

明 細 書

発明の名称：多層延伸フィルム

技術分野

[0001] 本発明は、多層延伸フィルムに関し、より詳しくはリサイクル性に優れており、光沢、剛性、および強度が優れ、それらのバランスのよい多層延伸フィルムに関する。

背景技術

[0002] 包装材には各種樹脂からなるフィルムが基材として用いられているが、A L L P Eのフィルムに必要な特性として、光沢、剛性、および強度が優れていることが挙げられる。

剛性の観点からすれば高密度ポリエチレン（H D P E）が樹脂として適しているが、縦引裂強度が不十分となる場合がある。

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0003] そこで、縦引裂強度アップの為にメルトフローレート（M F R）の低い（低M F Rの）H D P Eを用いると光沢が不十分となることがあり、基材であるフィルムの密度が高いとタルミが発生して外観が不十分となることがある。

[0004] このような課題に鑑み、本発明は、M F Rに差のある多層のフィルム（高M F R H D P E層／低M F R H D P E層）にすること、及びこれらより密度の低い層を併用することにより全体の密度（平均密度）が低く抑えられ、光沢、剛性、縦引裂強度、タルミの点でバランスに優れた多層延伸フィルムが得られ、リサイクル性にも優れていることを見出したことに基づく。

課題を解決するための手段

[0005] 本発明の要旨は以下のとおりである。

[0006] [1]

J I S K 7 2 1 0に準拠して測定したメルトフローレート（M F R、

190℃、2.16kg荷重)が0.5g/10分以上、10g/10分以下であり、JIS K7112に準拠して測定した密度が940kg/m³以上であるエチレン系重合体(A1)を主成分として含む層(a1)、

JIS K7210に準拠して測定したメルトフローレート(MFR、190℃、2.16kg荷重)が0.01g/10分以上、0.5g/10分未満であり、JIS K7112に準拠して測定した密度が940kg/m³以上であるエチレン系重合体(A2)を主成分として含む層(a2)、

JIS K7210に準拠して測定したメルトフローレート(MFR、190℃、2.16kg荷重)が0.01g/10分以上、50g/10分未満であり、JIS K7112に準拠して測定した密度が940kg/m³未満であるエチレン系重合体(B)を主成分として含む層(b)、

JIS K7210に準拠して測定したメルトフローレート(MFR、190℃、2.16kg荷重)が0.01g/10分以上、0.5g/10分未満であり、JIS K7112に準拠して測定した密度が940kg/m³以上であるエチレン系重合体(A3)を主成分として含む層(a3)、及び

JIS K7210に準拠して測定したメルトフローレート(MFR、190℃、2.16kg荷重)が0.5g/10分以上、10g/10分以下であり、JIS K7112に準拠して測定した密度が940kg/m³以上であるエチレン系重合体(A4)を主成分として含む層(a4)、
をこの順に備えており、平均密度が931kg/m³以上、948kg/m³以下である多層延伸フィルム。

[0007] [2]

延伸倍率が2倍以上であることを特徴とする前記の[1]に記載の多層延伸フィルム。

[0008] [3]

厚さが5μm～1000μmである前記の[1]または[2]に記載の多層延伸フィルム。

[0009] [4]

グロスが30%以上、弾性率（MD方向）が2000MPa以上、かつ引裂強さ（MD方向）が0.5Nを超えることを特徴とする前記の[1]から[3]のいずれかに記載の多層延伸フィルム。

[0010] [5]

前記の[1]から[4]のいずれかに記載の多層延伸フィルムを含む積層体。

[0011] [6]

前記の[5]に記載の積層体を含む包装材。

[0012] [7]

溶融共押出による成形により、フィルムの原反を成形する際、あるいはその後、延伸することを特徴とする、前記の[1]から[4]のいずれかに記載の多層延伸フィルムの製造方法。

発明の効果

[0013] 本発明によれば、光沢、剛性、縦引裂強度、タルミの点でバランスに優れ、リサイクル性にも優れる多層延伸フィルムを得ることができる。

発明を実施するための形態

[0014] 以下、本発明の多層延伸フィルムをさらに詳細に説明する。

[0015] 本発明の多層延伸フィルムは、少なくとも以下の5層を以下の順番で有する。

[0016] 層(a1) エチレン系重合体(A1)を主成分として含む層、
層(a2) エチレン系重合体(A2)を主成分として含む層、
層(b) エチレン系重合体(B)を主成分として含む層、
層(a3) エチレン系重合体(A3)を主成分として含む層、及び
層(a4) エチレン系重合体(A4)を主成分として含む層。

