

明 細 書

発明の名称：

フィルム、フィルムの製造方法、およびプロピレン系重合体組成物

技術分野

[0001] 本発明は、プロピレン系重合体を含むフィルム、フィルムの製造方法、およびプロピレン系重合体組成物に関する。

背景技術

[0002] 従来、例えば各種包装材料に用いられるフィルムとしては、ポリエチレンテレフタレート（PET）系二軸延伸フィルムを基材フィルムとし、該基材フィルムに、ポリプロピレン（PP）系無延伸フィルムやポリエチレン（PE）系無延伸フィルムをシーラントフィルムとして積層した構成のものが知られている。かかる構成のフィルムは、基材フィルムが高剛性および高耐熱性を有し、シーラントフィルムが低温でのヒートシール性を有していることで、各種包装袋として優れた機能を発揮しうるものとなっている。

[0003] 近年、この種のフィルムに対してもリサイクルの要望が高まっており、モノマテリアル化が求められている。具体的には、ポリプロピレンやポリエチレンといったオレフィン系樹脂で構成されるシーラントフィルムと同種のオレフィン系樹脂であるポリプロピレン系二軸延伸フィルムを基材フィルムとして採用することが好適とされる。

[0004] しかしながら、ポリプロピレン系二軸延伸フィルムは、ポリエチレンテレフタレート系二軸延伸フィルム等と比較して、引張弾性率（ヤング率）が低い。このため、ポリプロピレン系二軸延伸フィルムを基材フィルムとして用いたフィルムは、その用途が制限されるという問題があった。

[0005] そこで、引張弾性率（ヤング率）を改善したポリプロピレン系二軸延伸フィルムとして、特許文献1には、プロピレン系重合体と β 晶核剤とを含むプロピレン系重合体組成物を用いて形成した二軸延伸フィルムが提案されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開2016-199686号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] しかしながら、特許文献1記載の二軸延伸フィルムは、製造時の流れ方向（以下では、「MD方向」とも記す。）に対して交差する方向（以下では、「TD方向」とも記す。）における高温下での寸法安定性が良好なものとはいえない。また、特許文献1記載の二軸延伸フィルムは、製造時に、TD方向へ均一に延伸し難いため、厚みムラや破れが生じることがあり、延伸加工性が悪いという問題がある。

[0008] そこで、本発明は、MD方向およびTD方向の両方で比較的高い引張弾性率（ヤング率）を有し、且つ、TD方向における高温下での寸法安定性に比較的に優れると共に、製造時のTD方向への均一延伸性に比較的に優れたフィルムを提供することを課題とする。また、斯かるフィルムの製造方法、および斯かるフィルムの製造に用いるプロピレン系重合体組成物を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明に係るフィルムは、
プロピレン系重合体またはプロピレン系重合体組成物を含有し、下記要件（1）～（3）を満たす。

（1）下記式（1）を満たす。

$$-0.35 < B O^{MD} - B O^{TD} < 1.00 \cdots (1)$$

（式中、

$B O^{MD}$ は、複屈折法を用いて測定されるフィルムのMD方向の配向度を示す。

$B O^{TD}$ は、複屈折法を用いて測定されるフィルムのTD方向の配向度を示す。)

(2) 下記式 (I I) を満たす。

$$I_{0.2}^{MD} / I_{0.6}^{TD} < 1.5 \cdots (I I)$$

(式中、

$I_{0.2}^{MD}$ は、小角X線散乱法を用いて測定されるフィルムのMD方向のK r a t k y プロットにおける散乱ベクトルqが 0.2 nm^{-1} の位置の強度を示す。

$I_{0.6}^{TD}$ は、小角X線散乱法を用いて測定されるフィルムのTD方向のK r a t k y プロットにおける散乱ベクトルqが 0.6 nm^{-1} の位置の強度を示す。)

(3) 下記式 (I I I) を満たす。

$$I_{0.2}^{TD} / I_{0.6}^{MD} < 1.5 \cdots (I I I)$$

(式中、

$I_{0.2}^{TD}$ は、小角X線散乱法を用いて測定されるフィルムのTD方向のK r a t k y プロットにおける散乱ベクトルqが 0.2 nm^{-1} の位置の強度を示す。

$I_{0.6}^{MD}$ は、小角X線散乱法を用いて測定されるフィルムのMD方向のK r a t k y プロットにおける散乱ベクトルqが 0.6 nm^{-1} の位置の強度を示す。)

[0010] 本発明に係るフィルムの製造方法は、

プロピレン系重合体と、 β 晶核剤および炭化水素樹脂からなる群より選ばれる少なくとも1種の延伸性改良剤とを含むプロピレン系重合体組成物を、押出機を用いて加熱熔融し、冷却ロール上に押し出すことにより未延伸シートを得る押出工程と、

得られた未延伸シートを、延伸ロールを用いてMD方向に6倍～10倍に延伸することにより、一軸延伸シートを得るMD延伸工程と、

得られた一軸延伸シートを、MD方向に沿って並んだ2列のチャックを用いて、加熱炉内にて、TD方向に4倍～20倍に延伸することにより、二軸延伸フィルムを得るTD延伸工程と、

得られた二軸延伸フィルムのTD方向の延伸を、MD方向に沿って並んだ2列のチャックを用いて、加熱炉内にて、TD方向に16%～30%緩和させる緩和工程とを含む。

[0011] 本発明に係るプロピレン系重合体組成物は、

プロピレン系重合体と、延伸性改良剤とを含有し、

下記要件(11)～(16)を満たす。

(11) 温度230℃、荷重2.16kgで測定されるメルトフローレートが1g/10分～10g/10分である。

(12) 温度230℃、荷重2.16kgで測定されるダイスウェル比が1.23～1.45である。

(13) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定される重量平均分子量(M_w)と数平均分子量(M_n)との比(M_w/M_n)が4.0～7.0である。

(14) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定されるZ平均分子量(M_z)と数平均分子量(M_n)との比(M_z/M_n)が10.0～25.0である。

(15) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定される分子量10万以下の成分量が30質量%～50質量%である。

(16) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定される分子量150万以上の成分量が2.3質量%～5.0質量%である。

発明の効果

[0012] 本発明によれば、MD方向およびTD方向の両方で比較的高い引張弾性率

(ヤング率)を有し、且つ、TD方向における高温下での寸法安定性に比較的優れると共に、製造時のTD方向への均一延伸性に比較的優れたフィルムを提供することができる。また、斯かるフィルムの製造方法、および斯かるフィルムの製造に用いるプロピレン系重合体組成物を提供することができる。

発明を実施するための形態

- [0013] 本実施形態に係るフィルム(具体的には、二軸延伸フィルム)は、プロピレン系重合体またはプロピレン系重合体組成物を含有する。
- [0014] プロピレン系重合体は、プロピレンに由来する単量体単位を50質量%超含む重合体である。例えば、プロピレン系重合体は、プロピレン単独重合体であってもよく、プロピレン系共重合体であってもよい。二軸延伸フィルムの加熱収縮率および剛性の観点から、プロピレン系重合体は、好ましくはプロピレン単独重合体である。プロピレン系共重合体としては、プロピレンと、エチレンおよび炭素原子数4~20の α -オレフィンから選択された少なくとも1種のコモノマーと、を共重合して得られるものが挙げられる。
- [0015] 炭素原子数4~20の α -オレフィンとしては、例えば、1-ブテン、2-メチル-1-プロペン、1-ペンテン、2-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ブテン、1-ヘキセン、2-エチル-1-ブテン、2,3-ジメチル-1-ブテン、2-メチル-1-ペンテン、3-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、3,3-ジメチル-1-ブテン、1-ヘプテン、メチル-1-ヘキセン、ジメチル-1-ペンテン、エチル-1-ペンテン、トリメチル-1-ブテン、メチルエチル-1-ブテン、1-オクテン、メチル-1-ペンテン、エチル-1-ヘキセン、ジメチル-1-ヘキセン、プロピル-1-ヘプテン、メチルエチル-1-ヘプテン、トリメチル-1-ペンテン、プロピル-1-ペンテン、ジエチル-1-ブテン、1-ノネン、1-デセン、1-ウンデセン、1-ドデセン等が挙げられ、好ましくは、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、または1-オクテンであり、より好ましくは1-ブテンである。

- [0016] プロピレン系共重合体としては、例えば、プロピレン-エチレン共重合体、プロピレン- α -オレフィン共重合体等が挙げられる。プロピレン- α -オレフィン共重合体としては、例えば、プロピレン-1-ブテン共重合体、プロピレン-1-ヘキセン共重合体、プロピレン-1-オクテン共重合体、プロピレン-エチレン-1-ブテン共重合体、プロピレン-エチレン-1-ヘキセン共重合体、プロピレン-エチレン-1-オクテン共重合体等が挙げられ、好ましくはプロピレン-エチレン共重合体、プロピレン-1-ブテン共重合体、プロピレン-エチレン-1-ブテン共重合体である。
- [0017] プロピレン系共重合体がプロピレン-エチレン共重合体である場合、エチレン含有量は、二軸延伸フィルムの加熱収縮率および剛性の観点から、好ましくは2.0質量%以下であり、より好ましくは1.0質量%以下であり、さらに好ましくは0.4質量%以下である。
- [0018] プロピレン系共重合体がプロピレン- α -オレフィン共重合体である場合、 α -オレフィン含有量は、二軸延伸フィルムの加熱収縮率および剛性の観点から、好ましくは8.0質量%以下であり、より好ましくは3.0質量%以下であり、さらに好ましくは1.0質量%以下である。
- [0019] プロピレン系共重合体がプロピレン-エチレン- α -オレフィン共重合体である場合、エチレンと α -オレフィンの含有量の合計は、二軸延伸フィルムの加熱収縮率および剛性の観点から、好ましくは8.0質量%以下であり、より好ましくは3.0質量%以下であり、さらに好ましくは1.0質量%以下である。
- [0020] プロピレン系重合体の冷キシレン可溶部量（以下、CXSと略す。）は、好ましくは2.0質量%以下であり、より好ましくは0.1質量%~1.0質量%であり、さらに好ましくは0.3質量%~1.0質量%である。CXSを上記範囲とすることにより、二軸延伸フィルムの製造時に、良好な延伸加工性を呈するとともに、二軸延伸フィルムにおいて、高い剛性および高温下での優れた収縮率を発現させうするという効果がある。プロピレン系重合体のCXSは、例えば、プロピレンの重合時に使用する外部ドナーの種類を選

