

明 細 書

発明の名称： 積層フィルム、及びその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、積層フィルム、及びその製造方法に関する。

背景技術

[0002] 例えば、プラスチック製（樹脂製）のフィルムは、種々の機能を有する複数の層を備えた積層フィルムとして多用されている。このような樹脂製のフィルムには、シングルユースである樹脂製の包装材料が挙げられる。一例として、樹脂製の包装材料は、延伸ナイロンフィルム及びポリエチレンテレフタレート（PET）フィルム等の樹脂フィルム、並びにアルミニウム等の金属フィルムから形成される基材層と、ポリエチレンフィルム等を含むシーラント層とを積層して形成される。ここで、基材フィルムとシーラントフィルムとは接着剤等を介して積層され得る。

[0003] 例えば、特許文献1には、それぞれ所定量のエチレンに由来する構造単位を含むエチレン重合体を含有する、層A、層B、層Cと、バリア層及び／又は接着層と、所定量のエチレンに由来する構造単位を含むエチレン重合体を含有する層Dとが積層され、層Bが無機フィラーを含み、層Dに含まれるエチレン重合体の密度が 880 kg/m^3 以上、 930 kg/m^3 未満であり、メルトフローレートが 0.01 g/10分 ～ 3 g/10分 である、積層フィルムが記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特許第6716764号明細書

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] マテリアルリサイクルにおいて、ナイロン、及びポリエチレンテレフタレート（PET）等の樹脂から形成される基材層と、ポリエチレン樹脂等から

形成されるシーラント層とを備えた積層フィルムは、各層を構成する樹脂の分離回収が困難であるという問題がある。

[0006] これについて、特許文献1に記載の積層フィルムは、ポリエチレンテレフタレート等の樹脂フィルムを積層しなくとも、剛性及び耐熱収縮性が包装材料に求められる水準を満たしている。しかしながら、特許文献1に記載の積層フィルムは、衝撃強度という点において改善の余地がある。

[0007] 本発明の一態様は、マテリアルリサイクルが容易であり、衝撃強度に優れた積層フィルム及びその関連技術を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明者らは、上記課題について鋭意検討した結果、エチレン重合体を含有する層と、エチレン重合体と無機フィラーとを含有する層とを積層してなる積層フィルムにおいて、さらに、エチレン重合体（D）と無機フィラー（B）とを含有する層Dを設けることによって、ポリエチレン樹脂を主成分とするモノマテリアルフィルムでありながら、高い衝撃強度を有する積層フィルムを得られることを見出し、本発明を完成させるに至った。

[0009] 上記の課題を解決するために、本発明の一態様に係る積層フィルムは、エチレンに由来する構造単位を80モル%以上含むエチレン重合体（A）を含有する層Aと、

エチレンに由来する構造単位を70モル%以上含むエチレン重合体（B）と、無機フィラー（A）とを含有する層Bと、

エチレンに由来する構造単位を70モル%以上含むエチレン重合体（C）を含有する層Cと、

バリア層及び接着層からなる群から選ばれる1種以上の層と、

エチレンに由来する構造単位を70モル%以上含むエチレン重合体（D）と、無機フィラー（B）とを含有し、エチレン重合体（D）及び無機フィラー（B）の合計含有量100質量%に対して、エチレン重合体（D）の含有量が75質量%以上99.5質量%未満であり、無機フィラー（B）の含有量が0.5質量%以上25質量%未満である層Dと、

エチレンに由来する構造単位を70モル%以上含むエチレン重合体（E）を含有する層Eを有し、

層A／層B／層C／バリア層／層D／層Eの順、

層A／層B／層C／接着層／層D／層Eの順、

層A／層B／層C／バリア層／接着層／層D／層Eの順、

層A／層B／層C／接着層／バリア層／層D／層Eの順のうちのいずれかの順で積層されてなる。

発明の効果

[0010] 本発明の一態様によれば、マテリアルリサイクルが容易であり、衝撃強度に優れた積層フィルム及びその関連技術を提供することができる。

発明を実施するための形態

[0011] 本発明の一実施形態について以下に説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。本発明は、以下に説明する各構成に限定されるものではなく、特許請求の範囲に示した範囲で種々の変更が可能であり、異なる実施形態や実施例にそれぞれ開示された技術的手段を適宜組み合わせて得られる実施形態や実施例についても本発明の技術的範囲に含まれる。また、本明細書においては特記しない限り、数値範囲を表す「A～B」は、「A以上、B以下」を意図する。

[0012] 以下、本発明に包含される各態様について、詳細に説明する。

[0013] <積層フィルム>

本態様一態様に係る積層フィルムは、エチレン重合体（A）を含有する層Aと、エチレン重合体（B）及び無機フィラー（A）を含有する層Bと、エチレン重合体（C）を含有する層Cと、バリア層及び接着層からなる群から選ばれる1種以上の層と、エチレン重合体（D）及び無機フィラー（B）を含有する層Dと、エチレン重合体（E）を含有する層Eとがこの順に積層され、層Cと層Dとの間にバリア層及び接着層から選択される少なくとも1つの層が積層されてなる。

[0014] 本発明の一態様に係る積層フィルムにおいて、層A、層B、及び層Cがこ

の順で積層されてなる層は基材層であり得る。ここで、基材層を形成するフィルムを基材フィルムと称することもある。また、層D及び層Eは、シーラント層であり得る。ここで、シーラント層を形成するフィルムをシーラントフィルムと称することもある。すなわち、本発明の一態様に係る積層フィルムは、層A、層B、及び層Cがこの順で積層されてなる基材層における層Cと、層D及び層Eを含むシーラント層における層Dとが、バリア層及び接着層からなる群から選ばれる1つの層を介して積層されてなる積層フィルムであり得る。ここで、本発明の一態様に係る積層フィルムは、層Eと層Dとの間に、エチレン重合体（F）を含有する層Fを備えていてもよい。また、層Cとバリア層及び接着層からなる群から選ばれる1つの層との間に印刷層を備えても良く、バリア層及び接着剤層からなる群から選ばれる1つの層と層Dとの間に印刷層を備えても良い。

[0015] 〔1〕基材フィルム（基材層）

基材フィルムは、エチレン重合体（A）を含有する層Aと、エチレン重合体（B）及び無機フィラーを含有する層Bと、エチレン重合体（C）を含有する層Cとがこの順に積層してなるフィルムであり、層Aが外層、層Bが中間層、層Cが内層であり得る。エチレン重合体（A）、エチレン重合体（B）、及びエチレン重合体（C）は、それぞれ、エチレン重合体におけるエチレンに由来する単量体単位のマール分率、密度、及びメルトフローレート（MFR）によって選択され得る。基材フィルムは、すくなくとも層Bに無機フィラーを含む。また、基材フィルムを構成する各層A、層B及び層Cは、必要に応じて添加剤を含んでいてもよい。

[0016] 〔1-1〕エチレン重合体

〔1-1-1〕エチレンに由来する単量体単位のマール分率

エチレンに由来する単量体単位のマール分率は、例えば、FTIR法、NMR法により求めることができる。

[0017] 層Aに含まれるエチレン重合体（A）は、エチレンに由来する構造単位を80モル%以上含み、97モル%以上含むことが好ましく、98モル%以上

含むことがより好ましく、99モル%以上含むことがさらに好ましい。エチレン重合体（A）は、100モル%のエチレンに由来する構造単位により構成されていてもよい。エチレンに由来する構造単位を80モル%以上含むことによって、高い耐熱性及び耐薬品性をフィルムに付与できるという効果を奏する。なお、層Aに含まれるエチレン重合体（A）として、後述するエチレン重合体を2種類以上併用してもよい。この場合、2種類以上のエチレン重合体の少なくとも1種類が、エチレン重合体（A）としてエチレンに由来する構造単位を80モル%以上含んでいればよい。また、エチレン重合体（A）とエチレン重合体（A）以外のエチレン重合体とを併用する場合、層Aに含まれるエチレン重合体（A）とエチレン重合体（A）以外のエチレン重合体の合計を100質量%として、エチレン重合体（A）の含有量が、60質量%以上であることが好ましく、80質量%以上であることがより好ましい。エチレン重合体（A）の含有量が90質量%以上であれば、層Aを好適に形成することができる。

[0018] 層Bに含まれるエチレン重合体（B）は、エチレンに由来する構造単位を70モル%以上含み、97モル%以上含むことが好ましく、98モル%以上含むことがより好ましく、99モル%以上含むことがさらに好ましい。エチレン重合体（B）は、100モル%のエチレンに由来する構造単位により構成されていてもよい。エチレン重合体（B）は、エチレンに由来する構造単位を70モル%以上含むことによって、成膜安定性を高めることができ、フィルムに剛性を付与できるという効果を奏する。なお、層Bに含まれるエチレン重合体（B）として後述するエチレン重合体を2種類以上併用してもよい。この場合、2種類以上のエチレン重合体の少なくとも1種類が、エチレン重合体（B）としてエチレンに由来する構造単位を70モル%以上含んでいればよい。また、エチレン重合体（B）とエチレン重合体（B）以外のエチレン重合体とを併用する場合、層Bに含まれる2種類以上のエチレン重合体の合計を100質量%として、エチレン重合体（B）の含有量が、60質量%以上であることが好ましく、80質量%以上であることがより好ましい。

。エチレン重合体（B）の含有量が90質量%以上であれば、層Bを好適に形成することができる。

[0019] 層Cに含まれるエチレン重合体（C）は、エチレンに由来する構造単位を70モル%以上含み、97モル%以上含むことが好ましく、98モル%以上含むことがより好ましく、99モル%以上含むことがさらに好ましい。エチレン重合体（C）は、100モル%のエチレンに由来する構造単位により構成されていてもよい。エチレン重合体（B）は、エチレンに由来する構造単位を70モル%以上含むことによって、基材フィルムに高い耐ブロッキング性を付与できるという効果を奏する。なお、層Cに含まれるエチレン重合体（C）として後述するエチレン重合体を2種類以上併用してもよい。この場合、2種類以上のエチレン重合体の少なくとも1種類が、エチレン重合体（C）としてエチレンに由来する構造単位を70モル%以上含んでいればよい。また、エチレン重合体（C）とエチレン重合体（C）以外のエチレン重合体とを併用する場合、層Cに含まれる2種類以上のエチレン重合体の合計を100質量%として、エチレン重合体（C）の含有量が、60質量%以上であることが好ましく、80質量%以上であることがより好ましい。エチレン重合体（C）の含有量が90質量%以上であれば、層Cを好適に形成することができる。