エチレン系重合体

これら各層に用いられるエチレン系重合体は、いずれもエチレンを主成分とする重合体であり、例えば、エチレンの単独重合体、エチレンと炭素数3

～20の α -オレフィンとの共重合体がある。

- [0017] 炭素数3～20の α -オレフィンとしては、例えば、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、1-ドデセン、4-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ヘキセン等が挙げられ、これらの混合物を用いてもよい。 α -オレフィンは、好ましくは、炭素数4、6又は8の化合物若しくはこれらの混合物であり、1-ブテン、1-ヘキセン、1-オクテン若しくはこれらの混合物である。
- [0018] また、各層のいずれかにおいて、エチレン系重合体として、エチレンと炭素数3～20の α -オレフィンの共重合体である場合の α -オレフィンに含有量は、通常30モル%以下、好ましくは20モル%以下、より好ましくは15モル%以下の範囲で選択されることが望ましい。この範囲であれば、それを含む層の柔軟性と耐熱性が良好になる。
- [0019] 本発明で用いるエチレン系重合体において、エチレン、或いはエチレンを含むモノマーの重合方法は、特に限定されず、従来公知の方法により行うことができる。重合温度や重合圧力は、重合方法や重合装置に応じて、適宜調節される。重合装置についても特に限定されず、従来公知の装置を用いることができる。
- [0020] 重合方法についても、目的とするエチレン系重合体の種類、例えば、高密度ポリエチレン(HDPE)、中密度ポリエチレン(MDPE)、低密度ポリエチレン(LDPE)、および線状低密度ポリエチレン(LLDPE)等の密度や分岐の違いにより、適宜選択することができる。
- [0021] 例えば、重合触媒として、チーグラール触媒、フィリップス触媒等のマルチサイト触媒や、メタロセン系触媒等のシングルサイト触媒を用いて、気相重合、スラリー重合、溶液重合、および高圧イオン重合のいずれかの方法により、1段または2段以上の多段で行われる。
- [0022] チーグラール触媒、フィリップス触媒等のマルチサイト触媒を用いれば、成形性に優れたエチレン系重合体を得ることができる。

[0023] チーグラー触媒としては、配位重合に用いるチーグラー触媒として一般的に知られているものでよく、例えばチタン化合物および有機アルミニウム化合物を含む触媒であり、ハロゲン化チタン化合物と有機アルミニウム化合物からなる触媒、チタニウム、マグネシウム、塩素等からなる固体触媒成分と有機アルミニウム化合物からなる触媒等がある。

[0024] このような触媒として、例えば、無水マグネシウムジハロゲン化物のアルコール予備処理物と有機金属化合物との反応生成物にチタン化合物を反応させて得られる触媒成分（a）と有機金属化合物（b）からなる触媒、マグネシウム金属と水酸化有機化合物またはマグネシウムなどの酸素含有有機化合物、遷移金属の酸素含有有機化合物、およびアルミニウムハロゲン化物を反応させて得られる触媒成分（A）と有機金属化合物の触媒成分（B）とからなる触媒、（i）金属マグネシウムと水酸化有機化合物、マグネシウムの酸素含有有機化合物、およびハロゲン含有化合物から選んだ少なくとも一員、（i i）遷移金属の酸素含有有機化合物およびハロゲン含有化合物から選ばれた少なくとも一員、（i i i）ケイ素化合物を反応させて得られる反応物と、（i v）ハロゲン化アルミニウム化合物を反応させて得られる固体触媒成分（A）と有機金属化合物の触媒成分（B）とからなる触媒等がある。

[0025] また、フィリップス触媒は、従来から知られており、例えば酸化クロム等のクロム化合物を含む触媒系があり、具体的には、シリカ、アルミナ、シリカーアルミナ、シリカーチタニア等の固体酸化物に、三酸化クロム、クロム酸エステル等のクロム化合物を担持した触媒がある。

[0026] 本発明に用いられるエチレン系重合体を構成するモノマーは、バイオマス由来モノマー（エチレン、あるいは更に α -オレフィン）を含んでいてもよい。エチレン系重合体を構成するモノマーはバイオマス由来モノマーのみでもよいし、バイオマス由来モノマーと化石燃料由来モノマーの両方を含んでもよい。

[0027] バイオマス由来モノマーとは、菌類、酵母、藻類および細菌類を含む、植物由来または動物由来などの、あらゆる再生可能な天然原料およびその残渣

を原料としてなるモノマーで、炭素として ^{14}C 同位体を 10^{-12} 程度の割合で含有し、ASTM D 6866に準拠して測定したバイオマス炭素濃度（pMC）が通常100（pMC）程度である。

バイオマス由来モノマーは、従来から知られている方法により得られる。

[0028] 本発明に用いられるエチレン系重合体がバイオマス由来モノマーを含むことは環境負荷低減（主に温室効果ガス削減）の観点から好ましい。重合用触媒、重合プロセス重合温度、などの重合体製造条件が同等であれば、原料モノマーがバイオマス由来モノマーを含んでいても、 ^{14}C 同位体を $10^{-12}\sim 10^{-14}$ 程度の割合で含む以外の分子構造は、化石燃料由来モノマーからなるエチレン系重合体と同等である。従って、性能も変わらないとされている。

