(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号

特許第6721513号
(P6721513)

(45)発行日　令和2年7月15日(2020.7.15)　(24)登録日　令和2年6月22日(2020.6.22)

(51)Int.Cl.		F I		
B32B 27/32	(2006.01)	B32B	27/32	E
B29C 48/22	(2019.01)	B32B	27/32	103
B29K 23/00	(2006.01)	B29C	48/22	
B29L 9/00	(2006.01)	B29K	23:00	
		B29L	9:00	

請求項の数 16　(全 37 頁)

(21)出願番号　特願2016-553020(P2016-553020)
(86)(22)出願日　平成27年2月19日(2015.2.19)
(65)公表番号　特表2017-512672(P2017-512672A)
(43)公表日　平成29年5月25日(2017.5.25)
(86)国際出願番号　PCT/US2015/016607
(87)国際公開番号　WO2015/127071
(87)国際公開日　平成27年8月27日(2015.8.27)
審査請求日　平成30年2月6日(2018.2.6)
(31)優先権主張番号　PCT/CN2014/072265
(32)優先日　平成26年2月19日(2014.2.19)
(33)優先権主張国・地域又は機関
中国(CN)

(73)特許権者　502141050
ダウ　グローバル　テクノロジーズ　エルエルシー
アメリカ合衆国　ミシガン州　４８６７４，ミッドランド，エイチ　エイチ　ダウ　ウェイ　２２１１
２２１１H. H. Dow Way, Midland, MI 48674, U. S. A.
(74)代理人　100092783
弁理士　小林　浩
(74)代理人　100095360
弁理士　片山　英二
(74)代理人　100120134
弁理士　大森　規雄

最終頁に続く

(54)【発明の名称】多層フィルム、その製造方法及びそれを含む物品

(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
多層フィルムであって、
ポリエチレンを含む第１の層及びポリプロピレンを含む第２の層と、
連結層であって、結晶性ブロック複合体を含み、前記第１の層と前記第２の層との間に配設される前記連結層と、を備え、
前記ポリエチレンは、超低密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、高溶融強度高密度ポリエチレン、超高密度ポリエチレン、またはそれらの組み合わせから選択され、
前記第１の層が、前記連結層の第１の表面上に配設され、前記第２の層が、前記連結層の第２の表面上に配設され、前記第２の表面が、前記第１の表面に対向して配設され、前記結晶性ブロック複合体が、結晶性エチレン系ポリマーと、結晶性アルファ－オレフィン系ポリマーと、結晶性エチレンブロック及び結晶性アルファ－オレフィンブロックを含むブロックコポリマーとを含み、
２０～１３０マイクロメートルの全厚を有する、多層フィルム。
【請求項２】
前記結晶性ブロック複合体が、２３０℃及び２．１６キログラムにてＡＳＴＭ　Ｄ１２３８によって測定される場合、０．１～３０ｇ／１０分のメルトフローレートを有する、請求項１に記載の前記多層フィルム。
【請求項３】

前記結晶性ブロック複合体が、５～９５重量パーセントの結晶性エチレンブロック及び９５～５重量パーセントの結晶性アルファ－オレフィンブロックを含む、請求項１に記載の前記多層フィルム。

【請求項４】

前記結晶性ブロック複合体が、０．３～最大１．０の結晶性ブロック複合体指数を有する、請求項１に記載の前記多層フィルム。

【請求項５】

前記連結層が、エラストマーをさらに含み、前記エラストマーが、均一に分岐されたエチレン－α－オレフィンコポリマー、ポリオレフィンエラストマー、ビニル芳香族ブロックコポリマー、または前述のエラストマーのうちの少なくとも１つを含む組み合わせである、請求項１に記載の前記多層フィルム。

【請求項６】

前記連結層が、エラストマーをさらに含み、前記エラストマーが、均一に分岐されたエチレン－α－オレフィンコポリマー、ポリオレフィンエラストマー、ビニル芳香族ブロックコポリマー、または前述のエラストマーのうちの少なくとも１つを含む組み合わせである、請求項１に記載の前記多層フィルム。

【請求項７】

前記ポリプロピレンが、ランダムコポリマーポリプロピレン、インパクトコポリマーポリプロピレン、高インパクトポリプロピレン、高溶融強度ポリプロピレン、アイソタクチックポリプロピレン、シンジオタクチックポリプロピレン、または前述のポリプロピレンのうちの少なくとも１つを含む組み合わせからなる群から選択される、請求項１に記載の前記多層フィルム。

【請求項８】

前記多層フィルムの全厚に基づいて、前記第１の層が５～３０％の厚さを有し、前記連結層が１～２０％の厚さを有し、前記第２の層が５０～９４％の厚さを有する、請求項１に記載の前記多層フィルム。

【請求項９】

前記多層フィルムが、１０～２５０マイクロメートルの全フィルム厚を有する、請求項１に記載の前記多層フィルム。

【請求項１０】

前記多層フィルムが、３０μｍの全フィルム厚に対して３．５ｌｂ／インチ（９．２Ｎ／１５ｍｍ）超、５０μｍの全フィルム厚に対して５．７ｌｂ／インチ（１５Ｎ／１５ｍｍ）超、１２５μｍの全フィルム厚に対して１０ｌｂ／インチ（２６．３Ｎ／１５ｍｍ）超のプラトーヒートシール強度を有する、請求項１に記載の前記多層フィルム。

【請求項１１】

前記多層フィルムが、積層後、８ｌｂ／インチ（２１．０Ｎ／１５ｍｍ）超のプラトーシール強度を有する、請求項１に記載の前記多層フィルム。

【請求項１２】

前記多層フィルムが、１００℃以下のヒートシール開始温度を有する、請求項１に記載の前記多層フィルム。

【請求項１３】

前記多層フィルムが、ＡＳＴＭ　Ｄ１７４６によって試験した場合、８０％超の透明性、ＡＳＴＭ　Ｄ１００３によって試験した場合、３％未満のヘイズを有する、請求項１に記載の前記多層フィルム。

【請求項１４】

請求項１に記載の前記多層フィルムを備える、物品。

【請求項１５】

多層フィルムを製造する方法であって、

ポリエチレンを含む第１の層及びポリプロピレンを含む第２の層と、

連結層であって、結晶性ブロック複合体を含み、前記第１の層と前記第２の層との間

に配設される前記連結層と、を備え、
前記ポリエチレンは、超低密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、高溶融強度高密度ポリエチレン、超高密度ポリエチレン、またはそれらの組み合わせから選択され、
前記第１の層が、前記連結層の第１の表面上に配設され、前記第２の層が、前記連結層の第２の表面上に配設され、前記第２の表面が、前記第１の表面に対向して配設され、前記結晶性ブロック複合体が、結晶性エチレン系ポリマーと、結晶性アルファ－オレフィン系ポリマーと、結晶性エチレンブロック及び結晶性アルファ－オレフィンブロックを含むブロックコポリマーとを含み、２０～１３０マイクロメートルの全厚を有する、多層フィルムを共押出することと、
前記多層フィルムを吹き込み成形または流延することと、を含む、方法。
【請求項１６】
ロールミルまたはラミネーター内で前記多層フィルムを積層することをさらに含む、請求項１５に記載の前記方法。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
関連出願の相互参照
本出願は、その内容全体が、参照により本明細書に組み込まれる、２０１４年2月１９日に出願された国際出願第ＰＣＴ／ＣＮ２０１４／０７２２６５号に対する優先権を主張するものである。
【背景技術】
【０００２】
本開示は、多層フィルム、その製造方法、及びそれを含む物品に関する。
【０００３】
キャストポリプロピレン（ＣＰＰ）フィルムは、長年利用されている。原材料の価格及び新規の包装コンセプトはまた、軟質フィルムを使用する包装産業における良好な代替品としてＣＰＰフィルムを販売促進する際にも大きな影響を及ぼした。ＣＰＰフィルムは、概して、より低いヒートシール開始温度を促進するために、シーラント層として、ホモポリプロピレンよりも低い融解範囲を有するプロピレン系ポリマー、例えば、ランダムポリプロピレンコポリマー、またはプロピレン－エチレン－ブテンのターポリマーにより共押出される。しかしながら、このシール開始温度は、ランダムポリプロピレンコポリマーまたはターポリマー－ポリプロピレンに対しては高い。
【０００４】
一方、直鎖状低密度ポリエチレン（ＬＬＤＰＥ）、具体的には、メタロセン系ポリエチレンは、高いシール性能を提供する。しかしながら、ＰＰ層とＬＬＤＰＥ層との間の固有の不適合は、ＰＰ層とＬＬＤＰＥとの間の層間剥離を引き起こし、不良な接着及びシール強度をもたらす。したがって、層間剥離を生じない包装フィルムを有することが望ましい。
【発明の概要】
【０００５】
第１の層及び第２の層と、連結層であって、結晶性ブロック複合体を含み、該第１の層と該第２の層との間に配設される連結層と、を備え、該第１の層が、該連結層の第１の表面上に配設され、該第２の層が、該連結層の第２の表面上に配設され、該第２の表面が、該第１の表面に対向して配設され、該結晶性ブロック複合体が、結晶性エチレン系ポリマーと、結晶性アルファ－オレフィン系ポリマーと、結晶性エチレン系ポリマー及び結晶性アルファ－オレフィンブロックを含むブロックコポリマーとを含み、結晶性エチレン系ポリマーが、結晶性エチレン系ポリマーの総モル数に基づいて、少なくとも８０モルパーセントの量で存在する、多層フィルムが、本明細書に開示される。
【０００６】

第１の層及び第２の層と、連結層であって、結晶性ブロック複合体を含み、該第１の層と該第２の層との間に配設される連結層と、を備え、該第１の層が、該連結層の第１の表面上に配設され、該第２の層が、該連結層の第２の表面上に配設され、該第２の表面が、該第１の表面に対向して配設され、該結晶性ブロック複合体が、結晶性エチレン系ポリマーと、結晶性アルファ－オレフィン系ポリマーと、結晶性エチレンブロック及び結晶性アルファ－オレフィンブロックを含むブロックコポリマーとを含む、多層フィルムを共押出することと、多層フィルムを吹き込み成形または流延することと、を含む、多層フィルムを製造する方法も、本明細書に開示される。

【図面の簡単な説明】

【０００７】

【図１】多層フィルムの概略図である。

【図２】実施例１ならびに比較実施例Ａ、Ｂ、及びＣにおけるヒートシールの結果を示すグラフプロットである。

【発明を実施するための形態】

【０００８】

「組成物」及び同類用語は、他のポリマーとブレンドされる、または添加剤、充填剤などを含有するポリマーなどの２つ以上の材料の混合物を意味する。予備反応、反応、及び反応後混合物が組成物に含まれ、これらの後者は、反応生成物及び副産物、ならびに、もしあるなら、事前反応もしくは反応混合物の１つ以上の成分から形成された、反応混合物の未反応成分及び分解生成物を含むであろう。

【０００９】

「ブレンド」または「ポリマーブレンド」及び同類用語は、２つ以上のポリマーの組成物を意味する。このようなブレンドは、混和性であっても、または混和性でなくてもよい。このようなブレンドは、相分離されていても、または相分離されていなくともよい。このようなブレンドは、透過電子顕微鏡法、光散乱法、Ｘ線散乱法、及び当該技術分野において既知の任意の他の方法から決定される、１つ以上のドメイン構成を含有しても、または含有しなくともよい。ブレンドは、積層体ではないが、積層体の１つ以上の層が、ブレンドを含有してもよい。

【００１０】

「ポリマー」は、同一または異なるタイプであろうとなかろうと、モノマーを重合することによって調製される化合物を意味する。したがって、総称用語ポリマーは、通常、１つのタイプのみのモノマーから調製されるポリマーを指すように使用される用語ホモポリマー、及び以下に定義される用語インターポリマーを包含する。これはまた、インターポリマーの全ての形態、例えば、ランダム、ブロック等も包含する。用語「エチレン／α－オレフィンポリマー」及び「プロピレン／α－オレフィンポリマー」は、以下に記載されるインターポリマーを示す。ポリマーは、モノマー「からなる」、ある特定のモノマーもしくはモノマー型「に基づく」、ある特定のモノマー含有量「を含有する」等と頻繁に称されるが、これは、特定のモノマーの重合残物を指し、非重合種を指さないことが明らかに分かることが留意される。

【００１１】

「インターポリマー」は、少なくとも２つの異なるモノマーの重合によって調製されるポリマーを意味する。この総称用語は、通常、２つ以上の異なるコポリマーから調製されるポリマーを指すために使用される、コポリマーを含み、２超の異なるモノマーから調製されるポリマー、例えば、ターポリマー、テトラポリマー等を含む。

【００１２】

「ポリオレフィン」、「ポリオレフィンポリマー」、「ポリオレフィン樹脂」、及び同類用語は、モノマーとして試料オレフィン（一般式C_nH_{2n}を有するアルケンとも称される）から生成されるポリマーを意味する。ポリエチレンは、１つ以上のコモノマーの有無を問わず、エチレンを重合することによって調製され、ポリプロピレンは、１つ以上のコモノマーの有無を問わず、プロピレンを重合すること等によって調製される。したがっ

て、ポリオレフィンは、例えば、エチレン－α－オレフィンコポリマー、プロピレン－α－オレフィンコポリマーなどのインターポリマーを含む。

【００１３】

本明細書で使用される「融点」（プロットされたＤＳＣ曲線の形状に関連して融解ピークとも称される）は、通常、米国特許第５，７８３，６３８号に記載されるポリオレフィンの融点または融解ピークを測定するためのＤＳＣ（示差走査熱量測定）技術によって、測定される。２つ以上のポリオレフィンを含む多くのブレンドが、２つ以上の融点または融解ピークを有し、多くの個々のポリオレフィンが、１つだけの融点または融解ピークを含むことに留意するべきである。

【００１４】

用語「及び／または」は、「及び」ならびに「または」の双方を含む。例えば、用語Ａ及び／またはＢは、Ａ、Ｂ、またはＡ及びＢを意味すると解釈される。

【００１５】

増強された密封特性を有する多層結晶性ポリプロピレンフィルム構造が、本明細書に開示される。多層フィルム構造は、ポリエチレンを含む第１の外層または表面層、結晶性ブロック複合体を含む連結層、及びポリプロピレンを含む第２の層の３つの層を備える。第２の層は、連結層により第１の層に接着される。かかる多層フィルムは、ランダムコポリマーまたはポリプロピレンターポリマーと比較して、シーラント材として卓越したシール特性（例えば、ヒートシール性及びホットタック性）を有する。

【００１６】

多層フィルムは、良好なヒートシール強度、低ヒートシール開始温度、及び広範なホットタックウィンドウを示し、このことにより、多層フィルムは、食品を包装するのに有用である。この多層フィルムは、少なくとも３つの層を含み、それらのうちの１つは、結晶性ブロック複合体（ＣＢＣ）、任意にポリオレフィン系エラストマー、任意にポリプロピレン、及び任意にポリエチレンを含む連結層である。連結層は、ポリプロピレンを含む第１の層を、ポリプロピレンを含む第２の層（第１の層に対向して配設されている）に接着させるために用いられる。

【００１７】

ここで図１を参照すると、多層フィルム１００は、第１の層１０２（外層または表面層とも称される）と、連結層１０４と、第２の層１０６とを備える。連結層１０４は、互いに対向して配設されている、第１の表面１０３と、第２の表面１０５とを備える。第１の層１０２は、第１の表面１０３で連結層１０４に接し、一方第２の層１０６（第１の層１０２に対向して配設されている）は、第２の表面１０５で連結層１０４に接する。

