脂を5質量%以上含むことにより積層フィルムの成型性が向上し、環状オレフィン系樹脂の量を40質量%以下に留めることにより靱性の低下が軽減される。上記観点から本発明の積層フィルムは、積層フィルムを構成する全成分を100質量%としたときに、環状オレフィン系樹脂を10質量%以上35質量%以下含有することがより好ましく、環状オレフィン系樹脂を20質量%以上30質量%以下含有すること

50

がさらに好ましい。積層フィルム中の環状オレフィン系樹脂の量は、例えばB層中の環状オレフィン系樹脂の含有量や、積層フィルムに占めるB層の相対厚みを調節することにより、調節することができる。

【0046】

本発明の積層フィルムの層構成は、A層及びB層を有し、B層が両側の最表面に位置する限り特に制限されず、例えば、B層/A層/B層の3層構成の他、A層とB層との間に他の層を有する4層以上の構成とすることができる。また、本発明の積層フィルムの厚みは、本発明の効果を損なわない限り特に限定されないが、生産安定性と成型性を両立する観点から、50 μm 以上200 μm 以下であることが好ましい。

【0047】

(貯蔵弾性率)

本発明の積層フィルムは、加工工程における寸法安定性、及び成型性を両立させる観点から、75 における貯蔵弾性率が101 MPa以上1,000 MPa未満であり、かつ120 における貯蔵弾性率が100 MPa以下であることが好ましい。貯蔵弾性率とは粘弾性特性を物質の応力とひずみ特性の位相遅れに着目して表現した指標をいう。

【0048】

貯蔵弾性率は公知の動的粘弾性測定装置により測定することが可能であり、例えば、動的粘弾性測定装置としてDVE-V4 FTレオスペクトラ(レオロジ製)を用いる場合は以下の方法により測定することができる。まず、60 mm(測定方向)×5 mmの長方形形状の測定サンプルを用意し、動的粘弾性測定装置により下記の測定条件で測定を行うことで、75 における測定方向の貯蔵弾性率(MPa)を求める。なお、後述する120 における貯蔵弾性率(MPa)も同様に測定することができる。

【0049】

<測定条件>

周波数：10 Hz

試長：20 mm

変位振幅：10 μm

測定温度範囲：25 ~ 160

昇温速度：5 /分。

【0050】

75 における貯蔵弾性率が101 MPa以上1,000 MPa未満であるとは、長手方向及び幅方向の75 における貯蔵弾性率が、いずれも101 MPa以上1,000 MPa未満であることをいい、以下120 における貯蔵弾性率も含めて同様に解釈することができる。ここで、長手方向とは、製造過程で積層フィルムが進行する方向(ロール状に巻き取られている場合はロールの巻き方向に相当)をいい、幅方向とは、フィルム面に平行であり、長手方向と直交する方向をいう。

【0051】

なお、積層フィルムがロールに巻き取られたものである場合は、長手方向や幅方向を容易に特定することができるが、ロールに巻かれていないシート状の積層フィルムの場合は、長手方向や幅方向を容易に特定することができない。このような場合においては、任意に選択した一方向について前述の方法により積層フィルムの75 における貯蔵弾性率を測定した後に、積層フィルムを右に5°回転させて同様の測定を行い、これを測定方向と最初の測定方向の成す角が175°に達するまで繰り返して最も値が大きい方向を長手方向として扱うものとする。

【0052】

75 における貯蔵弾性率を101 MPa以上とすることにより、コーティング、ラミネート、印刷、及び蒸着等の加工工程における寸法変化を軽減することができる。また、75 における貯蔵弾性率を1,000 MPa未満とすることにより、靱性を確保しつつ生産性の低下を軽減することができる。なお、加工工程の加工性における寸法安定性の観点より、75 における貯蔵弾性率は200 MPa以上1,000 MPa未満であること

10

20

30

40

50

がより好ましく、300MPa以上1,000MPa未満であることがさらに好ましく、410MPa以上1,000MPa未満であることが特に好ましい。

【0053】

また、積層フィルムの120における貯蔵弾性率を100MPa以下とすることにより、優れた成型性を備えるだけでなく、成型温度も150以下と比較的低温に設定できる。そのため、積層フィルムは金属のような比較的融点の高い部材の成型だけでなく、樹脂のような比較的融点の低い部材の成型にも好適に用いることができるものとなる。さらに高い成型性が必要な場合は、積層フィルムの120における貯蔵弾性率が50MPa以下であることがより好ましく、30MPa以下であることがさらに好ましい。また、120における貯蔵弾性率の下限は、本発明の効果を損なわない限り特に制限はないが、積層フィルムの成型性の観点から0.5MPaあれば十分である。

10

【0054】

本発明の積層フィルムにおいて、75における貯蔵弾性率を101MPa以上1,000MPa未満又は上記の好ましい範囲とし、かつ120における貯蔵弾性率を100MPa以下又は上記の好ましい範囲とする方法は、本発明の効果を損なわない限り特に限定されないが、例えば、積層フィルムを構成する全成分を100質量%としたときに、環状オレフィン系樹脂を5質量%以上40質量%以下含有させる方法などを挙げることができる。

【0055】

また、より容易に積層フィルムの75における貯蔵弾性率を101MPa以上1,000MPa未満又は上記の好ましい範囲とする観点から、B層のガラス転移温度を80以上とした上で、積層フィルム全体の厚み比100%に対するB層の合計厚み比を20%以上50%未満とすることが好ましい。ここで、「B層の合計厚み比」とは、積層フィルム全体に占める該当する全てのB層の合計厚み比をいう。なお、積層フィルムの厚みはダイヤルゲージによって、各層の層厚みはフィルム面と垂直に切断したときの断面写真の観察により測定することができる。

20

【0056】

(熱収縮率)