定することによって、上記の範囲に調整することができる。外部ドナーの具体例としては、シクロヘキシルエチルジメトキシシラン、ジシクロペンチルジメトキシシラン、ジ-tert-ブチルジメトキシシラン等を例示することができる。なお、CXSは、後述の〔実施例〕に記載の方法によって求めることができる。

[0021] プロピレン系重合体のメルトフローレート（以下、MFRと略す。）は、好ましくは $1\text{ g}/10\text{ 分}$ ～ $50\text{ g}/10\text{ 分}$ であり、より好ましくは $1\text{ g}/10\text{ 分}$ ～ $20\text{ g}/10\text{ 分}$ であり、さらに好ましくは $2\text{ g}/10\text{ 分}$ ～ $15\text{ g}/10\text{ 分}$ である。MFRが上記範囲にあるプロピレン系重合体を用いることにより、熔融状態のポリプロピレンが適度な粘度を有し、二軸延伸フィルムの製造時に、良好な延伸加工性を呈するとともに、二軸延伸フィルムにおいて、高い剛性および高温下での優れた収縮率を発現させうるという効果がある。プロピレン系重合体のMFRは、例えば、プロピレンの重合時に使用する水素濃度を調整することによって変化させることができる。なお、MFRは、後述の〔実施例〕に記載の方法によって求めることができる。

[0022] プロピレン系重合体組成物は、1種のプロピレン系重合体と、該プロピレン系重合体以外の他の成分とを含むものであってもよく、少なくとも2種のプロピレン系重合体を含むものであってもよい。プロピレン系重合体組成物中のプロピレン系重合体の含有量としては、好ましくは80質量%～99.9質量%であり、より好ましくは90質量%～99.9質量%であり、さらに好ましくは99質量%～99.9質量%である。プロピレン系重合体組成物としては、例えば、MFRの異なる複数種類のプロピレン系重合体を含むものであってもよい。好ましい例としては、MFRが $4\text{ g}/10\text{ 分}$ 以下であるプロピレン系重合体（a）と、MFRが $20\text{ g}/10\text{ 分}$ ～ $500\text{ g}/10\text{ 分}$ であるプロピレン系重合体（b）とを含むプロピレン系重合体組成物である。

[0023] プロピレン系重合体組成物におけるプロピレン系重合体（a）およびプロピレン系重合体（b）の含有量は、プロピレン系重合体（a）およびプロピ

レン系重合体（b）の合計含有量に対して、プロピレン系重合体（a）が50質量%～90質量%、プロピレン系重合体（b）が10質量%～50質量%であることが好ましく、プロピレン系重合体（a）が50質量%～85質量%、プロピレン系重合体（b）が15質量%～50質量%であることがより好ましい。MFRの異なる複数種類のプロピレン系重合体を含むプロピレン系重合体組成物を用いることにより、二軸延伸フィルムの製造における延伸加工時の厚みムラが低減され、良好な延伸加工性を呈するとともに、二軸延伸フィルムにおいて、高い剛性および高温下での優れた収縮率を発現させうるという効果がある。

[0024] プロピレン系重合体組成物の冷キシレン可溶部量（CXS）は、好ましくは2.0質量%以下であり、より好ましくは0.1質量%～1.0質量%であり、さらに好ましくは0.3質量%～1.0質量%である。CXSを上記範囲とすることにより、二軸延伸フィルムの製造時に、良好な延伸加工性を呈するとともに、二軸延伸フィルムにおいて、高い剛性および高温下での優れた収縮率を発現させうるという効果がある。なお、CXSは、後述の〔実施例〕に記載の方法によって求めることができる。

[0025] 少なくとも2種のプロピレン系重合体を含むプロピレン系重合体組成物を製造する方法としては、少なくとも2種のプロピレン系重合体をそれぞれ個別に製造し、得られたプロピレン系重合体を混合してプロピレン系重合体組成物とする方法が挙げられる。少なくとも2種のプロピレン系重合体をそれぞれ個別に製造する方法としては、公知の重合方法が挙げられる。例えば、不活性溶媒の存在下で行われる溶媒重合法、液状のモノマーの存在下で行われる塊状重合法、実質上液状の媒体の不存在下で行われる気相重合法等が挙げられる。好ましくは気相重合法である。また、少なくとも2種のプロピレン系重合体を含むプロピレン系重合体組成物を製造する方法としては、上記の重合方法を2種類以上組み合わせる重合方法や、複数の重合工程を多段的に行う方法（多段重合法）等も挙げられる。

[0026] 個別に製造された少なくとも2種のプロピレン系重合体を混合する方法と

しては、これら重合体が均一に分散する方法であればよい。例えば、少なくとも2種のプロピレン系重合体をリボンプレンダー、ヘンシェルミキサー、タンブラーミキサー等で混合し、その混合物を押出し機等で熔融混練する方法、少なくとも2種のプロピレン系重合体をそれぞれ個別に熔融混練しペレット化し、ペレット化したものを上記と同様の方法で混合し、さらに熔融混練する方法、少なくとも2種のプロピレン系重合体をそれぞれ個別に熔融混練しペレット化し、ペレット化したものをドライブレンド等でブレンドした後、直接フィルム加工機で混合する方法、少なくとも2種のプロピレン系重合体をそれぞれ個別に熔融混練しペレット化し、ペレット化したものを個別にフィルム加工機の押出機にフィードして混合する方法等が挙げられる。また、一方のプロピレン系重合体100質量部に対して、他方のプロピレン系重合体を1～99質量部含むマスターバッチをあらかじめ作製し、所定の濃度となるように適宜混合する方法等も挙げられる。

[0027] また、個別に製造された少なくとも2種のプロピレン系重合体を混合する際には、必要に応じて、安定剤、滑剤、帯電防止剤、および抗ブロッキング剤、無機または有機の各種フィラー等を添加してもよい。

[0028] 少なくとも2種のプロピレン系重合体のそれぞれの重合に用いられる触媒としては、これらを個別に重合する場合においても多段重合法を用いる場合においても、プロピレンの立体規則性重合用触媒が用いられる。

[0029] プロピレンの立体規則性重合用触媒としては、例えば、三塩化チタン触媒、チタン、マグネシウム、ハロゲン、および電子供与体を必須成分とするTi-Mg系触媒等の固体触媒成分に、有機アルミニウム化合物や必要に応じて電子供与性化合物等の第3成分を組み合わせた触媒系、メタロセン系触媒等が挙げられる。

[0030] 好ましくは、マグネシウム、チタン、ハロゲンおよび電子供与体を必須成分とする固体触媒成分、有機アルミニウム化合物および電子供与性化合物を組み合わせた触媒系であり、その具体例としては、特開昭61-218606号公報、特開昭61-287904号公報、特開平7-216017号公

報、特開2004-182876等に記載された触媒系が挙げられる。

[0031] 本実施形態に係るプロピレン系重合体組成物は、上記のようなプロピレン系重合体に加え、延伸性改良剤を含有する。延伸性改良剤としては、例えば、 β 晶核剤および炭化水素樹脂からなる群より選ばれる少なくとも1種が挙げられる。

[0032] β 晶核剤とは、プロピレン系重合体に六方晶構造である β 晶を形成させることができる化合物をいう。 β 晶核剤としては、特に限定されず、従来公知の種々の β 晶核剤を利用することができる。例えば、N, N'-ジシクロヘキシル-2, 6-ナフタレンジカルボキシアミド、N, N'-ジシクロヘキシルテレフタルアミド、N, N'-ジフェニルヘキサンジアミド等に代表されるアミド化合物、テトラオキサスピロ化合物、キナクリドン、キナクリドンキノン等に代表されるキナクリドン類、ナノスケールのサイズを有する酸化鉄、ピメリン酸カルシウム、1, 2-ヒドロキシステアリン酸カリウム、安息香酸マグネシウム若しくはコハク酸マグネシウム、フタル酸マグネシウムなどに代表されるカルボン酸のアルカリ若しくはアルカリ土類金属塩、ベンゼンスルホン酸ナトリウム若しくはナフタレンスルホン酸ナトリウムなどに代表される芳香族スルホン酸化合物、二若しくは三塩基カルボン酸のジエステル類若しくはトリエステル類、フタロシアニンブルーなどに代表されるフタロシアニン系顔料、有機二塩基酸である成分Aと周期律表第IIA族金属の酸化物、水酸化物若しくは塩である成分Bとからなる二成分系化合物、環状リン化合物とマグネシウム化合物からなる組成物などが挙げられ、これらのうちの1種類または2種類以上を混合して用いても良い。上記の β 晶核剤の中でも、アミド化合物のN, N'-ジシクロヘキシル-2, 6-ナフタレンジカルボキシアミド、N, N'-ジシクロヘキシルテレフタルアミド、N, N'-ジフェニルヘキサンジアミドが好ましく、N, N'-ジシクロヘキシル-2, 6-ナフタレンジカルボキシアミドがより好ましい。

[0033] 炭化水素樹脂としては、石油系不飽和炭化水素を原料とするシクロペンタジエン系樹脂、および、高級オレフィン系炭化水素を主原料とする樹脂等が

挙げられる。

[0034] プロピレン系重合体組成物は、下記要件(11)～(16)を満たす。

(11) 温度230℃、荷重2.16kgで測定されるMFRが、1g/10分～10g/10分であり、好ましくは2g/10分～6g/10分であり、より好ましくは2g/10分～4g/10分であること。

なお、MFRは、例えば、プロピレンの重合時に使用する水素濃度を調整することによって変化させることができる。また、MFRは、後述の「実施例」に記載の方法で求めることができる。

(12) 温度230℃、荷重2.16kgで測定されるダイスウェル比が、1.23～1.45であり、好ましくは1.23～1.40であり、より好ましくは1.28～1.38であること。

なお、ダイスウェル比は、例えば、MFRの異なる複数種類のプロピレン系重合体を混合して、プロピレン系重合体組成物の分子量および分子量分布を調整することによって数値を変化させることができる。また、ダイスウェル比は、後述の「実施例」に記載の方法で求めることができる。

(13) ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（以下では、GPCと記す）で測定される重量平均分子量(M_w)と数平均分子量(M_n)との比(M_w/M_n)が、4.0～7.0であり、好ましくは4.0～6.0であり、より好ましくは4.0～5.5であること。

なお、M_w/M_nは、例えば、MFRの異なる複数種類のプロピレン系重合体を混合して、プロピレン系重合体組成物の分子量分布を調整することによって数値を変化させることができる。また、M_w/M_nは、後述の「実施例」に記載の方法で求めることができる。