【００１８】

上で述べたように、連結層１０４は、結晶性ブロック複合体（ＣＢＣ）、任意にポリオレフィン系エラストマー、任意にポリプロピレン、及び任意にポリエチレンを含む。

【００１９】

用語「結晶性ブロック複合体」（ＣＢＣ）は、３つの成分：結晶性エチレン系ポリマー（ＣＥＰ）（本明細書では、軟質ポリマーとも称される）、結晶性アルファ－オレフィン系ポリマー（ＣＡＯＰ）（本明細書では、硬質ポリマーとも称される）、及び結晶性エチレンブロック（ＣＥＢ）と結晶性アルファ－オレフィンブロック（ＣＡＯＢ）とを含むブロックコポリマーを有するポリマーを指し、ブロックコポリマーのＣＥＢは、ブロック複合体中のＣＥＰと同一組成であり、ブロックコポリマーのＣＡＯＢは、ブロック複合体のＣＡＯＰと同一組成である。さらに、ＣＥＰの量とＣＡＯＰの量の間の組成上の分割は、ブロックコポリマー中の対応ブロック間のものと本質的に同一であるだろう。連続プロセスで生成される場合、結晶性ブロック複合体は、望ましくは、１．７～１５、具体的には１．８～１０、具体的には１．８～５、より具体的には１．８～３．５の多分散指数（ＰＤＩ）を有する。このような結晶性ブロック複合体は、例えば、全てが２０１１年１２月２２日に公開された、米国特許出願公開第２０１１／０３１３１０６号、同第２０１１／０３１３１０８号、及び同第２０１１／０３１３１０８号に記載されており、これらは、

結晶性ブロック複合体、これらを製造するためのプロセス、及びこれらを分析する方法の記載に関して、参照により本明細書に組み込まれる。

【００２０】

結晶性エチレンポリマー（ＣＥＰ）（すなわち、軟質ブロック）は、任意のコモノマー含有量が、１０モル％以下、具体的には０モル％～１０モル％、より具体的には０モル％～７モル％、最も具体的には０モル％～５モル％である重合エチレン単位のブロックを含む。結晶性エチレンポリマーは、具体的には７５℃以上、具体的には９０℃以上、より具体的には１００℃以上である対応融点を有する。

【００２１】

結晶性アルファ－オレフィン系ポリマー（ＣＡＯＰ）は、モノマーが、結晶性アルファ－オレフィン系ポリマーの総重量に基づいて、８３モルパーセント超、具体的には８７モルパーセント超、より具体的には９０モルパーセント超、具体的には９５モルパーセント超の量で存在する、重合アルファオレフィン単位の高度に結晶性のブロックを含む。例示的な実施形態では、重合アルファオレフィン単位は、ポリプロピレンである。ＣＡＯＰ中のコモノマー含有量は、１７モルパーセント未満、具体的には１３モルパーセント未満、より具体的には１０モルパーセント未満、最も具体的には５モル％未満である。プロピレン結晶性を備えたＣＡＯＰは、８０℃以上、具体的には１００℃以上、より具体的には１１５℃以上、最も具体的には１２０℃以上である対応融点を有する。いくつかの実施形態では、ＣＡＯＰは、全てのまたは実質的に全てのプロピレン単位を含む。

【００２２】

ＣＡＯＰ中で用いられ得る他のアルファ－オレフィン単位の例（プロピレンに加えて）は、４～１０個の炭素原子を含有する。これらの例は、１－ブテン、１－ヘキセン、４－メチル－１－ペンテン、及び１－オクテンであり、最も好ましい。好ましいジオレフィンは、イソプレン、ブタジエン、１，４－ペンタジエン、１，４－ヘキサジエン、１，５－ヘキサジエン、１，７－オクタジエン、１，９－デカジエン、ジシクロペンタジエン、メチレン－ノルボルネン、５－エチリデン－２－ノルボルネン等、または前述のアルファ－オレフィン単位のうちの少なくとも１つを含む組み合わせである。

【００２３】

結晶性ブロック複合体のブロックコポリマーは、結晶性エチレンブロック（ＣＥＢ）及び結晶性アルファオレフィンブロック（ＣＡＯＢ）を含む。結晶性エチレンブロック（ＣＥＢ）では、エチレンモノマーは、ＣＥＢの総重量に基づいて、９０モル％超、具体的には９３モルパーセント超、より具体的には９５モルパーセント超、具体的には９０モルパーセント超の量で存在する。例示的な実施形態では、結晶性エチレンブロック（ＣＥＢ）ポリマーは、ポリエチレンである。ポリエチレンは、ＣＥＢの総重量に基づいて、９０モル％超、具体的には９３モルパーセント超、より具体的には９５モルパーセント超の量で存在する。任意のコモノマーがＣＥＢ中に存在する場合、ＣＥＢの総モル数に基づいて、１０モル％未満、具体的には５モル％未満の量で存在する。

【００２４】

ＣＡＯＢは、４～１０個の炭素原子を含有する他のアルファ－オレフィン単位により共重合されるポリプロピレンブロックを含む。他のアルファ－オレフィン単位の例を上に提供する。ポリプロピレンは、ＣＡＯＢの総モル数に基づいて、８３モル％以上、具体的には８７モル％超、より具体的には９０モル％超の量でＣＡＯＢ中に存在する。ＣＡＯＢ中のコモノマー含有量は、ＣＡＯＢにおける総モル数に基づいて、１７モルパーセント未満、具体的には１３モルパーセント未満、より具体的には１０モルパーセント未満である。プロピレン結晶性を備えたＣＡＯＢは、８０℃以上、具体的には１００℃以上、より具体的には１１５℃以上、最も具体的には１２０℃以上である対応融点を有する。いくつかの実施形態では、ＣＡＯＢは、全てのまたは実質的に全てのプロピレン単位を含む。

【００２５】

一実施形態では、結晶性ブロック複合体ポリマーは、プロピレン、１－ブテンまたは４－メチル－１－ペンテン、及び１つ以上のコモノマーを含む。具体的には、重合ブロック

複合体は、プロピレンならびにエチレン及び／または１つ以上のＣ$_{4-20}$α－オレフィンコモノマー、及び／または１つ以上の追加の共重合可能なコモノマーを重合形態で含み、または、これらは、４－メチル－１－ペンテンならびにエチレン及び／または１つ以上のＣ$_{4-20}$α－オレフィンコモノマーを含み、あるいは、これらは、１－ブテンならびにエチレン、プロピレン及び／または１つ以上のＣ$_{5}$－Ｃ$_{20}$α－オレフィンコモノマー及び／または１つ以上の追加の共重合可能なコモノマーを含む。追加の適切なコモノマーは、ジオレフィン、環状オレフィン、ならびに環状ジオレフィン、ハロゲン化ビニル化合物、及びビニリデン芳香族化合物から選択される。好ましくは、モノマーは、プロピレンであり、コモノマーはエチレンである。

【００２６】

結晶性ブロック複合体ポリマー中のコモノマー含有量は、任意の適切な技術を用いて測定されてもよく、この技術は、核磁気共鳴（ＮＭＲ）分光法に基づくことが好ましい。

【００２７】

結晶性ブロック複合体は、１００℃超、具体的には１２０℃超、より具体的には１２５℃超の融点Ｔｍを有する。一実施形態では、Ｔｍは、１００℃～２５０℃、より具体的には１２０℃～２２０℃の範囲、さらに具体的には１２５℃～２２０℃の範囲である。具体的には、ブロック複合体及び結晶性ブロック複合体のメルトフローレート（ＭＦＲ）は、０．１～１０００ｄｇ／分、より具体的には０．１～５０ｄｇ／分、より具体的には０．１～３０ｄｇ／分である。

【００２８】

一実施形態では、結晶性ロック複合体は、１０，０００～約２，５００，０００グラム毎モル（ｇ／モル）、具体的には３５０００～約１，０００，０００、より具体的には５０，０００～約３００，０００、具体的には５０，０００～約２００，０００ｇ／モルの重量平均分子量（Ｍｗ）を有する。軟質コポリマー、硬質ポリマー、及びブロックコポリマーの重量パーセントの和は、１００％に等しい。

【００２９】

一実施形態では、本発明の結晶性ブロック複合体ポリマーは、０．５～９５重量％のＣＥＰ、０．５～９５重量％のＣＡＯＰ、及び５～９９重量％のブロックコポリマーを含む。より好ましくは、結晶性ブロック複合体ポリマーは、０．５～７９重量％のＣＥＰ、０．５～７９重量％のＣＡＯＰ、及び２０～９９重量％のブロックコポリマーを含み、より好ましくは、０．５～４９重量％のＣＥＰ、０．５～４９重量％のＣＡＯＰ、及び５０～９９重量％のブロックコポリマーを含む。重量パーセントは、結晶性ブロック複合体の総重量に基づいている。ＣＥＰ、ＣＡＯＰ、及びブロックコポリマーの重量パーセントの和は、１００％に等しい。

【００３０】

好ましくは、本発明のブロックコポリマーは、５～９５重量パーセントの結晶性エチレンブロック（ＣＥＢ）と、９５～５重量％の結晶性アルファ－オレフィンブロック（ＣＡＯＢ）とを含む。これらは、１０重量％～９０重量％のＣＥＢと、９０重量％～１０重量％のＣＡＯＢを含んでもよい。より好ましくは、ブロックコポリマーは、２５重量％～７５重量％のＣＥＢと、７５重量％～２５重量％のＣＡＯＢとを含み、さらにより好ましくは、これらは、３０重量％～７０重量％のＣＥＢと、７０重量％～３０重量％のＣＡＯＢとを含む。

【００３１】

いくつかの実施形態では、結晶性ブロック複合体は、０超であるが約０．４未満であるか、または０．１～０．３である結晶性ブロック複合体指数（ＣＢＣＩ）を有する。他の実施形態では、ＣＢＣＩは、０．４超かつ最大１．０である。いくつかの実施形態では、ＣＢＣＩは、０．１～０．９、約０．１～約０．８、約０．１～約０．７、または約０．１～約０．６である。さらに、ＣＢＣＩは、約０．４～約０．７、約０．５～約０．７、または約０．６～約０．９の範囲であり得る。いくつかの実施形態では、ＣＢＣＩは、約０．３～約０．９、約０．３～約０．８、約０．３～約０．７、約０．３～約０．６、約

０．３～約０．５、または約０．３～約０．４の範囲である。他の実施形態では、ＣＢＣＩは、約０．４～最大約１．０、約０．５～最大約１．０、約０．６～最大約１．０、約０．７～最大約１．０、約０．８～最大約１．０、または約０．９～最大約１．０の範囲である。

【００３２】

結晶性ブロック複合体は、連結層１０４の総重量に基づいて、３０～１００重量パーセント（重量％）、具体的には４０～１００重量％、より具体的には５０～１００重量％の量で存在する。

【００３３】

連結層１０４はまた、結晶性ブロック複合体（ＣＢＣ）に加えて、任意のエラストマーを含んでもよい。任意のエラストマーは、エチレン－α－オレフィンコポリマー（既に上記で詳説されている）、均一に分岐されたエチレン－α－オレフィンコポリマー、ポリオレフィンエラストマー（例えば、プロピレン系エラストマー）、ビニル芳香族ブロックコポリマー等、または前述のエラストマーのうちの少なくとも１つを含む組み合わせであり得る。

【００３４】

ポリオレフィンエラストマーはまた、ランダムまたはブロックプロピレンポリマー（すなわち、ポリプロピレン）を含んでもよい。ランダムポリプロピレンエラストマーは、通常、９０モルパーセント以上のプロピレン由来の単位を含む。プロピレンコポリマー中の残りの単位は、少なくとも１つのα－オレフィンの単位に由来する。

【００３５】

プロピレンコポリマーのα－オレフィン成分は、好ましくは、エチレン（本発明の目的上、α－オレフィンと見なされる）またはC_{4-20}直鎖状、分岐鎖状または環状α－オレフィンである。C_{4-20}α－オレフィンの例としては、１－ブテン、４－メチル－１－ペンテン、１－ヘキセン、１－オクテン、１－デセン、１－ドデセン、１－テトラデセン、１－ヘキサデセン、及び１－オクタデセンが含まれる。α－オレフィンはまた、３－シクロヘキシル－１－プロペン（アリルシクロヘキサン）及びビニルシクロヘキサン等のα－オレフィンをもたらす、シクロヘキサンまたはシクロペンタン等の環状構造を含有することができる。用語の従来の意味のα－オレフィンではないが、ノルボルネン及び関連するオレフィン、特に５－エチリデン－２－ノルボルネン等の特定の環状オレフィンは、α－オレフィンであり、上述のα－オレフィンの一部または全てに代えて用いられ得る。同様に、スチレン及びその関連するオレフィン（例えば、α－メチルスチレン等）は、本発明の目的上、α－オレフィンである。例示的なランダムプロピレンコポリマーとしては、プロピレン／エチレン、プロピレン／１－ブテン、プロピレン／１－ヘキセン、プロピレン／１－オクテン等が含まれるが、これらに限定されない。例示的なターポリマーとしては、エチレン／プロピレン／１－オクテン、エチレン／プロピレン／１－ブテン、及びエチレン／プロピレン／ジエンモノマー（ＥＰＤＭ）が含まれる。

【００３６】

一実施形態では、ランダムポリプロピレンコポリマーは、１２０℃超のT_m、及び／または７０Ｊ／ｇ超の融解熱を有し（双方ともにＤＳＣにより測定）、好ましくは、チーグラー・ナッタ触媒を介して行われるが、これは必ずしもそうとは限らない。

【００３７】

別の実施形態では、ポリオレフィンエラストマーは、プロピレン－α－オレフィンインターポリマーであり、実質的にアイソタクチックプロピレン連鎖部を有すると特徴付けられる。プロピレン－α－オレフィンインターポリマーとしては、プロピレン系エラストマー（ＰＢＥ）が含まれる。「実質的にアイソタクチックプロピレン連鎖部」とは、この連鎖部が、０．８５超の、選択肢として０．９０超の、別の選択肢として０．９２超の、別の選択肢として０．９３超の、^{13}C　ＮＭＲによって測定されるアイソタクチックトライアド（ｍｍ）を有することを意味する。アイソタクチックトライアドは、当該技術分野において周知であり、例えば、米国特許第５，５０４，１７２号及び国際公開第ＷＯ００

／０１７４５号に記載されており、これらは、^{13}Ｃ　ＮＭＲスペクトルによって決定されるコポリマー分子鎖中のトライアド単位に関してアイソタクチック連鎖に言及する。

【００３８】

プロピレン－α－オレフィンコポリマーは、プロピレン由来の単位と、１つ以上のα－オレフィンコモノマーに由来のポリマー単位とを含む。プロピレン－α－オレフィンコポリマーを製造するための利用される例示のコモノマーは、$Ｃ_2$及び$Ｃ_4$～$Ｃ_{10}$α－オレフィン、例えば、$Ｃ_2$、$Ｃ_4$、$Ｃ_6$、及び$Ｃ_8$α－オレフィンである。

【００３９】

プロピレン－α－オレフィンインターポリマーは、１～４０重量パーセントの１つ以上のアルファ－オレフィンコモノマーを含む。プロピレン－α－オレフィンインターポリマーは、ＡＳＴＭ　Ｄ－１２３８（２３０℃／２．１６Ｋｇにおいて）に従って測定された０．１～５００グラム毎１０分（ｇ／１０分）の範囲のメルトフローレートを有してもよい。プロピレン－α－オレフィンインターポリマーは、少なくとも１重量パーセント（少なくとも２ジュール／グラム（Ｊ／ｇ）の融解熱（$Ｈ_f$））から３０重量パーセント（５０Ｊ／ｇ未満の$Ｈ_f$）までの範囲の結晶化度を有する。プロピレン－α－オレフィンインターポリマーは、通常、０．８９５ｇ／$ｃｍ^3$未満の密度を有する。プロピレン－α－オレフィンインターポリマーは、米国特許第７，１９９，２０３号に記載される示差走査熱量測定（ＤＳＣ）によって測定される、１２０℃未満の融解温度（$Ｔ_m$）及び７０ジュール毎グラム（Ｊ／ｇ）未満の融解熱（$Ｈ_f$）を有する。プロピレン－α－オレフィンインターポリマーは、３．５以下、もしくは３．０以下、または１．８～３．０の、数平均分子量で割られた重量平均分子量（Ｍｗ／Ｍｎ）として定義される分子量分布を有する。

