



(19)  
Bundesrepublik Deutschland  
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 601 29 362 T2** 2008.03.13

(12) **Übersetzung der europäischen Patentschrift**

(97) **EP 1 493 561 B1**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **601 29 362.2**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **04 022 724.1**

(96) Europäischer Anmeldetag: **02.02.2001**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **05.01.2005**

(97) Veröffentlichungstag

der Patenterteilung beim EPA: **11.07.2007**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **13.03.2008**

(51) Int Cl.<sup>8</sup>: **B32B 27/32** (2006.01)  
**C09J 7/02** (2006.01)

(30) Unionspriorität:

<b>182739 P</b>	<b>16.02.2000</b>	<b>US</b>
<b>766707</b>	<b>22.01.2001</b>	<b>US</b>

(84) Benannte Vertragsstaaten:

**AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LI, LU, MC, NL, PT, SE, TR**

(73) Patentinhaber:

**3M Innovative Properties Co., St. Paul, Minn., US**

(72) Erfinder:

**Hager, Patrick J., Saint Paul, MN 55133-3427, US;**  
**Bartusiak, Joseph T., Saint Paul, MN 55133-3427, US;**  
**Hamer, Kevin M., Saint Paul, MN 55133-3427, US;**  
**Kozulla, Randall E., Saint Paul, MN 55133-3427, US;**  
**Denker, Martin E., Saint Paul, MN 55133-3427, US**

(74) Vertreter:

**derzeit kein Vertreter bestellt**

(54) Bezeichnung: **Orientierte mehrschichtige Polyolefinfolien**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

### Beschreibung

**[0001]** Die vorliegende Erfindung betrifft im Allgemeinen als Bandträger nützliche Folien und insbesondere biaxial orientierte mehrschichtige Laminatträger, die eine propylenhaltige erste Schicht und mindestens eine polyolefinhaltige zweite Schicht umfassen und wahlweise ferner eine Oberflächenfinishingschicht wie eine matte Oberflächenschicht einschließen.

**[0002]** Im Handel erhältliche Haftklebebänder werden gewöhnlich in Rollenform bereitgestellt und können auf einem Bandspender bereitgestellt werden (siehe z.B. die US-Patentschriften Nr. 4,451,533 und 4,908,278). Typischerweise weisen im Handel erhältliche Spender eine gezahnte Schneideklinge entweder aus Metall oder Kunststoff auf. In den Fällen, in welchen kein Spender bereitgestellt ist, ist es erwünscht, dass das Band von Hand abgerissen werden kann.

**[0003]** Die „Abtrennbarkeit“ von Klebstoffbändern ist als das Vermögen definiert, eine Bandlänge durch Ziehen des Bands über die Zähne an einer gezahnten Schnittkante eines Bandspenders mit einer gewünschten Menge an Energie oder Arbeit abzuschneiden oder abzutrennen. Die Abtrennbarkeit wird auch als „Spendevermögen“ bezeichnet. Es ist erwünscht, dass das abgetrennte Band nicht in einer unvorhersagbaren Weise sich abschält, absplittert, abbricht oder abreißt (siehe US-Patentschriften Nr. 4,451,533 und 4,908,278). Eine derartige Abtrennbarkeit ist erwünscht, um eine sauber gezahnte Schnittkante an dem abgetrennten Bandstreifen zu erzeugen.

**[0004]** Klebebänder werden aus vielen verschiedenen Folien hergestellt. Durch Folien, die tendenziell zu zäh sind und sich vor dem Abreißen, während sie unter Belastung stehen, beträchtlich strecken, werden derartige Folien, insbesondere auf einem Kunststoffklingenspender, äußerst schwierig abzutrennen. Bandspender mit Kunststoffschneideklängen werden allgemein für Handgeräte, wie einen Bandspender des Typs 3M Magic™ Katalog Nr. 104, erhältlich von Minnesota Mining and Manufacturing Company, St. Paul, Minnesota, verwendet. Allerdings sind Spender mit Kunststoffschneideklängen typischerweise nicht scharf und haltbar genug, um orientierte Polypropylenbänder abzutrennen. Aus diesem Grund sind typische Spender für biaxial orientierte Polypropylenbänder gewöhnlich mit scharfen Metallklängen versehen. Derartige Metallklingenspender sind teurer und schwieriger herzustellen als Kunststoffklingenspender.

**[0005]** Biaxial orientierte isotaktische Polypropylenfolien sind für ihre Zähigkeit, geringen Kosten, gute Farbe, Feuchtigkeitsbeständigkeit und Absplittersfestigkeit und Klarheit bekannt und werden seit langem als Klebebandträger verwendet (siehe die US-Patentschriften Nr. 3,241,662 und 3,324,218). Wenngleich, wie vorstehend festgestellt, derartige Folien, insbesondere unter Verwendung eines Kunststoffspenders, schwieriger zu spenden sind. Zudem gelten derartige Folien als sehr schwierig von Hand abzureißen und werden typischerweise mit aufgerauten oder abgeflachten Drehklängen eingeschlizt, um ausreichende Kantenfehlstellen bereitzustellen, damit ein gewisser Grad an Abreißbarkeit mit den Fingern ermöglicht wird. Dieser Prozess führt zu ungleichförmigen, unansehnlichen Kanten und einer stark reduzierten Bandfestigkeit.

**[0006]** Es gab mehrere Versuche, Polyolefinfolien zu verbessern, um abtrennbare und mit den Fingern abreißbare Klebebandträgerfolien herzustellen.

**[0007]** Zum Beispiel beschreibt JP 53034834 ein Gemisch aus Polypropylen mit Polyolefinen mit niedrigem Molekulargewicht zum Herstellen eines brüchigeren, mit den Fingern abreißbaren Folienträgers. US 3,887,745 beschreibt ein 2-schichtiges Polypropylenband, bei welchem eine dicke zweite Schicht einaxial in Quer- (oder Senkrecht-)Richtung orientiert wird, um ein geradliniges Abreißen in der Bandquerrichtung zu ermöglichen. Gleichmaßen beschreiben US 3,952,073 und US 4,045,515 Bandträger, die Mischungen aus isotaktischem Polypropylen mit statistischen Propylen-Ethylen-Copolymeren umfassen, die sequenziell orientiert sind, um eine Folie mit größerer Orientierung in der Quer- als in der Maschinenrichtung bereitzustellen, damit eine Folie mit guter Abreißbarkeit mit den Fingern quer zur Folie hergestellt wird.

**[0008]** US 4,410,582 beschreibt eine sequenziell biaxial orientierte mehrschichtige Folie, die aus einer ersten Schicht aus Polyolefin mit niedrigem Molekulargewicht mit einem niedrigeren Schmelzpunkt als die zweiten Schichten von höherer Kristallinität besteht, um einen mit den Fingern abreißbaren Folienträger herzustellen. US 4,137,362 beschreibt Klebebandträger, die durch sequenzielle biaxiale Orientierung von einschichtigen Mischungen von isotaktischem Polypropylen mit anderen Polyolefinen hergestellt werden. US 4,393,115 und US 4,414,261 und die JP-Anmeldung 11-1998835 beschreiben sequenziell biaxial orientierte mehrschichtige Folien, die Polypropylen-Ethylen-Blockcopolymer oder Kohlenwasserstoffharze in Mischungen oder Schichten einschließen, die dazu beabsichtigt sind, die Abreißbarkeit mit den Fingern durch Erhöhen des Brüchigkeits-

verhaltens der Folie zu unterstützen.

**[0009]** Gleichermaßen beschreiben US 4,447,485 und US 4,513,028 gestreckte Folien mit einer Basislage, die Polypropylen, gemischt mit Polymethylpenten, umfasst, wobei Letzteres dazu vorliegt, eine brüchigere Konstruktion bereitzustellen. Die JP-Anmeldung 6-305014 beschreibt eine aus einer einzelnen Zusammensetzung und einer einzelnen Lage bestehende Folie, umfassend ein Polypropylen-Ethylen-Copolymer, das eine zweite/erste Struktur aufgrund von Wärmeverarbeitungsbedingungen unter Verwendung eines sequenziellen biaxialen Orientierungsverfahrens entwickelt.

**[0010]** Haftklebebänder mit einer matten Oberfläche, die der mit Klebstoff beschichteten Oberfläche gegenüber liegt, werden allgemein zur Verwendung in Büros, Einzelhandelsgeschäften und Schulen vertrieben. Diese Bänder werden typischerweise in Verbindung mit Papier zur Reparatur von Rissen, zum Anheften von Memos und zum Aneinanderheften von Dokumenten verwendet, und als solches ist es bevorzugt, dass das Haftklebeband bei seiner Endverwendung unsichtbar bleibt und dennoch ein etwaiges Gedrucktes darunter sichtbar sein lässt und klar und sauber fotokopiert werden kann. Zudem ist es bevorzugt, dass die matten Oberflächen dieser Bänder mit einer Vielfalt von Schreibgeräten, wie Kugelschreibern, Bleistiften und Permanent-Markern, beschriftet werden können. Eine Celluloseacetatfolie mit einem geprägten matten Finishing wurde bisher aufgrund ihrer ausgezeichneten optischen Eigenschaften und Beschriftungseigenschaften vorwiegend als Substrat für matte Klebebänder verwendet.

**[0011]** Biaxial orientierte Polypropylen(BOPP-)Folien werden aufgrund ihrer ausgezeichneten Festigkeit, Feuchtigkeitsbeständigkeit und niedrigen Kosten weit verbreitet als Foliensubstrate für Klebebänder verwendet. Im Allgemeinen können BOPP-Folien nicht mit einer matten und/oder beschriftungsfähigen Oberfläche einfach durch Prägen der Folienoberfläche versehen werden. Typischerweise beinhalten derartige Verfahren die Bereitstellung einer zusätzlichen Schicht über der Basispolypropylen-schicht der BOPP-Folie, wobei einige der gewünschten Eigenschaften einer matten oder beschriftungsfähigen Oberfläche durch die zusätzliche Schicht bereitgestellt werden.

**[0012]** Derartige bekannte zusätzliche Schichten wurden häufig durch Kombinieren von zwei oder mehr Polymeren in Form einer Mischung hergestellt. Mindestens eines der Polymere in einer derartigen Mischung ist gewöhnlich ein Polyolefin, da dies der Polypropylenhauptschicht in der BOPP-Folie Haftvermögen verleiht. Bestandteile auf Polyolefinbasis in derartigen Mischungen schlossen Polypropylen, Co- oder Terpolymere auf der Basis von Propylen, Polyethylene, wie Polyethylen mit hoher Dichte (high density polyethylene; HDPE), Polypropylen/Polyethylen-Blockcopolymere, Co- oder Terpolymer auf Ethylenbasis, modifiziert mit polaren Gruppen, Polymere, enthaltend Buten-1-Monomer, und Methylpentenpolymer (TPX) ein. Andere Bestandteile in derartigen Mischungen, bei welchen es sich nicht um Polyolefine handelt, schlossen Thermoplasten, wie Polystyrol, Polyamide, Polyalkylmethacrylate und Polyester, ein. Zudem schlossen einige der bekannten Zusammensetzungen für zusätzliche Schichten anorganische Füllstoffe, wie Silica, Calciumcarbonat oder Ton, ein. Beispiele für derartige bekannte zusätzliche Schichten sind in US 5,501,905, US 5,474,820, US 5,425,990, US 5,366,796, US 5,364,704, US 4,960,637, US 4,513,028, US 4,447,485, EP 033824B1 und JP 76032668B zu finden.

**[0013]** Das Problem bleibt allerdings bestehen, dass keines der bekannten Verfahren zufrieden stellend eine matte Oberfläche bereitstellt, die sämtliche der erwünschten Attribute eines matten Erscheinungsbilds in sich vereinigt, mit einem Bleistift, Kugelschreiber und Permanent-Tintenmarker beschrieben werden kann, beim Fotokopieren keine „Geisterbilder“ hervorruft und leicht herzustellen ist. Insbesondere besteht Bedarf nach einer matten Schichtzusammensetzung, die sämtliche vorstehend erwähnten Eigenschaften bereitstellt, jedoch zum Optimieren des matten Erscheinungsbildes kein langsames Abkühlen der extrudierten Folienlage erfordert und den Temperaturbereich, der zum Strecken der Folie brauchbar ist, nicht einschränkt.

**[0014]** Jedoch stellt keine der vorstehend dargelegten Alternativen einen Klebebandträger bereit, der sämtliche erwünschten Attribute der Festigkeit, des leichten Spendevermögens, der leichten Abreißbarkeit mit den Fingern, guten Klarheit, guten mechanischen Festigkeit und Kosteneffizienz in sich vereinigt.

**[0015]** Kurz gesagt, ist in einem Aspekt der vorliegenden Erfindung eine mehrschichtige, biaxial orientierte Folie bereitgestellt, umfassend:

mindestens eine erste Schicht und mindestens eine zweite Schicht, wobei die erste Schicht einen Hauptbestandteil aus einem propylenhaltigen Polymer mit einem ersten Schmelzpunkt umfasst und die zweite Schicht einen Hauptbestandteil mit einem zweiten Schmelzpunkt umfasst, wobei der zweite Schmelzpunkt größer ist als der erste Schmelzpunkt;

wobei die mehrschichtige Konstruktion biaxial orientiert worden ist, so dass eine kristalline Orientierung bereitgestellt ist, wie bestimmt durch Messungen der Weitwinkel-Röntgenstrahlenstreuung (Wide Angle X-ray Scattering; WAXS) von den monoklinen (110) kristallinen Ebenen, die isotrop ist oder höchstens ein einzelnes spezifische azimuthales Scanmaximum aufweist, wobei das Maximum bei einem Winkel von bis zu  $\pm 75^\circ$  von der Maschinenrichtung (Machine Direction; MD) positioniert ist, wobei das einzelne azimuthale Scanmaximum zusätzlich eine Winkelbreite bei halber Peakhöhe (angular full width at half peak height; FWHM) zwischen etwa  $40^\circ$  bis  $75^\circ$  aufweist;

wobei die Folie eine Durchschlagenergie parallel zur Referenz oder MD von bis zu etwa  $20 \text{ J/cm}^2$  aufweist; und wobei das Propylenpolymer der ersten Schicht eine anfängliche Schmelzflussrate von etwa  $25 \text{ g/10 min}$  aufweist.

**[0016]** In einer weiteren Ausführungsform kann jede Schicht aus Homopolymeren, Copolymeren, Mischungen und dergleichen bestehen. In einer derartigen Ausführungsform stellt die vorliegende Erfindung eine mehrschichtige Folie bereit, wobei (a) die erste Schicht mindestens 50 % der mehrschichtigen Gesamtdicke (ausschließlich einer Klebezusammensetzungsschicht) aufweist und mindestens 50 % eines ersten Polymerbestandteils, bezeichnet als Hauptbestandteil der ersten Schicht, enthält, und (b) die zweite Schicht mindestens 50 % eines zweiten Polymerbestandteils, bezeichnet als Hauptbestandteil der zweiten Schicht(en), enthält, so dass der Schmelzpunkt der Differenzial-Scanning-Kalorimetrie ( $MP_{dsc}$ ) des zweiten Polymerbestandteils größer als der  $MP_{dsc}$  des ersten Polymerbestandteils ist.

**[0017]** Optionale Polymerbestandteile können ebenfalls in der ersten Schicht eingeschlossen sein. Weiterhin kann der optionale Polymerbestandteil der ersten Schicht einen  $MP_{dsc}$  aufweisen, der in etwa derselbe oder ein anderer ist als der des ersten Polymerbestandteils, mit der Maßgabe, dass dieser optionale Polymerbestandteil oder diese optionalen Polymerbestandteile mit einem derartigen Gehalt vorliegt (vorliegen), dass erwünschte Folienattribute beibehalten werden. Der (Die) optionale(n) Polymerbestandteil(e) kann (können) ein beliebiges geeignetes Polymer sein. Im Allgemeinen schließen optionale Polymerbestandteile zum Erhalt von erwünschten niedrigen Trübungsgraden polyolefinhaltige Polymere, wie Homopolymere, Copolymere, Terpolymere und dergleichen, stärker bevorzugt Homopolymere oder Copolymere von Polypropylen, ein.

**[0018]** Optionale Zwischenschichten können verwendet werden und überwiegend aus dem Polymer entweder der ersten Schicht oder der zweiten Schicht zusammengesetzt sein oder können eine Mischung oder ein Gemisch aus den beiden sein und ferner zusätzliche Bestandteile zum Optimieren der Verarbeitungsfähigkeit und Folieneigenschaften enthalten. Zum Unterstützen der Verarbeitungsfähigkeit ist es bevorzugt, dass die Schmelzflussrate (Melt Flow Rate; MFR) der verschiedenen Schichten ähnliche Werte aufweist.

**[0019]** Vorteilhafterweise stellt die vorliegende Erfindung abtrennbare und mit den Fingern abreißbare Klebänder auf Polyolefinbasis bereit, die eine Kombination von Eigenschaften, insbesondere niedrige Durchschlagfestigkeit, niedrige Fingerabreißfestigkeit, niedrige Trübung, niedrige Zugfestigkeit in der MD und ein Brechungsindexunterschied ( $\Delta n$ ) aufweisen.

**[0020]** Die Folie wird biaxial gestreckt, so dass eine einzigartige Folie mit einer Kombination aus den vielen bevorzugten und nützlichen Eigenschaften bereitgestellt wird. Die Folien der vorliegenden Erfindung zeigen nicht unbedingt sämtliche Eigenschaften in einer einzigen Ausführungsform, vielmehr ist die Folie derart, dass die Eigenschaften auf spezifische Zwecke zugeschnitten werden können. Nützliche Eigenschaften schließen ein, sind jedoch nicht beschränkt auf:

1. Eine kristalline Orientierung, bestimmt durch Messungen der Weitwinkel-Röntgenstrahlenstreuung (WAXS) von den monoklinen (110) kristallinen Ebenen, die isotrop ist oder höchstens ein einzelnes spezifisches azimuthales Scanmaximum aufweist.
2. Das Maximum ist mit einem Winkel innerhalb von etwa  $\pm 75^\circ$ , vorzugsweise etwa  $\pm 45^\circ$  und stärker bevorzugt etwa  $\pm 25^\circ$ , in Bezug auf die Referenz-MD positioniert.
3. Die Breite des einzelnen azimuthalen Scanmaximums (die Winkelbreite bei halber Peakhöhe) beträgt etwa  $40^\circ$  bis etwa  $75^\circ$ .
4. Ein Schmelzpunktunterschied zwischen den Hauptbestandteilen der ersten und der zweiten Schicht von mindestens  $2^\circ\text{C}$ , wie gemessen unter Verwendung von Differenzial-Scanning-Kalorimetrie (DSC), wie hier beschrieben, beträgt vorzugsweise mindestens etwa  $5^\circ\text{C}$  und stärker bevorzugt mindestens etwa  $8^\circ\text{C}$ , wobei der Schmelzpunkt der ersten Schicht niedriger ist als der Schmelzpunkt der zweiten Schicht.
5. Ein Brechungsindexunterschied, berechnet durch Subtrahieren des in der TD gemessenen Brechungsindex, von demjenigen in der MD, ist größer als etwa  $-3,0 \times 10^{-3}$ , vorzugsweise größer als oder gleich null.
6. Die Durchschlagenergie beträgt bis zu  $20 \text{ J/cm}^2$ , vorzugsweise bis zu  $15 \text{ J/cm}^2$  und stärker bevorzugt bis zu  $10 \text{ J/cm}^2$ , wenn Proben mit einer Breite von  $2,54 \text{ cm}$  durch das nachstehend dargelegte Verfahren ge-

testet werden, oder bis zu  $90 \text{ J/cm}^2$ , wenn Proben mit einer Breite von 1,27 cm durch das nachstehend dargelegte Verfahren getestet werden.

7. Die Durchschlagdehnung beträgt bis zu etwa 1,3 cm, vorzugsweise bis zu etwa 1,0 cm, wenn Proben mit einer Breite von 2,54 cm durch das nachstehend dargelegte Verfahren getestet werden, oder bis zu 2,0 cm, wenn Proben mit einer Breite von 1,27 cm durch das nachstehend dargelegte Verfahren getestet werden.

8. Die Zugfestigkeit beträgt etwa 140 MPa in der MD.

9. Eine Durchlässigkeitstrübung der ersten und der zweiten Schicht gemäß ASTM D1003-97 beträgt weniger als etwa 4,0 %, vorzugsweise weniger als etwa 2,0 % und stärker bevorzugt weniger als etwa 1,0 %.

**[0021]** Zum Bereitstellen von verschiedenen Oberflächenfinishings kann mindestens eine Oberflächenfinishingschicht eingeschlossen sein und ist nicht auf Zusammensetzungen beschränkt, die beschriftungsfähige oder matte Oberflächen, Trennflächen und dergleichen aufweisen.

**[0022]** In einer alternativen Ausführungsform ist eine matte mehrschichtige Folie mit matter Oberfläche bereitgestellt, umfassend mindestens eine erste Schicht, mindestens eine zweite Schicht und mindestens eine Oberflächenfinishingschicht, wobei die erste Schicht ein propylenhaltiges Polymer mit einem ersten Schmelzpunkt umfasst, die zweite Schicht ein propylenhaltiges Polymer mit einem zweiten Schmelzpunkt umfasst, so dass der zweite Schmelzpunkt größer ist als der erste Schmelzpunkt, und die Oberflächenfinishingschicht eine Mischung oder ein Gemisch aus unverträglichen Polyolefinen umfasst, die ein phasengetreuntes System erzeugen, und ein anorganisches oder organisches Füllstoffteilchen, so dass die Oberflächenfinishingschicht ein mattes Erscheinungsbild aufweist, und wobei die mehrschichtige Folie biaxial gestreckt ist.

**[0023]** Vorteilhafterweise sind die mehrschichtigen Folien mit matter Oberfläche der vorliegenden Erfindung deutlich frei von Hohlräumen oder Rissen, mit einer Trübung von 70–90 % und einer prozentualen Gesamtlichtdurchlässigkeit von größer als 90 %, wie gemessen durch ASTM D1003 („Haze and Luminous Transmittance of Transparent Plastics“), einem Glanz von weniger als oder gleich 10 %, wie gemessen bei einem Einfallswinkel von  $60^\circ$  durch ASTM D2457-97 („Specular Gloss of Plastic Films and Solid Plastics“). Ferner kann die Oberflächenfinishingschicht eine beschriftungsfähige Schicht unter Verwendung von derartigem wie einem Bleistift, einem Kugelschreiber oder einem Permanent-Marker sein.

**[0024]** Vorteilhafterweise können Folien der vorliegenden Erfindung von Hand abreißbar sein. Es wurde gefunden, dass, wenn eine Folie eine Durchschlagenergie von bis zu  $10 \text{ J/cm}^2$  (wie getestet an einer Probe mit einer Breite von 2,54 cm) und eine Zugfestigkeit von bis zu 100 MPa aufweist, die Folie mäßig leicht von Hand abzureißen ist. Weist die Folie eine Durchschlagenergie von bis zu  $5 \text{ J/cm}^2$  (wie getestet an einer Probe mit einer Breite von 2,54 cm) und eine Zugfestigkeit von bis zu 50 MPa auf, ist die Folie leichter von Hand abzureißen.

**[0025]** Zudem können sämtliche Ausführungsformen in einer derartigen Weise konstruiert werden, dass sie zusätzliche erste, zweite und Oberflächenfinishingschichten einschließen, wie eine Konstruktion, umfassend eine erste erste Schicht, eine zweite Schicht und zweite erste Schicht. Weiterhin können auch Zwischenschichten verwendet werden und schließen Bindschichten, Grundierungsschichten, Grenzschichten und dergleichen ein. Schutzschichten können ebenfalls hinzugefügt werden, ohne den Umfang der vorliegenden Erfindung einzuschränken. Die für Vorstehendes bereitgestellten mehrschichtigen Folien können mit einer Klebeschicht überzogen sein, um sie von Hand abreißbar, spendefähig, beschriftungsfähig, matt, und beliebige Kombinationen davon, zu machen.

