

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第3614391号
(P3614391)

(45) 発行日 平成17年1月26日(2005.1.26)

(24) 登録日 平成16年11月12日(2004.11.12)

(51) Int.Cl.⁷

B 3 2 B 27/32

F I

B 3 2 B 27/32

C

請求項の数 5 (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願2001-309032(P2001-309032)	(73) 特許権者	000187138
(22) 出願日	平成13年10月4日(2001.10.4)		昭和パックス株式会社
(65) 公開番号	特開2002-178461(P2002-178461A)		東京都新宿区市谷本村町2番12号
(43) 公開日	平成14年6月26日(2002.6.26)	(74) 代理人	100075524
審査請求日	平成14年11月18日(2002.11.18)		弁理士 中嶋 重光
(31) 優先権主張番号	特願2000-306900(P2000-306900)	(74) 代理人	100070493
(32) 優先日	平成12年10月5日(2000.10.5)		弁理士 山口 和
(33) 優先権主張国	日本国(JP)	(72) 発明者	木村 雄一
			静岡県掛川市小鷹町189番地
		(72) 発明者	山谷 亜喜佳
			静岡県掛川市下垂木2329番地1
		審査官	深草 祐一

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 積層フィルム

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

ポリブチレンテレフタレート層と、密度が 0.89 g/cm^3 以下であるプロピレン系重合体からなる層を含む積層フィルム。

【請求項2】

前記プロピレン系重合体が、プロピレン重合体、およびプロピレンを主たる割合で含むプロピレンと他の α -オレフィンとの共重合体から選ばれた少なくとも1種の重合体であることを特徴とする請求項1に記載の積層フィルム。

【請求項3】

前記プロピレン系重合体が、プロピレン系ポリマーアロイであることを特徴とする請求項1に記載の積層フィルム。 10

【請求項4】

空冷式インフレーション法によって成形された、ポリブチレンテレフタレート層と、密度が 0.89 g/cm^3 以下であるプロピレン系重合体からなる層を含む積層フィルム。

【請求項5】

キャスト成形法によって成形された、ポリブチレンテレフタレート層と、密度が 0.89 g/cm^3 以下であるプロピレン系重合体からなる層を含む積層フィルム。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、カール性が改善されたポリブチレンテレフタレート積層フィルムに関する。さらに詳しくは、本発明は、ポリブチレンテレフタレート層とプロピレン系重合体層を含む積層フィルムに関する。

【0002】

【従来の技術】

ポリブチレンテレフタレートフィルムは耐熱性に優れており、無味無臭であって、さらに臭気バリア性、保香性に優れているため、各種用途が期待されている。例えば耐熱性を利用した滅菌処理用袋や熱転写フィルムなどや、臭気バリア性、保香性を利用した食品、薬品、薬剤、清涼飲料水などの包装材用途がある。

【0003】

10

ポリブチレンテレフタレートフィルムは、その用途に応じて求められる物性を付与する目的で、他の樹脂成分との積層や、各種添加物との組成物にするといった各種の改良が提案されてきた。

【0004】

またポリブチレンテレフタレートフィルムは、ヒートシール性に欠けるため、ヒートシール性に優れた樹脂との積層が試みられている。例えば特開昭61-23538号には、ポリブチレンテレフタレート、変性ポリオレフィンおよび低密度ポリエチレンよりなる三層構造のインフレーションフィルムが記載されている。

【0005】

ところが、ポリブチレンテレフタレートの積層フィルムは、成形後に巻き込むようなそりが生じ易いという性質がある。巻き込むようにする現象はカーリングと呼ばれており、その性質をカール性と呼ぶこととする。このカーリングは、ときにはフィルムのちぢれとなって現れたり、幅の狭いフィルムでは渦巻状態となったりすることがある。

20

【0006】

カール性のため、成形工程でのトラブルとなったり、フィルム使用時の作業性を落す結果となるため、ポリブチレンテレフタレート積層フィルムのカール性を改善することが望まれていた。