【００４０】

このようなプロピレン－α－オレフィンインターポリマーは、米国特許第６，９６０，６３５号及び同第６，５２５，１５７号にさらに記載されており、これらの内容全体は、参照により本明細書に組み込まれる。このようなプロピレン－α－オレフィンインターポリマーは、商品名ＶＥＲＳＩＦＹ（商標）でＴｈｅ　Ｄｏｗ　Ｃｈｅｍｉｃａｌ　Ｃｏｍｐａｎｙから、または商品名ＶＩＳＴＡＭＡＸＸ（商標）でＥｘｘｏｎＭｏｂｉｌ　Ｃｈｅｍｉｃａｌ　Ｃｏｍｐａｎｙから市販されている。

【００４１】

連結層１０４はまた、均一に分岐されたエチレン－α－オレフィンコポリマーを任意に含んでもよい。これらのコポリマーは、エラストマーであり、メタロセン触媒または拘束幾何触媒などのシングルサイト触媒を用いて製造することができ、通常、１０５℃未満、具体的には９０℃未満、より具体的には８５℃未満、さらにより具体的には８０℃未満、なおより具体的には７５℃未満の融点を有する。融点は、例えば、米国特許第５，７８３，６３８号に記載される示差走査熱量測定法（ＤＳＣ）によって測定される。α－オレフィンは、$Ｃ_{3-20}$の直鎖状、分岐鎖状、または環状α－オレフィンが好ましい。$Ｃ_{3-20}$のα－オレフィンの例としては、プロペン、１－ブテン、４－メチル－１－ペンテン、１－ヘキセン、１－オクテン、１－デセン、１－ドデセン、１－テトラデセン、１－ヘキサデセン、及び１－オクタデセンが含まれる。α－オレフィンはまた、３－シクロヘキシル－１－プロペン（アリルシクロヘキサン）及びビニルシクロヘキサン等のα－オレフィンをもたらす、シクロヘキサンまたはシクロペンタン等の環状構造を含有することができる。

【００４２】

例示的な均一に分岐したエチレン－α－オレフィンコポリマーとしては、エチレン／プロピレン、エチレン／ブテン、エチレン／１－ヘキセン、エチレン／１－オクテン、エチレン／スチレン等が含まれる。例示的なターポリマーとしては、エチレン／プロピレン／１－オクテン、エチレン／プロピレン／ブテン、エチレン／ブテン／１－オクテン、及びエチレン／ブテン／スチレンが含まれる。コポリマーは、ランダムコポリマーまたはブロックコポリマーであり得る。

【００４３】

連結層１０４において有用な、市販の均一に分岐したエチレン－α－オレフィンインターポリマーの例としては、均一に分岐した、直鎖状エチレン－α－オレフィンコポリマー（例えば、Ｍｉｔｓｕｉ Ｐｅｔｒｏｃｈｅｍｉｃａｌｓ Ｃｏｍｐａｎｙ ＬｉｍｉｔｅｄによるＴＡＦＭＥＲ（登録商標）ならびにＥｘｘｏｎ Ｃｈｅｍｉｃａｌ Ｃｏｍｐａｎｙによる ＥＸＡＣＴ（登録商標））、及び均一に分岐した、実質的に直鎖状のエチレン－α－オレフィンポリマー（例えば、Ｔｈｅ Ｄｏｗ Ｃｈｅｍｉｃａｌ Ｃｏｍｐａｎｙから入手可能なＡＦＦＩＮＩＴＹ（商標）及びＥＮＧＡＧＥ（商標））が含まれる。連結層１０４において用いられ得る例示的なエチレン－α－オレフィンコポリマーは、Ｔｈｅ Ｄｏｗ Ｃｈｅｍｉｃａｌ Ｃｏｍｐａｎｙから市販されているＡＦＦＩＮＩＴＹ ＥＧ ８１００Ｇである。

【００４４】

用語ビニル芳香族ブロックコポリマーは、少なくとも１つの飽和または不飽和のエラストマーモノマーセグメントと組み合されたビニル芳香族モノマーの少なくとも１つのブロックセグメントを有するポリマーで、より好ましくは、エラストマー系でもビニル芳香族でもないポリマーのブロックを有さないポリマーを意味する。ビニル芳香族ブロックコポリマーの例は、「スチレンブロックコポリマーまたはスチレン系ブロックコポリマー」である。用語「スチレンブロックコポリマー」または「スチレン系ブロックコポリマー」は、少なくとも１つの飽和または不飽和のエラストマー（ゴム）モノマーセグメントと組み合されたスチレンモノマーの少なくとも１つのブロックセグメントを有するポリマーで、より好ましくは、ゴムまたはスチレン系のいずれでもないポリマーのブロックを有さないポリマーを意味する。不飽和ゴムモノマー単位を有する好適なスチレンブロックコポリマーとしては、スチレン－ブタジエン（ＳＢ）、スチレン－イソプレン（ＳＩ）、スチレン－ブタジエン－スチレン（ＳＢＳ）、スチレン－イソプレン－スチレン（ＳＩＳ）、α－メチルスチレン－ブタジエン－α－メチルスチレン、α－メチルスチレン－イソプレン－α－メチルスチレン等が含まれる。

【００４５】

用語「スチレンブタジエンブロックコポリマー」は、ＳＢ、ＳＢＳ、及びスチレン（Ｓ）ならびにブタジエン（Ｂ）のより大きい数のブロックを含めて、本明細書で使用される。同様に、用語「スチレンイソプレンブロックコポリマー」は、スチレンの少なくとも１つのブロックとイソプレン（Ｉ）の１つのブロックを有するポリマーを含めて使用される。スチレンブロックコポリマーの構造は、直線状もしくは放射状型のもの、ジブロックのもの、トリブロックのもの、またはより高次のブロック型のものであり得る。いくつかの実施形態では、少なくとも４つの異なるブロックまたは一対の２つの繰り返しブロック、例えば、繰り返しスチレン／ブタジエンもしくはスチレン／エチレンプロピレンブロックを有するスチレンブロックコポリマーが望ましい。スチレンブロックコポリマーは、商品名ＶＥＣＴＯＲ（登録商標）でＤｅｘｃｏ Ｐｏｌｙｍｅｒｓから、商品名ＫＲＡＴＯＮ（商標）でＫＲＡＴＯＮ Ｐｏｌｙｍｅｒｓから、商品名ＳＯＬＰＲＥＮＥ（商標）ならびにＫ－ＲｅｓｉｎでＣｈｅｖｒｏｎ Ｐｈｉｌｌｉｐｓ Ｃｈｅｍｉｃａｌ Ｃｏ．から、及び商品名ＳＴＹＲＯＬＵＸ（商標）でＢＡＳＦ Ｃｏｒｐ．から市販されている。スチレンブロックコポリマーは、必要に応じて、単独で、または２つ以上の組み合わせで用いられる。

【００４６】

ブロックコポリマーのスチレン系部分は、好ましくは、α－メチルスチレン、及び環置換スチレン、特に環メチル化スチレンを含む、スチレンまたはその類似体もしくは同族体のポリマーまたはインターポリマーである。好ましいスチレン系部分は、スチレン及びα－メチルスチレンであり、スチレンが特に好ましい。

【００４７】

スチレン系ブロックコポリマーのエラストマー部分は、必要に応じて、不飽和であるか、または飽和のいずれかである。不飽和エラストマーモノマー単位を有するブロックコポリマーは、ブタジエンまたはイソプレンのホモポリマー及びこれらの２つのジエンのうち

の一方または双方と微量のスチレンモノマーとのコポリマーを含んでもよい。使用されるモノマーがブタジエンである場合、ブタジエンポリマーブロック中の縮合ブタジエン単位の約３５～約５５モルパーセントが、１，２－配置を有する。このようなブロックが水素化される場合、得られる生成物は、エチレンと１－ブテンとの規則性コポリマーブロック（ＥＢ）であるか、またはこれに似ている。使用される共役ジエンがイソプレンである場合、得られる水素化生成物は、エチレンとプロピレンとの規則性コポリマーブロック（ＥＰ）であるか、これに似ている。好ましいブロックコポリマーは、不飽和エラストマーモノマー単位を有し、スチレン単位の少なくとも１つのセグメントと、ブタジエンまたはイソプレンの少なくとも１つのセグメントを含むことがより好ましく、ＳＢＳ及びＳＩＳが最も好ましい。このうち、ＳＩＳが最も好ましく、なぜなら、これがポリプロピレンを組成物中の他のポリマーと相溶化するのに特に有効であることが認められているためである。さらに、ＳＢＳと比べて、製造中にゲルを形成する架橋する傾向が低いために、これが好ましい。スチレンブタジエンブロックコポリマーは、フィルムのより高い透明度及びより低いヘイズが有利である場合に、キャストテンターラインがフィルム製造で用いられるときに、代替的に好ましい。

【００４８】

エラストマースチレンブロックコポリマーは、強靭性と、ブロックコポリマーの不在下で得られるよりも低い剛性とを提供する。エラストマーの挙動は、ＡＳＴＭ　Ｄ４１２及び／またはＡＳＴＭ　Ｄ８８２の手順により測定される、有利には、少なくとも約２００、具体的には少なくとも約２２０、より具体的には少なくとも約２４０、最も具体的には少なくとも約２６０、具体的には最大限でも約２０００、より具体的には最大限でも約１７００、最も具体的には最大限でも１５００パーセントの切断点引張伸びパーセントの特性によって示される。工業的には、大部分のこのタイプのポリマーは、１０～８０重量％のスチレンを含有する。ポリマーの特定のタイプ及び形態の範囲内で、スチレン含有量が増加すると、ブロックコポリマーのエラストマーの性質が減少する。

【００４９】

ブロックコポリマーは、少なくとも約２、具体的には少なくとも約４グラム毎１０分（ｇ／１０分）、具体的には２０ｇ／１０分、より具体的には３０ｇ／１０分のメルトフローレート（ＭＦＲ）を有することが望ましい。ＭＦＲは、ＡＳＴＭ法Ｄ１２３８の条件Ｇに従って測定する。

【００５０】

好ましいスチレンブロックコポリマーとしては、スチレン－イソプレン－スチレンブロックコポリマー（「ＳＩＳ」）、スチレン－ブタジエン－スチレンブロックコポリマー（「ＳＢＳ」）、スチレン－エチレン－プロピレンブロックコポリマー（「ＳＥＰ」）、及びスチレン－（エチレンブチレン）－スチレンブロックコポリマー（「ＳＥＢＳ」）（例えば、商品名ＫＲＡＴＯＮ（商標）１６５７で、Ｋｒａｔｏｎ　Ｐｏｌｙｍｅｒｓ　ＬＬＣから市販されているＳＥＢＳ）等の水素化スチレンスチレン系ブロックコポリマーが含まれる。好ましくは、連結層で用いられるスチレンブロックコポリマーは、ＳＢＳである。

【００５１】

一実施形態では、スチレンブタジエンブロックコポリマーは、コアにポリブタジエンを、及びアームの先端にポリスチレンを有して、放射状または星型ブロック構成を有する。このようなポリマーは、本明細書では星型スチレンブタジエンブロックコポリマーと称され、当業者が備えている技術の範囲内にあり、商品名Ｋ－ＲｅｓｉｎでＣｈｅｖｒｏｎ　Ｐｈｉｌｌｉｐｓ　Ｃｈｅｍｉｃａｌ　Ｃｏ．から市販されている。これらのポリマーは、約２７％のブタジエンまたはそれ以上を星型ブロック形態中に含有し、多くの場合、ポリスチレンの二モード分子量分布を特徴付ける。内部ポリブタジエンセグメントは、ほぼ同一の分子量のものであるが、外部ポリスチレンセグメントは、異なる分子量のものである。この特徴は、改善された透明度を得るために、ポリブタジエンセグメント厚の制御を容易にする。高透明度のために、ポリブタジエンセグメント厚は、可視スペクトルの約１

０分の１波長以下が好ましい。

【００５２】

エチレン－α－オレフィンコポリマーは、ポリエチレンを有するものとして記述されており、再度詳説されない。ポリプロピレンは、層１０６を参照して、以下に詳説される。

【００５３】

エラストマーが用いられる場合、これは、連結層１０４の総重量に基づいて、最大５０重量％、具体的には５～４０重量％の量で存在する。

【００５４】

連結層１０４は、任意選択的に、ポリエチレンまたはポリプロピレンを含んでもよい。任意選択のポリエチレンは、超低密度ポリエチレン（ＵＬＤＰＥ）、低密度ポリエチレン（ＬＤＰＥ）、直鎖状低密度ポリエチレン（ＬＬＤＰＥ）、中密度ポリエチレン（ＭＤＰＥ）、高密度ポリエチレン（ＨＤＰＥ）、高溶融強度高密度ポリエチレン（ＨＭＳ－ＨＤＰＥ）、超高密度ポリエチレン（ＵＨＤＰＥ）、またはこれらの組み合わせから選択される。

【００５５】

任意選択のポリエチレン及び／または任意選択のポリプロピレンは、連結層１０４の総重量に基づいて、最大５０重量％、具体的には１０～３０重量％の量で連結層１０４に存在する。

【００５６】

連結層１０４は、多層フィルムの総厚の１～２０％、具体的には２～１５％、より具体的には３～１０％の厚さを有する。

【００５７】

第１の層１０２（外層または表面層とも称される）は、ポリエチレンを含む。ポリエチレンは、超低密度ポリエチレン（ＵＬＤＰＥ）、低密度ポリエチレン（ＬＤＰＥ）、直鎖状低密度ポリエチレン（ＬＬＤＰＥ）、中密度ポリエチレン（ＭＤＰＥ）、高密度ポリエチレン（ＨＤＰＥ）、高溶融強度高密度ポリエチレン（ＨＭＳ－ＨＤＰＥ）、超高密度ポリエチレン（ＵＨＤＰＥ）、またはこれらの組み合わせから選択される。

【００５８】

例示の実施形態では、第１の層１０２は、直鎖状低密度ポリエチレン（ＬＬＤＰＥ）を含む。ＬＩＤＰＥは、エチレン及び３～１２個の炭素原子、具体的には４～８個の炭素原子を有するα－オレフィン（例えば、プロペン、１－ブテン、４－メチル－１－ペンテン、１－ヘキセン、１－オクテン、１－デセン等）のコポリマー（インターポリマーとも称される）であり、コポリマーの密度をＬＤＰＥの密度まで低減するのに十分なα－オレフィン含有量を有するものである。用語「ＬＬＤＰＥ」は、従来のチーグラー・ナッタ触媒系を用いて製造される樹脂ならびにメタロセン等のシングルサイト触媒を用いて製造される樹脂（「ｍ－ＬＬＤＰＥ」と称されることもある）の両方を含む。ＬＬＤＰＥは、ＬＤＰＥと比べて長鎖分岐をほとんど含有せず、実質的に直鎖状のエチレンポリマー（米国特許第５，２７２，２３６号、米国特許第５，２７８，２７２号、米国特許第５，５８２，９２３号、及び米国特許第５，７３３，１５５号にさらに明確にされる）、米国特許第３，６４５，９９２号のもの等の均一に分岐した直鎖状エチレンポリマー組成物、米国特許第４，０７６，６９８号に開示されるプロセスにより調製されるもの等の不均一に分岐したエチレンポリマー、及び／またはこれらのブレンド（米国特許第３，９１４，３４２号または米国特許５，８５４，０４５号に開示されるもの等）を含む。ＬＬＤＰＥは、気相重合、溶相重合、スラリー重合、またはこれらの組み合わせ等の任意のプロセスによって作成され得る。

【００５９】

一実施形態では、第１の層１０２で用いられるＬＬＤＰＥは、ＡＳＴＭ　Ｄ１２３８により、１９０℃及び２．１６ｋｇで測定される場合、０．２５～２０ｇ／１０分のメルトインデックスI_2と、０．９３０グラム毎平方センチメートル未満の密度（ＡＳＴＭ　Ｄ７９２により測定）と、を有する直鎖状低密度ポリエチレンを含む。外層１０２で用いる