[0029] 本発明に用いられるエチレン系重合体を構成するモノマーは、ケミカルリサイクル由来モノマー（エチレン、あるいは更に α -オレフィン）を含んでいてもよい。エチレン系重合体を構成するモノマーはケミカルリサイクル由来モノマーのみでもよいし、ケミカルリサイクル由来モノマーと化石燃料由来モノマー及び／またはバイオマス由来モノマーを含んでもよい。

[0030] ケミカルリサイクル由来モノマーは、従来から知られている方法により得られる。本発明に用いられるエチレン系重合体が、ケミカルリサイクル由来モノマーを含むことは環境負荷低減（主に廃棄物削減）の観点から好ましい。原料モノマーがケミカルリサイクル由来モノマーを含んでいても、ケミカルリサイクル由来モノマーは廃プラスチックなどの重合体を解重合、熱分解等でエチレンなどのモノマー単位にまで戻したモノマー、ならびに該モノマーを原料にして製造したモノマーであるので、重合用触媒、重合プロセス、重合温度などの重合体製造条件が同等であれば、分子構造は化石燃料由来モノマーからなるエチレン系重合体と同等である。従って、性能も変わらないとされている。

[0031] エチレン系重合体の分子量分布は特に制限はないが、分子量分布（重量平均分子量：Mw、と数平均分子量：Mn、との比：Mw/Mnで表示）が以下であることが好ましい。

[0032] エチレン系重合体（A 1）、エチレン系重合体（A 4）の分子量分布（ M_w/M_n ）：

好ましくは2～15であり、より好ましくは2～12であり、更に好ましくは2～9であり、その中でも好ましくは2～7である。この範囲内にあることで透明性と成形性のバランスに優れる。

[0033] エチレン系重合体（A 2）、エチレン系重合体（A 3）の分子量分布（ M_w/M_n ）：

好ましくは2以上であり、より好ましくは4以上、更に好ましくは10以上、その中でも好ましくは20以上、更にその中でも好ましくは30以上、特に好ましくは35以上である。この範囲内にあることで引裂強度に優れた延伸フィルムを得ることができる。

[0034] エチレン系重合体（B）の分子量分布（ M_w/M_n ）：

好ましくは2以上、100未満である。この範囲内にあることで強度と成形性のバランスに優れる。

[0035] この分子量分布（ M_w/M_n ）はゲル透過クロマトグラフィー（GPC）によって測定でき、より具体的には、例えば本願実施例に記載の方法により測定することができる。

[0036] ポリエチレン系重合体は、1種類を単独で用いてもよいし、2種類以上を混合して用いてもよい。また、他のエチレン系重合体をはじめとする、他のポリマーと共に用いてもよい。

[0037] エチレン系重合体には、本発明の目的を損なわない範囲で、一般的なポリオレフィン系樹脂組成物に添加される各種添加剤、例えば、耐候安定剤、耐熱安定剤、帯電防止剤、防曇剤、アンチブロッキング剤、スリップ剤、滑剤、顔料、流滴剤、核剤などの少なくとも1種を必要に応じて含有してもよい。

[0038] 次に各層について説明する。

[層（a 1）]

層（a 1）はエチレン系重合体（A 1）を主成分として含む層である。

- [0039] エチレン系重合体 (A 1) は、MFR (190℃、2.16 kg 荷重) が 0.5 g / 10 分以上、10 g / 10 分以下である。
- [0040] その下限は好ましくは 0.55 g / 10 分以上であり、より好ましくは 0.6 g / 10 分以上であり、更に好ましくは 0.8 g / 10 分以上である。
- [0041] また、その上限は好ましくは 8 g / 10 分以下であり、より好ましくは 7 g / 10 分以下であり、更に好ましくは 6 g / 10 分以下であり、その中でも好ましくは 3 g / 10 分以下である。
- [0042] エチレン系重合体 (A 1) の MFR がこの範囲内であれば、透明性と押出性が得られる。
- [0043] また、密度は 940 kg / m³ 以上である。好ましくは 941 kg / m³ 以上であり、より好ましくは 942 kg / m³ 以上であり、更に好ましくは 946 kg / m³ 以上である。さらに、その上限は通常 970 kg / m³ 以下であり、好ましくは 969 kg / m³ 以下であり、より好ましくは 962 kg / m³ 以下である。
- [0044] 密度が上記の範囲内であれば、適切な剛性と強度が得られる。
- [0045] なお、密度は、JIS K 7112 (密度勾配管法) に準拠して測定される値である。
- [0046] [層 (a 2)]
- 層 (a 2) はエチレン系重合体 (A 2) を主成分として含む層である。
- エチレン系重合体 (A 2) は MFR (190℃、2.16 kg 荷重) が 0.01 g / 10 分以上、0.5 g / 10 分未満である。その下限は好ましくは 0.025 g / 10 分以上であり、より好ましくは 0.06 g / 10 分以上である。
- [0047] また、その上限は好ましくは 0.45 g / 10 分未満であり、より好ましくは 0.40 g / 10 分以下であり、更に好ましくは 0.35 g / 10 分以下である。
- [0048] エチレン系重合体 (A 2) の MFR がこの範囲内であれば、適切な強度と押出性が得られる。

