



(19) 中華民國智慧財產局

(12) 發明說明書公開本

(11) 公開編號：TW 202208539 A

(43) 公開日：中華民國 111 (2022) 年 03 月 01 日

(21) 申請案號：110119824 (22) 申請日：中華民國 110 (2021) 年 06 月 01 日

(51) Int. Cl. : **C08L23/12 (2006.01)** **B32B27/32 (2006.01)**  
**B32B27/06 (2006.01)** **B32B37/04 (2006.01)**

(30) 優先權：2020/06/02 日本 2020-096269  
2020/06/02 日本 2020-096271

(71) 申請人：日商日本聚丙烯股份有限公司 (日本) JAPAN POLYPROPYLENE CORPORATION  
(JP)  
日本

(72) 發明人：內田智樹 UCHIDA, TOMOKI (JP)；西部貴久 NISHIBU, TAKAHISA (JP)；伊藤正  
顯 ITO, MASAOKI (JP)；滝沢美織 TAKIZAWA, MIORI (JP)

(74) 代理人：陳長文

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：28 項 圖式數：0 共 134 頁

(54) 名稱

聚丙烯系樹脂組合物及積層體以及該等之製造方法

(57) 摘要

本發明之聚丙烯系樹脂組合物之特徵在於包含：具有特定之特性之聚丙烯樹脂(X1)2 質量%~30 質量%、具有特定之特性之聚丙烯樹脂(X2)5 質量%~98 質量%、及具有特定之特性之聚丙烯系樹脂(Y)0 質量%~80 質量%(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為 100 質量%)。

A polypropylene-based resin composition comprising 2 mass % to 30 mass % of a polypropylene resin (X1) having specific properties, 5 mass % to 98 mass % of a polypropylene resin (X2) having specific properties, and 0 mass % to 80 mass % of polypropylene-based resin (Y) having specific properties (a total amount of the polypropylene resin (X1), the polypropylene resin (X2) and the polypropylene-based resin (Y) is 100 mass %).

## 【發明摘要】

### 【中文發明名稱】

聚丙烯系樹脂組合物及積層體以及該等之製造方法

### 【英文發明名稱】

POLYPROPYLENE-BASED RESIN COMPOSITION, LAMINATE,  
AND METHOD FOR PRODUCING THEM

### 【中文】

本發明之聚丙烯系樹脂組合物之特徵在於包含：具有特定之特性之聚丙烯樹脂(X1)2質量%~30質量%、具有特定之特性之聚丙烯樹脂(X2)5質量%~98質量%、及具有特定之特性之聚丙烯系樹脂(Y)0質量%~80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)。

### 【英文】

A polypropylene-based resin composition comprising 2 mass % to 30 mass % of a polypropylene resin (X1) having specific properties, 5 mass % to 98 mass % of a polypropylene resin (X2) having specific properties, and 0 mass % to 80 mass % of polypropylene-based resin (Y) having specific properties (a total amount of the polypropylene resin (X1), the polypropylene resin (X2) and the polypropylene-based resin (Y) is 100 mass %).

### 【指定代表圖】

無

### 【代表圖之符號簡單說明】

無

## 【發明說明書】

### 【中文發明名稱】

聚丙烯系樹脂組合物及積層體以及該等之製造方法

### 【英文發明名稱】

POLYPROPYLENE-BASED RESIN COMPOSITION, LAMINATE,  
AND METHOD FOR PRODUCING THEM

### 【技術領域】

【0001】 本發明係關於一種聚丙烯系樹脂組合物及積層體以及該等之製造方法，詳細而言，本發明係關於一種聚丙烯系樹脂組合物及使用該聚丙烯系樹脂組合物之積層體，該聚丙烯系樹脂組合物由於例如290℃以上之高溫擠出成形下之縮幅較小，延展性較高，故而高速下之擠出層壓加工性優異，透明性優異，故例如內容物之透視性優異。

### 【先前技術】

【0002】 一直以來，作為食品包裝用材料、工業用材料、建築用材料，業界使用有如下積層體，其無論透明或蒸鍍、印刷等有無內容物之視認性，均藉由層壓加工法將聚烯烴系樹脂積層於各種樹脂膜或片材、金屬箔、板、紙等基材上，賦予水蒸氣阻隔性、防水性、防銹性、防創傷性而成。層壓加工法可例舉經由增黏塗層將聚烯烴系樹脂接著於基材上之乾式層壓法、將聚烯烴系樹脂熔融擠出並積層於基材上之擠出層壓法，從加工之簡便性、近年來之無VOC(Volatile Organic Compounds，揮發性有機物)要求之提高出發，開發可實施擠出層壓法之聚烯烴系樹脂之要求不斷提高。

聚丙烯系樹脂與聚乙烯系樹脂相比，透明性、剛性、表面光澤性、

耐熱性優異。另一方面，聚丙烯系樹脂由於分子結構為線狀，重量平均分子量亦無法如聚乙烯系樹脂般增大，故而熔融張力較低。於在相對高溫下成形之擠出層壓法中，熔融張力較高之樹脂之縮幅(擠出機模嘴寬與所擠出之膜寬之差)較小，即便成形速度為高速亦有不易產生拉伸共振(於捲取方向產生之厚度不均或由邊緣部之伸縮所引起之不穩定現象)之傾向，但熔融張力較低之聚丙烯系樹脂難以用於擠出層壓成形。

**【0003】** 藉由向聚丙烯中調配低密度聚乙烯或無定形乙烯- $\alpha$ -烯烴共聚物，縮幅雖然得以解決，但有透明性或耐熱性較差，又，不產生拉伸共振之成形速度上限(以下，稱為高速成形性)之提高不充分等問題(參照專利文獻1及2)。

作為改善高速成形性之方法，揭示有對在聚丙烯中調配有低密度聚乙烯之熱塑性樹脂組合物，調配油、聚乙烯蠟等之方法(參照專利文獻3~5)；使用有如下熱塑性樹脂組合物之擠出層壓膜之製造法(參照專利文獻6)，該熱塑性樹脂組合物係於使用茂金屬觸媒製造之聚丙烯中調配低密度聚乙烯而成。該等方法中，高速成形性雖然得以改善，但由於使用聚乙烯，故犧牲聚丙烯之優點即透明性與耐熱性之問題並未消除。

**【0004】** 另一方面，業界著眼於聚丙烯樹脂之分子結構本身而開發出了賦予熔融張力之技術。例如，專利文獻7中揭示有藉由利用高能量離子化輻射，向聚丙烯中導入長鏈分支，而謀求提高熔融張力之技術。該方法由於需要大型設備，故於成本方面欠佳，又，有黃變之問題、產生經時之熔融張力之降低等問題。

又，專利文獻8中揭示有使用有機過氧化物向聚丙烯樹脂中導入長鏈分支之方法。該方法不僅存在由有機過氧化物之分解物所引起之污染、臭

氣、黃變等問題，且存在若為了獲得較高之熔融張力而增加改性量，則會產生大量凝膠，外觀明顯較差之問題。

**【0005】** 進而，近年來，揭示有於含有特定之複數種茂金屬觸媒成分之觸媒之存在下，藉由單段聚合進行丙烯聚合，藉此獲得顯示出極高之熔融張力之含有長鏈分支結構的聚丙烯樹脂之技術(參照專利文獻9及10)。

然而，此種具有高熔融張力之聚丙烯樹脂容易產生拉伸共振現象，故高速成形性無法謂之充分。

為了解決該問題，揭示有藉由在具有高熔融張力之聚丙烯樹脂中，調配50~97質量%之MFR(Melt Flow Rate，熔體流動速率)為1~50 g/10 min之聚丙烯樹脂，改善縮幅與高速成形性之技術(參照專利文獻11)。於該方法中，與對具有高熔融張力之聚丙烯樹脂本身進行擠出層壓之情形相比，高速成形性雖然得以改善，但仍要求進一步改善。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

**【0006】** 專利文獻1：日本專利特開平8-259752號公報

專利文獻2：日本專利特開2006-56914號公報

專利文獻3：日本專利特公平5-80492號公報

專利文獻4：日本專利特表2003-528948號公報

專利文獻5：國際公開第2009/069595號

專利文獻6：日本專利特開2001-323119號公報

專利文獻7：日本專利特開昭62-121704號公報

專利文獻8：日本專利特開平6-1577666號公報

專利文獻9：日本專利特開2009-57542號公報

專利文獻10：日本專利特開2009-275207號公報

專利文獻11：日本專利特開2014-55252號公報

### 【發明內容】

#### [發明所欲解決之問題]

【0007】 本發明之目的在於鑒於上述先前技術之課題，提供一種聚丙烯系樹脂組合物及使用該聚丙烯系樹脂組合物之積層體，該聚丙烯系樹脂組合物之例如290℃以上之高溫擠出成形下之縮幅較小，又，高速下之擠出層壓加工性優異，並且透明性優異。

#### [解決問題之技術手段]

【0008】 本發明人等人為了解決上述課題而反覆進行努力研究，結果發現包含特定之聚丙烯系樹脂之聚丙烯系樹脂組合物由於維持較高之熔融張力，故而高溫擠出成形下之縮幅較小，又，高速下之擠出層壓加工性優異，並且透明性優異，從而完成了本發明。

【0009】 即，用於解決上述課題之本發明之第1實施方式係關於下述<1>至<24>。

<1> 一種聚丙烯系樹脂組合物，其包含：具有下述特性(X1-1)~(X1-6)之聚丙烯樹脂(X1)、及具有下述特性(X2-1)~(X2-6)之聚丙烯樹脂(X2)，

(X1-1)MFR(230℃、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X1-2)藉由GPC(Gel Permeation Chromatography，凝膠滲透層析法)所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為

2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上；

(X1-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)；$$

(X1-5)利用GPC測定所得之分支指數 $g'(Mz_{\text{abs}})$ 為0.70以上且0.95以下；

(X1-6)利用 $^{13}\text{C}$ -NMR(Nuclear Magnetic Resonance，核磁共振)測定之丙烯單元三鍵之三分體分率(mm)為95%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上；

(X2-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)；$$

(X2-5)利用GPC測定所得之分支指數 $g'(Mz_{\text{abs}})$ 為0.70以上且0.95以下；

(X2-6)利用 $^{13}\text{C}$ -NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

其中，X1之MFR < X2之MFR，且X1之 $W_{1M} \geq X2$ 之 $W_{1M}$ 。

**【0010】** <2>如上述<1>中所記載之聚丙烯系樹脂組合物，其進而包含具有下述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)，

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下；

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式A})。$$

**【0011】** <3>如上述<2>中所記載之聚丙烯系樹脂組合物，其包含聚丙烯樹脂(X1)5質量%~30質量%、聚丙烯樹脂(X2)5質量%~50質量%、及聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)。

**【0012】** <4>如上述<1>至<3>中任一項所記載之聚丙烯系樹脂組合物，其中上述聚丙烯樹脂(X1)具有下述(X1-1)及(X1-3)之特性，

上述聚丙烯樹脂(X2)具有下述(X2-1)及(X2-3)之特性，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為30 g/10 min以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為2.5質量%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過30 g/10 min且為80 g/10 min以下；



(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上且未達2.5質量%。

**【0013】** <5>如上述<1>或<2>中所記載之聚丙烯系樹脂組合物，其中上述聚丙烯樹脂(X1)具有下述(X1-1)及(X1-3)之特性，

上述聚丙烯樹脂(X2)具有下述(X2-1)及(X2-3)之特性，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為10 g/10 min以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為3.5質量%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上且未達3.5質量%。

**【0014】** <6>如上述<1>、<2>或<5>中所記載之聚丙烯系樹脂組合物，其包含聚丙烯樹脂(X1)2質量%~30質量%、聚丙烯樹脂(X2)5質量%~98質量%、及聚丙烯系樹脂(Y)0質量%~80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)。

**【0015】** <7>一種聚丙烯系樹脂組合物之製造方法，其具有如下步驟：獲得具有下述特性(X1-1)~(X1-6)之聚丙烯樹脂(X1)之步驟；

獲得具有下述特性(X2-1)~(X2-6)之聚丙烯樹脂(X2)之步驟；及

將上述聚丙烯樹脂(X1)與上述聚丙烯樹脂(X2)混合或熔融混練之步驟；

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X1-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上；

(X1-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)；$$

(X1-5)利用GPC測定所得之分支指數g'(Mz<sub>abs</sub>)為0.70以上且0.95以下；

(X1-6)利用<sup>13</sup>C-NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上；

(X2-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^{\circ}\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1);$$

(X2-5)利用GPC測定所得之分支指數 $g'(\text{Mz}_{\text{abs}})$ 為0.70以上且0.95以下；

(X2-6)利用 $^{13}\text{C}$ -NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

其中，X1之MFR < X2之MFR，且X1之 $W_{1M} \geq$  X2之 $W_{1M}$ 。

**【0016】** <8>如上述<7>中所記載之聚丙烯系樹脂組合物之製造方法，其進而包括獲得具有下述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)之步驟，

上述混合或熔融混練之步驟係將上述聚丙烯樹脂(X1)、上述聚丙烯樹脂(X2)、及上述聚丙烯系樹脂(Y)混合或熔融混練之步驟，

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下；

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件，

$$\log(\text{MT}170^{\circ}\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}A)。$$

**【0017】** <9>如上述<8>中所記載之聚丙烯系樹脂組合物之製造方法，其中上述混合或熔融混練之步驟係將上述聚丙烯樹脂(X1)5質量%~30質量%、上述聚丙烯樹脂(X2)5質量%~50質量%及上述聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%混合或熔融混練(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)之步驟。

**【0018】** <10>如上述<7>至<9>中任一項所記載之聚丙烯系樹脂組合物之製造方法，其中上述聚丙烯樹脂(X1)具有下述(X1-1)及(X1-3)

之特性，

上述聚丙烯樹脂(X2)具有下述(X2-1)及(X2-3)之特性，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為30 g/10 min以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為2.5質量%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過30 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上且未達2.5質量%。

**【0019】** <11> 如上述<7>或<8>中所記載之聚丙烯系樹脂組合物之製造方法，其中上述聚丙烯樹脂(X1)具有下述(X1-1)及(X1-3)之特性，

上述聚丙烯樹脂(X2)具有下述(X2-1)及(X2-3)之特性，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為10 g/10 min以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為3.5質量%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上且未達3.5質量%。

**【0020】** <12> 如上述<7>、<8>或<11>中所記載之聚丙烯系

樹脂組合物之製造方法，其中上述混合或熔融混練之步驟係將上述聚丙烯樹脂(X1)2質量%~30質量%、上述聚丙烯樹脂(X2)5質量%~98質量%、及上述聚丙烯系樹脂(Y)0質量%~80質量%混合或熔融混練(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)之步驟。

【0021】 <13>一種積層體，其特徵在於：其係包含基材層與聚丙烯系樹脂組合物層者，且

上述聚丙烯系樹脂組合物層包含：具有下述特性(X1-1)~(X1-6)之聚丙烯樹脂(X1)、及具有下述特性(X2-1)~(X2-6)之聚丙烯樹脂(X2)，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X1-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上；

(X1-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)；$$

(X1-5)利用GPC測定所得之分支指數g'(Mz<sub>abs</sub>)為0.70以上且0.95以下；

(X1-6)利用<sup>13</sup>C-NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上；

(X2-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)；$$

(X2-5)利用GPC測定所得之分支指數g'(Mz<sub>abs</sub>)為0.70以上且0.95以下；

(X2-6)利用<sup>13</sup>C-NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

其中，X1之MFR < X2之MFR，且X1之W<sub>1M</sub> ≥ X2之W<sub>1M</sub>。

**【0022】** <14>如上述<13>中所記載之積層體，其中上述聚丙烯系樹脂組合物層進而包含具有下述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)，

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下；

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}A)。$$

**【0023】** <15>如上述<14>中所記載之積層體，其中上述聚丙烯

系樹脂組合物層包含上述聚丙烯樹脂(X1)5質量%~30質量%、上述聚丙烯樹脂(X2)5質量%~50質量%、及上述聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)。

**【0024】** <16>如上述<13>至<15>中任一項所記載之積層體，其中上述聚丙烯樹脂(X1)具有下述(X1-1)及(X1-3)之特性，

上述聚丙烯樹脂(X2)具有下述(X2-1)及(X2-3)之特性，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為30 g/10 min以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為2.5質量%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過30 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上且未達2.5質量%。

**【0025】** <17>如上述<13>或<14>中所記載之積層體，其中上述聚丙烯樹脂(X1)具有下述(X1-1)及(X1-3)之特性，

上述聚丙烯樹脂(X2)具有下述(X2-1)及(X2-3)之特性，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為10 g/10 min以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為3.5質量%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為80 g/10 min

以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上且未達3.5質量%。

【0026】 <18>如上述<13>、<14>或<17>中所記載之積層體，其中上述聚丙烯系樹脂組合物層包含上述聚丙烯樹脂(X1)2質量%~30質量%、上述聚丙烯樹脂(X2)5質量%~98質量%、及上述聚丙烯系樹脂(Y)0質量%~80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)。

【0027】 <19>一種積層體之製造方法，其特徵在於：其係包含基材層與聚丙烯系樹脂組合物層之積層體之製造方法，且具有如下步驟：

藉由在基材層之至少單面，將具有下述特性(X1-1)~(X1-6)之聚丙烯樹脂(X1)與具有下述特性(X2-1)~(X2-6)之聚丙烯樹脂(X2)之混合物或熔融混練物擠出層壓，而形成上述聚丙烯系樹脂組合物層，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X1-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量( $M_w$ )與數量平均分子量( $M_n$ )之比( $M_w/M_n$ )為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量( $M_z$ )與重量平均分子量( $M_w$ )之比( $M_z/M_w$ )為2.0以上且5.0以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上；

(X1-4)於170°C下測定之熔融張力( $MT_{170^\circ C}$ )(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(MT_{170^\circ C}) \geq -1.1 \times \log(MFR) + 2.0 \quad (\text{式1}) ;$$



(X1-5)利用GPC測定所得之分支指數 $g'(Mz_{abs})$ 為0.70以上且0.95以下；

(X1-6)利用 $^{13}C$ -NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上；

(X2-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(MT170^\circ C) \geq -1.1 \times \log(MFR) + 2.0 \quad (\text{式1}) ;$$

(X2-5)利用GPC測定所得之分支指數 $g'(Mz_{abs})$ 為0.70以上且0.95以下；

(X2-6)利用 $^{13}C$ -NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

其中，X1之MFR < X2之MFR，且X1之 $W_{1M} \geq$  X2之 $W_{1M}$ 。

**【0028】** <20>如上述<19>中所記載之積層體之製造方法，其中形成上述聚丙烯系樹脂組合物層之步驟係藉由在上述基材層之至少單面，將上述聚丙烯樹脂(X1)、上述聚丙烯樹脂(X2)、以及具有下述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)之混合物或熔融混練物擠出層壓，而形成上述

聚丙烯系樹脂組合物層之步驟，

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下；

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式A})。$$

【0029】 <21>如上述<20>中所記載之積層體之製造方法，其中形成上述聚丙烯系樹脂組合物層之步驟係藉由將上述聚丙烯樹脂(X1)5質量%~30質量%、上述聚丙烯樹脂(X2)5質量%~50質量%、及上述聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%之混合物或熔融混練物(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)擠出層壓，而形成上述聚丙烯系樹脂組合物層之步驟。

【0030】 <22>如上述<19>至<21>中任一項所記載之積層體之製造方法，其中上述聚丙烯樹脂(X1)具有下述(X1-1)及(X1-3)之特性，

上述聚丙烯樹脂(X2)具有下述(X2-1)及(X2-3)之特性，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為30 g/10 min以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為2.5質量%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過30 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上且未達2.5質量%。

【0031】 <23> 如上述<19> 或<20> 中所記載之積層體之製造方法，其中上述聚丙烯樹脂(X1)具有下述(X1-1)及(X1-3)之特性，

上述聚丙烯樹脂(X2)具有下述(X2-1)及(X2-3)之特性，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為10 g/10 min 以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為3.5質量%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為80 g/10 min 以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上且未達3.5質量%。

【0032】 <24> 如上述<19>、<20> 或<23> 中所記載之積層體之製造方法，其中形成上述聚丙烯系樹脂組合物層之步驟係藉由將上述聚丙烯樹脂(X1)2質量%~30質量%、上述聚丙烯樹脂(X2)5質量%~98質量%、及上述聚丙烯系樹脂(Y)0質量%~80質量%之混合物或熔融混練物(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)擠出層壓，而形成上述聚丙烯系樹脂組合物層之步驟。

【0033】 又，用於解決上述課題之本發明之第2實施方式係關於下述<25> 至<28>。

<25> 一種聚丙烯系樹脂組合物，其包含：具有下述特性(X-1)~(X-6)之聚丙烯樹脂(X)20質量%~80質量%、及

具有下述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)，

(X-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為70 g/10 min以下；

(X-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(M<sub>w</sub>)與數量平均分子量(M<sub>n</sub>)之比(M<sub>w</sub>/M<sub>n</sub>)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(M<sub>z</sub>)與重量平均分子量(M<sub>w</sub>)之比(M<sub>z</sub>/M<sub>w</sub>)為2.0以上且5.0以下；

(X-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上且4.0質量%以下；

(X-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)；$$

(X-5)利用GPC測定所得之分支指數g'(M<sub>z<sub>abs</sub></sub>)為0.70以上且0.95以下；

(X-6)利用<sup>13</sup>C-NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下；

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}A)。$$

【0034】 <26>一種聚丙烯系樹脂組合物之製造方法，其具有如下步驟：

獲得具有下述特性(X-1)~(X-6)之聚丙烯樹脂(X)之步驟；

獲得具有下述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)之步驟；及

將上述聚丙烯樹脂(X)20質量%~80質量%與上述聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%混合或熔融混練(其中，聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)之步驟；

(X-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為70 g/10 min以下；

(X-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上且4.0質量%以下；

(X-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)；$$

(X-5)利用GPC測定所得之分支指數g'(M<sub>Z<sub>abs</sub></sub>)為0.70以上且0.95以下；

(X-6)利用<sup>13</sup>C-NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下；

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}A)。$$

**【0035】** <27>一種積層體，其特徵在於：其係包含基材層與聚丙

烯系樹脂組合物層者，且

上述聚丙烯系樹脂組合物層包含：具有下述特性(X-1)~(X-6)之聚丙烯樹脂(X)20質量%~80質量%、及具有下述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)，

(X-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為70 g/10 min以下；

(X-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上且4.0質量%以下；

(X-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)；$$

(X-5)利用GPC測定所得之分支指數g'(Mz<sub>abs</sub>)為0.70以上且0.95以下；

(X-6)利用<sup>13</sup>C-NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下；

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件，

$$\log(\text{MT}170^{\circ}\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式A})。$$

【0036】 <28> 一種積層體之製造方法，其特徵在於：其係包含基材層與聚丙烯系樹脂組合物層之積層體之製造方法，且具有如下步驟：

藉由在基材層之至少單面，將具有下述特性(X-1)~(X-6)之聚丙烯樹脂(X)20質量%~80質量%、及具有下述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%之混合物或熔融混練物(其中，聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)擠出層壓，而形成上述聚丙烯系樹脂組合物層，

(X-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為70 g/10 min以下；

(X-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上且4.0質量%以下；

(X-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^{\circ}\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式1})；$$

(X-5)利用GPC測定所得之分支指數g'(Mz<sub>abs</sub>)為0.70以上且0.95以下；

(X-6)利用<sup>13</sup>C-NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以

下；

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式A})。$$

[發明之效果]

**【0037】** 本發明之聚丙烯系樹脂組合物之例如290°C以上之高溫擠出成形下之縮幅較小，又，高速下之擠出層壓加工性優異。並且，使用該聚丙烯系樹脂組合物所獲得之積層體之透明性優異。

**【實施方式】**

**【0038】** 以下，對本發明之實施方式，於每一項目中詳細地加以說明。再者，於本說明書中，表示數值範圍之「～」係基於包含其前後記載之數值作為下限值及上限值之含義使用。以下所記載之構成要件之說明為本發明之實施態樣之一例，本發明並不受該等內容之任何限定。