**[0026]** Die vorliegende Erfindung stellt vorstehend beschriebene Folien, aus derartigen Folien hergestellte Klebeträger, die Träger einschließende Bänder und Verfahren zur Herstellung der Folien, Träger und Bänder bereit.

**[0027]** Wie in dieser Anmeldung verwendet:

bedeutet „biaxial gestreckt“, wenn hier zur Beschreibung einer Folie verwendet, dass die Folie in zwei unterschiedlichen Richtungen, einer ersten Richtung und einer zweiten Richtung, in der Ebene der Folie gestreckt worden ist. Typischerweise, jedoch nicht immer, liegen die beiden Richtungen im Wesentlichen senkrecht zueinander und in Längs- oder Maschinenrichtung (Machine Direction, „MD“) der Folie (der Richtung, in welcher die Folie auf einer Folienherstellungsmaschine hergestellt wird) und in Querrichtung (Transverse Direction, „TD“) der Folie (der Richtung senkrecht zur MD der Folie). Die MD wird manchmal als Längsrichtung (Longitudinal Direction, „LD“) bezeichnet. Biaxial gestreckte Folien können sequenziell gestreckt, simultan gestreckt oder durch irgendeine Kombination des simultanen und sequenziellen Streckens gestreckt werden. Ferner kann ein derartiges Strecken zu Folien führen, die ausgeglichen oder nicht ausgeglichen sind. Folien mit einer

anisotropen molekularen Orientierung können Anisotropie aufweisen, die parallel zu einer beliebigen Folienhauptachse ausgerichtet ist, sofern die hier beschriebenen erwünschten Eigenschaftsattribute erfüllt werden; bedeutet „Doppelbrechung“, wenn hier zum Beschreiben einer Folie verwendet, dass die Folie unterschiedliche Brechungsindexwerte, wie gemessen entlang zweier senkrechter Achsen in der Ebene der Folie, das heißt, der Ebene, die zum einfallenden linear polarisierten Licht, das zum Messen des Brechungsindex verwendet wird, senkrecht ist, aufweist. Diese so genannte Doppelbrechung „in der Ebene“ („in-plane“) ist der Unterschied im Brechungsindex parallel zu einer definierten Richtung zu demjenigen, der senkrecht zur ersten Richtung gemessen wird (Encyclopedia of Polymer Science and Engineering, 2. Aufl., Ed. 14, S. 552–562, Wiley-Interscience, NY (1987)). Im vorliegenden Fall ist die Doppelbrechung (bezeichnet als  $(\Delta\Pi_{M-T})$ ) definiert als der Wert des Brechungsindexes, gemessen parallel zur Maschinen- oder Längsrichtung (bezeichnet als HM) minus demjenigen, gemessen senkrecht zur Maschinenrichtung (bezeichnet als  $\Pi_T$ ):

$$(\Delta\Pi_{M-T}) = \Pi_M - \Pi_T$$

wobei der gemessene Wert der Brechungsindizes bis zur vierten Dezimalstelle genau ist (Encyclopedia of Polymer Science and Engineering, 2. Aufl., Ed. 10, S. 605–608, Wiley-Interscience, NY (1987)); bedeutet „simultan biaxial gestreckt“, wenn hier zur Beschreibung einer Folie verwendet, dass beträchtliche Anteile des Streckens in jeweils beiden Richtungen simultan durchgeführt werden; bedeutet „Streckverhältnis“, wie hier zum Beschreiben eines Streckverfahrens oder einer gestreckten Folie verwendet, das Verhältnis eines linearen Maßes eines vorgegebenen Anteils einer gestreckten Folie zu dem linearen Maß desselben Anteils vor dem Strecken. Zum Beispiel würde in einer gestreckten Folie mit einem MD-Streckverhältnis (MD Stretch Ratio, „MDR“) von 5:1 ein vorgegebener Anteil der ungestreckten Folie mit einer linearen Messung von 1 cm in Maschinenrichtung nach dem Strecken eine Messung von 5 cm in Maschinenrichtung aufweisen. In einer gestreckten Folie mit einem TD-Streckverhältnis (TD Stretch Ratio, „TDR“) von 9:1 würde ein vorgegebener Anteil der ungestreckten Folie mit einer linearen Messung von 1 cm in Querrichtung nach dem Strecken eine Messung von 9 cm in [der] Querrichtung aufweisen; bedeutet „Flächenstreckverhältnis“ das Verhältnis der Fläche eines vorgegebenen Anteils einer gestreckten Folie zur Fläche desselben Anteils vor dem Strecken. Zum Beispiel würde in einer biaxial gestreckten Folie mit einem Gesamtflächenstreckverhältnis von 50:1 ein vorgegebener Anteil von 1 cm<sup>2</sup> der ungestreckten Folie nach dem Strecken eine Fläche von 50 cm<sup>2</sup> aufweisen.

**[0028]** Wenn der Zusammenhang es nicht anders erfordert, werden die Begriffe „orientieren“, „ziehen“ und „strecken“ durchgehend austauschbar verwendet, ebenso wie die Begriffe „orientiert“, „gezogen“ und „gestreckt“ und die Begriffe „Orientieren“, „Ziehen“ und „Strecken“.

**[0029]** [Fig. 1](#) ist eine Endansicht einer erfindungsgemäßen zweischichtigen Folienkonstruktion.

**[0030]** [Fig. 2](#) ist eine Endansicht einer erfindungsgemäßen dreischichtigen Folienkonstruktion.

**[0031]** [Fig. 3](#) ist eine Endansicht einer erfindungsgemäßen fünfschichtigen Folienkonstruktion.

**[0032]** [Fig. 4](#) ist eine Endansicht einer erfindungsgemäßen dreischichtigen Folienkonstruktion mit matter Oberfläche.

**[0033]** [Fig. 5](#) ist eine Endansicht einer erfindungsgemäßen dreischichtigen Folienkonstruktion, die ferner eine Bindschicht zwischen der ersten Schicht und den zweiten Schichten einschließt.

**[0034]** [Fig. 6](#) ist eine Endansicht einer erfindungsgemäßen dreischichtigen Folienkonstruktion, die ferner eine Klebeschicht einschließt.

**[0035]** [Fig. 7a](#) ist eine Darstellung einer sequenziell gestreckten Folie.

**[0036]** [Fig. 7b](#) ist eine grafische Darstellung von WAXS-Ergebnissen, wenn  $\Delta_n < -3,0 \times 10^{-3}$ .

**[0037]** [Fig. 8a](#) ist eine Darstellung einer simultan gestreckten Folie.

**[0038]** [Fig. 8b](#) ist eine grafische Darstellung von WAXS-Ergebnissen, wenn  $\Delta_n = 0$ .

**[0039]** [Fig. 9a](#) ist eine Darstellung einer MD-unausgewogenen simultan gestreckten Folie.

- [0040] [Fig. 9b](#) ist eine grafische Darstellung von WAXS-Ergebnissen, wenn  $\Delta_n > 0$ .
- [0041] [Fig. 10a](#) ist eine Darstellung einer TD-unausgewogenen simultan gestreckten Folie.
- [0042] [Fig. 10b](#) ist eine grafische Darstellung von WAXS-Ergebnissen, wenn  $\Delta_n > -3,0 \times 10^{-3}$ .
- [0043] [Fig. 11](#) ist ein Mikrofotogramm einer abgetrennten Folienkante der vorliegenden Erfindung.
- [0044] [Fig. 12](#) ist ein Mikrofotogramm einer abgetrennten Folienkante von einer Folie des Stands der Technik.
- [0045] [Fig. 13](#) ist ein Rasterelektronenmikrogramm einer Folie der vorliegenden Erfindung.
- [0046] [Fig. 14](#) ist ein Rasterelektronenmikrogramm einer Folie der vorliegenden Erfindung.
- [0047] [Fig. 15](#) ist ein Rasterelektronenmikrogramm einer Folie der vorliegenden Erfindung.
- [0048] [Fig. 16](#) ist ein Rasterelektronenmikrogramm einer Folie des Stands der Technik.
- [0049] [Fig. 17](#) ist ein Rasterelektronenmikrogramm einer Folie des Stands der Technik.
- [0050] [Fig. 18](#) ist ein Rasterelektronenmikrogramm einer Folie des Stands der Technik.
- [0051] [Fig. 19](#) ist ein Rasterelektronenmikrogramm einer Folie der vorliegenden Erfindung.
- [0052] [Fig. 20](#) ist ein Rasterelektronenmikrogramm einer Folie der vorliegenden Erfindung.
- [0053] Wie vorstehend beschrieben, ist eine mehrschichtige, biaxial orientierte Folie bereitgestellt, die mindestens eine erste Schicht und mindestens eine zweite Schicht umfasst, wobei die erste Schicht ein propylenhaltiges Polymer mit einem ersten Schmelzpunkt umfasst und die zweite Schicht ein propylenhaltiges Polymer mit einem zweiten Schmelzpunkt umfasst, so dass der zweite Schmelzpunkt größer ist als der erste Schmelzpunkt, und die mehrschichtige Konstruktion biaxial gestreckt ist, wobei die gestreckte Folie eine kristalline Orientierung aufweist, wie bestimmt durch Messungen der Weitwinkel-Röntgenstrahlenstreuungs-(WAXS) von den monoklinen (110) kristallinen Ebenen, die isotrop ist oder höchstens ein einzelnes spezifisches azimuthales Scanmaximum aufweist, wobei dieses Maximum in einem Winkel von bis zu  $\pm 75^\circ$  von der Maschinenrichtung (MD) positioniert ist. Das einzelne azimuthale Scanmaximum weist zudem eine volle Winkelbreite bei halber Peakhöhe (FWHM) zwischen etwa  $40^\circ$  und  $75^\circ$  auf.
- [0054] In Bezug nun auf [Fig. 1](#) ist eine Endansicht einer Folie **100** gemäß einer bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung dargestellt. Die Folie **100** ist biaxial orientiert und schließt eine erste Schicht **15** und eine zweite Schicht **10** ein. Vorzugsweise weist die Folie **100** eine Dicke im Bereich von etwa 0,002 bis etwa 0,006 Zentimeter auf.
- [0055] Vorzugsweise umfasst die Folie **100** eine mehrschichtige Laminatstruktur mit mindestens zwei Schichten, einer ersten Schicht **15** und einer zweiten Schicht **10**, wobei die erste Schicht **15** ein propylenhaltiges Polymer umfasst und die zweite Schicht **10** propylenhaltige Polymere mit einem höheren Schmelzpunkt als die erste Schicht **15** umfasst, wobei die Folie biaxial gestreckt ist, so dass die hier beschriebenen erwünschten Eigenschaften bereitgestellt werden.
- [0056] In Bezug nun auf [Fig. 2](#) ist eine Endansicht einer Folie **200** gemäß einer bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung dargestellt. Die Folie **200** ist biaxial orientiert und schließt eine erste Schicht **25** und zwei zweite Schichten **20**, **21** ein, wobei die erste Schicht **25** zwischen den zwei zweiten Schichten **20**, **21** liegt. Die zweiten Schichten **20**, **21** können aus den gleichen Homopolymeren oder Copolymeren zusammengesetzt sein, oder sie können unterschiedlich sein. Sie können dahingehend unterschiedlich sein, dass die Copolymerbestandteile die gleichen sind, jedoch in unterschiedlichen Verhältnissen vorliegen, oder sie können dahingehend unterschiedlich sein, dass die Copolymerbestandteile selbst unterschiedlich sind.
- [0057] In Bezug nun auf [Fig. 3](#) ist eine Endansicht einer Folie **300** gemäß einer bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung dargestellt. Die Folie **300** ist biaxial orientiert und schließt mehr als eine erste Schicht **35**, **36** und mehr als zwei zweite Schichten **30**, **31**, **32** ein, wobei die ersten Schichten **35**, **36** zwischen zwei der zweiten Schichten **30**, **31** liegen. Eine dritte Schicht **32** (obwohl als zweite Schicht bezeichnet) kann



zwischen den zwei ersten Schichten **35**, **36** positioniert sein. Anzumerken ist, dass die Nomenklatur der „zweiten Schicht“ beibehalten wird, da die Zwischenschicht **32** dieselben Eigenschaften und Zusammensetzungen wie die eigentlichen zweiten Schichten **30**, **31** aufweist. Die zweiten Schichten **30**, **31**, **32** können aus den gleichen Homopolymeren oder Copolymeren zusammengesetzt sein, oder sie können unterschiedlich sein. Sie können dahingehend unterschiedlich sein, dass die Copolymerbestandteile die gleichen sind, jedoch in unterschiedlichen Verhältnissen vorliegen, oder sie können dahingehend unterschiedlich sein, dass die Copolymerbestandteile selbst unterschiedlich sind. Weiterhin können die ersten Schichten **35**, **36** aus den gleichen Homopolymeren oder Copolymeren zusammengesetzt sein, oder sie können unterschiedlich sein. Sie können dahingehend unterschiedlich sein, dass die Copolymerbestandteile die gleichen sind, jedoch in unterschiedlichen Verhältnissen vorliegen, oder sie können dahingehend unterschiedlich sein, dass die Copolymerbestandteile selbst unterschiedlich sind.

**[0058]** In Bezug nun auf [Fig. 4](#) ist eine Endansicht einer Folie **400** gemäß einer bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung dargestellt. Die Folie **400** ist biaxial orientiert und schließt eine erste Schicht **45**, eine zweite Schicht **40** und eine Oberflächenfinishingschicht **42** ein, wobei die Oberflächenfinishingschicht **42** ein mattes Oberflächenerscheinungsbild aufweist.

**[0059]** Folien mit einer Vielzahl an Konfigurationen können erfindungsgemäß aufgebaut werden, mit der Maßgabe, dass, wenn es sich um eine biaxial gestreckte Folienkonstruktion handelt, die Folie eine kristalline Orientierung aufweist, wie bestimmt durch Messungen der Weitwinkel-Röntgenstrahlenstreuung (WAXS) von den monoklinen (110) kristallinen Ebenen, die isotrop ist oder höchstens ein einziges spezifisches azimuthales Scanmaximum aufweist, wobei das Maximum mit einem Winkel von bis zu  $\pm 75^\circ$  von der Maschinenrichtung (MD) aus positioniert ist.

#### Zusammensetzung der mehreren Schichten der Polyolefinfolie

**[0060]** Die Molekulargewichte der Polymere, die in der ersten Schicht, der zweiten Schicht, der Oberflächenfinishingschicht, sowie als etwaige Zwischenschicht-Polymere verwendet werden, sind derart ausgewählt, dass die Verarbeitungsfähigkeit und das Haftvermögen zwischen den Schichten optimiert werden. Ein besonders zu nennendes Element dieser Erfindung besteht darin, dass Polymere mit relativ hohem Molekulargewicht zur Herstellung von mit den Fingern abreißbaren Folien und Bändern verwendet werden können. Im Allgemeinen fördert das hohe Molekulargewicht von Polymeren die Zähigkeit. Zudem können auch Verunreinigungen oder Additive, die das Haftvermögen zwischen den verschiedenen Schichten fördern, eingebracht werden.

**[0061]** Für die Zwecke der vorliegenden Erfindung bedeutet der Begriff „statistische Polypropylen-Ethylen-Copolymere“ den Einschluss von Copolymeren, die mindestens etwa 90 Gew.-% Propylen-Monomereinheiten umfassen. Derartige Copolymere werden typischerweise durch die Reaktorpolymerisation von Propylen- und Ethylen-Zufuhrströmen über bekannte Schleifen-, Aufschlammungs- oder Gasphasenpolymerisationstechniken hergestellt (Polypropylene Structure, blends and composites, Bd. 2, hrsg. J. Karger-Kocsis, Chapman & Hall, NY (1995)).

**[0062]** Der Begriff „isotaktisches Polypropylen“ zur Verwendung als die zweite Schicht in der vorliegenden Erfindung bedeutet den Einschluss von homopolymerem Polypropylen mit einem Kettenisotaktizitätsindex von mindestens etwa 80 mol-%, vorzugsweise mehr als 95 mol-%, einem n-Heptan-löslichen Gehalt von weniger als etwa 15 Gew.-% und einer Dichte zwischen etwa 0,86 und 0,92 Gramm/cm<sup>3</sup>, gemessen gemäß ASTM D1505-96 („Density of Plastics by the Density-Gradient Technique“). Homopolymere isotaktische Polypropylene werden typischerweise unter Verwendung von hoch ergiebigen Katalysatoren und nur von Propylen-Monomer hergestellt (Polypropylene Structure, blends and composites, Bd. 1, hrsg. J. Karger-Kocsis, Chapman & Hall, NY (1995)).

**[0063]** Typische Polypropylen- und statistische Propylen-Ethylen-Copolymere zur Verwendung in der vorliegenden Erfindung weisen eine Schmelzflussrate zwischen etwa 0,1 und 25 Gramm/10 Minuten, stärker bevorzugt zwischen etwa 0,5 und 15 Gramm/10 Minuten und noch stärker bevorzugt zwischen etwa 1,0 und 10 Gramm/10 Minuten gemäß ASTM D1238-95 („Flow Rates of Thermoplastics by Extrusion Plastometer“) bei einer Temperatur von 230 °C und einer Kraft von 2160 g, einem Gewichtsmittel des Molekulargewichts zwischen etwa 100 000 und 900 000 g/mol, und einem Polydispersitätsindex zwischen etwa 2 und 15 auf. Das Harz oder die Harzkombinationen kann (können) einen zusätzlichen lösungsmittellöslichen, nicht kristallisierbaren Polymeranteil, eine Spezies mit niedrigem Molekulargewicht und dergleichen einschließen.



**[0064]** Die Schmelzflussrate (Melt Flow Rate, MFR) wird wie in ASTM 1238-95 beschrieben erhalten. Kommerzielle Hersteller geben typischerweise die MFR ihrer Polymere an. Ein anderes Mittel zum Charakterisieren von Polymeren ist die Verwendung der Grenzviskosität (Intrinsic Viscosity, IV). Die Grenzviskositätswerte für Polypropylen oder Polypropylen-Copolymere mit einem hohen Prozentanteil ( $> 95\%$ ) an Propyleneinheiten werden typischerweise bei spezifizierten, gewöhnlich erhöhten Temperaturen in Lösungsmitteln, wie Tetralin, Decalin oder anderen geeigneten Lösungsmitteln, gemessen. ASTM 446-93 beschreibt geeignete Viskosimeter für diese Messung. Das „Handbook of Polyolefins: Synthesis and Properties“, Hrsg. Cornelia Vasile und Raymond B. Seymour, Marcel Dekker, Inc., New York, 1993, (Seiten 140–142), beschreibt die Bestimmung der IV unter Verwendung der Huggins-Gleichung und empirischer Korrelationen zwischen IV und dem viskositäts-gemittelten Molekulargewicht,  $M_v$ , unter Verwendung der Mark-Houwink-Sakurada-Gleichung, wobei sämtliche dieser Beziehungen dem Fachmann bekannt sind. Als Hinweis ist  $M_w$  etwa 20 % höher als  $M_v$  für typische im Handel erhältliche Polypropylene mit Molekulargewichtsverteilungen von etwa 5. Ergebnisse von Moraglio (Chim Ind. (Milan) 41, 879 (1959)), Yamaguchi (Makromol Chem., 128, 19 (1969)), Scholte et al. (T.G. Scholte, N.L.J. Meijerink, H.M. Schoffeleers und A.M.G. Brands, J. Appl. Polym. Sci. 29, 3763–3782, (1984)), Grant und Dieckmann (J. Appl. Polym. Sci. 9, 3231–3244, (1965)) und Kinsinger und Hughes (J. Phys. Chem., 63, 2002–2007, (1959)) weisen darauf hin, dass die in Decalin gemessene IV um etwa 0,15 Einheiten höher ist, als wenn sie in Tetralin gemessen wird.

**[0065]** Die Society of Plastic Engineers, in Polypropylene Fibers – Science and Technology, M. Ahmed, Elsevier Science Publishing Company, New York, NY, S. 26–29 und 159–161, (1982), stellt eine Korrelation zwischen IV (in Decalin bei 135 °C) und MFR für Polypropylen bereit:  $\log IV = 0,50 - 0,197 \log [MFR]$ .

**[0066]** Die Polypropylen- oder Propylen-Ethylen-Copolymer-Harze sind in Bezug auf die Schmelzflusseigenschaften nicht begrenzt, da das Harz mit dem richtigen Schmelzfluss derart ausgewählt werden kann, dass es für ein bestimmtes Polymerfolienherstellungsverfahren geeignet ist.

#### Erste Schicht

**[0067]** In Bezug nun auf die Zusammensetzung der Schichten umfasst die erste Schicht ein propylenhaltiges Polymer, einschließlich (i) Propylen-Homopolymer oder (ii) eine Mischung oder ein Gemisch aus zwei oder mehr propylenhaltigen Polymeren oder (iii) eine Mischung oder ein Gemisch aus propylenhaltigem Polymer mit anderen geeigneten Polymeren, so dass die  $MP_{dsc}$  des Hauptbestandteils der Polymerzusammensetzung der ersten Schicht mindestens etwa 2 °C niedriger als die  $MP_{dsc}$  des Hauptbestandteils der Polymerzusammensetzung der zweiten Schicht ist.

**[0068]** Typischerweise wird, falls der Schmelzpunkt des Hauptbestandteils der ersten Schicht(en) um weniger als etwa 2° niedriger als der Hauptbestandteil des Polymerschmelzpunkts der zweiten Schicht ist, die Folie der vorliegenden Erfindung schwieriger mit den Fingern abzureißen sein. Wenngleich es keine obere Grenze für den Unterschied in den Schmelzpunkten zwischen der ersten Schicht und der zweiten Schicht gibt, liegt in der Praxis die obere Grenze dort, wo die biaxiale Streckung der Folien der vorliegenden Erfindung ermöglicht wird, um daraus mit den Fingern abreißbare und abtrennbare Bandträger herzustellen.

**[0069]** Geeignete Polymere der ersten Schicht schließen statistische Copolymere von Propylen mit Ethylen ein, wobei Ethylengehalte zwischen etwa 0,5 und 4,5 % besonders geeignet sind. Polypropylen-Copolymere mit anderen  $C_2$ - $C_8$ -Olefinpolymeren sowie Mischungen von verschiedenen Polypropylen-Copolymeren oder Mischungen von Polypropylen-Ethylen-Copolymeren mit Polypropylen sind ebenfalls geeignet. Geeignete Polymere für diesen Zweck schließen FINA PP 6253 von FINA Oil & Chemical Co., Dallas, TX, und EXXON PP 9122 von EXXON Chemical Co., Houston, TX, ein, sind jedoch nicht darauf beschränkt.

**[0070]** Andere geeignete Polymere der ersten Schicht schließen Polypropylene ein, die unter Verwendung von Katalysatoren vom Metallocentyp polymerisiert sind, was in einigen Fällen Polymere mit niedrigeren Schmelzpunkten als denjenigen, die unter Verwendung von Ziegler-Natta-Katalysatorsystemen polymerisiert werden, ergibt (siehe z.B. die US-Patentschrift Nr. 5,416,228). Im Falle von Metallocen-katalysierten Polypropylenen ist isotaktisches Polypropylen bevorzugt.