ための例示のＬＬＤＰＥは、ＥＬＩＴＥ（商標）６１１１であり、これは、３．７ｇ／１０分のメルトインデックス（ＡＳＴＭ　Ｄ１２３８により、１９０℃及び２．１６ｋｇで測定）、０．９１２ｇ／ｃｃの密度（ＡＳＴＭ　Ｄ７９２により測定）、及びＴｈｅ　Ｄｏｗ　Ｃｈｅｍｉｃａｌ　Ｃｏｍｐａｎｙから市販されているエチレン－オクテンコポリマーである。外層１０２及び１１０で用いることができる他の例示のＬＬＤＰＥは、ＤＯＷＬＥＸ（商標）ポリエチレン樹脂、ＥＬＩＴＥ（商標）ならびにＥＬＩＴＥ（商標）ＡＴブランドエンハンスドポリエチレン樹脂（全てが、Ｔｈｅ　Ｄｏｗ　Ｃｈｅｍｉｃａｌ　Ｃｏｍｐａｎｙから入手可能）、及びＥｘｘｏｎＭｏｂｉｌ　Ｃｈｅｍｉｃａｌ　Ｃｏｍｐａｎｙから入手可能なＥｘｃｅｅｄ（商標）メタロセンポリエチレン等の直鎖状エチレン系ポリマーである。

【００６０】

外層で用いるための別の例示のポリエチレンは、均一に分岐したエチレン－α－オレフィンコポリマーである。これらのコポリマーは、メタロセン触媒または拘束幾何触媒などのシングルサイト触媒を用いて作成することができ、通常、１０５℃未満、具体的には９０℃未満、より具体的には８５℃未満、さらにより具体的には８０℃未満、なおより具体的には７５℃未満の融点を有する。融点は、例えば、米国特許第５，７８３，６３８号に記載される示差走査熱量測定法（ＤＳＣ）によって測定される。α－オレフィンは、$C_{3\sim20}$の直鎖状、分岐鎖状、または環状α－オレフィンが好ましい。$C_{3\sim20}$のα－オレフィンの例としては、プロペン、１－ブテン、４－メチル－１－ペンテン、１－ヘキセン、１－オクテン、１－デセン、１－ドデセン、１－テトラデセン、１－ヘキサデセン、及び１－オクタデセンが含まれる。α－オレフィンはまた、３－シクロヘキシル－１－プロペン（アリルシクロヘキサン）及びビニルシクロヘキサン等のα－オレフィンをもたらす、シクロヘキサンまたはシクロペンタン等の環状構造を含有することができる。

【００６１】

例示的な均一に分岐したエチレン－α－オレフィンコポリマーとしては、エチレン／プロピレン、エチレン／ブテン、エチレン／１－ヘキセン、エチレン／１－オクテン、エチレン／スチレン等が含まれる。例示的なターポリマーとしては、エチレン／プロピレン／１－オクテン、エチレン／プロピレン／ブテン、エチレン／ブテン／１－オクテン、及びエチレン／ブテン／スチレンが含まれる。コポリマーは、ランダムコポリマーまたはブロックコポリマーであり得る。

【００６２】

外層１０２において有用な、市販の均一に分岐したエチレン－α－オレフィンインターポリマーの例としては、均一に分岐した、直鎖状エチレン－α－オレフィンコポリマー（例えば、Ｍｉｔｓｕｉ　Ｐｅｔｒｏｃｈｅｍｉｃａｌｓ　Ｃｏｍｐａｎｙ　ＬｉｍｉｔｅｄによるＴＡＦＭＥＲ（商標）ならびにＥｘｘｏｎ　Ｃｈｅｍｉｃａｌ　ＣｏｍｐａｎｙによるＥＸＡＣＴ（登録商標））、及び均一に分岐した、実質的に直鎖状のエチレン－α－オレフィンポリマー（例えば、Ｔｈｅ　Ｄｏｗ　Ｃｈｅｍｉｃａｌ　Ｃｏｍｐａｎｙから入手可能なＡＦＦＩＮＩＴＹ（商標）及びＥＮＧＡＧＥ（商標））が含まれる。これらのインターポリマーのいずれかまたはそれらの組み合わせもまた、第１の層１０２において用いることができる。例示のインターポリマーは、Ｔｈｅ　Ｄｏｗ　Ｃｈｅｍｉｃａｌ　Ｃｏｍｐａｎｙから市販されているＡＦＦＩＮＩＴＹ　ＰＬ１８５０Ｇである。

【００６３】

プロピレン－α－オレフィンインターポリマーも、好ましい融点９０～１４５℃を備えて、第１の層１０２（シーラント層）として用いることができる。

【００６４】

第１の層１０２は、多層フィルムの総厚の５～３０％、具体的には１０～３０％、より具体的には１５～２５％の厚さを有する。

【００６５】

第２の層１０６（基層１０６とも称される）は、ポリプロピレンを含む。このポリプロピレンは、ランダムコポリマーポリプロピレン（ｒｃＰＰ、インパクトコポリマーポリプ

ロピレン（ｈＰＰ＋少なくとも１つのエラストマー衝撃改質剤）（ＩＣＰＰ）、または高インパクトポリマーポリプロピレン（ＨＩＰＰ）、高溶融強度ポリプロピレン（ＨＭＳ－ＰＰ）、アイソスタチックポリプロピレン（ｉＰＰ）、シンジオタクチックポリプロピレン（ｓＰＰ）、または前述のポリプロピレンのうちの少なくとも１つの組み合わせから選択される。

【００６６】

このポリプロピレンは、一般的に、ホモポリマーポリプロピレンのアイソスタチック型であるが、他の型のポリプロピレン（例えば、シンジオタクチックまたはアタクチック）も用いることができる。しかしながら、プロピレンコポリマー（例えば、エチレンをプロピレンと反応させる第２の共重合ステップが使用されるもの）及びランダムコポリマー（さらに反応器が改質され、通常、１．５～７％の、プロピレンと共重合されたエチレンコポリマーを含有する）が、層１０６で使用することもできる。種々のポリプロピレンポリマーの完全な論議が、Ｍｏｄｅｒｎ　Ｐｌａｓｔｉｃｓ　Ｅｎｃｙｃｌｏｐｅｄｉａ／８９，ｍｉｄ　Ｏｃｔｏｂｅｒ　１９８８　Ｉｓｓｕｅ，Ｖｏｌｕｍｅ　６５，Ｎｕｍｂｅｒ　１１，ｐｐ．８６－９２に含まれ、この開示は、参照により本明細書に組み込まれる。本発明で使用するためのポリプロピレンの分子量、したがってメルトフローレートは、用途に応じて変化する。本明細書で有用なポリプロピレンについてのメルトフローレートは、一般的に、約０．１グラム／１０分（ｇ／１０分、ＡＳＴＭ　Ｄ１２３８により、２３０℃及び２．１６ｋｇで測定）～約１００ｇ／１０分、具体的には０．５ｇ／１０分～約８０ｇ／１０分、具体的には４ｇ／１０分～約７０ｇ／１０分である。このプロピレンポリマーは、ポリプロピレンホモポリマーであり得、またはこれは、ランダムコポリマーもしくはさらにインパクトコポリマー（これは、既にゴム相を含む）であり得る。このポリプロピレンは、チーグラー・ナッタまたはメタロセン触媒を用いることによって生成されてもよい。このようなプロピレンポリマーの例には、ＥｘｘｏｎＭｏｂｉｌ（商標）ｈＰＰ　４７１２Ｅ１（Ｅｘｘｏｎ　Ｍｏｂｉｌ製）、ｈＰＰ　Ｈ０３Ｇ－０５（Ｉｎｅｏｓ製）、ならびにＭＯＰＬＥＮ及びＰＲＯＦＡＸ（Ｌｙｏｎｄｅｌｌ製）が含まれる。

【００６７】

第２の層１０６は、第２の層１０６の総重量に基づいて、４０～１００重量％、具体的には６０～１００重量％の量でポリプロピレンを含有してもよい。

【００６８】

第２の層１０６は、任意選択で、エラストマーを、第２の層の総重量に基づいて、最大４０重量％、具体的には１０～３５重量％の量で含有してもよい。このエラストマーは、エチレン－α－オレフィンコポリマー（上記で既に詳説されている）、ポリオレフィンエラストマー（例えば、プロピレン系エラストマー）、ビニル芳香族ブロックコポリマー、またはこれらの組み合わせ（上記で既に詳説）であり得る。第２の層１０６はまた、第２の層の総重量に基づいて、最大４０重量％、具体的には１０～３５重量％の量でポリエチレンを含有してもよい。このポリエチレンは、上述されており、ここでは再度詳説されない。

【００６９】

第２の層１０６（すなわち、基層）は、多層フィルム１００の全厚に基づいて、５０～９４％、具体的には６５～９０％、より具体的には７０～８５％の厚さを有する。例示的な実施形態では、第２の層は、多層フィルムの全厚の少なくとも６６％の厚さを有する。別の実施形態では、第２の層１０６もまた、多層化され得る。

【００７０】

多層フィルム１００は、１０～２５０マイクロメートル、具体的には２０～１３０マイクロメートル、より具体的には２０～７５マイクロメートルの全厚を有する。

【００７１】

多層フィルム１００の各層は、ワックス、酸化防止剤、オゾン化防止剤、離型剤、殺生物剤、熱安定剤、顔料、染料、赤外吸収剤、紫外線安定剤等、または前述のうちの少なくとも１つを含む組み合わせなどの添加剤を含む他の添加剤を含有してもよい。

【００７２】
多層フィルムの１つ以上の層は、任意選択で、コストを削減することに加えて、融解粘度を低減し得るワックスを含むことができる。好適なワックスの非限定的な例としては、石油ワックス、低分子量ポリエチレンもしくはポリプロピレン等のポリオレフィンワックス、合成ワックス、約５５～約１１０℃の融点を有するパラフィンならびに微結晶性ワックス、フィッシャー・トロプシュワックス、または前述のワックスのうちの少なくとも１つを含む組み合わせが含まれる。いくつかの実施形態では、このワックスは、４００～６，０００ｇ／モルの数平均分子量を有する低分子量ポリエチレンホモポリマーまたはインターポリマーである。

【００７３】
さらなる実施形態では、多層フィルムの層のそれぞれは、任意選択で、酸化防止剤または安定剤を含むことができる。好適な抗酸化剤の非限定的な例としては、アミン系抗酸化剤、例えば、アルキルジフェニルアミン、フェニル－α－ナフチルアミン、アルキルもしくはアラルキル置換、フェニル－α－ナフチルアミン、アルキル化ｐ－フェニレンジアミン、テトラメチル－ジアミノジフェニルアミン等、及び２，６－ジ－ｔ－ブチル－４－メチルフェノールなどのヒンダードフェノール化合物、１，３，５－トリメチル－２，４，６－トリス（３’，５’－ジ－ｔ－ブチル－４’ヒドロキシベンジル）ベンゼ、テトラキス［（メチレン（３，５－ジ－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシヒドロシンナメート）］メタン（例えば、Ｃｉｂａ　Ｇｅｉｇｙ，Ｎｅｗ　ＹｏｒｋからのＩＲＧＡＮＯＸＴＭ　１０１０）、オクタデシル－３，５－ジ－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシシンナメート（例えば、Ｃｉｂａ　Ｇｅｉｇｙから市販されているＩＲＧＡＮＯＸＴＭ　１０７６）、ならびにこれらの組み合わせが含まれる。使用される場合、組成物中の抗酸化剤の量は、任意の特定の層の総重量に基づいて、最大約１重量％、具体的には０．０５～０．７５重量％、具体的には０．１～０．５重量％であり得る。

【００７４】
さらなる実施形態では、本明細書に開示される組成物は、ＵＶ放射による組成物の分解を防止または低減し得るＵＶ安定剤を含むことができる。好適なＵＶ安定剤の非限定的な例としては、ベンゾフェノン、ベンゾトリアゾール、アリールエステル、オキサニリド、アクリル酸エステル、ホルムアミジン、カーボンブラック、ヒンダードアミン、ニッケルクエンチャー、ヒンダードアミン、フェノール酸化防止剤、金属塩、亜鉛化合物等、及び前述のＵＶ安定剤のうちの少なくとも１つを含む組み合わせが含まれる。使用される場合、任意の特定の層におけるＵＶ安定剤の量は、任意の特定の層の総重量に基づいて、約０超～約１重量％、具体的には０．０５～０．７５重量％、具体的には０．１～０．５重量％であり得る。

【００７５】
さらなる実施形態では、本明細書に開示される組成物は、任意選択で、着色剤または顔料を含むことができる。当業者に既知の任意の着色剤または顔料が、本明細書に開示される接着組成物で用いられてもよい。好適な着色剤または顔料の非限定的な例としては、二酸化チタンならびにカーボンブラック等の無機顔料、フタロシアニン顔料、及び他の有機顔料（例えば、ＩＲＧＡＺＩＮ（登録商標）、ＣＲＯＭＯＰＨＴＡＬ（登録商標）、ＭＯＮＡＳＴＲＡＬ（登録商標）、ＣＩＮＱＵＡＳＩＡ（登録商標）、ＩＲＧＡＬＩＴＥ（登録商標）、ＯＲＡＳＯＬ（登録商標）、これらの全ては、Ｃｉｂａ　Ｓｐｅｃｉａｌｔｙ　Ｃｈｅｍｉｃａｌｓ，Ｔａｒｒｙｔｏｗｎ，ＮＹから入手可能である）が含まれる。使用される場合、任意の特定の層における着色剤または顔料の量は、多層フィルムの任意の特定の層の総重量に基づいて、最大１０重量％、具体的には０．１～５重量％、より具体的には０．５～２重量％の量であり得る。

【００７６】
さらなる実施形態では、本明細書に開示される組成物は、任意選択で、ポリマー処理助剤（Ｄｙｎｅｏｎ　ＣｏｒｐｏｒａｔｉｏｎからのＤｙｎａｍａｒ（商標）５９１１等）、粘着防止剤、及び滑り添加剤を含むことができる。これらの添加剤は、粘着性を低減し

、取り扱いやすさのために、摩擦係数を所望のレベルまで変更するために、有利に使用されてもよい。

【００７７】

一実施形態では、フィルム１００を製造する１つの方法において、多層フィルム１００の層１０２、１０４、及び１０６のそれぞれの対応の組成物が、別々の装置に供給され、そこで対応の組成物は、剪断力、拡張力、及び延伸力を受ける。前述の力を組成物に及ぼす装置は、押出成形機（単軸または二軸）、ヘンシェルミキサー、ワーリングブレンダー、ブスニーダー、ロールミル（２つ以上のロール）、高剪断インペラー撹拌機、ドウミキサー等で実行することができる。多層フィルムの任意の層のための成分は、押出し成形される前に、ヘンシェルミキサー、ワーリングブレンダー、高剪断インペラー撹拌機等のいずれかにおいて乾燥混合または溶液混合されてもよい。

【００７８】

例示的な実施形態では、対応の層のそれぞれのための組成物は、別々の押出成形機に供給される。第１の層１０２用の組成物は、第１の押出成形機に供給され、連結層１０４用の組成物は、第２の押出成形機に供給され、第３の層１０６用の組成物は、第３の押出成形機に供給される。対応の押出成形機からの組成物は、単一ダイに供給され、共押出しされ、多層フィルムを成形する。次いで、共押出フィルムを吹き込み成形して、所望の厚さの多層フィルムを形成する。一実施形態では、共押出しされた後の多層フィルムは、２つ以上のロールを有するロールミル内で積層される。

【００７９】

別の実施形態では、多層フィルムを製造する別の方法において、各層は、別々に押し出され、押し出された層は、続いて、積層体に成形され得る（押出積層、熱積層、圧縮成形、接着積層等）。圧縮成形または積層は、ロールミル内で、または圧縮成形プレスもしくはラミネーター内で行うことができる。

【００８０】

一実施形態では、多層フィルムは、無延伸、すなわち、押出機からフィルムを急冷する流体の流れに押出され得る。１つの実施形態では、多層フィルムの各層が無延伸であってもよく、それぞれのフィルムは、必要に応じて、ロールミル内で一緒に積層される。

【００８１】

上で詳細に述べたように、複数の多層フィルムが、一緒に積層され、単一の多層フィルムを成形してもよい。２つ以上の多層フィルムが一緒に積層される場合、所望により共通の層が省かれてもよい。例えば、２つの多層フィルムが一緒に積層される場合、このとき、第２の層１０６のうちの少なくとも１つが省かれてもよい。したがって、単一の多層フィルムは、３つの層を含有するが、一緒に積層された２つの多層フィルムは、５つの層を含有し、３つの多層フィルムであれば、７つの層を含有することになる。