**【0039】** I.第1實施方式

I-1.聚丙烯系樹脂組合物

本發明之聚丙烯系樹脂組合物之特徵在於：其包含具有下述特性(X1-1)～(X1-6)之聚丙烯樹脂(X1)、及

具有下述特性(X2-1)～(X2-6)之聚丙烯樹脂(X2)。

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下。

(X1-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下。



(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上。

(X1-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件。

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)$$

(X1-5)利用GPC測定所得之分支指數 $g'(M_{z_{\text{abs}}})$ 為0.70以上且0.95以下。

(X1-6)利用 $^{13}\text{C}$ -NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上。

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下。

(X2-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量( $M_w$ )與數量平均分子量( $M_n$ )之比( $M_w/M_n$ )為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量( $M_z$ )與重量平均分子量( $M_w$ )之比( $M_z/M_w$ )為2.0以上且5.0以下。

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上。

(X2-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件。

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)$$

(X2-5)利用GPC測定所得之分支指數 $g'(M_{z_{\text{abs}}})$ 為0.70以上且0.95以下。

(X2-6)利用 $^{13}\text{C}$ -NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上。

其中，X1之MFR < X2之MFR，且X1之 $W_{IM} \geq X2$ 之 $W_{IM}$ 。

X2之MFR與X1之MFR之差只要適當調整即可，但從容易獲得本發明之效果之方面出發，可為9.5 g/10 min以上，可為12 g/10 min以上，可為20 g/10 min以上，可為29.5 g/10 min以上，另一方面，可為60 g/10 min以下。

**【0040】** 本發明之聚丙烯系樹脂組合物亦可進而包含具有下述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)。

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下。

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件。

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式A})$$

**【0041】** 具有上述特性之聚丙烯樹脂(X1)與聚丙烯樹脂(X2)均為立體規則性較高，包含特定量之高分子量成分之長鏈分支聚丙烯樹脂，且滿足上述式(1)，故具有充分之熔融張力。於此種具有充分之熔融張力之聚丙烯樹脂中，於特定範圍內將相對地高分子量成分較多且流動性較低之聚丙烯樹脂(X1)、與相對地高分子量成分較少且流動性較高之聚丙烯樹脂(X2)混合，藉此本發明之聚丙烯系樹脂組合物能夠維持較高之熔融張力，並且賦予流動性，故而高溫擠出成形下之縮幅容易減小，又，高速下之擠出層壓加工性容易優異，並且透明性容易優異。相對地高分子量成分較少且流動性較高之聚丙烯樹脂(X2)可成為流動性賦予成分。

作為流動性賦予成分，亦可不為包含特定量之高分子量成分之長鏈分支聚丙烯樹脂。藉由進而將作為流動性賦予成分之上述聚丙烯樹脂(Y)

組合並混合，高速成形性容易變良好。

【0042】 本發明之第1實施方式之聚丙烯系樹脂組合物之例如290°C以上之高溫擠出成形下之縮幅較小，又，成形速度例如為200 m/min以上之高速下之擠出層壓加工性優異。並且，使用該聚丙烯系樹脂組合物所獲得之積層體之透明性優異。

【0043】 I-1-1.聚丙烯樹脂(X1)

聚丙烯樹脂(X1)具有(X1-1)~(X1-6)之各特性。

【0044】 I-1-1-1.特性(X1-1)：MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下。其中，聚丙烯樹脂(X1)之MFR < 聚丙烯樹脂(X2)之MFR。

關於特性(X1-1)，作為較佳之態樣，MFR(230°C、荷重2.16 kgf)可為大於0.5 g/10 min且30 g/10 min以下，作為進而較佳之態樣，MFR(230°C、荷重2.16 kgf)可超過0.5 g/10 min且為10 g/10 min以下。

MFR係表示熔融流動性之指標，若聚合物之分子量增大，則該值減小。另一方面，若分子量減小，則該值增大。

從熔融流動性變良好，對擠出成形容易抑制擠出機之負載之方面出發，X1之MFR大於0.5 g/10 min，較佳為1 g/10 min以上、2 g/10 min以上，更佳為3 g/10 min以上。X1之MFR亦可大於8 g/10 min。

另一方面，從熔融張力變良好，擠出層壓成形性等成形性變良好之方面出發，X1之MFR可為30 g/10 min以下，較佳為25 g/10 min以下，更佳為20 g/10 min以下，進而較佳為10 g/10 min以下，更進而較佳為9.5 g/10 min以下，尤佳為9 g/10 min以下。

於本發明中，熔體流動速率(MFR)係依據JIS K7210之「塑膠-熱塑性

塑膠之熔體質量流率(MFR)及熔體體積流動速率(MVR)之試驗方法」，於試驗條件：230°C、荷重2.16 kgf下測定之值。

熔體流動速率(MFR)可藉由變更聚合之溫度或壓力、或作為通常之方法之聚合時添加氫等鏈轉移劑之方法而容易地進行調整。

**【0045】** I-1-1-2.特性(X1-2)：藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下。

**【0046】** Mw/Mn係表示分子量分佈之寬度之指標，該值越大意指分子量分佈越寬。若Mw/Mn過小，則有低分子量成分減少，熔融流動性變差之虞。因此，Mw/Mn為2.0以上，較佳為2.1以上，更佳為2.2以上。另一方面，若Mw/Mn過大，則有高分子量成分之量相對增加，熔融流動性惡化之虞。因此，Mw/Mn為5.0以下，較佳為4.9以下。Mw/Mn可為4.6以下，亦可為4.2以下。

相同地，Mz/Mw係表示分子量分佈之寬度之指標，與Mw/Mn相比係表示高分子量側之寬度之指標。該等值越大，意指分子量分佈越向高分子量側變寬。若Mz/Mw過小，則有高分子量成分減少，熔融張力減少之虞。因此，Mz/Mw為2.0以上，較佳為2.1以上，更佳為2.2以上。另一方面，若Mz/Mw過大，則有高分子量成分之量相對增加，熔融流動性惡化之虞。因此，Mz/Mw為5.0以下，較佳為4.0以下，更佳為3.6以下。Mz/Mw亦可為3.5以下。

聚丙烯樹脂(X1)之藉由GPC測定之平均分子量及分子量分佈(Mz、Mw、Mn、Mw/Mn、Mz/Mw)可藉由變更丙烯聚合之溫度或壓力條件、或作為最通常之方法之丙烯聚合時添加氫等鏈轉移劑之方法而容易地進行

調整。進而可藉由變更所使用之茂金屬錯合物之種類，於使用2種以上錯合物之情形時變更其量比而加以控制。

關於本發明之聚丙烯樹脂(X1)，從與熔融流動性及熔融張力之平衡性之方面出發， $M_w$ 較佳為20萬以上且50萬以下。從熔融張力之方面出發， $M_w$ 更佳為23萬以上，進而較佳為25萬以上，從熔融流動性之方面出發，更佳為45萬以下，進而較佳為40以下。

**【0047】** I-1-1-3.特性(X1-3)：於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{IM}$ )為0.5質量%以上。其中，聚丙烯樹脂(X1)之 $W_{IM} \geq$  聚丙烯樹脂(X2)之 $W_{IM}$ 。關於特性(X1-3)，作為較佳之態樣，於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{IM}$ )可為2.5質量%以上，作為進而較佳之態樣，可為3.5質量%以上。

**【0048】** 如上所述，若高分子量成分之量減少，則有熔融張力減小之虞。因此，X1之 $W_{IM}$ 為0.5質量%以上，可為2.5質量%以上，較佳為3.0質量%以上，更佳為3.5質量%以上，尤佳為4.0質量%以上。X1之 $W_{IM}$ 之上限值並無特別限定，從熔融流動性之方面出發，可為10.0質量%以下。

於本發明中， $W_{IM}$ 係定義為於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線(將總量標準化為1)中，從1減去分子量(M)至多為100萬( $\log(M) = 6.0$ )之積分值，將所得之值乘以100而得之值。

關於 $W_{IM}$ ，例如於使用包含複數種茂金屬錯合物之觸媒之方法中，可選擇可製造高分子量之聚合物者作為所使用之一種茂金屬錯合物，其後藉由控制相對於製造低分子量側之另一種茂金屬錯合物之量比、聚合時添加之氫量或聚合溫度而容易地進行調整。

【0049】上述中所定義之 $M_z$ 、 $M_w$ 、 $M_n$ 、 $M_w/M_n$ 、 $M_z/M_w$ 、及 $W_{IM}$ 之值均係藉由凝膠滲透層析法(GPC)所獲得者，其測定法、測定設備之詳細情況如下所述。

裝置：Waters公司製造之GPC(Gel Permeation Chromatograph，凝膠滲透層析儀)(ALC/GPC、150C)

檢測器：FOXBORO公司製造之MIRAN、1A、IR檢測器(測定波長：3.42  $\mu\text{m}$ )

管柱：昭和電工公司製造之AD806M/S(3根)

流動相溶劑：鄰二氯苯(ODCB)

測定溫度：140°C

流速：1.0 mL/min

注入量：0.2 mL

試樣之製備係使用試樣與ODCB(包含0.5 mg/mL之二丁基羥基甲苯(BHT))，製備1 mg/mL之溶液，並於140°C下耗時約1小時使之溶解而進行。

又，自藉由GPC測定所獲得之保持容量向分子量的換算係使用利用預先製作之標準聚苯乙烯之校準曲線而進行。所使用之標準聚苯乙烯均為東曹公司製造之以下品種。

品 種：F380、F288、F128、F80、F40、F20、F10、F4、F1、A5000、A2500、A1000

注入以分別成為0.5 mg/mL之方式溶解於ODCB(包含0.5 mg/mL之BHT)中而成之溶液0.2 mL，製作校準曲線。校準曲線使用藉由最小平方方法進行近似所獲得之三次式。

向分子量之換算中所使用之黏度式： $[\eta] = K \times M^\alpha$ 使用以下之數值。

PS： $K = 1.38 \times 10^{-4}$ 、 $\alpha = 0.7$

PP： $K = 1.03 \times 10^{-4}$ 、 $\alpha = 0.78$

**【0050】** I-1-1-4.特性(X1-4)：於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件。

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式1})$$

**【0051】** 此處，MT170°C表示使用東洋精機製作所股份有限公司製造之Capillograph 1B，於毛細管：直徑2.0 mm、長度40 mm、料缸直徑：9.55 mm、料缸擠出速度：20 mm/min、拉取速度：4.0 m/min、溫度：170°C之條件下進行測定時之熔融張力，單位為克。再者，下述實施例中所示之MT230°C表示於上述測定條件下，於溫度：230°C之條件下進行測定時之熔融張力。其中，於試樣之MT極高之情形時，於拉取速度4.0 m/min下樹脂有時會斷裂，於此種情形時，降低拉取速度，將可拉取之最高速度下之張力設為MT。又，MFR之測定條件、單位如上所述。

該規定係用於使聚丙烯樹脂(X1)具有充分之熔融張力之指標，通常，MT與MFR具有相關關係，故利用與MFR之關係式記述。

若聚丙烯樹脂(X1)滿足上述(式1)，則不僅獲得縮幅之減少效果，且應力於熔融膜上均勻地傳播，故稱為共振現象之膜厚度之不均勻現象或由邊緣部之伸縮所引起之不穩定現象得以抑制。

又，更佳為滿足以下之(式2)，進而較佳為滿足(式3)。

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.3 \quad (\text{式2})$$

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.5 \quad (\text{式3})$$

**【0052】** 關於MT之上限值，無需特別設置上限值，於如MT超過50

g之情形時，於上述測定法中，拉取速度明顯變慢，變得難以測定。於此種情形時，認為樹脂之延展性亦降低，故較佳為45 g以下、40 g以下，更佳為35 g以下，進而較佳為30 g以下。

為了滿足上述條件(式1)，例如只要增大聚丙烯樹脂(X1)之長鏈分支量，提高熔融張力即可，藉由控制下述較佳之茂金屬觸媒之選擇或其組合、及其量比、以及預聚合條件，較多地導入長鏈分支而可實現。

**【0053】** I-1-1-5.特性(X1-5)：利用GPC測定所得之分支指數 $g'(M_{z_{abs}})$ 為0.70以上且0.95以下。

**【0054】** 作為聚丙烯樹脂(X1)具有分支之直接指標，可例舉分支指數 $g'$ 。 $g'$ 係藉由具有長鏈分支結構之聚合物之固有黏度 $[\eta]_{br}$ 、與具有相同分子量之線性聚合物之固有黏度 $[\eta]_{lin}$ 的比、即， $[\eta]_{br}/[\eta]_{lin}$ 而賦予，若存在長鏈分支結構，則取小於1之值。即， $g' < 1$ 之聚丙烯意指「長鏈分支聚丙烯」。

定義例如係記載於「Developments in Polymer Characterization-4」(J. V. Dawkins ed. Applied Science Publishers, 1983)中，為業者所公知之指標。

**【0055】**  $g'$ 例如可藉由使用如下述所記載之檢測器具備光散射計與黏度計之GPC，以絕對分子量 $M_{abs}$ 之函數之形式獲得。

關於本發明中所使用之聚丙烯樹脂(X1)，藉由光散射求出之絕對分子量 $M_{abs}$ 之Z平均分子量 $M_{z_{abs}}$ 下的 $g'(M_{z_{abs}})$ 較佳為0.72以上，更佳為0.75以上，進而較佳為0.80以上，且較佳為0.90以下，更佳為0.89以下，進而較佳為0.88以下。

**【0056】** 又，從於290°C以上之高溫下混練時、或反覆進行混練時



之熔融張力之降低程度較小，故不易產生擠出層壓成形性之降低(縮幅增大或產生低速捲取下之共振現象)之方面出發，較佳為具有梳型鏈結構之分支狀聚合物。

具體之 $g'$ 之算出方法如下所述。

使用Waters公司製造之Alliance GPCV2000作為裝備有示差折射計(RI)及黏度檢測器(Viscometer)之GPC裝置。使用多角度雷射光散射檢測器(MALLS)Wyatt Technology公司之DAWN-E作為光散射檢測器。檢測器以MALLS、RI、Viscometer之順序連接。流動相溶劑為1,2,4-三氯苯(以0.5 mg/mL之濃度添加BASF Japan公司製造之抗氧化劑Irganox1076)。

流量為1 mL/min，管柱係將2根東曹公司製造之GMHHR-H(S) HT連結而使用。管柱、試樣注入部及各檢測器之溫度為140°C。試樣濃度設為1 mg/mL，注入量(樣品環(sample loop)容量)為0.2175 mL。

於求出由MALLS獲得之絕對分子量(Mabs)、均方根慣性半徑(Rg)及由Viscometer獲得之極限黏度( $[\eta]$ )時，利用MALLS附帶之資料處理軟體ASTRA(版本4.73.04)，參考如下文獻而進行計算。

參考文獻：

1. 「Developments in Polymer Characterization-4」(J. V. Dawkins ed. Applied Science Publishers, 1983. Chapter1.)
2. Polymer, 45, 6495-6505 (2004)
3. Macromolecules, 33, 2424-2436 (2000)
4. Macromolecules, 33, 6945-6952 (2000)

**【0057】** [分支指數( $g'$ )之算出]

分支指數( $g'$ )係作為利用上述Viscometer對樣品進行測定所獲得之極限黏度( $[\eta]_{br}$ )、與另外測定線性聚合物所獲得之極限黏度( $[\eta]_{lin}$ )之比( $[\eta]_{br}/[\eta]_{lin}$ )而算出。

若向聚合物分子中導入長鏈分支結構，則與相同分子量之線性聚合物分子相比，慣性半徑減小。若慣性半徑減小，則極限黏度減小，故隨著導入長鏈分支結構，分支狀聚合物之極限黏度( $[\eta]_{br}$ )相對於相同分子量之線性聚合物之極限黏度( $[\eta]_{lin}$ )的比( $[\eta]_{br}/[\eta]_{lin}$ )逐漸減小。

因此，於分支指數( $g' = [\eta]_{br}/[\eta]_{lin}$ )成為小於1之值之情形時，意指具有長鏈分支結構。

此處，作為用於獲得 $[\eta]_{lin}$ 之線性聚合物，使用市售之均聚丙烯(Japan Polypropylene公司製造之NOVATEC PP(註冊商標)等級名：FY6)。線性聚合物之 $[\eta]_{lin}$ 之對數與分子量之對數存在線性關係，且以Mark-Houwink-Sakurada式而眾所周知， $[\eta]_{lin}$ 可適當外插至低分子量側或高分子量側而獲得數值。

**【0058】** 於將分支指數 $g'$ 設為0.70以上且0.95以下時，係藉由較多地導入長鏈分支而達成，例如藉由控制較佳之茂金屬觸媒之選擇或其組合、及其量比、以及預聚合條件進行聚合而可實現。

**【0059】** I-1-1-6.(X1-6)：利用 $^{13}\text{C}$ -NMR所得之丙烯單元三鏈之三體分率(以下有時稱為mm分率)為95%以上。

**【0060】** 本發明中所使用之聚丙烯樹脂(X1)較佳為立體規則性較高。立體規則性之高低可藉由 $^{13}\text{C}$ -NMR進行評價，較良好為具有藉由 $^{13}\text{C}$ -NMR所獲得之丙烯單元三鏈之mm分率為95%以上之立體規則性者。

mm分率為聚合物鏈中，包含頭-尾鏈之任意之丙烯單元三鏈中，各



用於求出丙烯單元三鏈之mm分率之 $^{13}\text{C}$ -NMR測定法可藉由與上述測定相同之方法而進行。

光譜之歸屬可參考Polymer Journal、16卷、717頁(1984)、朝倉書店；或Macromolecules、8卷、687頁(1975年)；或Polymer、30卷 1350頁(1989年)而進行。

**【0063】** 於將mm分率設為95%以上時，利用達成高結晶性之聚合物之聚合觸媒而可實現，且藉由使用下述較佳之茂金屬觸媒進行聚合而可實現。

**【0064】** I-1-1-7.聚丙烯樹脂(X1)之製造方法

聚丙烯樹脂(X1)只要滿足上述(X1-1)~(X1-6)之特性，則並未特別限定製造方法，如上所述，用於滿足較高之立體規則性、相對較寬之分子量分佈、分支指數 $g'(Mz_{abs})$ 之範圍、較高之熔融張力等條件之較佳之製造方法係使用利用茂金屬觸媒之組合的大分子單體共聚法之方法。作為此種方法之例，例如可例舉日本專利特開2009-57542號公報中所揭示之方法。該方法係使用將具有大分子單體生成能力之特定之結構之觸媒成分、及具有大分子單體共聚能力之特定之結構之觸媒成分組合而成之觸媒，製造具有長鏈分支結構之聚丙烯之方法，根據該方法，藉由塊狀聚合或氣相聚合等工業上有效之方法，尤其藉由實用性之壓力溫度條件下之單段聚合，並且使用作為分子量調整劑之氫，能夠製造具有目標物性之具有長鏈分支結構之聚丙烯樹脂。

**【0065】** 本發明之聚丙烯樹脂(X1)可為使丙烯單體進行均聚合而獲得之丙烯均聚物，亦可為使丙烯單體與除丙烯以外之碳數2~20之 $\alpha$ -烯烴共聚單體例如乙烯及/或1-丁烯進行共聚所獲得之丙烯- $\alpha$ -烯烴共聚物。

聚丙烯樹脂(X1)之形狀並無特別限定，可為粉末狀、或作為其造粒物之粒子狀。

【0066】於本發明之聚丙烯樹脂(X1)中，可視需要利用亨舍爾攪拌機、V型攪拌器、帶型攪拌器、滾筒攪拌器等將下述其他附加成分混合而獲得，並視需要利用單軸擠出機、多軸擠出機、捏合機、斑布里攪拌機等混練機進行混練而製成造粒物。

【0067】 I-1-2.聚丙烯樹脂(X2)

聚丙烯樹脂(X2)具有特性(X2-1)~(X2-6)。

【0068】 I-1-2-1.特性(X2-1)：MFR(230℃、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下。其中，聚丙烯樹脂(X1)之MFR < 聚丙烯樹脂(X2)之MFR。關於特性(X2-1)，作為較佳之態樣，MFR(230℃、荷重2.16 kgf)可超過10 g/10 min且為80 g/10 min以下，作為進而較佳之態樣，MFR(230℃、荷重2.16 kgf)可超過30 g/10 min且為80 g/10 min以下。

MFR係表示熔融流動性之指標，若聚合物之分子量增大，則該值減小。另一方面，若分子量減小，則該值增大。

從熔融流動性變良好，對擠出成形成容易抑制擠出機之負載之方面出發，X2之MFR超過0.5 g/10 min，較佳為大於10 g/10 min，更佳為大於15 g/10 min，進而較佳為大於30 g/10 min，尤佳為大於40 g/10 min。

另一方面，從熔融張力變良好，擠出層壓成形性等成形性變良好之方面出發，X2之MFR為80 g/10 min以下，較佳為70 g/10 min以下，更佳為65 g/10 min以下。

於本發明中，熔體流動速率(MFR)係藉由與聚丙烯樹脂(X1)中所使

用之測定方法同樣之方法而進行測定。熔體流動速率(MFR)可藉由變更聚合之溫度或壓力、或作為通常之方法之聚合時添加氫等鏈轉移劑之方法而容易地進行調整。

**【0069】** I-1-2-2.特性(X2-2)：藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下。

**【0070】** Mw/Mn係表示分子量分佈之寬度之指標，該值越大意指分子量分佈越寬。高分子量成分之量相對增加，熔融流動性惡化熔融流動性變差。因此，Mw/Mn為2.0以上，較佳為2.1以上，更佳為2.2以上。另一方面，若Mw/Mn過大，則高分子量成分之量相對增加，熔融流動性惡化。因此，Mw/Mn為5.0以下，較佳為4.6以下，更佳為4.2以下。

相同地，Mz/Mw係表示分子量分佈之寬度之指標，與Mw/Mn相比，係表示高分子量側之寬度之指標。該等值越大，意指分子量分佈越向高分子量側變寬。若Mz/Mw過小，則高分子量成分減少，熔融張力減少。因此，Mz/Mw為2.0以上，較佳為2.1以上，更佳為2.2以上。另一方面，若Mz/Mw過大，則高分子量成分之量相對增加，熔融流動性惡化。因此，Mz/Mw為5.0以下，較佳為4.3以下，更佳為4.0以下。Mz/Mw亦可為3.5以下。

聚丙烯樹脂(X2)之藉由GPC測定之平均分子量及分子量分佈(Mz、Mw、Mn、Mw/Mn、Mz/Mw)可藉由變更丙烯聚合之溫度或壓力條件、或作為最通常之方法之丙烯聚合時添加氫等鏈轉移劑之方法而容易地進行調整。進而可藉由變更所使用之茂金屬錯合物之種類，於使用2種以上錯合物之情形時變更其量比而加以控制。

關於本發明之聚丙烯樹脂(X2)，從與熔融流動性及熔融張力之平衡性之方面出發， $M_w$ 較佳為15萬以上且20萬以下。關於 $M_w$ ，從熔融張力之方面出發，更佳為16萬以上，從熔融流動性之方面出發，更佳為19萬以下。

**【0071】** I-1-2-3.特性(X2-3)：於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{IM}$ )為0.5質量%以上。其中，聚丙烯樹脂(X1)之 $W_{IM} \geq$  聚丙烯樹脂(X2)之 $W_{IM}$ 。關於特性(X2-3)，作為較佳之態樣，於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{IM}$ )可為0.5質量%以上且未達3.5質量%，作為進而較佳之態樣，於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{IM}$ )可為0.5質量%以上且未達2.5質量%。

**【0072】** 如上所述，若高分子量成分之量減少，則有熔融張力減小之虞。因此，X2之 $W_{IM}$ 為0.5質量%以上，較佳為1.0質量%以上，更佳為1.5質量%以上。另一方面，若 $W_{IM}$ 增大，則有熔融流動性降低之虞。因此，X2之 $W_{IM}$ 較佳為未達3.5質量%，更佳為3.0質量%以下，進而較佳為未達2.5質量%，尤佳為2.0質量%以下。

於本發明中， $W_{IM}$ 係定義為於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線(將總量標準化為1)中，從1減去分子量(M)至多為100萬( $\log(M) = 6.0$ )之積分值，將所得之值乘以100而得之值。

關於 $W_{IM}$ ，例如於使用包含複數種茂金屬錯合物之觸媒之方法中，可選擇可製造高分子量之聚合物者作為所使用之一種茂金屬錯合物，其後藉由控制相對於製造低分子量側之另一種茂金屬錯合物之量比、聚合時添加之氬量或聚合溫度而容易地進行調整。