**[0071]** Ein optionaler (optionale) oder Neben-Polymerbestandteil(e) kann (können) ebenfalls in der ersten Schicht verwendet werden, mit der Maßgabe, dass der optionale Polymerbestandteil oder die optionalen Polymerbestandteile in derartigen Gehalten vorliegen, dass die erwünschten Folienattribute, wie niedrige Durchschlagenergie und niedrige Trübung, beibehalten werden. Der (die) optionale(n) Polymerbestandteil(e) kann (können) jedes beliebige geeignete Polymer sein, jedoch sind zum Erhalt von erwünschten niedrigen Trü-

bungsgraden die ersten und die zweiten Schichten vorzugsweise ausgewählt aus Homopolymeren oder Copolymeren von Polypropylen.

**[0072]** Besonders geeignetes Polypropylen kann auch in einer Menge, die die gewünschten hier beschriebenen Eigenschaften und Merkmale nicht nachteilig beeinflusst, ein Harz synthetischen oder natürlichen Ursprungs mit einem Molekulargewicht zwischen etwa 300 und 8000 g/mol und mit einem Erweichungspunkt zwischen etwa 60 °C und 180 °C einschließen. Typischerweise wird ein derartiges Harz aus einer von vier Hauptklassen ausgewählt: Petroleumharzen, Styrolharzen, Cyclopentadienharzen und Terpenharzen. Wahlweise können Harze von beliebigen dieser Klassen teilweise oder vollständig hydriert sein. Petroleumharze weisen typischerweise als monomere Bestandteile Styrol, Methylstyrol, Vinyltoluol, Inden, Methylin, Butadien, Isopren, Piperin und/oder Penten auf. Styrolharze weisen typischerweise als monomere Bestandteile Styrol, Methylstyrol, Vinyltoluol und/oder Butadien auf. Cyclopentadienharze weisen typischerweise als monomere Bestandteile Cyclopentadien und wahlweise andere Monomere auf. Terpenharze weisen typischerweise als monomere Bestandteile Pinen, alpha-Pinen, Dipenten, Limonen, Myrcen und Camphen auf.

**[0073]** Polymere, die in der ersten Schicht verwendet werden, sind geeignet, wenn die Ausgangs-MFR 0,1 bis 25 Gramm pro 10 Minuten beträgt (oder wenn die IV, wie gemessen in Decalin oder Tetralin bei 135 °C, etwa 1,7 bis 5,0 beträgt), oder stärker bevorzugt, wenn die MFR 0,5 bis 15 Gramm pro 10 Minuten beträgt (oder wenn die IV 1,85 bis 3,6 beträgt), oder noch stärker bevorzugt, wenn die MFR 1 bis 10 Gramm pro 10 Minuten beträgt (oder wenn die IV 2,0 bis 3,2 beträgt).

**[0074]** Ein geeignetes statistisches Polypropylen-Ethylen-Copolymer für die erste Schicht weist eine Schmelzflussrate von 1,5 g/10 Minuten auf und ist im Handel unter der Produktbezeichnung 6253 von FINA Oil and Chemical Co., Dallas, TX, erhältlich. Ein anderes geeignetes Polymerharz ist ein statistisches Polypropylen-Ethylen-Copolymerharz mit einer Schmelzflussrate von 2,1 g/10 Minuten und ist im Handel unter der Produktbezeichnung Escorene 9122 von EXXON Chemical, Co., Houston, TX, erhältlich. Die Polymerharze sind in Bezug auf die Schmelzflusseigenschaften nicht beschränkt, da das Harz mit dem richtigen Schmelzfluss für ein bestimmtes Polymerfolienherstellungsverfahren geeignet ausgewählt werden kann. Diese MFR-Werte stimmen mit einer IV > 2,3 (gemessen bei 135 °C in Decalin oder Tetralin) überein.

**[0075]** Ein bevorzugter Bereich des Gewichtsmittels des Molekulargewichts für die die erste Schicht ausmachenden Polymere beträgt etwa 150 000 bis 900 000 g/mol.

#### Zweite Schicht

**[0076]** Polymere der zweiten Schicht umfassen propylenhaltige Polymere, wie isotaktische Polypropylen-Homopolymere oder -Copolymere, die weniger als etwa 1 Gew.-% Comonomere, wie Ethylen, Butylen und dergleichen, enthalten (so dass der MP-Unterschied von 2 °C erfüllt wird). Geeignete Polymere für diesen Zweck schließen isotaktisches Polypropylen des Typs FINA PP 3571, erhältlich von FINA, Oil & Chemical Co., Dallas, TX; EXXON PP 4792, erhältlich von EXXON Chemical Co., Houston, TX; und Aristech FF036Q2, erhältlich von Aristech Chemical Co., Pittsburgh, PA, ein. Geeignete Polymere schließen diejenigen ein, die unter Verwendung von Ziegler-Natta- oder Metallocen-Katalysatoren oder Kombinationen davon polymerisiert werden.

**[0077]** Die zweite(n) Schicht(en) kann (können) auch eine Mischung aus Copolymer der ersten Schicht mit den Polypropylen-Homopolymeren oder -Copolymeren umfassen, mit der Maßgabe, dass der Schmelzpunkt des Hauptbestandteils der Zusammensetzung der zweiten Schicht(en) um mindestens etwa 2 °C höher als derjenige des Hauptbestandteils der ersten Schicht liegt.

**[0078]** Geeignete Polymere der zweiten Schicht schließen isotaktisches Polypropylen oder Propylen-Ethylen-Copolymere mit Schmelzpunkten, die um mindestens etwa 2 °C höher als die Polymerzusammensetzung der ersten Schicht liegen, sowie Mischungen oder Gemische aus einem oder mehreren Propylen-Copolymeren und -Homopolymeren, ein. Zudem können die Zusammensetzungen der zweiten Schicht Mischungen aus isotaktischen statistischen Polypropylen-Ethylen-Copolymeren oder statistischen Polypropylen-Ethylen-Copolymeren mit niedrigem Ethylengehalt einschließen, wobei statische Polypropylen-Ethylen-Copolymere höhere Ethylengehalte aufweisen, um das Haftvermögen zwischen benachbarten Schichten zu verbessern.

**[0079]** Polymere, die in der zweiten Schicht verwendet werden, sind geeignet, wenn die MFR 0,5 bis 25 Gramm pro 10 Minuten beträgt (oder wenn die IV, wie gemessen in Decalin oder Tetralin bei 135 °C, etwa 1,7 bis 3,6 beträgt).

**[0080]** Ein geeignetes Propylen-Copolymer, mit einem Ethylengehalt von weniger als 1,0 für die zweite Schicht weist eine Schmelzflussrate von etwa 3,5 Gramm/10 Minuten auf und ist im Handel unter der Produktbezeichnung FF036Q2 von Aristech Chemical Corp., Pittsburgh, PA, erhältlich. Ein anderes geeignetes Polymerharz für die zweite Schicht, mit einem Ethylengehalt < 1,0 ist ein statistisches Polypropylen-Ethylen-Copolymerharz mit einer Schmelzflussrate von etwa 2,5 Gramm/10 Minuten und ist im Handel unter der Produktbezeichnung Escorene 4792 von EXXON Chemical erhältlich. Ein anderes geeignetes Polymerharz für die zweite Schicht, ohne Ethylengehalt, ist ein Propylen-Homopolymerharz mit einer Schmelzflussrate von etwa 2,5 g/10 Minuten und ist im Handel unter der Produktbezeichnung 3374 von FINA Oil and Chemical Co., Dallas, TX, erhältlich. Ein anderes geeignetes Polymerharz ist ein Propylen-Homopolymerharz mit einer Schmelzflussrate von etwa 9,0 g/10 Minuten und ist im Handel unter der Produktbezeichnung 3571 von FINA Oil and Chemical Co., Dallas, TX, erhältlich. Die Polypropylenharze sind in Bezug auf die Schmelzflusseigenschaften nicht beschränkt, da das Harz mit dem richtigen Schmelzfluss für ein bestimmtes Polymerfolienherstellungsverfahren geeignet ausgewählt werden kann. Die vorstehend aufgelisteten geeigneten Harze weisen MFR-Werte auf, die mit einer IV > 2,0 übereinstimmen.

**[0081]** Ein bevorzugter Bereich des Gewichtsmittels des Molekulargewichts,  $M_w$ , für die Polymere, die die zweite Schicht ausmachen, beträgt etwa 100 000 bis 800 000 g/mol.

#### Oberflächenfinishingschichten

**[0082]** Zusätzlich kann die Folienkonstruktion eine Oberflächenfinishingschicht einschließen, um eine matte Oberfläche, eine beschriftungsfähige Oberfläche und dergleichen zu verleihen. Derartige Oberflächenfinishingschichten sind aus Mischungen oder Gemischen von unverträglichen Polymeren (d.h. einer Mischung oder einem Gemisch, das ein phasengetreuntes System erzeugt) zusammengesetzt. Zum Beispiel zeigen derartige unverträgliche Polymere typischerweise eine hohe Trübung, einen geringen Glanz und ein mattes Erscheinungsbild. Derartige unverträgliche Polymere schließen z.B. Mischungen aus Polypropylenen mit Polyethylenen mit niedriger, mittlerer oder hoher Dichte, Propylen-Copolymer oder -Terpolymeren und dergleichen ein. Zum weiteren Verbessern des matten Erscheinungsbilds und der Eigenschaften, wie Beschriftungsfähigkeit, können teilchenförmige Zugaben, wie Calciumcarbonat, Titandioxid oder Silicate, den Zusammensetzungen für die Oberflächenfinishingschicht zugesetzt werden. Schließlich können die Zusammensetzungen für die Oberflächenfinishingschicht andere Polymertypen, wie Polystyrol, schlagfestes modifiziertes Polystyrol, Polyester, Polycarbonate, Polyamide und dergleichen, umfassen. Diese Polymerklassen können der Gesamtfolienkonstruktion spezifische Eigenschaften, wie z.B. verminderte Durchschlagenergie, verbessertes mattes Erscheinungsbild, Sperreigenschaften und dergleichen, verleihen.

**[0083]** Typische Zusammensetzungen für die Oberflächenfinishingschicht schließen propylenhaltige Polymere, wie isotaktische Polypropylene oder statistische Propylen-Ethylen-Copolymere mit einer Schmelzflussrate von größer als oder gleich 30 Gramm/10 Minuten, stärker bevorzugt größer als oder gleich 50 Gramm/10 Minuten und noch stärker bevorzugt größer als oder gleich 75 Gramm/10 Minuten, gemäß ASTM D1238-95 („Flow Rates of Thermoplastics by Extrusion Plastometer“), bei einer Temperatur von 230 °C und einer Kraft von 2160 Gramm, ein, sind jedoch nicht darauf beschränkt. Der Schmelzpunkt des propylenhaltigen Polymers liegt zwischen 140° und 165 °C.

**[0084]** Die Auswahl des propylenhaltigen Polymers wird typischerweise auf der Basis der Orientierungstemperatur der ersten Schicht durchgeführt. Für die vorliegende Erfindung liegt der Schmelzpunkt des propylenhaltigen Polymers der Oberflächenfinishingschicht um mindestens 2 °C niedriger als die Orientierungstemperatur der ersten Schicht. Der Schmelzpunkt des propylenhaltigen Polymers der Oberflächenfinishingschicht wird unter Verwendung von Differenzial-Scanning-Kalorimetrie (DSC), wie hier beschrieben, gemessen.

**[0085]** Geeignete propylenhaltige Polymere schließen statistische Copolymere von Propylen mit Ethylen ein, wobei Ethylengehalte zwischen etwa 0,5 und 4,5 % besonders geeignet sind. Propylen-Copolymere mit anderen  $C_2$ - $C_8$ -alpha-Olefinpolymeren sowie Mischungen von mehreren Polypropylen-Copolymeren oder Mischungen von Polypropylen-Ethylen-Copolymeren mit Polypropylen sind ebenfalls geeignet. Geeignete Polymere für diesen Zweck schließen FINA PP 3860 und FINA 7825 von FINA Oil & Chemical Co., Dallas, TX, ein, sind jedoch nicht darauf beschränkt.

**[0086]** Typische Polyethylene mit hoher Dichte, die in der Oberflächenfinishingschicht der vorliegenden Erfindung verwendet werden, weisen eine Schmelzflussrate von weniger als oder gleich 1 Gramm/10 Minuten, stärker bevorzugt weniger als 0,5 Gramm/10 Minuten und noch stärker bevorzugt weniger als 0,25 Gramm/10 Minuten, gemäß ASTM D1238-95 („Flow Rates of Thermoplastics by Extrusion Plastometer“), bei einer Tempe-

ratur von 230 °C und einer Kraft von 2160 Gramm, auf. Die Dichte des Polyethylens mit hoher Dichte, das in der vorliegenden Erfindung verwendet wird, liegt zwischen etwa 0,92 und 0,97 Gramm/cm<sup>3</sup>, gemessen gemäß ASTM D15050-96 („Density of Plastics by the Density-Gradient Technique“). Der Schmelzpunkt des Polyethylens mit hoher Dichte liegt zwischen 120° und 150 °C, vorzugsweise zwischen etwa 125° und 135 °C.

**[0087]** Geeignete Polyethylene mit hoher Dichte schließen Polyethylen-Homopolymere und Ethylen-Copolymere mit anderen C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefinpolymeren sowie Mischungen von mehreren Polyethylen-Copolymeren oder Mischungen von Polyethylen-Copolymeren mit Polyethylen ein. Ein geeignetes Harz zur Verwendung in der Oberflächenfinishingschicht ist ein lineares Copolymer mit hoher Dichte, im Handel erhältlich unter der Produktbezeichnung HiD<sup>®</sup> 9640 von Chevron Chemical Co., Houston, TX.

**[0088]** Erfindungsgemäß sollte das Verhältnis der Schmelzflussrate des Polyethylens mit hoher Dichte (gemessen bei 230 °C und einer Last von 2160 Gramm) zu der Schmelzflussrate des propylenhaltigen Copolymers (gemessen bei 230 °C und einer Last von 2160 Gramm) der Oberflächenfinishingschicht mindestens 1:30, vorzugsweise 0,2:30 und stärker bevorzugt 0,2:100 betragen, um eine matte Oberfläche mit geringem Glanz und einem überragenden Erscheinungsbild hervorzubringen. Es wurde gefunden, dass ein großer Unterschied in der Schmelzflussrate des Polyethylens mit hoher Dichte und des propylenhaltigen Copolymers zu einem überragenden matten Erscheinungsbild mit geringem Glanz und einer matten Oberfläche, die deutlich frei von Hohlräumen oder Rissen ist, führt, mit der Maßgabe, dass die Folie bei Temperaturen um mindestens 2 °C höher als der Schmelzpunkt des propylenhaltigen Polymers der Oberflächenfinishingschicht orientiert wird.

**[0089]** Geeignete teilchenförmige Füllstoffe, die in der matten Schichtmischung der vorliegenden Erfindung verwendet werden, schließen Calciumcarbonat, Silica, Titandioxid und dergleichen ein. Erfindungsgemäß sollte die Mohs-Härte des teilchenförmigen Stoffs größer als 2 sein. Es ist bevorzugt, dass der mittlere Durchmesser des teilchenförmigen Füllstoffs nicht größer als 5 µm, vorzugsweise nicht größer als 3,5 µm ist, und dass der maximale Teilchendurchmesser nicht größer als 15 µm ist. Der teilchenförmige Füllstoff sollte in der Oberflächenfinishingschicht, entsprechend so gemischt werden, dass keine großen Agglomerate von teilchenförmigem Füllstoff vorliegen. Ein geeigneter teilchenförmiger Füllstoff zur Verwendung in der matten Schichtmischung ist im Handel unter der Produktbezeichnung HiPflex<sup>®</sup> 100 von Specialty Minerals, Bethlehem, PA, erhältlich.

**[0090]** In einer bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung umfasst die Oberflächenfinishingschicht eine Mischung aus 20 bis 80 Gew.-% Polyethylen mit hoher Dichte und 80–20 Gew.-% isotaktischem Polypropylen oder statistischem Propylen-Ethylen-Copolymer, stärker bevorzugt 40–60 Gew.-% Polyethylen mit hoher Dichte und 60–40 Gew.-% isotaktischem Polypropylen oder statistischem Propylen-Ethylen-Copolymer. Zu der Mischung aus Polyethylen mit hoher Dichte und isotaktischem Polypropylen oder statistischem Propylen-Ethylen-Copolymer werden 5–30 Gew.-% teilchenförmiger Füllstoff, vorzugsweise 10–20 Gew.-% teilchenförmiger Füllstoff der Mischung zugesetzt, um eine Oberfläche herzustellen, die mit einem Bleistift, einem Kugelschreiber und einem Permanent-Marker beschrieben werden kann.

**[0091]** Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform der Erfindung beträgt nach der biaxialen Orientierung die Dicke der gesamten Folienkonstruktion 25–50 µm und die Dicke der matten Schicht 2–7 µm, stärker bevorzugt 3–5 µm.

**[0092]** Die Folie der Erfindung weist das gewünschte optische Erscheinungsbild dahingehend auf, dass sie ein überragendes mattes Erscheinungsbild aufweist. Zum Zwecke der vorliegenden Erfindung ist ein „mattes Erscheinungsbild“ derart definiert, dass es einen geringen Oberflächenglanz und eine hohe Trübung aufweist. „Geringer Oberflächenglanz“ ist definiert als die Glanzwerte, die weniger als oder gleich 10 % betragen, wie gemessen durch ASTM D2457-97 („Specular Gloss of Plastic Films and Solid Plastics“) bei einem Einfallswinkel von 60°. „Hohe Trübung“ ist definiert als die Trübungswerte, die größer als 70 % und weniger als 90 % betragen, wie gemessen durch ASTM D1003 („Haze and Luminous Transmittance of Transparent Plastics“). Der „Prozentanteil der Gesamtlichtdurchlässigkeit“ der Folie ist größer als 90 wie gemessen durch ASTM D1003 („Haze and Luminous Transmittance of Transparent Plastics“).

**[0093]** Zudem stellt diese Erfindung eine Folie bereit, die eine Oberfläche aufweist, die mit einem Bleistift, einem Kugelschreiber oder einem Permanent-Marker beschrieben werden kann. Zum Erhalt einer derartigen Beschriftungsfähigkeit weist der teilchenförmige Füllstoff typischerweise eine Mohs-Härte von größer als 2 auf, so dass beim Beschreiben der Folienoberfläche die Mine eines Bleistifts abgerieben wird, wodurch eine durchgehende Linie hergestellt wird.

**[0094]** Additive und andere Bestandteile, wie sie auf dem Fachgebiet bekannt sind, können in den Polypropylenzusammensetzungen eingeschlossen sein. Zum Beispiel können die Folien der vorliegenden Erfindung Füllstoffe, Pigmente und andere Farbmittel, Antiblockmittel, Schmiermittel, Weichmacher, Verarbeitungshilfen, Keimbildner oder Klärungsmittel, antistatische Mittel, klebrig machende Harze, Antioxidationsmittel und wärmestabilisierende Mittel, Ultraviolettlicht stabilisierende Mittel und andere Eigenschaftsmodifikatoren enthalten. Typischerweise werden derartige Materialien einem Polymer vor dessen Herstellung zu einer orientierten Folie (z.B. in die Polymerschmelze vor der Extrusion zu einer Folie) zugesetzt. Derartige Zugaben und andere Bestandteile werden in wirksamen Mengen zugesetzt, wie sie dem Fachmann bekannt sind.

#### Zwischenschichten

**[0095]** In Bezug nun auf [Fig. 5](#) (kann) können (eine) Zwischenschicht(en) **51**, **52** vorliegen, oder nicht, die zwischen den verschiedenen Schichten **53**, **55**, **56** (liegt) liegen. Typischerweise würde eine Zwischenschicht (**51** oder **52**) zum Verbessern des Schichthaftvermögens oder der Folienverarbeitbarkeit verwendet werden, so dass eine zweite Schicht **53** an eine erste Schicht **56** oder die erste Schicht **56** an eine Oberflächenfinishingschicht **55** „gebunden“ wird. Derartige Zwischenschichten werden typischerweise als „Bindeschicht“ bezeichnet, und eine beliebige Anzahl an Bindeschichten kann in beliebiger Kombination mit der ersten, zweiten und Oberflächenfinishingschicht verwendet werden. Dies kann unter Verwendung einer Polymerzusammensetzung erzielt werden, die mit beiden Schichten verträglich ist, oder kann eine Schicht sein, die aus einigen Polymeren von beiden Schichten zusammengesetzt ist, wodurch ein gutes Haftvermögen und eine stabile Schmelzverarbeitbarkeit bereitgestellt werden.

**[0096]** Zwischenschichten können, falls gewünscht, überwiegend aus dem Polymer entweder der ersten Schicht oder der zweiten Schicht zusammengesetzt sein oder können eine Mischung aus den beiden sein und zusätzliche Bestandteile enthalten, so dass die Verarbeitbarkeit und die Folieneigenschaften optimiert werden. Die Dicke der vereinigten zweiten Schicht(en) und der Zwischenschicht(en) kann zwischen etwa 5 bis etwa 50 % der Gesamtfolienstärke liegen. Weiterhin müssen die Zusammensetzungen für die zweite Schicht ausreichend wärmestabil sein, um einem Schmelzen während der anschließenden Verarbeitung, wie einer Beschichtung, zu widerstehen.

#### Folienverarbeitung – Extrusion/Gießen

**[0097]** Die mehrschichtige Konstruktion der vorliegenden Erfindung kann schmelzkoextrudiert und durch eine dem Fachmann bekannte Apparatur in Lagenform gegossen werden. Derartige Gussfolien werden dann gestreckt, um die hier beschriebene bevorzugte Folie zu erhalten. Beim Herstellen von erfindungsgemäßen Folien besteht ein geeignetes Verfahren zum Gießen einer mehrschichtigen Lage darin, die Harze in einen Zufuhrtrichter einer Einzelschnecke, Doppelschnecke oder eines anderen Extrudersystems mit einer Extrudertrommeltemperatur, die zum Herstellen einer stabilen homogenen Schmelze eingestellt ist, zuzuführen. Die Schmelze kann durch eine Lagermatrize vom mehrschichtigen oder Verteiler-/Zufuhrblocktyp auf ein drehendes, gekühltes Metallgussrad koextrudiert werden. Wahlweise kann das Gussrad teilweise in ein mit Fluid gefülltes Kühlbad eingetaucht sein, oder ebenfalls wahlweise kann die Gusslage durch ein mit Fluid gefülltes Kühlbad nach Entfernung von dem Gussrad durchgeleitet werden. Die Temperaturen dieses Vorgangs können vom Fachmann mit dem Vorteil der hier enthaltenen Lehren hier zum Bereitstellen der gewünschten Keimbildungsdichte, Größe, Wachstumsrate und des Zwischenschichthaftvermögens derart ausgewählt werden, dass die erhaltene gestreckte Folie die gewünschten hier beschriebenen Eigenschaften und Merkmale aufweist. Typische Gussradtemperaturen sowie Wasserbadtemperaturen liegen unter etwa 60 °C, vorzugsweise unter etwa 40 °C, um eine geeignet kristallisierte Lage herzustellen.