[0020] 層Aに含まれるエチレン重合体（A）は、エチレンに由来する構造単位を80モル%以上含み、層Bに含まれるエチレン重合体（B）は、エチレンに由来する構造単位を70モル%以上含み、層Cに含まれるエチレン重合体（C）は、エチレンに由来する構造単位を70モル%以上含む。これによって、基材フィルムは、層Aに外層、層Bに中間層、層Cに内層としての機能を付与しつつ、基材フィルムを使用した後、溶融混練したときにおいて、エチレン重合体（A）、エチレン重合体（B）、及びエチレン重合体（C）を好適に相溶させることができる。

[0021] [1-1-2] エチレン重合体の密度

エチレン重合体（A）、エチレン重合体（B）及びエチレン重合体（C）

の密度は、JIS K 6760-1995に規定されたアニーリング処理を行った後、JIS K 7112-1980に記載のA法に従って測定される。

[0022] 層Aに含まれるエチレン重合体(A)の密度は、フィルムの剛性を高める観点から、 930 kg/m^3 以上であることが好ましく、 935 kg/m^3 以上であることがより好ましく、 940 kg/m^3 以上であることが更に好ましい。また、フィルムの透明性を高める観点から、 970 kg/m^3 未満であることが好ましく、 960 kg/m^3 以下であることがより好ましい。

[0023] 層Bに含まれるエチレン重合体(B)の密度は、フィルムの剛性を高める観点から、 930 kg/m^3 以上であることが好ましく、 935 kg/m^3 以上であることがより好ましく、 940 kg/m^3 以上であることが更に好ましい。また、層Bへのフィラー受容性を高め、フィルムの加工安定性を高めるという観点から、 970 kg/m^3 未満であることが好ましく、 960 kg/m^3 以下であることがより好ましい。

[0024] 層Cに含まれるエチレン重合体(C)の密度は、フィルムの剛性、ハンドリング性や衝撃強度の観点、並びに、エチレン重合体(A)及びエチレン重合体(B)とともに好適に再利用するという観点から、 900 kg/m^3 以上であることが好ましく、より好ましくは 910 kg/m^3 以上であり、さらに好ましくは、 915 kg/m^3 以上であることが好ましい。また、フィルムの透明性を高める観点から、 970 kg/m^3 未満であることが好ましく、 960 kg/m^3 以下であることがより好ましい。

[0025] [1-1-3] エチレン重合体のメルトフローレート

エチレン重合体(A)、エチレン重合体(B)、及びエチレン重合体(C)のメルトフローレート(MFR)は、JIS K 7210-1-2014に準拠し、温度 190°C 、荷重 21.18 N で測定される。

[0026] エチレン重合体(A)のメルトフローレート(MFR)は、フィッシュアイ、流動性、フィルム表面の外観、粘着性等の観点から、 0.01 g/10分 以上であることが好ましく、 0.1 g/10分 以上であることがより好ま

しい。また、フィルムの強度を高める観点から、3 g / 10分未満であることが好ましく、2 g / 10分以下であることがより好ましい。

[0027] エチレン重合体 (B) のMFRは、フィッシュアイ、流動性、フィルム表面の外観、粘着性等の観点から、3 g / 10分以上であることが好ましく、4 g / 10分以上であることがより好ましい。また、20質量%~80質量%以上の無機フィラーを含有させ、フィルムの強度を高めるという観点から、25 g / 10分未満であることが好ましく、15 g / 10分以下であることがより好ましい。

[0028] エチレン重合体 (C) のMFRは、フィルム成形における押出し負荷を好適に調整し、フィルム強度を高めるという観点から、0.01 g / 10分以上であることが好ましく、より好ましくは0.1 g / 10分以上であり、さらに好ましくは0.5 g / 10分以上であり、また、3 g / 10分未満であることが好ましく、より好ましくは2.5 g / 10分以下であり、さらに好ましくは2 g / 10分以下である。

[0029] [1-1-4] エチレン重合体の種類

エチレン重合体 (A)、エチレン重合体 (B) 及びエチレン重合体 (C) には、それぞれ、高圧法低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、エチレン- α -オレフィン共重合体、エチレン-ビニルエステル共重合体、エチレン-不飽和カルボン酸エステル共重合体等のエチレン重合体を用いることができる。

[0030] エチレン重合体の中でも、エチレン重合体 (A) には、エチレン- α -オレフィン共重合体、及び、高圧法低密度ポリエチレン、及び高密度ポリエチレンが好適に用いられ、エチレン- α -オレフィン共重合体、及び高密度ポリエチレンがより好適に用いられる。

[0031] エチレン重合体 (B) には、エチレン- α -オレフィン共重合体、及び高密度ポリエチレンが好適に用いられる。

[0032] エチレン重合体 (C) には、高圧法低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、エチレン- α -オレフィン共重合体が好適に用いられ、エチレン- α

ーオレフィン共重合体がより好適に用いられる。

- [0033] エチレン重合体がエチレンー α ーオレフィン共重合体である場合、エチレンー α ーオレフィン共重合体の構成単位に用いられる炭素原子数3～20の α ーオレフィンとしては、プロピレン、1ーブテン、1ーペンテン、1ーヘキセン、1ーヘプテン、1ーオクテン、1ーノネン、1ーデセン、1ードデセン、4ーメチルー1ーペンテン、4ーメチルー1ーヘキセン等が挙げられ、これらは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。好ましくは、1ーブテン、1ーヘキセンである。
- [0034] エチレンー α ーオレフィン共重合体としては、例えば、エチレンープロピレン共重合体、エチレンー1ーブテン共重合体、エチレンー1ーヘキセン共重合体、エチレンー1ーオクテン共重合体、エチレンー1ーブテンー1ーヘキセン共重合体、エチレンー1ーブテンー1ーオクテン共重合体等が挙げられ、これらは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。また、好ましくは、エチレンー1ーブテン共重合体、エチレンー1ーヘキセン共重合体、エチレンー1ーブテンー1ーヘキセン共重合体である。
- [0035] エチレンー α ーオレフィン共重合体の製造方法としては、公知のラジカル重合触媒やイオン重合触媒を用いて、公知の重合方法による製造方法が挙げられる。公知の触媒としては、例えば、過酸化物触媒、チーグラー・ナッタ系触媒、メタロセン系触媒等があげられ、公知の重合方法としては、例えば、溶液重合法、スラリー重合法、高圧イオン重合法、高圧ラジカル重合法、気相重合法等が挙げられる。
- [0036] チーグラー・ナッタ系触媒としては、例えば、チタン原子、マグネシウム原子及びハロゲン原子を含有するオレフィン重合用固体触媒成分と、有機金属化合物とからなる触媒が挙げられ、より具体的には、特開平11ー322833号公報に記載された触媒が挙げられる。
- [0037] メタロセン系触媒としては、例えば、次の(1)～(4)の触媒等が挙げられる。
- [0038] (1) シクロペンタジエン形骨格を有する基を有する遷移金属化合物を含

む成分と、アルモキサン化合物とを含む成分からなる触媒

(2) 前記遷移金属化合物を含む成分と、トリチルボレート、アニリニウムボレート等のイオン性化合物とを含む成分からなる触媒

(3) 前記遷移金属化合物を含む成分と、前記イオン性化合物を含む成分と、有機金属化合物とを含む成分からなる触媒

(4) 前記の各成分を SiO_2 、 Al_2O_3 等の無機粒子状担体や、エチレン、スチレン等のオレフィン重合体等の粒子状ポリマー担体に担持または含浸させて得られる触媒

上記の有機金属化合物としては、例えば、ブチルリチウム、トリエチルアルミニウム等が挙げられる。

[0039] エチレン- α -オレフィン共重合体は、メタロセン系触媒を用いた気相重合法により製造されたエチレン- α -オレフィン共重合体が好ましい。該エチレン- α -オレフィン共重合体としては、具体的には、特開平9-183816号公報に記載されているエチレン- α -オレフィン共重合体を挙げることができる。

[0040] また、エチレン重合体が高密度ポリエチレンである場合、その製造方法としては、公知の触媒を用いて、エチレンと炭素原子数3~12の α -オレフィンとを、公知の重合方法により重合する製造方法が挙げられる。公知の触媒としては、例えば、チーグラ-ナッタ系触媒が挙げられ、公知の重合方法としては、例えば、溶媒の存在下又は不存在下における気相-固相重合法、液相-固相重合法、均一液相重合法等が挙げられる。重合温度としては、通常30~300℃であり、重合圧力としては、通常、常圧~3000 kg/cm²である。

[0041] その他、高圧法低密度ポリエチレン、エチレン-ビニルエステル共重合体、エチレン-不飽和カルボン酸エステル共重合体等のエチレン重合体についても公知の製造方法によって製造すればよく、市販品を用いてもよい。

[0042] [1-2] 無機フィラー (A)

基材フィルムは、少なくとも層Bに無機フィラー (A) を含む。層Bにお

ける無機フィラーの含有量は、エチレン重合体（B）及び前記無機フィラー（A）の合計含有量100質量%に対して、20質量%～80質量%であることが好ましく、30質量%～70質量%であることがより好ましい。層Bにおける無機フィラー（A）の含有量が20質量%以上であることによって、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）フィルム、及びポリアミドフィルム等のフィルムを基材フィルムに積層しなくても、基材フィルム、さらには基材フィルムにシーラントフィルムを積層した積層フィルムに高い剛性及び高い耐熱収縮性を付与することができる。このため、基材フィルム及び積層フィルムを再生するときにおいて、ポリエチレンテレフタレート（PET）フィルム、及びポリアミドフィルム等を分離する必要がない。よって、基材フィルム、及び積層フィルムをエチレン重合体と無機フィラーとの成形材料用組成物として好適に再生することができる。なお、層Bにおける無機フィラー（A）の含有量が、80質量%以下であれば、層A及び層Cと首尾よく共押出することができ、基材フィルムを首尾よく成形することができる。

[0043] なお、層A及び層Cも無機フィラーを含んでいてもよい。層Aにおける無機フィラーの含有量は、エチレン重合体（A）及び無機フィラーの合計含有量100質量%に対し、限定されるものではないが、20質量%未満であればよい。同様に、層Cにおける無機フィラーの含有量は、エチレン重合体（C）及び無機フィラーの合計含有量100質量%に対し、限定されるものではないが、20質量%未満であればよい。