【0073】 上述中所定義之 $M_z$ 、 $M_w$ 、 $M_n$ 、 $M_w/M_n$ 、 $M_z/M_w$ 、及 $W_{IM}$ 之值均係藉由凝膠滲透層析法(GPC)所獲得者，其測定法、測定設備與聚丙烯樹脂(X1)中所使用者同樣。

【0074】 I-1-2-4.特性(X2-4)：於 $170^{\circ}\text{C}$ 下測定之熔融張力(MT $170^{\circ}\text{C}$ )(單位：g)滿足下述(式1)之要件。

$$\log(\text{MT}170^{\circ}\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式1})$$

【0075】 此處， $\text{MT}170^{\circ}\text{C}$ 及 $\text{MT}230^{\circ}\text{C}$ 係藉由與聚丙烯樹脂(X1)中所使用之測定方法同樣之方法進行測定時之熔融張力，測定條件、單位如上所述。

該規定係用於使聚丙烯樹脂(X2)具有充分之熔融張力之指標，通常，MT與MFR具有相關關係，故利用與MFR之關係式記述。

若聚丙烯樹脂(X2)滿足上述(式1)，則不僅獲得縮幅之減少效果，且應力於熔融膜上均勻地傳播，故稱為共振現象之膜厚度之不均勻現象或由邊緣部之伸縮所引起之不穩定現象得以抑制。

又，更佳為滿足以下之(式2)，進而較佳為滿足(式3)。

$$\log(\text{MT}170^{\circ}\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.3 \quad (\text{式2})$$

$$\log(\text{MT}170^{\circ}\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.5 \quad (\text{式3})$$

【0076】 關於MT之上限值，無需特別設置上限值，於如MT超過50 g之情形時，於上述測定法中，拉取速度明顯變慢，變得難以測定。於此種情形時，認為樹脂之延展性亦降低，故較佳為45 g以下，更佳為40 g以下，進而較佳為35 g以下，更進而較佳為30 g以下。

為了滿足上述條件(式1)，例如只要使聚丙烯樹脂(X2)之長鏈分支量增大，提高熔融張力即可，藉由控制下述較佳之茂金屬觸媒之選擇或其組



合、及其量比、以及預聚合條件，較多地導入長鏈分支而可實現。

**【0077】** I-1-2-5.特性(X2-5)：利用GPC測定所得之分支指數 $g'(Mz_{abs})$ 為0.70以上且0.95以下。

**【0078】** 作為聚丙烯樹脂(X2)具有分支之直接指標，與聚丙烯樹脂(X1)同樣地可例舉分支指數 $g'$ ，關於 $g'$ 之算出方法亦同樣。

於將分支指數 $g'$ 設為0.70以上且0.95以下時，係藉由較多地導入長鏈分支而達成，例如藉由控制較佳之茂金屬觸媒之選擇或其組合、及其量比、以及預聚合條件進行聚合而可實現。

本發明中所使用之聚丙烯樹脂(X2)之藉由光散射求出之絕對分子量 $M_{abs}$ 之Z平均分子量 $Mz_{abs}$ 下的 $g'(Mz_{abs})$ 較佳為0.72以上，更佳為0.75以上，進而較佳為0.80以上，且較佳為0.90以下，更佳為0.88以下，進而較佳為0.85以下。

**【0079】** I-1-2-6.(X2-6)：利用 $^{13}C$ -NMR測得之丙烯單元三鏈之mm分率為95%以上。

**【0080】** 本發明中所使用之聚丙烯樹脂(X2)較佳為立體規則性較高。立體規則性之高低可藉由 $^{13}C$ -NMR進行評價，較良好為具有藉由 $^{13}C$ -NMR所獲得之丙烯單元三鏈之mm分率為95%以上之立體規則性者，其效果與聚丙烯樹脂(X1)同樣。

**【0081】** I-1-2-7.聚丙烯樹脂(X2)之製造方法

聚丙烯樹脂(X2)只要滿足上述(X2-1)~(X2-6)之特性，則並未特別限定製造方法，如上所述，用於滿足較高之立體規則性、相對較寬之分子量分佈、分支指數 $g'(Mz_{abs})$ 之範圍、較高之熔融張力等條件之較佳之製造方法係使用利用茂金屬觸媒之組合的大分子單體共聚法之方法。作為此種

方法之例，例如可例舉日本專利特開2009-57542號公報中所揭示之方法。該方法係使用將具有大分子單體生成能力之特定之結構之觸媒成分、及具有大分子單體共聚能力之特定之結構之觸媒成分組合而成之觸媒，製造具有長鏈分支結構之聚丙烯之方法，根據該方法，藉由塊狀聚合或氣相聚合等工業上有效之方法，尤其藉由實用性之壓力溫度條件下之單段聚合，並且使用作為分子量調整劑之氫，能夠製造具有目標物性之具有長鏈分支結構之聚丙烯樹脂。

【0082】 本發明之聚丙烯樹脂(X2)可為使丙烯單體進行均聚合而獲得之丙烯均聚物，亦可為使丙烯單體與除丙烯以外之碳數2~20之 $\alpha$ -烯烴共聚單體例如乙烯及/或1-丁烯進行共聚所獲得之丙烯- $\alpha$ -烯烴共聚物。

聚丙烯樹脂(X2)之形狀並無特別限定，可為粉末狀、或作為其造粒物之粒子狀。

【0083】 於本發明之聚丙烯樹脂(X2)中，可視需要利用亨舍爾攪拌機、V型攪拌器、帶型攪拌器、滾筒攪拌器等將下述其他附加成分混合而獲得，並視需要利用單軸擠出機、多軸擠出機、捏合機、班布里攪拌機等混練機進行混練而製成造粒物。

【0084】 I-1-3.聚丙烯系樹脂(Y)

聚丙烯系樹脂(Y)具有特性(Y-1)~(Y-2)。

【0085】 I-1-3-1.特性(Y-1)：MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下。

從使聚丙烯系樹脂組合物之流動性變得良好，抑制擠出層壓成形時之共振現象之方面出發，聚丙烯系樹脂(Y)之MFR為10 g/10 min以上，較佳為15 g/10 min以上。另一方面，從熔融張力變良好，製品之製造效率變

良好之方面出發，聚丙烯系樹脂(Y)之MFR為50 g/10 min以下，較佳為45 g/10 min以下。

**【0086】** 聚丙烯系樹脂(Y)之MFR藉由變更丙烯聚合之溫度或壓力條件、或聚合時添加氫等鏈轉移劑之方法而容易地進行調整。

**【0087】** 又，聚丙烯系樹脂(Y)亦可為於使聚丙烯系樹脂聚合後，藉由有機過氧化物減成進行MFR之調整而成者。

此時所使用之有機過氧化物可例舉：過氧化苯甲醯、二第三丁基過氧化物、二異丙苯基過氧化物、第三丁基異丙苯基過氧化物、1,1-雙-(第三丁基過氧基)-3,3,5-三甲基環己烷、1,1-雙(第三丁基過氧基)環己烷、2,2-雙(第三丁基過氧基)辛烷、4,4-雙(第三丁基過氧基)戊酸正丁酯、2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧基)己烷、2,5-二甲基-2,5-二(苯甲醯基過氧基)己烷、2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧基)-3-己炔、1,3-雙(第三丁基過氧基異丙基)苯、 $\alpha,\alpha'$ -雙(第三丁基過氧基異丙基)苯、第三丁基過氧化氫、氫過氧化異丙苯、過氧化月桂醯、二過氧化鄰苯二甲酸二第三丁酯、第三丁基過氧化順丁烯二酸、過氧化異丙基碳酸第三丁酯、過碳酸異丙酯等。

該等並不限定於1種，可組合2種以上而使用。該等之中，尤佳為2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧基)己烷、2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧基)-3-己炔、1,3-雙(第三丁基過氧基異丙基)苯、 $\alpha,\alpha'$ -雙(第三丁基過氧基異丙基)苯。

**【0088】** 用於調整MFR之減成方法較佳為樹脂或樹脂組合物每100質量份使用有機過氧化物0.005質量份~0.1質量份，並於該樹脂之熔融溫度以上之溫度例如180℃~300℃下將兩者加熱混練即可，作為其方法，

亦可採用任何方法，尤其適宜為於擠出機中進行。又，於以有機過氧化物均勻地分散於聚丙烯系樹脂中之方式將兩者加熱混練前，亦可預先使用亨舍爾攪拌機、帶型攪拌器等混合機將兩者充分混合。進而，為了提高有機過氧化物之分散性，亦可使用使有機過氧化物混合至適當之介質中而成者。再者，藉由利用有機過氧化物減成調整MFR，其後滿足本發明中之聚丙烯系樹脂(Y)之特性物性之要件，可用於本發明中。

**【0089】** I-1-3-2.特性(Y-2)：於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件。

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式A})$$

**【0090】** 此處，MT170°C係藉由與聚丙烯樹脂(X1)中所使用之測定方法同樣之方法進行測定時之熔融張力，測定條件、單位如上所述。

該規定係用以表示聚丙烯系樹脂(Y)之熔融張力之指標，通常，MT與MFR具有相關關係，故利用與MFR之關係式記述。

藉由聚丙烯系樹脂(Y)滿足上述(式A)，可於和聚丙烯樹脂(X1)及(X2)之摻合時賦予流動性，減少成形時之膜破裂等成形不良現象。

#### **【0091】** I-1-3-3.聚丙烯系樹脂(Y)之製造方法

聚丙烯系樹脂(Y)並不限於其製造法，可為利用齊格勒-納塔系觸媒製造者，亦可為利用茂金屬系觸媒製造者。

齊格勒-納塔系觸媒例如為如「聚丙烯手冊」Edward P Moore Jr.編著、保田哲男、佐久間暢翻譯監修、工業調查會(1998)之2.3.1節(20~57頁)中所概述之觸媒系，例如意指包含三氯化鈦與鹵化有機鋁之三氯化鈦系觸媒；或包含含有氯化鎂、鹵化鈦、供電子性化合物之固體觸媒成分、有機鋁、及有機矽化合物之鎂擔載系觸媒；或使固體觸媒成分與有機鋁及

有機矽化合物接觸而形成有機矽處理固體觸媒成分，將該有機矽處理固體觸媒成分與有機鋁化合物成分組合而成之觸媒。

【0092】 又，作為茂金屬觸媒，係包含：(i)包含具有環戊二烯基骨架之配位基之週期表第4族之過渡金屬化合物(所謂茂金屬化合物)、(ii)可與茂金屬化合物反應而活化為穩定之離子狀態之輔觸媒、及視需要之(iii)有機鋁化合物之觸媒，公知之觸媒均可使用。茂金屬化合物較佳為能夠進行丙烯之立體規則性聚合之交聯型茂金屬化合物，更佳為能夠進行丙烯之等規性聚合之交聯型茂金屬化合物。

【0093】 作為上述(i)茂金屬化合物，例如可較佳地使用日本專利特開昭60-35007號、日本專利特開昭61-130314號、日本專利特開昭63-295607號、日本專利特開平1-275609號、日本專利特開平2-41303號、日本專利特開平2-131488號、日本專利特開平2-76887號、日本專利特開平3-163088號、日本專利特開平4-300887號、日本專利特開平4-211694號、日本專利特開平5-43616號、日本專利特開平5-209013號、日本專利特開平6-239914號、日本專利特表平7-504934號、日本專利特開平8-85708號之各公報中所揭示者等。

【0094】 進而，具體而言，可例舉：

亞甲基雙(2-甲基苄基)二氯化鋇、仲乙基雙(2-甲基苄基)二氯化鋇、

仲乙基-1,2-(4-苯基苄基)(2-甲基-4-苯基-4H-萹基)二氯化鋇、

亞異丙基(環戊二烯基)(苄基)二氯化鋇、亞異丙基(4-甲基環戊二烯基)(3-第三丁基苄基)二氯化鋇、

二甲基亞矽烷基(2-甲基-4-第三丁基-環戊二烯基)(3'-第三丁基-5'-甲基-環戊二烯基)二氯化鋇、

二甲基亞矽烷基雙(苧基)二氯化鋇、  
 二甲基亞矽烷基雙(4,5,6,7-四氫苧基)二氯化鋇、  
 二甲基亞矽烷基雙[1-(2-甲基-4-苯基苧基)]二氯化鋇、  
 二甲基亞矽烷基雙[1-(2-乙基-4-苯基苧基)]二氯化鋇、  
 二甲基亞矽烷基雙[4-(1-苯基-3-甲基苧基)]二氯化鋇、  
 二甲基亞矽烷基(蒾基)第三丁基醯胺基二氯化鋇、  
 甲基苯基亞矽烷基雙[1-(2-甲基-4-(1-萘基)-苧基)]二氯化鋇、  
 二甲基亞矽烷基雙[1-(2-甲基-4,5-苯并苧基)]二氯化鋇、  
 二甲基亞矽烷基雙[1-(2-甲基-4-苯基-4H-萹基)]二氯化鋇、  
 二甲基亞矽烷基雙[1-(2-乙基-4-(4-氯苯基)-4H-萹基)]二氯化鋇、  
 二甲基亞矽烷基雙[1-(2-乙基-4-萘基-4H-萹基)]二氯化鋇、  
 二苯基亞矽烷基雙[1-(2-甲基-4-(4-氯苯基)-4H-萹基)]二氯化鋇、  
 二甲基亞矽烷基雙[1-(2-乙基-4-(3-氟聯苯基)-4H-萹基)]二氯化鋇、  
 二甲基亞甲鍺基雙[1-(2-乙基-4-(4-氯苯基)-4H-萹基)]二氯化鋇、  
 二甲基亞甲鍺基雙[1-(2-乙基-4-苯基苧基)]二氯化鋇  
 等鋇化合物。

**【0095】** 於上述中亦可同樣地使用將鋇置換為鈦、鉛之化合物。又，亦較佳為使用鋇化合物與鉛化合物等之混合物。又，氯可被取代為其他鹵素化合物、甲基、異丁基、苜基等烴基、二甲基醯胺基、二乙基醯胺基等醯胺基、甲氧基、苯氧基等烷氧化物基、氫化物基等。

該等之中，尤佳為利用矽或鍺基使苧基或萹基交聯而成之茂金屬化合物。

又，茂金屬化合物亦可擔載於無機或有機化合物之載體而使用。

作為該載體，較佳為無機或有機化合物之多孔質化合物，具體而言，可例舉：離子交換性層狀矽酸鹽、沸石、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、矽鋁、 $\text{MgO}$ 、 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{B}_2\text{O}_3$ 、 $\text{CaO}$ 、 $\text{ZnO}$ 、 $\text{BaO}$ 、 $\text{ThO}_2$ 等無機化合物；包含多孔質之聚烯烴、苯乙烯-二乙烯苯共聚物、烯烴-丙烯酸共聚物等之有機化合物；或該等之混合物。

【0096】 又，作為上述(ii)可與茂金屬化合物反應而活化為穩定之離子狀態之輔觸媒，可較佳地例舉：有機鋁氧化合物(例如鋁氧烷化合物)、離子交換性層狀矽酸鹽、路易斯酸、含硼化合物、離子性化合物、含氟有機化合物等。

【0097】 進而，作為上述(iii)有機鋁化合物，可較佳地例舉：三乙基鋁、三異丙基鋁、三異丁基鋁等三烷基鋁、二烷基鋁鹵化物、烷基鋁倍半鹵化物、烷基鋁二鹵化物、烷基鋁氫化物、有機鋁烷氧化物等。

【0098】 上述之中，聚丙烯均聚物較佳為利用齊格勒-納塔系觸媒製造者，又，丙烯無規共聚物較佳為使用利用茂金屬系觸媒製造者。

【0099】 關於聚丙烯系樹脂(Y)之製造方法，並無特別限制，先前公知之漿料聚合法、塊狀聚合法、氣相聚合法等中之任一種均可製造，又，只要在範圍內，則亦可利用多段聚合法製造聚丙烯及丙烯系無規共聚物。

【0100】 聚丙烯系樹脂(Y)可為使丙烯單體進行均聚所獲得之丙烯均聚物，亦可為使丙烯單體與乙烯共聚單體進行共聚所獲得之丙烯-乙烯共聚物。聚丙烯系樹脂(Y)較佳為含有乙烯0質量%~6.0質量%作為共聚單體。更佳為含有乙烯0質量%~5.0質量%，進而較佳為含有乙烯0質量%~4.0質量%。若乙烯之含量超過6.0質量%，則有結晶性降低，耐熱性降低

之虞。

聚丙烯系樹脂(Y)之形狀並無特別限定，可為粉末狀、或作為其造粒物之粒子狀。

【0101】 本發明之聚丙烯系樹脂(Y)係藉由如下方法而獲得：視需要利用亨舍爾攪拌機、V型攪拌器、帶型攪拌器、滾筒攪拌器等將下述其他附加成分混合而獲得，並視需要利用單軸擠出機、多軸擠出機、捏合機、班布里攪拌機等混練機進行混練。

#### 【0102】 I-1-4. 聚丙烯系樹脂組合物

I-1-4-1. 聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、聚丙烯系樹脂(Y)之比率

關於本發明之聚丙烯系樹脂組合物中之上述聚丙烯樹脂(X1)、上述聚丙烯樹脂(X2)、及上述聚丙烯系樹脂(Y)之比率，以(X1)、(X2)、及(Y)之合計100質量%基準計，較佳為聚丙烯樹脂(X1)2質量%~30質量%、聚丙烯樹脂(X2)5質量%~98質量%、及聚丙烯系樹脂(Y)0質量%~80質量%，更佳為聚丙烯樹脂(X1)2質量%~30質量%、聚丙烯樹脂(X2)5質量%~80質量%、及聚丙烯系樹脂(Y)10質量%~80質量%，進而較佳為聚丙烯樹脂(X1)5質量%~30質量%、聚丙烯樹脂(X2)5質量%~50質量%、及聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%，更進而較佳為聚丙烯樹脂(X1)5質量%~25質量%、聚丙烯樹脂(X2)15質量%~45質量%、及聚丙烯系樹脂(Y)30質量%~70質量%，尤佳為聚丙烯樹脂(X1)5質量%~20質量%、聚丙烯樹脂(X2)20質量%~40質量%、及聚丙烯系樹脂(Y)40質量%~65質量%。

以(X1)、(X2)、及(Y)之合計100質量%基準計，聚丙烯樹脂(X1)可



為2質量%以上，可為2.5質量%以上，可為5質量%以上，且可為30質量%以下，可為25質量%以下，可為20質量%以下。

以(X1)、(X2)、及(Y)之合計100質量%基準計，聚丙烯樹脂(X2)可為5質量%以上，可為15質量%以上，可為20質量%以上，且可為98質量%以下，可為80質量%以下，可為50質量%以下，可為45質量%以下，可為40質量%以下。

以(X1)、(X2)、及(Y)之合計100質量%基準計，聚丙烯系樹脂(Y)可為0質量%以上，可為10質量%以上，可為20質量%以上，可為30質量%以上，可為40質量%以上，且可為80質量%以下，可為70質量%以下，可為65質量%以下。

藉由設為上述範圍，例如290℃以上之高溫擠出成形下之縮幅較小，且延展性較高，故可獲得高速下之擠出層壓加工性優異，並且可獲得透明性優異之成形體之樹脂組合物。

**【0103】** 作為本發明之聚丙烯系樹脂組合物之較佳之第1-1實施方式，可例舉如下聚丙烯系樹脂組合物，其包含：

具有下述特性(X1-1)~(X1-6)之聚丙烯樹脂(X1)2質量%~30質量%、

具有下述特性(X2-1)~(X2-6)之聚丙烯樹脂(X2)5質量%~98質量%、及

具有下述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)0質量%~80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)。各比率或各特性之較佳之範圍可與上述同樣。

(X1-1)MFR(230℃、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為10 g/10 min

以下。

(X1-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下。

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為3.5質量%以上。

(X1-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件。

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)$$

(X1-5)利用GPC測定所得之分支指數g'(Mz<sub>abs</sub>)為0.70以上且0.95以下。

(X1-6)利用<sup>13</sup>C-NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上。

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為80 g/10 min以下。

(X2-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下。

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上且未達3.5質量%。

(X2-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件。

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)$$

(X2-5)利用GPC測定所得之分支指數 $g'(Mz_{abs})$ 為0.70以上且0.95以下。

(X2-6)利用 $^{13}C$ -NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上。

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下。

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件。

$$\log(MT170^\circ C) < -1.1 \times \log(MFR) + 2.0 \quad (\text{式A})$$

**【0104】** 又，作為本發明之聚丙烯系樹脂組合物之較佳之第1-2實施方式，可例舉如下聚丙烯系樹脂組合物，其包含：

具有下述特性(X1-1)~(X1-6)之聚丙烯樹脂(X1)5質量%~30質量%、

具有下述特性(X2-1)~(X2-6)之聚丙烯樹脂(X2)5質量%~50質量%、及

具有下述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)。各比率或各特性之較佳之範圍可與上述同樣。

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為30 g/10 min以下。

(X1-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下。

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為2.5質量%以上。

(X1-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件。

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)$$

(X1-5)利用GPC測定所得之分支指數 $g'(M_{z_{\text{abs}}})$ 為0.70以上且0.95以下。

(X1-6)利用 $^{13}\text{C}$ -NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上。

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過30 g/10 min且為80 g/10 min以下。

(X2-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量( $M_w$ )與數量平均分子量( $M_n$ )之比( $M_w/M_n$ )為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量( $M_z$ )與重量平均分子量( $M_w$ )之比( $M_z/M_w$ )為2.0以上且5.0以下。

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上且未達2.5質量%。

(X2-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件。

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)$$

(X2-5)利用GPC測定所得之分支指數 $g'(M_{z_{\text{abs}}})$ 為0.70以上且0.95以下。

(X2-6)利用 $^{13}\text{C}$ -NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上。

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下。

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件。

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式A})$$

**【0105】 I-1-4-2.其他成分**

本發明之聚丙烯系樹脂組合物視需要可添加上述聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)以外之下述各種成分而使用。

**【0106】 I-1-4-2-1.添加劑**

於本發明之聚丙烯系樹脂組合物中，只要不明顯妨礙本發明之效果，則可適當添加能夠添加至聚丙烯系樹脂中之抗氧化劑等添加劑。

具體而言，可添加2,6-二第三丁基-對甲酚(BHT)、四[亞甲基-3-(3,5-二第三丁基-4-羥基苯基)丙酸酯]甲烷(BASF Japan公司製造、商品名「IRGANOX 1010」)或3-(4'-羥基-3,5'-二第三丁基苯基)丙酸正十八烷基酯(BASF Japan公司製造、商品名「IRGANOX 1076」)所代表之酚系穩定劑、雙(2,4-二第三丁基苯基)季戊四醇二亞磷酸酯或亞磷酸三(2,4-二第三丁基苯基)酯等所代表之亞磷酸酯系穩定劑、高級脂肪醯胺或高級脂肪酸酯所代表之潤滑劑、碳原子數8~22之脂肪酸之甘油酯或山梨醇酐酸酯、聚乙二醇酯等防靜電劑、二氧化矽、碳酸鈣、滑石等所代表之抗黏連劑等。

**【0107】** 又，於本發明之聚丙烯系樹脂組合物中，為了賦予耐候性，可添加紫外線吸收劑與光穩定劑。

紫外線吸收劑係於紫外線區域具有吸收帶之化合物，已知有三唑

系、二苯甲酮系、水楊酸酯系、氰基丙烯酸酯系、鎳螯合物系、無機微粒子系等。其中最通用地使用者為三唑系。

以下，作為紫外線吸收劑，例示代表性化合物。

於三唑系之化合物中，可例示：2-(2'-羥基-5'-甲基苯基)苯并三唑(商品名：SUMISORB 200、Tinuvin P)、2-(2'-羥基-5'-第三辛基苯基)苯并三唑(商品名：SUMISORB 340、Tinuvin 399)、2-(2'-羥基-3',5'-二第三丁基苯基)苯并三唑(商品名：SUMISORB 320、Tinuvin 320)、2-(2'-羥基-3',5'-二第三戊基苯基)苯并三唑(商品名：SUMISORB 350、Tinuvin 328)、2-(2'-羥基-3'-第三丁基-5'-甲基苯基)-5-氯苯并三唑(商品名：SUMISORB 300、Tinuvin 326)。

於二苯甲酮系之化合物中，可例示：2-羥基-4-甲氧基二苯甲酮(商品名：SUMISORB 110)、2-羥基-4-正辛氧基二苯甲酮(商品名：SUMISORB 130)。