(14) GPCで測定されるZ平均分子量(M_z)と数平均分子量(M_n)

との比 (M_z/M_n) が、10.0～25.0であり、好ましくは10.0～20.0であり、より好ましくは11.0～18.5であること。

なお、 M_z/M_n は、例えば、MFRの異なる複数種類のプロピレン系重合体を混合して、プロピレン系重合体組成物の分子量分布を調整することによって数値を変化させることができる。また、 M_z/M_n は、後述の〔実施例〕に記載の方法で求めることができる。

(15) GPCで測定される分子量10万以下の成分量が、30質量%～50質量%であり、好ましくは30質量%～45質量%であり、より好ましくは30質量%～40質量%であること。

なお、分子量10万以下の成分量は、例えば、MFRの異なる複数種類のプロピレン系重合体を混合して、プロピレン系重合体組成物の分子量および分子量分布を調整することによって数値を変化させることができる。また、分子量10万以下の成分量は、後述の〔実施例〕に記載の方法で求めることができる。

(16) GPCで測定される分子量150万以上の成分量が、2.3質量%～5.0質量%であり、好ましくは2.6質量%～5.0質量%であり、より好ましくは2.6質量%～4.0質量%であること。

なお、分子量150万以上の成分量は、例えば、MFRの異なる複数種類のプロピレン系重合体を混合して、プロピレン系重合体組成物の分子量および分子量分布を調整することによって数値を変化させることができる。また、分子量150万以上の成分量は、後述の〔実施例〕に記載の方法で求めることができる。

[0035] 本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）は、上記のプロピレン系重合体またはプロピレン系重合体組成物を用いて二軸延伸することによって得ることができる。二軸延伸の具体的な方法については、後述

する。

- [0036] 本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）は、要件（1）として下記式（1）を満たす。

$$-0.35 < BO^{MD} - BO^{TD} < 1.00 \cdots (1)$$

（式中、

BO^{MD} は、複屈折法を用いて測定されるフィルムのMD方向の配向度を示す。

BO^{TD} は、複屈折法を用いて測定されるフィルムのTD方向の配向度を示す。）

- [0037] プロピレン系重合体またはプロピレン系重合体組成物を含む二軸延伸フィルムは、延伸前のフィルムを延伸することにより延伸前のフィルム中に含まれるプロピレン系重合体の分子鎖が配向し、高いヤング率を示す。高いヤング率を示す二軸延伸フィルムを得るためには、延伸前のフィルムを強く延伸し、プロピレン系重合体の分子鎖を配向させる必要があるが、例えば、MD方向に延伸前のフィルムを強く延伸すると直交するTD方向のプロピレン系重合体の分子鎖の配向が低下する傾向がある。そのため、MD方向およびTD方向のいずれも高いヤング率を示す二軸延伸フィルムを得るためには、MD方向およびTD方向のプロピレン系重合体の分子鎖をバランスよく配向させる必要がある。「 $BO^{MD} - BO^{TD}$ 」が上記の範囲であることで、MD方向およびTD方向のプロピレン系重合体の分子鎖がバランスよく配向したフィルムとなるため、MD方向およびTD方向のいずれでも高いヤング率を示すものとなる。

- [0038] $BO^{MD} - BO^{TD}$ が -0.35 より小さいと、TD方向に配向したプロピレン系重合体の分子鎖が多いことを示し、TD方向のヤング率に優れるがMD方向のヤング率に劣ったフィルムとなる。

$BO^{MD} - BO^{TD}$ が1より大きいと、MD方向に配向したプロピレン系重合

体の分子鎖が多いことを示し、MD方向のヤング率に優れるがTD方向のヤング率に劣ったフィルムとなる。

[0039] MD方向およびTD方向のヤング率により優れるフィルムを得るためには、 $B O^{MD} - B O^{TD}$ が -0.35 より大きく 0.35 より小さいことが好ましく、 -0.25 より大きく 0.25 より小さいことがより好ましい。

[0040] なお、 $B O^{MD}$ および $B O^{TD}$ は、例えば、MD方向およびTD方向への延伸倍率および延伸温度の調整によりプロピレン系重合体の分子鎖の配向を制御することによって数値を変化させることができる。また、 $B O^{MD}$ および $B O^{TD}$ は、後述の「実施例」に記載の方法で求めることができる。

[0041] 本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）は、要件（2）として下記式（11）を満たす。

$$I_{0.2}^{MD} / I_{0.6}^{TD} < 1.5 \cdots (11)$$

（式中、

$I_{0.2}^{MD}$ は、小角X線散乱法を用いて測定されるフィルムのMD方向のK r a t k y プロットにおける散乱ベクトル q が 0.2 nm^{-1} の位置の強度を示す。

$I_{0.6}^{TD}$ は、小角X線散乱法を用いて測定されるフィルムのTD方向のK r a t k y プロットにおける散乱ベクトル q が 0.6 nm^{-1} の位置の強度を示す。）

[0042] $I_{0.2}^{MD}$ は、MD方向に配向したプロピレン系重合体のラメラ構造を反映する。 $I_{0.6}^{TD}$ は、MD方向に配向したプロピレン系重合体のラメラ構造が強い延伸により崩壊し生成したプロピレン系重合体のフィブリル構造を反映する。

[0043] $I_{0.2}^{MD} / I_{0.6}^{TD}$ が小さいことは、フィルム中に、プロピレン系重合体のラメラ構造が少なく、プロピレン系重合体のフィブリル構造が多いことを意味する。そして、そのようなフィルムは、MD方向の高いヤング率を示す。

$I_{0.2}^{MD} / I_{0.6}^{TD}$ は、1.3より小さいことが好ましく、0.1より大きく1.2より小さいことがより好ましい。

[0044] なお、 $I_{0.2}^{MD}$ および $I_{0.6}^{TD}$ は、例えば、MD方向への延伸倍率および延伸温度の調整によりプロピレン系重合体の分子鎖の配向構造を制御することによって数値を変化させることができる。また、 $I_{0.2}^{MD}$ および $I_{0.6}^{TD}$ は、後述の〔実施例〕に記載の方法で求めることができる。

[0045] 本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）は、要件（3）として下記式（ⅠⅠⅠ）を満たす。

$$I_{0.2}^{TD} / I_{0.6}^{MD} < 1.5 \cdots (ⅠⅠⅠ)$$

（式中、

$I_{0.2}^{TD}$ は、小角X線散乱法を用いて測定されるフィルムのTD方向のK r a t k yプロットにおける散乱ベクトル q が 0.2 nm^{-1} の位置の強度を示す。

$I_{0.6}^{MD}$ は、小角X線散乱法を用いて測定されるフィルムのMD方向のK r a t k yプロットにおける散乱ベクトル q が 0.6 nm^{-1} の位置の強度を示す。）

[0046] $I_{0.2}^{TD}$ は、TD方向に配向したプロピレン系重合体のラメラ構造を反映する。 $I_{0.6}^{MD}$ は、MD方向に配向したプロピレン系重合体のラメラ構造が強い延伸により崩壊し生成したプロピレン系重合体のフィブリル構造を反映する。

[0047] $I_{0.2}^{TD} / I_{0.6}^{MD}$ が小さいことは、フィルム中に、プロピレン系重合体のラメラ構造が少なく、プロピレン系重合体のフィブリル構造が多いことを意味する。そして、そのようなフィルムは、TD方向の高いヤング率を示す。

$I_{0.2}^{TD} / I_{0.6}^{MD}$ は、1.3より小さいことが好ましく、1.2より小さいことがより好ましい。

[0048] なお、 $I_{0.2}^{TD}$ および $I_{0.6}^{MD}$ は、例えば、TD方向への延伸倍率および延

伸温度の調整によりプロピレン系重合体の配向構造を制御することによって数値を変化させることができる。また、 $I_{0.2}^{TD}$ および $I_{0.6}^{MD}$ は、後述の[実施例]に記載の方法で求めることができる。

[0049] 本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）は、要件（4）として下記式（IV）を満たすことが好ましい。

$$I_{nt_1} / I_{nt_2} > 1.1 \cdots (IV)$$

（式中、

I_{nt_1} は、広角X線散乱法を用いて測定されるフィルムの2次元散乱像において、プロピレン系重合体の α 型結晶の110面のTD方向におけるピークトップ強度を示す。

I_{nt_2} は、広角X線散乱法を用いて測定されるフィルムの2次元散乱像において、プロピレン系重合体の α 型結晶の110面のTD方向から45°におけるピークトップ強度を示す。）

[0050] I_{nt_1} は、TD方向に配向したプロピレン系重合体の α 型結晶を示し、 I_{nt_2} は、TD方向とMD方向との中間方向に配向したプロピレン系重合体の α 型結晶を示す。 I_{nt_1} は、散乱角 2θ が10°～16°の範囲に観測されることが好ましく、10～13°の範囲に観測されることがより好ましい、 I_{nt_2} は散乱角 2θ が10°～16°の範囲に観測されることが好ましく、10～13°の範囲に観測されることがよりに好ましい。プロピレン系重合体の α 型結晶がTD方向に適度に配向するとフィルムのTD方向の幅のバラツキ（均一延伸性）に優れたフィルムとなる。 I_{nt_1} / I_{nt_2} は、1.1より大きく4.0より小さいことがより好ましく、1.1より大きく2.5より小さいことがさらに好ましい。

[0051] なお、 I_{nt_1} および I_{nt_2} は、逐次二軸延伸方式によってプロピレン系重合体組成物を延伸する際に、MD方向およびTD方向への延伸倍率および延伸温度の調整によりプロピレン系重合体の分子鎖の配向を制御する

ことによって数値を変化させることができる。また、 Int_1 および Int_2 は、後述の〔実施例〕に記載の方法で求めることができる。

[0052] 本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）は、要件（5）を満たすことが好ましい。

（5）広角X線回折法を用いて測定されるプロピレン系重合体の α 型結晶の040面の回折ピークが 16.81° 以上である。

[0053] 高いヤング率を示す二軸延伸フィルムを得るために、高い延伸倍率で延伸前のフィルムを延伸すると、フィルム中に格子間隔の広い不安定な結晶が形成され、熱による収縮が起きやすくなる傾向がある。広角X線回折法を用いて測定されるプロピレン系重合体の α 型結晶の040面の回折ピークの位置が 16.81° 以上であることは、フィルム中に含まれる不安定な結晶の量が少ないことを意味するため、加熱収縮性に優れたフィルムとなる。広角X線回折法を用いて測定されるプロピレン系重合体の α 型結晶の040面の回折ピークの位置は、 16.85° 以上であることがより好ましく、 16.90° 以上であることがさらに好ましい。