[0044] 基材フィルムを構成する層A、層B及び層Cに含まれ得る無機フィラーには、炭酸カルシウム、カオリン、メタカオリン、ハイドロタルサイト、マイカ、タルク、及び繊維状塩基性硫酸マグネシウム粒子等が挙げられ、これら無機フィラーを用いることによって、フィルムの透明性が損なわれることを回避することができる。フィルムの剛性をより高くするという観点から、より好ましくはハイドロタルサイト、タルク及び繊維状塩基性硫酸マグネシウム粒子が挙げられる。これら無機フィラーは単独で用いてもよく、2種以上

を併用してもよい。また、無機フィラーは、例えば、カップリング剤等によって表面処理されていてもよい。その他、層A、層B及び層Cは、酸化チタン及び酸化鉄等の着色顔料を無機フィラーとして含んでいてもよい。

[0045] 無機フィラーのメディアン径（ d_{50} ）は、限定されるものではないが、 $0.5 \sim 10 \mu\text{m}$ であることが好ましい。なお、無機フィラーのメディアン径（ d_{50} ）は、レーザ回折法によって、体積基準のメディアン径として測定することができる。

[0046] 無機フィラーが、繊維状塩基性硫酸マグネシウム粒子である場合、限定されるものではないが、繊維長が $8 \sim 30 \mu\text{m}$ 、繊維径が $0.5 \sim 1.0 \mu\text{m}$ であることが好ましい。

[0047] [1-3] 添加剤

層A、層B及び層Cは、必要に応じて、本発明の目的・効果を損なわない範囲で、少なくとも1つの添加剤を含んでいてもよい。

[0048] 添加剤としては、滑剤、安定剤（酸化防止剤）、界面活性剤、帯電防止剤、加工性改良剤、抗ブロッキング剤、及び染料等が挙げられる。

[0049] 滑剤としては、例えば流動パラフィン、天然パラフィン、マイクロワックス、ポリエチレンワックス、塩素化パラフィン、フルオロカーボン、合成パラフィンなどのパラフィン系ワックス；ステアリン酸、パルチミン酸、ミリスチン酸、ベヘニン酸、アラキジンなどの脂肪酸系ワックス；脂肪族アミド、アルキレンビス脂肪酸アミドなどの脂肪族アミド系ワックス；ステアリン酸ブチルなどの脂肪酸低級アルコールエステル；多価アルコール、ポリグリコールエステル、高級アルコールエステル類などのエステル系；ステアリン酸亜鉛、マグネシウムステアレート、カルシウムステアレート、ロノジンクなどの金属石鹸；脂肪アルコール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコールなどの多価アルコール系；脂肪酸と多価アルコールの部分エステル、脂肪酸とポリグリコール・ポリグリセロールの部分エステルなどを挙げることができ、2つ以上の滑剤を併用してもよい。

[0050] 滑剤は、無機フィラーを含む層に配合されることが好ましく、例えば、層

Bに配合するときにおいて、エチレン重合体（B）と無機フィラーとの合計100質量部に対し、0.2～5.0質量部含まれることが好ましい。

[0051] 安定剤としては、例えば、2, 6-ジ-tert-ブチル-p-クレゾール（BHT）、テトラキス[メチレン-3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]メタン（IRGANOX（登録商標）1010, BASF社製）、n-オクタデシル-3-(4'-ヒドロキシ-3, 5'-ジ-tert-ブチルフェニル)プロピオネート（IRGANOX（登録商標）1076, BASF社製）等で代表されるフェノール系安定剤、ビス(2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、トリス(2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル)ホスファイト等で代表されるホスファイト系安定剤等が挙げられる。

[0052] 界面活性剤としては、例えばカルボン酸塩、脂肪酸塩、環状脂肪酸塩、特殊ポリカルボン酸塩型活性剤、スルホン酸塩、アルキルまたはアルケニルスルホン酸塩、アルキルアリルスルホン酸塩、アルキルアリルスルホン酸塩の重縮合物、硫酸塩、アルキル硫酸エステル、ポリオキシエチレン・アルキルエーテル硫酸塩、ポリオキシエチレン・アルキルフェニルエーテル硫酸塩、りん酸エステル、アルキルりん酸エステル、ポリオキシエチレン・アルキル(フェニル)エーテルりん酸エステル塩、無機りん酸塩等のアニオン性界面活性剤；ポリオキシエチレン誘導体、ポリオキシエチレン・アルキルエーテル、ポリオキシエチレン・アルキルフェニルエーテル、ポリオキシエチレン・ソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン・ポリオキシプロピレンブロックポリマー、ポリオキシエチレンアルキルアミン、ポリオキシエチレンアルキルアמיד、多価アルコール系誘導体等のノニオン性界面活性剤；アルキルアミン塩、第4アンモニウム塩等のカチオン性界面活性剤；アルキルベタイン等の両性界面活性剤；フッ素系界面活性剤、シリコン系界面活性剤、反応性界面活性剤等を挙げることができ、これらの化合物の中から1種または2種以上用いることができる。

[0053] その他、層A、層B及び層Cは、衝撃強度の改良のために用いられる低密

度エラストマー等のポリオレフィン系樹脂を添加剤として含んでいてもよい。

[0054] 〔２〕バリア層及び接着層

バリア層及び接着層からなる群から選ばれる１種以上の層は、層Ｃと層Ｄとの間に位置する層であって、バリア層または接着層のいずれかの単一層であっても、バリア層と接着層とを含む多層であってもよい。

[0055] バリア層は、酸素及び水蒸気等のガスの透過を防ぐ層である。バリア層は、例えば、無機化合物を蒸着することによって形成される金属酸化物の層と、無機層状化合物とポリビニルアルコール系樹脂とを含む組成物から形成される層とが挙げられる。ここで、無機化合物を蒸着することによって形成される層には、酸化ケイ素、アルミナ、及びスピネルから形成される層を挙げることができる。バリア層は、例えば、無機層状化合物とポリビニルアルコール系樹脂とを含む組成物から形成される層であり得る。

[0056] ここで、無機層状化合物としては、カオリナイト族、スメクタイト族、及びマイカ族が挙げられる。この中でも、層状ケイ酸塩鉱物、ヘクトライト、サボナイト等のスメクタイト族が好ましく、無機層状化合物の層間に樹脂を取り込み、複合体を形成し易い。スメクタイト族の中でも、層状ケイ酸塩鉱物が好ましく、高い酸素ガスバリア性を付与することができる。

[0057] ポリビニルアルコール系樹脂とは、ビニルアルコールに由来する構造単位を主成分として有する重合体である。このような「ポリビニルアルコール」としては、例えば、酢酸ビニル重合体の酢酸エステル部分を加水分解して得られる重合体、トリフルオロ酢酸ビニル重合体、ギ酸ビニル重合体、ピバリン酸ビニル重合体、ｔ－ブチルビニルエーテル重合体、トリメチルシリルビニルエーテル重合体等を加水分解して得られる重合体が挙げられる（「ポリビニルアルコール」の詳細については、例えば、ポバール会編、「ＰＶＡの世界」、１９９２年、（株）高分子刊行会；長野ら、「ポバール」、１９８１年、（株）高分子刊行会を参照することができる）。重合体のエステル部分の「ケン化」の程度は、７０モル％以上が好ましく、８５モル％以上がよ

り好ましく、98%モル以上がさらに好ましい。また、使用する重合体の重合度は、100以上5000以下であることが好ましく、200以上3000以下であることがより好ましい。

[0058] また、ビニルアルコールとしては、水酸基以外の官能基を有するいわゆるビニルアルコール誘導体であってもよく、水酸基以外の官能基として、例えば、アミノ基、チオール基、カルボキシ基、スルホン酸基、リン酸基、カルボキシレート基、スルホン酸イオン基、燐酸イオン基、アンモニウム基、ホスホニウム基、シリル基、シロキサン基、アルキル基、アリル基、フルオロアルキル基、アルコシキ基、カルボニル基、ハロゲン基等が例示できる。

[0059] また、ポリビニルアルコール系樹脂としては、ビニルアルコールに由来する構造単位と、エチレン、プロピレン等の α -オレフィンに由来する構造単位とを含む共重合体であってもよい。ポリビニルアルコール系樹脂が共重合体である場合、水系溶媒への溶解性の観点から、該共重合体に含まれる α -オレフィンに由来する構造単位の含有量は40モル%以下であることが好ましく、15モル%以下であることがより好ましい。

[0060] 接着層は、水性型、及び溶剤型のドライラミネート用接着剤から形成してもよく、無溶剤型ラミネート用接着剤から形成してもよい。接着層を形成するための接着剤には、例えば、ポリエーテル系ポリウレタン接着剤、ポリエステル系ポリウレタン接着剤等のポリウレタン系接着剤、ポリエステル系接着剤、イミン系接着剤、及びチタネート系接着剤等を挙げることができる。例えば、ポリウレタン系接着剤には、タケラック（登録商標）（三井化学製）、及びタケネート（登録商標）（三井化学製）等を挙げることができる。

[0061] その他、接着層は、高密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、極低密度ポリエチレン、超低密度ポリエチレンエチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-アクリル酸共重合体、エチレン-アクリル酸エステル共重合体、エチレン-メタクリル酸共重合体、エチレン-メタクリル酸エステル共重合体、エチレン-ビニルアルコール共重合体、エチレン-酢酸ビニル共重合体鹼化物、エチレン-スチレン共重合体、エチレン-ビニルシクロヘキサン共重合

体、エチレンーノルボルネン共重合体、ポリオレフィンゴム、スチレンーブタジエンゴム、スチレンーブタジエンスチレンブロック共重合体、イソプレングム、スチレンーイソプレングム、イソブチレングム、これら樹脂の酸変性体や水添物等から形成される層であってもよい。

[0062] 〔3〕シーラントフィルム（シーラント層）

シーラントフィルムは、エチレン重合体（D）及び無機フィラー（B）を含有する層Dと、エチレン重合体（E）を含有する層Eとがこの順に積層してなるフィルムであり、層Dが内層、層Eが外層であり得る。シーラントフィルムがエチレン重合体（D）及び無機フィラー（B）を含有する層Dと、エチレン重合体（E）を含有する層Eを有することにより、積層フィルムにおける衝撃強度と、ヒートシール剥離強度とを両立させることができる。

[0063] また、シーラントフィルムは層Dと層Eとの間に、中間層として、エチレン重合体（F）を含有する層Fが設けられていてもよい。これにより、積層フィルムで形成された袋等の容器における落体強度を向上させることができる。落体強度は、積層フィルムで形成された袋等を落としたときにおいて、袋の内容物が漏れること防止するための強度として評価される。