於水楊酸酯系之化合物中，可例示水楊酸4-第三丁基苯酯(商品名：SEESORB 202)。

於氰基丙烯酸酯系之化合物中，可例示氰基-3,3-二苯基丙烯酸乙酯(商品名：SEESORB 501)。

於鎳螯合物系之化合物中，可例示二丁基二硫代胺基甲酸鎳(商品名：Antigen NBC)。

於無機微粒子系之化合物中，可例示： $\text{TiO}_2$ 、 $\text{ZnO}_2$ 、 $\text{CeO}_2$ 。

**【0108】** 作為光穩定劑，通常使用受阻胺系化合物，稱為HALS。HALS具有2,2,6,6-四甲基哌啶骨架，無法吸收紫外線，但藉由多種多樣之功能而抑制光劣化。主要功能據稱有如下三種：自由基之捕捉、過氧化羥

基化合物之分解、加速過氧化羥基之分解之重金屬之捕捉。

**【0109】** 以下，作為HALS，例示代表性化合物。

於癸二酸酯型之化合物中，可例示：雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)癸二酸酯(商品名：Adekastab LA-77、Sanol LS-770)、雙(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)癸二酸酯(商品名：Sanol LS-765)。

於丁烷四羧酸酯型之化合物中，可例示：四(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-1,2,3,4-丁烷四羧酸酯(商品名：Adekastab LA-57)、四(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)-1,2,3,4-丁烷四羧酸酯(商品名：Adekastab LA-52)、1,2,3,4-丁烷四羧酸與2,2,6,6-四甲基-4-哌啶醇及十三烷基醇之縮合物(商品名：Adekastab LA-67)、1,2,3,4-丁烷四羧酸與1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶醇及十三烷基醇之縮合物(商品名：Adekastab LA-62)。

於琥珀酸聚酯型之化合物中，可例示琥珀酸與1-(2-羥基乙基)-4-羥基-2,2,6,6-四甲基哌啶之縮聚物。於三吡啶型之化合物中，可例示：N,N'-雙(3-胺基丙基)乙二胺-2,4-雙{N-丁基-N-(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)胺基}-6-氯-1,3,5-三吡啶縮合物(商品名：Chimasorb199)、聚{6-(1,1,3,3-四甲基丁基)胺基-1,3,5-三吡啶-2,4-二基}{(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)亞胺基}六亞甲基{(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)亞胺基}(商品名：Chimasorb944)、聚(6-嗎啶基-對稱三吡啶-2,4-二基){(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)亞胺基}六亞甲基{(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)亞胺基}(商品名：Chimasorb3346)。

**【0110】** I-1-4-2-2.其他聚合物

於本發明之聚丙烯系樹脂組合物中，可適當添加能夠添加至聚丙烯系樹脂中之彈性體、聚乙烯系樹脂等改質劑。

上述之中，作為彈性體，可例舉：乙烯- $\alpha$ -烯烴共聚物、丙烯與碳數4

~12之 $\alpha$ -烯烴之二元無規共聚物樹脂、丙烯與乙烯及碳數4~12之 $\alpha$ -烯烴之三元無規共聚物樹脂。

【0111】 進而亦可添加苯乙烯系彈性體，作為苯乙烯系彈性體，亦可自市售者中適當選擇而使用，例如，作為苯乙烯-丁二烯嵌段共聚物之氫化物，由Claytone Polymer Japan股份有限公司以「CLAYTONE G」之商品名銷售，又，由Asahi Chemicals股份有限公司以「Tuftec」之商品名銷售，作為苯乙烯-異戊二烯嵌段共聚物之氫化物，由可樂麗股份有限公司以「Septon」之商品名銷售，作為苯乙烯-乙稀化聚異戊二烯嵌段共聚物之氫化物，由可樂麗股份有限公司以「HYBRAR」之商品名銷售，作為苯乙烯-丁二烯無規共聚物之氫化物，由JSR股份有限公司以「Dynaron」之商品名銷售，可自該等商品群中適當選擇而使用。

【0112】 又，作為聚乙烯系樹脂，可例舉低密度聚乙烯或直鏈狀低密度聚乙烯等乙烯/ $\alpha$ -烯烴共聚物，其密度較佳為 $0.860 \text{ g/cm}^3 \sim 0.910 \text{ g/cm}^3$ 之範圍，更佳為 $0.870 \text{ g/cm}^3 \sim 0.905 \text{ g/cm}^3$ ，進而較佳為 $0.875 \text{ g/cm}^3 \sim 0.895 \text{ g/cm}^3$ 。若超出上述範圍，則有透明性降低之虞。

再者，密度係依據JIS K7112，於 $23^\circ\text{C}$ 下測定之值。

作為乙烯/ $\alpha$ -烯烴共聚物中所使用之 $\alpha$ -烯烴，較佳為碳數3~18之 $\alpha$ -烯烴。具體而言，可例舉：丙烯、1-丁烯、1-戊烯、1-己烯、1-辛烯、1-庚烯、4-甲基-1-戊烯、4-甲基-1-己烯、4,4-二甲基1-戊烯等。又，作為 $\alpha$ -烯烴，亦可為1種或2種以上之組合。

作為該乙烯/ $\alpha$ -烯烴共聚物，可例示乙烯系彈性體、乙烯-丙烯系橡膠等。尤其適宜為使用透明性降低較少之茂金屬系觸媒製造之稱為茂金屬系聚乙烯之乙烯/ $\alpha$ -烯烴共聚物。



【0113】相對於上述(X1)、(X2)、(Y)之合計100質量份，調配聚乙烯系樹脂等之情形時之量較佳為5質量份～35質量份，更佳為6質量份～30質量份，進而較佳為7質量份～25質量份。

【0114】本發明之聚丙烯系樹脂組合物調配上述(X1)、(X2)、(Y)之合計100質量份、或視需要之不損及本發明之效果之其他成分。作為該等成分之混合方法，可例舉利用亨舍爾攪拌機、V型攪拌器、帶型攪拌器、滾筒攪拌器等混合之方法；及視需要利用單軸擠出機、多軸擠出機、捏合機、班布里攪拌機等混練機進行熔融混練之方法之兩種作為示例。於任一種方法中，只要無損本發明之效果，則於混合方法方面均並無特別限定。

#### 【0115】 I-1-4-3.聚丙烯系樹脂組合物之用途

本發明之聚丙烯系樹脂組合物可用於藉由加壓成形、膜成形、真空成形、擠出成形、擠出層壓成形、發泡成形、中空成形、射出成形等方法，適當地成形為所需之形狀而製造各種成形品。

【0116】其中，本發明之聚丙烯系樹脂組合物可適宜地用作擠出層壓用。

本發明之聚丙烯系樹脂組合物可適宜地用於在基材之表面進行熔融擠出層壓加工(擠出層壓)，而製造層壓積層體。

擠出層壓加工為如下成形加工法：於預先製造之基材之表面上，藉由將自T型鑄模擠出之熔融樹脂膜連續地被覆、壓接於基材上之方法，同時地進行被覆與接著。通常，於基材之單側表面進行層壓加工，但視需要亦可於兩側進行層壓。

#### 【0117】 I-2.聚丙烯系樹脂組合物之製造方法

本發明之聚丙烯系樹脂組合物之製造方法之特徵在於具有如下步驟：獲得具有上述特性(X1-1)~(X1-6)之聚丙烯樹脂(X1)之步驟；

獲得具有上述特性(X2-1)~(X2-6)之聚丙烯樹脂(X2)之步驟；及

將上述聚丙烯樹脂(X1)與上述聚丙烯樹脂(X2)混合或熔融混練之步驟。

關於本發明之聚丙烯系樹脂組合物之製造方法，作為較佳之態樣，進而包括獲得具有上述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)之步驟，

上述混合或熔融混練之步驟亦可為將上述聚丙烯樹脂(X1)、上述聚丙烯樹脂(X2)、及上述聚丙烯系樹脂(Y)混合或熔融混練之步驟。

關於上述混合或熔融混練之步驟，作為更佳之態樣，亦可為將上述聚丙烯樹脂(X1)2質量%~30質量%、上述聚丙烯樹脂(X2)5質量%~98質量%、及上述聚丙烯系樹脂(Y)0質量%~80質量%混合或熔融混練(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)之步驟。作為該情形時之聚丙烯樹脂(X1)與聚丙烯樹脂(X2)，亦可與上述「聚丙烯系樹脂組合物之較佳之第1-1實施方式」之聚丙烯樹脂(X1)及聚丙烯樹脂(X2)同樣。

關於上述混合或熔融混練之步驟，作為進而較佳之態樣，亦可為將上述聚丙烯樹脂(X1)5質量%~30質量%、上述聚丙烯樹脂(X2)5質量%~50質量%、及上述聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%混合或熔融混練(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)之步驟。作為該情形時之聚丙烯樹脂(X1)與聚丙烯樹脂(X2)，亦可與上述「聚丙烯系樹脂組合物之較佳之第1-2實施方式」之聚丙烯樹脂(X1)及聚丙烯樹脂(X2)同樣。

【0118】獲得聚丙烯樹脂(X1)之方法並無特別限定，可藉由上述「聚丙烯樹脂(X1)之製造方法」中所記載之方法而製造。

獲得聚丙烯樹脂(X2)之方法並無特別限定，可藉由上述「聚丙烯樹脂(X2)之製造方法」中所記載之方法而製造。

獲得聚丙烯系樹脂(Y)之方法並無特別限定，可藉由上述「聚丙烯樹脂(Y)之製造方法」中所記載之方法而製造。

將聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及視需要進而聚丙烯系樹脂(Y)混合之方法並無特別限定，可例舉利用亨舍爾攪拌機、V型攪拌器、帶型攪拌器、滾筒攪拌器等混合之方法。

將聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及視需要進而聚丙烯系樹脂(Y)熔融混練之方法並無特別限定，可例舉利用單軸擠出機、多軸擠出機、捏合機、班布里攪拌機等混練機進行熔融混練之方法。

聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之比率可例舉上述「聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、聚丙烯系樹脂(Y)之比率」中所記載之比率。

作為以上述方式製造之聚丙烯系樹脂組合物之用途，亦可與上述「聚丙烯系樹脂組合物之用途」同樣。

### 【0119】 I-3.積層體

本發明之積層體之特徵在於：其係包含基材層與聚丙烯系樹脂組合物層者，且上述聚丙烯系樹脂組合物層包含：具有上述特性(X1-1)~(X1-6)之聚丙烯樹脂(X1)、及具有上述特性(X2-1)~(X2-6)之聚丙烯樹脂(X2)。

於本發明之積層體中，關於上述聚丙烯系樹脂組合物層，作為較佳

之態樣，亦可進而包含具有上述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)。

關於上述聚丙烯系樹脂組合物層，作為更佳之態樣，亦可包含上述聚丙烯樹脂(X1)2質量%~30質量%、上述聚丙烯樹脂(X2)5質量%~98質量%、及上述聚丙烯系樹脂(Y)0質量%~80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)。作為該情形時之聚丙烯樹脂(X1)與聚丙烯樹脂(X2)，亦可與上述「聚丙烯系樹脂組合物之較佳之第1-1實施方式」之聚丙烯樹脂(X1)及聚丙烯樹脂(X2)同樣。

關於上述聚丙烯系樹脂組合物層，作為進而較佳之態樣，亦可包含上述聚丙烯樹脂(X1)5質量%~30質量%、上述聚丙烯樹脂(X2)5質量%~50質量%、及上述聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)。作為該情形時之聚丙烯樹脂(X1)與聚丙烯樹脂(X2)，亦可與上述「聚丙烯系樹脂組合物之較佳之第1-2實施方式」之聚丙烯樹脂(X1)及聚丙烯樹脂(X2)同樣。

**【0120】** 聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之比率可例舉上述「聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、聚丙烯系樹脂(Y)之比率」中所記載之比率。

**【0121】** 用作基材層之基材亦可例舉：聚對苯二甲酸乙二酯、聚對苯二甲酸丁二酯等聚酯樹脂、乙烯-乙酸乙烯酯共聚物皂化物、聚氯乙烯、聚偏二氯乙烯、聚乙烯、聚丙烯、聚4-甲基-1-戊烯、聚碳酸酯樹脂、聚醯胺6、聚醯胺66、聚醯胺6·66、聚醯胺12等聚醯胺樹脂等熱塑性樹脂之膜或片材等、紙、鋁或鐵等金屬箔。

又，熱塑性樹脂膜或片材可實施單軸或者雙軸延伸，尤佳為雙軸延伸聚丙烯膜。又，亦較佳為將其與紙積層而成者。

基材層之厚度通常為5  $\mu\text{m}$ ~100  $\mu\text{m}$ 左右。

作為基材層與聚丙烯系樹脂組合物層之積層方法，可例舉：擠出層壓法、共擠膜法、乾式層壓法、濕式層壓法、熱熔層壓法、熱層壓法等。

**【0122】** 基材形態並不限定於膜或片材，亦可為如織布、不織布之形狀。又，基材可為單層構造，亦可為複層構造。作為複層構造之基材之製作方法，並無特別限定，可例舉：共擠膜法、乾式層壓法、濕式層壓法、熱熔層壓法、擠出層壓法、熱層壓法等。

又，亦可對該等基材預先實施增黏塗層加工、金屬蒸鍍加工、電暈放電處理加工、印刷加工等各種膜加工處理。

**【0123】** 本發明之積層體可適宜地用於各種食品或飲料、醫藥、醫療品、化妝品、衣料、文具、建材、電池包裝、紙製品包裝及其他產業材料或工業材料等之包裝用途。

#### **【0124】** I-4.積層體之製造方法

本發明之積層體之製造方法之特徵在於：其係包含基材層與聚丙烯系樹脂組合物層之積層體之製造方法，且具有如下步驟：

藉由在基材層之至少單面，將具有上述特性(X1-1)~(X1-6)之聚丙烯樹脂(X1)、及具有上述特性(X2-1)~(X2-6)之聚丙烯樹脂(X2)之混合物或熔融混練物擠出層壓，而形成上述聚丙烯系樹脂組合物層。

關於形成上述聚丙烯系樹脂組合物層之步驟，作為較佳之態樣，亦可為藉由在上述基材層之至少單面，將上述聚丙烯樹脂(X1)、上述聚丙烯樹脂(X2)、及進而具有上述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)之混合

物或熔融混練物擠出層壓，而形成上述聚丙烯系樹脂組合物層之步驟。

關於形成上述聚丙烯系樹脂組合物層之步驟，作為更佳之態樣，亦可為藉由將上述聚丙烯樹脂(X1)2質量%~30質量%、上述聚丙烯樹脂(X2)5質量%~98質量%、及上述聚丙烯系樹脂(Y)0質量%~80質量%之混合物或熔融混練物(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)擠出層壓，而形成上述聚丙烯系樹脂組合物層之步驟。作為該情形時之聚丙烯樹脂(X1)與聚丙烯樹脂(X2)，亦可與上述「聚丙烯系樹脂組合物之較佳之第1-1實施方式」之聚丙烯樹脂(X1)及聚丙烯樹脂(X2)同樣。

關於形成上述聚丙烯系樹脂組合物層之步驟，作為進而較佳之態樣，亦可為藉由將上述聚丙烯樹脂(X1)5質量%~30質量%、上述聚丙烯樹脂(X2)5質量%~50質量%、及上述聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%之混合物或熔融混練物(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)擠出層壓，而形成上述聚丙烯系樹脂組合物層之步驟。作為該情形時之聚丙烯樹脂(X1)與聚丙烯樹脂(X2)，亦可與上述「聚丙烯系樹脂組合物之較佳之第1-2實施方式」之聚丙烯樹脂(X1)及聚丙烯樹脂(X2)同樣。

**【0125】** 基材層可例示上述「I-3.積層體」中所記載之基材層。

聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之混合方法及熔融混練方法可例示上述「I-2.聚丙烯系樹脂組合物之製造方法」中所記載之方法。

聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之比率可例舉上述「聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、聚丙烯系樹脂(Y)之比率」

中所記載之比率。

【0126】於在基材層上，將包含聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之本發明之聚丙烯系樹脂組合物擠出層壓時，樹脂組合物之熔融擠出溫度通常為180℃～320℃，較佳為200℃～310℃。若超過320℃，則成形性有可能降低。

擠出層壓成形速度與生產性直接相關，故較佳為以200 m/min以上進行成形，更佳為以210 m/min以上進行成形。

又，為了向本發明之聚丙烯系樹脂組合物之熔融膜表面導入極性基，可實施臭氧處理。臭氧處理量較佳為相對於熔融膜之表面積以0.01 g/m<sup>2</sup>～1 g/m<sup>2</sup>進行。

【0127】擠出層壓通常對基材層之單側表面進行，視需要可於兩側擠出層壓。

所形成之聚丙烯系樹脂組合物層之厚度通常為1 μm～250 μm，較佳為3 μm～200 μm，尤佳為5 μm～150 μm。

可對藉由擠出層壓加工所獲得之積層體進而實施金屬蒸鍍加工、電暈放電處理加工、印刷加工等各種膜加工處理。

## 【0128】 II.第2實施方式

### II-1.聚丙烯系樹脂組合物

本發明之聚丙烯系樹脂組合物之特徵在於：其包含具有下述特性(X-1)～(X-6)之聚丙烯樹脂(X)20質量%～80質量%、及

具有下述特性(Y-1)～(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)20質量%～80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)。

(X-1)MFR(230℃、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為70 g/10 min以

下。

(X-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量( $M_w$ )與數量平均分子量( $M_n$ )之比( $M_w/M_n$ )為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量( $M_z$ )與重量平均分子量( $M_w$ )之比( $M_z/M_w$ )為2.0以上且5.0以下。

(X-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上且4.0質量%以下。

(X-4)於170°C下測定之熔融張力( $MT_{170^\circ C}$ )(單位：g)滿足下述(式1)之要件。

$$\log(MT_{170^\circ C}) \geq -1.1 \times \log(MFR) + 2.0 \quad (\text{式1})$$

(X-5)利用GPC測定所得之分支指數  $g'(M_{z_{abs}})$  為0.70以上且0.95以下。

(X-6)利用 $^{13}C$ -NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上。

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下。

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力( $MT_{170^\circ C}$ )(單位：g)滿足下述(式A)之要件。

$$\log(MT_{170^\circ C}) < -1.1 \times \log(MFR) + 2.0 \quad (\text{式A})$$

**【0129】** 本發明之第2實施方式之聚丙烯系樹脂組合物之例如290°C以上之高溫擠出成形下之縮幅較小，又，成形速度例如為150 m/min以上之高速下之擠出層壓加工性優異。並且，使用該聚丙烯系樹脂組合物所獲得之積層體之透明性優異。

**【0130】** II-1-1. 聚丙烯樹脂(X)



聚丙烯樹脂(X)具有(X-1)~(X-6)之各特性。

**【0131】** II-1-1-1.特性(X-1)：MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為70 g/10 min以下。

MFR係表示熔融流動性之指標，若聚合物之分子量增大，則該值減小。另一方面，若分子量減小，則該值增大。

從熔融流動性變良好，對擠出成形容易抑制擠出機之負載之方面出發，MFR大於10 g/10 min，較佳為15 g/10 min以上，更佳為16 g/10 min以上。MFR為20 g/10 min以上，亦可大於30 g/10 min。

另一方面，從熔融張力變良好，擠出層壓成形性等成形性變良好之方面出發，MFR為70 g/10 min以下，較佳為60 g/10 min以下，更佳為50 g/10 min以下。

於本發明中，熔體流動速率(MFR)係依據JIS K7210之「塑膠-熱塑性塑膠之熔體質量流率(MFR)及熔體體積流動速率(MVR)之試驗方法」，於試驗條件：230°C、荷重2.16 kgf下測定之值。

熔體流動速率(MFR)可藉由變更聚合之溫度或壓力、或作為通常之方法之聚合時添加氫等鏈轉移劑之方法而容易地進行調整。

**【0132】** II-1-1-2.特性(X-2)：藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下。

**【0133】** Mw/Mn係表示分子量分佈之寬度之指標，該值越大意指分子量分佈越寬。若Mw/Mn過小，則有低分子量成分減少，熔融流動性變差之虞。因此，Mw/Mn為2.0以上，較佳為2.1以上，更佳為2.2以上。另一方面，若Mw/Mn過大，則有高分子量成分之量相對增加，熔融流動性惡化之虞。因此，Mw/Mn為5.0以下，較佳為4.6以下，更佳為4.2以下。

相同地， $Mz/Mw$ 係表示分子量分佈之寬度之指標，與 $Mw/Mn$ 相比，係表示高分子量側之寬度之指標。該等值越大，意指分子量分佈越向高分子量側變寬。若 $Mz/Mw$ 過小，則有高分子量成分減少，熔融張力減少之虞。因此， $Mz/Mw$ 為2.0以上，較佳為2.1以上，更佳為2.2以上。另一方面，若 $Mz/Mw$ 過大，則有高分子量成分之量相對增加，熔融流動性惡化之虞。因此， $Mz/Mw$ 為5.0以下，較佳為4.5以下，更佳為4.3以下。 $Mz/Mw$ 亦可為4.0以下。

聚丙烯樹脂(X)之藉由GPC測定之平均分子量及分子量分佈( $Mz$ 、 $Mw$ 、 $Mn$ 、 $Mw/Mn$ 、 $Mz/Mw$ )可藉由變更丙烯聚合之溫度或壓力條件、或作為最通常之方法之丙烯聚合時添加氫等鏈轉移劑之方法而容易地進行調整。進而可藉由變更所使用之茂金屬錯合物之種類，於使用2種以上錯合物之情形時變更其量比而加以控制。

關於本發明之聚丙烯樹脂(X)，從與熔融流動性及熔融張力之平衡性之方面出發， $Mw$ 較佳為16.0萬以上且28.0萬以下。關於 $Mw$ ，從熔融張力之方面出發，更佳為17.0萬以上，進而較佳為18.0萬以上，從熔融流動性之方面出發，更佳為26.0萬以下，進而較佳為24.0萬以下。

**【0134】** II-1-1-3.特性(X-3)：於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{IM}$ )為0.5質量%以上且4.0質量%以下。

**【0135】** 如上所述，若高分子量成分之量減少，則有熔融張力減小之虞。因此， $W_{IM}$ 為0.5質量%以上，較佳為1.0質量%以上，更佳為1.5質量%以上。

另一方面，若 $W_{IM}$ 增大，則有熔融流動性降低之虞。進而，有時會

產生魚眼增多，損及成形品外觀之問題。因此， $W_{IM}$ 未達4.0質量%，較佳為3.5質量%以下，更佳為3.2質量%以下。 $W_{IM}$ 亦可為3.0質量%以下。

於本發明中， $W_{IM}$ 係定義為於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線(將總量標準化為1)中，從1減去分子量(M)至多為100萬( $\log(M)=6.0$ )之積分值，將所得之值乘以100而得之值。

關於 $W_{IM}$ ，例如於使用包含複數種茂金屬錯合物之觸媒之方法中，可選擇可製造高分子量之聚合物者作為所使用之一種茂金屬錯合物，其後藉由控制相對於製造低分子量側之另一種茂金屬錯合物之量比、聚合時添加之氬量或聚合溫度而容易地進行調整。

**【0136】** 上述中所定義之 $M_z$ 、 $M_w$ 、 $M_n$ 、 $M_w/M_n$ 、 $M_z/M_w$ 、及 $W_{IM}$ 之值均係藉由凝膠滲透層析法(GPC)所獲得者，其測定法、測定設備之詳細情況如下所述。

裝置：Waters公司製造之GPC(ALC/GPC、150C)

檢測器：FOXBORO公司製造之MIRAN、1A、IR檢測器(測定波長：3.42  $\mu\text{m}$ )

管柱：昭和電工公司製造之AD806M/S(3根)

流動相溶劑：鄰二氯苯(ODCB)

測定溫度：140°C

流速：1.0 mL/min

注入量：0.2 mL

試樣之製備係使用試樣與ODCB(包含0.5 mg/mL之二丁基羥基甲苯(BHT))，製備1 mg/mL之溶液，並於140°C下耗時約1小時使之溶解而進行。

又，自藉由GPC測定所獲得之保持容量向分子量的換算係使用利用預先製作之標準聚苯乙烯之校準曲線而進行。所使用之標準聚苯乙烯均為東曹公司製造之以下品種。

品 種 : F380、F288、F128、F80、F40、F20、F10、F4、F1、A5000、A2500、A1000

注入以分別成為0.5 mg/mL之方式溶解於ODCB(包含0.5 mg/mL之BHT)中而成之溶液0.2 mL，製作校準曲線。校準曲線使用藉由最小平方方法進行近似所獲得之三次式。