【００８２】

さらに、多層フィルム１００は、プレスシートまたは他の基材、典型的には、ポリプロピレン、ポリエステル、またはナイロンの表面に接着積層され得る。典型的には、液体（水または溶媒）に溶解される結合剤を、乾燥オーブン中で蒸着させる前に、ウェブのうちの１つに塗布する。接着コーティングされたウェブを、強圧下で、加熱ローラーを使用して他のウェブに積層し、積層板の結合強度を増強させる。

【００８３】

本明細書に開示された多層フィルムは、好ましくは、３０μｍの全フィルム厚に対して３．５１ｂ／インチ（９．２Ｎ／１５ｍｍ）超、５０μｍの全フィルム厚に対して５．７１ｂ／インチ（１５Ｎ／１５ｍｍ）、１２５μｍの全フィルム厚に対して１０１ｂ／インチ（２６．３Ｎ／１５ｍｍ）の高いヒートシール強度を示す。積層フィルムのシール強度は、好ましくは８１ｂ／インチ（２１．０Ｎ／１５ｍｍ）超、より好ましくは１０１ｂ／インチ（２６．３Ｎ／１５ｍｍ）超である。本発明の好ましいフィルムはまた、例えば、１１０℃以下、より好ましくは１００℃以下の低い加熱開始温度を示す。さらに、本発明の好ましいフィルムは、良好な光学的透明度及び機械的特性を有する。したがって、本発

明の好ましいフィルムは、食品包装市場におけるヒートシール及び他の性能条件を満たすことができる。

【００８４】

本願発明には以下の態様が含まれる。

項１．

多層フィルムであって、

第１の層及び第２の層と、

連結層であって、結晶性ブロック複合体を含み、前記第１の層と前記第２の層との間に配設される前記連結層と、を備え、前記第１の層が、前記連結層の第１の表面上に配設され、前記第２の層が、前記連結層の第２の表面上に配設され、前記第２の表面が、前記第１の表面に対向して配設され、前記結晶性ブロック複合体が、結晶性エチレン系ポリマーと、結晶性アルファ－オレフィン系ポリマーと、結晶性エチレンブロック及び結晶性アルファ－オレフィンブロックを含むブロックコポリマーとを含む、多層フィルム。

項２．

前記結晶性ブロック複合体が、２３０℃及び２．１６キログラムにてＡＳＴＭ　Ｄ１２３８によって測定される場合、０．１～３０ｇ／１０分のメルトフローレートを有する、項１に記載の前記多層フィルム。

項３．

前記結晶性ブロック複合体が、５～９５重量パーセントの結晶性エチレンブロック及び９５～５重量パーセントの結晶性アルファ－オレフィンブロックを含む、項１に記載の前記多層フィルム。

項４．

前記結晶性ブロック複合体が、０．３～最大１．０の結晶性ブロック複合体指数を有する、項１に記載の前記多層フィルム。

項５．

前記連結層が、エラストマーをさらに含み、前記エラストマーが、均一に分岐されたエチレン－α－オレフィンコポリマー、ポリオレフィンエラストマー、ビニル芳香族ブロックコポリマー、または前述のエラストマーのうちの少なくとも１つを含む組み合わせである、項１に記載の前記多層フィルム。

項６．

前記連結層が、エラストマーをさらに含み、前記エラストマーが、均一に分岐されたエチレン－α－オレフィンコポリマー、ポリオレフィンエラストマー、ビニル芳香族ブロックコポリマー、または前述のエラストマーのうちの少なくとも１つを含む組み合わせである、項１に記載の前記多層フィルム。

項７．

前記第１の層が、ポリエチレンを含み、前記第２の層が、ポリプロピレンホモポリマーを含む、項１に記載の前記多層フィルム。

項８．

前記ポリエチレンが、超低密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、高溶融強度高密度ポリエチレン、超高密度ポリエチレン、またはこれらの組み合わせからなる群から選択される、項７に記載の前記多層フィルム。

項９．

前記ポリエチレンが、直鎖状低密度ポリエチレンを含む、項７に記載の前記多層フィルム。

項１０．

前記第２の層が、ポリプロピレンを含む、項１に記載の前記多層フィルム。

項１１．

前記ポリプロピレンが、ランダムコポリマーポリプロピレン、インパクトコポリマーポリプロピレン、高インパクトポリプロピレン、高溶融強度ポリプロピレン、アイソタクチ

ックポリプロピレン、シンジオタクチックポリプロピレン、または前述のポリプロピレンのうちの少なくとも１つを含む組み合わせからなる群から選択される、項１に記載の前記多層フィルム。

項１２．

前記多層フィルムの全厚に基づいて、前記第１の層が５～３０％の厚さを有し、前記連結層が１～２０％の厚さを有し、前記第２の層が５０～９４％の厚さを有する、項１に記載の前記多層フィルム。

項１３．

前記多層フィルムが、１０～２５０マイクロメートルの全フィルム厚を有する、項１に記載の前記多層フィルム。

項１４．

前記多層フィルムが、３０μｍの全フィルム厚に対して３．５ｌｂ／インチ（９．２Ｎ／１５ｍｍ）、５０μｍの全フィルム厚に対して５．７ｌｂ／インチ（１５Ｎ／１５ｍｍ）、１２５μｍの全フィルム厚に対して１０ｌｂ／インチ（２６．３Ｎ／１５ｍｍ）超のプラトーヒートシール強度を有する、項１に記載の前記多層フィルム。

項１５．

前記多層フィルムが、積層後、８ｌｂ／インチ（２１．０Ｎ／１５ｍｍ）超のプラトーシール強度を有する、項１に記載の前記多層フィルム。

項１６．

前記多層フィルムが、１００℃以下の加熱開始温度を有する、項１に記載の前記多層フィルム。

項１７．

前記多層フィルムが、ＡＳＴＭ　Ｄ１７４６によって試験した場合、８０％超の透明性、ＡＳＴＭ　Ｄ１００３によって試験した場合、３％未満のヘイズを有する、項１に記載の前記多層フィルム。

項１８．

項１に記載の前記多層フィルムを備える、物品。

項１９．

多層フィルムを製造する方法であって、

第１の層及び第２の層と、

連結層であって、結晶性ブロック複合体を含み、前記第１の層と前記第２の層との間に配設される前記連結層と、を備え、前記第１の層が、前記連結層の第１の表面上に配設され、前記第２の層が、前記連結層の第２の表面上に配設され、前記第２の表面が、前記第１の表面に対向して配設され、前記結晶性ブロック複合体が、結晶性エチレン系ポリマーと、結晶性アルファ－オレフィン系ポリマーと、結晶性エチレンブロック及び結晶性アルファ－オレフィンブロックを含むブロックコポリマーとを含む、多層フィルムを共押出することと、

前記多層フィルムを吹き込み成形または流延することと、を含む、方法。

項２０．

ロールミルまたはラミネーター内で前記多層フィルムを積層することをさらに含む、項１９に記載の前記方法。

本明細書に開示される多層フィルム及びそのフィルムを製造する方法は、以下の実施例において例示される。

【実施例】

【００８５】

この実施例は、本明細書に開示される多層フィルムを製造する方法及びこれらのフィルムの特性を立証するために行った。様々な異なるフィルムを製造し、試験して、それらの特性を決定した。これらの材料のための組成物を表１中に示す。表２及び３は、結晶性ブロック複合体における異なる特性を示す。表３は、結晶性ブロック複合体指数推定を示すが、表２は、結晶性ブロック複合体における物理的特性を示す。

【００８６】
【表１】

表1

材料	MI（190度、g/10分）	MFR（230度、g/10分）	密度（g/cm³）	供給元
CBC1		6.7	0.902	50／50 EP／iPP、EP中の90重量%のC2
CBC2		10.1	0.906	50／50 EP／iPP、EP中の90重量%のC2
CBC3		6.6	0.895	40／60 EP／iPP、EP中の90重量%のC2、iPP中の9%のC2
hPP DX5E66（PP1）		8.7	0.9	Braskem
hPP D115（PP2）		11	0.9	Braskem
ELITE（商標）AT 6111（PE1）	3.7		0.912	The Dow Chemical Company
ELITE（商標）5230（PE2）	4.0		0.916	The Dow Chemical Company
DOWLEX（商標）2247（PE3）	2.3		0.917	The Dow Chemical Company
VERSIFY（商標）3200（PBE1）		8	0.878	The Dow Chemical Company
Cosmoplene FL 7641L（ter－PP）		7	0.9	The Polyolefin Company（TPC）、シンガポール

【００８７】
表１を参照すると、ＣＢＣ１、ＣＢＣ２、及びＣＢＣ３の各々は、連続して接続された２つの連続撹拌槽型反応器（ＣＳＴＲ）を用いて調製される。第１の反応器は、容量がおよそ１２ガロンであるが、第２の反応器は、およそ２６ガロンである。各反応器は、液体で満たされており、定常状態条件で作動するよう設定される。モノマー、溶媒、触媒、共触媒－１、共触媒－２、及びＣＳＡ－１を表１に概説されるプロセス条件に従って、第１の反応器に流入させる。次いで、第１の反応器の内容物を、下表１Ａに記載されるように、直列に配置された第２の反応器に流入させる。追加の触媒、共触媒－１、及び共触媒－２を第２の反応器に添加する。下の表２及び３は、ＣＢＣ１、ＣＢＣ２、及びＣＢＣ３の分析特徴を示す。
【００８８】
ＣＢＣ１、ＣＢＣ２、及びＣＢＣ３を生成するためのプロセス条件を表２中に示す。表１Ａに関して、触媒－１［［ｒｅｌ－２’、２’’’－［（１Ｒ，２Ｒ）－１，２－シクロヘキサンジイルビス（メチレンオキシ－κＯ）］ビス［３－（９Ｈ－カルバゾール－９－イル）－５－メチル［１，１’－ビフェニル］２－オラト－κＯ］］（２－）］ジメチル－ハフニウム）ならびに共触媒－１、米国特許第５，９１９，９８３号、実施例２に実質的に開示される、長鎖トリアルキルアミン（Ａｋｚｏ－Ｎｏｂｅｌ，Ｉｎｃから入手可能な、Ａｒｍｅｅｎ（商標）Ｍ２ＨＴ）、ＨＣｌ、及びＬｉ［Ｂ（C_6F_5）$_4$］の反応によって調製される、テトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレートのメチルジ（C_{14-18}アルキル）アンモニウム塩の混合物を、Ｂｏｕｌｄｅｒ Ｓｃｉｅｎｔｉｆｉｃから購入し、さらに精製することなく使用する。
【００８９】
ＣＳＡ－１（ジエチル亜鉛またはＤＥＺ）及び共触媒－２（変性メチルアルモキサン（ＭＭＡＯ））を、Ａｋｚｏ Ｎｏｂｅｌから購入し、さらに精製することなく使用する。

重合反応用の溶媒は、ＥｘｘｏｎＭｏｂｉｌ　Ｃｈｅｍｉｃａｌ　Ｃｏｍｐａｎｙから入手可能な炭化水素混合物（ＩＳＯＰＡＲ（登録商標）Ｅ）であり、使用前に、１３－Ｘ分子篩のベッドを通して精製する。

【００９０】

【表２】

表2

材料	CBC1		CBC2		CBC3	
反応器	第1の反応器	第2の反応器	第1の反応器	第2の反応器	第1の反応器	第2の反応器
反応器制御温度(℃)	140	129	153	130	152	130
溶媒供給(lb／時)	241	245	343	101	273	141
プロピレン供給(lb／時)	5.5	48.6	3.4	44.1	2.7	48.4
エチレン供給(lb／時)	46.0	0	41.7	0	33.2	4.1
水素供給SCCM)	9.7	49.8	0	0	0	0
反応器プロピレン濃度(g／L)	3.2	1.46	0	2.42	0.25	2.74
触媒効率(gPoly／gM)＊1.0E6	1.39	0.04	0.247	0.138	0.27	0.32
触媒フロー(lb／時)	0.24	2.25	0.31	0.53	0.66	0.79
触媒濃度(ppm)	150	500	600	600	200	200
共触媒－1フロー(lb／時)	0.24	1.41	0.62	0.53	0.94	1.12
共触媒－1濃度(ppm)	2000	8000	2729	7082	1400	1400
共触媒－2フロー(lb／時)	1.27	1.41	0.72	0.73	0.91	0.18
共触媒－2濃度(ppm)	1993	1800	3442	1893	1993	1993
DEZフロー(lb／時)	1.35	0	1.49	0	1.45	0
DEZ濃度(ppm)	45000	0	30000	0	30000	0

【００９１】

結晶性ブロック複合体ＣＢＣ１、ＣＢＣ２、及びＣＢＣ３の特性を表３中に示す。

【００９２】

【表３】

表3

実施例	MFR (230℃ /2.16kg)	HTLC またはTGICの分離からのPPの重量%	重量平均分子量 Kg/mol	重量平均分子量/数平均分子量	C_2の総重量%	融解温度(℃) ピーク1 (ピーク2)	融解エンタルピー (J/g)	結晶性ブロック複合体指数
CBC1	6.7	19.6 (HTLC)	114	2.90	48.3	131 (105)	90	0.579
CBC2	10.1	20.3 (HTLC)	92	3.50	48.1	130 (105)	103	0.566
CBC3	6.6	21.0 (TGIC)	119	3.08	42.9	107	87	0.639

【００９３】

ポリマー特性評価方法、使用される方法の論議もまた、米国特許公開第第２０１１／０３１３１０６号、同第２０１１／０３１３１０７号、及び同第２０１１／０３１３１０８号で見出され得る。

【００９４】

メルトフローレート（ＭＦＲ）は、ＡＳＴＭ　Ｄ－１２３８（２３０℃、２．１６ｋｇ）に従って測定される。この結果は、グラム／１０分で報告される。

【００９５】

例えば、米国特許出願公開第２０１２／０２２７４６９号に論じられるような、温度勾配相互作用クロマトグラフィー（ＴＧＩＣ）が好ましい。

【００９６】

高温液体クロマトグラフィー（ＨＴＬＣ）は、米国特許第８，０７６，１４７号及び米国特許出願公開第２０１１／１５２４９９号に開示される方法に従って実施し、それらの両方が参照により本明細書に組み込まれる。試料は、以下に記載された方法従って分析する。

【００９７】

Ｗａｔｅｒｓ　ＧＰＣＶ２０００高温ＳＥＣクロマトグラフィーは、ＨＴ－２ＤＬＣ機器を構築するために再構成する。２つのＳｈｉｍａｄｚｕ　ＬＣ－２０ＡＤポンプを、２成分ミキサーを介して、ＧＰＣＶ２０００のインジェクターバルブに接続する。第一次元（Ｄ１）ＨＰＬＣカラムを、インジェクターと１０ポートスイッチバルブ（Ｖａｌｃｏ　Ｉｎｃ．）との間に接続する。第二次元（Ｄ２）ＳＥＣカラムを、１０ポートバルブ及びＬＳ（Ｖａｒｉａｎ　Ｉｎｃ．）、ＩＲ（濃度及び組成）、ＲＩ（屈折率）、及びＩＶ（固有粘度）検出器の間に接続する。ＲＩ及びＩＶは、ＧＰＣＶ２０００に内蔵された検出器である。ＩＲ５検出器は、ＰｏｌｙｍｅｒＣｈａｒ，Ｖａｌｅｎｃｉａ，Ｓｐａｉｎによって供給される。

【００９８】

カラム：Ｄ１カラムは、Ｔｈｅｒｍｏ　Ｓｃｉｅｎｔｉｆｉｃから購入された高温ハイパーカーブグラファイトカラム（２．１×１００ｍｍ）である。Ｄ２カラムは、ＶａｒｉａｎからのＰＬＲａｐｉｄ－Ｈカラム（１０×１００ｍｍ）である。

【００９９】

試薬：ＨＰＬＣグレードのトリクロロベンゼン（ＴＣＢ）を、Ｆｉｓｈｅｒ　Ｓｃｉｅｎｔｉｆｉｃから購入した。１－デカノール及びデカンは、Ａｌｄｒｉｃｈからであった。２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－メチルフェノール（Ｉｏｎｏｌ）も、Ａｌｄｒｉｃｈから購入する。