[0064] 本発明の一態様に係る積層フィルムは、マテリアルリサイクル可能である基材フィルムに、層Dと層Eとが積層されてなるシーラントフィルムを積層することで、ポリエチレンテレフタレート（PET）フィルム、及びポリアミドフィルム等のフィルムを基材フィルムに積層しなくても、衝撃強度を高めることができる。すなわち、マテリアルリサイクル可能という特性を維持しつつ、積層フィルムの衝撃強度を高めることができる。

[0065] また、層Dは、エチレン重合体（D）及び無機フィラー（B）の他に、エチレン重合体（G）を含有していることが好ましい。

[0066] 〔3－1〕エチレン重合体

 〔3－1－1〕エチレンに由来する単量体単位のリモル分率

層Dが含有するエチレン重合体（D）は、エチレンに由来する構造単位を70モル%以上、好ましくは90モル%以上含み得る。エチレン重合体（D

)は、100モル%のエチレンに由来する構造単位により構成されていてもよい。なお、層Dはエチレン重合体(D)の他に、後述するエチレン重合体(G)及び/又はエチレン重合体(G)以外のエチレン重合体を含んでいてもよい。

[0067] 層Dが、エチレン重合体(D)とエチレン重合体(G)以外のエチレン重合体を含む場合、層Dに含まれるエチレン重合体(D)及びエチレン重合体(G)以外のエチレン重合体の合計を100質量%として、エチレン重合体(D)の含有量は、60質量%以上であることが好ましく、80質量%以上であることがより好ましく、層Dを好適に形成するという観点から、90質量%以上であることがさらに好ましい。

[0068] 層Dが、エチレン重合体(D)とエチレン重合体(G)とエチレン重合体(G)以外のエチレン重合体とを含む場合、層Dに含まれるエチレン重合体(D)の含有量、エチレン重合体(G)の含有量、及びエチレン重合体(G)以外のエチレン重合体の含有量の合計を100質量%として、エチレン重合体(D)及びエチレン重合体(G)の含有量は、60質量%以上であることが好ましく、80質量%以上であることがより好ましく、層Dを好適に形成するという観点から、90質量%以上であることがさらに好ましい。

[0069] 層Eが含有するエチレン重合体(E)は、エチレンに由来する構造単位を70モル%以上、好ましくは90モル%以上含み得る。エチレン重合体(E)は、100モル%のエチレンに由来する構造単位により構成されていてもよい。また、エチレン重合体(E)とエチレン重合体(E)以外のエチレン重合体とを併用する場合、層Eに含まれる2種類以上のエチレン重合体の合計を100質量%として、エチレン重合体(E)の含有量が、60質量%以上であることが好ましく、80質量%以上であることがより好ましく、層Eを好適に形成するという観点から、エチレン重合体(E)の含有量は90質量%以上であることが、さらに好ましい。

[0070] シーラントフィルムが、層Fを備えている場合、当該層Fが含有するエチレン重合体(F)は、エチレンに由来する構造単位を70モル%以上、好ま

しくは90モル%以上含み得る。エチレン重合体（F）は、100モル%のエチレンに由来する構造単位により構成されていてもよい。また、エチレン重合体（F）とエチレン重合体（F）以外のエチレン重合体とを併用する場合、層Fに含まれる2種類以上のエチレン重合体の合計を100質量%として、エチレン重合体（F）の含有量が、60質量%以上であることが好ましく、80質量%以上であることがより好ましく、層Fを好適に形成するという観点から、エチレン重合体（F）の含有量は90質量%以上であることが、さらに好ましい。

[0071] 層Dは、エチレン重合体（D）の他に、エチレン重合体（G）を含有していてもよい。当該エチレン重合体（G）は、エチレンに由来する構造単位を70モル%以上、好ましくは90モル%以上含み得る。エチレン重合体（G）は、100モル%のエチレンに由来する構造単位により構成されていてもよい。また、層Dがエチレン重合体（G）を含む場合、エチレン重合体（D）の含有量、及び無機フィラー（B）の含有量の合計100質量部に対して、エチレン重合体（G）の含有量が0.1質量部以上20質量部以下であることが好ましい。エチレン重合体（D）の含有量、及び無機フィラー（B）の含有量の合計100質量部に対して、エチレン重合体（G）の含有量が0.1質量部以上20質量部以下であることにより、積層フィルムの衝撃強度を高めることができる。

[0072] 層Dに含まれるエチレン重合体（D）、層Eに含まれるエチレン重合体（E）、層Fに含まれるエチレン重合体（F）は、エチレンに由来する構造単位を70モル%以上含む。これによって、シーラントフィルムは、層Dに内層、層Fに中間層、層Eに外層としての機能を付与しつつ、シーラントフィルムを基材フィルムに積層して積層フィルムを形成できる。また、積層フィルムを使用した後、溶融混練することで、基材フィルムにおけるエチレン重合体（A）、エチレン重合体（B）、及びエチレン重合体（C）と、シーラントフィルムにおけるエチレン重合体（D）、エチレン重合体（E）、及びエチレン重合体（F）とを好適に相溶させることができる。

[0073] [3-1-2] エチレン重合体の密度

エチレン重合体 (A) ~ (C) と同じく、エチレン重合体 (D)、エチレン重合体 (E)、エチレン重合体 (F)、及びエチレン重合体 (G) の密度は、JIS K 6760-1995 に規定されたアニーリング処理を行った後、JIS K 7112-1980 に記載の A 法に従って測定される。

[0074] エチレン重合体 (D) の密度は、基材フィルムとともに好適に再利用するという観点から、 900 kg/m^3 以上であることが好ましく、より好ましくは 910 kg/m^3 以上であり、さらに好ましくは、 915 kg/m^3 以上である。また、シーラントフィルムとして衝撃強度を高める観点から、 930 kg/m^3 未満であることが好ましく、 925 kg/m^3 以下であることがより好ましい。

[0075] エチレン重合体 (E) の密度は、シーラントフィルムとしてのハンドリング性、フィルムの透明性を維持し、ヒートシール剥離強度を高めるという観点から、 880 kg/m^3 以上であることが好ましく、より好ましくは 890 kg/m^3 以上であり、さらに好ましくは、 895 kg/m^3 以上であり、 930 kg/m^3 未満であることが好ましい。

[0076] エチレン重合体 (F) の密度は、 910 kg/m^3 以上であることが好ましく、より好ましくは 913 kg/m^3 以上であり、さらに好ましくは、 915 kg/m^3 以上であり、 930 kg/m^3 未満であることが好ましい。エチレン重合体 (F) の密度が、 910 kg/m^3 以上、 930 kg/m^3 未満であることにより、積層フィルムにより形成された袋の落体強度を高めることができる。

[0077] エチレン重合体 (G) の密度は、シーラントフィルムとして、衝撃強度を高めるという観点から、 940 kg/m^3 以上であることが好ましく、より好ましくは 945 kg/m^3 以上であり、さらに好ましくは、 950 kg/m^3 以上であることが好ましい。また、シーラントフィルムとして、層 D へのファイラ受容性を高め、フィルムの加工安定性を高めるという観点から、 970 kg/m^3 未満であることが好ましく、 965 kg/m^3 以下であることが

より好ましい。

[0078] [3-1-3] エチレン重合体のメルトフローレート

エチレン重合体 (D)、エチレン重合体 (E)、エチレン重合体 (F)、及びエチレン重合体 (G) のメルトフローレート (MFR) はエチレン重合体 (A) 等と同じく、JIS K7210-1-2014 に準拠し、温度 190℃、荷重 21.18 N で測定される。

[0079] エチレン重合体 (D) の MFR は、フィルム成形における押出し負荷を好適に調整し、フィルム強度を高めるという観点から、0.01 g/10 分以上であることが好ましく、より好ましくは 0.1 g/10 分以上であり、さらに好ましくは 0.5 g/10 分以上であり、また、3 g/10 分未満であることが好ましく、2 g/10 分以下であることがより好ましい。

[0080] エチレン重合体 (E) の MFR は、フィルム成形における押出し負荷を好適に調整し、フィルム強度を高めるという観点から、0.01 g/10 分以上であることが好ましく、より好ましくは 0.1 g/10 分以上であり、さらに好ましくは 0.5 g/10 分以上であり、また、3 g/10 分未満であることが好ましく、2 g/10 分以下であることがより好ましい。

[0081] エチレン重合体 (F) の MFR は、フィルム成形における押出し負荷を好適に調整し、フィルム強度を高めるという観点から、0.01 g/10 分以上であることが好ましく、より好ましくは 0.1 g/10 分以上であり、さらに好ましくは 0.5 g/10 分以上であり、また、3 g/10 分未満であることが好ましく、2 g/10 分以下であることがより好ましい。

[0082] エチレン重合体 (G) の MFR は、フィルム成形における押出し負荷を好適に調整し、フィルム強度を高めるという観点から、0.01 g/10 分以上であることが好ましく、より好ましくは 0.1 g/10 分以上であり、さらに好ましくは 0.5 g/10 分以上であり、また、10 g/10 分未満であることが好ましく、7 g/10 分以下であることがより好ましく、さらに好ましくは 5 g/10 分以下であり、最も好ましくは 3 g/10 分以下である。

[0083] 〔3－1－4〕エチレン重合体の種類

エチレン重合体（D）、エチレン重合体（E）、エチレン重合体（F）及びエチレン重合体（G）には、それぞれ、高圧法低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、エチレン- α -オレフィン共重合体、エチレン-ビニルエステル共重合体、エチレン-不飽和カルボン酸エステル共重合体等のエチレン重合体を用いることができる。

[0084] エチレン重合体の中でも、エチレン重合体（D）及びエチレン重合体（E）には、エチレン- α -オレフィン共重合体、及び、高圧法低密度ポリエチレン、及び高密度ポリエチレンが好適に用いられ、エチレン- α -オレフィン共重合体、及び高圧法低密度ポリエチレンがより好適に用いられる。

[0085] エチレン重合体（F）には、高圧法低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、エチレン- α -オレフィン共重合体が好適に用いられ、エチレン- α -オレフィン共重合体がより好適に用いられる。

[0086] エチレン重合体（G）には、高圧法低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、エチレン- α -オレフィン共重合体が好適に用いられ、エチレン- α -オレフィン共重合体、及び高密度ポリエチレンがより好適に用いられる。