#### Folienverarbeitung – Strecken/Orientierung

**[0098]** Jede beliebige geeignete Apparatur zum biaxialen Strecken der Folien gemäß den bevorzugten hier beschriebenen Verfahren kann die bevorzugten, hier beschriebenen Eigenschaften erzielen. Unter allen Streckverfahren schließen die Apparaturen, die zur kommerziellen Fertigung von Folien für Bandträger bevorzugt sind, ein: eine Apparatur für sequenzielles biaxiales Strecken, die typischerweise zuerst in der MD streckt, indem die Folie über eine Sequenz von drehenden Walzen geleitet wird, deren Geschwindigkeit eine Folienanlagengeschwindigkeit mit höherer Leistung bereitstellt als die Eingabegeschwindigkeit, gefolgt vom TD-Strecken in einem Spannrahmen auf gegeneinander drehenden Schienen; simultanes biaxiales Strecken durch einen mechanischen Spannrahmen, wie der in den US-Patentschriften Nr. 4,330,499 und 4,595,738 offenbarten Apparatur; und die Spannrahmenapparatur zum simultanen biaxialen Strecken, offenbart in den US-Patentschriften Nr. 4,675,582; 4,825,111; 4,853,602; 5,036,262; 5,051,225; und 5,072,493. Wenngleich biaxial ge-

streckte Folien durch Röhrenblasfolien- oder Bläschenfolienherstellungsverfahren hergestellt werden können, ist es bevorzugt, dass die Folien dieser Erfindung, falls sie als Bandträger verwendet werden, durch eine Flachfolienstreckapparatur hergestellt werden, um Verarbeitungsschwierigkeiten, wie ungleichmäßige Dicke und ungleichmäßiges Strecken und eine unzureichende Temperatursteuerung, die mit Röhrenblasfolienverfahren auftreten kann, zu vermeiden.

**[0099]** Der Grad und der Typ oder das Richtungsvermögen der Orientierung bestimmen teilweise die mechanischen Eigenschaften einer gestreckten Folie, insbesondere in Anbetracht von Lasten, die in spezifischen Richtungen aufgebracht werden. Der orientierte Strukturzustand korreliert gut mit beobachteten mechanischen Eigenschaften (R.J. Samuels, „Structured Polymer Properties“, Kap. 5, John Wiley & Sons, N.Y., und A.J. DeVries, Polymer Engineering & Science, 23(5), 241 (1983)).

**[0100]** Die Temperaturen des Streckvorgangs können durch den Fachmann mit dem Vorteil der hier enthaltenen Lehren zum Bereitstellen einer Folie mit den gewünschten hier beschriebenen Eigenschaften und Merkmalen ausgewählt werden. Diese Temperaturen variieren mit dem verwendeten Material und mit den Wärmeübertragungseigenschaften der verwendeten speziellen Apparatur. Für simultan gestreckte Träger ist es bevorzugt, dass ein Vorwärmen und Strecken im Bereich von ungefähr 130 °C bis 200 °C stattfindet.

### Molekulare Orientierung

**[0101]** Es gibt verschiedene allgemein akzeptierte Mittel, durch welche die molekulare Orientierung in orientierten Polymersystemen gemessen werden kann, unter welchen sich das Streuen von Licht oder Röntgenstrahlen, Absorptionsmessungen, die Analyse der mechanischen Eigenschaften und dergleichen befinden. Quantitative Verfahren schließen Weitwinkel-Röntgenstrahlenstreuung („WAXS“), optische Doppelbrechung, Infrarotdichroismus und Kleinwinkel-Röntgenstrahlenstreuung („SAXS“) ein. Ein bevorzugtes Verfahren zum Bestimmen der kristallinen Kettenachsenorientierungsverteilung ist die WAXS-Technik, in welcher kristalline Ebenen in den Fibrilstrukturen einfallende Röntgenstrahlen mit einem festgesetzten Winkel, bekannt als Bragg-Winkel (siehe A.W. Wilchinsky, Journal of Applied Physics, 31(11), 1969 (1960) und W.B. Lee et al., Journal of Materials Engineering and Performance, 5(5), 637 (1996)) streuen oder brechen. Im WAXS wird eine kristalline Ebene, z.B. die monokline (110) Ebene des isotaktischen Polypropylens, enthaltend Informationen über die Polypropylen-Molekülketten-(oder c-)Achse, gemessen und dann durch die Probengeometrie mit externen Koordinaten in Bezug gesetzt.

**[0102]** Die erfinderischen Folien weisen vorzugsweise eine spezifische, einkristalline Morphologieorientierung in Bezug entweder auf die MD oder eine Referenzrichtung „R“ auf.

**[0103]** In Bezug insbesondere auf die [Fig. 7a](#) bis [Fig. 10b](#), sind die [Fig. 7a](#), [Fig. 8a](#), [Fig. 9a](#) und [Fig. 10a](#) Darstellungen des Orientierungszustands in gestreckten Folien. Die spezifische Reihenfolge und Orientierung sind nachstehend dargelegt. Die [Fig. 7b](#), [Fig. 8b](#), [Fig. 9b](#) und [Fig. 10b](#) sind eine grafische Darstellung der WAXS-Ergebnisse mit verschiedenen Werten der in den [Fig. 7a](#), [Fig. 8a](#), [Fig. 9a](#) bzw. [Fig. 10a](#) dargestellten gestreckten Folien.

**[0104]** Die „Referenzrichtung“ ist, wie hier verwendet, die Achse, die in der Ebene der Folie liegt, gegen welche die kristalline Orientierung definiert ist. Beim Bestimmen der mechanischen Eigenschaften einer Folie ist die Referenzrichtung die Richtung, in welche die Folie gestreckt wird. Beim Bestimmen der Durchschlagenergie einer Folie ist die Referenzrichtung die Richtung, in welche die Folie gespannt wird, bevor sie einem hier beschriebenen Durchschlagtest unterzogen wird. Für Trägerfolien, die in ein Klebeband in Rollenform umgewandelt werden, ist die Referenzrichtung die Richtung, in welcher die Lagerrolle zu einer schmalen Breite geschlitzt wird, um auf Bandrollen aufgewickelt zu werden. Typischerweise, wenn auch nicht immer, ist die Referenzrichtung dieselbe wie die Längs- oder Maschinenrichtung (MD) der Folie.

**[0105]** Eine besonders nützliche Eigenschaft der erfinderischen Folien liegt darin, dass sie eine kristalline Orientierung, wie bestimmt durch Messungen der Weitwinkel-Röntgenstrahlenstreuung von den monoklinen (110) kristallinen Ebenen aufweisen, die isotrop ist oder ein einzelnes azimuthales Scanmaximum aufweist, wobei das einzelne azimuthale Scanmaximum mit einem Winkel von bis zu  $\pm 75^\circ$  in Bezug auf die Referenzrichtung positioniert ist. Die genannten Diffraktionsmuster sind diejenigen, die durch Untersuchung eines Quadranten eines typischen WAXS-Diffraktionsmusters nachgewiesen werden, z.B. der azimuthale Winkelbereich von  $90^\circ$  bis  $180^\circ$ . Wenngleich die [Fig. 7b](#) bis [Fig. 10b](#) das Diffraktionsmuster zwischen den Winkeln  $0^\circ$  und  $180^\circ$  abbilden, ist es der Fall, dass der Bereich von  $0^\circ$  bis  $90^\circ$  ein Spiegelbild von demjenigen von  $90^\circ$  bis  $180^\circ$  ist. Die Auswahl der Darstellungsdaten von  $0^\circ$  bis  $180^\circ$  wird durchgeführt, um Diffraktionsmuster zu ermöglichen, die



um 90°-Winkel gemittelt sind, d.h., dass die MD deutlicher wahrgenommen wird. Das einzelne azimuthale Scanmaximum besitzt zusätzlich eine Winkelbreite bei halber Peakhöhe zwischen etwa 40° bis 75°, wie in den [Fig. 9a](#) und [Fig. 9b](#) dargestellt. Besitzen die erfinderischen Folien eine isotrope kristalline Orientierungsverteilung, so zeigt das WAXS-Azimuthal-Scan kein erkennbares Maximum, wie in den [Fig. 8a](#) und [Fig. 8b](#) dargestellt. In diesem Fall ist die kristalline Kettenachsenorientierung in der Ebene der Folie gleichmäßig verteilt.

**[0106]** Im Gegensatz dazu ist das Auftreten von zwei oder mehr azimuthalen WAXS-Scanmaxima, wie in [Fig. 7b](#) dargestellt, wobei mindestens eines davon mit einem Winkel von größer als etwa  $\pm 75^\circ$  in Bezug auf die Referenzrichtung positioniert ist, oder ein einzelnes, spezifisches azimuthales WAXS-Scanmaximum, das mit einem Winkel von größer als etwa  $\pm 75^\circ$  in Bezug auf die Referenzrichtung positioniert ist, für eine unerwünscht orientierte Folie kennzeichnend. Besitzen der Peak oder die besitzen die Peaks zusätzlich eine Halbwertsbreite (full width at half maximum; FWHM) von weniger als etwa 40°, so ist die dadurch gekennzeichnete Folie für die Zwecke der vorliegenden Erfindung besonders ungeeignet. In diesem Fall ist die Folie typischerweise zu streckbar und führt zu Bandrollen, die dazu neigen, zu verlaufen oder Lücken zu bilden, und Bändern, die dazu neigen, sich zu dehnen, deformieren und unter Belastung weiß zu werden, wenn sie auf der Klinge von im Handel erhältlichen Klebebandspendern abgetrennt werden. Zudem wurde gefunden, dass derartige Folien schwierig oder unmöglich unter Verwendung der Finger abzureißen sind.

**[0107]** Ein anderes bevorzugtes Verfahren zum Bestimmen der Orientierung einer Folie oder einer Richtung, in welcher das gesamte Polymersystem am stärksten orientiert ist, ist es, den Brechungsindex der Folie, wie beschrieben in ASTM D542-95, zu messen. Der Brechungsindex stellt die Verlangsamung oder optische Verzögerung einer elektromagnetischen Welle durch ein Material aufgrund der Wechselwirkung der Welle mit polarisierbaren Molekülen im Material dar (Encyclopedia of Polymer Science and Engineering, Bd. 14, John Wiley & Sons, NY (1987)). Für Polyolefine, die Polypropylen und Polyethylen einschließen, ist der Brechungsindex entlang der Gerüstrichtung am höchsten, da die Elektronenbeweglichkeit oder Polarisierbarkeit parallel zu chemischen Bindungen des Gerüsts am größten ist. Für Polypropylen-Folien ist der Brechungsindex, der parallel zur Hauptorientierungsrichtung gemessen wird, größer als derjenige, der senkrecht zu dieser Richtung gemessen wird. Dies wird positive Doppelbrechung genannt. In einem derartigen Fall weist die Folie eine größere Orientierung parallel als senkrecht zur Orientierungsrichtung auf. Für die Zwecke der vorliegenden Erfindung werden die Brechungsindizes in der MD- und TD-Richtung der Folie gemessen.

**[0108]** Ist der Brechungsindex in der MD geringer als in der TD und zeigt die Folie entweder ein isotropes azimuthales WAXS-Scanmaximum oder ein spezifisches, einzelnes azimuthales WAXS-Scanmaximum, das bis zu etwa  $\pm 75^\circ$  in Bezug auf die Referenzrichtung, hier als MD genommen, positioniert ist, so kann die erhaltene Folie immer noch in der vorliegenden Erfindung nützlich sein, sofern die spezifischen Anforderungen an die Anwendungseigenschaften erfüllt werden. Die Orientierungsdarstellung und WAXS-Abbildung für diesen Fall sind in den [Fig. 10a](#) und [Fig. 10b](#) dargestellt. Ist jedoch der Brechungsindex in der MD niedriger als in der TD und zeigt die Folie entweder mehr als ein azimuthales WAXS-Scanmaximum, wobei mindestens eines davon mit mehr als  $\pm 75^\circ$  zur Referenzrichtung positioniert ist, oder ein spezifisches einzelnes azimuthales WAXS-Scanmaximum, das mit einem Winkel von größer als  $\pm 75^\circ$  zur Referenzrichtung positioniert ist, dann wurde, wie vorstehend beschrieben, gefunden, dass die erhaltene Folie für die Zwecke der vorliegenden Erfindung ungeeignet ist.

**[0109]** „Biaxial gestreckt“ bedeutet, wenn es hier zum Beschreiben einer Folie verwendet wird, dass die Folie in zwei unterschiedliche Richtungen in der Ebene der Folie gestreckt worden ist. Typischerweise, jedoch nicht immer, liegen die beiden Richtungen senkrecht. Biaxial gestreckte Folien sind orientiert und können sequenziell gestreckt, simultan gestreckt oder durch irgendeine Kombination von simultanem und sequenziellem Strecken gestreckt werden. „Simultan biaxial gestreckt“ bedeutet, wenn es hier zum Beschreiben einer Folie verwendet wird, dass beträchtliche Anteile des Streckens in jede der beiden Richtungen simultan durchgeführt werden. Ein „einzelnes Maximum“ ist hier, wenn es zum Beschreiben des azimuthalen WAXS-Scans der hier offenbarten erfinderischen Folie verwendet wird, als einzelne Beugung identifizierbar, die von einem azimuthalen WAXS-Transmissions-Scan beobachtet wird, das eine Symmetrie im 360°-Winkelbereich, sondiert durch die Röntgenscans aufgrund der Diffraktometergeometrie und der Kristallphysik des monoklinen isotaktischen Polypropylens, zeigt. Ein derartiges Maximum ist vom Rauschen in den Daten und der gestreuten Intensität aufgrund dessen, dass Anteile der Polymermatrix eine statistische Orientierung besitzen, die typischerweise in der Größenordnung von weniger als 1 % des Maximalwerts liegt, unterscheidbar.

**[0110]** In einer bevorzugten Ausführungsform liegt das biaxiale Flächenstreckverhältnis über etwa 30:1, stärker bevorzugt von etwa 36:1 bis 90:1 und besonders bevorzugt etwa 45:1 bis 90:1. Die obere Grenze für das Flächenstreckverhältnis ist die praktische Grenze, bei welcher die Folie nicht mehr auf einer im Handel erhält-



lichen Apparatur mit ausreichend hohen Geschwindigkeiten gestreckt werden kann. Vorzugsweise liegt das MD-Streckverhältnis über etwa 4:1, stärker bevorzugt von etwa 4:1 bis 8,5:1, noch stärker bevorzugt von etwa 5:1 bis 8,5:1 und besonders bevorzugt von etwa 6,0:1 bis 8,5:1. Der MD-Bestandteil und der TD-Bestandteil dieser Ausführungsformen werden derart ausgewählt, dass die gewünschten hier beschriebenen Folieneigenschaften und -merkmale bereitgestellt werden. Liegt die Orientierung der Folien dieser Erfindung unter den genannten Bereichen, neigt die Folie zur Unterstreckung, d.h. sie zeigt eine Verlängerung zu Durchschlagwerten von größer als 1,3 cm, was zu einer überschüssigen Dehnung während des Abtrennens oder Abreißens von Hand führt, was zu deformierten abgetrennten Kanten und Weißwerden unter Spannung führt. Zudem führt ein unzureichendes Strecken zu lokalisierter Halsbildung und einer Ungleichförmigkeit der Dicke und der physikalischen Eigenschaften über die Lage, was beides vom Standpunkt der Klebebandherstellung her unerwünscht ist.

**[0111]** In einer bevorzugten Ausführungsform ist das Streckverhältnis in Maschinenrichtung ungefähr dasselbe wie oder größer als das Streckverhältnis in Querrichtung, um eine Klebebandträgerfolie mit geringer Durchschlagfestigkeit und eingeschränkter Zugreißdehnung in Maschinenrichtung bereitzustellen. Derartige Bänder vermeiden ein Strecken und eine Deformierung während des Abtrennens an den Zähnen von im Handel erhältlichen Bandspendern zum Herstellen von sauber abgetrennten Kanten.

**[0112]** Die Merkmale und Eigenschaften sind hier in Bezug auf die bevorzugten Ausführungsformen beschrieben und in Bezug auf die Beispiele für Folien ohne darauf aufgetragene Klebstoffzusammensetzungen angegeben. Es wird erwartet, dass in den meisten Fällen die Merkmale und Eigenschaften des Gegenstands hauptsächlich durch den Träger, mit einem geringen Einfluss durch den Klebstoff oder andere Schichten oder Beschichtungen, gesteuert werden. Daher gelten die vorstehenden bevorzugten Merkmale und Eigenschaften auch für die Klebebänder der vorliegenden Erfindung.

**[0113]** Mechanisch gesehen kann die Abtrennbarkeit (Spendeeigenschaften) als die Belastung zum Reißen des Bandträgers, wenn er über die Zähne eines im Handel erhältlichen Klebebandspenders gezogen wird, betrachtet werden. Gleichmaßen kann das Vermögen, ein Klebeband von Hand abzureißen, als die Belastung zum Reißen des Trägers, wenn er zwischen den Fingern gezogen wird, betrachtet werden. In beiden Fällen werden sowohl die Energie zum Reißen als auch die Zugreißdehnung zum Bewerten der Eignungsfähigkeit eines beschichteten Bandträgers für den Einsatz verwendet. Die Beständigkeit gegenüber Reigen kann in einem Zugtest oder mithilfe eines Durchschlagtests bewertet werden, in welchem der Bandträger in einer Klemme festgehalten wird und eine Testsonde durch den Bandträger bis zum Reißen des Bands gedrückt wird. Es ist erwünscht, ein biaxial orientiertes, mehrschichtiges Band auf Polyolefinbasis oder einen Bandträger zu erhalten, der eine ausreichend niedrige Zugfestigkeit und niedrige Durchschlagfestigkeit aufweist, so dass er von Hand abtrennbar und abreißbar ist.

**[0114]** Für mehrschichtige, biaxial orientierte Polymerfolien bestehen die primären physikalischen Eigenschaften, die die Abtrennbarkeit oder Abreißbarkeit betreffen, im Unterschied in der Kristallinität zwischen der ersten und der (den) zweiten Polymerschicht(en), in der Gesamtorientierung und der Richtungsfähigkeit der Orientierung. Diese physikalischen Eigenschaften regulieren wiederum die mechanischen Folieneigenschaften, wie Stärke, Zähigkeit, Zugreißdehnung und Durchschlagfestigkeit. Es ist erwünscht, dass die abtrennbaren und von Hand abreißbaren Klebebänder eine Kombination von Eigenschaften, insbesondere eine niedrige Durchschlagfestigkeit, niedrige Reißfestigkeit, niedrige Dehnung zum Durchschlagversagen und niedrige Zugfestigkeit in Bandlängs- oder Maschinenrichtung, zeigen.

**[0115]** Im Falle der vorliegenden Erfindung sind Folien mit hoher Durchschlag- oder Reißfestigkeit zur Verwendung als abtrennbare Klebebandträger dahingehend ungeeignet, dass diese Zähigkeit den erwünschten Abtrennbarkeitseigenschaften für die Bandträgerfolie entgegenwirkt. Zudem müssen Klebebandträger dimensionsstabil und wärme- und schrumpffest sein, um während der Beschichtungs- und Trocknungsvorgänge verarbeitungsfähig zu sein und stabile, gleichförmige Klebebandrollen herzustellen, die kein Verlaufen oder keine Lückenbildung zeigen, wovon man weiß, dass sie durch Längsschrumpfung oder Wärmeinstabilität verursacht werden. Darüber hinaus stellt die Kombination aus niedriger Durchschlagfestigkeit und Verformungsstabilität für einen Klebebandträger besonders erwünschte Eigenschaften dar.

#### Klebstoffbeschichtete Bänder

**[0116]** Die Folien der vorliegenden Erfindung sind besonders als Träger für ein klebstoffbeschichtetes Band, vorzugsweise mit einer Enddicke zwischen etwa 0,002–0,006 cm, nützlich. Eine Variierbarkeit der Foliendicke beträgt vorzugsweise weniger als etwa 5 %. Dickere und dünnere Folien können verwendet werden, mit dem

Verständnis dessen, dass die Folie dick genug sein sollte, um eine übermäßige „Labbrigkeit“ und Schwierigkeit beim Handhaben zu vermeiden, während sie nicht so dick sein sollte, dass sie unerwünscht starr oder steif und schwierig zu handhaben oder zu verwenden ist.

**[0117]** Die Folien der vorliegenden Erfindung sind bei der Konstruktion von klebstoffbeschichteten Bändern, wie denjenigen, die von 3M unter der Marke Scotch™ Magic™ Tape oder Scotch™ Satin™ Tape vertrieben werden, besonders nützlich. In Bezug insbesondere auf [Fig. 6](#) ist eine Endansicht einer derartigen dreischichtigen Folienkonstruktion gemäß der vorliegenden Erfindung dargestellt, die ferner eine Klebeschicht einschließt. Unter Verwendung der Folien **600** der vorliegenden Erfindung als Träger oder Substrat wird eine Klebstoffzusammensetzung **62** auf eine erste Hauptoberfläche des Trägers aufgetragen und kann ein beliebiger geeigneter Klebstoff, wie auf dem Fachgebiet bekannt, sein. Bevorzugte Klebstoffzusammensetzungen sind diejenigen, die durch Druck, Wärme oder Kombinationen davon aktivierbar sind. Die Folie **600** ist biaxial orientiert und schließt eine erste Schicht **65** und zwei zweite Schichten **60**, **61** ein, wobei die erste Schicht **65** zwischen den beiden zweiten Schichten **60**, **61** liegt. Die zweiten Schichten **60**, **61** können aus den gleichen Homopolymeren oder Copolymeren zusammengesetzt sein, oder sie können unterschiedlich sein. Sie können dahingehend unterschiedlich sein, dass die Bestandteile die gleichen sind, jedoch in unterschiedlichen Verhältnissen vorliegen (wenn mehr als ein Bestandteil vorliegt), oder sie können dahingehend unterschiedlich sein, dass die Bestandteile selbst unterschiedlich sind.

**[0118]** Geeignete Klebstoffzusammensetzungen für die Klebstoffschicht **62** schließen diejenigen auf der Basis von Acrylat, Kautschukharz, Epoxiden, Urethanen oder Kombinationen davon ein, sind jedoch nicht darauf beschränkt. Die Klebstoffzusammensetzungen können durch Beschichtungsverfahren auf Lösungs-, Wasserbasis oder Heißschmelzbasis aufgebracht werden und können heißschmelzbeschichtete Formulierungen, übertragungsbeschichtete Formulierungen, Lösungsmittelbeschichtete Formulierungen und Latexformulierungen sowie laminierende, wärme- und wasseraktivierte Klebstoffzusammensetzungen einschließen.

**[0119]** Die hier beschriebenen Träger sind für viele Klebebandträgeranwendungen, einschließlich Gebrauchsblätter, Leichtlastblätter und Versiegelungs- und Reparaturblätter, gut geeignet. Da der Träger anpassungsfähig ist, ist er auch als Maskierungsbandträger nützlich.

#### Klebstoffschichten

**[0120]** Besonders nützliche Klebstoffe, die in der vorliegenden Erfindung nützlich sind, schließen sämtliche Haftklebstoffe ein. Es ist bekannt, dass Haftklebstoffe Eigenschaften besitzen, die aggressive und dauerhafte Klebrigkeit, Haftvermögen mit nicht mehr als Fingerdruck und ausreichendes Vermögen zum Halten an einem Klebegegenstand, einschließen.

**[0121]** Beispiele für Klebstoffe, die in der Erfindung nützlich sind, schließen diejenigen auf der Basis von allgemeinen Zusammensetzungen von Polyacrylat; Polyvinylether; Dienkautschuk, wie Naturkautschuk, Polyisopren und Polybutadien; Polyisobutyl; Polychloropren; Butylkautschuk; Butadien-Acrylonitril-Polymer; thermoplastischem Elastomer; Blockcopolymeren, wie Styrolisopren und Styrol-Isopren-Styrol-(SIS)-Blockcopolymeren, Ethylen-Propylen-Dien-Polymeren und Styrolbutadienpolymeren; Polyalphaolefin; amorphem Polyolefin; Silicon; ethylenhaltigem Copolymer, wie Ethylvinylacetat, Ethylacrylat und Ethylmethacrylat; Polyurethan; Polyamid; Epoxy; Polyvinylpyrrolidon und Vinylpyrrolidon-Copolymeren; Polyestern; und Gemischen oder Mischungen (kontinuierliche oder diskontinuierliche Phasen) der vorstehenden ein.