[0049] また、密度は 940 kg/m^3 以上である。好ましくは 941 kg/m^3 以上であり、より好ましくは 942 kg/m^3 以上であり、更に好ましくは 946 kg/m^3 以上である。さらに、その上限は、通常 970 kg/m^3 以下であり、好ましくは 969 kg/m^3 以下であり、より好ましくは 968 kg/m^3 以下であり、更に好ましくは 962 kg/m^3 以下である。

[0050] 密度が上記の範囲内であれば、適切な剛性と強度が得られる。

[0051] なお、密度は、JIS K7112（密度勾配管法）に準拠して測定される値である。

[0052] [層（b）]

層（b）はエチレン系重合体（B）を主成分として含む層である。

エチレン系重合体（B）はMFR（ 190°C 、 2.16 kg 荷重）が 0.01 g/10分 以上、 50 g/10分 未満である。その下限は好ましくは 0.1 g/10分 以上であり、より好ましくは 0.2 g/10分 以上であり、更に好ましくは 0.3 g/10分 以上であり、その中でも好ましくは 0.5 g/10分 以上である。

[0053] その上限は好ましくは 30 g/10分 以下であり、より好ましくは 20 g/10分 以下であり、更に好ましくは 12 g/10分 以下であり、その中でも好ましくは 5 g/10分 以下であり、更にその中でも好ましくは 3 g/10分 以下であり、特に好ましくは 2.5 g/10分 以下である。

[0054] エチレン系重合体（B）のMFRがこの範囲内であれば、適切な強度と押出性が得られる。

[0055] また、密度は 940 kg/m^3 未満である。好ましくは 935 kg/m^3 以下であり、より好ましくは 930 kg/m^3 以下であり、更に好ましくは 925 kg/m^3 以下であり、その中でも好ましくは 920 kg/m^3 以下であり、更にその中でも好ましくは 915 kg/m^3 以下であり、特に好ましくは 910 kg/m^3 以下である。

[0056] さらに、その下限は、通常 880 kg/m^3 以上であり、好ましくは 885 kg/m^3 以上であり、より好ましくは 890 kg/m^3 以上であり、更に好ま

しくは 895 kg/m^3 以上であり、その中でも好ましくは 900 kg/m^3 以上である。

[0057] 密度が前記の範囲内であれば、適切な剛性と強度が得られる。

[0058] なお、密度は、JIS K 7112（密度勾配管法）に準拠して測定される値である。

[0059] [層(a3)]

層(a3)はエチレン系重合体(A3)を主成分として含む層である。

エチレン系重合体(A3)はMFR(190℃、2.16 kg荷重)が 0.015 g/10分 以上、 0.5 g/10分 未満である。その下限は好ましくは 0.025 g/10分 以上であり、より好ましくは 0.06 g/10分 以上である。

[0060] また、その上限は好ましくは 0.45 g/10分 以下である。

[0061] エチレン系重合体(A3)のMFRがこの範囲内であれば、適切な強度と押出性が得られる。

[0062] また、密度は 940 kg/m^3 以上である。好ましくは 941 kg/m^3 以上であり、より好ましくは 942 kg/m^3 以上であり、更に好ましくは 946 kg/m^3 以上である。さらに、その上限は、通常 970 kg/m^3 以下であり、好ましくは 969 kg/m^3 以下であり、より好ましくは 968 kg/m^3 以下であり、更に好ましくは 962 kg/m^3 以下である。

[0063] 密度が上記の範囲内であれば、適切な剛性と強度が得られる。

[0064] なお、密度は、JIS K 7112（密度勾配管法）に準拠して測定される値である。

[層(a4)]

