(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2020-0027968
(43) 공개일자 2020년03월13일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
G02B 5/30 (2006.01) *B32B 27/36* (2006.01)
B32B 7/023 (2019.01) *G02F 1/1335* (2019.01)
(52) CPC특허분류
G02B 5/30 (2013.01)
B32B 27/36 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2020-7003246
(22) 출원일자(국제) 2018년07월04일
심사청구일자 없음
(85) 번역문제출일자 2020년02월04일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2018/025294
(87) 국제공개번호 WO 2019/009316
국제공개일자 2019년01월10일
(30) 우선권주장
JP-P-2017-133703 2017년07월07일 일본(JP)

(71) 출원인
도요보 필름 솔루션 가부시키가시야
일본국 도쿄도 쥬오쿠 교바시 1쵸메 17방 10고
(72) 발명자
히로세, 아마네
일본국 1040031 도쿄도 쥬오쿠 교바시 1쵸메 17방 10고 도요보 필름 솔루션 가부시키가이샤 내
도조, 미츠오
일본국 1040031 도쿄도 쥬오쿠 교바시 1쵸메 17방 10고 도요보 필름 솔루션 가부시키가이샤 내
(74) 대리인
장수길, 오현식, 이석재

전체 청구항 수 : 총 5 항

(54) 발명의 명칭 **다층 적층 필름**

(57) 요 약

제1 수지를 포함하는 제1층과 제2 수지를 포함하는 제2층이 교대로 적층된 다층 적층 구조와, 여기에 접한 후막층을 갖고 있으며, 상기 다층 적층 구조는, 하나의 제1층과 하나의 제2층을 갖는 반복 단위의 물리 두께에서의 층 두께 프로파일을 갖고, 당해 층 두께 프로파일은 두께 단조 증가 영역과 박층 영역을 갖고, 상기 박층 영역은, 적어도 3개의 반복 단위를 갖고, 박층 영역에 있어서의 반복 단위의 최대 두께를 L2라 하여, 두께 단조 증가 영역에 있어서의 반복 단위의 최대 두께 L1과의 비 L2/L1이 0.85 이하이고, 또한 박층 영역의 평균 두께를 A2라 하여, 두께 단조 증가 영역에 있어서의 반복 단위의 최대 두께 L1과의 비 A2/L1이 0.70 이하인 영역이고, 상기 박층 영역이 두께 단조 증가 영역의 두께가 두꺼운 측에 있고, 그리고 후막층과 접하도록 존재하는, 다층 적층 필름.

대 표 도 - 도1



(52) CPC특허분류
B32B 7/023 (2019.01)
G02F 1/1335 (2019.01)

명 세 서

청구범위

청구항 1

제1 수지를 포함하는 제1층과 제2 수지를 포함하는 제2층이 교대로 적층된 다층 적층 구조와, 여기에 접한 후막층을 갖고 있으며,

상기 다층 적층 구조는, 하나의 제1층과 하나의 제2층을 갖는 반복 단위의 물리 두께에서의 층 두께 프로파일을 갖고, 당해 층 두께 프로파일은 두께 단조 증가 영역과 박층 영역을 갖고,

상기 박층 영역은, 적어도 3개의 반복 단위를 갖고, 박층 영역에 있어서의 반복 단위의 최대 두께를 L2라 하여, 두께 단조 증가 영역에 있어서의 반복 단위의 최대 두께 L1과의 비 L2/L1이 0.85 이하이고, 또한 박층 영역의 평균 두께를 A2라 하여, 두께 단조 증가 영역에 있어서의 반복 단위의 최대 두께 L1과의 비 A2/L1이 0.70 이하인 영역이고,

상기 박층 영역이 두께 단조 증가 영역의 두께가 두꺼운 측에 있고, 그리고 후막층과 접하도록 존재하는, 다층 적층 필름.

청구항 2

제1항에 있어서, 상기 박층 영역의 최대 두께 L2와 상기 두께 단조 증가 영역의 최소 두께 S1의 비 L2/S1이 1.0을 초과하는, 다층 적층 필름.

청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서, 상기 제1층은 복굴절성이며, 상기 제2층은 등방성이며, 이들 층의 광학 간섭에 의해 파장 380 내지 780㎚에 있는 광을 반사 가능한, 다층 적층 필름.

청구항 4

제1항 내지 제3항 중 어느 한 항에 기재된 다층 적층 필름을 사용한 휘도 향상 부재.

청구항 5

제1항 내지 제3항 중 어느 한 항에 기재된 다층 적층 필름을 사용한 액정 디스플레이용 편광판.

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] 본 개시는 다층 적층 필름에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0002] 굴절률이 낮은 층(저굴절률 층)과 높은 층(고굴절률 층)을 교대로 다수 적층시킨 다층 적층 필름은, 층간의 구조적인 광 간섭에 의해 특정 파장의 광을 선택적으로 반사 또는 투과하는 광학 간섭 필름으로 할 수 있다.

[0003] 이러한 다층 적층 필름은, 각 층의 막 두께를 두께 방향을 따라서 서서히 변화시키거나, 다른 반사 피크를 갖는 필름을 접합하거나 함으로써, 폭넓은 파장 범위에 걸쳐 광을 반사 또는 투과할 수 있고, 금속을 사용한 필름과 동등한 높은 반사율을 얻을 수도 있으며, 금속 광택 필름이나 반사 미러로서 사용할 수도 있다. 나아가, 이러한 다층 적층 필름을 일 방향으로 연신함으로써, 특정한 편광 성분만을 반사하는 반사 편광 필름으로서도 사용할 수 있고, 액정 디스플레이 등의 휘도 향상 부재 등에 사용할 수 있는 것이 알려져 있다(특허문헌 1 내지 4 등).