[0054] なお、斯かる回折ピークは、例えば、TD方向への緩和工程における緩和率および温度の調整によりプロピレン系重合体の分子鎖の配向を制御することによって数値を変化させることができる。また、斯かる回折ピークは、後述の〔実施例〕に記載の方法で求めることができる。

[0055] 本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）は、要件（6）として下記式（V）を満たすことが好ましい。

$$0.5 \times (\text{Int_A} + \text{Int_B}) / \text{Int_C} > 1.1 \cdots (V)$$

（式中、

Int_A は、広角X線散乱法を用いて測定されるフィルムの2次元散乱像において、プロピレン系重合体の α 型結晶の110面のTD方向における

ピークトップ強度を示す。

I_{nt_B} は、広角X線散乱法を用いて測定されるフィルムの2次元散乱像において、プロピレン系重合体の α 型結晶の110面のMD方向におけるピークトップ強度を示す。

I_{nt_C} は、広角X線散乱法を用いて測定されるフィルムの2次元散乱像において、プロピレン系重合体の α 型結晶の110面のTD方向から45°におけるピークトップ強度を示す。)

[0056] I_{nt_A} は、TD方向に配向したプロピレン系重合体の α 型結晶を示し、 I_{nt_B} は、MD方向に配向したプロピレン系重合体の α 型結晶を示し、 I_{nt_C} は、TD方向とMD方向との中間方向に配向したプロピレン系重合体の α 型結晶を示す。 $0.5 \times (I_{nt_A} + I_{nt_B}) / I_{nt_C}$ が1.1より大きいことはプロピレン系重合体の α 型結晶がTD方向またはMD方向に適度に配向していることを表し、フィルムのTD方向の幅のバラツキ（均一延伸性）に優れたフィルムとなる。 $0.5 \times (I_{nt_A} + I_{nt_B}) / I_{nt_C}$ は、1.1より大きく3.0より小さいことがより好ましく、1.1より大きく2.0より小さいことがさらに好ましい。

[0057] なお、 I_{nt_A} 、 I_{nt_B} および I_{nt_C} は、逐次二軸延伸方式によってプロピレン系重合体組成物を延伸する際に、MD方向およびTD方向への延伸倍率および延伸温度の調整によりプロピレン系重合体の分子鎖の配向を制御することによって数値を変化させることができる。また、 I_{nt_A} 、 I_{nt_B} および I_{nt_C} は、後述の〔実施例〕に記載の方法で求めることができる。

[0058] 本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）の厚みとしては、好ましくは10 μ m～70 μ mであり、より好ましくは10 μ m～30 μ mである。

[0059] 本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）の製造方法は、逐次二軸延伸方式によるものである。斯かる製造方法では、プロピレン系重合体と、 β 晶核剤および炭化水素樹脂からなる群より選ばれる少なくとも

も1種の延伸性改良剤とを含むプロピレン系重合体組成物を用いる。

- [0060] 本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）の製造方法は、プロピレン系重合体組成物を、押出機を用いて加熱熔融し、冷却ロール上に押し出すことにより未延伸シートを得る押出工程を備える。押出工程では、例えば、プロピレン系重合体組成物を、押出機を用いて加熱熔融し、Ｔダイより冷却ロール上に押し出すことによってシート状に冷却固定し、未延伸シートを得ることができる。
- [0061] また、本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）の製造方法は、押出工程で得られる未延伸シートを、延伸ロールを用いてMD方向に6倍～10倍、好ましくは8倍～10倍に延伸することにより、一軸延伸シートを得るMD延伸工程を備える。
- [0062] また、本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）の製造方法は、MD延伸工程で得られる一軸延伸シートを、MD方向に沿って並んだ2列のチャックを用いて、加熱炉内にて、TD方向に4倍～20倍、好ましくは4倍～10倍に延伸することにより、二軸延伸フィルムを得るTD延伸工程を備える。TD延伸工程では、例えば、一軸延伸シートのTD方向の両側端を、MD方向に沿って並んだ2列のチャックで掴み、予熱部、延伸部、熱処理部を備えた加熱炉内にて、一軸延伸シートをTD方向に上記の倍率で延伸することによって二軸延伸フィルムを得ることができる。
- [0063] また、本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）の製造方法は、TD延伸工程で得られる二軸延伸フィルムのTD方向の延伸を、MD方向に沿って並んだ2列のチャックを用いて、加熱炉内にて、TD方向に16%～30%、好ましくは18%～25%緩和させる緩和工程を備える。該緩和工程では、TD延伸工程で得られる二軸延伸フィルムのTD方向の両端部を把持した2列のチャックのTD方向の間隔を狭めることにより該TD方向の延伸を上記の割合で緩和（リラックス）させる。緩和率が16%未満では、加熱時の収縮率が高くなり、耐熱性に優れた二軸延伸フィルムが得られない。また、緩和率が30%を超えると、フィルムの厚みムラが大きく

なりやすい。緩和率は、下記式（X）により求めることができる。

$$\text{緩和率} = (L1 - L2) / L1 \times 100 \cdots (X)$$

（式中、

L1はフィルムを緩和する前のTD方向におけるチャック間の距離、L2はフィルムを緩和した後のTD方向におけるチャック間の距離を示す。）

[0064] また、本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）の製造方法は、必要に応じてコロナ処理等を行う工程を含んでもよい。

[0065] 上記の製造方法では、プロピレン系重合体組成物を押出機で加熱溶融する際の溶融温度は、230～290℃が好ましい。Tダイより押出されたプロピレン系重合体組成物をシート状に冷却固定する際の冷却ロールの温度は、10℃～60℃が好ましい。未延伸シートをMD方向に延伸する際の延伸ロールの温度は、110～165℃が好ましい。一軸延伸シートをTD方向に延伸する際の加熱温度は、150～200℃が好ましく、TD方向に緩和する際の加熱温度は、150～200℃が好ましい。

[0066] 本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）は、多層フィルムの一層として用いることができる。多層フィルムは、本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）からなる層に任意の層を積層したものである。例えば、本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）に、シーラント層、ガスバリア層、接着層、印刷層等の任意の層を積層して多層フィルムを構成することができる。中でも、本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）からなる層にオレフィン系のフィルムを用いたシーラント層を積層することが好ましく、得られた多層フィルムは、リサイクルしやすいという効果がある。本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）を用いた多層フィルムを作製する方法としては、通常用いられる押出ラミネート法、熱ラミネート法、ドライラミネート法等が挙げられる。

- [0067] 本実施形態に係るフィルム（具体的には、二軸延伸フィルム）は、各種包装材料として用いることができる。例えば、上記の多層フィルムで形成した包装袋は、食品、衣料品、雑貨等の任意の包装対象物を包装する用途で使用し得る。
- [0068] 以上のように、本実施形態に係るフィルムは、上記の要件（１）～（３）を満たすことで、ＭＤ方向およびＴＤ方向の両方で比較的高い引張弾性率（ヤング率）を有し、且つ、ＴＤ方向における高温下での寸法安定性に比較的に優れると共に、製造時のＴＤ方向への均一延伸性に比較的に優れたものとなる。
- [0069] また、本実施形態に係るフィルムは、上記の要件（４）を満たすことで、より均一延伸性に優れたものとなる。
- [0070] また、本実施形態に係るフィルムは、上記の要件（５）を満たすことで、ＴＤ方向における高温下での寸法安定性により優れたものとなる。
- [0071] また、本実施形態に係るフィルムの製造方法は、ＭＤ延伸工程、ＴＤ延伸工程および緩和工程が、上記の割合で行われることで、ＭＤ方向およびＴＤ方向の両方で比較的高い引張弾性率（ヤング率）を有し、且つ、ＴＤ方向における高温下での寸法安定性に比較的に優れると共に、製造時のＴＤ方向への均一延伸性に比較的に優れたフィルムを得ることができる。
- [0072] また、本実施形態に係るプロピレン系重合体組成物は、ＭＦＲ、ダイスウェル比、 M_w/M_n 、および、 M_z/M_n が上記の範囲であり、且つ、分子量１０万以下の成分量および分子量１５０万以上の成分量が上記の範囲であることで、ＭＤ方向およびＴＤ方向の両方で比較的高い引張弾性率（ヤング率）を有し、且つ、ＴＤ方向における高温下での寸法安定性に比較的に優れると共に、製造時のＴＤ方向への均一延伸性に比較的に優れたフィルムを得ることができる。
- [0073] なお、本発明に係るフィルム、フィルムの製造方法、および、プロピレン系重合体組成は、上記実施形態に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲で種々の変更が可能である。また、上記および下記の複数の

実施形態の構成や方法等を任意に採用して組み合わせてもよい（１つの実施形態に係る構成や方法等を他の実施形態に係る構成や方法等に適用してもよい）ことは勿論である。

実施例

[0074] 実施例および比較例における各項目の測定値は、下記の方法で測定した。

[0075] （１）メルトフローレート（MFR、単位：g／１０分）

プロピレン系重合体またはプロピレン系重合体組成物のMFRは、JIS K 7210-1：2014に規定されたA法に従って、温度230℃、荷重2.16kgで測定した。

[0076] （２）ダイスウェル比（SR、単位：－）

プロピレン系重合体組成物のダイスウェル比は、JIS K 7210-1：2014に規定されたA法に従って、温度230℃、荷重2.16kgでプロピレン系重合体組成物のMFRを測定する時に得られるプロピレン系重合体組成物の押出物の断面の直径を測定し、下記式により算出した。なお、プロピレン系重合体組成物の押出物の断面とは、押出方向に垂直な断面を意味し、該断面が真円形でない場合には、該断面の直径の最大値と最小値の平均値を意味する。

$$SR = D_p / D_h$$

（式中、

SRは、プロピレン系重合体組成物のダイスウェル比を示す。

Dhは、プロピレン系重合体組成物の押出物の断面のオリフィスの直径を示す。

Dpは、プロピレン系重合体組成物の押出物の断面の直径を示す。）

[0077] （３）冷キシレン可溶部量（CXS、単位：質量％）

プロピレン系重合体またはプロピレン系重合体組成物1gを、沸騰キシレン100mlに完全に溶解させた後、20℃に降温し、1時間攪拌した。得

られた混合物を析出物と溶液とに濾別した後、溶液中に溶解している成分量を、下記の条件下にて液体クロマトグラフィーにより定量し、CXSを求めた。

カラム：SHODEX GPC KF-801

溶離液：テトラヒドロフラン

カラムオープン温度：40℃

試料注入量：130 μ L

流量：1 mL/分

検出器：示差屈折計

[0078] (4) 分子量分布

ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）を用い、以下の条件にて、プロピレン系重合体組成物の分子量分布を測定した。具体的には、JIS K7252-1：2016 8.3.2に規定された方法に従って、プロピレン系重合体組成物の分子量分布を測定する際、炭化水素樹脂、酸化防止剤などの添加剤由来と識別できるピークを除外した。