**[0122]** Zusätzlich können die Klebstoffzusammensetzungen Additive, wie Klebrigmacher, Weichmacher, Füllstoffe, Antioxidationsmittel, Stabilisatoren, Pigmente, Diffusionsmaterialien, Härtungsmittel, Fasern, Filamente und Lösungsmittel, einschließen.

**[0123]** Eine allgemeine Beschreibung für nützliche Haftklebstoffe ist in Encyclopedia of Polymer Science and Engineering, Bd. 13, Wiley-Interscience Publishers (New York, 1988), zu finden. Eine zusätzliche Beschreibung für nützliche Haftklebstoffe ist in Encyclopedia of Polymer Science and Engineering, Bd. 1, Interscience Publishers (New York, 1964), zu finden.

**[0124]** Zum Verbessern des Haftvermögens von Beschichtungsschichten, wie einer Schicht einer Klebstoffzusammensetzung, können die Erfindungsfolien dadurch, dass sie einer Flammen- oder Koronaentladung oder anderen Oberflächenbehandlungen, einschließlich chemischem Grundieren, unterzogen werden, wahlweise behandelt werden. Zudem könnten beliebige Bandkonstruktionen zusätzliche Beschichtungen, wie z.B. für optionale Verstärkungsmaterialien mit geringer Haftung zum Verhindern eines eingeschränkten Blockie-

rens, einschließen, wodurch die Herstellung von Klebebandrollen ermöglicht wird, die in der Lage sind, leicht abgewickelt zu werden, wie es auf dem Fachgebiet der klebstoffbeschichteten Bandherstellung bekannt ist.

**[0125]** Die Durchführung der vorliegenden Erfindung wird weiter in Bezug auf die folgenden detaillierten Beispiele beschrieben. Diese Beispiele sind bereitgestellt, um die verschiedenen spezifischen und bevorzugten Ausführungsformen und Techniken zu veranschaulichen. Es sollte jedoch klar sein, dass viele Variationen und Modifikationen durchgeführt werden können, die dennoch im Umfang der vorliegenden Erfindung liegen.

## TESTVERFAHREN

### Folienzugeigenschaftsbestimmungen

**[0126]** Die Zugreißdehnung in Maschinenrichtung (MD) wurde gemäß den Vorgehensweisen, beschrieben in ASTM D882-97, „Tensile Properties of Thin Plastic Sheeting“, Verfahren A, gemessen. Die Folien wurden für eine Dauer von 24 Stunden bei 22 °C (72 °F) und 50%-iger relativer Luftfeuchtigkeit (relative humidity; RH) vor dem Testen konditioniert. Die Tests wurden unter Verwendung einer Zugtestmaschine, im Handel erhältlich als Modell Nr. Sintech 200/S von MTS Systems Corporation, Eden Prairie, MN, durchgeführt. Die Proben für diesen Test waren 2,54 cm breit und 15 cm lang. Ein anfänglicher Klemmenabstand von 10,2 cm und eine Kreuzkopfgeschwindigkeit von 25,4 cm/min wurden verwendet. Sechs Probenstücke wurden für jede Probe in der MD getestet.

### Durchschlagenergiebestimmung

**[0127]** Die Durchschlagenergie und Dehnung bei Durchschlag wurden unter Verwendung eines Verfahrens auf der Basis von ASTM F 1306-94 mit den wie nachstehend detailliert beschriebenen Veränderungen bestimmt: Eine Zugtestmaschine Modell Nr. Sintech 200/S, hergestellt von MTS Systems Corporation, Eden Prairie, MN, wurde für den Test verwendet. Die Probenstück-Klemmeinrichtung, beschrieben in ASTM F 1306-94, wurde dahingehend modifiziert, dass sie zwei starre Platten mit einer quadratischen Öffnung mit einem Durchmesser von 7,62 cm in der Mitte jeder Platte umfasste. Die Durchdringungssonde, beschrieben in ASTM F 1306-94, wurde durch einen zylinderförmigen Stahlstab mit einem Durchmesser von 0,318 cm mit einer halbkugelförmigen Spitze ersetzt. Die Verschiebung der Kolbenanordnung wurde während der Beladung und vollständigen Durchdringung jedes Testprobenstücks gemessen. Die Probenstücke für das Testen wurden parallel zur MD in 2,54 cm breite Streifen oder in 1,27 cm breite Streifen, wie nachstehend berichtet, geschnitten. Die Probenstücke betrugen 12,7 cm in der Länge, damit sie in der Klemmanordnung richtig gepackt werden konnten. Jeder Test wurde mit einer Geschwindigkeit von 254 cm/min durchgeführt. Mindestens sechs Probenstücke wurden für jede Bestimmung getestet. Die Folien wurden für eine Dauer von 24 Stunden bei 22 °C (72 °F) und 50 %-iger relativer Luftfeuchtigkeit (RH) vor dem Testen konditioniert.

**[0128]** Für jeden Test wurde das Probenstück in die Anordnung geklemmt. Jedes Probenstück wurde über die Plattenöffnung in der Mitte ausgerichtet. Ein Stück Haftklebeband wurde zum Halten der Probe auf einer Seite der Bodenplatte der Klemmanordnung verwendet, während ein Gewicht (75 g) an die andere Seite des Probenstücks gehängt wurde, so dass gewährleistet wurde, dass die Probe unter einer konstanten Spannung belastet war. Die Klemmplatte wurde dann unter Verwendung von Flügelschrauben angezogen, so dass die Probe während des Tests nicht abrutschen konnte. Die Klemmanordnung wurde unter dem Kolben derart positioniert, dass der Weg des Kolbens durch die Mitte der Probe verlief. Die Gesamtenergie, die zum Durchschlagen der Probe sowie zur Durchschlagdehnung erforderlich war, wurde bestimmt.

**[0129]** Wie hier, einschließlich den Ansprüchen, verwendet, betrifft der Begriff „Durchschlagtest-2,54“ den eben beschriebenen Test, wie an 2,54 cm breiten Proben durchgeführt, und betrifft der Begriff "Durchschlagtest-1,27 cm" den eben beschriebenen Test, wie an 1,27 cm breiten Proben durchgeführt.

**[0130]** Es wurde bestimmt, dass zwischen den Durchschlagtestergebnissen, die für 2,54 cm breite Proben erhalten wurden, und den Testergebnissen, die für 1,27 cm breite Proben erhalten wurden, eine Korrelation vorliegt. Das heißt, die Testergebnisse, die für 1,27 cm breite Proben erhalten wurden, sind um etwas das 3,25–3,5fache höher in den Werten als für dieselben Folientypen, die bei einer Probenweite von 2,54 cm gemessen wurden.

### Messungen der Weitwinkel-Röntgenstrahlenstreuung (WAXS)

**[0131]** Weitwinkel-Röntgendiffraktionsdaten (WAXS) wurden durch Verwendung eines Picker-4-Zyklen-Dif-

fraktometers, Kupfer-K $\alpha$ -Strahlung, und einer Szintillationsdetektor-Aufzeichnung der gestreuten Strahlung gesammelt. Das Diffraktometer war mit festgesetzten Eintrittsschlitzen und einem festgesetzten Aufnahmeschlitze ausgestattet. Die Transmissionsdatensammelungsgeometrie wurde mit senkrecht orientierter wirksamer Referenzrichtungsachse und übereinstimmend mit der Diffraktometer 2 $\theta$ -Achse eingesetzt. Der Röntgengenerator wurde mit Einstellungen von 40 kV und 25 mA betrieben. Die Probenstücke wurden an Aluminiumhaltern unter Verwendung eines doppelt beschichteten Klebebands montiert, ohne dass eine Trägerplatte oder Stütze unter dem Teil der Folie verwendet wurde, die dem einfallenden Röntgenstrahl ausgesetzt war.

**[0132]** Polypropylen-Peakpositionen wurden von Erfassungsschrittscans, die von 5 bis 35 Grad ( $2\theta$ ) unter Verwendung einer Schrittgröße von 0,05 Grad und einer Zählzeit von 30 Sekunden durchgeführt wurden, lokalisiert. Azimuthale Schritt-Scans des monoklinen (110) Polypropylenmaximums wurden von den Instrumenteneinstellungen von  $-180$  bis  $+180$  Grad ( $X$ ) unter Verwendung einer Schrittgröße von drei Grad und einer Zählzeit von 10 Minuten durchgeführt. Die erhaltenen Streuungsdaten wurden auf  $x$ - $y$ -Paare des azimuthalen Winkels und der Intensitätswerte reduziert und einer Profilanpassung unter Verwendung der Datenanalysesoftware ORIGIN<sup>TM</sup> (ORIGIN<sup>TM</sup> Version 4,1 erhältlich von Microcal Software Inc., One Roadhouse Plaza, Northampton, MA. 01060) unterzogen. Ein Gauss'sches Formmodell wurde eingesetzt, um die beobachteten Intensitätsmaxima in den azimuthalen Scans zu beschreiben. Breitenmessungen in den vorstehend beschriebenen Profillfüllungsvorgängen wurden als Halbwertsbreite (FWHM) über einem linearen Hintergrundmodell verwendet. Die Ergebnisse des WAXS sind in Tabelle 1 dargelegt.

#### Brechungsindex-Testverfahren

**[0133]** Der Brechungsindex von Folienproben wurde gemäß ASTM D 542-95 in Richtungen parallel und senkrecht zur Referenzrichtung, typischerweise als Maschinenrichtung (MD) verwendet, gemessen. Ein Prismenkuppler des Typs Metricon Modell 2010, erhältlich von Metricon Corporation of Pennington, NJ, USA, wurde zum Messen des Brechungsindex verwendet. Dieses Modell war mit einem Prisma des Typs 200-P-1 und einem Niederleistungs-(0,5 mw nominal) He-Ne-Laser (632,8 nm), einer Quelle des Typs CDRH/BRH Class II, ausgestattet. Der Brechungsindexbereich für dieses System beträgt weniger als 1,80.

**[0134]** Probenstücke mit einer Größe von 1,3 cm mal 3,8 cm wurden aus der zu messenden Folienprobe herausgeschnitten, wobei das Probenstück in der Probenkammer derart belastet wurde, dass die Referenzrichtung senkrecht in Bezug auf die Lichtquelle orientiert war. Das Probenstück wurde mit der Basis eines Prismas mithilfe eines pneumatisch betriebenen Kupplungskopfes in Kontakt gebracht und mithilfe eines Laserstrahls, der von der Prismenbasis auf einen Fotodetektor reflektiert wurde, gescannt. Bei bestimmten getrennten Werten des Einfallswinkels (Moduswinkels) trat ein starker Abfall in der Intensität des Lichtes, das den Fotodetektor erreichte, auf. Die Winkellage des ersten Modus bestimmte dann den Folienbrechungsindex.

**[0135]** Gleichermaßen wurde der Brechungsindex nach dem Drehen der Probe um  $90^\circ$  (d.h. senkrecht), so dass die Referenzrichtung horizontal orientiert war, bestimmt. Der Brechungsindex wurde dann in dieser Richtung gemessen und als senkrecht zur Bezugs- oder Querrichtung angegeben.

#### Trübungs-Testverfahren

**[0136]** Die Trübung von Beispielfolienkonstruktionen wurde gemäß ASTM D1003-97 gemessen. Das verwendete Trübungsmessgerät bei dieser Messung war ein Haze-gard plus, Kat.-Nr. 4725, erhältlich von BYK-Gardner USA, Columbia, MD. Probenstücke mit einer Größe von 15 cm mal 15 cm wurden aus Folienlagen derart herausgeschnitten, dass kein Öl, Schmutz, Staub oder keine Fingerabdrücke in dem zu messenden Abschnitt vorlagen. Die Probenstücke wurden dann von Hand über der Trübungsöffnung des Trübungsmessgeräts angebracht und die Messung aktiviert. 10 wiederholte Trübungsmessungen wurden vorgenommen, und der Durchschnitt dieser 10 Messungen als Trübungswert hier angegeben.

#### Schmelzpunktbestimmung

**[0137]** Die Schmelzpunkte von Harzproben wurden gemäß ASTM E-794-98 unter Verwendung eines Differenzial-Scanning-Kalorimeters (DSC) des Typs DuPont Modell 2100 mit einer Heizgeschwindigkeit von  $10^\circ\text{C}/\text{min}$  über den Temperaturbereich von  $25^\circ$  bis  $200^\circ\text{C}$  bestimmt. Ungefähr 5 mg Harzprobe wurden in Metall-DSC-Pfannen geladen, gekräuselt und in die Testkammer gestellt. Die Proben wurden zuerst unter positivem Stickstoffdruck mit  $10^\circ\text{C}/\text{min}$  von  $25^\circ$  auf  $200^\circ\text{C}$  erwärmt, bei  $200^\circ\text{C}$  für eine Dauer von 3 Minuten gehalten, mit  $10^\circ\text{C}/\text{min}$  auf  $25^\circ\text{C}$  abgekühlt, dann erneut gescannt, um einen guten Kontakt zwischen der Probe und der DSC-Pfanne zu gewährleisten, der endotherme Peakwert des zweiten Scans wurde als Schmelzpunkt

der Polymerproben genommen. Die Werte sind in Tabelle 1 angegeben.

**[0138]** Die Durchführung der vorliegenden Erfindung wird weiter im Hinblick auf die folgenden detaillierten Beispiele beschrieben. Diese Beispiele sind zum weiteren Veranschaulichen der verschiedenen spezifischen und bevorzugten Ausführungsformen und Techniken bereitgestellt.

**[0139]** Wie die Beispiele veranschaulichen, werden die gewünschten Folieneigenschaften durch Strecken der Folie in einer Weise erhalten, dass die bevorzugten Morphologie der hier beschriebenen Folien erhalten wird, statt die Folie durch Beschreiben von nominalen Maschinenzugverhältnissen, wie es früher auf dem Fachgebiet üblicherweise gelehrt wurde, zu definieren. Es sollte jedoch klar sein, dass viele Variationen und Modifikationen durchgeführt werden könnten, die dennoch im Umfang der vorliegenden Erfindung liegen.

#### Optische Mikroskopie von abgetrennten Folienkanten

**[0140]** Folien, die erfindungsgemäß hergestellt waren, und hier beschriebene Vergleichsfolien wurden auf einer gezahnten Kunststoffklinge (3M Katalog-Nr. 105, erhältlich seit deren Einreichungsdatum von Minnesota Mining and Manufacturing Company, St. Paul, MN) von Hand durch gerades Herunterziehen des Bands über die Spenderklinge gespendet. Die so erhaltenen Testprobenstücke wurden auf einem Mikroskopglasträger befestigt, um Bilder der abgetrennten Kanten zu erhalten. Fotografische Bilder wurden unter Verwendung eines optischen Mikroskops des Typs Olympus BHSM BH-2, erhältlich im Handel von Leeds Precision Instruments, Inc., Minneapolis, MN, erhalten. Fotografische Bilder wurden mit reflektiertem Licht und einem Schwarz-Weiß-Sofortdruckfilm des Typs Polaroid 57 mit einem ASA von 3000 erhalten. Jedes Bild enthält einen Skalenbezugsbalken von 2 mm. [Fig. 11](#) ist eine Kante einer Folie der vorliegenden Erfindung, abgetrennt wie vorstehend beschrieben, während [Fig. 12](#) eine Kante einer Folie des Stands der Technik, ebenfalls abgetrennt wie vorstehend beschrieben, ist.

#### Glanz-Testverfahren

**[0141]** Der Glanz von Beispielfolienkonstruktionen wurde gemäß ASTM D2457-97 gemessen. Das bei den Messungen verwendete Glanzmessgerät war ein Haze-Gloss-Reflektometer, Kat.-Nr. 4601, erhältlich von BYK-Gardner USA, Columbia, MD. Probenstücke mit einer Größe von 15 cm mal 15 cm wurden von Folienlagen derart herausgeschnitten, dass kein Öl, Schmutz, Staub oder keine Fingerabdrücke in dem zu messenden Abschnitt vorlagen. Die Probenstücke wurden dann von Hand auf dem Probenhaltertisch des Trübungsglanz-Reflektometers montiert, und die Messung wurde mit einem Lichteinfallswinkel von 60° durchgeführt.

#### Prozentuale Bleistift-Flächenabdeckung

**[0142]** Die prozentuale Bleistift-Flächenabdeckung wurde wie folgt bestimmt: Eine Schreibmaschine wurde zum Schreiben auf einer Probe mit einem Bleistift mit einem Winkel von 60° mit zugefügten Gewichten verwendet. Eine quantitative Bildanalyse wurde dann zum Bestimmen der prozentualen Flächenabdeckung der Bleistiftmine verwendet. Die prozentualen Bleistift-Flächenabdeckungsergebnisse sind in Tabelle 9 dargestellt. Zum Vergleich beträgt die prozentuale Bleistift-Flächenabdeckung auf Celluloseacetat 0,9 und auf Papier 0,4 %.

#### Testverfahren für die prozentuale Gesamlichtdurchlässigkeit

**[0143]** Die prozentuale Gesamlichtdurchlässigkeit von Beispielfolienkonstruktionen wurde gemäß ASTM D1003-97 gemessen. Die Messungen wurden unter Verwendung eines Haze-gard plus, Kat.-Nr. 4725, erhältlich von BYK-Gardner USA, Columbia, MD, durchgeführt. Probenstücke mit einer Größe von 15 cm mal 15 cm wurden derart aus Folienlagen herausgeschnitten, dass kein Öl, Schmutz, Staub oder keine Fingerabdrücke auf dem zu messenden Abschnitt vorlagen. Die Probenstücke wurden dann von Hand über der Trübungsoffnung des Trübungsmessgeräts befestigt und die Messung aktiviert. Zehn wiederholte prozentuale Gesamlichttransmissionsmessungen wurden vorgenommen, und der Durchschnitt dieser 10 Messungen ist hier als Durchlässigkeitswert angegeben.

#### Rasterelektronenmikroskopie (SEM)

**[0144]** Bilder der Rasterelektronenmikroskopie (Scanning Electron Microscopy, SEM) der Folienoberfläche wurden unter Verwendung eines Rasterelektronenmikroskop des Typs Hitachi S-530 aufgenommen. Die Elektronenstrahlleistung betrug 20 kV. Die Vergrößerung war 150fach.

## HERSTELLUNG DER BEISPIELE

**[0145]** Polymerharze, die für die zweiten und ersten Schichten der Folien der Beispiele 1–49 verwendet wurden, sind in Tabelle 1 und die der Beispiele 50–55 in Tabelle 6 aufgelistet. Die Schichtverhältnisse (auf das Gewicht bezogen), die verwendet wurden, sind in Tabelle 2 und Tabelle 7 aufgelistet. Die Dicke der ersten Schicht wurde konstant bei etwa 80 % der Gesamtfoliendicke in allen Fällen, außer für die Beispiele 21 und 22, für welche die Dicke der ersten Schicht etwa 90 % betrug, gehalten. (Die Beispiele 3, 27, 44–46, 48, 50–53 und 55 liegen nicht innerhalb der Ansprüche.)

## Simultanes Streckverfahren

**[0146]** Simultan biaxial orientierte mehrschichtige Folien, wie in den Beispielen 1–43 dargelegt, wurden unter Verwendung des in den US-Patentschriften Nr. 4,675,582; 4,825,111; 4,853,602; 5,036,262; 5,051,225; und 5,072,493 beschriebenen Verfahrens hergestellt. Das simultane Streckverfahren wurde auf einer Anlage zum simultanen Strecken, gebaut von Bruckner Maschinenbau, Seigsdorf, Deutschland, durchgeführt.

**[0147]** In Beispiel 1 bestand die mehrschichtige Folie aus etwa 80 % Propylen-Copolymer G in der ersten Schicht, mit etwa 20 % Propylen-Homopolymer B in den zweiten Schichten (etwa 10 % auf jeder Seite der ersten Schicht).

**[0148]** Insbesondere für die erste Schicht wurde ein Doppelschneckenextruder mit 6,0 cm des Typs Berstorff zum Herstellen einer stabilen Schmelze mit einer Schmelztemperatur von etwa 202° bis 265 °C verwendet.

**[0149]** Für die zweiten Schichten wurde ein Einzelschneckenextruder mit 4,45 cm des Typs HPM zum Herstellen einer stabilen Schmelze mit einer Schmelztemperatur von etwa 195° bis 245 °C verwendet.

**[0150]** Die Schmelzen wurden in eine Drei-Schicht-Koextrusionsmatrize des Typs Cloeren, ausgestattet mit einem Selektorgehäuse, überführt. In den Beispielen Bsp. 1 bis Bsp. 20 und Bsp. 27 bis Bsp. 43 wurde ein „ABA“-Selektorstecker derart installiert, dass die Polymerschmelze „A“ von dem HPM-Extruder derart durch Kanäle floss, dass die Schmelze „B“ von dem Berstorff-Extruder sandwichartig umgeben wurde, wodurch im Innern ein Drei-Schichten-Sandwich aus zweiter/erster/zweiter (Schicht) oder „ABA“-Sandwich der Schmelzen gebildet wurde, und dann wurde diese dreischichtige Schmelze durch eine Schlitzmatrize extrudiert und auf ein wassergekühltes Stahlgussrad gegossen, das sich mit etwa 4,7 bis 6,8 Metern pro Minute drehte und unter Verwendung einer internen Wasserzirkulation und durch Eintauchen des Gussrads in ein Wasserbad bei einer Temperatur im Bereich von 20° bis 30 °C gehalten wurde. Die Gusslage wies eine Breite von etwa 35 cm und eine Dicke von etwa 0,15–0,20 cm auf.

**[0151]** In den Beispielen Bsp. 21 und 22 wurde ein „ABB“-Selektorstecker derart installiert, dass die Polymerschmelze „A“ von dem HPM-Extruder durch einen Außenkanal floss. Die Schmelze „B“ von dem Berstorff-Extruder wurde zu der ersten und zu einer der Seiten kanalisiert, wodurch intern ein dreischichtiges „A/B/B“-Sandwich der Schmelzen gebildet wurde, und diese dreischichtige Schmelze wurde dann durch eine Schlitzmatrize extrudiert. Der Guss wurde wie schon beschrieben vollendet.

**[0152]** In den Beispielen Bsp. 23–26 wurden mehrschichtige Folien mit einer 5-schichtigen Konstruktion hergestellt. Die Konstruktion kann als „ACBCA“-Konstruktion bezeichnet werden, wobei die zweiten „A“-Schichten aus Polymer(en) bestanden, die durch den HPM-Extruder wie vorstehend beschrieben extrudiert worden waren, und die erste „B“-Schicht aus Polymer(en) bestand, die durch den Berstorff-Extruder wie vorstehend beschrieben extrudiert worden war. Die „C“-Schichten bestanden aus Polymer(en), die durch einen Einzelschneckenextruder mit 3,8 cm des Typs Davis Standard, Modell DS15, extrudiert wurden. Stabile Schmelzen mit Schmelztemperaturen von etwa 250 °C wurden hergestellt. Selektorstecker wurden derart installiert, dass zuerst Polymerschmelze „C“ zu jeder Seite des Polymer-„B“-Schmelzstroms unter Bildung eines mehrschichtigen „CBC“-Schmelzstroms kanalisiert wurde, und dann Polymerschmelze „A“ zu jeder Seite dieses mehrschichtigen „CBC“-Polymerschmelzstroms kanalisiert wurde. Der erhaltene „ACBCA“-geschichtete Schmelzstrom verließ dann die Matrize, und der Guss auf einem wassergekühlten Stahlgussrad wurde wie schon beschrieben vollendet. Polymerbestandteile, umfassend die „A“- „B“- und „C“-Schichten sind in den Tabellen 1 und 2 identifiziert.