本発明の積層フィルムは、加工工程における寸法安定性を良好とする観点から、80における熱収縮率が最も大きい方向をX1方向、X1方向とフィルム面内で直行する方向をY1方向としたときに、X1方向及びY1方向の80における熱収縮率が共に-0.50%以上0.50%以下であることが好ましく、共に-0.40%以上0.40%以下であることがより好ましく、共に-0.29%以上0.29%以下であることがさらに好ましい。80における熱収縮率が共に-0.50%以上0.50%以下であることにより、積層フィルムを成型転写箔に加工する際の膨張及び収縮が抑えられる。

30

【0057】

本発明の積層フィルムにおいてX1方向及びY1方向の80における熱収縮率を共に-0.50%以上0.50%以下又は上記の好ましい範囲とする方法は特に限定されないが、例えば、A層中のポリプロピレン系及びポリエチレン系樹脂の含有量や、B層中の環状オレフィン系樹脂の含有量を調整する方法が挙げられる。より具体的には、A層中のポリプロピレン系樹脂及びポリエチレン系樹脂の含有量を減らすことや、B層中の環状オレフィン系樹脂の含有量を増やすことにより、X1方向及びY1方向の80における熱収縮率を小さくすることができる。

40

【0058】

X1方向及びY1方向は、以下の方法により決定することができる。まず、任意に選択した一方向について後述の方法によりフィルムの80における熱収縮率を測定する。続いて、フィルムを右に5°回転させて同様の測定を行い、これを測定方向と最初の測定方向の成す角が175°に達するまで繰り返す。その後、得られた測定値の最大値を特定し、この最大値が得られた方向をX1方向、X1方向とフィルム面内で直行する方向をY1方向とする。

50

【 0 0 5 9 】

80 における熱収縮率は、以下の手順で測定することができる。まず、250 mm (測定方向) × 10 mm の長形状サンプルを用意し、中央に測定方向と平行な長さ200 mm の標線を記して測定サンプルとする。この測定サンプルに3 g の加重をかけて熱風循環式オープンで80 にて5分間熱処理し、下記式に従って積層フィルムの80 における熱収縮率(式中は熱収縮率(%))を算出する。

熱収縮率(%) = {1 - (熱処理後の標線長さ) / (熱処理前の標線長さ)} × 100。

【 0 0 6 0 】

(ヤング率)

本発明の積層フィルムは、韌性と加工工程における寸法安定性を良好とする観点から、25 におけるヤング率が最も大きい方向をX2方向、X2方向とフィルム面内で直行する方向をY2方向としたときに、X2方向及びY2方向の25 におけるヤング率が共に50 MPa以上500 MPa以下であることが好ましく、共に100 MPa以上450 MPaであることがより好ましく、共に200 MPa以上400 MPaであることがさらに好ましい。X2方向及びY2方向の25 におけるヤング率が共に50 MPa以上であることにより、フィルムの自己保持性が向上するため、加工工程(特にフィルムのコーティング、ラミネート、印刷、蒸着等の工程)においてシワ等の加工不良が抑制することができる。一方、X2方向及びY2方向の25 におけるヤング率が共に500 MPa以下であることにより、積層フィルムの韌性が向上するため、積層フィルムを断裁する工程や端部をスリットしながら巻き取る工程等において端部不良、折れ、及び破断等の不具合を抑制することができる。

【 0 0 6 1 】

本発明の積層フィルムにおいて、X2方向及びY2方向の25 におけるヤング率を共に50 MPa以上500 MPa以下とする方法は特に限定されないが、例えば、前記A層のポリプロピレン系及びポリエチレン系樹脂の含有量を調整する方法が挙げられる。より具体的には、A層中のポリプロピレン系樹脂及びポリエチレン系樹脂の含有量を増やすことにより、X2方向及びY2方向の25 におけるヤング率を共に小さくすることができる。

【 0 0 6 2 】

X2方向及びY2方向は、以下の方法により決定することができる。まず、任意に選択した一方向について後述の方法により積層フィルムのヤング率を測定する。続いて、測定方向を右に5°回転させて同様の測定を行い、これを測定方向と最初の測定方向の成す角が175°に達するまで繰り返す。その後、得られた測定値の最大値を特定し、この最大値が得られた方向をX2方向、X2方向とフィルム面内で直行する方向をY2方向とする。なお、上述のX1、Y1とX2、Y2は、前述の通り決定方法が異なるため、必ずしも一致しない。

【 0 0 6 3 】

ヤング率は、以下の手順で測定することができる。まず、100 mm (測定方向) × 10 mm の長形状サンプル用意し、中央に測定方向と平行な長さ50 mm の標線を記して測定サンプルとする。得られた測定サンプルについて、室温23、相対湿度65%の雰囲気下において、引張試験機により引張速度200 mm/minでヤング率(MPa)を測定する。なお、引張試験機は測定が可能なものであれば適宜選定が可能であり、例えば、“TENSILON”(登録商標)UCT-100(オリエンテック製)を好適に用いることができる。

【 0 0 6 4 】

(表面自由エネルギー)

本発明の積層フィルムは、成型転写箔への加工工程における積層フィルムと意匠層との密着性と、成型工程後における積層フィルムと意匠層との離型性を両立させる観点から、少なくとも一方の最表面の表面自由エネルギーが35 mN/m以上45 mN/m以下であることが好ましく、35 mN/m以上40 mN/m以下であればより好ましく、35 mN

/m以上38mN/m以下であればさらに好ましい。少なくとも一方の最表面の表面自由エネルギーが35mN/m以上であることにより、成型工程後における積層フィルムと意匠層との離型性を向上させることができる。一方、少なくとも一方の最表面の表面自由エネルギーが45mN/m以下であることにより、成型転写箔への加工工程における積層フィルムと意匠層との密着性を向上させることができる。なお、フィルムを成型用途に用いる場合における表面自由エネルギーについては、意匠層等を積層する側を上記の範囲とすることが好ましく、その反対側は上記範囲内外を問わず任意の値としてもよい。