機種：HLC-8121GPC/HT（東ソー社製）

カラム：TSKgel GMHHR-H(S)HT 7.5 mm I.D. $\times$ 300 mm（東ソー社製）を3本連結

測定温度：140℃

検出器：示差屈折率検出器

溶媒：オルトジクロロベンゼン

サンプル濃度：0.7 mg/mL

[0079] 検量線の作成には、標準ポリスチレンを用いることで、ポリスチレン換算の測定結果を得た。プロピレン系重合体組成物の分子量は、得られた測定値

にQファクター値26.4を乗算し、ポリプロピレン換算分子量として算出した。分子量分布の指標として、重量平均分子量(M_w)と数平均分子量(M_n)との比(M_w/M_n)、および、Z平均分子量(M_z)と数平均分子量(M_n)との比(M_z/M_n)、並びに、ポリプロピレン換算分子量が100万以下の成分量および150万以上の成分量を求めた。

[0080] (5) 極限粘度 ([η]、単位: dL/g)

プロピレン系重合体の極限粘度を、ウベローデ型粘度計を用いて135℃テトラリン中で測定を行った。

[0081] (6) 広角X線回折

得られた二軸延伸フィルムについて、以下の条件で反射法広角X線回折測定を行った。

- ・機種: 株式会社リガク製 RINT2500
- ・管球: Cu-K α
- ・検出器: シンチレーションカウンター
- ・走査範囲: $2\theta = 10 \sim 20^\circ$ (0.02° 刻み)

[0082] 二軸延伸フィルムの表面(MD-TD平面)が $2\theta = 0^\circ$ と平行となり、かつ、検出器とX線源とを結んだ直線と二軸延伸フィルムのTD方向とが平行になるように試料を設置して、測定を実施した。得られた 2θ プロファイルからプロピレン系重合体の α 型結晶の040面の回折ピークの位置を測定した。

[0083] (7) 複屈折

得られた二軸延伸フィルムについて、MD方向、TD方向、ND方向(MD-TD平面の法線方向)の配向関数を、「プラスチック成型品の高次構造解析入門、72～74ページ、プラスチック成型加工学会編、日刊工業新聞社(2006年)」に記載の方法に従って測定した。

具体的には、レーザーの光軸とND方向とが平行となり、かつ、地面と水

平方向にTD方向、地面と鉛直方向にMD方向がくるように、光軸上に試料を設置した。試料のリタレーションの測定は、セナルモン法を用いて行った。波長632.8nmのレーザー光を用いて、試料のMD方向を回転軸として、試料を $-40^{\circ} \sim 40^{\circ}$ まで 10° 刻みで回転させる条件で、各波長、各回転角でのリタレーションを測定した。得られたリタレーションの値からMD方向の屈折率(N^{MD})、TD方向の屈折率(N^{TD})、ND方向の屈折率(N^{ND})を算出した。ここで、下記式(A)であらわされる平均の屈折率(N^{ave})は1.48とした。

$$N^{ave} = (N^{MD} + N^{TD} + N^{ND}) / 3 \dots (A)$$

[0084] 算出された N^{MD} 、 N^{TD} および N^{ND} から、次の計算式により、二軸延伸フィルムのMD方向の配向度 BO^{MD} と、二軸延伸フィルムのTD方向の配向度 BO^{TD} とを算出した。ここでプロピレン単独重合体の固有複屈折(Δn_0)は0.04とした。

[0085] [数1]

$$BO^i = \frac{\sum_{j=MD,TD,ND} (N^i - N^j)}{2\Delta n_0} \quad (i = MD, TD, ND)$$

[0086] (8) 小角X線散乱

得られた二軸延伸フィルムについて、以下の条件で小角X線散乱測定を行い、 $I_{0.2}^{MD}$ 、 $I_{0.6}^{MD}$ 、 $I_{0.2}^{TD}$ 、 $I_{0.6}^{TD}$ を測定した。なお、 $I_{0.2}^{MD}$ は、小角X線散乱法を用いて測定されるフィルムのMD方向のKratkyプロットにおける散乱ベクトル q が 0.2 nm^{-1} の位置の強度を示す。 $I_{0.6}^{TD}$ は、小角X線散乱法を用いて測定されるフィルムのTD方向のKratkyプロットにおける散乱ベクトル q が 0.6 nm^{-1} の位置の強度を示す。) $I_{0.2}^{TD}$ は、小角X線散乱法を用いて測定されるフィルムのTD方向のKratkyプロットにおける散乱ベクトル q が 0.2 nm^{-1} の位置の強度を示す。 $I_{0.6}^{MD}$ は、小角X線散乱法を用いて測定されるフィルムのMD方向のKra

t k y プロットにおける散乱ベクトル q が 0.6 nm^{-1} の位置の強度を示す。

- ・機種：株式会社リガク製 Nano Viewer
- ・管球：Cu-K α
- ・電圧：40 kV
- ・電流：20 mA
- ・ビーム径：0.25 mm ϕ
- ・検出器：PILATUS 100k

[0087] 二軸延伸フィルムのTD方向が一致するようにND方向にフィルムを25枚重ねて測定用試験片を作製した。具体的には、ND方向と平行になるようにX線を入射して、2次元散乱像を得た。得られた2次元散乱像を、測定用試験片を設置せずに取得した2次元散乱像（エアブランク）を用いて、補正した。補正された2次元散乱像のMD方向の散乱強度プロファイルおよびTD方向の散乱強度プロファイルから、MD方向およびTD方向のKratkyプロットをそれぞれ得た。

[0088] 測定されたKratkyプロットから、 $I_{0.2}^{\text{MD}}/I_{0.6}^{\text{TD}}$ 、 $I_{0.2}^{\text{TD}}/I_{0.6}^{\text{MD}}$ を計算した。

[0089] (9) 広角X線散乱

得られた二軸延伸フィルムについて、以下の条件で広角X線散乱測定を行った。

- ・機種：株式会社リガク製 Nano Viewer
- ・管球：Cu-K α
- ・電圧：40 kV
- ・電流：20 mA
- ・ビーム径：0.25 mm ϕ

・検出器：PILATUS 100k

- [0090] 二軸延伸フィルムのTD方向が一致するようにND方向にフィルムを25枚重ねて測定用試験片を作製した。具体的には、ND方向と平行になるようにX線を入射して、2次元散乱像を得た。得られた2次元散乱像を、測定試料を設置せずに取得した2次元散乱像（エアブランク）を用いて、補正した。補正された2次元散乱像から、プロピレン単独重合体の α 型結晶の110面の散乱のピークトップの強度を、方位角に対してプロットして、方位角プロファイルを得た。得られた方位角プロファイルから、TD方向の散乱強度（ I_{nt_1} ）とTD $\pm 45^\circ$ 方向の散乱強度（ I_{nt_2} ）の散乱強度比（ I_{nt_1}/I_{nt_2} ）を算出した。
- [0091] 上記で得られた方位角プロファイルから、TD方向の散乱強度（ I_{nt_A} ）とMD方向の散乱強度（ I_{nt_B} ）とTD $\pm 45^\circ$ 方向の散乱強度（ I_{nt_C} ）の値を得て、平均散乱強度比 $0.5 \times (I_{nt_A} + I_{nt_B}) / I_{nt_C}$ を算出した。
- [0092] (10) 密度（D、単位：g/cm³）
二軸延伸フィルムの密度は、JIS K7112-1999に記載のD法（水／エタノール）に従って、密度勾配管法により測定した。
- [0093] (11) フィルム厚み（単位： μm ）
二軸延伸フィルムの厚みは、JIS K7130-1999に記載のA法に従って、接触式のフィルム厚み計で測定した。
- [0094] (12) ヤング率（単位：GPa）
120mm $\times$ 20mmの二軸延伸フィルムを、長辺方向（120mm）が測定方向（MD方向、TD方向）と一致するように採取し、23℃、湿度50%の雰囲気下において、（株）エー・アンド・デイUNIVERSAL TESTING MACHINE STB-1225を用いて、つかみ間隔60mm、引張速度5mm/分で引張り試験を行い、引張-応力カーブのゼロ点での接線からヤング率（MD方向、TD方向）を測定した。

[0095] (13) 均一延伸性 (相対標準偏差、単位：%)

逐次二軸延伸方式において、プロピレン系重合体組成物を、押出機を用いて加熱熔融し、Tダイより冷却ロール上に押し出すことによってシート状に冷却固定し、未延伸シートを得た。得られた未延伸シートを、加熱した延伸ロールを用いてMD方向に延伸することにより、一軸延伸シートを得た。得られた一軸延伸シートに対し、TD方向に9mm毎の10本の標線を備えたスタンプを用いて標線を印字した。標線を印字した一軸延伸シートのTD方向の両側端を、MD方向に沿って並んだ2列のチャックで掴み、予熱部、延伸部、熱処理部を備えた加熱炉内にて、一軸延伸シートをTD方向に延伸した。その後、該2列のチャックの間隔を狭めてTD方向の延伸を緩和させることにより二軸延伸フィルムを得た。得られた二軸延伸フィルムに対し、TD方向の標線間隔を読み取り、標線間隔の相対標準偏差を求めて延伸加工性の尺度とした。相対標準偏差が小さい程均一に延伸加工できたことを示し、延伸加工性 (均一延伸性) が良好であることを示す。

同時二軸延伸方式において、プロピレン系重合体組成物を、押出機を用いて加熱熔融し、Tダイより冷却ロール上に押し出すことによってシート状に冷却固定し、未延伸シートを得た。得られた未延伸シートに対し、TD方向に9mm毎の10本の標線を備えたスタンプを用いて標線を印字した。標線を印字した未延伸シートの四辺をチャックで掴み、加熱炉内にて、所定の時間予熱した後、未延伸シートをMD/TD両方向に延伸することにより二軸延伸フィルムを得た。得られた二軸延伸フィルムに対し、TD方向の標線間隔を読み取り、標線間隔の相対標準偏差を求めて延伸加工性の尺度とした。相対標準偏差が小さい程均一に延伸加工できたことを示し、延伸加工性 (均一延伸性) が良好であることを示す。