層(a4)はエチレン系重合体(A4)を主成分として含む層である。

[0065] エチレン系重合体(A4)は、MFR(190℃、2.16 kg荷重)が 0.5 g/10分 以上、 10 g/10分 以下である。

[0066] その下限は好ましくは 0.55 g/10分 以上であり、より好ましくは 0.6 g/10分 以上であり、更に好ましくは0.8以上である。

- [0067] また、その上限は好ましくは $8 \text{ g} / 10 \text{ 分}$ 以下であり、より好ましくは $7 \text{ g} / 10 \text{ 分}$ 以下であり、更に好ましくは $6 \text{ g} / 10 \text{ 分}$ 以下であり、その中でも好ましくは $3 \text{ g} / 10 \text{ 分}$ 以下である。
- [0068] エチレン系重合体 (A 4) の MFR がこの範囲内であれば、透明性と押出性が得られる。
- [0069] また、密度は $940 \text{ kg} / \text{m}^3$ 以上である。好ましくは $941 \text{ kg} / \text{m}^3$ 以上であり、より好ましくは $942 \text{ kg} / \text{m}^3$ 以上であり、更に好ましくは $946 \text{ kg} / \text{m}^3$ 以上である。さらに、その上限は通常 $970 \text{ kg} / \text{m}^3$ 以下であり、好ましくは $969 \text{ kg} / \text{m}^3$ 以下であり、より好ましくは $962 \text{ kg} / \text{m}^3$ 以下である。
- [0070] 密度が上記の範囲内であれば、適切な剛性と強度が得られる。
- [0071] なお、密度は、JIS K 7112 (密度勾配管法) に準拠して測定される値である。
- [0072] [多層延伸フィルム]
本発明の多層延伸フィルムは、下記の
- 層 (a 1) エチレン系重合体 (A 1) を主成分として含む層、
 - 層 (a 2) エチレン系重合体 (A 2) を主成分として含む層、
 - 層 (b) エチレン系重合体 (B) を主成分として含む層、
 - 層 (a 3) エチレン系重合体 (A 3) を主成分として含む層、及び
 - 層 (a 4) エチレン系重合体 (A 4) を主成分として含む層
- からなる 5 層をこの順で備えており、その多層延伸フィルムの平均密度が $931 \text{ kg} / \text{m}^3$ 以上、 $948 \text{ kg} / \text{m}^3$ 以下である。
- [0073] その下限は好ましくは $935 \text{ kg} / \text{m}^3$ 以上であり、より好ましくは $936 \text{ kg} / \text{m}^3$ 以上であり、更に好ましくは $937 \text{ kg} / \text{m}^3$ 以上である。また、その上限は好ましくは $946 \text{ kg} / \text{m}^3$ 以下であり、より好ましくは $944 \text{ kg} / \text{m}^3$ 以下である。
- [0074] 平均密度がこの範囲であれば、タルミの発生を防止でき、優れた外観の多

層延伸フィルムを得ることができる。

[0075] なお、これら各層のそれぞれにおいて、主成分であるエチレン系重合体の割合は90質量%以上であることが好適である。

[0076] また、本発明の多層延伸フィルムとして、層(a1)と層(a4)のポリマー組成を同一とすること、同様に、層(a2)と層(a3)のポリマー組成を同一とすることがある

。

[0077] これら各層の安定剤などの添加剤の処方は同一でも異なってもよい。

[0078] 本発明の多層延伸フィルムの厚さは、通常5 μ m以上、1,500 μ m以下である。また、その下限は好ましくは6 μ m以上であり、より好ましくは8 μ m以上である。その上限は好ましくは1,000 μ m以下、より好ましくは200 μ m以下、更に好ましくは80 μ m以下である。

[0079] 多層延伸フィルムの厚さが5 μ m以上であれば、その用途に応じた適切な強度を保持することができる。

[0080] また、多層延伸フィルムの厚さが200 μ m以下であれば、種々の包装材の用途に適し、またその用途における基材に用いる場合に取扱い易い。

[0081] 本発明の多層延伸フィルムの各層の厚さは、通常はそれぞれ0.3 μ m以上150 μ m以下であるが、多層延伸フィルムの用途、求められる機能に応じて変更される。

[0082] また、各層の厚さの比(層(a1):層(a2):層(b):層(a3):層(a4)の厚さの比)は、一般的に0.02~5:0.04~5:0.04~5:0.04~5:0.02~5、好ましくは0.04~5:0.1~5:0.1~5:0.04~5である。

[0083] 各層の厚さの比が前記の範囲内であることにより、剛性と強度と耐熱のバランスが良好となる。

[0084] 本発明の多層延伸フィルムの中でも、特に優れた性能として好ましくは、グロスが30%以上、その中でも特に35%以上、さらに40%以上である優れた多層延伸フィルムも得ることができる。