【0065】

本発明の積層フィルムにおいて、表面自由エネルギーを35mN/m以上45mN/m以下とする方法は特に限定されないが、例えば、B層中の環状オレフィン系樹脂の含有量を増やすことにより、表面自由エネルギーを大きくすることができる。

10

【0066】

表面自由エネルギーは、以下の手順により測定することができる。まず、室温23℃、相対湿度65%の条件下で24時間調温調湿した積層フィルムについて、水、エチレングリコール、ホルムアミド、及びヨウ化メチレンの4種類の測定液について、接触角計で表面に対する静的接触角を得る。続いて、それぞれの液体について得られた静的接触角とPanzer: J. Colloid Interface Sci., 44, 142 (1973) に記載の、各液体の表面自由エネルギーの分散項、極性項、水素結合項を、北崎寧昭、畑敏雄: 日本接着協会紙, 8, (3) 131 (1972) に記載の「畑、北崎の拡張フォークスの式」に導入し、表面自由エネルギーを求める。

20

【0067】

なお、接触角計は公知のものから選定することができ、例えば、協和界面化学(株)製接触角計CA-D型を好適に用いることができる。

【0068】

(配向)

本発明の積層フィルムは、成型性を良好とする観点から、無配向フィルムであることが好ましい。無配向フィルムとは、面配向係数(f_n)が0.00以上0.05以下であるフィルムをいい、面配向係数(f_n)とは、フィルム面内において屈折率が最も大きい方向における屈折率(N_x)、フィルム面内において屈折率が最も大きい方向に直交する方向の屈折率(N_y)、フィルムの厚み方向の屈折率(N_z)として、次式により算出される値をいう。このとき、各方向の屈折率(N_x 、 N_y 、 N_z)は、ナトリウムD線(波長589nm)を光源としてアッペ屈折率計で測定することができる。なお、面配向係数(f_n)の測定は両面において行い、少なくとも一方の値が上記要件を満たせば無配向フィルムであると見なすことができる。また、上記観点から、積層フィルムの面配向係数(f_n)は、0.00以上0.03以下であることがより好ましく、0.00以上0.02以下であることがさらに好ましい。なお、アッペ屈折計は、例えばNAR-4T((株)アタゴ社製)を用いることができる。

30

【0069】

面配向係数(f_n) = $\{(N_x + N_y) / 2\} - N_z$ 。

【0070】

本発明の積層フィルムの面配向係数を0.00以上、0.05以下とする方法は特に限定されないが、例えば、インフレーション法、チューブラー法、Tダイキャスト法等の公知の方法により製膜し、いずれの方向にも延伸を行わない方法を挙げることができる。中でも、積層フィルムの厚みを容易に50μm以上200μm以下とするために、Tダイキャスト法が好ましく用いられる。

40

【0071】

(用途及び成型転写箔)

本発明の積層フィルムは、特に用途を限定されるものではないが、靱性、品位、成型転写箔への加工工程での意匠層との密着性や寸法安定性、成型工程後の意匠層との離型性、及び成型性に優れるため、成型用フィルムであることが好ましく、成型転写箔用フィルム

50

であることがより好ましい。ここで成型用フィルムとは、表面に形成した意匠層等を成型部材（被着体）に転写するための支持フィルムをいい、成型転写箔とは、成型用フィルムの表面に成型部材へ転写する層を有する積層体をいう。

【0072】

本発明の成型転写箔は、装飾を成型部材に付加するのを容易にする観点から、本発明のフィルム、意匠層、及び接着層がこの順に位置することが重要である。ここで、意匠層とは、着色、柄模様、木目調、金属調、及びパール調などの装飾を成型部材に付加させるための層をいい、接着層とは成型部材と意匠層との接着を担う層をいう。また、本発明の積層フィルム、意匠層、及び接着層がこの順に位置するとは、本発明の積層フィルムと意匠層、意匠層と接着層の間に別の層があるか否かにかかわらず、本発明の積層フィルム、意匠層、及び接着層がこの順に位置している態様全般をいう。このような態様の成型転写箔を用いて成型部材に意匠層を転写し、本発明の積層フィルムを剥離することにより、意匠性に優れた製品部材（成型加飾後の成型部材）を得ることができる。

10

【0073】

また、本発明の成型転写箔は、製品部材の表面を保護する観点から、本発明の積層フィルムと意匠層との間に、保護層が位置することが好ましい。ここで保護層とは、製品部材に転写された意匠層を保護する役割を担う層をいう。このような態様とすることにより、成型転写箔を成型部材に接着させて積層フィルムのみを剥離した後の、製品部材の表面の耐傷性、耐候性、及び意匠性等が向上する。

【0074】

本発明の成型転写箔において保護層に使用される樹脂は、本発明の効果を損なわない限り特に限定されないが、製品部材の外観を損なわない観点から、透明性の高い樹脂であることが好ましい。例えば、ポリエステル系樹脂、ポリオレフィン系樹脂、アクリル系樹脂、ウレタン系樹脂、フッ素系樹脂、ポリ酢酸ビニル系樹脂、塩化ビニル-酢酸ビニル共重合体、エチレン-酢酸ビニル共重合体などを好ましく使用することができる。また、製品部材の耐傷性を向上させる観点からは、熱硬化樹脂、紫外線硬化樹脂、電子線硬化樹脂、及び熱線硬化樹脂を用いることが好ましく、紫外線硬化樹脂、電子線硬化樹脂などを用いることがより好ましく、紫外線硬化型アクリル系樹脂、電子線硬化型アクリル系樹脂を用いることがさらに好ましい。これらの樹脂は、本発明の効果を損なわない限り単独で使用しても、複数組み合わせ使用してもよい。なお、保護層は積層フィルムへのコーティングやラミネート等により形成することができる。