【0007】

本発明者らは、ポリブチレンテレフタレートの積層フィルムの成形においては、生産性の高い空冷式インフレーション法で成形したフィルムにおいて特にカーリングが起こり易いので、空冷式インフレーション法で成形してもカール性が改善された積層フィルムが得られる技術を開発することが課題であることを見出した。

30

【0008】

そこで、本発明者らは、ポリブチレンテレフタレート積層フィルムのカール性を改善する技術を開発すべく鋭意研究を重ねた結果本発明に到達したのである。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、ヒートシール性を有し、カール性が改善されたポリブチレンテレフタレート積層フィルムを提供することを目的とするものである。さらには、本発明は、空冷式インフレーション法で成形しても、改善されたカール性を示すポリブチレンテレフタレート積層フィルムを提供することを目的とするものである。

40

【0010】

【課題を解決するための手段】

本発明は、ポリブチレンテレフタレート層と、密度が 0.89 g/cm^3 以下であるプロピレン系重合体からなる層を含む積層フィルムを提供する。

【0011】

前記プロピレン系重合体が、プロピレン重合体、およびプロピレンを主たる割合で含むプロピレンと他の α -オレフィンとの共重合体から選ばれた少なくとも1種の重合体である積層フィルムは、本発明の好ましい態様である。

【0012】

50

前記プロピレン系重合体が、プロピレン系ポリマーアロイである積層フィルムは、本発明の好ましい態様である。

【0013】

また本発明は、空冷式インフレーション法によって成形された、ポリブチレンテレフタレート層と、密度が 0.89 g/cm^3 以下であるプロピレン系重合体層を含む積層フィルムを提供する。

【0014】

さらに本発明は、キャスト成形法によって成形された、ポリブチレンテレフタレート層と、密度が 0.89 g/cm^3 以下であるプロピレン系重合体からなる層を含む積層フィルムを提供する。

10

【0015】

【発明の実施の具体的形態】

本発明は、カール性が改善されたポリブチレンテレフタレートフィルムを提供するものである。さらに具体的にはポリブチレンテレフタレート層(A)と密度が 0.89 g/cm^3 以下であるプロピレン系重合体からなる層を含む積層フィルムを提供する。

以下に本発明をより詳細に説明する。

【0016】

ポリブチレンテレフタレート

ポリブチレンテレフタレートは、テレフタル酸またはテレフタル酸ジメチルと、1,4-ブタンジオールとの縮合反応から得られうる芳香族ポリエステルである。本発明のポリブチレンテレフタレートには、酸成分としてテレフタル酸またはテレフタル酸ジメチルのほかにイソフタル酸などの他の酸成分に起因する構成単位が含まれていてもよい。

20

【0017】

プロピレン系重合体

プロピレン系重合体とは、プロピレンを主たる構成単位とする重合体をいう。プロピレン系重合体の例としては、プロピレンの単独重合体またはプロピレンと他の α -オレフィンの共重合体を挙げることができる。プロピレン系重合体に、少量の α -オレフィン以外の単量体単位が含まれていても差し支えない。

【0018】

プロピレンを主たる割合で含むとは、全構成単量体単位中プロピレンによる構成単位が50(モル)%以上存在することをいう。

30

【0019】

ここで他の α -オレフィンとしては、エチレン、ブテン-1、ペンテン-1、ヘキセン-1、4-メチルヘキセン-1、オクテン-1、デセン-1などのプロピレンを除く炭素数2~20の α -オレフィンが好ましく、さらに好ましくはプロピレンを除く炭素数2~8の α -オレフィンである。

【0020】

本発明のプロピレン系重合体の好ましい具体例としては、プロピレン重合体、およびプロピレンを主たる割合で含むプロピレンと他の α -オレフィンとの共重合体などを挙げることができる。

40

【0021】

プロピレン重合体としては、アイソタクチックポリプロピレン、シンジオタクチックポリプロピレン、アタクチックポリプロピレンなどを挙げることができる。

【0022】

プロピレンを主たる割合で含むプロピレンと他の α -オレフィンとの共重合体としては、プロピレン/エチレンの共重合体、プロピレン/ブテン-1共重合体、ポリプロピレン部分とエチレン/プロピレン共重合体部分を有するいわゆるプロピレンブロック共重合体、などを挙げることができる。