- [0085] また、その弾性率（MD方向）が2000MPa以上、その中でも2200MPa以上、さらに2500MPa以上である優れた多層延伸フィルムも得ることができる。
- [0086] また、その引裂強さ（MD方向）が0.5N以上、その中でも1.0N以上、さらに2.0N以上、その中でも特に2.5N以上である優れた多層フィルムも得ることができる。
- [0087] 本発明の多層延伸フィルムは、種々の方法で製造されるが、溶融共押出成形によりフィルムを成形する際、あるいはその後に、延伸する方法が一般的である。
- [0088] 溶融共押出によるフィルム成形にはTダイ法、インフレーション法などの公知の方法が採用される。中でも、溶融共押出により成形された5層フィルム（無延伸）を成形した後に、延伸されて本発明の多層延伸フィルムとなる。
- [0089] 延伸の方法は限定されないが、一軸延伸、二軸延伸のいずれの場合も含む。
- [0090] 一軸延伸としては、ロール延伸機を用いて、予熱ロールで予熱した後、2つ以上のロールの回転速度比の違いにより、MD方向（引取り速度方向）に一軸延伸する方法が例示される。製造の効率を高める点では、延伸原反を予熱した後、直ちにMD方向に一軸延伸することが好ましい。一軸延伸では、一軸方向の延伸がされているが、それに付随して、その一軸方向とは異なる方向に多少延伸されている場合もある。用いる延伸設備によっては、一軸方向に延伸しようとしても、一軸方向とは異なる方向にも実質的に延伸されることがあるからである。
- [0091] 二軸延伸としては、逐次二軸延伸、同時二軸延伸、多段延伸等が例示される。例えば、テンター法により縦横に同時又は逐次二軸延伸する方法、チューブラー法により縦横方法に同時二軸延伸する方法などがある。
- [0092] また、延伸後の延伸フィルムには、必要に応じてアニール処理を施してもよい。アニール処理は、例えば延伸シートを加熱ロールに接触させて行うこ

とができる。

[0093] 延伸倍率は、少なくとも1方向に、一般には1.5倍以上、好ましくは2倍以上、より好ましくは2.5倍以上である。延伸倍率の上限は特に限定されないが、好ましくは20倍未満、更に好ましくは18倍未満、より好ましくは6倍未満である。

[0094] 延伸倍率が前記範囲内であれば、剛性と強度が得られる。

[0095] 延伸温度は、多層延伸フィルムの各層のエチレン共重合体の融点や、延伸する倍率、延伸する速度などから適切な温度に調節される。多段の延伸をする場合、逐次二軸延伸をする場合等では、延伸温度を順次、高く設定することも行われる。延伸温度は通常70℃～130℃の範囲である。

[0096] 本発明の多層延伸フィルムのMD方向（引き取り速度方向）の弾性率は、好ましくは1600MPa以上であり、より好ましくは1700MPa以上であり、更に好ましくは2000MPa以上となる。弾性率の上限は、一般的には8000MPa以下である。多層延伸フィルムはその広い用途に求められる十分な剛性を有している。

[0097] 本発明の多層延伸フィルムは、種々の用途に利用される。例えば、包装材の基材や剛性改質層として利用される。

[0098] [積層体]

本発明の積層体は、上述の本発明の多層延伸フィルムからなる層を含むことを特徴とする。本発明の積層体は、本発明の多層延伸フィルムからなる層を複数備える態様であってもよい。

本発明の多層延伸フィルムは積層体における基材として用いることが好ましい。

[0099] 本発明の積層体における他の層として、他のプラスチックフィルム、アルミニウム等の金属箔、紙、セロファン等が例示される。

[0100] 本発明の多層延伸フィルムに他の層を積層して積層体とすることで、さらに様々な機能を付与することができる。例えば、バリア樹脂(例えばEVOH、Nyなど)や接着性樹脂(例えばアドマーなど)との共押出や表層にコート(

例えば蒸着膜など)しても良い。

- [0101] 蒸着膜としては、金属から構成されるものであっても、無機酸化物から構成されるものであってもよい。金属蒸着膜を構成する金属としては、例えば、アルミニウム、クロム、スズ、ニッケル、銅、銀、金およびプラチナなどが挙げられる。また、金属酸化物としては、酸化アルミニウム、酸化珪素、酸化マグネシウム、酸化カルシウム、酸化ジルコニウム、酸化チタン、酸化ホウ素、酸化ハフニウムおよび酸化バリウムなどが挙げられる。
- [0102] プラスチックフィルムとしては、結晶性ポリプロピレン、結晶性ポリブテン-1、結晶性ポリ4-メチルペンテン-1、エチレン-酢酸ビニル共重合体(EVA)、エチレン-アクリル酸エチル共重合体(EEA)、イオン架橋オレフィン共重合体(アイオノマー)等のポリオレフィン類、ナイロン6、ナイロン66等のポリアミド類、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリテトラメチレンテレフタレート等のポリエステル類、各種ポリカーボネート等のポリアセタール類等の熱可塑性樹脂のプラスチックフィルムが例示される。
- [0103] 本発明の多層延伸フィルムの基材と上記の他の層からなる本発明の積層体を製造するには、各層の間に必要に応じて接着剤やアンカー剤を介在させることもできる。また、全面あるいは一部に金属酸化物等を蒸着したり、インキ層を設けることも行われる。
- [0104] 基材層に他の層を積層する方法には特に制限はないが、例えば押出ラミネート等により直接積層する方法、また、酸化雰囲気(例えば、酸素、特にオゾンを含む気体(空気等))で処理するオゾン処理、ドライラミネート等により接着剤を介して積層する方法がある。
- [0105] 積層体の厚さは一般的には8 μm から2000 μm 程度である。
- [0106] また、前記の他の層の厚さは、通常3~1000 μm 程度である。また、前記の他の層の厚さの下限は好ましくは4 μm 以上であり、より好ましくは6 μm 以上である。また、その上限は好ましくは600 μm 以下であり、より好ましくは500 μm 以下である。