20

【0075】

意匠層の形成方法は、本発明の効果を損なわない限り特に限定されないが、例えば、コート、印刷、及び金属蒸着などを用いることができる。意匠層に使用される樹脂としては、ポリエステル系樹脂、ポリオレフィン系樹脂、アクリル系樹脂、ウレタン系樹脂、フッ素系樹脂、ポリ酢酸ビニル系樹脂、塩化ビニル-酢酸ビニル共重合体、及びエチレン-酢酸ビニル共重合体などが挙げられる。なお、これらの樹脂は、本発明の効果を損なわない限り単独で使用しても、複数組み合わせ使用してもよい。

30

【0076】

意匠層における着色剤は、本発明の効果を損なわない限り特に限定されず、意匠層に用いる樹脂に対する分散性を考慮して、公知の染料、無機顔料、及び有機顔料などから適宜選択することができる。コート又は印刷により意匠層を形成する場合、その厚みは、製品部材の色調保持性や意匠性の観点から、 $1\ \mu\text{m}$ 以上 $100\ \mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $2\ \mu\text{m}$ 以上 $50\ \mu\text{m}$ 以下であることがより好ましく、 $5\ \mu\text{m}$ 以上 $40\ \mu\text{m}$ 以下であることがさらに好ましい。

40

【0077】

また、金属蒸着により意匠層を形成する方法は、本発明の効果を損なわない限り特に限定されず、真空蒸着法、EB蒸着法、スパッタリング法、及びイオンプレーティング法などを用いることができる。金属蒸着における金属は、本発明の効果を損なわない限り特に制限されないが、意匠層の成型性の観点から、インジウムやスズであることが好ましく、

50

インジウムであることがより好ましい。

【0078】

金属蒸着により意匠層を形成する場合、その厚みは、意匠層の成型性と意匠性とを両立させる観点から、 $0.001\mu\text{m}$ 以上 $100\mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $0.01\mu\text{m}$ 以上 $50\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましく、 $0.02\mu\text{m}$ 以上 $30\mu\text{m}$ 以下であることがさらに好ましい。

【0079】

成型部材への接着性を付与する目的で意匠層に設ける接着層の素材は、本発明の効果を損なわない限り特に限定されないが、感熱タイプの樹脂あるいは感圧タイプの樹脂を用いることができる。感熱タイプの樹脂としては、例えば、ポリエステル系樹脂、ポリオレフィン系樹脂、アクリル系樹脂、ポリアミド系樹脂、及びポリウレタン樹脂等が好ましく用いられる。感圧タイプの樹脂としては、例えば、アクリル系樹脂、ポリフェニレンオキシド・ポリスチレン系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、スチレン共重合体系樹脂、ポリスチレン系樹脂、ポリアミド系樹脂、塩素化ポリオレフィン系樹脂、塩素化エチレン-酢酸ビニル共重合体系樹脂、環化ゴム、クマロンインデン系樹脂、ポリウレタン系樹脂、ポリビニルエーテル系樹脂、及びポリ酢酸ビニル樹脂などが好ましく用いられる。なお、本発明の効果を損なわない限りこれらは単独で使用しても、複数組み合わせで使用してもよい。

【0080】

接着層の形成方法は、本発明の効果を損なわない限り特に制限されず、例えばロールコート法、グラビアコート法、コンマコート法などのコート法、及びグラビア印刷法、スクリーン印刷法などの印刷法を用いることができる。

【0081】

本発明の成型用フィルムを用いた成型転写箔を使用して加飾させる成型部材は、本発明の効果を損なわない限り特に限定されないが、例えば、ポリプロピレン、アクリル、ポリスチレン、ポリアクリロニトリル・スチレン、及びポリアクリロニトリル・ブタジエン・スチレンなどの樹脂を主成分とする部材や、アルミニウム、マグネシウム、鉄、チタン、銅、及び亜鉛などの金属を主成分とする部材などが挙げられる。

【0082】

(積層フィルム、成型転写箔の製造方法)

次に、本発明の積層フィルムの製造方法について、B層/A層/B層の2種3層構成を有し、両側のB層の組成が同一のものを例に挙げて具体的に説明するが、本発明の積層フィルムの製造方法はこれに限定されるものではない。

【0083】

積層フィルムのA層を得るための熔融樹脂組成物、すなわち、全成分を100質量%としたときにポリプロピレン系及びポリエチレン系樹脂を合計で50質量%より多く含む熔融樹脂組成物を得るにあたっては、各成分を熔融混練する熔融混練法を用いることが好ましい。熔融混練法については特に制限はなく、ニーダー、ロールミル、バンパリーミキサー、及び単軸又は二軸押出機などの公知の混合機を用いることができる。中でも生産性の観点から、単軸押出機の使用が好ましい。なお、積層フィルムのB層を得るための熔融樹脂組成物、すなわち主成分が環状オレフィン系樹脂であり、かつ熱可塑性エラストマーを含む熔融樹脂組成物を得る方法も同様である。このとき、原料供給部やそれ以降の温度は、樹脂の融点等を考慮して適宜設定することができ、例えば、どちらの押出機においてもこれらの温度を200以上300以下とすることが好ましい。

【0084】

続いて、リーフディスクフィルター等を備える濾過装置を用いて、熔融混練で得られた各熔融樹脂組成物より異物等を除去し、フィードブロックにてB層/A層/B層となるように熔融樹脂組成物を積層させてTダイよりシート状に吐出させる。このとき、Tダイのリップ間隙の大きさを調整することにより、積層フィルムの厚みを調整することができる。さらに、こうして得られた熔融シート状物を、温度を0以上100以下に制御したキャストロール上で冷却固化させることにより、本発明の積層フィルムを得ることができ

10

20

30

40

50

、これをロール状に巻き取ってフィルムロールとすることもできる。

【0085】

また、積層フィルムの表面粗さ(SRa)を容易に調整する観点から、キャストロールの表面粗さは適宜調整することができ、溶融シート状物をキャストロール上で冷却固化させる段階において、ゴム製賦形ロールにてニップをすることも好ましく行うことができる。このとき、キャストロールやゴム製賦形ロールのSRaを大きくすることで、これが転写される積層フィルムのSRaも大きくすることができる。