【0023】

またポリプロピレン部分とエチレン/プロピレンなどの α -オレフィン共重合部分を含む

50

、または複数種の α -オレフィン共重合体を含むポリマーアロイもプロピレンを主たる割合で含む限り本発明のプロピレンと他の α -オレフィンとの共重合体として使用することができる。これらプロピレン系ポリマーアロイは、重合工程において製造されたものがより好ましく使用できる。

【0024】

本発明のプロピレン系重合体の密度は、 0.89 g/cm^3 以下であることが好ましく、より好ましくは $0.89 \sim 0.86 \text{ g/cm}^3$ であり、さらに好ましくは $0.89 \sim 0.88 \text{ g/cm}^3$ であることが望ましい。

【0025】

プロピレン系重合体は耐熱性がよく、このプロピレン系重合体層が存在することにより、ポリブチレンテレフタレートの耐熱性をより発揮させることができる。 10

【0026】

本発明のプロピレン系重合体において降温比容積変化率比較的小さい重合体がより好ましく使用される。

降温比容積変化率とは、樹脂を熔融状態から冷却するとき、冷却過程における比容積の変化の度合いを表す尺度である。

【0027】

積層フィルム

本発明のポリブチレンテレフタレート層と、プロピレン系重合体層を含む積層フィルムは、ポリブチレンテレフタレートからなる層(A)に、該プロピレン系重合体からなる層(B)が積層されている構造を含む積層フィルムである。このような態様の一例は(A)層と(B)層とよりなる積層フィルムである。また他の態様として(A)層/(B)層/(A)/(B)層の4層の積層フィルムを挙げることができる。必要に応じて(A)層/(B)層/(A)層/なる3層の積層フィルムとすることもできるがこれに限定されるものではない。 20

【0028】

本発明の積層フィルムにおいては、各層の間に接着樹脂層を存在させてもよい。接着樹脂層を存在させることにより各層間の接着をより強固にすることができる。

【0029】

接着樹脂としては、接着効果を有する樹脂であれば特に制限なく使用することができるが、好ましい接着樹脂として無水マレイン酸などの不飽和カルボン酸で変性したオレフィン系重合体を挙げることができる。好ましい変性したオレフィン系重合体の例は、無水マレイン酸で変性したポリエチレン、エチレン/プロピレン共重合体またはポリプロピレンなどである。 30

【0030】

上記接着樹脂を、ポリブチレンテレフタレートおよび/またはプロピレン系重合体と混合して使用することも可能である。ポリブチレンテレフタレートおよび/またはオレフィン系重合体との組成物として本発明の積層フィルムとすれば、接着樹脂層を存在させる場合と同様に十分な層間接着強度を得ることができる。

【0031】

本発明のフィルムの成形にあたって、成形方法には特に制限はなく、従来公知の成形方法を採用することができる。好ましい成形方法の例として、ポリブチレンテレフタレートおよびオレフィン系重合体とを、また必要に応じて接着樹脂を、それぞれ熔融状態で、フィードブロック部あるいは口金部で合流させ共押出させてフィルムを成形する方法が挙げられる。フィルムの成形にあたっては、インフレーション成形法やキャスト成形法を好ましい方法として挙げることができる。 40

【0032】

中でもインフレーション法は、生産性が高いので好ましいフィルム成形法として推奨される。インフレーション法では、インフレーションチューブの冷却を水冷式とすれば、光透過度のより高いフィルムが得られ、空冷式とすればマット性のフィルムが得られるので、 50

幅広い性質のフィルム製造を可能とする。

【0033】

生産性の高い空冷式インフレーション法によって製造した積層フィルムにおいて、カーリングが起こり易いので、本発明の効果は空冷式インフレーション法において特に顕著に現れる。

【0034】

また、本発明のフィルムを得る他の好適な成形法はキャスト成形法である。キャスト成形法は、通常ストレート・マニホールドタイプなどのＴダイから熔融樹脂を押出し、冷却ロールなどの適当な冷却手段で冷却してフィルムを得る方法であるが、成形条件としては従来公知の条件から適宜選択することができる。