向分子量之換算中所使用之黏度式： $[\eta] = K \times M^\alpha$ 使用以下之數值。

PS： $K = 1.38 \times 10^{-4}$ 、 $\alpha = 0.7$

PP： $K = 1.03 \times 10^{-4}$ 、 $\alpha = 0.78$

【0137】 II-1-1-4.特性(X-4)：於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件。

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)$$

【0138】 此處，MT170°C表示使用東洋精機製作所股份有限公司製造之Capillograph 1B，於毛細管：直徑2.0 mm、長度40 mm、料缸直徑：9.55 mm、料缸擠出速度：20 mm/min、拉取速度：4.0 m/min、溫度：170°C之條件下進行測定時之熔融張力，單位為克。再者，下述實施例中所示之MT230°C表示於上述測定條件下，於溫度：230°C之條件下進行測定時之熔融張力。其中，於試樣之MT極高之情形時，於拉取速度4.0 m/min下樹脂有時會斷裂，於此種情形時，降低拉取速度，將可拉取之最高速度下之張力設為MT。又，MFR之測定條件、單位如上所述。

該規定係用於使聚丙烯樹脂(X)具有充分之熔融張力之指標，通常，

MT與MFR具有相關關係，故利用與MFR之關係式記述。

若聚丙烯樹脂(X)滿足上述(式1)，則不僅獲得縮幅之減少效果，且應力於熔融膜上均勻地傳播，故稱為共振現象之膜厚度之不均勻現象或由邊緣部之伸縮所引起之不穩定現象得以抑制。

又，更佳為滿足以下之(式2)，進而較佳為滿足(式3)。

$$\log(\text{MT}170^{\circ}\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.3 \quad (\text{式}2)$$

$$\log(\text{MT}170^{\circ}\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.5 \quad (\text{式}3)$$

【0139】關於MT之上限值，無需特別設置上限值，於如MT超過50 g之情形時，於上述測定法中，拉取速度明顯變慢，變得難以測定。於此種情形時，認為樹脂之延展性亦降低，故較佳為45 g以下，更佳為40 g以下，進而較佳為35 g以下，更進而較佳為30 g以下。

為了滿足上述條件(式1)，例如只要使聚丙烯樹脂(X)之長鏈分支量增大，提高熔融張力即可，藉由控制下述較佳之茂金屬觸媒之選擇或其組合、及其量比、以及預聚合條件，較多地導入長鏈分支而可實現。

【0140】II-1-1-5.特性(X-5)：利用GPC測定所得之分支指數 $g'(\text{Mz}_{\text{abs}})$ 為0.70以上且0.95以下。

【0141】作為聚丙烯樹脂(X)具有分支之直接指標，可例舉分支指數 $g'$ 。 $g'$ 係藉由具有長鏈分支結構之聚合物之固有黏度 $[\eta]_{\text{br}}$ 、與具有相同分子量之線性聚合物之固有黏度 $[\eta]_{\text{lin}}$ 的比、即， $[\eta]_{\text{br}}/[\eta]_{\text{lin}}$ 而賦予，若存在長鏈分支結構，則取小於1之值。即， $g' < 1$ 之聚丙烯意指「長鏈分支聚丙烯」。

定義例如係記載於「Developments in Polymer Characterization-4」(J. V. Dawkins ed. Applied Science Publishers, 1983)中，為業者所公知之

指標。

【0142】  $g'$ 例如可藉由使用如下述所記載之檢測器具備光散射計與黏度計之GPC，以絕對分子量 $M_{abs}$ 之函數之形式獲得。

本發明中所使用之聚丙烯樹脂(X)之藉由光散射求出之絕對分子量 $M_{abs}$ 之Z平均分子量 $M_{z_{abs}}$ 下的 $g'(M_{z_{abs}})$ 較佳為0.72以上，更佳為0.73以上，進而較佳為0.75以上，更佳為0.80以上，且較佳為0.90以下，更佳為0.88以下，進而較佳為0.85以下。

【0143】 又，從於290°C以上之高溫下混練時、或反覆進行混練時之熔融張力之降低程度較小，故不易產生擠出層壓成形性之降低(縮幅增大或產生低速捲取下之共振現象)之方面出發，較佳為具有梳型鏈結構之分支狀聚合物。

具體之 $g'$ 之算出方法如下所述。

使用Waters公司製造之Alliance GPCV2000作為裝備有示差折射計(RI)及黏度檢測器(Viscometer)之GPC裝置。使用多角度雷射光散射檢測器(MALLS)Wyatt Technology公司之DAWN-E作為光散射檢測器。檢測器以MALLS、RI、Viscometer之順序連接。流動相溶劑為1,2,4-三氯苯(以0.5 mg/mL之濃度添加BASF Japan公司製造之抗氧化劑Irganox1076)。

流量為1 mL/min，管柱係將2根東曹公司製造之GMHHR-H(S) HT連結而使用。管柱、試樣注入部及各檢測器之溫度為140°C。試樣濃度設為1 mg/mL，注入量(樣品環容量)為0.2175 mL。

於求出由MALLS獲得之絕對分子量( $M_{abs}$ )、均方根慣性半徑( $R_g$ )及由Viscometer獲得之極限黏度( $[\eta]$ )時，利用MALLS附帶之資料處理軟體

ASTRA(版本4.73.04)，參考如下文獻而進行計算。

參考文獻：

1. 「Developments in Polymer Characterization-4」(J. V. Dawkins ed. Applied Science Publishers, 1983. Chapter1.)

2. Polymer, 45, 6495-6505 (2004)

3. Macromolecules, 33, 2424-2436 (2000)

4. Macromolecules, 33, 6945-6952 (2000)

**【0144】 [分支指數( $g'$ )之算出]**

分支指數( $g'$ )係作為利用上述Viscometer對樣品進行測定所獲得之極限黏度( $[\eta]_{br}$ )、與另外測定線性聚合物所獲得之極限黏度( $[\eta]_{lin}$ )之比( $[\eta]_{br}/[\eta]_{lin}$ )而算出。

若向聚合物分子中導入長鏈分支結構，則與相同分子量之線性聚合物分子相比，慣性半徑減小。若慣性半徑減小，則極限黏度減小，故隨著導入長鏈分支結構，分支狀聚合物之極限黏度( $[\eta]_{br}$ )相對於相同分子量之線性聚合物之極限黏度( $[\eta]_{lin}$ )的比( $[\eta]_{br}/[\eta]_{lin}$ )逐漸減小。

因此，於分支指數( $g' = [\eta]_{br}/[\eta]_{lin}$ )成為小於1之值之情形時，意指具有長鏈分支結構。

此處，作為用於獲得 $[\eta]_{lin}$ 之線性聚合物，使用市售之均聚丙烯(Japan Polypropylene公司製造之NOVATEC PP(註冊商標)等級名：FY6)。線性聚合物之 $[\eta]_{lin}$ 之對數與分子量之對數存在線性關係，且以Mark-Houwink-Sakurada式而眾所周知， $[\eta]_{lin}$ 可適當外插至低分子量側或高分子量側而獲得數值。

**【0145】** 於將分支指數 $g'$ 設為0.70以上且0.95以下時，係藉由較多





- 共振頻率：100 MHz以上
- 累計次數：10,000次以上
- 觀測域：-20 ppm至179 ppm
- 資料點數：32768

【0149】 丙烯單元三鍵之mm分率係藉由將利用 $^{13}\text{C}$ -NMR測定所測定之 $^{13}\text{C}$ 訊號之積分強度代入至下式而求出。

$$\text{mm}(\%) = \text{Imm} \times 100 / (\text{Imm} + 3 \times \text{Imrrm})$$

此處，為 $\text{Imm} = I_{23.6 \sim 21.1}$ 、 $\text{Imrrm} = I_{19.8 \sim 19.7}$ 所表示之量。

用於求出丙烯單元三鍵之mm分率之 $^{13}\text{C}$ -NMR測定法可藉由與上述測定相同之方法而進行。

光譜之歸屬可參考Polymer Journal、16卷、717頁(1984)、朝倉書店；或Macromolecules、8卷、687頁(1975年)；或Polymer、30卷 1350頁(1989年)而進行。

【0150】 於將mm分率設為95%以上時，利用達成高結晶性之聚合物之聚合觸媒而可實現，且藉由使用下述較佳之茂金屬觸媒進行聚合而可實現。

#### 【0151】 II-1-1-7.聚丙烯樹脂(X)之製造方法

聚丙烯樹脂(X)只要滿足上述(X-1)~(X-6)之特性，則並未特別限定製造方法，如上所述，用於滿足較高之立體規則性、相對較寬之分子量分佈、分支指數 $g'(\text{Mz}_{\text{abs}})$ 之範圍、較高之熔融張力等條件之較佳之製造方法係使用利用茂金屬觸媒之組合的大分子單體共聚法之方法。作為此種方法之例，例如可例舉日本專利特開2009-57542號公報中所揭示之方法。該方法係使用將具有大分子單體生成能力之特定之結構之觸媒成分、及具有

大分子單體共聚能力之特定之結構之觸媒成分組合而成之觸媒，製造具有長鏈分支結構之聚丙烯之方法，根據該方法，藉由塊狀聚合或氣相聚合等工業上有效之方法，尤其藉由實用性之壓力溫度條件下之單段聚合，並且使用作為分子量調整劑之氫，能夠製造具有目標物性之具有長鏈分支結構之聚丙烯樹脂。

**【0152】** 本發明之聚丙烯樹脂(X)可為使丙烯單體進行均聚合而獲得之丙烯均聚物，亦可為使丙烯單體與除丙烯以外之碳數2~20之 $\alpha$ -烯烴共聚單體例如乙烯及/或1-丁烯進行共聚所獲得之丙烯- $\alpha$ -烯烴共聚物。

聚丙烯樹脂(X)之形狀並無特別限定，可為粉末狀、或作為其造粒物之粒子狀。

**【0153】** 於本發明之聚丙烯樹脂(X)中，可視需要利用亨舍爾攪拌機、V型攪拌器、帶型攪拌器、滾筒攪拌器等將下述其他附加成分混合而獲得，並視需要利用單軸擠出機、多軸擠出機、捏合機、班布里攪拌機等混練機進行混練而製成造粒物。

**【0154】** II-1-2.聚丙烯系樹脂(Y)

聚丙烯系樹脂(Y)具有特性(Y-1)~(Y-2)。

**【0155】** II-1-2-1.特性(Y-1)：MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下。

從使聚丙烯系樹脂組合物之流動性變得良好，抑制擠出層壓成形時之共振現象之方面出發，聚丙烯系樹脂(Y)之MFR為10 g/10 min以上，較佳為20 g/10 min以上。另一方面，從熔融張力變良好，製品之製造效率變良好之方面出發，聚丙烯系樹脂(Y)之MFR為50 g/10 min以下，較佳為45 g/10 min以下。

【0156】 聚丙烯系樹脂(Y)之MFR藉由變更丙烯聚合之溫度或壓力條件、或聚合時添加氫等鏈轉移劑之方法而容易地進行調整。

【0157】 又，聚丙烯系樹脂(Y)亦可為於使聚丙烯系樹脂聚合後，藉由有機過氧化物減成進行MFR之調整而成者。

此時所使用之有機過氧化物可例舉：過氧化苯甲醯、二第三丁基過氧化物、二異丙苯基過氧化物、第三丁基異丙苯基過氧化物、1,1-雙-(第三丁基過氧基)-3,3,5-三甲基環己烷、1,1-雙(第三丁基過氧基)環己烷、2,2-雙(第三丁基過氧基)辛烷、4,4-雙(第三丁基過氧基)戊酸正丁酯、2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧基)己烷、2,5-二甲基-2,5-二(苯甲醯基過氧基)己烷、2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧基)-3-己炔、1,3-雙(第三丁基過氧基異丙基)苯、 $\alpha,\alpha'$ -雙(第三丁基過氧基異丙基)苯、第三丁基過氧化氫、氫過氧化異丙苯、過氧化月桂醯、二過氧化鄰苯二甲酸二第三丁酯、第三丁基過氧化順丁烯二酸、過氧化異丙基碳酸第三丁酯、過碳酸異丙酯等。

該等並不限定於1種，可組合2種以上而使用。該等之中，尤佳為2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧基)己烷、2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧基)-3-己炔、1,3-雙(第三丁基過氧基異丙基)苯、 $\alpha,\alpha'$ -雙(第三丁基過氧基異丙基)苯。

【0158】 用於調整MFR之減成方法較佳為樹脂或樹脂組合物每100質量份使用有機過氧化物0.005質量份~0.1質量份，並於該樹脂之熔融溫度以上之溫度例如180℃~300℃下將兩者加熱混練即可，作為其方法，亦可採用任何方法，尤其適宜為於擠出機中進行。又，於以有機過氧化物均勻地分散於聚丙烯系樹脂中之方式將兩者加熱混練前，亦可預先使用亨

舍爾攪拌機、帶型攪拌器等混合機將兩者充分混合。進而，為了提高有機過氧化物之分散性，亦可使用使有機過氧化物混合至適當之介質中而成者。再者，藉由利用有機過氧化物減成調整MFR，其後滿足本發明中之聚丙烯系樹脂(Y)之特性物性之要件，可用於本發明中。

【0159】 II-1-2-2.特性(Y-2)：於170°C 下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件。

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式A})$$

【0160】 此處，MT170°C 係藉由與聚丙烯樹脂(X)中所使用之測定方法同樣之方法進行測定時之熔融張力，測定條件、單位如上所述。

該規定係用以表示聚丙烯系樹脂(Y)之熔融張力之指標，通常，MT與MFR具有相關關係，故利用與MFR之關係式記述。

若聚丙烯系樹脂(Y)滿足上述(式A)，則於和聚丙烯樹脂(X)之摻合時賦予流動性，抑制成形時之膜破裂等成形不良現象。

#### 【0161】 II-1-2-3.聚丙烯系樹脂(Y)之製造方法

聚丙烯系樹脂(Y)並不限於其製造方法，可為利用齊格勒-納塔系觸媒製造者，亦可為利用茂金屬系觸媒製造者。

齊格勒-納塔系觸媒例如為如「聚丙烯手冊」Edward P Moore Jr.編著、保田哲男、佐久間暢翻譯監修、工業調查會(1998)之2.3.1節(20~57頁)中所概述之觸媒系，例如意指包含三氯化鈦與鹵化有機鋁之三氯化鈦系觸媒；或包含含有氯化鎂、鹵化鈦、供電子性化合物之固體觸媒成分、有機鋁、及有機矽化合物之鎂擔載系觸媒；或使固體觸媒成分與有機鋁及有機矽化合物接觸而形成有機矽處理固體觸媒成分，將該有機矽處理固體觸媒成分與有機鋁化合物成分組合而成之觸媒。

**【0162】** 又，作為茂金屬觸媒，係包含：(i)包含具有環戊二烯基骨架之配位基之週期表第4族之過渡金屬化合物(所謂茂金屬化合物)、(ii)可與茂金屬化合物反應而活化為穩定之離子狀態之輔觸媒、及視需要之(iii)有機鋁化合物之觸媒，公知之觸媒均可使用。茂金屬化合物較佳為能夠進行丙烯之立體規則性聚合之交聯型茂金屬化合物，更佳為能夠進行丙烯之等規性聚合之交聯型茂金屬化合物。

**【0163】** 作為上述(i)茂金屬化合物，例如可較佳地使用日本專利特開昭60-35007號、日本專利特開昭61-130314號、日本專利特開昭63-295607號、日本專利特開平1-275609號、日本專利特開平2-41303號、日本專利特開平2-131488號、日本專利特開平2-76887號、日本專利特開平3-163088號、日本專利特開平4-300887號、日本專利特開平4-211694號、日本專利特開平5-43616號、日本專利特開平5-209013號、日本專利特開平6-239914號、日本專利特表平7-504934號、日本專利特開平8-85708號之各公報中所揭示者等。

**【0164】** 進而，具體而言，可例舉：

亞甲基雙(2-甲基茚基)二氯化鋯、仲乙基雙(2-甲基茚基)二氯化鋯、

仲乙基-1,2-(4-苯基茚基)(2-甲基-4-苯基-4H-萹基)二氯化鋯、

亞異丙基(環戊二烯基)(萹基)二氯化鋯、

亞異丙基(4-甲基環戊二烯基)(3-第三丁基茚基)二氯化鋯、

二甲基亞矽烷基(2-甲基-4-第三丁基-環戊二烯基)(3'-第三丁基-5'-甲基-環戊二烯基)二氯化鋯、

二甲基亞矽烷基雙(茚基)二氯化鋯、

二甲基亞矽烷基雙(4,5,6,7-四氫茚基)二氯化鋯、

二甲基亞矽烷基雙[1-(2-甲基-4-苯基茛基)]二氯化鋯、  
 二甲基亞矽烷基雙[1-(2-乙基-4-苯基茛基)]二氯化鋯、  
 二甲基亞矽烷基雙[4-(1-苯基-3-甲基茛基)]二氯化鋯、  
 二甲基亞矽烷基(莖基)第三丁基醯胺基二氯化鋯、  
 甲基苯基亞矽烷基雙[1-(2-甲基-4-(1-萘基)-茛基)]二氯化鋯、  
 二甲基亞矽烷基雙[1-(2-甲基-4,5-苯并茛基)]二氯化鋯、  
 二甲基亞矽烷基雙[1-(2-甲基-4-苯基-4H-萘基)]二氯化鋯、  
 二甲基亞矽烷基雙[1-(2-乙基-4-(4-氯苯基)-4H-萘基)]二氯化鋯、  
 二甲基亞矽烷基雙[1-(2-乙基-4-萘基-4H-萘基)]二氯化鋯、  
 二苯基亞矽烷基雙[1-(2-甲基-4-(4-氯苯基)-4H-萘基)]二氯化鋯、  
 二甲基亞矽烷基雙[1-(2-乙基-4-(3-氟聯苯基)-4H-萘基)]二氯化鋯、  
 二甲基亞甲鍍基雙[1-(2-乙基-4-(4-氯苯基)-4H-萘基)]二氯化鋯、  
 二甲基亞甲鍍基雙[1-(2-乙基-4-苯基茛基)]二氯化鋯  
 等鋯化合物。

**【0165】** 於上述中亦可同樣地使用將鋯置換為鈦、或鉛之化合物。又，亦較佳為使用鋯化合物與鉛化合物等之混合物。又，氯可被取代為其他鹵素化合物、甲基、異丁基、苄基等烴基、二甲基醯胺基、二乙基醯胺基等醯胺基、甲氧基、苯氧基等烷氧化物基、氫化物基等。

該等之中，尤佳為利用矽或鍍基使茛基或萘基交聯而成之茂金屬化合物。

又，茂金屬化合物亦可擔載於無機或有機化合物之載體而使用。作為該載體，較佳為無機或有機化合物之多孔質化合物，具體而言，可例舉：離子交換性層狀矽酸鹽、沸石、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、矽鋁、 $\text{MgO}$ 、 $\text{ZrO}_2$ 、

TiO<sub>2</sub>、B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、CaO、ZnO、BaO、ThO<sub>2</sub>等無機化合物；包含多孔質之聚烯烴、苯乙烯-二乙烯苯共聚物、烯烴-丙烯酸共聚物等之有機化合物；或該等之混合物。

**【0166】** 又，作為上述(ii)可與茂金屬化合物反應而活化為穩定之離子狀態之輔觸媒，可較佳地例舉：有機鋁氧化合物(例如鋁氧烷化合物)、離子交換性層狀矽酸鹽、路易斯酸、含硼化合物、離子性化合物、含氟有機化合物等。

**【0167】** 進而，作為上述(iii)有機鋁化合物，可較佳地例舉：三乙基鋁、三異丙基鋁、三異丁基鋁等三烷基鋁、二烷基鋁鹵化物、烷基鋁倍半鹵化物、烷基鋁二鹵化物、烷基鋁氫化物、有機鋁烷氧化物等。

**【0168】** 上述之中，聚丙烯均聚物較佳為利用齊格勒-納塔系觸媒製造者，又，丙烯無規共聚物較佳為使用利用茂金屬系觸媒製造者。

**【0169】** 關於聚丙烯系樹脂(Y)之製造方法，並無特別限制，先前公知之漿料聚合法、塊狀聚合法、氣相聚合法等中之任一種均可製造，又，只要在範圍內，則亦可利用多段聚合法製造聚丙烯及丙烯系無規共聚物。

**【0170】** 本發明之聚丙烯系樹脂(Y)係藉由如下方法而獲得：視需要利用亨舍爾攪拌機、V型攪拌器、帶型攪拌器、滾筒攪拌器等將下述其他附加成分混合而獲得，並視需要利用單軸擠出機、多軸擠出機、捏合機、班布里攪拌機等混練機進行混練。

**【0171】** 聚丙烯系樹脂(Y)可為使丙烯單體進行均聚所獲得之丙烯均聚物，亦可為使丙烯單體與乙烯共聚單體進行共聚所獲得之丙烯-乙烯共聚物。聚丙烯系樹脂(Y)較佳為含有乙烯0質量%~6.0質量%作為共聚單

體。更佳為含有乙烯0質量%~5.0質量%，進而較佳為含有乙烯0質量%~4.0質量%。若乙烯之含量超過6.0質量%，則有結晶性降低，耐熱性降低之虞。

聚丙烯系樹脂(Y)之形狀並無特別限定，可為粉末狀、或作為其造粒物之粒子狀。

#### 【0172】 II-1-3.聚丙烯系樹脂組合物

##### II-1-3-1.聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之比率

以(X)與(Y)之合計100質量%基準計，本發明之聚丙烯系樹脂組合物中之上述聚丙烯樹脂(X)與上述聚丙烯系樹脂(Y)之比率為聚丙烯樹脂(X)20質量%~80質量%、聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%，較佳為聚丙烯樹脂(X)25質量%~75質量%、聚丙烯系樹脂(Y)25質量%~75質量%，更佳為聚丙烯樹脂(X)30質量%~70質量%、聚丙烯系樹脂(Y)30質量%~70質量%，進而較佳為聚丙烯樹脂(X)30質量%~60質量%、聚丙烯系樹脂(Y)40質量%~70質量%。

藉由設為上述範圍，例如290℃以上之高溫擠出成形下之縮幅較小，且延展性較高，故可獲得高速下之擠出層壓加工性優異，並且可獲得透明性優異之成形體之樹脂組合物。

##### 【0173】 II-1-3-2.其他成分

本發明之聚丙烯系樹脂組合物視需要可添加上述聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)以外之下述各種成分而使用。

##### 【0174】 II-1-3-2-1.添加劑

於本發明之聚丙烯系樹脂組合物中，只要不明顯妨礙本發明之效果，則可適當添加能夠添加至聚丙烯系樹脂中之抗氧化劑等添加劑。



具體而言，可添加2,6-二第三丁基-對甲酚(BHT)、四[亞甲基-3-(3,5-二第三丁基-4-羥基苯基)丙酸酯]甲烷(BASF Japan公司製造、商品名「IRGANOX 1010」)或3-(4'-羥基-3,5'-二第三丁基苯基)丙酸正十八烷基酯(BASF Japan公司製造、商品名「IRGANOX 1076」)所代表之酚系穩定劑、雙(2,4-二第三丁基苯基)季戊四醇二亞磷酸酯或亞磷酸三(2,4-二第三丁基苯基)酯等所代表之亞磷酸酯系穩定劑、高級脂肪醯胺或高級脂肪酸酯所代表之潤滑劑、碳原子數8~22之脂肪酸之甘油酯或山梨醇酐酸酯、聚乙二醇酯等防靜電劑、二氧化矽、碳酸鈣、滑石等所代表之抗黏連劑等。