[0107] 本発明の積層体は、各種の用途に広く使用され、特に包装材の用途に適している。

[包装材]

本発明の包装材は、前記の本発明の多層延伸フィルムを含むものである。中でも、例えば、上記の本発明の積層体からなる包装材が各種の製品、部品を包装する用途に適している。このような包装材は、例えば、本発明の積層体の少なくとも一部の端部同士が接触するように重ね合わせられ、熱融着により一体化されて製造することができる。

[0108] 本発明の包装材は、広い用途に利用され、例えば、日用品、機械部品、電気部品、食品、飲料、医薬品などの各種製品、部品の包装に用いられる。

実施例

[0109] 次に本発明を実施例等に基づいて説明するが、本発明は実施例によって限定されるものではない。

[測定方法]

以下の実施例等において、原料ないしフィルムの物性を下記のように測定した。

<グロス [単位：％]>

J I S Z 8 7 4 1 に規定された方法に従って測定した。

<弾性率 [単位：M P a]>

フィルムから、J I S K 6 7 8 1 に準ずる大きさのダンベルをフィルムの引き取り方向（M D）に打ち抜き、試験片とした。

[0110] 万能材料試験機のエアチャックに、M D が引っ張り方向となるように試験片をセットし、チャック間距離 8 0 m m、引張速度 2 0 0 m m／分で引張試験を行い、初期応力の変位に対する傾きを弾性率とした。

<引裂強度 [単位：N]>

試験片に、フィルムの引き取り方向（M D）に切れ目を入れ、J I S K 7 1 2 8－2 に準じ、株式会社東洋精機製作所のエルメンドルフ引裂試験機を用いてエルメンドルフ引裂強度は測定した。

<突刺強度 [単位 : N] >

試験片に、直径 1 / 4 インチの先端径の治具を、試験速度 : 2 0 0 mm / 分で試料を貫通させるために要する力を測定した。

<タルミ>

フィルムの平面性を以下の基準で評価した。

[0111] 評価基準 ○ : 多層延伸フィルムを軽く伸ばせばタルミが目立たなくなる。

× : 多層延伸フィルムにタルミが見られ、軽く伸ばしてもタルミが残る。

[0112] [原料]

実施例等において、以下の原料を使用した。

3 3 0 0 F : エチレン系重合体

(商品名 : ハイゼックス (登録商標) 3 3 0 0 F ((株) プライムポリマー製)、MFR : 1. 1 g / 1 0 分、密度 : 9 4 9 k g / m³)

3 6 0 0 F : エチレン系重合体

(商品名 : ハイゼックス (登録商標) 3 6 0 0 F ((株) プライムポリマー製)、MFR : 1. 0 g / 1 0 分、密度 : 9 5 8 k g / m³)

S P 0 5 1 0 : エチレン系重合体

(商品名 : エボリユー (登録商標) S P 0 5 1 0 ((株) プライムポリマー製)、MFR : 1. 3 g / 1 0 分、密度 : 9 0 4 k g / m³)

[0113] [製造例 1]

5 0 質量% : 5 0 質量%の割合の 3 3 0 0 F と S P 0 5 1 0 とを、押出機により 2 0 0 °C で熔融混練してエチレン系重合体組成物 (以下「組成物 c 3」と記載する。) を得た。

[0114] [実施例 1、比較例 1 ~ 6]

(多層未延伸フィルムの製造)

表 1 に示す層構成で共押出成形を行い、厚さ 1 2 5 μ m の多層未延伸フィルムを得た。

[0115] (延伸フィルムの製造)

得られた未延伸フィルムを、加熱ロールにより、表 1 に記載の延伸温度にて延伸倍率 5 倍で流れ方向（MD）に一軸延伸して、厚さ 25 μm の一軸延伸フィルムを得た。得られた延伸フィルムの弾性率、引裂強度および加熱収縮率を測定した。測定結果を表 1 に示す。

[0116] [表1]