[0087] エチレン重合体（D）、エチレン重合体（E）、エチレン重合体（F）及びエチレン重合体（G）として用いられる、エチレン- α -オレフィン共重合体は、例えば、エチレン-プロピレン共重合体、エチレン-1-ブテン共重合体、エチレン-1-ヘキセン共重合体、エチレン-1-オクテン共重合体、エチレン-1-ブテン-1-ヘキセン共重合体、エチレン-1-ブテン-1-オクテン共重合体等が挙げられ、これらは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。また、好ましくは、エチレン-1-ブテン共重合体、エチレン-1-ヘキセン共重合体、エチレン-1-ブテン-1-ヘキセン共重合体である。

[0088] エチレン- α -オレフィン共重合体を始めとするエチレン重合体の製造方法は、上述の〔1－1－4〕エチレン重合体の種類の欄に説明した通りである。

[0089] 〔３－２〕無機フィラー（Ｂ）

シーラント層は、すくなくとも層Ｄに無機フィラー（Ｂ）を含む。層Ｄにおける無機フィラーの含有量は、エチレン重合体（Ｄ）及び前記無機フィラー（Ｂ）の合計含有量１００質量％に対して、エチレン重合体（Ｄ）の含有量が７５質量％以上９９．５質量％未満であり、無機フィラー（Ｂ）の含有量が０．５質量％以上２５質量％未満である。層Ｄに含まれる無機フィラー（Ｂ）の含有量は０．５質量％以上であり、１質量％以上であることが好ましく、１．５質量％以上であることがより好ましく、２質量％以上であることがさらに好ましく、２５質量％未満であるとよい。層Ｄにおける無機フィラーの含有量が０．５質量％以上であり、２５質量％未満であることにより、層Ｄと、基材フィルムとの密着性を維持しつつ、積層フィルムの衝撃強度を高めることができる。

[0090] なお、層Ｆも無機フィラーを含んでいてもよい。層Ｆにおける無機フィラーの含有量は、エチレン重合体（Ｆ）及び無機フィラーの合計含有量１００質量％に対し、限定されるものではないが、２０質量％未満であればよい。同様に、層Ｅにおける無機フィラーの含有量は、エチレン重合体（Ｅ）及び無機フィラーの合計含有量１００質量％に対し、限定されるものではないが、２０質量％未満であればよい。

[0091] シーラントフィルムを構成するＤに含まれ得る無機フィラー（Ｂ）の種類、メディアン径、繊維長等は、無機フィラー（Ａ）と同じである。

[0092] 〔３－３〕添加剤

層Ｄ、層Ｅ、及び層Ｆは、それぞれ必要に応じて、本発明の目的・効果を損なわない範囲で、少なくとも１つの添加剤を含んでいてもよい。添加剤としては、層Ａ、層Ｂ、層Ｃと同じく、滑剤、安定剤（酸化防止剤）、界面活性剤、帯電防止剤、加工性改良剤、抗ブロッキング剤、及び染料等が挙げられる。

[0093] その他、層Ｄ、層Ｅ及び層Ｆは、衝撃強度の改良のために用いられる低密度エラストマー等のポリオレフィン樹脂を添加剤として含んでもよい。

[0094] <積層フィルムの製造方法>

本実施形態に係る積層フィルムは、層Aと、層Bと、層Cとがこの順で積層されてなる基材フィルム（層A／層B／層C）の、層C側の表面をコロナ処理する工程と、基材フィルムの層C側のコロナ処理を行なった面に、バリア層及び接着層からなる群から選ばれる1種以上の層を介して、シーラントフィルムを積層する工程と、を含む製造方法により、製造することができる。

[0095] シーラントフィルムは、層Dと、層Eとがこの順で積層されてなり、層D及び層Eの間には、層Fが積層されていてもよい。シーラントフィルムは、層D側にコロナ処理を行ない、当該層D側の面に、バリア層及び接着層からなる群から選ばれる1種以上の層を介して、基材フィルムを積層される。

[0096] 基材フィルムにおける層A、層B、及び層Cを成形するためのエチレン重合体を含むフィルム成形用樹脂組成物、及びシーラントフィルムにおける層D、層E、及び層Fを成形するためのエチレン重合体を含むフィルム成形用樹脂組成物の製造方法としては、特に限定されるものではなく、それぞれ個別に、あらかじめメルトブレンド（熔融混練）してもよく、個々にドライブレンドしてもよく、または一種以上のマスターバッチにしてドライブレンドしてもよい。ドライブレンドにおいてはヘンシェルミキサー、タンブラーミキサー等の各種ブレンダーが用いられ、メルトブレンドにおいては単軸押出機、二軸押出機、バンバリーミキサー、熱ロール等の各種ミキサーが用いられる。

[0097] 基材フィルムの層Aの厚さは、フィルムの加工安定性を高めるという観点から、5 μm 以上であることが好ましく、7 μm 以上であることがより好ましい。また、フィルムの剛性を高めるという観点から、30 μm 以下であることが好ましく、20 μm 以下であることがより好ましい。

[0098] 基材フィルムの層Bの厚さは、フィルムの剛性を高めるという観点から、10 μm 以上であることが好ましく、12 μm 以上であることがより好ましい。また、フィルムの加工安定性を高めるという観点から、60 μm 以下で

あることが好ましく、 $40\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましい。

[0099] 基材フィルムの層Cの厚さは、フィルムの加工安定性を高めるという観点から、 $5\text{ }\mu\text{m}$ 以上であることが好ましく、 $7\text{ }\mu\text{m}$ 以上であることがより好ましい。また、フィルムの剛性を高めるという観点から、 $30\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $20\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましい。

[0100] 基材フィルムにおいて、層A／層B／層Cの各層の厚み比は、 $1/1/1\sim 1/15/1$ であることが好ましく、より好ましくは $1/2/1\sim 1/10/1$ であり、さらに好ましくは $1/2/1\sim 1/6/1$ である。

[0101] シーラントフィルムにおける層Dの厚さは、衝撃強度を高めるという観点から、 $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上、 $150\text{ }\mu\text{m}$ 以下であり、 $20\text{ }\mu\text{m}$ 以上であることがより好ましく、 $30\text{ }\mu\text{m}$ 以上であることが更に好ましい。また、エチレン重合体(D)の使用量を削減できるという観点から、 $100\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $80\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましい。

[0102] シーラントフィルムにおける層Eの厚さは、ヒートシール剥離強度を高めるという観点から、 $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上、 $150\text{ }\mu\text{m}$ 以下であり、 $20\text{ }\mu\text{m}$ 以上であることがより好ましく、 $30\text{ }\mu\text{m}$ 以上であることが更に好ましい。また、エチレン重合体(E)の使用量を削減できるという観点から、 $100\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $80\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましい。

[0103] また、シーラントフィルムにおける層Fの厚さは、落体強度を高めるという観点から、 $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上、 $150\text{ }\mu\text{m}$ 以下であり、 $30\text{ }\mu\text{m}$ 以上であることがより好ましく、エチレン重合体(D)の使用量を削減できるという観点から、 $100\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $80\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましい。

[0104] シーラントフィルムにおいて、層D／層Eの各層の厚み比は、 $1/10\sim 5/1$ であることが好ましく、より好ましくは $1/5\sim 3/1$ であり、さらに好ましくは $1/3\sim 2/1$ である。シーラントフィルムにおいて、層D／層F／層Eが積層されてなる場合、各層の厚み比は、層Dと層Eとの厚さの合計／層Fの厚さの比として、 $1/5\sim 10/1$ であることが好ましく、よ

り好ましくは1／3～5／1であり、さらに好ましくは1／2～3／1である。

[0105] 基材フィルム、及びシーラントフィルムの製造方法としては、特に限定されるものではなく、公知のフィルムの製造方法が挙げられ、例えば、インフレーションフィルム製造装置を用いるインフレーション法、Tダイキャストフィルム製造装置を用いるTダイ法等の押出成形方法が挙げられる。

[0106] Tダイ法を用いる場合、加工樹脂温度は180℃～300℃であり、チロール温度は20℃～80℃である。

[0107] インフレーション法を用いる場合、層A、層B、層C、層D、層E、層Fを形成するための樹脂組成物にポリブテン等の粘着剤を添加してもよい。ポリブテンの添加方法としては、ポリブテンを予めバンバリー混練機等でコンパウンドした原料を用いる方法、押出し機内に注入する方法等が挙げられる。ポリブテンの濃度は0.5～20質量%であり、基材フィルムの三層の全て、両外層（層A及び層C）のみ、または中間層（層B）のみに添加してもよく、シーラントフィルムの全ての層（層D、層E及び層F）、または何れかの層（例えば層Fのみ）に添加してもよい。ポリブテンとしては、日本石油化学（株）製HV35、出光石油化学（株）製ポリブテン100H等の市販品を用いてもよい。

[0108] バリア層及び接着層からなる群から選ばれる1種以上の層を介して、基材フィルムと層Dとを積層する前に、基材フィルムの層C側の表面にコロナ処理を施すとよい（層Cの表面をコロナ処理する工程）。これにより、層Cとバリア層又は接着層との接着強度を高めることができる。

[0109] バリア層を形成する方法は、例えば、酸化ケイ素、アルミナ、及びスピネル等の層は蒸着により形成するとよい。また、無機層状化合物とポリビニルアルコール系樹脂とを含む組成物から形成されるバリア層は、当該組成物を塗布し、乾燥することによって形成すればよい。

[0110] 基材フィルム（層A／層B／層C）とシーラントフィルム（層D／層E、又は層D／層F／層E）とを積層する方法は、接着層を形成するか否かによ

って適宜選択するとよい。例えば、接着層を形成する場合、予め成形されたシーラントフィルムをドライラミネート法、又は押出ラミネート法によって積層する方法が上げられる。

[0111] ドライラミネート法では、例えば、基材フィルムの層Cにおけるコロナ処理した面に、又は、バリア層側の面に水性型又は溶剤型のドライラミネート用接着剤を塗布し、乾燥することで接着層を形成し、これにより基材フィルムの層Cとシーラントフィルムの層Dとをドライラミネート法で貼り合わせることができる。ここで、シーラントフィルムの層Dにおける基材フィルムに対向する側の面には、基材フィルムの層Cと同様に、コロナ処理しておことが好ましい（層Dの表面をコロナ処理する工程）。

[0112] また、押出ラミネート法（サンドイッチラミネート法）では、基材フィルムにおける層C又はバリア層と、シーラントフィルムにおける層Dとの間に無溶剤型のラミネート用接着剤を溶融押出し、接着層を形成する。これにより、基材フィルムの層Cとシーラントフィルムの層Dとを、接着層を介して貼り合わせることができる。