【０１００】

試料の調製：０．０１～０．１５ｇのポリオレフィン試料を、１０ｍＬのＷａｔｅｒオートサンプラー用バイアルに配置する。その後、２００ｐｐｍのＩｏｎｏｌを含む１－デカノールまたはデカンのいずれか（７ｍＬ）を、バイアルに添加する。試料バイアルにヘリウムを約１分間散布した後に、試料バイアルを、温度を１６０℃に設定した加熱振盪器に置く。バイアルを上記温度で２時間振盪することによって、溶解が行われる。次いで、このバイアルを、注入のためにオートサンプラーに移す。

【０１０１】

ＨＴ－２ＤＬＣ：Ｄ１の流速は０．０１ｍＬ／分である。移動相の組成は、最初の１０分間の運転では、１００％の弱い溶離液（１－デカノールまたはデカン）である。次いで、組成を、４８９分間で６０％の強い溶離液（ＴＣＢ）に増加させる。生のクロマトグラムの継続時間として、４８９分にわたってデータを収集する。１０ポートバルブが、３０分毎に切り替わり、４８９／３＝１６３のＳＥＣクロマトグラムをもたらす。４８９分間のデータ収集時間後に、次の操作のために、カラムを洗浄し平衡化させるために、操作後の勾配を使用する。

【０１０２】

洗浄ステップ：

１．　４９０分：フロー＝０．０１分；／／０．０１ｍＬ／分の一定の流速を０～４９０分維持する。

２．　４９１分：フロー＝０．２０分；／／流速を０．２０ｍＬ／分に増加させる。

３．　４９２分：％Ｂ＝１００；／／移動相組成を１００％ＴＣＢに増加させる。

４．　５０２分：％Ｂ＝１００；／／２ｍＬのＴＣＢでカラムを洗浄する。

【０１０３】

平衡ステップ：

５．　５０３分：％Ｂ＝０；／／移動相組成を１００％の１－デカノールまたはデカンに変更する。
６．　５１３分：％Ｂ＝０；／／２ｍＬの弱溶離液を用いて、カラムを平衡化させる。
７．　５１４分：フロー＝０．２ｍＬ／分；／／４９１～５１４分に０．２ｍＬ／分の一定流速を維持する。
８．　５１５分：フロー＝０．０１ｍＬ／分；流速を０．０１ｍＬ／分に低下させる。

【０１０４】

ステップ８の後に、流速及び移動相組成は、操作の勾配の初期条件と同じである。

【０１０５】

Ｄ２の流速は、２．５１ｍＬ／分であった。２つの６０μＬのループを、１０ポート切換えバルブ上に設置する。Ｄ１カラムからの３０μＬの溶離液が、バルブのスイッチ毎に、ＳＥＣカラムに充填される。

【０１０６】

ＩＲ、ＬＳ１５（１５°における光散乱シグナル）、ＬＳ９０（９０°における光散乱シグナル）、及びＩＶ（固有粘度）シグナルを、ＳＳ４２０Ｘアナログ－ディジタル変換ボックスを通してＥＺＣｈｒｏｍによって収集する。クロマトグラムを、ＡＳＣＩＩフォーマットにエクスポートし、データ整理のために自社制作（ｈｏｍｅ－ｗｒｉｔｔｅｎ）ＭＡＴＬＡＢソフトウェアにインポートする。分析すべきブロック複合体に含有される硬質ブロック及び軟質ブロックと類似の性質であるポリマーの、ポリマー組成及び保持容量の適切な較正曲線を使用する。較正ポリマーは、組成（分子量及び化学組成の両方）が狭くあるべきであり、分析の間、目的の組成物を対象とするために適当な分子量範囲にわたるべきである。生データの分析を次のように計算し、第一次元ＨＰＬＣクロマトグラムを、（カットの全ＩＲ　ＳＥＣクロマトグラムからの）各カットのＩＲシグナルを、溶離液体積の関数としてプロットすることによって再構成した。ＩＲ対Ｄ１溶離液体積を、全ＩＲシグナルによって正規化して、重量分率対Ｄ１溶離液体積プロットを得た。ＩＲメチル／測定値比が、再構成されたＩＲ測定値及びＩＲメチルクロマトグラムから得られた。ＰＰ重量％（ＮＭＲによる）対ＳＥＣ実験から得られたメチル／測定値の較正曲線を使用して、比を組成に変換した。ＭＷが、再構成されたＩＲ測定値及びＬＳクロマトグラムから得られた。ＰＥ標準を使用したＩＲ及びＬＳ検出器の両方の較正後に、比をＭＷに変換した。

【０１０７】

分子量分布（ＭＷＤ）は、ゲル透過クロマトグラフィー（ＧＰＣ）を用いて測定される。具体的には、従来のＧＰＣ測定値は、ポリマーの重量平均（Ｍｗ）ならびに数平均（Ｍｎ）分子量を決定するために、及びＭＷＤ（Ｍｗ／Ｍｎとして計算される）を決定するために用いられる。試料は、高温ＧＰＣ機器（Ｐｏｌｙｍｅｒ　Ｌａｂｏｒａｔｏｒｉｅｓ，Ｉｎｃ．モデルＰＬ２２０）で分析される。この方法は、流体力学的体積の概念に基づいた、周知の万能構成方法を使用し、較正は、１４０℃のシステム温度で作動する４つのＭｉｘｅｄ　Ａ　２０μｍカラム（Ａｇｉｌｅｎｔ（以前は、Ｐｏｌｙｍｅｒ　Ｌａｂｏｒａｔｏｒｙ　Ｉｎｃ．）からのＰＬｇｅｌ　Ｍｉｘｅｄ　Ａ）と共に、狭いポリスチレン（ＰＳ）標準を用いて実施される。試料を、１，２，４－トリクロロベンゼンの溶媒中、「２ｍｇ／ｍＬ」濃度で調製する。流速は、１．０ｍＬ／分であり、注入サイズは、１００マイクロリットルである。

【０１０８】

述べたように、分子量の決定は、狭い分子量分布のポリスチレン標準（Ｐｏｌｙｍｅｒ　Ｌａｂｏｒａｔｏｒｉｅｓから）を用いて、それらの溶離体積と共に推定される。相当するポリエチレンの分子量は、ポリエチレン及びポリスチレンについての適切なマルク－ホウインク係数を用いることによって決定され（Ｗｉｌｌｉａｍｓ及びＷａｒｄにより、Ｊｏｕｒｎａｌ　ｏｆ　Ｐｏｌｙｍｅｒ　Ｓｃｉｅｎｃｅ，Ｐｏｌｙｍｅｒ　Ｌｅｔｔｅｒｓ，Ｖｏｌ．６，（６２１）１９６８に記載）、以下の式を導出する。

$$M_{ポリエチレン} = a^{*}(M_{ポリスチレン})^{b}。$$

【０１０９】
この式において、ａ＝０．４３１６及びｂ＝１．０である（Ｗｉｌｌｉａｍｓ ａｎｄ Ｗａｒｄ，Ｊ．Ｐｏｌｙｍ．Ｓｃ．，Ｐｏｌｙｍ．Ｌｅｔ．，６，６２１（１９６８）に記載）。ポリエチレンの相当する分子量の計算を、ＶＩＳＣＯＴＥＫ ＴｒｉＳＥＣソフトウェア Ｖｅｒｓｉｏｎ ３．０を使用して実施した。

【０１１０】
^{13}Ｃ核磁気共鳴（ＮＭＲ）を、クロミウムアセチルアセトネート（緩和剤）中の０．０２５Ｍであるテトラクロロエタン－ｄ２／オルトジクロロベンゼンの５０／５０混合物のおよそ２．７ｇを、１０ｍｍのＮＭＲチューブ中で０．２１ｇの試料に添加することによって実施する。試料を、チューブ及びその内容物を１５０℃に加熱することによって溶解し均質化する。Ｂｒｕｋｅｒ Ｄｕａｌ ＤＵＬ高温ＣｒｙｏＰｒｏｂｅを備えたＢｒｕｋｅｒ ４００ＭＨｚ分光計を使用してデータを集める。１２５℃の試料温度で、１データファイル当たり３２０トランジェント、７．３秒パルス反復遅延（６秒の遅延＋１．３秒の収集時間）、９０度のフリップ角、及び逆ゲート付デカップリングを使用してデータを獲得する。全ての測定は、固定された状態の回転していない試料に対してなされる。試料は、加熱された（１３０℃）ＮＭＲサンプルチェンジャーへの挿入の直前に均質化し、データ収集の１５分前にプローブにおいて熱的に釣り合わせる。結晶性ブロック複合体ポリマー中のコモノマー含有量は、この技術を用いて測定可能である。

【０１１１】
示差走査熱量測定（ＤＳＣ）を、ポリマーにおける結晶化度を測定するために用いる。約５～８ｍｇのポリマー試料を計量し、ＤＳＣパンに置く。蓋をパンに圧着させ、閉鎖雰囲気を確実にする。試料パンをＤＳＣセル内に置き、次いで、およそ１０℃／分の速度で、ＰＥについては１８０℃の温度まで加熱する（ポリプロピレンまたは「ＰＰ」については２３０℃）。試料をこの温度で３分間保つ。次いで、試料を１０℃／分の速度で、ＰＥについては－６０℃まで冷却し（ＰＰについては－４０℃）、この温度で３分間、等温的に保つ。試料を、次に、融解が完了するまで、１０℃／分の速度で加熱する（第２の加熱）。結晶化度パーセントを、第２の加熱曲線から決定された融解熱（Ｈｆ）を、ＰＥについての２９２Ｊ／ｇ（ＰＰについては、１６５Ｊ／ｇ）の理論的融解熱で割り、この量に１００を掛けることによって計算する（例えば、結晶化度％＝（H_f／２９２Ｊ／ｇ）×１００（ＰＥについて））。特に明記しない限り、各ポリマーの融点（複数可）（T_m）は、第２の加熱曲線（ピークＴｍ）から決定され、結晶化温度（T_c）は、第１の冷却曲線（ピークＴｃ）から決定される。

【０１１２】
結晶性ブロック複合体の組成の計算は、式１によるポリマー中の各成分からのプロピレンの重量％の合計であり、（ポリマー全体の）プロピレン及び／またはエチレンの全重量％をもたらす。この物質収支式は、式１に関して以下に論じられるように、ブロックコポリマー中に存在するＰＰ及びＰＥの量を定量化するために使用することができる。この物質収支方程式は、二元ブレンド中のＰＰ及びＰＥの量を定量化するためにも使用することができ、または三元ブレンド、もしくはｎ成分ブレンドに広げることもできる。結晶性ブロック複合体について、ＰＰまたはＰＥの全量が、ブロック及び未結合ＰＰ及びＰＥポリマー中に存在するブロックの中に含まれる。

【０１１３】
プロピレン（C_3）の全重量％は、ポリマー全体に存在するC_3の合計量を表す^{13}ＣＮＭＲまたはいくつかの他の組成測定法から測定されることが好ましいことを留意されたい。ＰＰブロック中のプロピレンの重量％（ｗｔ％ C_{3PP}）は、１００に設定するか、そのＤＳＣ融点、ＮＭＲ測定、または他の組成予測法から別に知られている場合は、その値をその代わりに置くことができる。同様に、ＰＥブロック中のプロピレンの重量％（ｗｔ％ C_{3PE}）は、１００に設定するか、そのＤＳＣ融点、ＮＭＲ測定、または他の組成予測法から別に知られている場合は、その値をその代わりに置くことができる。

【０１１４】

表３に言及する結晶性ブロック複合体指数（ＣＢＣＩ）は、以下の表３Ａに示される方法に基づいて測定される。具体的には、ＣＢＣＩは、ジブロックコポリマー中のＣＥＢのＣＡＯＢに対する比が、結晶性ブロック複合体全体の結晶性エチレンの結晶性アルファーオレフィンに対する比と同一であるという仮定の下に、結晶性ブロック複合体中のブロックコポリマーの量の推定値を提供する。この仮定は、本明細書に記載される鎖シャトリング触媒を介するジブロックの形成についての個々の触媒の反応速度論及び重合メカニズムの理解に基づいて、統計学上、オレフィンブロックコポリマーに有効である。このＣＢＣＩ分析は、このＣＢＣＩ分析は、単離されたＰＰの量は、ポリマーが、ホモポリマー（この実施例ではＣＡＯＰ）及びポリエチレン（この実施例ではＣＥＰ）の単純ブレンドであったと仮定した場合と比べて少ないことを示している。したがって、ポリエチレン画分は、ポリマーが単純にポリプロピレン及びポリエチレンのブレンドであったなら、存在しないであろうかなりの量のプロピレンを含有する。この「余分なプロピレン」を明らかにするために、物質収支計算を実施して、ポリプロピレン及びポリエチレンの画分の量ならびに高温液体クロマトグラフィー（ＨＴＬＣ）によって分離された画分のそれぞれに存在するプロピレンの重量パーセントからＣＢＣＩを推定することができる。

【０１１５】

【表３Ａ】

表3A

行#	変数	供給源	CBC1	CBC2	CBC3
1	C3合計の全重量%	測定値	51.700	51.900	57.100
2	PPブロック／ポリマー中のC3の重量%	測定値	99.000	99.000	91.000
3	PEブロック／ポリマー中のC3の重量%	測定値	10.500	10.500	10.000
4	(ブロックまたはポリマー中の)PPの重量分率	以下の式2	0.466	0.468	0.581
5	(ブロックまたはポリマー中の)PEの重量分率	1－行4	0.534	0.532	0.419
	HTLC分離の分析				
6	単離されたPPの重量分率	測定値	0.196	0.203	0.210
7	PE画分の重量分率	測定値	0.804	0.797	0.790
8	PE画分におけるC3の重量%	以下の式4	40.169	39.903	48.100
9	PE画分におけるPPジブロックの重量分率	以下の式6	0.335	0.332	0.470
10	PE画分におけるPEの重量分率	1－行10	0.665	0.668	0.530
11	PE画分におけるジブロックの重量分率	10／行4	0.720	0.710	0.809
12	結晶性ブロック複合体指数(CBCI)	以下の式7	0.579	0.566	0.639

【０１１６】

表３Ａを参照すると、結晶性ブロック複合体指数（ＣＢＣＩ）は、先ず、以下の式１に従って、ポリマー中の各成分からポリプロピレンの重量パーセントの和を決定することによって測定され、これが、結晶性ブロック複合体の組成の計算についての方法に関して上述したように、全体の重量パーセントをもたらす。具体的には、物質収支方程式は、以下の通りである。

【０１１７】

【数１】

$$\mathrm{Wt\%\,C3_{Overall}} = \mathrm{w_{PP}}(wt\%C3_{PP}) + \mathrm{w_{PE}}(wt\%C3_{PE}) \qquad \text{式1}$$

【０１１８】

ここで、

w_{PP}＝ポリマー中のＰＰの重量分率

w_{PE}＝ポリマー中のＰＥの重量分率

ｗｔ％Ｃ３$_{PP}$＝ＰＰ成分またはブロック中のプロピレンの重量パーセント
ｗｔ％Ｃ３$_{PE}$＝ＰＥ成分またはブロック中のプロピレンの重量パーセント

【０１１９】

結晶性ブロック複合体中のＰＰのＰＥに対する比の計算について：

式１に基づき、ポリマー中に存在するＰＰの全重量分率は、ポリマー中の測定された全Ｃ３の物質収支から式２を使用して計算することができる。別法として、重合中のモノマー及びコモノマー消費の物質収支から、それを予測することもできる。概して、これは、それが非結合成分中に存在するかジブロックコポリマー中に存在するかに関わらず、ポリマー中に存在するＰＰ及びＰＥの量を表す。通常のブレンドについては、ＰＰの重量分率及びＰＥの重量分率は、存在するＰＰ及びＰＥポリマーの個別の量に対応する。結晶性ブロック複合体について、ＰＰのＰＥに対する重量分率の比も、この統計ブロックコポリマー中に存在するＰＰ及びＰＥの間の平均ブロック比に対応すると考えられる。