10

【0035】

キャスト成形における冷却用のキャストロールは、通常１本もしくは２本以上使用され、その表面は鏡面または梨地（マット）状のものが使用される。また、冷却効果を増すために、熔融樹脂がキャストロールに接する付近にエア膜を吹き付けるためのエアナイフやエアチャンバーを採用することや、ロールに熔融膜をより密着させるためにバキュームフードを採用することは、可能なキャスト成形条件の選択の一例である。

【0036】

得られたフィルムに更に延伸や、熱処理や、その他の従来公知の後処理を施すことは何ら制限されるものではない。

【0037】

20

本発明のポリブチレンテレフタレートおよび／またはプロピレン系重合体には、得られる積層フィルムの物性を損なわない範囲で、必要に応じて顔料、染料、安定剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、帯電防止剤、可塑剤、滑剤、充填剤、柔軟剤、ブロッキング防止剤などを添加することもできる。

【0038】

【発明の効果】

本発明により、ヒートシール性を有するとともに、カール性が改善されたポリブチレンテレフタレート積層フィルムが得られる。

本発明では、生産性の高い空冷式インフレーション法によっても、カール性の改善されたポリブチレンテレフタレート積層フィルムを得ることができる。

30

また本発明では、キャスト成形法によっても、カール性の改善されたポリブチレンテレフタレート積層フィルムを得ることができる。

【0039】

本発明の積層フィルムは、その優れた性質から、食材、加工食品、たばこ、ペットフードなどの包装材、医療用廃棄物滅菌処理用袋などの袋、ラミネートフィルムなどに好適に利用されうる。

【0040】

【実施例】

以下に実施例および比較例によって本発明をより具体的に説明する。本発明は、これら実施例によって何ら制限されるものではない。

40

【0041】

本発明においてフィルムのカール性は以下の方法で測定し、後記基準で判定した。

カール性の測定：

試料フィルムを15cm×15cmの大きさに切り取り、フィルム中央部に1cm角の接着テープを貼り付け、フィルムを粘着テープによってボール紙に貼り付ける。貼り付けた後、10分間フィルムの4辺の挙動を目視で観察し、以下の基準でカール性を判定する。

○：カールが認められなかった。

フィルムの4辺に、実質的に起き上がりが認められない状態である。

：カールが少し認められた。

フィルムは4辺のいずれかに起き上がりが認められるが、それが1回転以上巻き上がらな

50

い状態である。

×：著しいカールが認められた。

フィルムの4辺のいずれかに起き上がりが認めら、それが1回転以上巻き上がってしまう状態である。

【0042】

(実施例1)

密度 1.31 g/cm^3 のポリブチレンテレフタレート (三菱エンジニアリングプラスチックス社製ノバドール 5040ZS)、接着層として密度 0.88 g/cm^3 、MFR 2.6 g/10min の接着性ポリオレフィン樹脂 (三井化学社製アドマー SF731) 及び密度 0.88 g/cm^3 、MFR 0.8 g/10min のホモポリマーをベースとしたプロピレン系ポリマーアロイ (Montell-JPO社製 Catalloy Adflex KS-081P、曲げ弾性率 (ASTM D-790) $1,500 \text{ kg/cm}^2$) を3台の押出機を用いてシリンダー温度が各々250、150、240 で加熱溶解させて3層インフレーションフィルム用ダイに導き、3層に接着フィルムを押出し、空冷リングから吹き出された空気で冷却させ、表1に示す各層の厚さで構成された総厚さ約 40μ の3層チューブ状のフィルムを得た。

得られたフィルムについて成形後、室温に24時間放置後、前述のカール性測定法に従ってカール性を測定した。結果を表1に示した。

【0043】

(実施例2)