【0086】

こうして得られた積層フィルムは、品位や生産性、加工工程における寸法安定性、及び成型性に優れるため、例えば成型用、好ましくは成型転写箔用フィルムとして好適に用いることができる。以下、成型転写箔の製造方法について、意匠層がアクリル/ウレタン系のブラックインキ層である例を挙げて具体的に説明するが、本発明の成型転写箔はこれに限定されない。

10

【0087】

先ず、先の方法で得られた積層フィルムのフィルムロールよりフィルムを巻き出し、アプリケーションを用いて、片側の表面にアクリル/ウレタン系のブラックインキを塗工し意匠層を形成する。さらに意匠層の表面に、アプリケーションを用いて接着剤を塗工し、乾燥させることで接着層を形成する。なお、本発明の効果を損なわない限り、接着剤は公知のものから適宜選択したものをを用いることができ、具体例としては日本ケミカル製892Lが挙げられる。こうして得られた成型転写箔は、成型性に加えて成型工程後の意匠層との離型性にも優れる。

20

【実施例】

【0088】

以下に実施例を示して本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれにより何ら限定されるものではない。

【0089】

[測定及び評価方法]

各項目の測定や評価は次に示すような条件で行った。

【0090】

(1) フィルム厚み及び各層の層厚み

30

フィルム厚み(μm)は、ダイヤルゲージを用いてフィルムサンプルの任意の場所(5ヶ所)の厚みを測定し、得られた値の平均値より求めた。積層フィルムの各層の層厚み(μm)は、ライカマイクロシステムズ(株)製金属顕微鏡Leica DMLMを用いて積層フィルムの断面写真を倍率100倍で撮影し、得られた写真より各層ごとに任意の5ヶ所の厚みを測定して得られた値の平均値を算出することにより求めた。

【0091】

(2) 貯蔵弾性率

積層フィルムより60mm(長手方向)×5mm(幅方向)のサンプルを任意に切り出して測定サンプルを得た。次いで、得られた測定サンプルについて、動的粘弾性測定装置(レオロジ製、DVE-V4 FTレオスペクトラ)により下記の測定条件で測定を行い、75及び120における長手方向の貯蔵弾性率(MPa)(JIS K 7244-4:2007)を求めた。75及び120における幅方向の貯蔵弾性率(MPa)も同様に測定、算出した。

40

【0092】

<測定条件>

周波数: 10 Hz

試長: 20 mm

変位振幅: 10 μm

測定温度範囲: 25 ~ 160

昇温速度: 5 /分。

50

【 0 0 9 3 】

(3) 表面自由エネルギー

室温 23℃、相対湿度 65% の条件下で 24 時間調温調湿した積層フィルムについて、水、エチレングリコール、ホルムアミド、及びヨウ化メチレンの 4 種類の測定液について、協和界面化学(株)製接触角計 CA-D 型を用いて、表面に対する静的接触角を求めた。なお、各実施例及び比較例における積層フィルムの最表層は同一組成の層であることから、表面自由エネルギーは両面ともほぼ同じ値になると想定されるため、測定は積層フィルムの意匠層等を形成する側の面のみで行った。続いて、J. Panzer : J. Colloid Interface Sci., 44, 142 (1973). に記載の、各液体の表面自由エネルギーの分散項、極性項、水素結合項を、北崎寧昭、畑敏雄：日本接着協会紙, 8, (3) 131 (1972). に記載の「畑、北崎の拡張フォークスの式」に導入し、連立方程式を解くことにより求めた。

10

【 0 0 9 4 】

(4) 80℃における熱収縮率(%)

積層フィルムより 250mm (測定方向) × 10mm の長形状サンプルを任意に切り出し、中央に測定方向と平行な長さ 200mm の標線を記して測定サンプルとした。この測定サンプルに 3g の加重をかけて熱風循環式オーブンで 80℃にて 5 分間熱処理し、下記式に従って測定方向の収縮率を算出した。続いて、測定方向を右に 5°回転させて同様の測定を行い、測定方向が最初の測定方向から 175°右に回転した方向に達するまで同様の測定を繰り返した。得られた測定値が最大となる方向を X1 方向、X1 方向とフィルム面内で直行する方向を Y1 方向と定め、X1 方向及び Y1 方向の測定値を各方向の 80℃における熱収縮率とした。

20

熱収縮率(%) = {1 - (熱処理後の標線長さ) / (熱処理前の標線長さ)} × 100。

【 0 0 9 5 】

(5) ヤング率

積層フィルムより 100mm (測定方向) × 10mm の長形状サンプルを任意に切り出し、中央に測定方向と平行な長さ 50mm の標線を記して測定サンプルとした。得られた測定サンプルを引張試験機(オリエンテック製“TENSILON”(登録商標)UCT-100)を用いて、室温 23℃、相対湿度 65% の雰囲気下において、引張速度 200mm/min でヤング率(MPa)(JIS K 7161-1:2014)を測定した。続いて、測定方向を右に 5°回転させて同様の測定を行い、測定方向が最初の測定方向から 175°右に回転した方向に達するまで同様の測定を繰り返した。得られた測定値が最大となる方向を X2 方向、X2 方向とフィルム面内で直行する方向を Y2 方向と定め、X2 方向及び Y2 方向の測定値を各方向のヤング率とした。