項目		単位	実施例 1	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6
成形方法			延伸	延伸	延伸	延伸	延伸	延伸	延伸
層			多層	多層	多層	多層	多層	多層	多層
層 (a1)	原料	—	3600F	3600F	GE100	3300F	GE100	組成物 c3	GE200
	MFR	g/10 分	1.0	1.0	0.1	1.0	0.1	1.1	0.2
	密度	kg/m ³	958	958	954	949	954	938	952
層 (a2)	原料	—	GE100	3600F	GE100	3300F	GE100	組成物 c3	GE200
	MFR	g/10 分	0.1	1.0	0.10	1.0	0.1	1.1	0.2
	密度	kg/m ³	954	958	954	949	954	938	952
層 (b)	原料	—	SP0510	SP0510	SP0510	3300F	GE100	組成物 c3	SP0510
	MFR	g/10 分	1.2	1.2	1.2	1.0	0.10	1.1	1.2
	密度	kg/m ³	904	904	904	949	954	938	904
層 (a3)	原料	—	GE100	3600F	GE100	3300F	GE100	組成物 c3	GE200
	MFR	g/10 分	0.1	1.0	0.1	1.0	0.1	1.1	0.2
	密度	kg/m ³	954	958	954	949	954	938	952
層 (a4)	原料	—	3600F	3600F	GE100	3300F	GE100	組成物 c3	GE200
	MFR	g/10 分	1.0	1.0	0.1	1.0	0.1	1.1	0.2
	密度	kg/m ³	958	958	954	949	954	938	952
層比		—	1/3/3/3/1	1/1/2/1/1	1/1/2/1/1	1/1/1/1/1	1/1/1/1/1	1/1/1/1/1	1/1/2/1/1
平均密度(全層)		kg/m ³	942	939	936	949	954	938	936
延伸温度		℃	120	118	115	120	120	80	126
延伸倍率		倍	5	5	5	5	5	5	5
フィルム物性									
フィルム物性	フィルム厚み	μm	25	25	25	25	25	25	25
	グロス	%	65	24	16	58	10	48	26
	弾性率 (MD 方向)	MPa	3100	4403	3545	3647	4390	1739	2397
	引裂強度 (MD 方向)	N	4	0.5	7.7	0.1	1.8	1.6	5.9
	120℃ 収縮率 (MD 方向)	%	14	10	16	18	9.8	48	19
	突刺強度	N	28	22	27	10未満	28	31	31
	タルミ	—	○	○	○	×	×	○	○

請求の範囲

- [請求項1] J I S K 7 2 1 0 に準拠して測定したメルトフローレート (MFR、190℃、2.16kg 荷重) が0.5g/10分以上、10g/10分以下であり、J I S K 7 1 1 2 に準拠して測定した密度が940kg/m³以上であるエチレン系重合体 (A1) を主成分として含む層 (a1)、
- J I S K 7 2 1 0 に準拠して測定したメルトフローレート (MFR、190℃、2.16kg 荷重) が0.01g/10分以上、0.5g/10分未満であり、J I S K 7 1 1 2 に準拠して測定した密度が940kg/m³以上であるエチレン系重合体 (A2) を主成分として含む層 (a2)、
- J I S K 7 2 1 0 に準拠して測定したメルトフローレート (MFR、190℃、2.16kg 荷重) が0.01g/10分以上、50g/10分未満であり、J I S K 7 1 1 2 に準拠して測定した密度が940kg/m³未満であるエチレン系重合体 (B) を主成分として含む層 (b)、
- J I S K 7 2 1 0 に準拠して測定したメルトフローレート (MFR、190℃、2.16kg 荷重) が0.01g/10分以上、0.5g/10分未満であり、J I S K 7 1 1 2 に準拠して測定した密度が940kg/m³以上であるエチレン系重合体 (A3) を主成分として含む層 (a3)、及び
- J I S K 7 2 1 0 に準拠して測定したメルトフローレート (MFR、190℃、2.16kg 荷重) が0.5g/10分以上、10g/10分以下であり、J I S K 7 1 1 2 に準拠して測定した密度が940kg/m³以上であるエチレン系重合体 (A4) を主成分として含む層 (a4)、
- をこの順に備えており、その平均密度が931kg/m³以上、948kg/m³以下である多層延伸フィルム。

- [請求項2] 延伸倍率が2倍以上であることを特徴とする請求項1に記載の多層延伸フィルム。
- [請求項3] 厚さが $5\mu\text{m}$ ～ $1000\mu\text{m}$ である請求項1に記載の多層延伸フィルム
- [請求項4] グロスが30%以上、弾性率（MD方向）が 2000MPa 以上、かつ引裂強さ（MD方向）が 0.5N を超えることを特徴とする請求項1記載の多層延伸フィルム。
- [請求項5] 請求項1に記載の多層延伸フィルムを含む積層体。
- [請求項6] 請求項5に記載の積層体を含む包装材。
- [請求項7] 溶融共押出による成形により、フィルムの原反を成形する際、あるいはその後に、延伸することを特徴とする、請求項1から請求項4のいずれかに記載の多層延伸フィルムの製造方法。