実施例1で示した同じポリブチレンテレフタレートと接着性ポリオレフィン樹脂を用い、もう一方の層に密度 0.88 g/cm^3 、MFR 0.6 g/10min のランダムコポリマーをベースとしたプロピレン系ポリマーアロイ (Montell-JPO社製 Catalloy Adflex Q100F、曲げ弾性率 (JIS K6921-2) 105 MPa) を3台の押出機を用いてシリンダー温度が各々250、150、240 で加熱溶解させて実施例1と同じく、表1に示す各層の厚さで構成された総厚さ約 40μ の3層チューブ状のフィルムを得た。

得られたフィルムについて成形後、室温に24時間放置後、前述のカール性測定法に従ってカール性を測定した。結果を表1に示した。

【0044】

(実施例3)

実施例1で示したのと同じポリブチレンテレフタレートと接着性ポリオレフィン樹脂を用い、もう一方の層に密度 0.88 g/cm^3 、MFR 0.8 g/10min のホモポリマーをベースとしたプロピレン系ポリマーアロイ (Montell-JPO社製 Catalloy Adflex KS-081P) と密度 0.91 g/cm^3 、MFR 1.8 g/10min のホモポリマーポリプロピレン (グラントポリマー社製グラントポリプロ E121WA) を70対30の比率でブレンドした密度 0.89 g/cm^3 の樹脂を3台の押出機を用いてシリンダー温度が各々250、150、240 で加熱溶解させて実施例1と同じく、表1に示す各層の厚さで構成された総厚さ約 40μ の3層チューブ状のフィルムを得た。

得られたフィルムについて成形後、室温に24時間放置後、前述のカール性測定法に従ってカール性を測定した。結果を表1に示した。

【0045】

(実施例4)

実施例1で示したのと同じポリブチレンテレフタレートと接着性ポリオレフィン樹脂を用い、もう一方の層に密度 0.88 g/cm^3 、MFR 0.8 g/10min のホモポリマーをベースとしたプロピレン系ポリマーアロイ (Montell-JPO社製 Catalloy Adflex KS-081P) と密度 0.91 g/cm^3 、MFR 1.8 g/10min のホモポリマーポリプロピレン (グラントポリマー社製グラントポリプロ E121WA) を50対50の比率でブレンドした密度 0.89 g/cm^3 、MFR 1.3 g/10min の樹脂を3台の押出機を用いてシリンダー温度が各々250、250、150、240 で加熱溶解させ実施例1と同じく、表1に示す各層の厚さで構成された総厚さ約 40μ の3層チューブ

10

20

30

40

50

状のフィルムを得た。

得られたフィルムについて成形後、室温に24時間放置後、前述のカール性測定法に従ってカール性を測定した。結果を表1に示した。

【0046】

(参考例1)

実施例1で示したと同じポリブチレンテレフタレートと接着性ポリオレフィン樹脂を用い、もう一方の層に密度 0.88 g/cm^3 、MFR 0.8 g/10 min のホモポリマーをベースとしたプロピレン系ポリマーアロイ(Montell-JPO社製 Catalloy Adflex KS-08 1P)と密度 0.91 g/cm^3 、MFR 1.8 g/10 min のホモポリマーポリプロピレン(グラントポリマー社製グラントポリプロ E121WA)を30対70の比率でブレンドした密度 0.90 g/cm^3 、MFR 1.5 g/10 min の樹脂を3台の押出機を用いてシリンダー温度が各々250、150、240で加熱溶解させ実施例1と同じく、表1に示す各層の厚さで構成された総厚さ約 $40\text{ }\mu$ の3層チューブ状のフィルムを得た。

得られたフィルムについて成形後、室温に24時間放置後、前述のカール性測定法に従ってカール性を測定した。結果を表1に示した。

【0047】

(参考例2)

実施例1で示したのと同じポリブチレンテレフタレートと接着性ポリオレフィン樹脂を用い、もう一方の層に密度 0.90 g/cm^3 、MFR 4.0 g/10 min のエチレン含有7.6wt%のブロックコポリマーポリプロピレン(グラントポリマー社製グラントポリプロ J703W)を3台の押出機を用いてシリンダー温度が各々250、150、240で加熱溶解させ実施例1と同じく、表1に示す各層の厚さで構成された総厚さ約 $40\text{ }\mu$ の3層チューブ状のフィルムを得た。