**[0153]** Die Gusslage wurde durch eine Bank aus IR-Heizern, eingestellt auf etwa 600 °C zum Vorwärmen der Gussfolie vor dem simultanen Strecken im Spannofen geleitet. Die gegossene und vorgewärmte Folie wurde sofort simultan in Längs- (MD) und Quer-(TD)-richtung gestreckt, um eine biaxial orientierte Folie herzustellen.

Endflächenstreckverhältnisse von etwa 45:1 bis etwa 75:1 wurden verwendet. Die MD- und TD-Verhältnisse wurden bei etwa 7,5–8,0 X für die MDR und etwa 7,0 X für die TDR ungefähr konstant gehalten, so dass die Folien entweder etwa gleich in jeder der MD und TD oder vorzugsweise mehr in der MD als in der TD gestreckt wurden.

**[0154]** Die Spannofentemperatur-Einstellungspunkte, die in den Vorwärm-, Streck- und Abkühlabschnitten des Spannrahmens für jedes Beispiel verwendet wurden, sind in Tabelle 3 aufgelistet. Für Bsp. 1 wurden die Vorwärmzonen im Spannofen auf etwa 207 °C eingestellt, die Streckzonen wurden auf etwa 175 °C eingestellt und die Abkühlzonen wurden auf etwa 130 °C eingestellt. Die Folien waren etwa 0,030 mm dick, und die Schlitzweiten betrugen etwa 127 cm. Aufwickelgeschwindigkeiten von etwa 45 Metern pro Minute wurden verwendet. Die Folie wurde (offline) in Maschinenrichtung und in Querrichtung in brauchbare Probenbreiten zum Testen unter Verwendung eines Rasierklingschneiders, ausgestattet mit frischen Klingen, geschlitzt. Die mechanischen Folieneigenschaften sind in Tabelle 4 dargestellt. Die Molekularorientierungsdaten sind in den Tabellen 5a und 5b dargelegt.

#### Sequenzielles Streckverfahren

**[0155]** Die Beispiele 44–48 wurden wie folgt hergestellt.

**[0156]** In Beispiel 44 bestand die mehrschichtige Folie aus etwa 80 % Propylen-Copolymer G in der ersten Schicht und etwa 20 % Propylen-Homopolymer B (PP-B) in den zweiten Schichten (etwa 10 % auf jeder Seite der ersten Schicht) auf der Basis der Ausgaben der drei Extruder. Das erste Polymer wurde einem Einzelschneckenextruder mit 4,45 cm, hergestellt von H.P.M., Mt. Gilead, Ohio, zugeführt. Das Polymer der zweiten Schicht an einer der Seiten (der Seite, die mit dem Gussrad in Kontakt war) der ersten wurde einem Einzelschneckenextruder mit 2,54 cm, hergestellt von Davis-Standard, Pawtucket, CT (Modell Nr. D5-10-HM15) zugeführt. Das Polymer der zweiten Schicht an der anderen Seite der ersten (der Seite, die nicht mit dem Gussrad in Kontakt war) wurde einem Einzelschneckenextruder mit 3,18 cm, hergestellt von Grabender, S. Nackensack, NJ (Typ D-51 mit einem Controller des Typs SP-T2504D) zugeführt. Die Polymere wurden auf etwa 252 °C unter Verwendung von Erwärmungseinstellungspunkten der Extrudertrommel von etwa 194° bis zu etwa 240–260 °C erwärmt. Die Schmelzen wurden in einen Zufuhrblock überführt, man ließ innen/intern ein aus den drei Schichten zweite/erste/zweite gebildetes Sandwich entstehen], und dieses Sandwich wurde dann durch eine Lagermatrize mit 17,8 cm extrudiert. Das dreischichtige Extrudat wurde auf ein drehendes, glattes Stahlgussrad, gehalten bei etwa 60 °C mit einem zirkulierenden Wasserbad, in welchem ein Teil des Rads eingetaucht war, gegossen. Die Gussradtemperatur wurde ebenfalls durch das zirkulierende Umgebungstemperatur(60 °C)-Wasser beibehalten.

**[0157]** Die Gussfolie wurde über einen Satz von Walzen, die intern auf 125 °C erwärmt waren, geleitet und in Längs- oder Maschinenrichtung (MD) auf ein Streckverhältnis von etwa 5:1 gestreckt. Die MD-gestreckte Lage wurde als nächstes entlang der Kante in einer Reihe von Klammern an divergenten Spannrahmenschienen gegriffen und in Kreuz- oder Querrichtung (TD) auf ein endgültiges TD-Streckverhältnis von etwa 9:1 gestreckt. Die spezifischen Streckbedingungen und Spanntemperaturbedingungen sind in Tabelle 3 aufgelistet. Die erhaltene biaxial gestreckte Folie wurde auf Raumtemperatur abgekühlt, ihre Kanten durch Rasierklings-Schlitz getrimmt und auf eine Hauptrolle mit etwa 10 Metern pro Minute gewickelt. Die Folien waren etwa 0,028 bis 0,038 mm dick, und die Schlitzbreiten betrugen etwa 25–30 cm. Die Folie wurde in Maschinenrichtung und in Querrichtung in nützliche Probenbreiten zum Testen unter Verwendung eines Rasierklingschneiders, ausgestattet mit frischen Klingen, eingeschlitzt. Die Folieneigenschaften sind in Tabelle 4 dargestellt. Die Molekularorientierungsdaten sind in den Tabellen 5a und 5b dargestellt.

#### Abschnitt Ergebnisse & Diskussion

**[0158]** Die Beispiele 44–48 wurden unter Verwendung eines sequenziellen Orientierungsverfahrens hergestellt. Dieses Verfahren ist typischerweise für die Zwecke der vorliegenden Erfindung dahingehend weniger geeignet, dass die sequenziellen Proben eine übermäßige MD-Dehnung und hohe Werte der Durchschlagenergie, wie bestimmt durch WAXS- und Doppelbrechungsmessungen, zeigen. Beispiel 47 zeigte, während es einen niedrigen Wert der Durchschlagenergie zeigte, auch eine sehr hohe Dehnung, die verursacht, dass sich diese Probe streckt, verformt oder unter Verwendung eines typischen Klebebandspenders schwierig abzuschneiden ist.

**[0159]** Die Beispiele 1 und 2 sind Fälle von Folien, die einen erwünschten Schmelzpunktunterschied zwischen den zweiten Schichten und der ersten Schicht sowie eine richtige Orientierung aufwiesen. Diese Bei-



spiele wiesen eine geringe Durchschlagenergie und Zugdehnung auf und ließen sich leicht an einer Klinge von im Handel erhältlichen Klebebandspendern abtrennen. Zusätzlich wurden diese Beispiele selbst dann leicht von Hand abgerissen, als ein Kantenschlitz unter Verwendung von scharfen Rasierklingen verwendet wurde.

**[0160]** Beispiel 3 ist eine Folie mit der richtigen Orientierung, die jedoch nicht den angemessenen Unterschied im Schmelzpunkt zwischen den zweiten Schichten und der ersten Schicht aufweist. Dadurch wurde eine Folie mit unerwünscht hoher Durchschlagenergie und Zähigkeit erhalten, wodurch es schwierig wurde, sie unter Verwendung eines im Handel erhältlichen Klebebandspenders abzutrennen.

**[0161]** Beispiel 12 enthielt einen Keimbildner in der ersten Schicht, der der Folie Klarheit und verbesserte Steifigkeit verlieh. Typischerweise lässt sich eine Folie mit hoher Steifigkeit oder hohem Modul leichter in herkömmlichen Gewebeumgangsausrüstung handhaben.

**[0162]** Die Beispiele 15–20 wiesen gemischte Harze in den zweiten Schichten auf, wobei der Hauptbestandteil davon einen angemessenen Schmelzpunktunterschied zum Polymer der ersten Schicht aufwies. Die Einbringung von niedriger schmelzenden oder sogar Erstschicht-Harzen in die zweiten Schichten verbesserte das Haftvermögen zwischen Haut und ersten Schichten, wodurch die Verarbeitbarkeit unterstützt oder die Klarheit verbessert wurde.

**[0163]** Die Beispiele 21–22 beschreiben 2-schichtige Konstruktionen mit der richtigen Orientierung und ausreichendem Schmelzpunktunterschied zwischen der Haut- und der ersten Schicht zum Bereitstellen von niedrigen Werten der Durchschlagenergie. Derartige Folien können in bestimmten Verpackungsanwendungen und in Bandträgern in Fällen, in welchen die während der Verarbeitung oder des Rollenabwickelns anzutreffende Belastung hoch genug ist, um eine teilweise Entlaminierung einer zusätzlichen Schicht, falls vorliegend, zu verursachen, nützlich sein.

**[0164]** Die Beispiele 23–26 zeigten 5-schichtige Folienkonstruktionen, in welchen eine Bindeschicht zum Modifizieren des Haftvermögens zwischen den Schichten sowie der Gesamtfolieneigenschaften wie gewünscht eingebracht wurde. Derartige Bindeschichten lagen in ausreichend kleinen Mengen vor, so dass sie sehr wenig zum mechanischen Gesamtverhalten der Folie beitrugen.

**[0165]** Die Beispiele 28–30 zeigten die Wirkung einer Harzbeimischung in der ersten Schicht, insbesondere die Wirkung der Zugabe von kristallinerem isotaktischem Polypropylen. In diesen Fällen erhielten die Folien Steifigkeit auf Kosten der Erhöhung von Durchschlagenergie, waren jedoch beim Bereitstellen einer stabileren Gewebebehandlung in anschließenden Umwandlungsoperationen nützlich.

**[0166]** Die Beispiele 32, 33 und 35 wurden simultan biaxial gestreckt, so dass ein vermindertes MD-Streckverhältnis von 5,5 bereitgestellt wurde. Überraschenderweise behielten diese Fälle, während sie eine Erhöhung in der Zugdehnung zeigten, immer noch niedrige Durchschlagenergiewerte bei und waren leicht von Hand abzutrennen oder abzureißen. Wie in Tabelle 5b dargestellt, wies die molekulare Orientierung, wie gemessen für diese Beispiele, einen leichten Quercharakter auf, was überraschenderweise die Durchschlagenergie oder die Verwendbarkeit derartiger Folienträger nicht stark beeinflusste. Dies war für die Beispiele C-1 bis C-5 nicht der Fall, die einen großen negativen Wert der Doppelbrechung und demzufolge eine hohe MD-Zugdehnung und in den meisten Fällen hohe Werte der Durchschlagenergie, zusammen mit ungleichmäßigen oder deformierten abgetrennten Kanten aufwiesen, als sie unter Verwendung eines im Handel erhältlichen Klebebandspenders gespendet wurden.

**[0167]** Die Beispiele 39, 40, 42 und 43, zusammen mit den Beispielen 38 und 41, veranschaulichten die Wirkung der Zugabe von Kohlenwasserstoff-Klebrigmacherharzen zu der ersten Schicht der Folie. Wie diese Fälle zeigen, verbesserten die klebrigmachenden Harze tendenziell die Durchschlagenergie und reduzierten die Reißspannungswerte. Diese Beispiele waren zudem merklich steifer als die Vergleichsbeispiele, die ohne klebrigmachende Harze durchgeführt wurden. Wie früher erwähnt, sind steifere Folien häufig weicheren Folien im Hinblick auf anschließende Gewebebehandlungsvorgänge zu bevorzugen. Es ist bevorzugt, dass derartige Harze der ersten Schicht zugesetzt werden, um eine Migration oder ein Ausbluten an die Oberflächen zu vermeiden, wo sie die Neigung von benachbarten Folienschichten, aneinander anzuhafte, erhöhen.

TABELLE 1

## POLYMERIDENTIFIKATION

Polymer ID	Allgemeine Beschreibung	Lieferant	Klasse Sorte	MFR* (g/10 mm)	% Ethylen* (nach Gewicht)	(DSC) (°C)
A	PP-Homopolymer	Fina	PP 3374	2,5	0,0	161,5
B	PP-Homopolymer	Fina	PP 3571	9,0	0,0	160,4
C	PP-Copolymer	Exxon	Escorene 4792-E1	2,8	0,5	158,4
D	PP-Copolymer	Aristech	FF036Q2	3,4	0,7	157,0
E	PP-Copolymer	Fina	PP 6253	1,5	2,0	146,2
F	PP-Copolymer	Exxon	Escorene 9852	2,1	2,1	149,0
G	PP-Copolymer	Exxon	Escorene 9122	2,1	2,1	149,0
H	PP-Copolymer	Fina	PP 7825	30,0	3,0	137,5
I	Nukleiertes Homopolymer	Exxon	1043N	5,5	0,0	167,5
J	PP-Homopolymer	Fina	PP 3376	2,5	0,0	161,5
K	PP-Homopolymer	Fina	EOD 00-35	3,6	0,0	149,0
L	Klebrigmacher	Hercules	Regalrez 1139			
M	Klebrigmacher	Exxon	5340			

TABELLE 2 – FOLIENKONSTRUKTIONEN

ID	Schichtkonstruktion	Schicht Gew.-%	Erste Schicht B	Zweite Schicht A	Zwischenschicht C
Bsp. 1	ABA	10/80/10	G	B	
Bsp. 2	ABA	10/80/10	E	C	
Bsp. 3	ABA	10/80/10	A	B	

Bsp. 4	ABA	10/80/10	E	C	
Bsp. 5	ABA	10/80/10	E	C	
Bsp. 6	ABA	10/80/10	E	C	
Bsp. 7	ABA	10/80/10	E	B	
Bsp. 8	ABA	10/80/10	85/15 H/B	B	
Bsp. 9	ABA	10/80/10	85/15 E/D	D	
Bsp. 10	ABA	10/80/10	E	C	
Bsp. 11	ABA	10/80/10	E	C	
Bsp. 12	ABA	10/80/10	85/15 E/I	J	
Bsp. 13	ABA	10/80/10	G	B	
Bsp. 14	ABA	10/80/10	E	B	
Bsp. 15	ABA	10/80/10	85/15 E/D	75/25 DIE	
Bsp. 16	ABA	10/80/10	E	75/25 D/E	
Bsp. 17	ABA	10/80/10	E	D	
Bsp. 18	ABA	10/80/10	E	75/25 DIE	
Bsp. 19	ABA	10/80/10	E	60/40 DIE	
Bsp. 20	ABA	10/80/10	E	50/50 DIE	
Bsp. 21	ABB	10/90	E	D	
Bsp. 22	ABB	10/90	E	D	
Bsp. 23	ACBCA	7/3/80/3/7	E	C	C
Bsp. 24	ACBCA	7/3/80/3/7	E	C	C
Bsp. 25	ACBCA	7/3/80/3/7	E	75/25 C/E	C
Bsp. 26	ACBCA	7/3/80/3/7	E	75/25 C/E	50/50 C/E
Bsp. 27	ABA	10/80/10	D	C	
Bsp. 28	ABA	10/80/10	50/50 E/D	C	
Bsp. 29	ABA	10/80/10	85/15 H/B	B	
Bsp. 30	ABA	10/80/10	90/10 E/B	B	
Bsp. 31	ABA	10/80/10	E	B	
Bsp. 32	ABA	10/80/10	E	75/25 D/E	
Bsp. 33	ABA	10/80/10	E	75/25 D/E	
Bsp. 34	ABA	10/80/10	E	75/25 D/E	
Bsp. 35	ABA	10/80/10	E	90/10 D/E	
Bsp. 36	ABA	10/80/10	E	90/10 D/E	
Bsp. 37	ABA	10/80/10	E	J	
Bsp. 38	ABA	10/80/10	E	D	
Bsp. 39	ABA	10/80/10	90/10 E/M	D	
Bsp. 40	ABA	10/80/10	90/10 E/L	D	
Bsp. 41	ABA	10/80/10	E	D	

Bsp. 42	ABA	10/80/10	90/10 E/M	D	
Bsp. 43	ABA	10/80/10	90/10 E/L	D	
Bsp. 44	ABA	10/80/10	G	B	
Bsp. 45	ABA	10/80/10	E	C	
Bsp. 46	ABA	10/80/10	A	A	
Bsp. 47	ABA	10/80/10	E	C	
Bsp. 48	ABA	10/80/10	E	C	
Bsp. 49	ABA	10/80/10	85/15 K/J	A = J, A' = B	

TABELLE 3 – VERARBEITUNGSBEDINGUNGEN

ID	Streckverfahren	T1 Vorwärmen (°C)	T2 Strecken (°C)	T3 Abkühlen (°C)	MDR*
Bsp. 1	SIMULTAN	192	152	130	7,5
Bsp. 2	GLEICHZEITIG	192	148	130	7,5
Bsp. 3	GLEICHZEITIG	192	162	130	7,5
Bsp. 4	GLEICHZEITIG	200	148	130	7,5
Bsp. 5	GLEICHZEITIG	192	148	160	7,5
Bsp. 6	GLEICHZEITIG	192	140	160	7,5
Bsp. 7	GLEICHZEITIG	192	152	130	7,5
Bsp. 8	GLEICHZEITIG	173	141	130	7,5
Bsp. 9	GLEICHZEITIG	198	148	130	7,5
Bsp. 10	GLEICHZEITIG	192	140	130	7,5
Bsp. 11	GLEICHZEITIG	188	144	130	7,5
Bsp. 12	GLEICHZEITIG	182	140	130	7,5
Bsp. 13	GLEICHZEITIG	200	148	130	7,5
Bsp. 14	GLEICHZEITIG	188	148	130	7,5
Bsp. 15	GLEICHZEITIG	198	148	130	7,5
Bsp. 16	GLEICHZEITIG	198	148	130	7,5
Bsp. 17	GLEICHZEITIG	195	143	130	7,5
Bsp. 18	GLEICHZEITIG	195	143	130	7,5

Bsp. 19	GLEICHZEI- TIG	195	143	130	7,5
Bsp. 20	GLEICHZEI- TIG	195	143	130	7,5
Bsp. 21	GLEICHZEI- TIG	192	140	130	7,5
Bsp. 22	GLEICHZEI- TIG	192	140	130	7,5
Bsp. 23	GLEICHZEI- TIG	192	140	130	7,5
Bsp. 24	GLEICHZEI- TIG	198	148	130	7,5

Bsp. 25	GLEICHZEI- TIG	192	140	130	7,5
Bsp. 26	GLEICHZEI- TIG	192	140	130	7,5
Bsp. 27	GLEICHZEI- TIG	198	150	130	7,5
Bsp. 28	GLEICHZEI- TIG	192	140	130	7,5
Bsp. 29	GLEICHZEI- TIG	175	143	130	7,5
Bsp. 30	GLEICHZEI- TIG	192	140	130	7,5
Bsp. 31	GLEICHZEI- TIG	192	140	130	7,5
Bsp. 32	GLEICHZEI- TIG	195	143	130	5,5
Bsp. 33	GLEICHZEI- TIG	190	143	130	5,5
Bsp. 34	GLEICHZEI- TIG	190	143	130	7,5
Bsp. 35	GLEICHZEI- TIG	192	140	130	5,5
Bsp. 36	GLEICHZEI- TIG	192	140	130	7,5
Bsp. 37	GLEICHZEI- TIG	182	140	130	5,5
Bsp. 38	GLEICHZEI- TIG	194	140	130	7,5
Bsp. 39	GLEICHZEI- TIG	194	140	130	7,5
Bsp. 40	GLEICHZEI- TIG	194	140	130	7,5
Bsp. 41	GLEICHZEI- TIG	194	144	130	7,5
Bsp. 42	GLEICHZEI- TIG	194	144	130	7,5
Bsp. 43	GLEICHZEI- TIG	194	144	130	7,5
Bsp. 44	SEQUENZI- ELL	152	152	152	5
Bsp. 45	SEQUENZI- ELL	152	152	152	5
Bsp. 46	SEQUENZI- ELL	160	160	160	5
Bsp. 47	SEQUENZI- ELL	165	165	165	5
Bsp. 48	SEQUENZI- ELL	160	160	160	5
Bsp. 49	GLEICHZEI- TIG	182	152	140	7,5

\* MDR: Streckverhältnis in Maschinenrichtung

TABELLE 4 – FOLIENEIGENSCHAFTEN IN MASCHINENRICHTUNG

Beispiel	Trübung	Durchschlag	energie	Zugreißspannung	Zugdehnung
	(%)	2,54 cm (J/cm <sup>2</sup> )	1,27 cm (J/cm <sup>2</sup> )	(Npa)	(%)
Bsp. 1	0,80	10,4	39,0	88	64
Bsp. 2	0,41	7,7	22,7	67	44
Bsp. 3	0,57	29,4	94,9	213	76
Bsp. 4	3,32	6,7	22,9	64	62
Bsp. 5	2,80	7,9	23,6	66	53



## DE 601 29 362 T2 2008.03.13

Bsp. 6	0,82	7,7	24,7	67	40
Bsp. 7	3,12	8,5	31,8	73	53
Bsp. 8	0,16	15,6	58,8	121	88
Bsp. 9	0,52	9,7		68	59
Bsp. 10	0,30	8,3	25,5	71	50
Bsp. 11	0,31	9,7	24,8	76	50
Bsp. 12	0,38	13,2		106	65
Bsp. 13	2,73	5,5	40,1	63	48
Bsp. 14	0,38	9,3	36,5	75	55
Bsp. 15	1,01	10,0		83	74
Bsp. 16	0,57	6,4		62	73
Bsp. 17	2,75	5,9		63	63
Bsp. 18	0,74	6,3		64	58
Bsp. 19	0,78	5,8		60	62
Bsp. 20	0,69	4,5		57	69
Bsp. 21	0,76	11,4		112	60
Bsp. 22	0,65	12,2		82	62
Bsp. 23	0,62	9,1		80	53
Bsp. 24	3,96	7,1		66	56
Bsp. 25	0,50				
Bsp. 26	0,54				
Bsp. 27	0,43				
Bsp. 28	0,36				
Bsp. 29	0,15				
Bsp. 30	0,54				
Bsp. 31	0,27	8,1		74	52
Bsp. 32	1,21	6,4		54	110
Bsp. 33	0,59	9,1		60	100
Bsp. 34	0,44	9,2		87	58
Bsp. 35	0,53	7,8		55	97
Bsp. 36	0,51	7,3		81	50
Bsp. 37	0,38	7,0		70	39
Bsp. 38	0,49	12,2		94	69
Bsp. 39	0,93	7,1		60	33
Bsp. 40	0,58	7,5		68	59
Bsp. 41	0,84	7,9		72	50
Bsp. 42	0,65	8,0		58	22
Bsp. 43	0,55	7,9		68	63

Bsp. 44	2, 59	59,9		150	158
Bsp. 45	2,42	48,9		167	151
Bsp. 46	0,88	96,8		147	177
Bsp. 47	5,02	4,2		32	208
Bsp. 48	1,92	36,3		97	185
Bsp. 49	0,39	6,3		71	47

TABELLE 5A

## FOLIENORIENTIERUNGSEIGENSCHAFTEN WAXS (110) EBENENSTREUUNG

Beispiele	Peakmaximum Winkel (°)	FWHM (°)	Höhe (Zählungen)
Bsp. 1	96	59,2	521
Bsp. 2	95	61,1	410
Bsp. 3	94	50,6	575
Bsp. 44	100	62,1	489
	181	35,7	2850
Bsp. 45	87	51,2	529
	177	42,0	2409
Bsp. 46	89	52,2	323
	175	29,8	3384

TABELLE 5B

## FOLIENORIENTIERUNGSEIGENSCHAFTEN (BRECHUNGSINDEX)

Beispiele	Brechungsindex ( $\Pi_{MD}$ )	Brechungs index ( $\Pi_{TD}$ )	Doppelbrechung ( $\Delta\Pi_{MD-TD} \times 10^{-1}$ )
Bsp. 1	1,5093	1,5071	2,20
Bsp. 44	1,5023	1,5119	-9,60
Bsp. 2	1,5091	1,5042	4,90
Bsp. 45	1,5047	1,5102	-5,50
Bsp. 3	1,5137	1,5037	6,40
Bsp. 46	1,5011	1,5154	-14,30
Bsp. 4	1,5108	1,5062	4,60
Bsp. 47	1,5023	1,5102	-7,90
Bsp. 5	1,5108	1,5044	6,40

Bsp. 48	1,5042	1,5126	-8,40
Bsp. 6	1,5086	1,5036	5,00
Bsp. 17	1,5093	1,5046	4,70
Bsp. 32	1,5068	1,5075	-0,70
Bsp. 18	1,509	1,5048	4,20
Bsp. 33	1,5051	1,5059	-0,80
Bsp. 34	1,5086	1,5040	4,60
Bsp. 35	1,5068	1,5088	-2,00
Bsp. 36	1,5084	1,5038	4,60

## Sequenzielles Streckverfahren

**[0168]** Die Beispiele 50–55 wurden wie folgt hergestellt.

## Beispiel 50:

**[0169]** Eine dreischichtige Folienkonstruktion wurde hergestellt. Die Konstruktion kann als „ABC“-Konstruktion mit der „C“-Oberflächenschicht (der Seite, die mit dem Gussrad nicht in Kontakt war), der „B“-Kernschicht und der zweiten, „A“-Oberflächenschicht (der Seite, die mit dem Gussrad in Kontakt war) bezeichnet werden. Die dreischichtige Folie wurde unter Verwendung eines Koextrusionsverfahrens aus einer Flachfolienmatrize hergestellt.