[0096] (14) 加熱収縮率 (単位：%)

実施例5、実施例6および比較例8以外の二軸延伸フィルムは、長軸がMD方向と平行になるように、A4サイズ (縦297mm×横210mm) のフィルムを採取し、MD方向およびTD方向にそれぞれ200mmの標線を

引き、150℃のオープン中に吊るして30分間保持した。その後、フィルムを取り出し、室温にて30分間冷却した後に、各標線長さを測定した。各方向に対する加熱収縮率を、次の計算式から算出した。加熱収縮率が小さいことは、高温下での寸法安定性に優れることを示す。

$$\text{加熱収縮率 (\%)} = \{ (200 - \text{加熱後の標線長さ (mm)}) / 200 \} \times 100$$

実施例5、実施例6および比較例8の二軸延伸フィルムは、100mm角サイズ（縦100mm×横100mm）のフィルムを採取し、MD方向およびTD方向にそれぞれ80mmの標線を引き、150℃のオープン中に吊るして30分間保持した。その後、フィルムを取り出し、室温にて30分間冷却した後に、各標線長さを測定した。各方向に対する加熱収縮率を、次の計算式から算出した。

$$\text{加熱収縮率 (\%)} = \{ (80 - \text{加熱後の標線長さ (mm)}) / 80 \} \times 100$$

[0097] 実施例および比較例で用いた各成分は、以下のとおりである。

[0098] <プロピレン系重合体中間組成物1>

チーグラ－・ナッタ型触媒と、助触媒としてトリエチルアルミニウム、外部ドナーとしてシクロヘキシルエチルジメトキシシランを用いて、気相重合法により、水素濃度0.14mol%の環境下で、プロピレンを重合し、プロピレン系重合体A1を得た。得られたプロピレン系重合体A1の100質量部に対して、ステアリン酸カルシウム（堺化学工業株式会社製）0.10質量部、IRGANOX1010（BASFジャパン株式会社製）0.15質量部、IRGAFOS168（BASFジャパン株式会社製）0.15質量部を配合した後、熔融押出を行って、ペレット状のプロピレン系重合体1を得た。得られたプロピレン系重合体1の物性値を下記表1に示す。

[0099] <プロピレン系重合体中間組成物 2>

塊状重合槽と気相重合槽を直列に接続して、以下の手順で重合を行った。具体的には、チーグラー・ナッタ型触媒と、助触媒としてトリエチルアルミニウム、外部ドナーとしてシクロヘキシルエチルジメトキシシランを用いて、塊状重合法により、プロピレンを重合し、プロピレン系重合体 A 2 を得た。プロピレン系重合体 A 2 の一部をサンプリングして分析した結果、極限粘度は 7 dl/g であった。前記プロピレン系重合体 A 2 を、失活させることなく気相重合槽に連続的に移送し、気相重合法により、水素濃度 $4.4 \text{ mol\%}$ の環境下で、プロピレン系重合体 B 2 を重合して、プロピレン系重合体組成物（プロピレン系重合体 A 2 およびプロピレン系重合体 B 2 を含むもの）を得た。プロピレン系重合体組成物中のプロピレン系重合体 A 2 の含有量は 19 質量部 であった。得られたプロピレン系重合体組成物 85 質量部 に対して、 $\text{MFR} = 60 \text{ g/10 分}$ のプロピレン単独重合体 15 質量部 、ステアリン酸カルシウム（堺化学工業株式会社製） 0.04 質量部 、IRGANOX 1010（BASF ジャパン株式会社製） 0.18 質量部 、IRGAFOS 168（BASF ジャパン株式会社製） 0.25 質量部 を配合した後、熔融押出を行って、ペレット状のプロピレン系重合体中間組成物 2 を得た。得られたプロピレン系重合体中間組成物 2 の物性値を下記表 1 に示す。

[0100] <プロピレン系重合体中間組成物 3>

塊状重合槽と気相重合槽を直列に接続して、以下の手順で重合を行った。チーグラー・ナッタ型触媒と、助触媒としてトリエチルアルミニウム、外部ドナーとしてシクロヘキシルエチルジメトキシシランを用いて、塊状重合法により、プロピレンを重合し、プロピレン系重合体 A 3 を得た。プロピレン系重合体 A 3 の一部をサンプリングして分析した結果、極限粘度は 7 dl/g であった。前記プロピレン系重合体 A 3 を、失活させることなく気相重合槽に連続的に移送し、気相重合法により、水素濃度 $5.7 \text{ mol\%}$ の環境下で、プロピレン系重合体 B 3 を重合して、プロピレン系重合体組成物（プロピレン系重合体 A 3 およびプロピレン系重合体 B 3 を含むもの）を得た。プ

ロピレン系重合体組成物 100 質量部中のプロピレン系重合体 A3 の含有量は 19 質量部であった。得られたプロピレン系重合体組成物 100 質量部に対して、ステアリン酸カルシウム（堺化学工業株式会社製）0.05 質量部、IRGANOX 1010（BASF ジャパン株式会社製）0.10 質量部、IRGAFOS 168（BASF ジャパン株式会社製）0.15 質量部を配合した後、溶融押出を行って、ペレット状のプロピレン系重合体中間組成物 3 を得た。得られたプロピレン系重合体中間組成物 3 の物性値を下記表 1 に示す。

[0101] < β 晶核剤マスターバッチ>

チーグラ－・ナッタ型触媒と、助触媒としてトリエチルアルミニウム、外部ドナーとしてシクロヘキシルエチルジメトキシシランを用いて、気相重合法により、水素濃度 0.95 mol % の環境下でプロピレンを重合し、プロピレン系重合体を得た。得られたプロピレン系重合体の 95 質量部に対して、NU-100（ β 晶核剤、新日本理化株式会社製）5 質量部、DHT-4C（中和剤、協和化学工業株式会社製）0.005 質量部、IRGANOX 1010（酸化防止剤、BASF ジャパン株式会社製）0.09 質量部、スミライザー GP（酸化防止剤、住友化学株式会社製）0.05 質量部を配合した後、溶融押出を行って、ペレット状の β 晶核剤マスターバッチを得た。

[0102] < α 晶核剤マスターバッチ>

チーグラ－・ナッタ型触媒と、助触媒としてトリエチルアルミニウム、外部ドナーとしてシクロヘキシルエチルジメトキシシランを用いて、気相重合法により、水素濃度 0.95 mol % の環境下でプロピレンを重合し、プロピレン系重合体を得た。得られたプロピレン系重合体の 87 質量部に対して、G-DXR（ α 晶核剤、新日本理化株式会社製）10 質量部、アデカスタブ PEP-36（酸化防止剤、株式会社 ADEKA 製）3 質量部、ステアリン酸カルシウム（中和剤、堺化学工業株式会社製）0.05 質量部、スミライザー GP（酸化防止剤、住友化学株式会社製）0.05 質量部、IRGAFOS 168（酸化防止剤、BASF ジャパン株式会社製）0.05 質量部

、カルテックLT（中和剤、鈴木工業株式会社製）0.05質量部を配合した後、溶融押出を行って、ペレット状の α 晶核剤マスターバッチを得た。

[0103] <プロピレン系重合体組成物11>

プロピレン系重合体中間組成物1（69質量部）、プロピレン系重合体中間組成物2（30質量部）、 β 晶核剤マスターバッチ（1質量部）を、ヘンシェルミキサーを用いて混合してプロピレン系重合体組成物11を作製した。プロピレン系重合体組成物11を溶融押出して得られたペレットの物性値を下記表1に示す。

[0104] <プロピレン系重合体組成物12>

プロピレン系重合体中間組成物1（79質量部）、プロピレン系重合体中間組成物3（20質量部）、 β 晶核剤マスターバッチ（1質量部）を、ヘンシェルミキサーを用いて混合してプロピレン系重合体組成物12を作製した。プロピレン系重合体組成物12を溶融押出して得られたペレットの物性値を下記表1に示す。

[0105] <プロピレン系重合体組成物13>

プロピレン系重合体中間組成物1（89質量部）、プロピレン系重合体中間組成物3（10質量部）、 β 晶核剤マスターバッチ（1質量部）を、ヘンシェルミキサーを用いて混合してプロピレン系重合体組成物13を作製した。プロピレン系重合体組成物13を溶融押出して得られたペレットの物性値を下記表1に示す。

[0106] <プロピレン系重合体組成物14>

プロピレン系重合体中間組成物1（99質量部）、 β 晶核剤マスターバッチ（1質量部）を、ヘンシェルミキサーを用いて混合してプロピレン系重合体組成物14を作製した。

プロピレン系重合体組成物14を溶融押出して得られたペレットの物性値を下記表1に示す。

[0107] <プロピレン系重合体組成物C11>

プロピレン系重合体中間組成物1（99質量部）、 α 晶核剤マスターバッチ

チ（１質量部）を、ヘンシェルミキサーを用いて混合してプロピレン系重合体組成物Ｃ１１を作製した。プロピレン系重合体組成物Ｃ１１を溶融押出して得られたペレットの物性値を下記表１に示す。

[0108] ＜プロピレン系重合体組成物Ｃ１２＞

プロピレン系重合体中間組成物１（９８質量部）、 β 晶核剤マスターバッチ（２質量部）を、ヘンシェルミキサーを用いて混合してプロピレン系重合体組成物Ｃ１２を作製した。プロピレン系重合体組成物Ｃ１２を溶融押出して得られたペレットの物性値を下記表１に示す。

[0109] [表1]

材料	MFR (g/10 分)	SR	CXS (%)	Mw/Mn	Mz/Mn	分子量 10万以下 の成分量 (質量%)	分子量 150万以上 の成分量 (質量%)	結晶 核剤
プロピレン系重合体 中間組成物1	2.3	1.17	0.4	3.1	6.9	27	2.5	—
プロピレン系重合体 中間組成物2	11.9	2.06	0.2	7.5	51.7	48	6.6	—
プロピレン系重合体 中間組成物3	8.5	1.95	0.2	10.2	92.9	49	8.0	—
プロピレン系重合体 組成物11	3.2	1.36	0.7	5.4	18.3	35	2.9	NU-100 500ppm
プロピレン系重合体 組成物12	2.7	1.30	0.6	4.3	13.4	31	2.7	NU-100 500ppm
プロピレン系重合体 組成物13	2.3	1.24	0.6	4.3	11.5	30	2.6	NU-100 500ppm
プロピレン系重合体 組成物14	2.2	1.21	0.6	3.9	9.4	29	2.0	NU-100 500ppm
プロピレン系重合体 組成物C11	2.2	1.21	0.6	3.0	6.9	27	1.8	G-DXR 1000ppm
プロピレン系重合体 組成物C12	2.2	1.21	0.6	3.9	9.7	29	2.2	NU-100 1000ppm