[0113] その他、接着層を形成しない場合、無溶剤ラミネート法により、層D、及び層E、若しくは層D、層F及び層Eを成形すればよく、基材フィルムにおける層C又はバリア層上にエチレン重合体（D）を含む層Dを成形するための樹脂組成物、エチレン重合体（E）を含む層Eを成形するための樹脂組成物、エチレン重合体（F）を含む層Fを成形するための樹脂組成物を溶融押出し、これにより、シーラント層を成形することができる。

[0114] <積層フィルムの用途>

本発明の一態様に係る積層フィルムは、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）フィルムやポリアミドフィルムを積層せずとも、高い剛性及び耐熱収縮性を備えている。よって、一態様に係る積層フィルムは、例えば、食品、洗剤、及び化粧品等を収納する包装袋、及び包装用容器として好適に用いることができる。また、基材層及びシーラント層をエチレン重合体によって成形することができることから、基材層及びシーラント層と分離せず

とも、再利用することができるモノマテリアル包材として好適に使用することができる。

[0115] <再生方法>

本発明の一態様に係る積層フィルムは、例えば、食品、洗剤、及び化粧品等の容器として用いた後、回収し、再生するとよい。積層フィルムの再生は、例えば、水やアルコール等の溶剤等によって回収した容器を洗浄し、乾燥した後に当該容器を溶融し、ペレット化すればよい。容器の溶融、及びペレット化は、積層フィルムの全層を分離することなく行うことができる。得られたペレットと、当該ペレットとは、無機フィラーの含有量が異なるエチレン重合体のマスターバッチとを混合し、溶融し、無機フィラーの濃度を調整してもよい。当該マスターバッチに用いられるエチレン重合体は、エチレン重合体（A）、エチレン重合体（B）、エチレン重合体（C）、エチレン重合体（D）の何れかを選択すればよい。

[0116] 再生したエチレン重合体を含む樹脂材料は、例えば、食品、洗剤、化粧品用途の成形材料として好適に使用することができる。

[0117] 本発明は上述した各実施形態に限定されるものではなく、請求項に示した範囲で種々の変更が可能であり、異なる実施形態にそれぞれ開示された技術的手段を適宜組み合わせて得られる実施形態についても本発明の技術的範囲に含まれる。

実施例

[0118] 以下、実施例を挙げて本発明についてさらに具体的に説明する。ただし、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

[0119] （１）エチレン重合体の各種物性の測定方法は、以下の通りである。

（１－１）エチレン重合体中のエチレンに由来する構造単位の含有量（単位：モル％） 短鎖分岐数が既知のエチレンーヘキセン共重合体の標準サンプルについて、 $100\mu\text{m}$ のプレスシートを作成し、日本分光社製FTIR 480にて、積算回数16回、分解 4cm^{-1} にて赤外線吸収強度を測定した。得られたスペクトルの 1700cm^{-1} と 920cm^{-1} を結びペー

スラインを作成した。得られたスペクトルの 1378 cm^{-1} のピーク強度 ($I1S$) と 1303 cm^{-1} のピーク強度 ($I2S$)、またベースラインの 1378 cm^{-1} のピーク強度 ($I01S$) と 1303 cm^{-1} のピーク強度 ($I02S$) をそれぞれ読み取り、以下の式を用いて、係数 f を求めた。

$$f = (\text{標準サンプルの } 1000\text{C 中の短鎖分岐数}) / 0.67 \{ (K1S) - 0.95 (K2S) + 3.8 \}$$

$$K1S = \text{Log} (I01S / I1S) / \text{標準サンプルの密度} / \text{シート厚み} (\mu\text{m})$$

$$K2S = \text{Log} (I02S / I2S) / \text{標準サンプルの密度} / \text{シート厚み} (\mu\text{m})$$

次に、短鎖分岐数が未知のサンプルについて、 $100\mu\text{m}$ のプレスシートを作成し、日本分光社製 FT-IR 480 にて、積算回数 16 回、分解 4 cm^{-1} にて赤外線吸収強度を測定した。得られたスペクトルの 1700 cm^{-1} と 920 cm^{-1} を結びベースラインを作成した。得られたスペクトルの 1378 cm^{-1} のピーク強度 ($I1$) と 1303 cm^{-1} のピーク強度 ($I2$)、またベースラインの 1378 cm^{-1} のピーク強度 ($I01$) と 1303 cm^{-1} のピーク強度 ($I02$) をそれぞれ読み取り、以下の式を用いて $\text{CH}_3 / 1000\text{C}$ を算出した。

$$\text{CH}_3 / 1000\text{C} = 0.67 \times f \times ((K1) - 0.95 \times (K2) + 3.8)$$

$$K1 = \text{Log} (I01 / I1) / \text{サンプルの密度} / \text{シート厚み} (\mu\text{m})$$

$$K2 = \text{Log} (I02 / I2) / \text{サンプルの密度} / \text{シート厚み} (\mu\text{m})$$

短鎖分岐がプロピレンの場合は、得られた $\text{CH}_3 / 1000\text{C}$ に対し 0.60 倍した値を、ヘキセンの場合は、得られた $\text{CH}_3 / 1000\text{C}$ に対し 1.13 倍した値を、短鎖分岐がオクテンの場合は、得られた $\text{CH}_3 / 1000\text{C}$ に対し 1.10 倍した値を、短鎖分岐が 4 メチルペンテン 1 の場合は、得られた $\text{CH}_3 / 1000\text{C}$ に対し 0.62 倍した値を、短鎖分岐がプロピレ

ン、ヘキセン、オクテン、4メチルペンテン以外の場合は、得られた CH_3 ／1000の値を、1000炭素中の短鎖分岐度とした。

エチレン重合体中のエチレンに由来する構造単位の含有量は、1000炭素中の短差分岐度を用いて、以下式にて算出した。

エチレン重合体中のエチレンに由来する構造単位の含有量（モル％）＝（1000－1000炭素中の短鎖分岐度）／10

[0120] (1-2) エチレン重合体の密度（単位： kg/m^3 ）

JIS K6760-1995に記載のアニリング処理を行った後、JIS K7112-1980に記載のA法に従って、エチレン重合体の密度（単位： kg/m^3 ）を測定した。

[0121] (1-3) エチレン重合体のメルトフローレート（MFR、単位： $\text{g}/10$ 分）

JIS K7210-1-2014に従い、温度190℃、荷重21.18Nの条件でエチレン重合体のMFR（単位： $\text{g}/10$ 分）を測定した。

[0122] (2) 実施例及び比較例に用いた材料は、以下の通りである。

(2-1) エチレン重合体

・エチレン重合体1

エチレン- α -オレフィン共重合体、京葉ポリエチレン株式会社製 商品名「G2500」、エチレンに由来する構造単位：99.2モル％、密度：960 kg/m^3 、MFR：5 $\text{g}/10$ 分

・エチレン重合体2

エチレン- α -オレフィン共重合体、京葉ポリエチレン株式会社製 商品名「E8080」、エチレンに由来する構造単位：99.1モル％、密度：958 kg/m^3 、MFR：1.0 $\text{g}/10$ 分

・エチレン重合体3

エチレン-ヘキセン共重合体、住友化学株式会社製 商品名「スミカセンE（登録商標）FV205」、製造方法：メタロセン触媒を用いた気相重合、エチレンに由来する構造単位：98.9モル％、密度：921 kg/m^3 、

MFR : 2.2 g / 10分

・エチレン重合体4

エチレンーヘキセン共重合体、住友化学株式会社製 商品名「エクセレンFX（登録商標）FX307」、製造方法：メタロセン触媒を用いた気相重合、エチレンに由来する構造単位：95.5モル%、密度：890 kg / m³、MFR : 3.2 g / 10分

・エチレン重合体5

エチレンーヘキセン共重合体、住友化学株式会社製 商品名「スミカセンE（登録商標）FV104」、製造方法：メタロセン触媒を用いた気相重合、エチレンに由来する構造単位：98.0モル%、密度：915 kg / m³、MFR : 1.0 g / 10分

・エチレン重合体6

エチレンーヘキセン共重合体、住友化学株式会社製 商品名「エクセレンGMH（登録商標）GH030」、製造方法：メタロセン触媒を用いた気相重合、エチレンに由来する構造単位：96.9モル%、密度：912 kg / m³、MFR : 0.5 g / 10分

・エチレン重合体7

エチレンーヘキセン共重合体、住友化学株式会社製 商品名「スミカセンE（登録商標）FV201」、製造方法：メタロセン触媒を用いた気相重合、エチレンに由来する構造単位：98.1モル%、密度：916 kg / m³、MFR : 2.3 g / 10分

[0123] ・無機フィラー1

タルク、浅田製粉株式会社製 商品名「JM620P」、メディアン径（d50）5 μm

[0124] （2-3）接着剤

・接着剤1

ドライラミネート用接着剤（製造方法：12質量部のタケラック（登録商標）A310（三井化学製）と、1質量部のタケネート（登録商標）A-3

(三井化学製)と、32質量部の酢酸エチルとを混合して得た)

[0125] (3) フィルムの各種物性の評価方法は、以下のとおりである。

(3-1) 衝撃強度 (単位: kJ/m^2)

フィルムをASTM Type Sダンベルにて打ち抜き、 $63.5\text{ mm} \times 9.5\text{ mm}$ の衝撃強度評価用の試験片を得た。株式会社オリエンテック製衝撃試験装置 (CIT-150-T-20) を用いて、 23°C 、湿度50%の雰囲気下、つかみ間隔20mm、ハンマー呼称エネルギー $15\text{ kgf} \cdot \text{cm}$ 、ハンマー振り上げ角度 150° 、衝撃速度 $3.8\text{ m}/\text{秒}$ の条件で試験片の衝撃強度試験を行った。衝撃強度試験により得られた引張-応力カーブの面積からエネルギーを算出し、試験片の断面積で除して、衝撃強度を求めた。なお、フィルム製造時にける送り出し方向と、試験片の長辺方向とが一致するように切り出したものをMD方向の試験片とした。

[0126] (3-2) ヒートシール剥離強度 (単位: $\text{N}/15\text{ mm}$)