**[0170]** Die in Schicht A, B und C verwendeten Polymere sind in Tabelle 6 beschrieben. Schicht B und Schicht A umfassen Polymer PP1. Die Oberflächenfinishingschicht (Schicht C) umfasst eine Mischung aus 20/40/40 CC/PP2/HDPE2, wie in Tabelle 7 beschrieben. Die Mischung wurde durch Zuführen von 1,4 kg/h CC, 2,7 kg/h PP2 und 2,7 kg/h HDPE2 in einen ko-rotierenden Doppelschneckenextruder mit 27 mm, hergestellt von Leistritz, Somerville, NJ, hergestellt. Die Mischung wurde auf etwa 230 °C unter Verwendung von Heizeinstellungspunkten der Trommelzone von etwa 195° bis 230 °C erwärmt. Die Mischung wurde durch eine Strangmatrize extrudiert, und die Stränge wurden durch ein Wasserbad, gehalten bei einer Temperatur von etwa 15 °C, geleitet. Die Stränge wurden dann unter Verwendung eines rotierenden Messers zu Pellets zerkleinert.

**[0171]** Das Polymer der Kernschicht (Schicht B) wurde einem Einzelschneckenextruder mit 4,45 cm, hergestellt von H.P.M., Mt. Gilead, OH, zugeführt. Die Polymermischung der Oberflächenschicht (Schicht C) wurde einem Einzelschneckenextruder mit 3,18 cm, hergestellt von Grabender, S. Nackensack, NJ, zugeführt. Das Polymer der zweiten Oberflächenschicht (Schicht A) wurde einem Einzelschneckenextruder mit 2,54 cm, hergestellt von Davis-Standard, Pawtucket, CT, zugeführt. Die Polymere wurden auf etwa 250 °C unter Verwendung von Erwärmungseinstellungspunkten der Extrudertrommelzone von etwa 194° bis 250 °C erwärmt. Die Polymerschmelzen wurden in einen Dreischichtzufuhrblock und dann in eine 17,8 cm breite Lagenmatrize, beide hergestellt von Cloeren Inc., Orange, TX, überführt. Eine dreischichtige Lage mit einer Dicke von 1,37 mm wurde auf ein rotierendes, glattes Stahlgussrad, gehalten bei etwa 50 °C, gegossen. Die Lage wird dann in ein Wasserbad bei 20 °C getaucht.

**[0172]** Die Gussfolie wurde durch deren Leiten über einen Satz an Walzen, die intern auf 120 °C vorgewärmt waren, erwärmt und dann in Längs- oder Maschinenrichtung (MD auf ein Streckverhältnis von etwa 5:1 gestreckt. Die MD-gestreckte Lage wurde als Nächstes entlang der Kante in einer Reihe von Clips auf divergenten Spannschienen festgeklammert und in Kreuz- oder Querrichtung (TD) auf ein endgültiges TD-Streckverhältnis von etwa 9:1 gestreckt. Die spezifischen Streck- und Spanntemperaturbedingungen sind in Tabelle 8 aufgelistet. Die erhaltene biaxial gestreckte Folie wurde auf Raumtemperatur abgekühlt, ihre Kanten wurden durch Rasiermesserschlitzen abgekantet und auf eine Hauptrolle mit etwa 10 Metern pro Minute aufgewickelt. Die Folie ist etwa 0,030 mm dick, wobei die Kernschicht (B) eine Dicke von etwa 0,021 mm aufweist und jede Oberflächenschicht eine Dicke von etwa 0,0045 mm aufweist. Die Folieneigenschaften sind in Tabelle 9 dargestellt. Das in [Fig. 13](#) dargestellte SEM veranschaulicht eine Oberfläche, die deutlich frei von Hohlräumen und Rissen ist. Das SEM zeigt auch eine Mehrzahl von Rippen auf der Oberfläche der Folie, die eine Oberfläche mit geringem Glanz hervorrufen.

## Beispiel 51:

**[0173]** Beispiel 50 wurde wiederholt. Die in Schicht C verwendete Mischung umfasste eine Mischung aus 20/40/40 CC/RCP3/HDPE2, wie in Tabelle 7 beschrieben. Das in Schicht B verwendete Polymer umfasste RCP1. Die zum Herstellen dieses Beispiels verwendeten Verarbeitungsbedingungen sind in Tabelle 8 dargestellt. Die Folieneigenschaften sind in Tabelle 9 dargelegt. Das in [Fig. 14](#) dargestellte SEM veranschaulicht eine Oberfläche, die deutlich frei von Hohlräumen und Rissen ist und eine Mehrzahl von Rippen auf der Oberfläche der Folie aufweist, die eine Oberfläche mit geringem Glanz hervorrufen.

## Beispiel 52:

**[0174]** Beispiel 51 wurde wiederholt. Die Strecktemperatur, T2, wurde auf 142 °C gesenkt. Die Folieneigenschaften sind in Tabelle 9 dargestellt. Das in [Fig. 15](#) dargestellte SEM veranschaulicht eine Oberfläche, die deutlich frei von Hohlräumen und Rissen ist und eine Mehrzahl von Rippen auf der Oberfläche der Folie aufweist, die eine Oberfläche mit geringem Glanz hervorrufen.

## Beispiel 53:

**[0175]** Beispiel 52 wurde mit der in Schicht C verwendeten Mischung wiederholt, umfassend eine Mischung aus 20/40/40 CC/RCP2/HDPE, wie in Tabelle 7 beschrieben.

**[0176]** Das in der Mischung verwendete statistische Copolymer wies einen Schmelzfluss von 4 g/10 min auf. Die Trübungs- und Glanzwerte dieses Beispiels erzielten nicht die erwünschten Werte der vorliegenden Erfindung, wie in Tabelle 9 dargestellt. Das in [Fig. 16](#) dargestellte SEM veranschaulicht eine Oberfläche, die deutlich frei von Hohlräumen und Rissen ist. Jedoch fehlte der Folienoberfläche eine Mehrzahl von Rippen, was zu einer Folie mit einem Glanzwert außerhalb des Umfangs der vorliegenden Erfindung führte.

## Beispiel 54:

**[0177]** Beispiel 50 wurde mit einer geringeren Strecktemperatur, T2, wie in Tabelle 8 beschrieben, wiederholt. Das in Schicht B verwendete Polymer umfasste RCP1, wie in Tabelle 7 dargestellt. Die Strecktemperatur war niedriger als der Schmelzpunkt des in der Mischung von Schicht C verwendeten Polypropylens. Die Eigenschaften der Folie erfüllten die gewünschten Werte nicht, wie in Tabelle 9 dargestellt. Es gab eine große Menge an Hohlraumbildung des Polymers, umgebend die Calciumcarbonatteilchen der Oberflächenschicht, wie aus dem SEM von [Fig. 17](#) ersichtlich. Es war nicht möglich, auf der matten Oberfläche der Folie ohne Kratzen und Entfernen der matten Oberflächenschicht mit der Bleistiftmine zu schreiben.

## Beispiel 55:

**[0178]** Beispiel 50 wurde mit der in Schicht C verwendeten Mischung, umfassend eine Mischung aus 20/40/40 CC/PP2/HDPE1, wie in Tabelle 7 beschrieben, wiederholt. Das in der Mischung verwendete Polyethylen mit hoher Dichte wies einen Schmelzfluss von 7 g/10 min auf. Die Trübungs- und Glanzwerte dieses Beispiels erzielten nicht die gewünschten Werte der vorliegenden Erfindung, wie in Tabelle 9 dargestellt. Das in [Fig. 18](#) dargestellte SEM zeigt eine Oberfläche, die deutlich frei von Hohlräumen und Rissen war. Jedoch fehlte der Folienoberfläche eine Mehrzahl von Rippen, was zu einer Folie mit einem Glanzwert außerhalb des Umfangs der vorliegenden Erfindung führte.

## Gleichzeitiges Streckverfahren

**[0179]** Gleichzeitig biaxial orientierte mehrschichtige Folien, wie in den Beispielen 56–57 dargelegt, wurden unter Verwendung des in den US-Patentschriften Nr. 4,675,582; 4,825,111; 5,853,602; 5,036,262; 5,051,225; und 5,072,493 beschriebenen Verfahrens hergestellt. Das gleichzeitige Streckverfahren wurde auf einer Ausrüstung zum gleichzeitigen Strecken, gebaut von Bruckner Maschinenbau, Seigsdorf, Deutschland, durchgeführt.

## Beispiel 56:

**[0180]** Eine dreischichtige Folienkonstruktion wurde hergestellt. Die Konstruktion kann als „ABC“-Konstruktion mit der zweiten „C“-Schicht (der Seite, die mit dem Gussrad nicht in Kontakt war), der ersten „B“-Schicht und der [„A“-]Oberflächenfinishingschicht „A“ (der Seite, die mit dem Gussrad in Kontakt war), bezeichnet wer-

den. Die dreischichtige Folie wurde unter Verwendung eines Koextrusionsverfahrens aus einer Flachfolienmatrize hergestellt.

**[0181]** Die in Schicht A, B und C verwendeten Materialien sind in Tabelle 6 beschrieben. Die Folienkonstruktion ist in Tabelle 7 beschrieben.

**[0182]** Die C-Schicht umfasst eine Mischung aus 20/40/40 CC/RCP3/HDPE2. Die Mischung wurde durch Zuführen von 20 kg/h CC, 40 kg/h RCP3 und 40 kg/h HDPE2 in einen korotierenden Doppelschneckenextruder mit 50 mm, hergestellt von APV, Grand Rapids, MI, hergestellt. Die Mischung wurde auf etwa 230 °C unter Verwendung von Erwärmungseinstellungspunkten der Trommelzone von etwa 190 bis 230 °C erwärmt. Die Mischung wurde durch eine Strangmatrize extrudiert, und die Stränge wurden durch ein Wasserbad, gehalten bei einer Temperatur von etwa 15 °C, geleitet. Die Stränge wurden dann unter Verwendung eines rotierenden Messers zu Pellets zerkleinert.

**[0183]** Die Polymere der Kernschicht (Schicht B) wurden einem ko-rotierenden Doppelschneckenextruder mit 6,0 cm, hergestellt von Berstorff, Hannover, Deutschland, zugeführt. Die Mischung der Oberflächenschicht (Schicht C), wie vorstehend hergestellt, wurde einem Einzelschneckenextruder mit 3,81 cm, hergestellt von Davis-Standard, Pawtucket, CT, zugeführt. Die zweite Oberflächenschicht (Schicht A) wurde einem Einzelschneckenextruder mit 4,45 cm, hergestellt von H.P.M., Mt. Gilead, OH, zugeführt. Die Polymere wurden auf etwa 250 °C unter Verwendung von Erwärmungseinstellungspunkten der Extrudertrommelzone von etwa 190° bis 250 °C unter Herstellung eines stabilen Schmelzstroms erwärmt.

**[0184]** Die Schmelzen wurden einer 3-Schicht-Koextrusionsmatrize von Cloeren, ausgestattet mit einem Selektorgehäuse und einem „ABC“-Selektorstecker, überführt, so dass ein dreischichtiges „A/B/C“-Sandwich der Polymerschmelze durch eine Schlitzmatrize extrudiert und auf ein wassergekühltes Stahlgussrad, das mit etwa 5,0 Metern pro Minute rotierte, gegossen wurde. Das Gussrad wurde bei einer Temperatur von etwa 20 °C unter Verwendung einer internen Wasserzirkulation und durch Eintauchen des Gussrads in ein Wasserbad gehalten.

**[0185]** Die Gusslage wurde durch eine Bank von IR-Heizern, eingestellt auf etwa 500 °C zum Vorwärmen der Gussfolie vor dem gleichzeitigen Strecken in einem Spannofen, geleitet. Die gegossene und vorgewärmte Folie wurde sofort gleichzeitig in Längs- (MD) und Quer-(TD)richtung gestreckt, um eine biaxial orientierte Folie herzustellen. Ein Endflächenstreckverhältnis von etwa 49:1 wurde verwendet. Die MD- und TD-Verhältnisse wurden bei dem etwa 7,5fachen für das MDR und etwa 6,5- bis 7,0 fachen für das TDR in etwa konstant gehalten, so dass die Folie entweder etwa gleich in jeder der MD und TD, oder vorzugsweise mehr in der MD als in der TD gestreckt wurde.

**[0186]** Die Spannofentemperatur-Einstellungspunkte, die in den Vorwärmzonen verwendet wurden, betrugen 176 °C, in den Streckzonen 140 °C und in den Abkühlzonen 130 °C, wie in Tabelle 8 aufgelistet. Die Folie war etwa 0,035 mm dick, und die Schlitzbreiten betrugen etwa 127 cm. Die Folie wurde mit Geschwindigkeiten von etwa 37,5 Metern pro Minute aufgewickelt. Die Folie wurde (offline) in Maschinenrichtung in nützliche Probenbreiten zum Testen unter Verwendung eines Rasierklingenschneiders, ausgestattet mit frischen Klingen, geschlitzt.

**[0187]** Die Folieneigenschaften sind in Tabelle 9 dargestellt. Dieses Beispiel weist eine niedrige Durchschlagenergie und Zugdehnung auf und trennte sich leicht an den Klingen von im Handel erhältlichen Klebebandspendern ab. Zudem wurde dieses Beispiel leicht von Hand abgerissen, auch bei Kantenschlitzung unter Verwendung von scharfen Rasierklingen. Das in [Fig. 19](#) dargestellte SEM veranschaulicht eine Oberfläche, die deutlich frei von Hohlräumen und Rissen ist. Das SEM zeigt auch eine Mehrzahl von Rippen auf der Oberfläche der Folie, was eine Folie mit geringem Glanz bildet.

#### Beispiel 57:

**[0188]** Beispiel 56 wurde wiederholt. Die Vorwärmtemperatur, T1, wurde auf 180 °C erhöht, die Strecktemperatur, T2 wurde auf 142 °C, und die Abkühltemperatur, T3, wurde auf 145 °C erhöht. Die Folieneigenschaften sind in Tabelle 7 dargestellt. Dieses Beispiel weist eine niedrige Durchschlagenergie und Zugdehnung auf und trennte sich leicht an den Klingen von im Handel erhältlichen Klebebandspendern ab. Zudem wurde dieses Beispiel leicht von Hand abgerissen, auch bei Kantenschlitzung unter Verwendung von scharfen Rasierklingen. Das in [Fig. 20](#) dargestellt SEM veranschaulicht eine Oberfläche, die deutlich frei von Hohlräumen und Rissen ist und eine Mehrzahl von Rippen auf der Oberfläche der Folie aufweist, was eine Oberfläche mit geringem

Glanz hervorruft.

TABELLE 6: MATERIALIDENTIFIKATION

ID	Allgemeine Beschreibung	Lieferant	Klasse	MFR* (g/10 min)	Tm, DSC (°C)
PP1	PP-Homopolymer	Fina	PP 3374	2,5	161,5
PP2	PP-Homopolymer	Fina	PP 3860	100	160,0
PP3	PP-Homopolymer	Fina	PP 3376	2,5	161,5
RCP1	PP-Copolymer	Fina	PP 6253	1,5	146,2
RCP2	PP-Copolymer	Fina	PP 7425	4	137,8
RCP3	PP-Copolymer	Fina	PP 7825	30	137,5
HDPE1	HDPE	Exxon	Escorene HD6704	7	132,4
HDPE2	HDPE	Chevron	HiD®9640	0,2	127,5
CC	Calciumcarbonat	Specialty Minerals	HiPflex® 100	–	–

\* Schmelzflussgeschwindigkeit (MFR) gemessen bei 2,16 kg und 230 °C

TABELLE 7: FOLIENKONSTRUKTION

Beispiel	Schichtkonstruktion	Zweite Schicht C 20/40/40	Erste Schicht B	Oberflächenschicht A
Bsp. 50	ABC	CC/PP2/HDPE2	PP1	PP1
Bsp. 51	ABC	20/40/40 CC/RCP3/HDPE2	RCP1	PP1
Bsp. 52	ABC	20/40/40 CC/RCP3/HDPE2	RCP1	PP1
Bsp. 53	ABC	20/40/40 CC/RCP2/HDPE2	RCP1	PP1
Bsp. 54	ABC	20/40/40 CC/PP2/HDPE2	RCP1	PP1
Bsp. 55	ABC	20/40/40 CC/PP2/HDPE1	PPI	PPI
Bsp. 56	ABC	20/40/40 CC/RCP3/HDPE2	85/15 RCP1/PP3	PP3
Bsp. 57	ABC	20/40/40 CC/RCP3/HDPE2	85/15 RCP1/PP3	PP3

TABELLE 8: VERARBEITUNGSBEDINGUNGEN

Beispiel	Schicht-Gew.-%	T1 Vorwärmen (°C)	T2 Strecken (°C)	T3 Abkühlen (°C)
Bsp. 50	15/70/15	165	164	145
Bsp. 51	15/70/15	165	150	140
Bsp. 52	15/70/15	165	142	140
Bsp. 53	15/70/15	165	142	140
Bsp. 54	15/70/15	165	142	140
Bsp. 55	15/70/15	166	166	145
Bsp. 56	10/80/10	176	140	130
Bsp. 57	10/80/10	180	142	145

TABELLE 9: EIGENSCHAFTEN

Beispiel	Übertragung (%)	Trübung (%)	60° Glanz (%)	Bleistiftbeschriftungsfähigkeit(%)	Durchschlagenergie 2,54 cm (J/cm <sup>2</sup> )	Zugreißspannung (Mpa)	Zugdehnung (%)
Bsp. 50	92,7	86,0	7,6	27,0	32,0	151	131,5
Bsp. 51	93,4	86,7	6,9	14,9	26,1	172	63,6
Bsp. 52	93,4	85,8	6,9	18,3	23,0	183	60,0
Bsp. 53	94,0	57,2	21,6		21,3	188	54,1

Bsp. 54	81,9	97,7	4,5		19,6	172	43,3
Bsp. 55	94,0	48,9	16,2		44,0	141	154,8
Bsp. 56	92,7	80,9	9,1		12,2	141	49,1
Bsp. 57	93,1	78,0	10,0		4,8	67	43,6

**[0189]** Verschiedene Modifikationen und Abänderungen dieser Erfindung werden dem Fachmann ohne Abweichen vom Umfang dieser Erfindung offensichtlich sein, und es sollte klar sein, dass diese Erfindung nicht ungebührlich auf die veranschaulichten Ausführungsformen, die hier vorstehend dargelegt sind, beschränkt ist.

### Patentansprüche

#### 1. Folie, umfassend:

mindestens eine erste Schicht und mindestens eine zweite Schicht, wobei die erste Schicht einen Hauptbestandteil aus einem propylenhaltigen Polymer mit einem ersten Schmelzpunkt umfasst und die zweite Schicht einen Hauptbestandteil mit einem zweiten Schmelzpunkt umfasst, wobei der zweite Schmelzpunkt größer ist als der erste Schmelzpunkt;

wobei die mehrschichtige Konstruktion biaxial orientiert worden ist, so dass eine kristalline Orientierung bereitgestellt ist, wie bestimmt durch Messungen der Weitwinkel-Röntgenstrahlenstreuung (wide angle X-ray scattering; WAXS) von den monoklinen (110) kristallinen Ebenen, die isotrop ist oder höchstens ein einzelnes spezifisches azimutales Scanmaximum aufweist, wobei das Maximum bei einem Winkel von bis zu  $\pm 75^\circ$  von der Maschinenrichtung (machine direction; MD) aus positioniert ist, wobei das einzelne azimutale Scanmaximum zusätzlich eine Winkelbreite bei halber Peakhöhe (angular full width at half peak height; FWHM) zwischen etwa  $40^\circ$  bis  $75^\circ$  aufweist;

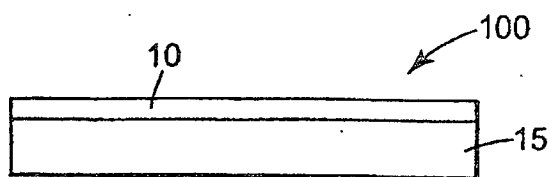
wobei die Folie eine Durchschlagenergie parallel zur Referenz oder MD von bis zu etwa  $20 \text{ J/cm}^2$  aufweist; und wobei das Propylenpolymer der ersten Schicht eine anfängliche Schmelzflussrate von bis zu  $25 \text{ g/10 min}$  aufweist.



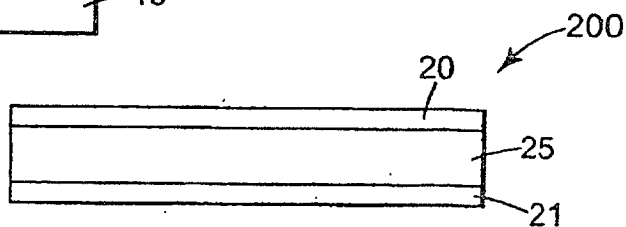
2. Folie nach Anspruch 1, wobei die gestreckte Folie eine Doppelbrechung aufweist, wobei die Differenz  $\Delta_n \geq -3 \times 10^{-3}$  ist.
3. Folie nach Anspruch 1, wobei die gestreckte Folie beim Testen gemäß dem Durchschlagtest-2,54 cm eine Durchschlagenergie in der Maschinenrichtung (MD) von bis zu etwa 20 J/cm<sup>2</sup> aufweist.
4. Folie nach Anspruch 1, wobei die gestreckte Folie eine Zugreißdehnung in der MD von bis zu etwa 150% aufweist.
5. Folie nach Anspruch 1, wobei die gestreckte Folie einen Durchlässigkeitstrübungswert von bis zu etwa 4% aufweist.
6. Folie nach Anspruch 1, wobei die gestreckte Folie eine Zugreißfestigkeit in der MD von bis zu etwa 140 MPa aufweist.
7. Folie nach Anspruch 1, wobei die biaxial orientierte Folie eine Schmelzflussrate von bis zu 35 g/10 min aufweist.
8. Folie nach Anspruch 1, wobei die erste Schicht ein statistisches Propylen-Ethylen-Copolymer mit einem Ethylengehalt zwischen etwa 0,5% und 10% umfasst.
9. Folie nach Anspruch 1, wobei die zweite Schicht ein isotaktisches Polypropylenhomopolymer umfasst.
10. Folie nach Anspruch 1, wobei die zweite Schicht ein statistisches Propylen-Ethylen-Copolymer mit einem Ethylengehalt zwischen etwa 0,01% und 1,0% umfasst.
11. Folie nach Anspruch 1, wobei die erste Schicht eine Mischung, ein Gemisch oder ein Mischpolymer eines statistischen Propylen-Ethylen-Copolymers mit einem Ethylengehalt zwischen etwa 0,5% und 10% mit einem isotaktischen Polypropylenhomopolymer umfasst.
12. Folie nach Anspruch 1, wobei die erste Schicht eine Mischung, ein Gemisch oder ein Mischpolymer eines statistischen Propylen-Ethylen-Copolymers mit einem Ethylengehalt zwischen etwa 0,5% und 4,0% mit einem statistischen Propylen-Ethylen-Copolymer mit einem Ethylengehalt von bis zu etwa 1% umfasst.
13. Folie nach Anspruch 1, wobei die erste Schicht ein Propylencopolymer umfasst, das eine zweite oder mehr Monomereinheiten, ausgewählt aus Monomeren mit C2-C8-Kohlenstoffatomen, umfasst, wobei der Gesamtcopolymergehalt bis zu etwa 10% beträgt.
14. Folie nach Anspruch 1, ferner enthaltend eine Oberflächenfinishingfolie.
15. Klebebandträger, umfassend eine wie in den Ansprüchen 1 bis 14 definierte Folie, wobei die Folie eine Durchschlagenergie parallel zur Referenz oder MD von bis zu etwa 20 J/cm<sup>2</sup> und einen Durchlässigkeitstrübungswert von bis zu etwa 2% aufweist.
16. Klebebandträger nach Anspruch 15, wobei die Folie eine Durchschlagenergie parallel zur Referenz oder MD von bis zu etwa 10 J/cm<sup>2</sup> und eine Durchlässigkeitstrübung von bis zu etwa 1% aufweist.