【０１２０】

【数２】

$$w_{PP} = \frac{wt\%C3_{Overall} - wt\%C3_{PE}}{wt\%\,C3_{PP} - wt\%C3_{PE}} \qquad \text{式2}$$

【０１２１】

ここで、

ｗ$_{PP}$＝ポリマー全体に存在するＰＰの重量分率
ｗｔ％Ｃ３$_{PP}$＝ＰＰ成分またはブロック中のプロピレンの重量パーセント
ｗｔ％Ｃ３$_{PE}$＝ＰＥ成分またはブロック中のプロピレンの重量パーセント

【０１２２】

式３から５までを適用して、ＨＴＬＣ分析によって測定された単離されたＰＰの量を、ジブロックコポリマー中に存在するポリプロピレンの量を求めるために使用する。ＨＴＬＣ分析で最初に単離または分離された量は、「非結合ＰＰ」を表しており、その組成は、ジブロックコポリマー中に存在するＰＰ硬質ブロックを表している。式３の左辺のポリマー全体のＣ３の全重量％、及び（ＨＴＬＣから単離された）ＰＰの重量分率及び（ＨＴＬＣによって分離された）ＰＥの重量分率を、式３の右辺に代入することによって、ＰＥ画分におけるＣ３の重量％を、式４及び５を使用して計算することができる。ＰＥ画分は、非結合ＰＰから分離された画分として説明され、ジブロック及び非結合ＰＥを含有する。単離されたＰＰの組成は、先に記載されたように、ｉＰＰブロック中のプロピレンの重量％と同じであると考えられる。

【０１２３】

【数３】

$$\mathrm{wt\%\,C3_{Overall}} = \mathrm{w_{PP\,isolated}}(wt\%C3_{PP}) + \mathrm{w_{PE\text{-}fraction}}(wt\%C3_{PE-fraction}) \qquad \text{式3}$$

$$wt\%C3_{PE-fraction} = \frac{wt\%C3_{Overall} - w_{PPisolated}(wt\%C3_{PP})}{\mathrm{w}_{PE-fraction}} \qquad \text{式4}$$

$$w_{PE-fraction} = 1 - w_{PPisolated} \qquad \text{式5}$$

【０１２４】

ここで、

ｗ$_{PPisolated}$＝ＨＴＬＣから単離されたＰＰの重量分率
ｗ$_{PE-fraction}$＝ジブロック及び非結合ＰＥを含有する、ＨＴＬＣから分離されたＰＥの重量分率
ｗｔ％Ｃ３$_{PP}$＝ＰＰ中のプロピレンの重量％；これは、ＰＰブロック中及び非結合ＰＰ中に存在するプロピレンと同量でもある

ｗｔ％Ｃ３$_{ＰＥ－ｆｒａｃｔｉｏｎ}$＝ＨＴＬＣによって分離されたＰＥ画分中のプロピレンの重量パーセント

ｗｔ％Ｃ３$_{Ｏｖｅｒａｌｌ}$＝ポリマー全体におけるプロピレンの全重量パーセント

【０１２５】

ＨＴＬＣからのポリエチレン画分におけるＣ３の重量％の量は、「非結合ポリエチレン」中に存在する量を上回るブロックコポリマー画分中に存在するプロピレンの量を表す。ポリエチレン画分に存在する「追加の」プロピレンを説明するために、この画分にＰＰを存在させる唯一の方法は、ＰＰポリマー鎖がＰＥポリマー鎖と結合することである（そうでないと、それは、ＨＴＬＣによって分離されたＰＰ画分と共に単離されていたはずである）。したがって、ＰＥ画分が分離されるまで、ＰＰブロックはＰＥブロック中に吸着されたままである。

【０１２６】

ジブロック中に存在するＰＰの量は、式６を使用して計算する。

【０１２７】

【数４】

$$w_{PP-diblock} = \frac{wt\%C3_{PE-fraction} - wt\%C3_{PE}}{wt\%\,C3_{PP} - wt\%C3_{PE}} \qquad \text{式6}$$

【０１２８】

ここで

ｗｔ％Ｃ３$_{ＰＥ－ｆｒａｃｔｉｏｎ}$＝ＨＴＬＣによって分離されたＰＥ画分におけるプロピレンの重量パーセント（式４）

ｗｔ％Ｃ３$_{ＰＰ}$＝ＰＰ成分または（先に定義された）ブロックにおけるプロピレンの重量パーセント

ｗｔ％Ｃ３$_{ＰＥ}$＝ＰＥ成分または（先に定義された）ブロックにおけるプロピレンの重量パーセント

$w_{PP-diblock}$＝ＨＴＬＣによってＰＥ画分と共に分離されたジブロックにおけるＰＰの重量分率

【０１２９】

このＰＥ画分に存在するジブロックの量は、ＰＰブロックのＰＥブロックに対する比が、ポリマー全体に存在するＰＰのＰＥに対する全体比と同じであると考えることによって予測することができる。例えば、ポリマー全体におけるＰＰのＰＥに対する全体比が１：１である場合、ジブロック中のＰＰのＰＥに対する比も１：１であると考えられる。したがって、ＰＥ画分に存在するジブロックの重量分率は、ジブロック中のＰＰの重量分率（$w_{PP-diblock}$）に２を掛けたものである。これを計算する別の方法は、ジブロック中のＰＰの重量分率（$w_{PP-diblock}$）を、ポリマー全体におけるＰＰの重量分率で割ることによる（式２）。

【０１３０】

ポリマー全体に存在するジブロックの量をさらに予測するためには、ＰＥ画分におけるジブロックの予測量に、ＨＴＬＣから測定されたＰＥ画分の重量分率を掛ける。結晶性ブロック複合体指数を予測するために、ジブロックコポリマーの量を、式７によって求める。ＣＢＣＩを予測するために、式６を使用して計算したＰＥ画分におけるジブロックの重量分率を、（式２で計算した）ＰＰの全重量分率で割り、次いで、これにＰＥ画分の重量分率を掛ける。ＣＢＣＩの値は、０から１までの範囲であり得、ここで、１は、１００％ジブロックと等しく、ゼロは、従来のブレンドまたはランダムコポリマーなどの物質に相当する。

【０１３１】

【数５】

$$CBCI = \frac{w_{PP-diblock}}{w_{PP}} \cdot w_{PE-fraction} \qquad \text{式7}$$

【０１３２】

ここで、

$w_{PP-diblock}$＝ＨＴＬＣによってＰＥ画分と共に分離されたジブロックにおけるＰＰの重量分率（式６）

w_{PP}＝ポリマー中のＰＰの重量分率

$w_{PE-fraction}$＝ジブロック及び非結合ＰＥを含有する、ＨＴＬＣから分離されたＰＥの重量分率（式５）

【０１３３】

例えば、ｉＰＰ－ＰＥ（すなわち、アイソタクチックポリプロピレンブロック及びプロピレン－エチレンブロック）ポリマーが、全体で５３．３重量％のＣ３を含有し、１０重量％のＣ３を有するＰＥポリマー及び９９重量％のＣ３を含有するｉＰＰポリマーを生成する条件下で作られる場合、ＰＰ及びＰＥの重量分率は、それぞれ０．４８７～０．５１４である（式２を使用して計算）。

【０１３４】

フィルムの調製

多層フィルムは、以下の試験基準を用いて試験した。

【０１３５】

ヘイズ、透明度、及びグロス：

ヘイズは、通常の入射ビームから２．５°超のフィルムにより散乱された透過光線の割合であり、ＡＳＴＭ　Ｄ　１００３に従って測定された。検体の直接透過率の決定は、透明度を評価するために頻繁に用いられる。フィルム透過率は、ＡＳＴＭ　Ｄ１７４６に従って測定された。グロスは、サンプルを通して見られる本体の視界ではなく、むしろ、その表面上での反射により形成された画像の質に関係している。グロスは、ＡＳＴＭ　Ｄ２４５７に従って、４５°で測定された。

【０１３６】

ホットタック

フィルム上のホットタック測定を、ＡＳＴＭ　Ｆ－１９２１（方法Ｂ）に従って、Ｅｎｅｐａｙ市販試験機を使用して実施した。試験前に、サンプルを、ＡＳＴＭ　Ｄ－６１８（手順Ａ）に従って、２３℃及び５０％相対湿度（Ｒ．Ｈ．）で、最短でも４０時間コンディショニングした。ホットタック試験は、シールが、完全に冷却する前に、袋またはバッグ中への材料の充填をシミュレートする。８．５インチ×１４インチの大きさのシートを、縦方向の最長寸法でフィルムから切リ出す。幅１インチ及び長さ１４インチのストリップを、フィルム［サンプルは、クランピングに十分な長さであることのみ必要である］から切り出す。試験を、様々な範囲の温度にわたってこれらのサンプルで実施し、結果は、温度の関数として最大荷重として報告した。通常の温度ステップは、各温度において６回反復実施されて、５℃または１０℃である。Ｅｎｅｐａｙ機は、０．５インチのシールを作成する。データは、平均ホットタック力（Ｎ）が、温度の関数としてプロットされるホットタック曲線として報告される。試験に使用したパラメーターは、次の通りである：

【０１３７】

- ●検体幅：２５．４ｍｍ（１．０インチ）
- ●シーリング圧：０．２７５Ｎ／ｍｍ^2
- ●シーリング保持時間：０．５秒
- ●遅延時間：０．１秒
- ●剥離速度：２００ｍｍ／秒

【０１３８】

ヒートシール

フィルムのヒートシール測定を、ＡＳＴＭ　Ｆ－８８（技術Ａ）に従って、市販の張力試験機で実施する。ヒートシール試験は、軟質バリヤー材料のシールの強度（シール強度）の尺度である。該シールを含有する材料の試験ストリップを分離するために必要とされる力を測定することにより、これを成し、検体破壊形態を確認する。シール強度は、開封する力及びパッケージ整合性に関連する。切り出し前に、該フィルムを、ＡＳＴＭ　Ｄ－６１８（手順Ａ）に従って、２３℃（±２℃）及び５０％（±５％）Ｒ．Ｈで、最短でも４０時間コンディショニングする。次いで、シートを、縦方向を約１１インチの長さで、約８．５インチの幅のフィルムから切り出す。シートを、以下の条件下で、様々な範囲の温度にわたって、Ｋｏｐｐヒートシーラーで、縦方向を横断してヒートシールする：

【０１３９】

●シーリング圧：０．２７５Ｎ／ｍｍ^2

●シーリング保持時間：０．５秒

【０１４０】

温度範囲は、おおよそ、ホットタック範囲（すなわち、少なくとも最小ホットタックシールが達成され、溶け落ち温度前の温度範囲）により得られる。密封シートを、１インチ幅のストリップに切り出す前、２３℃（±２℃）及び５０％　Ｒ．Ｈ（±５％）で、最短でも3時間コンディショニングする。次いで、これらのストリップを、試験前、２３°（±２℃）及び５０％　Ｒ．Ｈ（±５％）で、最短でも２４時間、さらにコンディショニングする。試験のため、ストリップを、２インチの初期分離で引張試験機のグリップに装着し、２３℃（±２℃）及び５０％　Ｒ．Ｈ（±５％）で、１０インチ／分のグリップ分離速度で引っ張る。立証されていないストリップを、試験する。６回の反復試験を、各シーリング温度で実施する。ヒートシール開始温度は、１．０１ｂ／インチまたは２．６Ｎ／１５ｍｍのシールが得られる最低温度として決定される。

【０１４１】

実施例１～４及び比較実施例Ａ～Ｃ

本発明の実施例１～４はそれぞれ、表５中に報告された製剤成分に基づいて、表４中に報告された条件下で、３つの単軸押出機を装備したＣｏｌｌｉｎ博士の共押出キャストフィルムライン上で調製された共押出キャストフィルムプロセスにより調製された約５ミルの厚さを有する３層のキャストフィルムである。Ｃ層は、全フィルム厚の約６０％である基板層である。Ｂ層は、全厚の約２０％である連結層である。Ａ層は、全厚の約２０％であるシーラント層である。

【０１４２】

比較実施例Ａ、Ｂ、及びＣは、表５中に報告された製剤成分に基づいて、表４Ａ中に報告された条件下で、３つの単軸押出機を装備したＣｏｌｌｉｎ博士の共押出キャストフィルムライン上で調製された共押出キャストフィルムプロセスにより調製された約５ミルの厚さを有する２層のキャストフィルムである。Ｃ層は、全フィルム厚の約８０％である基板層である。Ａ層は、全厚の約２０％であるシーラント層である。

【０１４３】

本発明の実施例１ならびに比較実施例Ａ、Ｂ、及びＣは、それらの特性について試験し、これらの結果を図２及び表６中に報告する。

【０１４４】

表４は、本発明の実施例１～４におけるプロセス条件を示す。表４Ａは、比較実施例Ａ及びＢにおけるＣｏｌｌｉｎキャストフィルムラインのプロセス条件を示す。表５は、実施例１～４及び比較Ａ、Ｂ、及びＣ（それぞれ、２ミルまたは５０．８μｍの厚さ）の層構造を示す。

【０１４５】

【表４】

表4

ダイの全ギャップ(ミル)	20		
エアギャップ(インチ)	0．75		
フィルム幅(インチ)	8		
フィルム厚(ミル)	1．2／2／5		
全スループット(Kg／時)	6		
	押出機A	押出機B	押出機C
材料	PE1 (シーラント層)	CBC1 (連結層)	PP1 (基板)
標的厚さ(%)	25	30	25
融解温度(℃)	234～238	234～236	234～237
1．2／2／5ミルのフィルムにおける スループット(Kg／時)	1．0～1．2	1．0～1．2	3
スクリュー速度(rpm)	26／24／20	45／40／15	74／45／14

【０１４６】

【表４Ａ】

表4A

ダイの全ギャップ(ミル)	20		
エアギャップ(インチ)	0．75		
フィルム幅(インチ)	8		
フィルム厚(ミル)	5		
全スループット(Kg／時)	6		
	押出機A	押出機B	押出機C
材料	PE1またはter－PP (シーラント層)	PP1 (基板)	PP1 (基板)
標的厚さ(%)	25	30	25
融解温度(℃)	234～238	234～236	234～237
1．2／2／5ミルのフィルムにおける スループット(Kg／時)	1．0～1．2	1．0～1．2	3
スクリュー速度(rpm)	26／24／20	45／40／15	74／45／14

【０１４７】

【表５】

表5

実施例	C層	B層	A層	C／B／Aの厚さ (全厚の割合)
本発明の実施例1	PP1	CBC1	PE1	60／20／20
本発明の実施例2	PP1	CBC2	PE2	60／20／20
本発明の実施例3	PP1	CBC2	PE3	60／20／20
本発明の実施例4	PP1	CBC3	PE2	60／20／20
比較A	PP1	－－	PE1	80／0／20
比較B	PP1	－－	ter－PP	80／0／20
比較C	PP1	－－	80重量%のter－PP＋ 20重量%のPBE1	80／0／20

【０１４８】

図２は、実施例１～４ならびに比較実施例Ａ、Ｂ、及びＣにおけるヒートシールの結果を比較する。例えば、本発明の実施例１は、１５１ｂ／インチのプラトーシール強度及び

約８０～９０℃のシール開始温度（ＳＩＴ）を示す。比較実施例Ｂ及びＣを上回る本発明の実施例１～４の利点は、より低温で比較的高いシール強度であるが、比較実施例Ａと比較して改善されたヘイズを有する。ＰＥ１が連結層のないシーラント層として用いられる場合、シールは、剥離試験中、層間剥離され、これにより、低いヒートシール強度をもたらす。比較実施例Ｂ及びＣを上回る本発明の実施例１の利点は、より低いＳＩＴである。ＳＩＴは、本発明の実施例１においては、８０～９０℃であるが、比較実施例Ｂ及びＣにおいては、１００～１１０℃である。

【０１４９】

表６は、実施例１～４及び比較実施例Ａ～Ｃのヒートシール強度及びヘイズを要約する。実施例１～４は、約１５１ｂ／インチの範囲でプラトー強度を有する。実施例１～４におけるＳＩＴは、１００℃以下であり、実施例１～２におけるＳＩＴは、９０℃以下である。実施例１～４の全ヘイズは、１．７％であるのに対し、比較Ａ～Ｃは、３～７％の全ヘイズを示す。