【0175】又，於本發明之聚丙烯系樹脂組合物中，為了賦予耐候性，可添加紫外線吸收劑與光穩定劑。

紫外線吸收劑係於紫外線區域具有吸收帶之化合物，已知有三唑系、二苯甲酮系、水楊酸酯系、氰基丙烯酸酯系、鎳螯合物系、無機微粒子系等。其中最通用地使用者為三唑系。

以下，作為紫外線吸收劑，例示代表性化合物。

於三唑系之化合物中，可例示：2-(2'-羥基-5'-甲基苯基)苯并三唑(商品名：SUMISORB 200、Tinuvin P)、2-(2'-羥基-5'-第三辛基苯基)苯并三唑(商品名：SUMISORB 340、Tinuvin 399)、2-(2'-羥基-3',5'-二第三丁基苯基)苯并三唑(商品名：SUMISORB 320、Tinuvin 320)、2-(2'-羥基-3',5'-二第三戊基苯基)苯并三唑(商品名：SUMISORB 350、Tinuvin 328)、2-(2'-羥基-3'-第三丁基-5'-甲基苯基)-5-氯苯并三唑(商品名：SUMISORB 300、Tinuvin 326)。

於二苯甲酮系之化合物中，可例示：2-羥基-4-甲氧基二苯甲酮(商品

名：SUMISORB 110)、2-羥基-4-正辛氧基二苯甲酮(商品名：SUMISORB 130)。

於水楊酸酯系之化合物中，可例示水楊酸4-第三丁基苯酯(商品名：SEESORB 202)。

於氰基丙烯酸酯系之化合物中，可例示氰基-3,3-二苯基丙烯酸乙酯(商品名：SEESORB 501)。

於鎳螯合物系之化合物中，可例示二丁基二硫代胺基甲酸鎳(商品名：Antigen NBC)。

於無機微粒子系之化合物中，可例示：TiO<sub>2</sub>、ZnO<sub>2</sub>、CeO<sub>2</sub>。

**【0176】** 作為光穩定劑，通常使用受阻胺系化合物，稱為HALS。HALS具有2,2,6,6-四甲基哌啶骨架，無法吸收紫外線，但藉由多種多樣之功能而抑制光劣化。主要功能據稱有如下三種：自由基之捕捉、過氧化羥基化合物之分解、加速過氧化羥基之分解之重金屬之捕捉。

**【0177】** 以下，作為HALS，例示代表性化合物。

於癸二酸酯型之化合物中，可例示：雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)癸二酸酯(商品名：Adekastab LA-77、Sanol LS-770)、雙(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)癸二酸酯(商品名：Sanol LS-765)。

於丁烷四羧酸酯型之化合物中，可例示：四(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-1,2,3,4-丁烷四羧酸酯(商品名：Adekastab LA-57)、四(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)-1,2,3,4-丁烷四羧酸酯(商品名：Adekastab LA-52)、1,2,3,4-丁烷四羧酸與2,2,6,6-四甲基-4-哌啶醇及十三烷基醇之縮合物(商品名：Adekastab LA-67)、1,2,3,4-丁烷四羧酸與1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶醇及十三烷基醇之縮合物(商品名：Adekastab LA-62)。

於琥珀酸聚酯型之化合物中，可例示琥珀酸與1-(2-羥基乙基)-4-羥基-2,2,6,6-四甲基哌啶之縮聚物。於三吡啶型之化合物中，可例示：N,N'-雙(3-胺基丙基)乙二胺-2,4-雙{N-丁基-N-(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)胺基}-6-氯-1,3,5-三吡啶縮合物(商品名：Chimasorb199)、聚{6-(1,1,3,3-四甲基丁基)胺基-1,3,5-三吡啶-2,4-二基}{(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)亞胺基}六亞甲基{(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)亞胺基}(商品名：Chimasorb944)、聚(6-嗎啉基-對稱三吡啶-2,4-二基){(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)亞胺基}六亞甲基{(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)亞胺基}(商品名：Chimasorb3346)。

#### 【0178】 II-1-3-2-2.其他聚合物

於本發明之聚丙烯系樹脂組合物中，可適當添加能夠添加至聚丙烯系樹脂中之彈性體、聚乙烯系樹脂等改質劑。

上述之中，作為彈性體，可例舉：乙烯- $\alpha$ -烯烴共聚物、丙烯與碳數4~12之 $\alpha$ -烯烴之二元無規共聚物樹脂、丙烯與乙烯及碳數4~12之 $\alpha$ -烯烴之三元無規共聚物樹脂。

【0179】 進而亦可添加苯乙烯系彈性體，作為苯乙烯系彈性體，亦可自市售者中適當選擇而使用，例如，作為苯乙烯-丁二烯嵌段共聚物之氫化物，由Claytone Polymer Japan股份有限公司以「CLAYTONE G」之商品名銷售，又，由Asahi Chemicals股份有限公司以「Tuftec」之商品名銷售，作為苯乙烯-異戊二烯嵌段共聚物之氫化物，由可樂麗股份有限公司以「Septon」之商品名銷售，作為苯乙烯-乙炔化聚異戊二烯嵌段共聚物之氫化物，由可樂麗股份有限公司以「HYBRAR」之商品名銷售，作為苯乙烯-丁二烯無規共聚物之氫化物，由JSR股份有限公司以「Dynaron」之商品名銷售，可自該等商品群中適當選擇而使用。

【0180】 又，作為聚乙烯系樹脂，可例舉低密度聚乙烯或直鏈狀低密度聚乙烯等乙烯/ $\alpha$ -烯烴共聚物，其密度較佳為 $0.860 \text{ g/cm}^3 \sim 0.910 \text{ g/cm}^3$ 之範圍，更佳為 $0.870 \text{ g/cm}^3 \sim 0.905 \text{ g/cm}^3$ ，進而較佳為 $0.875 \text{ g/cm}^3 \sim 0.895 \text{ g/cm}^3$ 。若超出上述範圍，則有透明性降低之虞。

再者，密度係依據JIS K7112，於 $23^\circ\text{C}$ 下測定之值。

作為乙烯/ $\alpha$ -烯烴共聚物中所使用之 $\alpha$ -烯烴，較佳為碳數3~18之 $\alpha$ -烯烴。具體而言，可例舉：丙烯、1-丁烯、1-戊烯、1-己烯、1-辛烯、1-庚烯、4-甲基-1-戊烯、4-甲基-1-己烯、4,4-二甲基-1-戊烯等。又，作為 $\alpha$ -烯烴，亦可為1種或2種以上之組合。

作為該乙烯/ $\alpha$ -烯烴共聚物，可例示乙烯系彈性體、乙烯-丙烯系橡膠等。尤其適宜為使用透明性降低較少之茂金屬系觸媒製造之稱為茂金屬系聚乙烯之乙烯/ $\alpha$ -烯烴共聚物。

【0181】 相對於上述(X)、(Y)之合計100質量份，調配聚乙烯系樹脂等之情形時之量較佳為5質量份~35質量份，更佳為6質量份~30質量份，進而較佳為7質量份~25質量份。

【0182】 本發明之聚丙烯系樹脂組合物調配上述(X)、(Y)之合計100質量份、或視需要之不損及本發明之效果之其他成分。作為該等成分之混合方法，可例舉利用亨舍爾攪拌機、V型攪拌器、帶型攪拌器、滾筒攪拌器等混合之方法；及視需要利用單軸擠出機、多軸擠出機、捏合機、班布里攪拌機等混練機進行熔融混練之方法之兩種作為示例。於任一方法中，只要無損本發明之效果，則於混合方法方面均並無特別限定。

### 【0183】 II-1-3-3.聚丙烯系樹脂組合物之用途

本發明之聚丙烯系樹脂組合物可用於藉由加壓成形、膜成形、真空

成形、擠出成形、擠出層壓成形、發泡成形、中空成形、射出成形等方法，適當地成形為所需之形狀而製造各種成形品。

**【0184】** 其中，本發明之聚丙烯系樹脂組合物可適宜地用作擠出層壓用。

本發明之聚丙烯系樹脂組合物可適宜地用於在基材之表面進行熔融擠出層壓加工(擠出層壓)，而製造層壓積層體。

擠出層壓加工為如下成形加工法：於預先製造之基材之表面上，藉由將自T型鑄模擠出之熔融樹脂膜連續地被覆、壓接於基材上之方法，同時地進行被覆與接著。通常，於基材之單側表面進行層壓加工，但視需要亦可於兩側進行層壓。

#### **【0185】 II-2.聚丙烯系樹脂組合物之製造方法**

本發明之聚丙烯系樹脂組合物之製造方法之特徵在於具有如下步驟：獲得具有上述特性(X-1)~(X-6)之聚丙烯樹脂(X)之步驟；

獲得具有上述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)之步驟；及

將上述聚丙烯樹脂(X)20質量%~80質量%與上述聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%混合或熔融混練(其中，聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)之步驟。

**【0186】** 獲得聚丙烯樹脂(X)之方法並無特別限定，可藉由上述「聚丙烯樹脂(X)之製造方法」中所記載之方法而製造。

獲得聚丙烯系樹脂(Y)之方法並無特別限定，可藉由上述「聚丙烯樹脂(Y)之製造方法」中所記載之方法而製造。

將聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)混合之方法並無特別限定，可例舉利用亨舍爾攪拌機、V型攪拌器、帶型攪拌器、滾筒攪拌器等混合之

方法。

將聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)熔融混練之方法並無特別限定，可例舉利用單軸擠出機、多軸擠出機、捏合機、班布里攪拌機等混練機進行熔融混練之方法。

聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之比率可例舉上述「聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之比率」中所記載之比率。

作為以上述方式製造之聚丙烯系樹脂組合物之用途，亦可與上述「聚丙烯系樹脂組合物之用途」同樣。

### 【0187】 II-3.積層體

本發明之積層體之特徵在於：其係包含基材層與聚丙烯系樹脂組合物層者，且

上述聚丙烯系樹脂組合物層包含：具有上述特性(X-1)~(X-6)之聚丙烯樹脂(X)20質量%~80質量%、及具有上述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)。

【0188】 聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之比率可例舉上述「聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之比率」中所記載之比率。

【0189】 用作基材層之基材亦可例舉：聚對苯二甲酸乙二酯、聚對苯二甲酸丁二酯等聚酯樹脂、乙烯-乙酸乙烯酯共聚物皂化物、聚氯乙烯、聚偏二氯乙烯、聚乙烯、聚丙烯、聚4-甲基-1-戊烯、聚碳酸酯樹脂、聚醯胺6、聚醯胺66、聚醯胺6·66、聚醯胺12等聚醯胺樹脂等熱塑性樹脂之膜或片材等、紙、鋁或鐵等金屬箔。

又，熱塑性樹脂膜或片材可實施單軸或者雙軸延伸，尤佳為雙軸延

伸聚丙烯膜。又，亦較佳為將其與紙積層而成者。

基材層之厚度通常為5  $\mu\text{m}$ ~100  $\mu\text{m}$ 左右。

作為基材層與聚丙烯系樹脂組合物層之積層方法，可例舉：擠出層壓法、共擠膜法、乾式層壓法、濕式層壓法、熱熔層壓法、熱層壓法等。

**【0190】** 基材形態並不限定於膜或片材，亦可為如織布、不織布之形狀。又，基材可為單層構造，亦可為複層構造。作為複層構造之基材之製作方法，並無特別限定，可例舉：共擠膜法、乾式層壓法、濕式層壓法、熱熔層壓法、擠出層壓法、熱層壓法等。

又，亦可對該等基材預先實施增黏塗層加工、金屬蒸鍍加工、電暈放電處理加工、印刷加工等各種膜加工處理。

**【0191】** 本發明之積層體可適宜地用於各種食品或飲料、醫藥、醫療品、化妝品、衣料、文具、建材、電池包裝、紙製品包裝及其他產業材料或工業材料等之包裝用途。

#### **【0192】 II-4.積層體之製造方法**

本發明之積層體之製造方法之特徵在於：其係包含基材層與聚丙烯系樹脂組合物層之積層體之製造方法，且具有如下步驟：藉由在基材層之至少單面，將具有上述特性(X-1)~(X-6)之聚丙烯樹脂(X)20質量%~80質量%、及具有上述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%之混合物或熔融混練物(其中，聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)擠出層壓，而形成聚丙烯系樹脂組合物層。

**【0193】** 基材層可例示上述「II-3.積層體」中所記載之基材層。

聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之混合方法及熔融混練方法可例示上述「II-2.聚丙烯系樹脂組合物之製造方法」中所記載之方法。

聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之比率可例舉上述「聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之比率」中所記載之比率。

【0194】於在基材層上，將包含聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之本發明之聚丙烯系樹脂組合物擠出層壓時，該樹脂組合物之熔融擠出溫度通常為 $180^{\circ}\text{C} \sim 320^{\circ}\text{C}$ ，較佳為 $200^{\circ}\text{C} \sim 310^{\circ}\text{C}$ 。若超過 $320^{\circ}\text{C}$ ，則成形性有可能降低。

擠出層壓成形速度與生產性直接相關，故較佳為以 $140 \text{ m/min}$ 以上進行成形，更佳為以 $150 \text{ m/min}$ 以上進行成形。

又，為了向聚丙烯系樹脂組合物之熔融膜表面導入極性基，可實施臭氧處理。臭氧處理量較佳為相對於熔融膜之表面積以 $0.01 \text{ g/m}^2 \sim 1 \text{ g/m}^2$ 進行。

【0195】擠出層壓通常對基材層之單側表面進行，視需要可於兩側擠出層壓。

所形成之聚丙烯系樹脂組合物層之厚度通常為 $1 \mu\text{m} \sim 250 \mu\text{m}$ ，較佳為 $3 \mu\text{m} \sim 200 \mu\text{m}$ ，尤佳為 $5 \mu\text{m} \sim 150 \mu\text{m}$ 。

可對藉由擠出層壓加工所獲得之積層體進而實施金屬蒸鍍加工、電暈放電處理加工、印刷加工等各種膜加工處理。

## 實施例

【0196】以下，藉由實施例具體地說明本發明，但本發明並不受該等實施例限定。

再者，實施例、比較例中所使用之評價方法及使用樹脂如下所述。

### 【0197】 <I.第1實施方式>

#### I-1.評價方法



## (1)熔體流動速率(MFR)：

依據ISO 1133：1997 Conditions M進行測定。單位為g/10 min。

(2)分子量分佈( $M_w/M_n$ 及 $M_z/M_n$ )：

依據上述方法，藉由GPC測定求出。

## (3)熔融張力(MT)：

依據上述方法，使用東洋精機製作所製造之Capillograph 1B，於以下之條件下進行測定。

- 毛細管：直徑2.0 mm、長度40 mm
- 料缸直徑：9.55 mm
- 料缸擠出速度：20 mm/min
- 拉取速度：4.0 m/min
- 溫度：170°C 230°C

於MT極高之情形時，於拉取速度4.0 m/min下，樹脂有時會斷裂，於此種情形時，降低捲取速度，將可拉取之最高速度下之張力設為MT。單位為克(g)。

(4)分支指數( $g'(M_{z_{abs}})$ )：

依據上述方法，藉由具備示差折射計(RI)、黏度檢測器(Viscometer)、光散射檢測器(MALLS)作為檢測器之GPC求出。

## (5)mm分率：

依據上述方法求出。單位為%。

## (6)乙烯含量：

係使用日本電子股份有限公司製造之GSX-400或同等裝置(碳核共振頻率100 MHz以上)，依據日本專利特開2013-199642號公報之段落[0120]



使用上述擠出層壓裝置，以加工速度40 m/min，於厚度12 μm之雙軸延伸PET(Polyethylene Terephthalate，聚對苯二甲酸乙二酯)膜上，製作擠出層壓被覆厚度為40 μm之積層體。

藉由自所獲得之積層體上將雙軸延伸PET膜剝離，獲得物性評價用膜。

(2)霧度(HAZE)：

依據JIS K7105測定藉由上述(1)所獲得之物性評價用膜之霧度。霧度之值(單位：%)越小則透明性越良好。

**【0200】** I-4.使用材料

(1)聚丙烯樹脂(X1)

使用下述製造例I-1中所製造之聚合物(I-X1-1)。

**【0201】** [製造例I-1(I-PP-1之製造)]

<觸媒合成例1>

(1)錯合物之合成

(1-a)外消旋-二氯[1,1'-二甲基亞矽烷基雙{2-(5-甲基-2-咪喃基)-4-(4-異丙基苯基)茚基}]合鉛之合成：

外消旋-二氯[1,1'-二甲基亞矽烷基雙{2-(5-甲基-2-咪喃基)-4-(4-異丙基苯基)茚基}]合鉛係依據日本專利特開2012-149160號公報之合成例1之方法而合成。

**【0202】** (1-b)外消旋-二氯[1,1'-二甲基亞矽烷基雙{2-甲基-4-(4-氯苯基)-4-氫萘基}]合鉛之合成：

外消旋-二氯[1,1'-二甲基亞矽烷基雙{2-甲基-4-(4-氯苯基)-4-氫萘基}]合鉛係依據日本專利特開平11-240909號公報之實施例7之方法而合

成。

**【0203】 (2)觸媒之製備**

(2-a)離子交換性層狀矽酸鹽之化學處理

向安裝有攪拌葉與回流裝置之1 L之3口燒瓶中，添加蒸餾水645.1 g與98%硫酸82.6 g，並升溫至95°C。

向其中添加市售之蒙脫石(水澤化學工業公司製造之BENCLAY KK、Al=9.78質量%、Si=31.79質量%、Mg=3.18質量%、Al/Si(莫耳比)=0.320、平均粒徑14 μm)100 g，於95°C下進行320分鐘反應。320分鐘後，添加蒸餾水0.5 L停止反應，並進行過濾，藉此獲得濾餅狀固體物255 g。

於該濾餅1 g中含有0.31 g之化學處理蒙脫石(中間物)。化學處理蒙脫石(中間物)之化學組成為Al=7.68質量%、Si=36.05質量%、Mg=2.13質量%、Al/Si(莫耳比)=0.222。

向上述濾餅中添加蒸餾水1545 g進行漿料化，並升溫至40°C。於固體之狀態下添加氫氧化鋰水合物5.734 g，於40°C下進行1小時反應。1小時後，將反應漿料過濾，以1 L之蒸餾水進行3次洗淨，再次獲得濾餅狀固體物。

將所回收之濾餅乾燥，結果獲得化學處理蒙脫石80 g。該化學處理蒙脫石之化學組成為Al=7.68質量%、Si=36.05質量%、Mg=2.13質量%、Al/Si(莫耳比)=0.222、Li=0.53質量%。

**【0204】 (2-b)預聚合**

向內容積1 m<sup>3</sup>之反應器中加入以上述方法獲得之化學處理蒙脫石150 kg，添加己烷2832 L製成漿料，向其中歷時85分鐘投入三異丁基鋁74.4 kg(375 mol)並進行60分鐘攪拌。其後以己烷洗淨至1/32，將總容量

設為900 L。

將加入有該化學處理蒙脫石之漿料溶液保持為50°C，並向其中添加三異丁基鋁0.65 kg(濃度15.3質量%之己烷溶液4.257 kg 3.28 mol)。

攪拌5分鐘後，添加外消旋-二氯[1,1'-二甲基亞矽烷基雙{2-甲基-4-(4-氯苯基)-4-氫萘基}]合鈣0.657 kg(0.81 mol)與甲苯96 L，繼續攪拌60分鐘。

其後，添加三正辛基鋁9.758 kg(26.61 mol)並攪拌6分鐘後，向另一附有攪拌裝置之容器中投入如下溶液，該溶液係於向甲苯240 L中添加三異丁基鋁0.064 kg(濃度0.648質量%之甲苯溶液9.88 kg、0.32 mol)時再添加外消旋-二氯[1,1'-二甲基亞矽烷基雙{2-(5-甲基-2-咪喃基)-4-(4-異丙基苯基)茚基}]合鈣1.768 kg(1.89 mol)而預先製備；並添加甲苯100 L，進而繼續攪拌20分鐘。

其後追加己烷2387 L，將反應器之內部溫度設為40°C後，歷時240分鐘饋送丙烯328.1 kg，一面保持40°C一面進行預聚合。

其後，停止饋送丙烯，於40°C之狀態下進行80分鐘剩餘聚合。

剩餘聚合結束後，停止攪拌，使內容物沈澱而進行靜定。以溶液量成為1500 L之方式去除其上清液，添加三異丁基鋁12.7 kg，再次添加己烷3974 L進行攪拌，其後進行沈澱靜定，去除上清液直至溶液量成為1500 L。

向其中添加三異丁基鋁8.9 kg(濃度20.8質量%之己烷溶液42.9 kg)與己烷205 L。

其後，將反應液移送至乾燥機中，於40°C下進行9小時乾燥。

進行上述操作，結果獲得乾燥預聚合觸媒465 kg。預聚合倍率(將預

聚合聚合物量除以固體觸媒量所得之值)為2.10。將該預聚合觸媒設為觸媒1。

**【0205】** <聚合>

藉由加熱下使氮氣於20 L高壓釜中流通而預先進行充分乾燥後，利用丙烯對槽內進行置換，並冷卻至室溫。導入三異丁基鋁之庚烷溶液(140 mg/mL)18.7 mL、H<sub>2</sub> 0.85 N(標準)L後，導入液體丙烯5000 g，其後升溫至63°C。其後，以除預聚合聚合物以外之質量計，利用高壓氫將230 mg之上述觸媒1壓送至聚合槽中而開始聚合，並迅速升溫至70°C。於該狀態下保持70°C，自聚合開始起1小時後，迅速將未反應之丙烯沖洗，使聚合停止。進行上述操作，結果獲得約1730 g之聚合物粉末(I-PP-1)。

觸媒活性為7520 g-PP/g-觸媒。MFR為8.5 g/10 min。

**【0206】** [製造例I-2(I-PP-2之製造)]

<聚合>

藉由加熱下使氮氣於20 L高壓釜中流通而預先進行充分乾燥後，利用丙烯對槽內進行置換，並冷卻至室溫。導入三異丁基鋁之庚烷溶液(140 mg/mL)18.7 mL、H<sub>2</sub> 0.68 N(標準)L後，導入液體丙烯5000 g，其後升溫至63°C。其後，以除預聚合聚合物以外之質量計，利用高壓氫將310 mg之上述觸媒1壓送至聚合槽中而開始聚合，並迅速升溫至70°C。於該狀態下保持70°C，自聚合開始起1小時後，迅速將未反應之丙烯沖洗，使聚合停止。進行上述操作，結果獲得約22170 g之聚合物粉末(I-PP-2)。

觸媒活性為7000 g-PP/g-觸媒。MFR為3.1 g/10 min。

**【0207】** <顆粒之製造>

[(I-X1-1)之製造]

相對於聚合物粉末(I-PP-1)100質量份，調配作為酚系抗氧化劑之四[亞甲基-3-(3',5'-二第三丁基-4'-羥基苯基)丙酸酯]甲烷(商品名：IRGANOX1010、BASF Japan股份有限公司製造)0.125質量份、作為亞磷酸酯系抗氧化劑之亞磷酸三(2,4-二第三丁基苯基)酯(商品名：IRGAFOS 168、BASF Japan股份有限公司製造)0.125質量份，使用高速攪拌式混合機(亨舍爾攪拌機、商品名)於室溫下進行3分鐘混合後，利用雙軸擠出機進行進行熔融混練，獲得聚丙烯樹脂(X1)之顆粒(I-X1-1)。

再者，雙軸擠出機使用Technovel公司製造之KZW-25，螺桿轉速設定為400 RPM，混練溫度自料斗下起設定為80°C、160°C、210v、230°C(以下，至模嘴出口為止為相同溫度)。

#### 【0208】 [(I-X1-2)之製造]

除了使用聚合物粉末(I-PP-2)以外，均藉由與(I-X1-1)同樣之製造方法獲得顆粒(I-X1-2)。

【0209】 對顆粒(I-X1-1)、(I-X1-2)，進行MFR、<sup>13</sup>C-NMR、GPC、分支指數 $g'$ 、熔融張力(MT)之評價。將評價結果示於表1。

#### 【0210】 [表1]

表1

		I-X1-1	I-X1-2
MFR	g/10 min	8.5	3.1
Mw/Mn	-	3.8	4.9
Mz/Mw	-	3.4	3.6
W <sub>IM</sub>	質量%	4.3	7.0
MT230°C	g	6.0	12.9
MT170°C	g	23.4	45.0
log(MT170°C)		1.4	1.7
式(1)右邊		1.0	1.5
$g'(Mz_{abs})$	-	0.87	0.87
mm	%	98.5	98.5

#### 【0211】 (2)聚丙烯樹脂(I-X2)

使用下述製造例I-3~I-5中所製造之聚合物(I-X2-1)~(I-X2-3)中之任一種。

**【0212】 [製造例I-3(I-PP-3之製造)]**

於製造例I-1中，除了將H<sub>2</sub>設為1.28 N(標準)L，將觸媒1設為除預聚合聚合物以外之質量220 mg以外，進行同樣之聚合。進行上述操作，結果獲得約2508 g之聚合物粉末(I-PP-3)。