同じフィルム同士を重ね合わせ、10mm幅のヒートシールバーが装着されたヒートシーラー (テスター産業 (株) 製TP-701S) で、ヒートシールバーの方向をフィルムのTD方向に合わせて、所定のヒートシールバー温度及び 1 kPa の圧力で、1秒間、上記フィルム同士を圧着してヒートシールを行った。ヒートシール後のフィルムを一昼夜、 23°C 、湿度50%で状態調整した後、ヒートシール部の幅が15mmとなるようにフィルムを切り出し、ヒートシールされた2枚のフィルムの対向している非シール部分をそれぞれ引張試験機 ((株) オリエンテック製) のチャックにセットし、 23°C 、湿度50%、剥離速度 $200\text{ mm}/\text{分}$ 、剥離角度 180° で剥離し、ヒートシール剥離強度を測定した。ヒートシールバーの温度は、 140°C において上記試験を行った。

[0127] [実施例1]

30質量部のエチレン重合体1と、70質量部の無機フィラー1と、0.2質量部の滑剤1と、0.2質量部の酸化防止剤1とを、スーパーミキサー (株式会社カワタ製、商品名「SMV-100」) を用いて窒素ガス雰囲気

下、温度190℃で攪拌して、混合物を得た。得られた混合物を、同方向二軸押出機（株式会社神戸製鋼所製、商品名「KTX-37」、スクリー径37mmφ）を用いて、温度220～240℃、スクリー回転数100rpmで熔融混練し、マスターバッチペレット1（MB1）を得た。

[0128] 小型多層Tダイ（SHIモダンマシナリー株式会社製）を用いて、層A（エチレン重合体2；100質量部、厚さ；6μm）／層B（マスターバッチペレット1；43質量部、エチレン重合体1；57質量部、厚さ；13μm）／層C（マスターバッチペレット1；5質量部、エチレン重合体3；95質量部、厚さ；6μm）の層構成を有する3層Tダイフィルムを成形した。次いで、得られたフィルムの層C側の表面にコロナ処理を行い、Tダイフィルム1（TF1）を得た。成形条件及びコロナ処理条件は以下のとおりであった。

<成形条件>

- ・ 押出機：φ50mm×2台、φ40mm×1台
- ・ ダイ開口長：600mm
- ・ リップ：1.2mm
- ・ 層Aの加工温度：230℃
- ・ 層Aの押出条件：2.5kg／時間
- ・ 層Bの加工温度：210℃
- ・ 層Bの押出条件：5kg／時間
- ・ 層Cの加工温度：230℃
- ・ 層Cの押出条件：2.5kg／時間

<コロナ処理条件>

- ・ コロナ処理器：ウェッジ製 AGF-B 10型
- ・ コロナ出力：0.15kW

[0129] 3層共押出インフレーションフィルム成形機（株式会社プラコー製）を用いて、層D（エチレン重合体3；95質量部、マスターバッチペレット1；5質量部、厚さ；80μm）／層E（エチレン重合体4；100質量部、厚

さ； $40\mu\text{m}$ ）の層構成を有する2層インフレーションフィルムを成形した。次いで、得られたフィルムの層D側の表面にコロナ処理を行い、インフレーションフィルム1（IF1）を得た。成形条件及びコロナ処理条件は以下のとおりであった。

<成形条件>

- ・押出機： $\phi 50\text{mm} \times 3$ 台
- ・ダイ： $\phi 150\text{mm}$ 、リップ 2.0mm t
- ・ダイの設定温度： $180 \sim 190^\circ\text{C}$
- ・層Dの加工温度： $180 \sim 190^\circ\text{C}$
- ・層Dの押出条件： $20\text{kg}/\text{時}$
- ・層Eの加工温度： $180 \sim 190^\circ\text{C}$
- ・層Eの押出条件： $10\text{kg}/\text{時}$
- ・折径： 470mm

<コロナ処理条件>

- ・コロナ処理器：ウェッジ製 AGF-B 10型
- ・コロナ出力： 0.2kW

[0130] Tダイフィルム1のコロナ処理を行なった面と、インフレーションフィルム1のコロナ処理を行った面を、ドライラミネート用接着剤1を介して、ドライラミネート法で貼り合わせ、層A／層B／層C／接着剤層／層D／層Eの6層構成を有する積層フィルム1を得た。

[0131] 〔実施例2〕

層Aとして、 100 質量部のエチレン重合体2に代えて、 95 質量部のエチレン重合体2と 5 質量部のマスターバッチペレット1とをドライブレンドした混合物を用いた以外は、実施例1と同じ条件にて、Tダイフィルム2（TF2）を得た。

[0132] Tダイフィルム2のコロナ処理を行なった面と、インフレーションフィルム1のコロナ処理を行った面を、ドライラミネート用接着剤1を介して、ドライラミネート法で貼り合わせ、層A／層B／層C／接着剤層／層D／層Eの

6層構成を有する積層フィルム2を得た。

[0133] 〔実施例3〕

層Dとして、エチレン重合体3；95質量部、マスターバッチペレット1；5質量部に代えて、エチレン重合体3；93質量部、マスターバッチペレット1；7質量部を用いた以外は、実施例1と同様にして、インフレーションフィルム2（IF2）を得て、積層フィルム3を得た。

[0134] 〔実施例4〕

層Dとして、エチレン重合体3；95質量部、マスターバッチペレット1；5質量部に代えて、エチレン重合体3；86質量部、マスターバッチペレット1；14質量部を用いた以外は、実施例1と同様にして、インフレーションフィルム3（IF3）を得て、積層フィルム4を得た。

[0135] 〔実施例5〕

層Dとして、エチレン重合体3；95質量部、マスターバッチペレット1；5質量部に代えて、エチレン重合体3；79質量部、マスターバッチペレット1；21質量部を用いた以外は、実施例1と同様にして、インフレーションフィルム4（IF4）を得て、積層フィルム5を得た。

[0136] 〔実施例6〕

3層共押出インフレーションフィルム成形機（株式会社プラコー製）を用いて、層D（エチレン重合体3；95質量部、マスターバッチペレット1；5質量部、厚さ；40 μ m）／層F（エチレン重合体5；50質量部、エチレン重合体6；50質量部、厚さ；40 μ m）／層E（エチレン重合体4；100質量部、厚さ；40 μ m）の層構成を有する3層インフレーションフィルムを成形した。次いで、得られたフィルムの層D側の表面にインフレーションフィルム1と同様の条件でコロナ処理を行い、インフレーションフィルム5を得た。

<成形条件>

- ・押出機： ϕ 50mm $\times$ 3台
- ・ダイ： ϕ 150mm、リップ2.0mm t

- ・ダイの設定温度：180～190℃
- ・層Dの加工温度：180～190℃
- ・層Dの押出条件：10kg／時間
- ・層Fの加工温度：180～190℃
- ・層Fの押出条件：10kg／時間
- ・層Eの加工温度：180～190℃
- ・層Eの押出条件：10kg／時間
- ・折径：470mm

[0137] Tダイフィルム1のコロナ処理を行なった面と、インフレーションフィルム5のコロナ処理を行った面を、ドライラミネート用接着剤1を介して、ドライラミネート法で貼り合わせ、層A／層B／層C／接着剤層／層D／層F／層Eの7層構成を有する積層フィルム6を得た。

[0138] 〔実施例7〕

層Eとして、エチレン重合体4；100質量部に代えて、エチレン重合体7；100質量部を用いた以外は、実施例6と同様にして、インフレーションフィルム6（IF6）を得て、積層フィルム7を得た。

[0139] 〔比較例1〕

層Dとして、エチレン重合体3；95質量部、マスターバッチペレット1；5質量部に代えて、エチレン重合体3；57質量部、マスターバッチペレット1；43質量部を用いた以外は、実施例1と同様にして、インフレーションフィルム7（IF7）を得て、積層フィルム8を得た。

[0140] 〔比較例2〕

3層共押出インフレーションフィルム成形機（株式会社プラコー製）を用いて、層D（エチレン重合体7；100質量部、厚さ；120μm）の層構成を有するインフレーションフィルム8（IF8）を成形した。次いで、得られたインフレーションフィルム8の表面にインフレーションフィルム1と同様の条件でコロナ処理を行った。

<成形条件>

- ・ 押出機： $\phi 50\text{ mm} \times 3$ 台
- ・ ダイ： $\phi 150\text{ mm}$ 、リップ 2.0 mm t
- ・ ダイの設定温度： $180 \sim 190^\circ\text{C}$
- ・ 層Dの加工温度： $180 \sim 190^\circ\text{C}$
- ・ 層Dの押出条件： 30 kg/時
- ・ 折径： 470 mm

[0141] Tダイフィルム1のコロナ処理を行なった面と、インフレーションフィルム8のコロナ処理を行った面を、ドライラミネート用接着剤1を介して、ドライラミネート法で貼り合わせ、層A／層B／層C／接着剤層／層Dの5層構成を有する積層フィルム9を得た。

[0142] Tダイフィルム(TF)1及び2の成分及び層構成を表1に示す。
インフレーションフィルム(IF)1～4の成分及び層構成を表2に示す。
インフレーションフィルム(IF)5～8の成分及び層構成を表3に示す。
積層フィルム1～9の成分、層構成及び物性の評価結果を表4に示す。

[0143]

[表1]

			ターゲット1 (TF1)	ターゲット2 (TF2)
層 A	MB1	エポキシ重合体1 / 質量部	—	1.5
		無機フィラー / 質量部	—	3.5
	MB1 合計 / 質量部		—	5
	エポキシ重合体2 / 質量部		100	95
	エポキシ重合体の合計 / 質量部		100	96.5
	無機フィラーの合計 / 質量部		—	3.5
	厚さ / μm		6	6
層 B	MB1	エポキシ重合体1 / 質量部	13	13
		無機フィラー / 質量部	30	30
	MB合計 / 質量部		43	43
	エポキシ重合体1 / 質量部		57	57
	エポキシ重合体の合計 / 質量部		70	70
	無機フィラーの合計 / 質量部		30	30
	厚さ / μm		13	13
層 C	MB1	エポキシ重合体1 / 質量部	1.5	1.5
		無機フィラー / 質量部	3.5	3.5
	MB合計 / 質量部		5.0	5.0
	エポキシ重合体3 / 質量部		95	95
	エポキシ重合体の合計 / 質量部		96.5	96.5
	無機フィラーの合計 / 質量部		3.5	3.5
	厚さ / μm		6	6

[0144]

[表2]