[0110] ＜実施例１＞

プロピレン系重合体組成物１１を、スクリー径６５mmφの押出機を備えたＴダイ製膜機を用いて、樹脂温度２６０℃で加熱溶融し、３０℃の冷却ロール上に押し出すことにより、未延伸シートを得た。得られた未延伸シートを、１４２℃（ロール温度）に加熱した延伸ロールを用いて、ＭＤ方向に

8 倍に延伸することにより、一軸延伸シートを得た。

得られた一軸延伸シートの T D 方向の両側端を M D 方向に沿って並んだ 2 列のチャックで掴み、170℃（炉内温度 1）に加熱した加熱炉内にて、上記 2 列のチャック間隔を T D 方向に広げることににより、一軸延伸シートを T D 方向に 8 倍に延伸して二軸延伸フィルムを得た。得られた二軸延伸フィルムの T D 方向の両側端を M D 方向に沿って並んだ 2 列のチャックで掴んだ状態で、165℃（炉内温度 2）に加熱した加熱炉内にて、上記 2 列のチャック間隔を狭めて、該 T D 方向の延伸を 19.5%緩和した。得られた二軸延伸フィルムの製造条件および物性の測定値を下記表 2～4 に示す。

[0111] <実施例 2>

実施例 1 のプロピレン系重合体組成物 1 1 をプロピレン系重合体組成物 1 2 に変えた以外は、実施例 1 とすべて同じ条件で二軸延伸フィルムを得た。得られた二軸延伸フィルムの製造条件および物性の測定値を下記表 2～4 に示す。

[0112] <実施例 3>

実施例 1 のプロピレン系重合体組成物 1 1 をプロピレン系重合体組成物 1 3 に変えた以外は、実施例 1 とすべて同じ条件で二軸延伸フィルムを得た。得られた二軸延伸フィルムの製造条件および物性の測定値を下記表 2～4 に示す。

[0113] <実施例 4>

実施例 1 のプロピレン系重合体組成物 1 1 をプロピレン系重合体組成物 1 4 に変えた以外は、実施例 1 とすべて同じ条件で二軸延伸フィルムを得た。得られた二軸延伸フィルムの製造条件および物性の測定値を下記表 2～4 に示す。

[0114] <比較例 1>

実施例 1 のプロピレン系重合体組成物 1 1 をプロピレン系重合体組成物 C 1 1 に変え、ロール温度を 152℃とし、T D 方向の緩和率を 0%に変えた以外は、実施例 1 とすべて同じ条件で二軸延伸フィルムを得た。得られた二

軸延伸フィルムの製造条件および物性の測定値を下記表 2～4 に示す。

[0115] <比較例 2>

実施例 1 のプロピレン系重合体組成物 1 1 をプロピレン系重合体組成物 C 1 1 に変え、ロール温度を 152℃とし、TD 方向の緩和率を 6.5%に変えた以外は、実施例 1 とすべて同じ条件で二軸延伸フィルムを得た。得られた二軸延伸フィルムの製造条件および物性の測定値を下記表 2～4 に示す。

[0116] <比較例 3>

実施例 1 のプロピレン系重合体組成物 1 1 をプロピレン系重合体組成物 C 1 1 に変え、ロール温度を 152℃とした以外は、実施例 1 とすべて同じ条件で二軸延伸フィルムを得た。得られた二軸延伸フィルムの製造条件および物性の測定値を下記表 2～4 に示す。

[0117] <比較例 4>

実施例 1 のプロピレン系重合体組成物 1 1 をプロピレン系重合体中間組成物 1 に変え、ロール温度を 152℃とし、MD 方向の延伸倍率を 5 倍、TD 方向の緩和率を 1.3 倍に変えた以外は、実施例 1 とすべて同じ条件で二軸延伸フィルムを得た。得られた二軸延伸フィルムの製造条件および物性の測定値を下記表 2～4 に示す。

[0118] <比較例 5>

プロピレン系重合体中間組成物 1 を、スクリー径 6.5 mm φ の押出機を備えた T ダイ製膜機を用いて、樹脂温度 260℃で加熱溶融し、30℃の冷却ロール上に押し出すことにより、未延伸シートを得た。得られた未延伸シートを、152℃（ロール温度）に加熱した延伸ロールを用いて、MD 方向に 9 倍に延伸することにより、一軸延伸フィルムを得た。得られた一軸延伸フィルムの製造条件および物性の測定値を下記表 2～4 に示す。

[0119] <比較例 6>

実施例 1 のプロピレン系重合体組成物 1 1 をプロピレン系重合体組成物 C 1 1 に変え、ロール温度を 152℃、MD 方向の延伸倍率を 5 倍に変えた以外は、実施例 1 とすべて同じ条件で二軸延伸フィルムを得た。得られた二軸

延伸フィルムの製造条件および物性の測定値を下記表 2～4 に示す。

[0120] <比較例 7>

プロピレン系重合体組成物 C 1 2 を、スクリー径 2 0 m m ϕ の押出機を備えた T ダイ製膜機を用いて、樹脂温度 2 5 0 °C で加熱熔融し、9 0 °C の冷却ロール上に押し出すことにより、厚さ 1 . 0 m m の未延伸シートを得た。得られた未延伸シートの四辺をチャックで掴み、1 4 0 °C に加熱した加熱炉内にて 3 分間予熱した後、MD 方向および T D 方向を同時に 2 倍に延伸した。その後、加熱炉内を 1 6 0 °C に昇温して 3 分予熱した後、トータル延伸倍率が、MD 方向および T D 方向を同時に 6 . 5 倍となるよう、さらに延伸することにより、同時二軸延伸フィルムを得た。得られた同時二軸延伸フィルムの製造条件および物性の測定値を下記表 2～4 に示す。

[0121] 下記表 4 から、各実施例の二軸延伸フィルムは、比較例の二軸延伸フィルムに対して、MD 方向および T D 方向の両方でヤング率が高く、均一延伸性の試験結果が良好であり、T D 方向の加熱収縮率が小さいことが認められる。つまり、各実施例の二軸延伸フィルムは、剛性、延伸性、高温下での寸法安定性に優れることがわかる。

[0122]

[表2]

	材料	延伸倍率		緩和率 (%)	樹脂 温度 (°C)	ロール 温度 (°C)	炉内 温度1 (°C)	炉内 温度2 (°C)
		MD	TD					
実施例 1	ブレン系重合体 組成物11	8	8	19.5	260	142	170	165
実施例 2	ブレン系重合体 組成物12	8	8	19.5	260	142	170	165
実施例 3	ブレン系重合体 組成物13	8	8	19.5	260	142	170	165
実施例 4	ブレン系重合体 組成物14	8	8	19.5	260	142	170	165
比較例 1	ブレン系重合体 組成物C11	8	8	0	260	152	170	165
比較例 2	ブレン系重合体 組成物C11	8	8	6.5	260	152	170	165
比較例 3	ブレン系重合体 組成物C11	8	8	19.5	260	152	170	165
比較例 4	ブレン系重合体 中間組成物1	5	8	13	260	152	170	165
比較例 5	ブレン系重合体 中間組成物1	9	—	—	260	152	—	—
比較例 6	ブレン系重合体 組成物C11	5	8	19.5	260	152	170	165
比較例 7	ブレン系重合体 組成物C12	同時二軸延伸 (2倍→6.5倍)		—	250	—	140	160

[0123]

[表3]

	$BO^{MD} - BO^{TD}$ (-)	$I_{0.2}^{MD}/I_{0.6}^{TD}$ (-)	$I_{0.2}^{TD}/I_{0.6}^{MD}$ (-)	α 型結晶 040面 回折ピーク (°)	Int_1/Int_2 (-)	$0.5 \times (Int_A/Int_B)/Int_2$ (-)
実施例 1	-0.12	1.26	0.92	16.89	1.7	1.5
実施例 2	-0.26	1.10	0.90	16.91	2.0	1.6
実施例 3	-0.32	1.28	0.81	16.93	2.1	1.7
実施例 4	-0.18	0.89	0.81	16.87	2.1	1.7
比較例 1	-0.61	2.65	0.56	16.72	4.4	2.7
比較例 2	-0.53	2.22	0.54	16.80	3.9	2.2
比較例 3	-0.39	1.24	0.60	16.85	2.5	1.8
比較例 4	-0.64	1.26	0.76	16.93	6.3	3.8
比較例 5	1.29	1.71	1.06	測定不能	測定不能	測定不能
比較例 6	-0.55	1.09	1.70	16.85	5.0	3.1
比較例 7	-0.01	1.75	1.40	16.94	1.0	1.0
※測定不能:TD方向へ延伸していないため、測定できなかったことを意味する。						

[0124]

[表4]

	ヤング率 (GPa)		標線間隔の 相対標準偏差 (%)	加熱収縮率 (%)	
	MD	TD		MD	TD
実施例 1	3.8	4.5	6.8	6.3	3.1
実施例 2	4.1	5.8	6.4	6.1	4.5
実施例 3	4.1	5.9	5.3	6.9	5.9
実施例 4	3.2	4.1	4.4	6.8	3.3
比較例 1	2.7	6.1	9.4	6.1	17.6
比較例 2	2.6	5.2	6.3	6.8	15.2
比較例 3	2.8	4.4	5.8	6.1	4.5
比較例 4	2.6	5.7	3.8	4.4	6.5
比較例 5	4.6	1.7	測定不能	データ無	データ無
比較例 6	2.6	4.7	6.3	3.8	2.8
比較例 7	2.7	3.2	18.9	6.9	6.3
※測定不能:TD方向へ延伸していないため、測定できなかったことを意味する。 ※データ無:TD方向へ延伸していないため、正確に測定できないことを意味する。					