觸媒活性為11400 g-PP/g-觸媒。MFR為60 g/10 min。

**【0213】 [製造例I-4(I-PP-4之製造)]**

於製造例I-4中，進行以下之聚合代替製造例1中之聚合。向內容積100 m<sup>3</sup>之攪拌式高壓反應容器(L/D=1.2)中，連速地以2×10<sup>4</sup> kg/hr之流量投入液化丙烯，以80 kg/hr之流量投入三異丁基鋁，以0.13 kg/hr之流量投入H<sub>2</sub>，以除預聚合聚合物以外之質量計，以1.00 kg/hr之流量投入預聚合觸媒1，將溫度保持為70±0.1℃，以將聚合反應器內之聚合物漿料濃度保持為40質量%之方式進行連續聚合。進行上述操作，結果獲得聚合物粉末(I-PP-4)。聚合物粉末(I-PP-4)之生產量為8.0×10<sup>3</sup> kg/hr。

**【0214】 [製造例I-5(I-PP-5之製造)]**

於製造例I-3中，除了將H<sub>2</sub>設為1.105 N(標準)L，以除預聚合聚合物以外之質量計，將觸媒1設為190 mg以外，進行同樣之聚合。進行上述操作，結果獲得約1997 g之聚合物粉末(I-PP-5)。

觸媒活性為10510 g-PP/g-觸媒。MFR為32 g/10 min。

**【0215】 <顆粒之製造>**

**[(I-X2-1)之製造]**

相對於聚合物粉末(I-PP-3)100質量份，調配作為酚系抗氧化劑之四



[亞甲基-3-(3',5'-二第三丁基-4'-羥基苯基)丙酸酯]甲烷(商品名：IRGANOX1010、BASF Japan股份有限公司製造)0.125質量份、作為亞磷酸酯系抗氧化劑之亞磷酸三(2,4-二第三丁基苯基)酯(商品名：IRGAFOS 168、BASF Japan股份有限公司製造)0.125質量份，使用高速攪拌式混合機(亨舍爾攪拌機、商品名)於室溫下進行3分鐘混合後，利用雙軸擠出機進行進行熔融混練，獲得聚丙烯樹脂(X2)之顆粒(I-X2-1)。

再者，雙軸擠出機使用Technovel公司製造之KZW-25，螺桿轉速設定為400 RPM，混練溫度自料斗下起設定為80°C、160°C、210°C、230°C(以下，至模嘴出口為止為相同溫度)。

#### 【0216】 [(I-X2-2)之製造]

除了使用聚合物粉末(I-PP-4)以外，均藉由與(I-X2-1)同樣之製造方法獲得顆粒(I-X2-2)。

#### [(I-X2-3)之製造]

除了使用聚合物粉末(I-PP-5)以外，均藉由與(I-X2-1)同樣之製造方法獲得顆粒(I-X2-3)。

【0217】 對顆粒(I-X2-1)~(I-X2-3)，進行MFR、<sup>13</sup>C-NMR、GPC、分支指數g'、熔融張力(MT)之評價。將評價結果示於表2。

#### 【0218】 [表2]

表2

		I-X2-1	I-X2-2	I-X2-3
MFR	g/10 min	60	16	32
Mw/Mn	-	3.7	4.1	3.2
Mz/Mw	-	3.4	4.3	3.6
W <sub>IM</sub>	質量%	1.7	3.2	1.9
MT230°C	g	0.5	2.3	0.8
MT170°C	g	2.7	11.0	4.2
log(MT170°C)		0.4	1.0	0.6
式(1)右邊		0.04	0.68	0.34
g'(Mz <sub>abs</sub> )	-	0.83	0.73	0.76
mm	%	98.4	98.3	98.3

**【0219】 (3)聚丙烯系樹脂(I-Y)**

使用以下之聚丙烯(I-Y-1)~(I-Y-4)中之任一種作為聚丙烯系樹脂(I-Y)。對該等(I-Y-1)~(I-Y-4)，進行MFR、熔融張力(MT170°C)之評價。將評價結果及所使用之觸媒示於表3。再者，於表3中，(I-Y-1)~(I-Y-4)之MT170°C低於檢測極限，故設為未達0.1。

**【0220】 (I-Y-1)[製造例I-3(I-Y-1之製造)]：**相對於Japan Polypropylene股份有限公司製造之商品名「WINTEC(註冊商標)WSX03」、利用茂金屬觸媒製備之丙烯-乙烯無規共聚物(乙烯含量=3.2質量%、MFR=25 g/10 min、 $T_m=125^\circ\text{C}$ )100質量份，添加有機過氧化物(2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧基)己烷)0.05質量份，利用亨舍爾攪拌機進行混合後，使用螺桿口徑25 mm之Technovel公司製造之「KZW-25」雙軸擠出機，於螺桿轉速300 rpm、混練溫度自料斗下起為C1/C2/C3~C7/模頭/模嘴=150°C/180°C/230°C/230°C/180°C下進行熔融擠出，獲得 $T_m=125^\circ\text{C}$ 、MFR=45 g/10 min之顆粒。

**【0221】 (I-Y-2)：**Japan Polypropylene股份有限公司製造、商品名「NOVATEC(註冊商標)SA08」、利用齊格勒-納塔觸媒製備之丙烯均聚物、MFR=80 g/10 min、 $T_m=161^\circ\text{C}$

(I-Y-3)：Japan Polypropylene股份有限公司製造、商品名「WINTEC(註冊商標)WSX03」、利用茂金屬觸媒製備之丙烯均聚物、MFR=25 g/10 min、 $T_m=125^\circ\text{C}$

(I-Y-4)：Japan Polypropylene股份有限公司製造、商品名「WINTEC(註冊商標)WFX4」、利用茂金屬觸媒製備之丙烯均聚物、MFR=7 g/10 min、 $T_m=125^\circ\text{C}$

[(0222)] [表3]

表3

		I·Y·1	I·Y·2	I·Y·3	I·Y·4
MFR	g/10 min	45	80	25	7
MFI(170°C)	g	未達0.1	未達0.1	未達0.1	未達0.1
log(MFI(170°C))		-1.0>	-1.0>	-1.0>	-1.0>
式(A)右邊 觸媒		0.18	0.09	0.46	1.07
		茂金屬	齊格勒	茂金屬	茂金屬

[(0223)] [實施例I·1]

### 1.調配

以作為聚丙烯樹脂(X1)之(I·X1·1)成為10質量%、作為聚丙烯樹脂(X2)之(I·X2·1)成為40質量%、作為聚丙烯系樹脂(Y)之(I·Y·1)成為50質量%之方式進行計量，投入至亨舍爾攪拌機中，並進行3分鐘攪拌混合。

### 2.造粒

使用螺桿直徑25 mm之Technovel公司製造之「KZW-25」雙軸擠出機，於螺桿轉速300 rpm、混練溫度自料斗下起為C1/C2/C3~C7/模頭/模嘴：150°C/180°C/230°C/230°C/180°C下進行熔融混練，一面利用冷卻水槽將自線料模具擠出之熔融樹脂冷卻固化一面拉取，使用線料切割器將線料切斷為直徑3 mm、長度2 mm，藉此獲得聚丙烯系樹脂組合物之顆粒。對所獲得之顆粒之MFR進行評價。

### 3.膜之製造

自安裝於直徑90 mm $\phi$ 之擠出機之寬度560 mm之T模嘴，以樹脂溫度290°C將所獲得之聚丙烯系樹脂組合物之顆粒擠出而獲得膜。對聚丙烯系樹脂組合物之擠出層壓成形性與膜之物性進行評價。

[(0224)] [實施例I·2]

於實施例I·1中，除了將作為聚丙烯樹脂(X1)之(I·X1·1)設為10質量%，將作為聚丙烯樹脂(X2)之(I·X2·1)設為20質量%，將作為聚丙烯系樹

脂(Y)之(I-Y-1)設為70質量%以外，藉由與實施例I-1同樣之方法進行膜之製造。

**【0225】 [實施例I-3]**

於實施例I-1中，除了將作為聚丙烯樹脂(X1)之(I-X1-1)設為10質量%，將作為聚丙烯樹脂(X2)之(I-X2-1)設為80質量%，將作為聚丙烯系樹脂(Y)之(I-Y-1)設為10質量%以外，藉由與實施例I-1同樣之方法進行膜之製造。

**【0226】 [實施例I-4]**

於實施例I-1中，除了將作為聚丙烯樹脂(X1)之(I-X1-1)設為10質量%，將作為聚丙烯樹脂(X2)之(I-X2-1)設為40質量%，將作為聚丙烯系樹脂(Y)之(I-Y-3)設為50質量%以外，藉由與實施例I-1同樣之方法進行膜之製造。

**【0227】 [實施例I-5]**

於實施例I-1中，除了將作為聚丙烯樹脂(X1)之(I-X1-1)設為20質量%，將作為聚丙烯樹脂(X2)之(I-X2-1)設為30質量%，將作為聚丙烯系樹脂(Y)之(I-Y-1)設為50質量%以外，藉由與實施例I-1同樣之方法進行膜之製造。

**【0228】 [實施例I-6]**

於實施例I-1中，除了將作為聚丙烯樹脂(X1)之(I-X1-2)設為5質量%，將作為聚丙烯樹脂(X2)之(I-X2-1)設為45質量%，將作為聚丙烯系樹脂(Y)之(I-Y-1)設為50質量%以外，藉由與實施例I-1同樣之方法進行膜之製造。

**【0229】 [實施例I-7]**

於實施例I-1中，除了將作為聚丙烯樹脂(X1)之(I-X1-2)設為2.5質量

%，將作為聚丙烯樹脂(X2)之(I-X2-2)設為27.5質量%，將作為聚丙烯系樹脂(Y)之(I-Y-1)設為70質量%以外，藉由與實施例I-1同樣之方法進行膜之製造。

**【0230】 [實施例I-8]**

於實施例I-1中，除了將作為聚丙烯樹脂(X1)之(I-X1-2)設為5質量%，將作為聚丙烯樹脂(X2)之(I-X2-3)設為25質量%，將作為聚丙烯系樹脂(Y)之(I-Y-1)設為70質量%以外，藉由與實施例I-1同樣之方法進行膜之製造。

**【0231】 [比較例I-1]**

於實施例I-1中，除了將作為聚丙烯樹脂(X1)之(I-X1-1)設為30質量%，將作為聚丙烯系樹脂(Y)之(I-Y-2)設為70質量%以外，藉由與實施例I-1同樣之方法進行膜之製造。

**【0232】 [比較例I-2]**

於實施例I-1中，除了將作為聚丙烯樹脂(X2)之(I-X2-1)設為50質量%，將作為聚丙烯系樹脂(Y)之(I-Y-4)設為50質量%以外，藉由與實施例I-1同樣之方法進行膜之製造。

**【0233】** 將實施例、比較例之各樹脂之比率、聚丙烯系樹脂組合物之顆粒之MFR、擠出層壓成形性、及膜之物性之評價結果示於表4。

## 【0234】 [表4]

表4

			實施例I-1	實施例I-2	實施例I-3	實施例I-4	實施例I-5	實施例I-6	實施例I-7	實施例I-8	比較例I-1	比較例I-2
成分(X-1)	I-X1-1	質量%	10	10	10	10	20				30	
	I-X1-2	質量%						5	2.5	5		
成分(X-2)	I-X2-1	質量%	40	20	80	40	30	45				50
	I-X2-2	質量%							27.5			
	I-X2-3	質量%								25		
成分(Y)	I-Y-1	質量%	50	70	10		50	50	70	70		
	I-Y-2	質量%									70	
	I-Y-3	質量%				50						
	I-Y-4	質量%										50
顆粒物性	MFR	g/10 min	43	36	47	39	33	37	32	34	41	20
擠出層壓成形性	延展性	m/min	210	200	230	170	200	210	180	180	160	100
	縮幅	mm	98	115	74	98	82	98	96	108	140	96
膜物性	透明性	%	6.1	6.7	6.9	6.1	6.3	6.4	6.3	6.2	6.8	6.7

【0235】 關於實施例I-1～實施例I-8之擠出層壓成形性，聚丙烯系樹脂組合物中所含之聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)均滿足本發明之特定物性，故為延展性良好之結果。又，縮幅、透明性均優異。

比較例I-1不含聚丙烯樹脂(X2)，無流動性較高之具有分支結構之聚丙烯成分，故即便與流動性較高之聚丙烯樹脂(I-Y-2)混合，亦成為熔融張力不足，縮幅較大之結果。比較例I-2不含聚丙烯樹脂(X1)，且聚丙烯樹脂(I-Y-4)之流動性較低，故雖然縮幅成為良好之結果，但成為延展性明顯較低之結果。

【0236】 <II.第2實施方式>

II-1.評價方法

(1)熔體流動速率(MFR)：

依據ISO 1133：1997 Conditions M進行測定。單位為g/10 min。

(2)分子量分佈( $M_w/M_n$ 及 $M_z/M_n$ )：

依據上述方法，藉由GPC測定求出。

(3)熔融張力(MT)：

依據上述方法，使用東洋精機製作所製造之Capillograph 1B，於以下之條件下進行測定。

- 毛細管：直徑2.0 mm、長度40 mm
- 料缸直徑：9.55 mm
- 料缸擠出速度：20 mm/min
- 拉取速度：4.0 m/min
- 溫度：170℃ 230℃





度505 mm、基重50 g/m<sup>2</sup>之牛皮紙上，一面使拉取速度自80 m/min上升，一面進行擠出層壓加工，將不產生拉伸共振之最高加工速度(單位：m/min)設為延展性。

延展性達到150 m/min以上者評價為擠出層壓成形性優異。

(2)縮幅：

使用上述擠出層壓裝置，以加工速度80 m/min，於基重50 g/m<sup>2</sup>之牛皮紙上，製作擠出層壓被覆厚度為20 μm之積層體，將模嘴寬與所獲得之積層體中之樹脂組合物層之寬度的差(單位：mm)設為縮幅。縮幅越小，則有效製品寬度越變寬，擠出層壓加工性越優異。

#### 【0238】 II-3.膜物性

(1)物性評價用膜之製作：

使用上述擠出層壓裝置，以加工速度40 m/min，於厚度12 μm之雙軸延伸PET膜上，製作擠出層壓被覆厚度為40 μm之積層體。

藉由自所獲得之積層體上將雙軸延伸PET膜剝離，獲得物性評價用膜。

(2)霧度(HAZE)：

依據JIS K7105測定藉由上述(1)所獲得之物性評價用膜之霧度。霧度之值(單位：%)越小則透明性越良好。

#### 【0239】 II-4.使用材料

(1)聚丙烯樹脂(X)

使用下述製造例1～5中所製造之聚合物(X-1)、(X-2)、(X-3)、(X-4)或(X-5)。

#### 【0240】 [製造例II-1(II-PP-1之製造)]

<觸媒合成例1>

(1)錯合物之合成

(1-a)外消旋-二氯[1,1'-二甲基亞矽烷基雙{2-(5-甲基-2-咪喃基)-4-(4-異丙基苯基)茛基}]合鈰之合成：

外消旋-二氯[1,1'-二甲基亞矽烷基雙{2-(5-甲基-2-咪喃基)-4-(4-異丙基苯基)茛基}]合鈰係依據日本專利特開2012-149160號公報之合成例1之方法而合成。

**【0241】** (1-b)外消旋-二氯[1,1'-二甲基亞矽烷基雙{2-甲基-4-(4-氯苯基)-4-氫萘基}]合鈰之合成：

外消旋-二氯[1,1'-二甲基亞矽烷基雙{2-甲基-4-(4-氯苯基)-4-氫萘基}]合鈰係依據日本專利特開平11-240909號公報之實施例7之方法而合成。

**【0242】** (2)觸媒之製備

(2-a)離子交換性層狀矽酸鹽之化學處理

向安裝有攪拌葉與回流裝置之1 L之3口燒瓶中，添加蒸餾水645.1 g與98%硫酸82.6 g，並升溫至95°C。

向其中添加市售之蒙脫石(水澤化學工業公司製造之BENCLAY KK、Al=9.78質量%、Si=31.79質量%、Mg=3.18質量%、Al/Si(莫耳比)=0.320、平均粒徑14 μm)100 g，於95°C下進行320分鐘反應。320分鐘後，添加蒸餾水0.5 L停止反應，並進行過濾，藉此獲得濾餅狀固體物255 g。

於該濾餅1 g中含有0.31 g之化學處理蒙脫石(中間物)。化學處理蒙脫石(中間物)之化學組成為Al=7.68質量%、Si=36.05質量%、Mg=2.13質量%、Al/Si(莫耳比)=0.222。

向上述濾餅中添加蒸餾水1545 g進行漿料化，並升溫至40℃。於固體之狀態下添加氫氧化鋰水合物5.734 g，於40℃下進行1小時反應。1小時後，將反應漿料過濾，以1 L之蒸餾水進行3次洗淨，再次獲得濾餅狀固體物。

將所回收之濾餅乾燥，結果獲得化學處理蒙脫石80 g。該化學處理蒙脫石之化學組成為Al=7.68質量%、Si=36.05質量%、Mg=2.13質量%、Al/Si(莫耳比)=0.222、Li=0.53質量%。

### 【0243】 (2-b)預聚合

向內容積1 m<sup>3</sup>之反應器中加入以上述方法獲得之化學處理蒙脫石150 kg，添加己烷2832 L製成漿料，向其中歷時85分鐘投入三異丁基鋁74.4 kg(375 mol)並進行60分鐘攪拌。其後以己烷洗淨至1/32，將總容量設為900 L。

將加入有該化學處理蒙脫石之漿料溶液保持為50℃，並向其中添加三異丁基鋁0.65 kg(濃度15.3質量%之己烷溶液4.257 kg 3.28 mol)。

攪拌5分鐘後，添加外消旋-二氯[1,1'-二甲基亞矽烷基雙{2-甲基-4-(4-氯苯基)-4-氫萘基}]合鋁0.657 kg(0.81 mol)與甲苯96 L，繼續攪拌60分鐘。

其後，添加三正辛基鋁9.758 kg(26.61 mol)並攪拌6分鐘後，向另一附有攪拌裝置之容器中投入如下溶液，該溶液係於向甲苯240 L中添加三異丁基鋁0.064 kg(濃度0.648質量%之甲苯溶液9.88 kg、0.32 mol)時再添加外消旋-二氯[1,1'-二甲基亞矽烷基雙{2-(5-甲基-2-咪喃基)-4-(4-異丙基苯基)茛基}]合鋁1.768 kg(1.89 mol)而預先製備；並添加甲苯100 L，進而繼續攪拌20分鐘。

其後追加己烷2387 L，將反應器之內部溫度設為40°C後，歷時240分鐘饋送丙烯328.1 kg，一面保持40°C一面進行預聚合。

其後，停止饋送丙烯，於40°C之狀態下進行80分鐘剩餘聚合。

剩餘聚合結束後，停止攪拌，使內容物沈澱而進行靜定。以溶液量成為1500 L之方式去除其上清液，添加三異丁基鋁12.7 kg，再次添加己烷3974 L進行攪拌，其後進行沈澱靜定，去除上清液直至溶液量成為1500 L。

向其中添加三異丁基鋁8.9 kg(濃度20.8質量%之己烷溶液42.9 kg)與己烷205 L。

其後，將反應液移送至乾燥機中，於40°C下進行9小時乾燥。

進行上述操作，結果獲得乾燥預聚合觸媒465 kg。預聚合倍率(將預聚合聚合物量除以固體觸媒量所得之值)為2.10。將該預聚合觸媒設為觸媒1。

#### 【0244】 <聚合>

藉由加熱下使氫氣於20 L高壓釜中流通而預先進行充分乾燥後，利用丙烯對槽內進行置換，並冷卻至室溫。導入三異丁基鋁之庚烷溶液(140 mg/mL)18.7 mL、H<sub>2</sub> 1.02 N(標準)L後，導入液體丙烯5000 g，其後升溫至63°C。其後，以除預聚合聚合物以外之質量計，利用高壓氫將300 mg之上述觸媒1壓送至聚合槽中而開始聚合，並迅速升溫至70°C。於該狀態下保持70°C，自聚合開始起1小時後，迅速將未反應之丙烯沖洗，使聚合停止。進行上述操作，結果獲得約2922 g之聚合物粉末(II-PP-1)。

觸媒活性為9740 g-PP/g-觸媒。MFR為32 g/10 min。

#### 【0245】 [製造例II-2(II-PP-2之製造)]

於製造例II-1中，除了將H<sub>2</sub>設為1.105 N(標準)L，以除預聚合聚合物以外之質量計，將觸媒1設為190 mg以外，進行同樣之聚合。進行上述操作，結果獲得約1997 g之聚合物粉末(II-PP-2)。

觸媒活性為10510 g-PP/g-觸媒。MFR為41 g/10 min。

**【0246】 [製造例II-3(II-PP-3之製造)]**

於製造例II-1中，除了將H<sub>2</sub>設為 0.85 N(標準)L，以除預聚合聚合物以外之質量計，將觸媒1設為230 mg以外，進行同樣之聚合。進行上述操作，結果獲得約1730 g之聚合物粉末(II-PP-3)。

觸媒活性為7520 g-PP/g-觸媒。MFR為8.5 g/10 min。

**【0247】 [製造例II-4(II-PP-4之製造)]**

於製造例II-1中，除了將H<sub>2</sub>設為0.51 N(標準)L，以除預聚合聚合物以外之質量計，將觸媒1設為360 mg以外，進行同樣之聚合。進行上述操作，結果獲得約2296 g之聚合物粉末(II-PP-4)。

觸媒活性為6380 g-PP/g-觸媒。MFR為1.3 g/10 min。

**【0248】 [製造例II-5(II-PP-5之製造)]**

於製造例II-5中，進行以下之聚合代替製造例II-1中之聚合。向內容積100 m<sup>3</sup>之攪拌式高壓反應容器(L/D=1.2)中，連速地以2×10<sup>4</sup> kg/hr之流量投入液化丙烯，以80 kg/hr之流量投入三異丁基鋁，以0.13 kg/hr之流量投入H<sub>2</sub>，以除預聚合聚合物以外之質量計，以1.00 kg/hr之流量投入觸媒1，將溫度保持為70±0.1℃，以將聚合反應器內之聚合物漿料濃度保持為40質量%之方式進行連續聚合。藉此獲得聚合物粉末(II-PP-5)。聚合物粉末(II-PP-5)之生產量為8.0×10<sup>3</sup> kg/hr。

**【0249】 <顆粒之製造>**

[(II-X-1)、(II-X-2)、(II-X-3)、(II-X-5)之製造]

相對於聚合物粉末(II-PP-1)、(II-PP-2)、(II-PP-3)、(II-PP-5)各100質量份，調配作為酚系抗氧化劑之四[亞甲基-3-(3',5'-二第三丁基-4'-羥基苯基)丙酸酯]甲烷(商品名：IRGANOX1010、BASF Japan股份有限公司製造)0.125質量份、作為亞磷酸酯系抗氧化劑之亞磷酸三(2,4-二第三丁基苯基)酯(商品名：IRGAFOS 168、BASF Japan股份有限公司製造)0.125質量份，使用高速攪拌式混合機(亨舍爾攪拌機、商品名)於室溫下進行3分鐘混合後，利用雙軸擠出機進行進行熔融混練，獲得聚丙烯樹脂(X)之顆粒(II-X-1)、(II-X-2)、(II-X-3)、(II-X-5)。

再者，雙軸擠出機使用Technovel公司製造之KZW-25，螺桿轉速設定為400 RPM，混練溫度自料斗下起設定為80°C、160°C、210°C、230°C(以下，至模嘴出口為止為相同溫度)。

**【0250】 [(II-X-4)之製造]**

相對於聚丙烯系樹脂(II-PP-4)100質量份，添加有機過氧化物(2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧基)己烷)0.05質量份，利用亨舍爾攪拌機進行混合後，使用螺桿口徑25 mm之Technovel公司製造之「KZW-25」雙軸擠出機，於螺桿轉速300 rpm、混練溫度自料斗下起為C1/C2/C3~C7/模頭/模嘴 = 150°C/180°C/230°C/230°C/180°C下進行熔融擠出，獲得MFR顆粒 = 40 g/10 min之顆粒。