【０１５０】

【表６】

表6

		シール強度(lb／インチ)								
実施例	厚さ(ミル)	80℃	90℃	100℃	110℃	120℃	130℃	140℃	150℃	全ヘイズ(%)
1	5.0	0.03	5.47	8.66	9.40	13.78	15.16	14.99	14.65	1.7
2	5.0	0.02	3.31	6.21	6.02	13.54	14.59	17.39	14.76	1.7
3	5.0	0.03	0.07	4.05	6.58	10.36	16.01	15.38	14.98	1.7
4	5.0	0.03	0.05	11.94	14.63	15.81	15.33	16.02	16.01	1.6
比較A	5.0	0.70	1.11	1.44	3.59	4.94	8.70	5.10	3.24	6.5
比較B	5.0	0.00	0.00	0.00	6.49	16.84	16.82	17.50	16.96	3.7
比較C	5.0	0.00	0.00	0.20	4.82	13.78	15.30	15.80	16.40	3.6

【０１５１】

実施例５～８

本発明の実施例５～８は、表８中に報告された製剤成分に基づいて、表７中に報告された条件下で、３つの単軸押出機を装備したＣｏｌｌｉｎ博士の共押出キャストフィルムライン上で共押出キャストフィルムプロセスにより調製された約１．２ミル（３０．４μｍ）の厚さを有する）３層のキャストフィルムである。Ｃ層は、全フィルム厚の約６０％である基板層である。Ｂ層は、全厚の約２０％である連結層である。Ａ層は、全厚の約２０％であるシーラント層である。

【０１５２】

表７は、本発明の実施例１におけるＣｏｌｌｉｎのキャストフィルムラインのプロセス条件を示すが、表８は、本発明の実施例５～８の層構造を示す。表９は、本発明の実施例５～８のヒートシール特性を示すが、表１０は、これらのサンプルにおける光学特性を示す。

【０１５３】

【表７】

表7

ダイの全ギャップ(ミル)	20		
エアギャップ(インチ)	0．75		
フィルム幅(インチ)	8		
フィルム厚(ミル)	1．2		
全スループット(Kg／時)	6		
	押出機A	押出機B	押出機C
材料	PE1－PE3 (シーラント層)	CBC2－CBC3 (連結層)	PP1 (基板)
標的厚さ(%)	25	30	25
融解温度(℃)	234～238	234～236	234～237
1．2／2／5ミルのフィルムにおける スループット(Kg／時)	1．0～1．2	1．0～1．2	3
スクリュー速度(rpm)	26／24／20	45／40／15	74／45／14

【０１５４】

【表８】

表8

実施例	C層	B層	A層	C／B／Aの厚さ (全厚の割合)	フィルム厚(ミル)
5	PP1	CBC2	PE1	60／20／20	1．2
6	PP1	CBC2	PE2	60／20／20	1．2
7	PP1	CBC2	PE3	60／20／20	1．2
8	PP1	CBC3	PE2	60／20／20	1．2

【０１５５】

実施例５～８のヒートシール特性を表９中に示す。シーラント材として異なるＰＥを用いるこれらの発明サンプルは、３．５～５．２ｌｂ／インチの範囲内でプラトーシール強度を示す。実施例５～８におけるＳＩＴは、１００℃以下であり、実施例５～６は、９０℃以下である。

【０１５６】

【表９】

表9

		シール強度(lb／インチ)							
実施例	厚さ (ミル)	80℃	90℃	100℃	110℃	120℃	130℃	140℃	150℃
5	1．2	0．29	2．52	2．43	3．84	4．76	4．20	4．38	5．23
6	1．2	0．07	1．84	2．69	4．06	4．93	5．11	5．06	4．35
7	1．2		0．22	2．58	2．79	3．52	4．25	3．53	3．72
8	1．2		0．02	3．94	4．14	4．16	5．09	4．41	4．69

【０１５７】

表１０は、実施例５～８の光学特性を示す。実施例５～８の透明度は、約９７％であり、全ヘイズは、約０．６～０．９％である。

【０１５８】

【表１０】

表10

実施例	厚さ(ミル)	透明度（%）	45°グロス（%）	全ヘイズ（%）
5	1.2	97.5	91.0	0.6
6	1.2	97.2	91.5	0.6
7	1.2	96.3	89.5	0.9
8	1.2	97.2	91.7	0.6

【０１５９】

実施例９及びＤ

本発明の実施例９は、表１２中に報告された製剤成分に基づいて、表１１中に詳述される条件下で、３つの単軸押出機を装備したＥｇａｎの共押出キャストフィルムライン（Ｍａｒｇｏｔ　Ｍａｃｈｉｎｅｒｙ，Ｉｎｃ．）の共押出キャストフィルムプロセスにより調製された約２ミル（５０．８μｍ）の厚さを有する３層のキャストフィルムである。Ｃ層は、全フィルム厚の約６０％である基板層である。Ｃ層は、３つの層（Ｃ、Ｄ、及びＥ層）を備える多層基材である。Ｂ層は、全フィルム厚の約１０％である連結層である。Ａ層は、全厚の約２０％であるシーラント層である。

【０１６０】

比較実施例Ｄは、表１２中に報告された製剤成分に基づいて、表１１Ａ中に詳述される条件下で、３つの単軸押出機を装備したＥｇａｎの共押出キャストフィルムライン（Ｍａｒｇｏｔ　Ｍａｃｈｉｎｅｒｙ，Ｉｎｃ．）の共押出キャストフィルムプロセスにより調製された約２ミルの厚さを有する２層のキャストフィルムである。Ｃ層は、全厚の約８０％である基板層である。Ａ層は、全厚の約２０％であるシーラント層である。

【０１６１】

キャストフィルムは、Ｅｇａｎ　Ｐｉｌｏｔ　Ｌａｍｉｎａｔｏｒを用い、溶媒系積層を用いてＰＥＴに積層化される。積層前に、シーラント側にコロナ処理を行い、最大４２ダインの表面張力をもたらす。使用された接着剤は、Ａｄｃｏｔｅ　５７７Ａ（７０％固体）及びＡｄｃｏｔｅ　５７７Ｂ（７１％　固体）である。Ｔｈｅ　Ｄｏｗ　Ｃｈｅｍｉｃａｌ　Ｃｏｍｐａｎｙにより供給された後のＡｄｃｏｔｅ　５７７Ａ及びＡｄｃｏｔｅ　５７７Ｂ。接着システムは、酢酸エチルにより３２重量％の固体にまで希釈された。

【０１６２】

表１３は、実施例９及び比較実施例Ｄの光学特性を比較する。本発明の実施例９の透明度は、比較実施例Ｄよりも若干高く、実施例９のヘイズは、比較実施例Ｄよりも若干低い。概して、両方の実施例が、高い透明度及び低いヘイズを有する。

【０１６３】

表１４中に示されるように、積層後の本発明の実施例９のヒートシール特性は、比較実施例Ｄと比較して、より低いＳＩＴ（＜９０℃）を示す。

【０１６４】

【表１１】

表11

ダイの全ギャップ(ミル)	36				
フィルム幅(インチ)	23				
フィルム厚(ミル)	2				
全スループット(Kg／時)	160～164				
	押出機A	押出機B	押出機C	押出機D	押出機E
材料	PE3 (シーラント層)	連結層	PP2(基板層)		
標的厚さ(%)	20%	10%	24%	23%	23%
融解温度(℃)	237～239	232～233	226～228	214～220	228～231
スループット(Kg／時)	30～32	17～18	37～38	37～38	35～36
スクリュー速度(rpm)	50～53	18～20	46～48	46～47	46～48

【０１６５】

表１１Ａは、比較実施例ＤにおけるＥｇａｎキャストフィルムラインのプロセス条件を示す。

【０１６６】

【表１１Ａ】

表11A

ダイの全ギャップ(ミル)	36				
フィルム幅(インチ)	23				
フィルム厚(ミル)	2				
全スループット(Kg／時)	160～164				
	押出機A	押出機B	押出機C	押出機D	押出機E
材料	Ter－PP (シーラント層)	PP2 (基板層)	PP2(基板層)		
標的厚さ(%)	20%	10%	24%	23%	23%
融解温度(℃)	237～239	232～233	226～228	214～220	228～231
スループット(Kg／時)	30～32	17～18	37～38	37～38	35～36
スクリュー速度(rpm)	50～53	18～20	46～48	46～47	46～48

【０１６７】

表１２は、実施例１０及び比較実施例Ｄの層構造を示す。

【０１６８】

【表１２】

表12

実施例	C層	B層	A層	C／B／Aの厚さ (全厚の割合)	フィルム厚 (ミル)
9	PP2	80重量%のCBC2＋20 重量%のPBE1	PE1	70／10／20	2
D	PP2		Ter－PP	80／0／20	2

【０１６９】

表１３は、積層前の実施例９及び比較実施例Ｄの光学特性を示す。

【０１７０】

【表１３】

表13

実施例	厚さ(ミル)	透明度（%）	45グロス（%）	全ヘイズ（%）
9	2	99.0	89.3	0.8
D	2	97.9	86.9	1.7

【０１７１】

表１４は、積層後の実施例９及びＤのヒートシール特性を示す。

【０１７２】

【表１４】

表14

		シール強度(lb／インチ)							
実施例	厚さ（ミル）	80℃	90℃	100℃	110℃	120℃	130℃	140℃	150℃
9	2	0.00	2.94	5.25	5.51	8.45	9.93	11.97	12.77
D	2			0.15	1.88	2.88	13.97	15.13	15.15

【０１７３】

実施例Ｅ～Ｆ

比較実施例Ｅ及びＦは、表１６中に報告された製剤成分に基づいて、表１５中に報告された条件下で、３つの単軸押出機を装備したＣｏｌｌｉｎ博士の共押出キャストフィルムライン上で共押出キャストフィルムプロセスにより調製された（約２ミル（５０．８μｍ）の厚さを有する）３層のキャストフィルムである。Ｃ層は、全フィルム厚の約６０％である基板層である。Ｂ層は、全厚の約２０％である連結層である。Ａ層は、全厚の約２０％であるシーラント層である。

【０１７４】

比較実施例Ｅ及びＦのヒートシール特性を表１７中に示す。シーラント材としてターポリマー－ＰＰを使用する厚さ２ミルのフィルムサンプルは、６．４～８．０１ｂ／インチの範囲内でプラトーシール強度を示し、剥離試験中、層間剥離は観察されていない。しかしながら、ＳＩＴは、＜１００℃である。

【０１７５】

表１５は、比較実施例Ｅ及びＦにおけるＣｏｌｌｉｎキャストフィルムラインのプロセス条件を示す。

【０１７６】

【表１５】

表15

ダイの全ギャップ(ミル)	20		
エアギャップ(インチ)	0.75		
フィルム幅(インチ)	8		
フィルム厚(ミル)	2		
全スループット(Kg／時)	6		
	押出機A	押出機B	押出機C
材料	Ter－PP (シーラント層)	CBC2－CBC3 (連結層)	PP2 (基板)
L／D	25	30	25
融解温度(℃)	234～238	234～236	234～237
1.2／2／5ミルのフィルムにおける スループット(Kg／時)	1.0～1.2	1.0～1.2	3
スクリュー速度(rpm)	26／24／20	45／40／15	74／45／14

【０１７７】

表１６は、実施例Ｅ及びＦの層構造を示す。

【０１７８】

【表１６】

表16

実施例	C層	B層	A層	C／B／Aの 厚さ比	フィルム厚 (ミル)
E	PP2	CBC2	Ter－PP	60／20／20	2
F	PP2	CBC3	Ter－PP	60／20／20	2

【０１７９】

表１７は、実施例Ｅ及びＦのヒートシール特性を示す。

【０１８０】

【表１７】

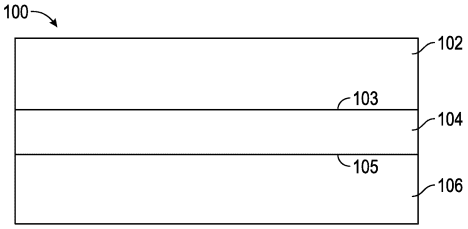
表17

		シール強度(lb／インチ)							
実施例	厚さ (ミル)	80℃	90℃	100℃	110℃	120℃	130℃	140℃	150℃
E	2	0.02	0.02	0.26	6.86	7.51	7.91	7.74	7.97
F	2	0.02	0.02	0.34	6.35	7.09	6.86	7.39	7.10

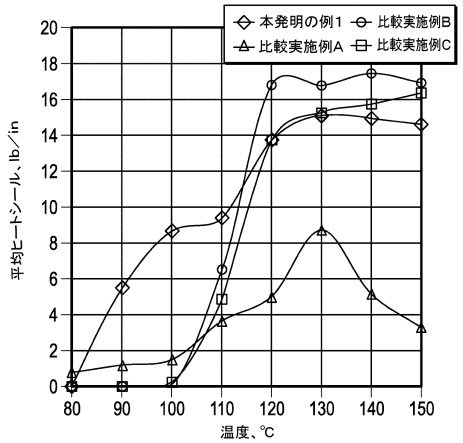
【０１８１】

前述の実施例から、本発明のサンプルが、好ましくは、３０μｍの全フィルム厚に対して３．５１ｂ／インチ（９．２Ｎ／１５ｍｍ）超、５０μｍの全フィルム厚に対して５．７１ｂ／インチ（１５Ｎ／１５ｍｍ）、１２５μｍの全フィルム厚に対して１０１ｂ／インチ（２６．３Ｎ／１５ｍｍ）の高いプラトーヒートシール強度を示すことが認められ得る。積層後の積層フィルムのシール強度は、好ましくは８１ｂ／インチ（２１．０Ｎ／１５ｍｍ）超、より好ましくは１０１ｂ／インチ（２６．３Ｎ／１５ｍｍ）超である。本発明の好ましいフィルムはまた、具体的には１００℃以下の低い加熱開始温度を示す。本発明のフィルムはまた、比較サンプルの透明度よりも高い透明度（透明性）を示す。本発明のサンプルは、８０％超、具体的には８５％超、より具体的には９０％超の透明性を示す。本発明のサンプルはまた、全フィルム厚が５０μｍ以下である場合に、１％未満のヘイズを示す。

【図１】


100
102
103
104
105
106

【図２】


本発明の例1
比較実施例B
比較実施例A
比較実施例C
平均ヒートシール、lb／in
温度、℃
0
2
4
6
8
10
12
14
16
18
20
80
90
100
110
120
130
140
150

フロントページの続き

(74)代理人 100128484
弁理士 井口 司
(74)代理人 100104282
弁理士 鈴木 康仁
(72)発明者 ユシャン・フー
アメリカ合衆国 テキサス州 ７７５８４ ペアーランド パーム・ベイ・ストリート １１３１１
(72)発明者 アーノルド・ロレンツォ
アメリカ合衆国 テキサス州 ７７５８３ ロシャロン ケンダール・グレン・コート ５２０１
(72)発明者 ラジェン・エム・パテル
アメリカ合衆国 テキサス州 ７７５６６ レイク・ジャクソン アローヘッド・ドライブ ２２０
(72)発明者 ゲイリー・アール・マーチャンド
アメリカ合衆国 ルイジアナ州 ７０７３７ ゴンザレス テスクコ・コート ６２７７
(72)発明者 シャオビン・ユン
中華人民共和国 ベイジン １０００２２ チャオヤン・ディストリクト バイジワン サウス・セカンド・ロード リーシェン・インターナショナル・アパートメント サード・ビルディング ユニット ２ ルーム １０１

審査官 増田 亮子

(56)参考文献 国際公開第２０１３／００３５４３（WO，Ａ1）
国際公開第２０１３／００３５４１（WO，Ａ1）
特開２００７－２３７６４１（ＪＰ，Ａ）
国際公開第２０１４／０４３５２２（WO，Ａ1）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
Ｂ３２Ｂ １／００－４３／００
Ｂ６５Ｄ ６５／００－６５／４６