得られたフィルムについて成形後、室温に24時間放置後、前述のカール性測定法に従ってカール性を測定した。結果を表1に示した。

【0048】

(比較例1)

実施例1において、密度 0.88 g/cm^3 、MFR 0.8 g/10 min のホモポリマーをベースとしたプロピレン系ポリマーアロイに代えて、密度 0.959 g/cm^3 、MFR 0.65 g/10 min の高密度ポリエチレン(三井化学社製 ハイゼックス 5000SF)を用いるほかは同様に、表1に示す各層の厚さで構成された総厚さ約 $40\text{ }\mu$ の3層チューブ状のフィルムを得た。

得られたフィルムについて成形後、室温に24時間放置後、前述のカール性測定法に従ってカール性を測定した。結果を表1に示した。

【0049】

(比較例2)

実施例1において、密度 0.88 g/cm^3 、MFR 0.8 g/10 min のホモポリマーをベースとしたプロピレン系ポリマーアロイに代えて、密度 0.956 g/cm^3 、MFR 0.04 g/10 min の高密度ポリエチレン(三井化学社製 ハイゼックス 7000F)を用いるほかは同様に、表1に示す各層の厚さで構成された総厚さ約 $40\text{ }\mu$ の3層チューブ状のフィルムを得た。

得られたフィルムについて成形後、室温に24時間放置後、前述のカール性測定法に従ってカール性を測定した。結果を表1に示した。

【0050】

(比較例3)

実施例1において、密度 0.88 g/cm^3 、MFR 0.8 g/10 min のホモポリマーをベースとしたプロピレン系ポリマーアロイに代えて、密度 0.920 g/cm^3 、MFR 0.15 g/10 min の低密度ポリエチレン(日本ユニカー社製 NUC8042)を用いるほかは同様に、表1に示す各層の厚さで構成された総厚さ約 $40\text{ }\mu$ の3層

チューブ状のフィルムを得た。

得られたフィルムについて成形後、室温に24時間放置後、前述のカール性測定法に従ってカール性を測定した。結果を表1に示した。

【0051】

【表1】

	各層の厚さ (μ)			カール性
	ポリブチレンテレフタレート	接着樹脂	プロピレン系重合体	
実施例1	24	3	11	○
実施例2	26	3	12	○
実施例3	29	3	14	○
実施例4	28	3	12	○
参考例1	25	3	10	△
参考例2	28	3	12	△
比較例1	22	4	14	×
比較例2	21	3	13	×
比較例3	22	3	13	×

【0052】

(実施例5)

密度 1.31 g/cm^3 のポリブチレンテレフタレート (三菱エンジニアリングプラスチックス社製ノバドゥール 5020S)、接着層として密度 0.90 g/cm^3 、MFR 5.0 g/10min の接着性ポリオレフィン樹脂 (三井化学社製アドマー SF740) 及び密度 0.89 g/cm^3 、MFR 6 g/10min のランダムコポリマーをベースとしたプロピレン系ポリマーアロイ (Montell-JPO社製 Catalloy Adflex C200F、曲げ弾性率 (JIS K6921-2) 190 MPa) を3台の押出機を用いてシリンダー温度が各々250、200、240 で加熱溶解させて3層キャストフィルム用ダイに導き、3層に接着フィルムを押出し、キャストロールで冷却させ、ポリブチレンテレフタレート層厚さ25μ、接着樹脂層厚さ3μ、プロピレン系重合体層厚さ12μで構成された総厚さ約40μの3層フラット状のフィルムを得た。

得られたフィルムについて成形後、室温に24時間放置後、前述のカール性測定法に従ってカール性を測定した。結果はカールが認められず、前述の判定では○に相当する。

フロントページの続き

- (56)参考文献 特開平09 - 011426 (JP, A)
特開平03 - 254939 (JP, A)
特開平03 - 183547 (JP, A)
実開平04 - 013344 (JP, U)
特開2002 - 321322 (JP, A)

- (58)調査した分野(Int.Cl.⁷, DB名)
B32B