Es folgen 9 Blatt Zeichnungen

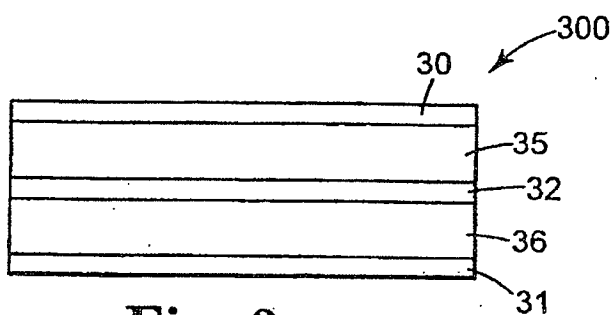
Anhängende Zeichnungen



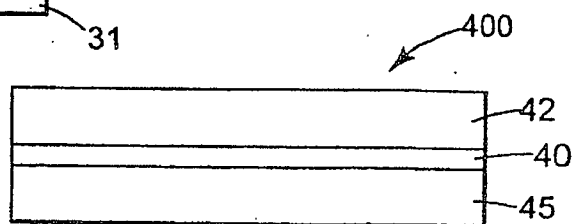
**Fig. 1**



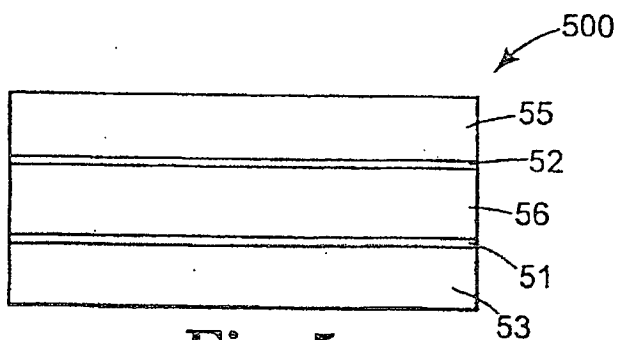
**Fig. 2**



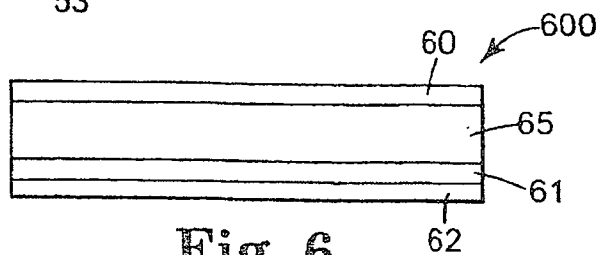
**Fig. 3**



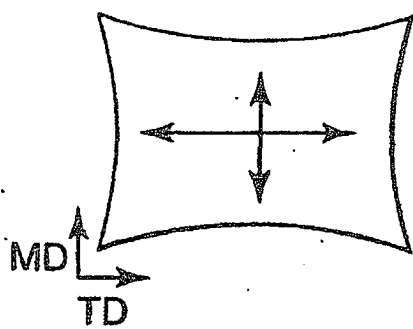
**Fig. 4**



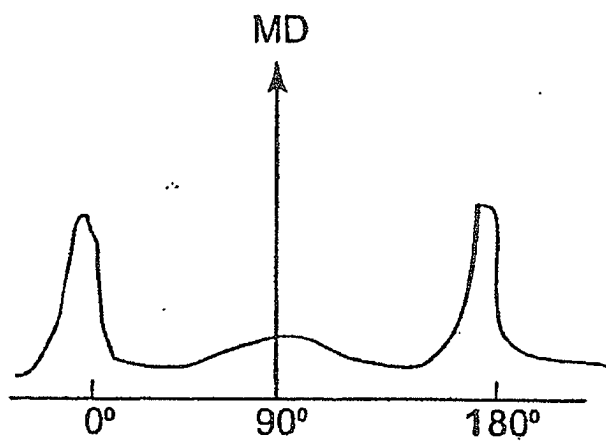
**Fig. 5**



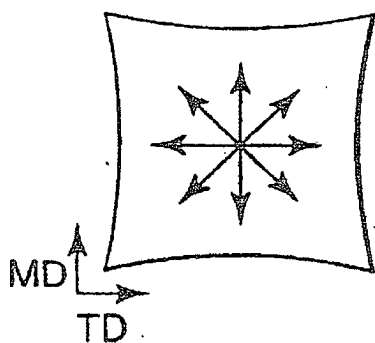
**Fig. 6**



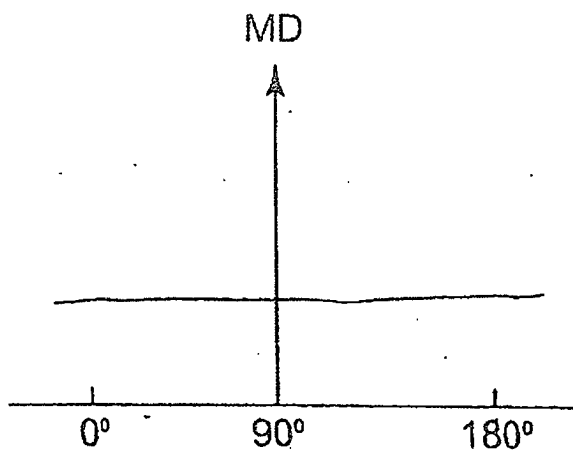
**Fig. 7a**



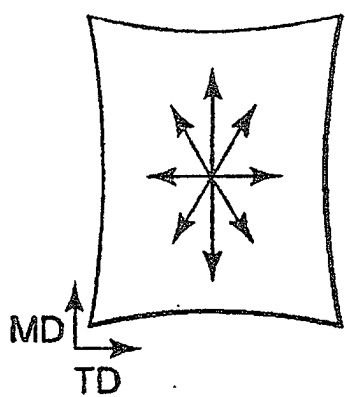
**Fig. 7b**



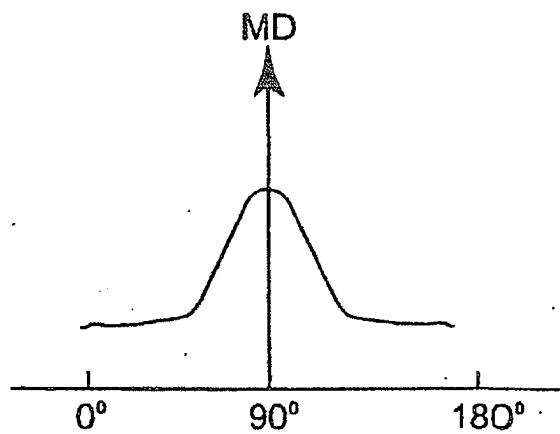
**Fig. 8a**



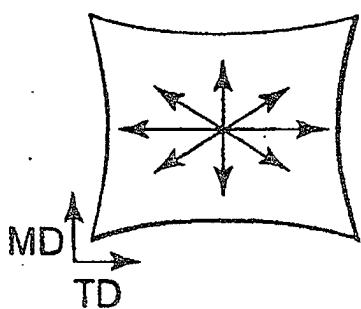
**Fig. 8b**



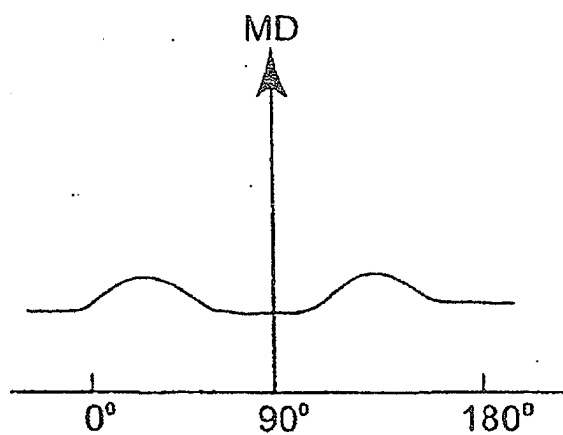
**Fig. 9a**



**Fig. 9b**



**Fig. 10a**



**Fig. 10b**

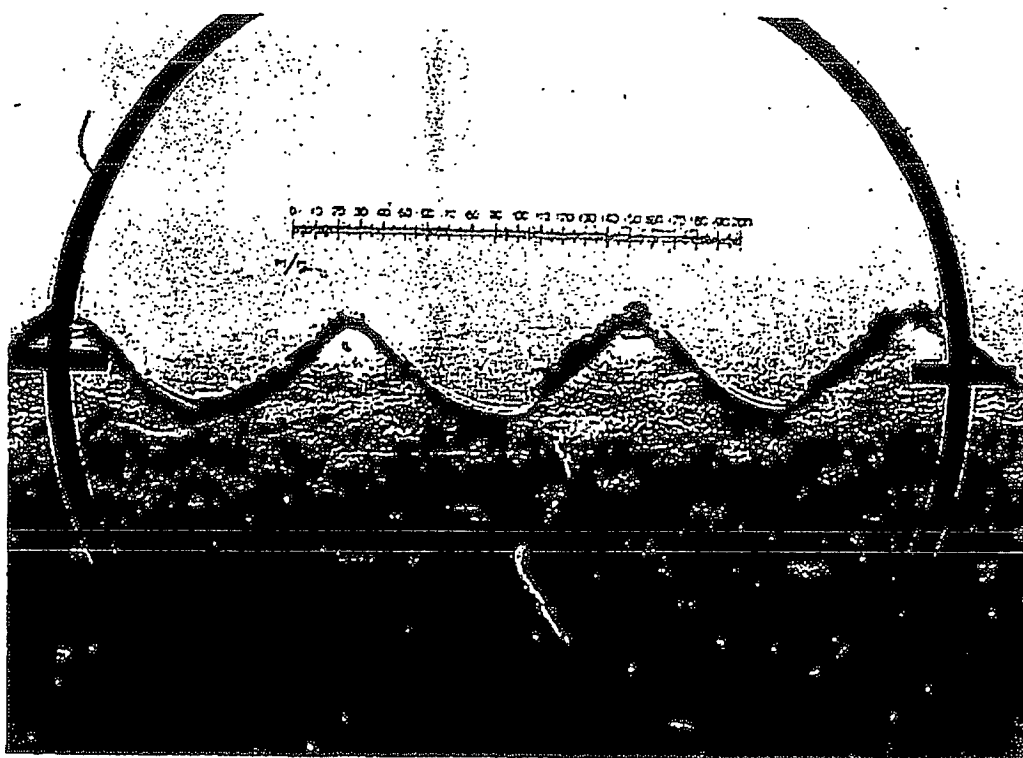


Fig. 11

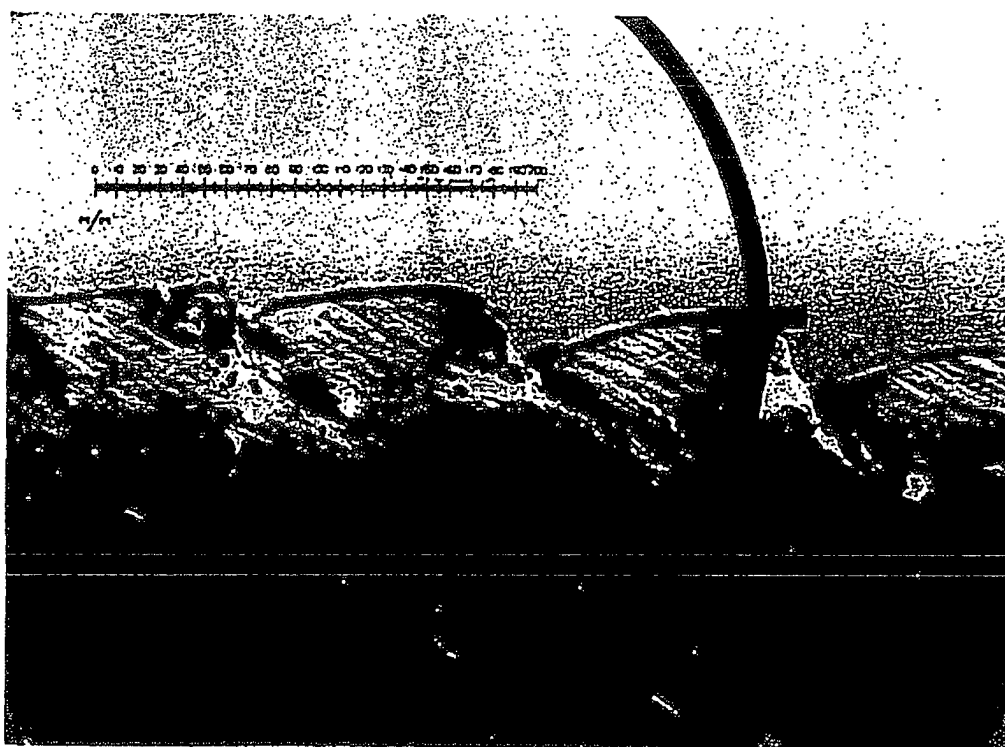
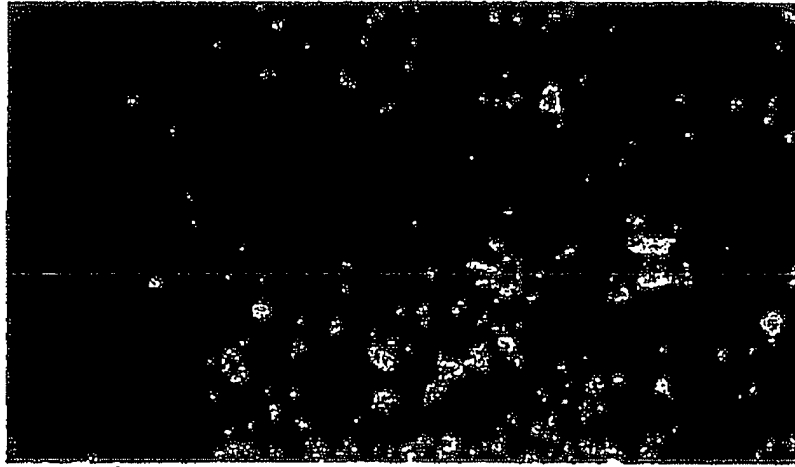
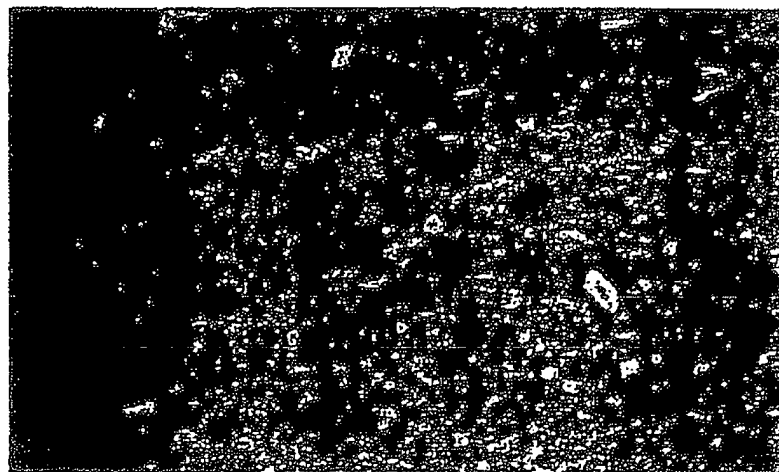


Fig. 12



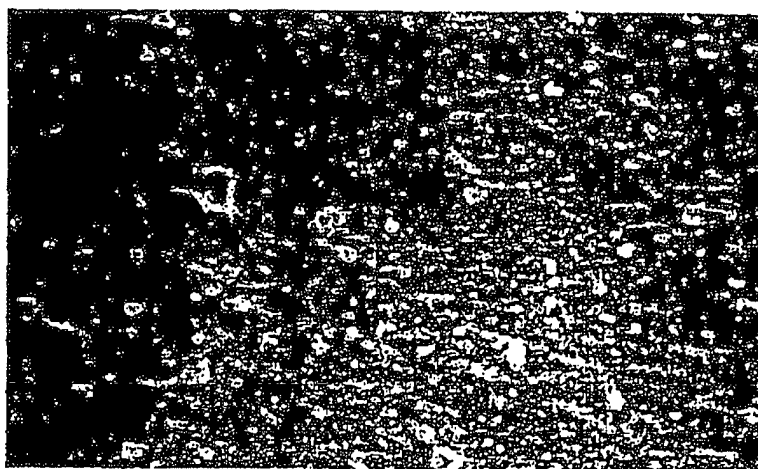
**Fig. 13**

200μm



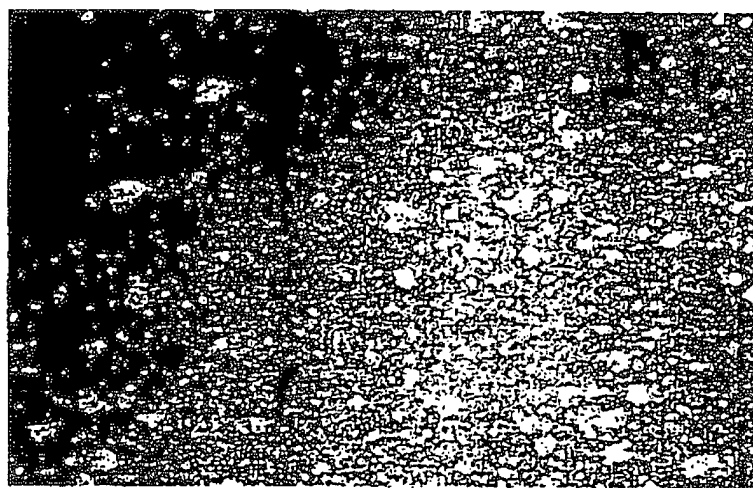
**Fig. 14**

200μm



200µm

**Fig. 15**



200µm

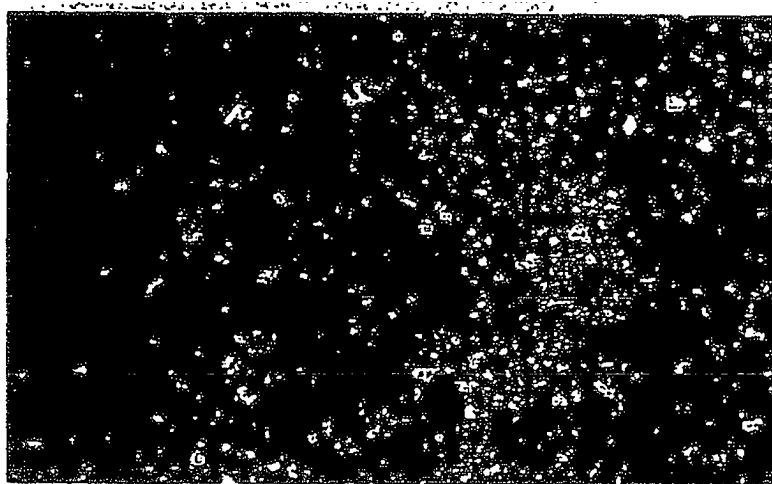
**Fig. 16**





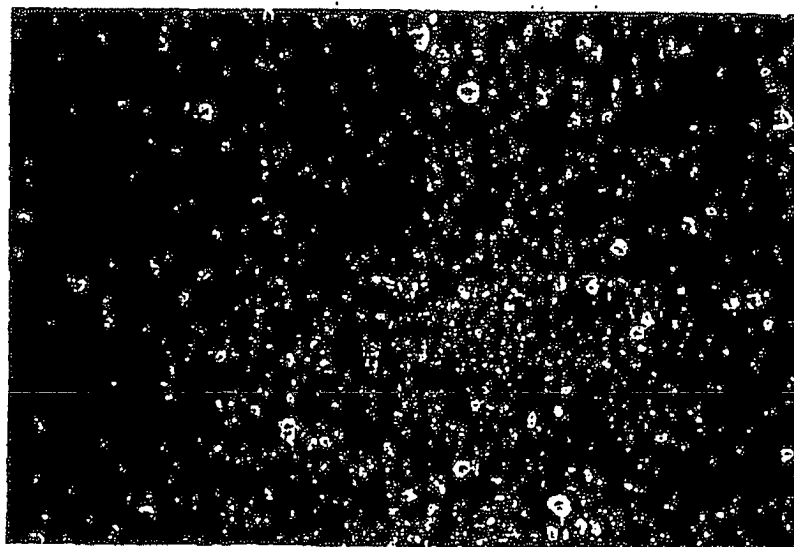
200μm

**Fig. 17**



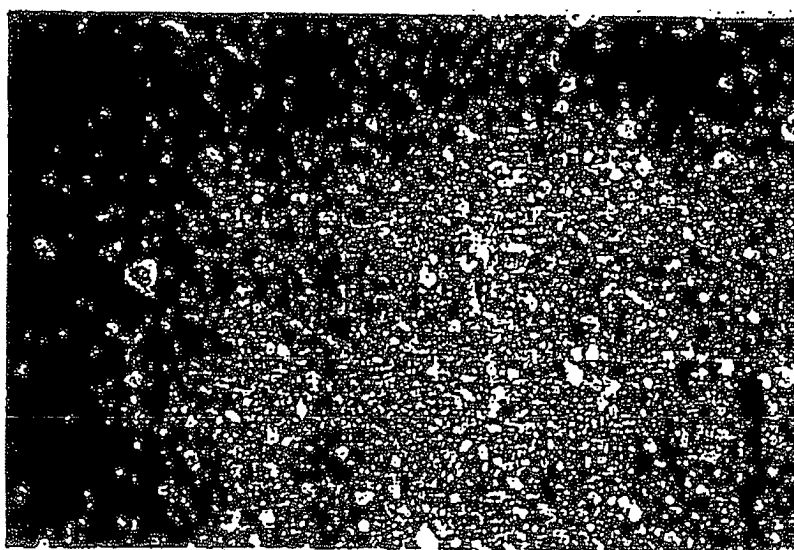
200μm

**Fig. 18**



**Fig. 19**

200µm



**Fig. 20**

200µm