30

【 0 0 9 6 】

(6) 積層フィルムのスリット性

積層フィルムのスリット性とは加工工程におけるフィルムの端部不良や折れ、破断等の不具合の発生度合い、言い換えれば靱性を評価する指標である。積層フィルムのスリット性の測定方法について、図 1 を参照しながら説明する。フェザー安全剃刀(株)製片刃(FAS-10)をセットした二軸スリッターを用いて、長手方向 1 の長さが 200mm である積層フィルムを、張力 15kg/m、速度 30m/分の条件で、空中カットにより長手方向 1 と平行かつ幅方向 2 と垂直にスリットした。スリット後の幅方向端部 3 をフィルム面と垂直な方向から目視観察することにより凹凸の有無を確認し、凹凸がある場合、その長手方向の周期 4 と幅方向の振幅 5 を金尺(JIS 1 級スケール)によって測定した。フィルムのスリット性は以下の基準で評価し、B 以上を合格とした。

40

【 0 0 9 7 】

A : 凹凸が観察されなかった、又は周期 0.5mm 未満かつ振幅 5mm 未満の凹凸が観察された

B : 周期 0.5mm 以上かつ振幅 5mm 未満の凹凸が観察された

C : スリット中にフィルムが破断した、又は振幅 5mm 以上の凹凸が観察された。

50

【 0 0 9 8 】

(7) A 層と B 層との密着性

積層フィルムより 1 5 m m × 1 1 0 m m の長形状サンプルを任意に切り出して試験片とした。次いで、M I T 耐折試験機 (株式会社東洋精機製作所製、M I D - D) により、回転速度 1 7 5 c p m 、測定荷重 : 2 5 N (2 . 6 k g f) 、屈曲角度 : 1 3 5 ° の条件で試験片を短辺方向と平行に 1 0 回折り曲げを繰り返した評価用サンプルを 1 0 本作成し、下記の基準で評価した。なお、A 層と B 層との密着性は B 以上を合格とした。

【 0 0 9 9 】

A : 折り曲げ箇所に 1 本も層間剥離が観察されなかった

B : 折り曲げ箇所の端部に剥離が観察されたサンプルが 1 本以上存在したが、折り曲げ箇所の両端の剥離箇所同士が連結したサンプルは 1 本も存在しなかった

C : 折り曲げ箇所の両端の剥離箇所同士が連結したサンプルが 1 本以上観察された。

【 0 1 0 0 】

(8) 面配向係数

積層フィルムより 5 0 m m (長手方向) × 5 0 m m (幅方向) の長形状サンプルを任意に切り出して試験片とし、ナトリウム D 線 (波長 5 8 9 n m) を光源として、アッペ屈折計 N A R - 4 T ((株) アタゴ社製) を用いて、積層フィルムの任意の一方の B 層における長手方向の屈折率 (n M D) 、幅方向の屈折率 (n T D) を測定した。次いで、マイクロトーム (ライカ製) を用いて B 層を切削し、B 層と同様の方法にて A 層における長手方向の屈折率 (n M D) 、幅方向の屈折率 (n T D) を測定した。さらに、マイクロトームを用いて、試験片を厚み方向に切削し、積層フィルムの各層における厚み方向の屈折率 (n Z D) を測定し、下記式から面配向係数 (f n) を算出した。

【 0 1 0 1 】

$$f n = (n M D + n T D) / 2 - n Z D .$$

【 0 1 0 2 】

(9) 意匠層形成時の加工性

フィルムロールより任意の位置で 1 0 0 m m (長手方向) × 1 0 0 m m (幅方向) の正方形に切り出した積層フィルムの片面に、アプリケーションを用いて、アクリル樹脂 (東洋ケミカル製 6 5 0 0 B) にカーボンブラックを分散して得られたブラックインキを塗工し、8 0 ° で 5 分間乾燥を行って塗膜厚み 3 0 μ m の意匠層を形成して測定サンプルとした。得られた測定サンプルについて、フィルムの幅方向及び長手方向の寸法変化を観察し、加工性を次の基準で評価した。このとき、意匠層は製膜時に鏡面調ゴム製賦形ロール側に位置していた面に形成し、寸法変化はノギスを用いて乾燥前後のフィルムの幅方向及び長手方向の長さ変化を測定して算出するものとした。なお、意匠層形成時の加工性は C 以上を合格とした。

【 0 1 0 3 】

A : 幅方向及び長手方向における寸法変化が、いずれも 1 m m 未満であった

B : 幅方向及び長手方向の少なくとも一方に 1 m m 以上 5 m m 未満の寸法変化があり、かつ幅方向及び長手方向のいずれにも 5 m m 以上の寸法変化がなかった

C : 幅方向及び長手方向の少なくとも一方に 5 m m 以上 1 0 m m 未満の寸法変化があり、かつ幅方向及び長手方向のいずれにも 1 0 m m 以上の寸法変化がなかった

D : 幅方向及び長手方向の少なくとも一方に 1 0 m m 以上の寸法変化があった。

【 0 1 0 4 】

(1 0) 成型転写箔の成型性

フィルムロールより巻き出した積層フィルムの片面に (9) に記載の方法で意匠層を形成し、2 0 0 m m × 2 0 0 m m の正方形に切り出してサンプルとした。得られたサンプルの意匠層の表面にアプリケーションを用いて接着剤 (日本ケミカル製 8 9 2 L) を塗工した後、8 0 ° で 1 0 分間乾燥を行い、塗膜厚み 2 0 μ m の接着層を形成して成型転写箔サンプルを取得した。こうして得られた成型転写箔サンプルを、布施真空株式会社製の三次元真空加熱成型機 (T O M 成型機 / N G F - 0 4 0 6 - T) を用いて 1 2 0 ° の温度にな

10

20

30

40

50

るように加熱し、50℃に加熱したポリプロピレン製樹脂型（底面直径150mmの円柱形）に沿って真空・圧空成型（圧空：0.2MPa）を行い、積層フィルム／意匠層／接着層／ポリプロピレン製樹脂型がこの順に位置する成型体を得た。得られた成型体について、ポリプロピレン製樹脂型に沿って成型できた状態（絞り比：成型高さ／底面直径）より、成型転写箔の成型性を以下の基準で評価した。なお、成型転写箔の成型性はC以上を合格とした。