對該等顆粒(II-X-1)、(II-X-2)、(II-X-3)、(II-X-4)、(II-X-5)，進行MFR、<sup>13</sup>C-NMR、GPC、分支指數g'、熔融張力(MT)之評價。將評價結果示於表5。

## 【0251】 [表5]

表5

		II-X-1	II-X-2	II-X-3	II-X-4	II-X-5
MFR	g/10 min	32	41	8.5	40	16
Mw/Mn	-	4.0	3.7	3.8	2.4	4.1
Mz/Mw	-	3.7	3.7	3.4	1.9	4.3
W <sub>IM</sub>	質量%	3.0	2.4	4.3	0.0	3.2
MT230°C		1.1	0.8	6.0	0.1	2.3
MT170°C	g	5.4	4.1	23.4	0.5	11.0
log(MT170°C)		0.7	0.6	1.4	-0.3	1.0
式(1)右邊	g	0.34	0.23	0.98	0.24	0.68
g'(Mz <sub>abs</sub> )	-	0.83	0.83	0.87	0.88	0.73
mm	%	98.4	98.4	98.5	98.0	98.3

## 【0252】 (2)聚丙烯系樹脂(Y)

使用以下之聚丙烯(II-Y-1)、(II-Y-2)、或(II-Y-3)作為聚丙烯系樹脂(Y)。對該等(II-Y-1)、(II-Y-2)、(II-Y-3)，進行MFR、熔融張力(MT170°C)之評價。將評價結果及所使用之觸媒示於表6。再者，於表6中，(II-Y-2)、(II-Y-3)之MT170°C低於檢測極限，故設為未達0.1。

【0253】 (II-Y-1)：Japan Polypropylene股份有限公司製造、商品名「WINTEC(註冊商標) WSX03」、利用茂金屬觸媒製備之丙烯-乙烯無規共聚物、乙烯含量=3.2質量%、MFR=25 g/10 min、T<sub>m</sub>=125°C

## 【0254】 (II-Y-2)[製造例5(II-Y-2之製造)]

相對於聚丙烯系樹脂(II-Y-1)100質量份，添加有機過氧化物(2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧基)己烷)0.05質量份，利用亨舍爾攪拌機進行混合後，使用螺桿口徑25 mm之Technovel公司製造之「KZW-25」雙軸擠出機，於螺桿轉速300 rpm、混練溫度自料斗下起為C1/C2/C3~C7/模頭/模嘴=150°C/180°C/230°C/230°C/180°C下進行熔融擠出，獲得T<sub>m</sub>=125°C、MFR=45 g/10 min之顆粒。

【0255】 (II-Y-3)：Japan Polypropylene股份有限公司製造、商品

名「NOVATEC(註冊商標) SA08」, 利用齊格勒-納塔觸媒製備之丙烯均聚物、MFR: 80 g/10 min、 $T_m$ : 161°C

[(0256)] [表6]

表6

		III-Y-1	III-Y-2	III-Y-3
MFR	g/10 min	25	45	80
MFI(170°C)		0.1	未達0.1	未達0.1
$\log(MFI(170^\circ\text{C}))$		-1.0	未達-0.1	未達-0.1
式(A)右邊觸媒	g	0.46	0.18	0.09
		茂金屬	茂金屬	齊格勒

[(0257)] [實施例II-1]

### 1. 調配

以作為聚丙烯樹脂(X)之(II-X-1)、作為聚丙烯系樹脂(Y)之(II-Y-2)分別成為30質量%、70質量%之方式進行計量, 投入至亨舍爾攪拌機中, 並進行3分鐘攪拌混合。

### 2. 造粒

使用螺桿直徑25 mm之Technovel公司製造之「K/W 25」雙軸擠出機, 於螺桿轉速300 rpm、混練溫度自料斗下起為C1/C2/C3~C7/模頭/模嘴: 150°C/180°C/230°C/230°C/180°C下進行熔融混練, 一面利用冷卻水槽將自線料模具擠出之熔融樹脂冷卻固化一面拉取, 使用線料切割器將線料切斷為直徑3 mm、長度2 mm, 藉此獲得聚丙烯系樹脂組合物之顆粒。對所獲得之顆粒之MFR進行評價。

### 3. 膜之製造

自安裝於直徑90 mm $\phi$ 之擠出機之寬度560 mm之T模嘴, 以樹脂溫度290°C將所獲得之聚丙烯系樹脂組合物之顆粒擠出而獲得膜。對聚丙烯系樹脂組合物之擠出層壓成形性與膜之物性進行評價。

[(0258)] [實施例II-2]



於實施例II-1中，除了將作為聚丙烯樹脂(X)之(II-X-1)、作為聚丙烯系樹脂(Y)之(II-Y-2)分別設為50質量%、50質量%以外，藉由與實施例II-1同樣之方法進行膜之製造。

**【0259】 [實施例II-3]**

於實施例II-1中，除了將作為聚丙烯樹脂(X)之(II-X-2)、作為聚丙烯系樹脂(Y)之(II-Y-2)分別設為30質量%、70質量%以外，藉由與實施例II-1同樣之方法進行膜之製造。

**【0260】 [實施例II-4]**

於實施例II-1中，除了將作為聚丙烯樹脂(X)之(II-X-2)、作為聚丙烯系樹脂(Y)之(II-Y-2)分別設為50質量%、50質量%以外，藉由與實施例II-1同樣之方法進行膜之製造。

**【0261】 [實施例II-5]**

於實施例II-1中，除了將作為聚丙烯樹脂(X)之(II-X-2)、作為聚丙烯系樹脂(Y)之(II-Y-1)分別設為30質量%、70質量%進行混合，並將未進行造粒而乾摻之顆粒投入至成形機中以外，藉由與實施例II-1同樣之方法進行膜之製造。依據實施例II-1之上述「2.造粒」另外進行造粒而成之顆粒之MFR為29 g/10 min。

**【0262】 [實施例II-6]**

於實施例II-1中，除了將作為聚丙烯樹脂(X)之(II-X-5)、作為聚丙烯系樹脂(Y)之(II-Y-2)分別設為30質量%、70質量%以外，藉由與實施例II-1同樣之方法進行膜之製造。

**【0263】 [實施例II-7]**

於實施例II-1中，除了將作為聚丙烯樹脂(X)之(II-X-5)、作為聚丙烯

系樹脂(Y)之(II-Y-1)分別設為30質量%、70質量%進行混合，並將未進行造粒而乾摻之顆粒投入至成形機中以外，藉由與實施例II-1同樣之方法進行膜之製造。依據實施例II-1之上述「2.造粒」另外進行造粒而成之顆粒之MFR為22 g/10 min。

**【0264】 [比較例II-1]**

於實施例II-1中，除了將作為聚丙烯樹脂(X)之(II-X-3)、作為聚丙烯系樹脂(Y)之(II-Y-3)分別設為30質量%、70質量%以外，藉由與實施例II-1同樣之方法進行膜之製造。

**【0265】 [比較例II-2]**

於實施例II-1中，除了將作為聚丙烯樹脂(X)之(II-X-4)、作為聚丙烯系樹脂(Y)之(II-Y-1)分別設為30質量%、70質量%以外，藉由與實施例II-1同樣之方法進行膜之製造。

**【0266】 [比較例II-3]**

於實施例II-1中，除了將作為聚丙烯樹脂(X)之(II-X-4)、作為聚丙烯系樹脂(Y)之(II-Y-2)分別設為30質量%、70質量%以外，藉由與實施例II-1同樣之方法進行膜之製造。

**【0267】** 將實施例、比較例之各樹脂之比率、聚丙烯系樹脂組合物之顆粒之MFR、擠出層壓成形性、及膜之物性之評價結果示於表7。

## 【0268】 [表7]

表7

			實施例II-1	實施例II-2	實施例II-3	實施例II-4	實施例II-5	實施例II-6	實施例II-7	比較例II-1	比較例II-2	比較例II-3
成分(X)	II-X-1	質量%	30	50								
	II-X-2	質量%			30	50	30					
	II-X-3	質量%								30		
	II-X-4	質量%									30	30
	II-X-5	質量%						30	30			
成分(Y)	II-Y-1	質量%					70		70		70	
	II-Y-2	質量%	70	50	70	50		70				70
	II-Y-3	質量%								70		
顆粒物性	MFR	g/10 min	41	38	44	43	(29)	32	(22)	41	29	40
擠出層壓成 形性	延展性	m/min	210	150	210	170	160	215	180	160	100	90
	縮幅	mm	118	81	131	98	108	107	75	140	90	145
膜物性	透明性	%	6.0	6.2	6.3	6.1	5.9	6.0	5.9	6.8	6.5	6.4

【0269】關於實施例II-1～II-7之擠出層壓成形性，由於聚丙烯系樹脂組合物中所含之聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)滿足本發明之所有特定物性，故為延展性達到150 m/min以上之良好結果。又，實施例II-1～II-7為縮幅、透明性均優異之結果。

比較例II-1中，聚丙烯系樹脂(II-X-3)及聚丙烯系樹脂(II-Y-3)不滿足作為本發明之特定物性之MFR之值，故成為熔融張力不足，縮幅較大之結果。比較例II-2、II-3中，聚丙烯樹脂(II-X-4)不滿足作為本發明之特定物性之(式1)，故成為不具有充分之熔融張力，延展性較低之結果。

## 【發明申請專利範圍】

### 【請求項1】

一種聚丙烯系樹脂組合物，其包含：具有下述特性(X1-1)~(X1-6)之聚丙烯樹脂(X1)、及

具有下述特性(X2-1)~(X2-6)之聚丙烯樹脂(X2)，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X1-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上；

(X1-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)；$$

(X1-5)利用GPC測定所得之分支指數g'(Mz<sub>abs</sub>)為0.70以上且0.95以下；

(X1-6)利用<sup>13</sup>C-NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均

分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上；

(X2-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)；$$

(X2-5)利用GPC測定所得之分支指數g'(Mz<sub>abs</sub>)為0.70以上且0.95以下；

(X2-6)利用<sup>13</sup>C-NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

其中，X1之MFR < X2之MFR，且X1之W<sub>1M</sub> ≥ X2之W<sub>1M</sub>。

### 【請求項2】

如請求項1之聚丙烯系樹脂組合物，其進而包含具有下述特性(Y-1)～(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)，

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下；

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}A)。$$

### 【請求項3】

如請求項2之聚丙烯系樹脂組合物，其包含聚丙烯樹脂(X1)5質量%～30質量%、聚丙烯樹脂(X2)5質量%～50質量%、及聚丙烯系樹脂(Y)20質量%～80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯

系樹脂(Y)之合計量為100質量%)。

**【請求項4】**

如請求項1至3中任一項之聚丙烯系樹脂組合物，其中上述聚丙烯樹脂(X1)具有下述(X1-1)及(X1-3)之特性，

上述聚丙烯樹脂(X2)具有下述(X2-1)及(X2-3)之特性，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為30 g/10 min以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為2.5質量%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過30 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上且未達2.5質量%。

**【請求項5】**

如請求項2之聚丙烯系樹脂組合物，其中上述聚丙烯樹脂(X1)具有下述(X1-1)及(X1-3)之特性，

上述聚丙烯樹脂(X2)具有下述(X2-1)及(X2-3)之特性，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為10 g/10 min以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為3.5質量%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上且未達3.5質量%。

**【請求項6】**

如請求項2或5之聚丙烯系樹脂組合物，其包含聚丙烯樹脂(X1)2質量%~30質量%、聚丙烯樹脂(X2)5質量%~98質量%、及聚丙烯系樹脂(Y)0質量%~80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)。

**【請求項7】**

一種聚丙烯系樹脂組合物之製造方法，其具有如下步驟：

獲得具有下述特性(X1-1)~(X1-6)之聚丙烯樹脂(X1)之步驟；

獲得具有下述特性(X2-1)~(X2-6)之聚丙烯樹脂(X2)之步驟；及

將上述聚丙烯樹脂(X1)與上述聚丙烯樹脂(X2)混合或熔融混練之步驟；

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X1-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量( $M_w$ )與數量平均分子量( $M_n$ )之比( $M_w/M_n$ )為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量( $M_z$ )與重量平均分子量( $M_w$ )之比( $M_z/M_w$ )為2.0以上且5.0以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上；

(X1-4)於170°C下測定之熔融張力( $MT_{170^\circ C}$ )(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(MT_{170^\circ C}) \geq -1.1 \times \log(MFR) + 2.0 \quad (\text{式1}) ;$$



(X1-5)利用GPC測定所得之分支指數 $g'(Mz_{abs})$ 為0.70以上且0.95以下；

(X1-6)利用 $^{13}C$ -NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上；

(X2-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(MT170^\circ C) \geq -1.1 \times \log(MFR) + 2.0 \quad (\text{式1}) ;$$

(X2-5)利用GPC測定所得之分支指數 $g'(Mz_{abs})$ 為0.70以上且0.95以下；

(X2-6)利用 $^{13}C$ -NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

其中，X1之MFR < X2之MFR，且X1之 $W_{1M} \geq X2$ 之 $W_{1M}$ 。

#### 【請求項8】

如請求項7之聚丙烯系樹脂組合物之製造方法，其進而包括獲得具有下述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)之步驟，

上述混合或熔融混練之步驟係將上述聚丙烯樹脂(X1)、上述聚丙烯

樹脂(X2)、及上述聚丙烯系樹脂(Y)混合或熔融混練之步驟，

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下；

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式A})。$$

#### 【請求項9】

如請求項8之聚丙烯系樹脂組合物之製造方法，其中上述混合或熔融混練之步驟係將上述聚丙烯樹脂(X1)5質量%~30質量%、上述聚丙烯樹脂(X2)5質量%~50質量%及上述聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%混合或熔融混練(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)之步驟。

#### 【請求項10】

如請求項7至9中任一項之聚丙烯系樹脂組合物之製造方法，其中上述聚丙烯樹脂(X1)具有下述(X1-1)及(X1-3)之特性，

上述聚丙烯樹脂(X2)具有下述(X2-1)及(X2-3)之特性，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為30 g/10 min以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為2.5質量%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過30 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬

以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上且未達2.5質量%。

**【請求項11】**

如請求項8之聚丙烯系樹脂組合物之製造方法，其中上述聚丙烯樹脂(X1)具有下述(X1-1)及(X1-3)之特性，

上述聚丙烯樹脂(X2)具有下述(X2-1)及(X2-3)之特性，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為10 g/10 min以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為3.5質量%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上且未達3.5質量%。

**【請求項12】**

如請求項8或11之聚丙烯系樹脂組合物之製造方法，其中上述混合或熔融混練之步驟係將上述聚丙烯樹脂(X1)2質量%~30質量%、上述聚丙烯樹脂(X2)5質量%~98質量%、及上述聚丙烯系樹脂(Y)0質量%~80質量%混合或熔融混練(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)之步驟。

**【請求項13】**

一種積層體，其特徵在於：其係包含基材層與聚丙烯系樹脂組合物層者，且

上述聚丙烯系樹脂組合物層包含：具有下述特性(X1-1)~(X1-6)之

聚丙烯樹脂(X1)、及具有下述特性(X2-1)~(X2-6)之聚丙烯樹脂(X2)，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X1-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上；

(X1-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)；$$

(X1-5)利用GPC測定所得之分支指數g'(Mz<sub>abs</sub>)為0.70以上且0.95以下；

(X1-6)利用<sup>13</sup>C-NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上；

(X2-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式

1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^{\circ}\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1);$$

(X2-5)利用GPC測定所得之分支指數 $g'(\text{Mz}_{\text{abs}})$ 為0.70以上且0.95以下；

(X2-6)利用 $^{13}\text{C}$ -NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

其中，X1之MFR < X2之MFR，且X1之 $W_{1\text{M}} \geq$  X2之 $W_{1\text{M}}$ 。

#### 【請求項14】

如請求項13之積層體，其中上述聚丙烯系樹脂組合物層進而包含具有下述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)，

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下；

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件，

$$\log(\text{MT}170^{\circ}\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}A)。$$

#### 【請求項15】

如請求項14之積層體，其中上述聚丙烯系樹脂組合物層包含上述聚丙烯樹脂(X1)5質量%~30質量%、上述聚丙烯樹脂(X2)5質量%~50質量%、及上述聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)。

#### 【請求項16】

如請求項13至15中任一項之積層體，其中上述聚丙烯樹脂(X1)具有下述(X1-1)及(X1-3)之特性，

上述聚丙烯樹脂(X2)具有下述(X2-1)及(X2-3)之特性，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為30 g/10 min以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為2.5質量%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過30 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上且未達2.5質量%。

**【請求項17】**

如請求項14之積層體，其中上述聚丙烯樹脂(X1)具有下述(X1-1)及(X1-3)之特性，

上述聚丙烯樹脂(X2)具有下述(X2-1)及(X2-3)之特性，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為10 g/10 min以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為3.5質量%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上且未達3.5質量%。

**【請求項18】**

如請求項14或17之積層體，其中上述聚丙烯系樹脂組合物層包含上

述聚丙烯樹脂(X1)2質量%~30質量%、上述聚丙烯樹脂(X2)5質量%~98質量%、及上述聚丙烯系樹脂(Y)0質量%~80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)。

【請求項19】

一種積層體之製造方法，其特徵在於：其係包含基材層與聚丙烯系樹脂組合物層之積層體之製造方法，且具有如下步驟：

藉由在基材層之至少單面，將具有下述特性(X1-1)~(X1-6)之聚丙烯樹脂(X1)與具有下述特性(X2-1)~(X2-6)之聚丙烯樹脂(X2)之混合物或熔融混練物擠出層壓，而形成上述聚丙烯系樹脂組合物層，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X1-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上；

(X1-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)；$$

(X1-5)利用GPC測定所得之分支指數g'(M<sub>Zabs</sub>)為0.70以上且0.95以下；

(X1-6)利用<sup>13</sup>C-NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上；

(X2-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)；$$

(X2-5)利用GPC測定所得之分支指數g'(Mz<sub>abs</sub>)為0.70以上且0.95以下；

(X2-6)利用<sup>13</sup>C-NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

其中，X1之MFR < X2之MFR，且X1之W<sub>1M</sub> ≥ X2之W<sub>1M</sub>。

#### 【請求項20】

如請求項19之積層體之製造方法，其中形成上述聚丙烯系樹脂組合物層之步驟係藉由在上述基材層之至少單面，將上述聚丙烯樹脂(X1)、上述聚丙烯樹脂(X2)、以及具有下述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)之混合物或熔融混練物擠出層壓，而形成上述聚丙烯系樹脂組合物層之步驟，

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下；



(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式A})。$$

**【請求項21】**

如請求項20之積層體之製造方法，其中形成上述聚丙烯系樹脂組合物層之步驟係藉由將上述聚丙烯樹脂(X1)5質量%~30質量%、上述聚丙烯樹脂(X2)5質量%~50質量%、及上述聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%之混合物或熔融混練物(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)擠出層壓，而形成上述聚丙烯系樹脂組合物層之步驟。

**【請求項22】**

如請求項19至21中任一項之積層體之製造方法，其中上述聚丙烯樹脂(X1)具有下述(X1-1)及(X1-3)之特性，

上述聚丙烯樹脂(X2)具有下述(X2-1)及(X2-3)之特性，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為30 g/10 min以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為2.5質量%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過30 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上且未達2.5質量%。

**【請求項23】**

如請求項20之積層體之製造方法，其中上述聚丙烯樹脂(X1)具有下述(X1-1)及(X1-3)之特性，

上述聚丙烯樹脂(X2)具有下述(X2-1)及(X2-3)之特性，

(X1-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過0.5 g/10 min且為10 g/10 min以下；

(X1-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為3.5質量%以上；

(X2-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為80 g/10 min以下；

(X2-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率( $W_{1M}$ )為0.5質量%以上且未達3.5質量%。

#### 【請求項24】

如請求項20或23之積層體之製造方法，其中形成上述聚丙烯系樹脂組合物層之步驟係藉由將上述聚丙烯樹脂(X1)2質量%~30質量%、上述聚丙烯樹脂(X2)5質量%~98質量%、及上述聚丙烯系樹脂(Y)0質量%~80質量%之混合物或熔融混練物(其中，聚丙烯樹脂(X1)、聚丙烯樹脂(X2)、及聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)擠出層壓，而形成上述聚丙烯系樹脂組合物層之步驟。

#### 【請求項25】

一種聚丙烯系樹脂組合物，其包含：具有下述特性(X-1)~(X-6)之聚丙烯樹脂(X)20質量%~80質量%、及

具有下述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)，

(X-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為70 g/10 min以下；

(X-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(M<sub>w</sub>)與數量平均分子量(M<sub>n</sub>)之比(M<sub>w</sub>/M<sub>n</sub>)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(M<sub>z</sub>)與重量平均分子量(M<sub>w</sub>)之比(M<sub>z</sub>/M<sub>w</sub>)為2.0以上且5.0以下；

(X-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上且4.0質量%以下；

(X-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式1}) ;$$

(X-5)利用GPC測定所得之分支指數g'(M<sub>z</sub><sub>abs</sub>)為0.70以上且0.95以下；

(X-6)利用<sup>13</sup>C-NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下；

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式A})。$$

### 【請求項26】

一種聚丙烯系樹脂組合物之製造方法，其具有如下步驟：

獲得具有下述特性(X-1)～(X-6)之聚丙烯樹脂(X)之步驟；

獲得具有下述特性(Y-1)～(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)之步驟；及

將上述聚丙烯樹脂(X)20質量%~80質量%與上述聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%混合或熔融混練(其中，聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)之步驟；

(X-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為70 g/10 min以下；

(X-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上且4.0質量%以下；

(X-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)；$$

(X-5)利用GPC測定所得之分支指數g'(Mz<sub>abs</sub>)為0.70以上且0.95以下；

(X-6)利用<sup>13</sup>C-NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下；

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}A)。$$

【請求項27】

一種積層體，其特徵在於：其係包含基材層與聚丙烯系樹脂組合物層者，且

上述聚丙烯系樹脂組合物層包含：具有下述特性(X-1)~(X-6)之聚丙烯樹脂(X)20質量%~80質量%、及具有下述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%(其中，聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)，

(X-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為70 g/10 min以下；

(X-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上且4.0質量%以下；

(X-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式}1)；$$

(X-5)利用GPC測定所得之分支指數g'(Mz<sub>abs</sub>)為0.70以上且0.95以下；

(X-6)利用<sup>13</sup>C-NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以上；

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以下；

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)

之要件，

$$\log(\text{MT}170^{\circ}\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式A})。$$

**【請求項28】**

一種積層體之製造方法，其特徵在於：其係包含基材層與聚丙烯系樹脂組合物層之積層體之製造方法，且具有如下步驟：

藉由在基材層之至少單面，將具有下述特性(X-1)~(X-6)之聚丙烯樹脂(X)20質量%~80質量%、及具有下述特性(Y-1)~(Y-2)之聚丙烯系樹脂(Y)20質量%~80質量%之混合物或熔融混練物(其中，聚丙烯樹脂(X)與聚丙烯系樹脂(Y)之合計量為100質量%)擠出層壓，而形成上述聚丙烯系樹脂組合物層，

(X-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)超過10 g/10 min且為70 g/10 min以下；

(X-2)藉由GPC所獲得之重量平均分子量(Mw)與數量平均分子量(Mn)之比(Mw/Mn)為2.0以上且5.0以下，且Z平均分子量(Mz)與重量平均分子量(Mw)之比(Mz/Mw)為2.0以上且5.0以下；

(X-3)於藉由GPC所獲得之積分分子量分佈曲線中，分子量為100萬以上之成分之比率(W<sub>1M</sub>)為0.5質量%以上且4.0質量%以下；

(X-4)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式1)之要件，

$$\log(\text{MT}170^{\circ}\text{C}) \geq -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式1})；$$

(X-5)利用GPC測定所得之分支指數g'(Mz<sub>abs</sub>)為0.70以上且0.95以下；

(X-6)利用<sup>13</sup>C-NMR所得之丙烯單元三鏈之三分體分率(mm)為95%以

上；

(Y-1)MFR(230°C、荷重2.16 kgf)為10 g/10 min以上且50 g/10 min以

下；

(Y-2)於170°C下測定之熔融張力(MT170°C)(單位：g)滿足下述(式A)

之要件，

$$\log(\text{MT}170^\circ\text{C}) < -1.1 \times \log(\text{MFR}) + 2.0 \quad (\text{式A})。$$