[0125] <炭化水素樹脂マスターバッチ>

プロピレン系重合体中間組成物3の50重量部に対して、Opera PR100A（シクロペンタジエン系炭化水素樹脂、ExxonMobil社製）50重量部、DHT-4C（中和剤、協和化学工業株式会社製）0.01質量部、IRGANOX1010（酸化防止剤、BASFジャパン株式会社製）0.09質量部、スミライザーGP（酸化防止剤、住友化学株式会社製）0.05質量部を配合した後、熔融押し出しを行って、ペレット状の炭化水素樹脂マスターバッチを得た。

[0126] <プロピレン系重合体組成物15>

プロピレン系重合体中間組成物1（70質量部）、プロピレン系重合体中

間組成物 3（10 重量部）、炭化水素樹脂マスターバッチ（20 質量部）を混合してプロピレン系重合体組成物 15 を作製した。プロピレン系重合体組成物 15 を溶融押出して得られたペレットの物性値を下記表 5 に示す。

[0127] ＜プロピレン系重合体組成物 16＞

プロピレン系重合体中間組成物 1（60 質量部）、プロピレン系重合体中間組成物 3（20 重量部）、炭化水素樹脂マスターバッチ（20 質量部）を混合してプロピレン系重合体組成物 16 を作製した。プロピレン系重合体組成物 16 を溶融押出して得られたペレットの物性値を下記表 5 に示す。

[0128] ＜プロピレン系重合体組成物 C 13＞

プロピレン系重合体中間組成物 1（90 質量部）、O p p e r a P R 1 0 0 A（10 重量部）を混合してプロピレン系重合体組成物 C 13 を作製した。プロピレン系重合体組成物 C 13 を溶融押出して得られたペレットの物性値を下記表 5 に示す。

[0129] [表5]

材料	MFR (g/10 分)	SR	Mw/Mn	Mz/Mn	分子量 10万以下 の成分量 (質量%)	分子量 150万以上 の成分量 (質量%)	石油 樹脂
プロピレン系重合体 組成物15	4.1	1.37	4.6	15.4	34	3.1	PR100A 10質量%
プロピレン系重合体 組成物16	4.4	1.44	4.9	18.5	36	3.3	PR100A 10質量%
プロピレン系重合体 組成物C13	3.5	1.20	3.6	9.7	27	2.6	PR100A 10質量%

[0130] ＜実施例 5＞

プロピレン系重合体組成物 15 を、スクリー径 20 mm φ の押出機を備えた T ダイ製膜機を用いて、樹脂温度 250℃ で加熱溶融し、40℃ の冷却ロール上に押し出すことにより、厚さ 0.5 mm の未延伸シートを得た。得られた未延伸シートの四辺をチャックで掴み、155℃ に加熱した加熱炉内にて 3 分間予熱した後に、MD 方向に 7 倍に延伸した後、TD 方向に 8 倍に延伸し、二軸延伸フィルムを得た。得られた二軸延伸フィルムの製造条件

および物性の測定値を下記表 6 および 7 に示す。

[0131] <実施例 6>

実施例 5 のプロピレン系重合体組成物 15 をプロピレン系重合体組成物 16 に変えた以外は、実施例 5 とすべて同じ条件で二軸延伸フィルムを得た。得られた二軸延伸フィルムの製造条件および物性の測定値を下記表 6 および 7 に示す。

[0132] <比較例 8>

実施例 5 のプロピレン系重合体組成物 15 をプロピレン系重合体組成物 C13 に変えた以外は、実施例 5 とすべて同じ条件で二軸延伸フィルムを得た。得られた二軸延伸フィルムの製造条件および物性の測定値を下記表 6 および 7 に示す。

[0133] 下記表 7 から、各実施例の二軸延伸フィルムは、比較例の二軸延伸フィルムに対して、MD 方向および TD 方向の両方でヤング率が同等であり、均一延伸性の試験結果が良好であり、TD 方向の加熱収縮率が小さいことが認められる。つまり、各実施例の二軸延伸フィルムは、剛性、延伸性、高温下での寸法安定性に優れることがわかる。

[0134] [表6]

	材料	延伸倍率		樹脂 温度 (℃)	ロール 温度 (℃)	炉内 温度1 (℃)	炉内 温度2 (℃)
		MD	TD				
実施例 5	プロピレン系重合体 組成物15	7	8	250	—	155	155
実施例 6	プロピレン系重合体 組成物16	7	8	250	—	155	155
比較例 8	プロピレン系重合体 組成物C13	7	8	250	—	155	155

[0135]

[表7]

	ヤング率 (GPa)		標線間隔の 相対標準偏差 (%)	加熱収縮率 (%)	
	MD	TD		MD	TD
実施例 5	4.3	6.2	21	4.4	8.7
実施例 6	4.3	6.1	26	4.9	8.3
比較例 8	4.1	7.1	23	5.0	10.2

産業上の利用可能性

- [0136] 本発明によれば、MD方向およびTD方向の両方で比較的高い引張弾性率（ヤング率）を有し、且つ、TD方向における高温下での寸法安定性に比較的に優れると共に、製造時のTD方向への均一延伸性に比較的に優れたフィルムを提供することができる。また、斯かるフィルムの製造方法、および斯かるフィルムの製造に用いるプロピレン系重合体組成物を提供することができる。

請求の範囲

[請求項1] プロピレン系重合体またはプロピレン系重合体組成物を含有し、下記要件（１）～（３）を満たす、フィルム。

（１）下記式（１）を満たす。

$$-0.35 < B O^{MD} - B O^{TD} < 1.00 \cdots (1)$$

（式中、

$B O^{MD}$ は、複屈折法を用いて測定されるフィルムのMD方向の配向度を示す。

$B O^{TD}$ は、複屈折法を用いて測定されるフィルムのTD方向の配向度を示す。）

（２）下記式（１１）を満たす。

$$I_{0.2}^{MD} / I_{0.6}^{TD} < 1.5 \cdots (11)$$

（式中、

$I_{0.2}^{MD}$ は、小角X線散乱法を用いて測定されるフィルムのMD方向のK r a t k yプロットにおける散乱ベクトル q が 0.2 nm^{-1} の位置の強度を示す。

$I_{0.6}^{TD}$ は、小角X線散乱法を用いて測定されるフィルムのTD方向のK r a t k yプロットにおける散乱ベクトル q が 0.6 nm^{-1} の位置の強度を示す。）

（３）下記式（１１１）を満たす。

$$I_{0.2}^{TD} / I_{0.6}^{MD} < 1.5 \cdots (111)$$

（式中、

$I_{0.2}^{TD}$ は、小角X線散乱法を用いて測定されるフィルムのTD方向のK r a t k yプロットにおける散乱ベクトル q が 0.2 nm^{-1} の位置の強度を示す。

$I_{0.6}^{MD}$ は、小角X線散乱法を用いて測定されるフィルムのMD方向のK r a t k yプロットにおける散乱ベクトル q が 0.6 nm^{-1} の位置の強度を示す。)

[請求項2] さらに下記要件(4)を満たす、請求項1に記載のフィルム。

(4) 下記式(I V)を満たす。

$$I_{nt_1} / I_{nt_2} > 1.1 \dots (I V)$$

(式中、

I_{nt_1} は、広角X線散乱法を用いて測定されるフィルムの2次元散乱像において、プロピレン系重合体の α 型結晶の110面のTD方向におけるピークトップ強度を示す。

I_{nt_2} は、広角X線散乱法を用いて測定されるフィルムの2次元散乱像において、プロピレン系重合体の α 型結晶の110面のTD方向から 45° におけるピークトップ強度を示す。)

[請求項3] さらに下記要件(5)を満たす、請求項1または2に記載のフィルム。

(5) 広角X線回折法を用いて測定されるプロピレン系重合体の α 型結晶の040面の回折ピークが 16.81° 以上である。

[請求項4] さらに下記要件(6)を満たす、請求項1～3のいずれか一項に記載のフィルム。

(6) 下記式(V)を満たす。

$$0.5 \times (I_{nt_A} + I_{nt_B}) / I_{nt_C} > 1.1 \dots$$

(V)

(式中、

I n t __ A は、広角X線散乱法を用いて測定されるフィルムの2次元散乱像において、プロピレン系重合体の α 型結晶の110面のTD方向におけるピークトップ強度を示す。

I n t __ B は、広角X線散乱法を用いて測定されるフィルムの2次元散乱像において、プロピレン系重合体の α 型結晶の110面のMD方向におけるピークトップ強度を示す。

I n t __ C は、広角X線散乱法を用いて測定されるフィルムの2次元散乱像において、プロピレン系重合体の α 型結晶の110面のTD方向から45°におけるピークトップ強度を示す。)

[請求項5]

プロピレン系重合体と、 β 晶核剤および炭化水素樹脂からなる群より選ばれる少なくとも1種の延伸性改良剤とを含むプロピレン系重合体組成物を、押出機を用いて加熱溶融し、冷却ロール上に押し出すことにより未延伸シートを得る押出工程と、

得られた未延伸シートを、延伸ロールを用いてMD方向に6倍～10倍に延伸することにより、一軸延伸シートを得るMD延伸工程と、

得られた一軸延伸シートを、MD方向に沿って並んだ2列のチャックを用いて、加熱炉内にて、TD方向に4倍～20倍に延伸することにより、二軸延伸フィルムを得るTD延伸工程と、

得られた二軸延伸フィルムのTD方向の延伸を、MD方向に沿って並んだ2列のチャックを用いて、加熱炉内にて、TD方向に16%～30%緩和させる緩和工程とを含む、フィルムの製造方法。

[請求項6]

プロピレン系重合体と、延伸性改良剤とを含有し、

下記要件(11)～(16)を満たす、プロピレン系重合体組成物。

(11) 温度230℃、荷重2.16kgで測定されるメルトフローレートが1g/10分～10g/10分である。

(12) 温度 230℃、荷重 2.16 kg で測定されるダイスウェル比が 1.23～1.45 である。

(13) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定される重量平均分子量 (M_w) と数平均分子量 (M_n) との比 (M_w/M_n) が 4.0～7.0 である。

(14) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定される Z 平均分子量 (M_z) と数平均分子量 (M_n) との比 (M_z/M_n) が 10.0～25.0 である。

(15) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定される分子量 10 万以下の成分量が 30 質量%～50 質量%である。

(16) ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで測定される分子量 150 万以上の成分量が 2.3 質量%～5.0 質量%である。

[請求項7]

前記延伸性改良剤が、 β 晶核剤および炭化水素樹脂からなる群より選ばれる少なくとも 1 種である、請求項 6 に記載のプロピレン系重合体組成物。