【0105】

A：絞り比1.0以上で成型できた

B：絞り比0.8以上1.0未満で成型できたが、絞り比1.0以上では成型できなかった

C：絞り比0.7以上0.8未満で成型できたが、絞り比0.8以上では成型できなかった

D：絞り比0.7以上で成型できなかった。

【0106】

(11) フィルムの離型性

(10)の方法で得られた成型体から積層フィルムのみを強制的に剥離して、フィルムの離型性を以下の基準で評価した。なお、フィルムの離型性はB以上を合格とした。

【0107】

A：抵抗なく剥離できた

B：剥離の際に抵抗を感じたが、積層フィルム側に意匠層が移行しなかった

C：意匠が剥がれて、積層フィルム側に移行した。

【0108】

(12) B層のガラス転移温度

フィルムロールより巻き出した積層フィルムよりB層部分のみを5mg削りとしてサンプルとし、示差走査熱量計（セイコー電子工業製、RDC220、JIS K7121-1987、JIS K7122-1987に準拠）を用いて、サンプルを昇温速度20℃/分の条件で25℃から300℃まで昇温した際のガラス状態からゴム状態への転移に基づく比熱変化を測定した。得られた比熱変化について、各ベースラインの延長した直線から縦軸（熱流を示す軸）方向に等距離にある直線と、ガラス転移の階段状変化部分の曲線とが交わる点の中間点を求め、ガラス転移温度とした。なお、ガラス転移温度が複数存在する場合は、高温側のガラス転移温度をB層のガラス転移温度とした。

【0109】

(13) 製品部材の表面外観

製品部材の表面外観とは、成型転写箔により製品部材に意匠層及び接着層を転写して、積層フィルムのみを剥離した後の製品部材の表面外観をいう。製品部材の表面外観は、積層フィルムの品位の影響を受けるため、品位を評価する指標となる。フィルムロールより巻き出した積層フィルムの表面に、ダイコーターを用いて、アクリル／ウレタン系のブラックインキを塗工し、80℃で10分間乾燥を行い、塗膜厚み30μmの意匠層を形成した。さらに意匠層の上に、アプリケーションにより日本ケミカル製892Lを塗工して80℃で10分間乾燥を行うことで塗膜厚み20μmの接着層を形成し、再度巻き取って成型転写箔ロールを作製した。得られた成型転写箔ロールから任意の位置で200mm（長手方向）×300mm（幅方向）の大きさに成型転写箔を切り出した。次いで、積層フィルム／意匠層／接着層／成型部材（平面状のポリプロピレン製樹脂型）の順になるように、成型転写箔と成型部材を重ねて真空・圧空成型を行い、得られた成型体に照射強度が2,000mJ/cm²となるように紫外線を照射して接着剤層を硬化させた。その後、成型体から積層フィルムのみを剥離して得られた製品部材の表面を走査型白色干渉顕微鏡（（株）日立ハイテクノロジーズ製 VS-1000）を用いて倍率5倍で観察し、次の基準でその表面外観（うねり：製品部材の最大点高さ - 最小点高さ）を評価した。なお、製品部材の表面外観はB以上を合格とした。

【0110】

10

20

30

40

50

A：うねりが0.01mm未満であった

B：うねりが0.01mm以上0.1mm未満であった

C：うねりが0.1mm以上であった。

【0111】

[積層フィルムの製造に用いた樹脂]

各実施例及び各比較例の積層フィルムを得るための樹脂として、以下のものを使用した。

【0112】

(ポリプロピレン系樹脂)

ランダムポリプロピレン系樹脂(プライムポリマー社製“プライムポリプロ”(登録商標)Y-2045GP)

(ポリエチレン系樹脂)

直鎖状低密度ポリエチレン(プライムポリマー社製“エポリユー”(登録商標)SP2540)

(環状オレフィン系樹脂A)

ノルボルネンとエチレンの共重合体(ポリプラスチックス社製“TOPAS”(登録商標)8007F-04)

(環状オレフィン系樹脂B)

ノルボルネンとエチレンの共重合体(ポリプラスチックス社製“TOPAS”(登録商標)6013F-04)

(熱可塑性系エラストマー)

エチレン-オレフィン系エラストマー(住友化学社製“エスプレン”(登録商標)SPO)。

【0113】

(実施例1)

A層及びB層を得るための原料を表1に示す組成とし、それぞれ別々の単軸押出機(L/D=30)に供給して、供給部温度230、それ以降の温度を240で熔融混練した。次いで、濾過精度30μmのリーフディスクフィルターを備える濾過装置を通すことで、各熔融熱可塑性樹脂組成物より異物を除去し、ダイの上部に設置したフィードブロック内で厚み比が15:70:15となるようにB層原料/A層原料/B層原料を積層した後、Tダイ(リップ間隙:0.4mm)より、40に温度制御したマット調金属製賦形ロール(表面粗さRa:0.9μm)上にシート状に吐出した。その際、30に温度制御した鏡面調ゴム製賦形ロールにてニップをし(表面粗さRa:0.05μm、ニップ圧:0.2MPa)、厚み100μmの積層フィルムを得て、これをロール状に巻き取った。その後、「(9)意匠層形成時の加工性」、「(10)成型転写箔の成型性」に記載の方法により成型転写箔を製造した。得られた積層フィルム及び成型転写箔に各評価項目の評価を行った。評価結果を表1に示す。

【0114】

(実施例2~7、比較例1~3)