			インフレーションファイ M1 (IF1)	インフレーションファイ M2 (IF2)	インフレーションファイ M3 (IF3)	インフレーションファイ M4 (IF4)
層 D	MB1	エポキシ重合体1 / 質量部	1.5	2.1	4.2	6.3
		無機フィラー / 質量部	3.5	4.9	9.8	14.7
		MBの合計 / 質量部	5.0	7.0	14	21
	エポキシ重合体3 / 質量部		95	93	86	79
	エポキシ重合体の合計 / 質量部		96.5	95.1	90.2	85.3
	無機フィラーの合計 / 質量部		3.5	4.9	9.8	14.7
	厚さ / μm		80	80	80	80
層 F	エポキシ重合体4 / 質量部		—	—	—	—
	エポキシ重合体5 / 質量部		—	—	—	—
	エポキシ重合体6 / 質量部		—	—	—	—
	厚さ		—	—	—	—
層 E	エポキシ重合体4 / 質量部		100	100	100	100
	厚さ / μm		40	40	40	40

[0145] [表3]

			インフレーションファイ M5 (IF5)	インフレーションファイ M6 (IF6)	インフレーションファイ M7 (IF7)	インフレーションファイ M8 (IF8)
層 D	MB1	エポキシ重合体1 / 質量部	1.5	1.5	12.9	—
		無機フィラー / 質量部	3.5	3.5	30.1	—
		MBの合計 / 質量部	5.0	5.0	43	—
	エポキシ重合体3 / 質量部		95	95	57	—
	エポキシ重合体7 / 質量部		—	—	—	100
	エポキシ重合体の合計 / 質量部		96.5	96.5	69.9	—
	無機フィラーの合計 / 質量部		3.5	3.5	30.1	—
	厚さ / μm		40	40	80	120
層 F	エポキシ重合体4 / 質量部		—	—	—	—
	エポキシ重合体5 / 質量部		50	50	—	—
	エポキシ重合体6 / 質量部		50	50	—	—
	厚さ / μm		40	40	—	—
層 E	エポキシ重合体4 / 質量部		100	—	100	—
	エポキシ重合体7 / 質量部		—	100	—	—
	厚さ / μm		40	40	40	—

[0146]

[表4]

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	比較例1	比較例2
積層フィルム No.		1	2	3	4	5	6	7	8	9
層構成	Tg' フィルム	TF1	TF2	TF1	TF1	TF1	TF1	TF1	TF1	TF1
	接着層	ドライラミネート用接着剤1								
	インフレーションフィルム	IF1	IF1	IF2	IF3	IF4	IF5	IF6	IF7	IF8
結果	衝撃強度MD方向 (単位: kJ/m ²)	1121	1068	1168	1094	1131	1056	1110	543	990
	ヒートシール剥離強度 (単位: N/15mm) @140°C	36	35	35	36	37	36	24	39	24

[0147] [実施例8]

層Dとして、エチレン重合体3；95質量部、マスターバッチペレット1；5質量部に代えて、エチレン重合体3；99質量部、マスターバッチペレット1；1質量部を用いた以外は、実施例1と同様にして、インフレーションフィルム9（IF9）を得て、積層フィルム10を得た。

[0148] [実施例9]

層Dとして、エチレン重合体3；95質量部、マスターバッチペレット1；5質量部に代えて、エチレン重合体3；97質量部、マスターバッチペレット1；3質量部を用いた以外は、実施例1と同様にして、インフレーションフィルム10（IF10）を得て、積層フィルム11を得た。

[0149] インフレーションフィルム（IF）9及び10成分及び層構成を表5に示す。

積層フィルム10及び11の成分、層構成及び物性の評価結果を表6に示す。

[0150]

[表5]

			インフレーションフ ィルム1 (IF9)	インフレーションフ ィルム2 (IF10)
層 D	MB1	エポキシ重合体1 / 質量部	0.3	0.9
		無機フィラー / 質量部	0.7	2.1
		MBの合計 / 質量部	1.0	3.0
	エポキシ重合体3 / 質量部		99	97.0
	エポキシ重合体の合計 / 質量部		99.3	97.9
	無機フィラーの合計 / 質量部		0.7	2.1
	厚さ / μm		80	80
層 F	エポキシ重合体4 / 質量部		—	—
	エポキシ重合体5 / 質量部		—	—
	エポキシ重合体6 / 質量部		—	—
	厚さ		—	—
層 E	エポキシ重合体4 / 質量部		100	100
	厚さ / μm		40	40

[0151] [表6]

		実施例8	実施例9
積層フィルム No.		10	11
層 構 成	下フィルム	TF1	TF1
	接着層	ドライラミネート用接着剤1	
	インフレーションフィルム	IF9	IF10
結 果	衝撃強度MD方向 (単位: kJ/m^2)	1037	1050
	ヒートシール剥離強度 (単位: N/15mm) @140°C	36	36

産業上の利用可能性

[0152] 本発明の一態様に係る積層フィルムは、良好な衝撃強度を示し、マテリアルリサイクルに適した各種包装材料、例えば、食品用包装材料に好適に用いられる。

請求の範囲

- [請求項1] エチレンに由来する構造単位を80モル%以上含むエチレン重合体(A)を含有する層Aと、
エチレンに由来する構造単位を70モル%以上含むエチレン重合体(B)と、無機フィラー(A)とを含有する層Bと、
エチレンに由来する構造単位を70モル%以上含むエチレン重合体(C)を含有する層Cと、
バリア層及び接着層からなる群から選ばれる1種以上の層と、
エチレンに由来する構造単位を70モル%以上含むエチレン重合体(D)と、無機フィラー(B)とを含有し、前記エチレン重合体(D)及び前記無機フィラー(B)の合計含有量100質量%に対して、前記エチレン重合体(D)の含有量が75質量%以上99.5質量%未満であり、前記無機フィラー(B)の含有量が0.5質量%以上25質量%未満である層Dと、
エチレンに由来する構造単位を70モル%以上含むエチレン重合体(E)を含有する層Eを有し、
層A／層B／層C／バリア層／層D／層Eの順、
層A／層B／層C／接着層／層D／層Eの順、
層A／層B／層C／バリア層／接着層／層D／層Eの順、
層A／層B／層C／接着層／バリア層／層D／層Eの順のうちのいずれかの順で積層されてなる積層フィルム。
- [請求項2] 前記エチレン重合体(E)の密度が 880 kg/m^3 以上 910 kg/m^3 未満であり、温度 190°C 、荷重 21.18 N で測定されるメルトフローレートが 0.01 g/10分 以上 5 g/10分 未満である、請求項1に記載の積層フィルム。
- [請求項3] 前記積層フィルムにおいて、層Dと層Eとの間に、エチレン重合体(F)を含有する層Fが積層されてなり、
前記エチレン重合体(F)の密度が 910 kg/m^3 以上 930 kg/m^3

g/m^3 未満である、請求項1または2に記載の積層フィルム。

[請求項4]

前記層Dが、前記エチレン重合体(D)と、エチレン重合体(G)と、無機フィラー(B)とを含有し、

前記エチレン重合体(G)の密度が $940\text{ kg}/\text{m}^3$ 以上 $970\text{ kg}/\text{m}^3$ 未満であり、

前記エチレン重合体(D)、及び前記無機フィラー(B)の合計含有量100質量部に対して、前記エチレン重合体(G)の含有量が0.1質量部以上20質量部以下である、請求項1～3のいずれか一項に記載の積層フィルム。

[請求項5]

前記無機フィラー(A)及び前記無機フィラー(B)のそれぞれが、炭酸カルシウム、カオリン、メタカオリン、ハイドロタルサイト、マイカ、タルク及び繊維状塩基性硫酸マグネシウム粒子からなる群から選ばれる1種以上のフィラーである、請求項1～4のいずれか一項に記載の積層フィルム。

[請求項6]

前記エチレン重合体(A)の密度が $930\text{ kg}/\text{m}^3$ 以上 $970\text{ kg}/\text{m}^3$ 未満であり、温度 190°C 、荷重21.18Nで測定されるメルトフローレートが $0.01\text{ g}/10$ 分以上、 $3\text{ g}/10$ 分未満であり、

前記エチレン重合体(B)の密度が $930\text{ kg}/\text{m}^3$ 以上 $970\text{ kg}/\text{m}^3$ 未満であり、温度 190°C 、荷重21.18Nで測定されるメルトフローレートが $3\text{ g}/10$ 分以上、 $25\text{ g}/10$ 分未満であり、

前記エチレン重合体(C)の密度が $900\text{ kg}/\text{m}^3$ 以上 $970\text{ kg}/\text{m}^3$ 未満であり、温度 190°C 、荷重21.18Nで測定されるメルトフローレートが $0.01\text{ g}/10$ 分以上、 $3\text{ g}/10$ 分未満であり、

前記エチレン重合体(D)の密度が $900\text{ kg}/\text{m}^3$ 以上 $930\text{ kg}/\text{m}^3$ 未満であり、温度 190°C 、荷重21.18Nで測定される

メルトフローレートが $0.01\text{ g}/10\text{ 分}$ 以上、 $3\text{ g}/10\text{ 分}$ 未満であり、

前記エチレン重合体（E）の密度が $880\text{ kg}/\text{m}^3$ 以上 $930\text{ kg}/\text{m}^3$ 未満であり、温度 190°C 、荷重 21.18 N で測定されるメルトフローレートが $0.01\text{ g}/10\text{ 分}$ 以上、 $3\text{ g}/10\text{ 分}$ 未満である、請求項1～5のいずれか一項に記載の積層フィルム。

[請求項7]

前記層Aの厚さが $5\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $30\text{ }\mu\text{m}$ 以下であり、

前記層Bの厚さが $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $60\text{ }\mu\text{m}$ 以下であり、

前記層Cの厚さが $5\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $30\text{ }\mu\text{m}$ 以下である、請求項1～6のいずれか一項に記載の積層フィルム。

[請求項8]

前記層Dの厚さが $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $150\text{ }\mu\text{m}$ 以下であり、前記層Eの厚さが $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $150\text{ }\mu\text{m}$ 以下である、請求項1～7のいずれか一項に記載の積層フィルム。

[請求項9]

前記バリア層が酸化ケイ素、アルミナ、スピネル、ポリビニルアルコール系樹脂と無機層状鉱物の組成物からなる群から選ばれる1種以上のバリア剤を含むバリア層であり、

前記接着層がポリウレタン系接着剤、ポリエステル系接着剤、イミン系接着剤及びチタネート系接着剤からなる群から選ばれる1種以上の接着剤を含む接着層である、請求項1～8のいずれか一項に記載の積層フィルム。

[請求項10]

前記層Cの表面をコロナ処理する工程及び前記層Dの表面をコロナ処理する工程を含む、請求項1～9のいずれか一項に記載の積層フィルムの製造方法。