各層の組成、積層比を表1に記載の通りとした以外は、実施例1と同様にして積層フィルム及び成型転写箔を製造し、同様に評価した。評価結果を表1に示す。

【0115】

10

20

30

40

50

【表 1】

【表1】	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		比較例1		比較例2		比較例3		
	50	100	100	100	-	100	70	100	100	100	100	100	100	100	20	100	100	100	100	100	
A層の組成	ポリプロピレン系樹脂(質量%)		ポリエチレン系樹脂(質量%)		環状オレフィン系樹脂(質量%)		ポリプロピレン系樹脂(質量%)		ポリエチレン系樹脂(質量%)		環状オレフィン系樹脂(質量%)		ポリプロピレン系樹脂(質量%)		ポリエチレン系樹脂(質量%)		環状オレフィン系樹脂(質量%)		ポリプロピレン系樹脂(質量%)		
	A		B		A		B		A		B		A		B		A		B		
B層の組成	3		70		7		7		20		20		20		20		20		20		
	7		7		7		7		7		7		7		7		7		7		
熱可塑性エラストマー(質量%)		20		20		20		20		20		20		20		20		20		20	
積層フィルム中の環状オレフィン系樹脂量(質量%)		23.1		23.1		23.1		44.1		15.4		17.1		23.1		72.1		24		0	
積層構成(厚み: μm)		B/A/B (15/70/15)		B/A/B (15/70/15)		B/A/B (15/70/15)		B/A/B (15/70/15)		B/A/B (10/80/10)		B/A/B (15/70/15)		B/A/B (15/70/15)		B/A/B (15/70/15)		B/A/B (15/70/15)		B/A/B (15/70/15)	
B層のガラス転移温度(°C)		85		85		85		85		85		70		85		85		90		10	
75°Cにおける貯蔵弾性率(MPa)		270		500		150		950		400		350		500		2000		500		300	
120°Cにおける貯蔵弾性率(MPa)		15		20		10		5		45		50		23		3		25		120	
表面自由エネルギー(mN/m)		36		36		36		36		36		30		36		36		42		20	
80°Cにおける熱収縮率(%)		X1		0.3		0.38		0.2		0.45		0.5		0.25		0.2		0.25		0.8	
		Y1		-0.05		0.2		-0.05		0.3		0.4		-0.05		-0.05		-0.05		0.6	
		X2		250		150		500		300		270		400		700		400		250	
ヤング率(MPa)		150		350		75		450		250		250		350		650		350		200	
A層の面配向係数		0.01		0.01		0.01		0.01		0.01		0.01		0.01		0.01		0.01		0.01	
B層の面配向係数		0.01		0.01		0.01		0.01		0.01		0.01		0.01		0.01		0.01		0.01	
フィルム厚み(μm)		100		100		100		100		100		100		100		100		100		100	
意匠層の厚み(μm)		30		30		30		30		30		30		30		30		30		30	
接着層の厚み(μm)		20		20		20		20		20		20		20		20		20		20	
フィルムのスリット性		A		A		A		B		A		A		A		C		A		A	
A層とB層との密着性		A		A		A		A		A		A		A		A		C		A	
意匠層形成時の加工性		B		A		B		A		B		B		A		A		A		C	
成型用転写箔の構成		フィルム/意匠層/接着層		フィルム/意匠層/接着層		フィルム/意匠層/接着層		フィルム/意匠層/接着層		フィルム/意匠層/接着層		フィルム/意匠層/接着層		フィルム/意匠層/接着層		フィルム/意匠層/接着層		フィルム/意匠層/接着層		フィルム/意匠層/接着層	
成型用転写箔の成型性		A		A		A		A		C		C		A		A		B		D	
成型用転写箔の離型性		A		A		A		A		A		B		A		A		A		C	
製品部材の表面外観		A		A		A		A		A		B		A		A		A		C	

10

20

30

40

【0116】

各層の成分量(質量%)は各層を構成する全成分を100質量%として算出し、積層フィルム中の環状オレフィン系樹脂量(質量%)は積層フィルムを構成する全成分を100質量%として算出した。比較例1~3はいずれもA層若しくはB層の要件を有さないが、これらの比較例については、両外側の層をB層、中間層をA層として記載した。

【産業上の利用可能性】

【0117】

本発明により、品位や生産性、加工工程における寸法安定性、及び成型性に優れる積層フィルム、及び該積層フィルムを用いた成型転写箔を提供することができる。本発明の積

50

層フィルム及び成型転写箔を用いることにより、真空成型、圧空成型、及びプレス成型といった各種成型方法において製品部材（成型加飾後の成型部材）に高い意匠性を付与することができる。そのため、本発明の積層フィルム及び成型転写箔は、例えば、建材、自動車部品や携帯電話、電機製品、遊技機部品などの成型部材の加飾に好適に用いることができる。

【符号の説明】

【 0 1 1 8 】

- 1 長手方向
- 2 幅方向
- 3 幅方向端部
- 4 長手方向の周期
- 5 幅方向の振幅

10

20

30

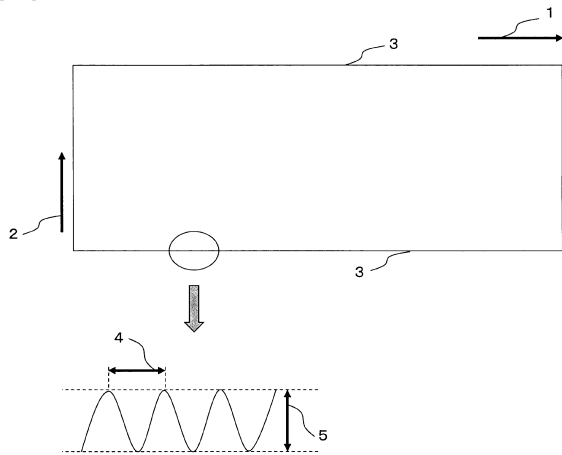
40

50

【図面】

【図 1】

【図1】



10

20

30

40

50

フロントページの続き

- (56)参考文献 特開2009-40982(JP,A)
特開2011-161880(JP,A)
特開2017-137469(JP,A)
国際公開第2014/061403(WO,A1)
特開2011-178953(JP,A)
- (58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)
B32B
B44C 1/17
B29C 51/00 - 51/46