[0004] 예를 들어, 특허문헌 2 등에 기재되어 있는 폴리에틸렌-2,6-나프탈렌디카르복실레이트(이하, 2,6-PEN이라 칭하는 경우가 있다.)를 고굴절률 층에 사용하고, 열가소성 엘라스토머나 테레프탈산을 30mol% 공중합한 PEN을 저

굴절률 층에 사용한 다층 적층 필름의 경우, 1축 연신 방향의 층간 굴절률차를 크게 하여, P 편광(1축 연신 방향을 포함하는 입사면에 평행한 편광)의 반사율을 높이고, 한편으로 필름면내 방향에 있어서 상기 1축 연신 방향과 직교하는 방향의 층간의 굴절률차를 작게 하여, S 편광(1축 연신 방향을 포함하는 입사면에 수직한 편광)의 투과율을 높임으로써, 일정 레벨의 편광 성능이 발현되고 있다.

[0005] 또한, 이러한 다층 적층 필름에 있어서는, 필름의 두께를 핸들링성이 양호한 두께로 하거나 하기 위해서, 후막층을 갖는 경우가 있다(특허문헌 5).

[0006] 특허문헌 1: 일본 특허 공개 평4-268505호 공보

[0007] 특허문헌 2: 일본 특허 공표 평9-506837호 공보

[0008] 특허문헌 3: 일본 특허 공표 평9-506984호 공보

[0009] 특허문헌 4: 국제 공개 제01/47711호 팸플릿

[0010] 특허문헌 5: 일본 특허 공개 제2003-251675호 공보

발명의 내용

해결하려는 과제

[0011] 그러나, 종래 검토되었던 다층 적층 필름에서는, 층간의 밀착성이 충분하지 못한 경우가 있어, 예를 들어 후속 가공 등을 행할 때에 응력이 걸리는 것 등이 원인이 되어 층간에서 박리되어버리는 문제가 있었다.

[0012] 이러한 박리에 대하여, 본 발명자들의 검토에 의하면, 특히 후막층을 갖는 경우에, 다층 구조 부분과 후막층이 박리되기 쉬운 것을 발견하고, 이것에 착안하였다.

[0013] 그래서 본 발명의 일 실시 형태는, 층간 밀착성이 개선된 다층 적층 필름을 제공하는 것을 목적으로 한다.

과제의 해결 수단

[0014] 본 발명자들은 상기 과제를 해결하기 위해 예의 연구를 거듭한 결과, 다층 구조 부분에 있어서의 단조 증가 영역의, 막 두께가 두꺼운 측과 얇은 측에서 층간 밀착성이 상이한 것을 발견하고, 응력 완화 기능에 착안하여, 층간 밀착성이 떨어지는 측에 있어서도 응력 완화를 하기 쉽게 함으로써 층간 밀착성이 향상되는 것을 발견하고, 본 발명을 완성하기에 이르렀다.

[0015] 본 발명은 이하의 양태를 포함한다.

[0016] 1. 제1 수지를 포함하는 제1층과 제2 수지를 포함하는 제2층이 교대로 적층된 다층 적층 구조와, 여기에 접한 후막층을 갖고 있으며,

[0017] 상기 다층 적층 구조는, 하나의 제1층과 하나의 제2층을 갖는 반복 단위의 물리 두께에서의 층 두께 프로파일을 갖고, 당해 층 두께 프로파일은 두께 단조 증가 영역과 박층 영역을 갖고,

[0018] 상기 박층 영역은 적어도 3개의 반복 단위를 갖고, 박층 영역에 있어서의 반복 단위의 최대 두께를 L2라 하여, 두께 단조 증가 영역에 있어서의 반복 단위의 최대 두께 L1과의 비 L2/L1이 0.85 이하이고, 또한 박층 영역의 평균 두께를 A2라 하여, 두께 단조 증가 영역에 있어서의 반복 단위의 최대 두께 L1과의 비 A2/L1이 0.70 이하인 영역이고,

[0019] 상기 박층 영역이 두께 단조 증가 영역의 두께가 두꺼운 측에 있고, 그리고 후막층과 접하도록 존재하는 다층 적층 필름.

[0020] 2. 상기 박층 영역의 최대 두께 L2와 상기 두께 단조 증가 영역의 최소 두께 S1의 비 L2/S1이 1.0을 초과하는, 상기 1에 기재된 다층 적층 필름.

[0021] 3. 상기 제1층은 복굴절성이며, 상기 제2층은 등방성이며, 이들 층의 광학 간섭에 의해 파장 380 내지 780㎚에 있는 광을 반사 가능한, 상기 1 또는 2에 기재된 다층 적층 필름.

[0022] 4. 상기 1 내지 3 중 어느 하나에 기재된 다층 적층 필름을 사용한 휘도 향상 부재.

[0023] 5. 상기 1 내지 3 중 어느 하나에 기재된 다층 적층 필름을 사용한 액정 디스플레이용 편광판.

발명의 효과

[0024] 본 발명의 일 실시 형태에 의하면, 층간 밀착성이 개선된 다층 적층 필름을 제공할 수 있다.

[0025] 또한, 본 발명의 일 실시 형태에 의하면, 예를 들어 편광 성능이 요구되는 휘도 향상 부재, 반사형 편광판 등으로서 사용한 경우에, 다른 부재와의 접합, 액정 디스플레이로의 조립, 사용 시 등에 가해지는 외력에 의해 층간 박리가 발생하기 어려운 점에서, 보다 신뢰성이 높은 휘도 향상 부재, 액정 디스플레이용 편광판 등을 제공할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0026] 도 1은 본 발명의 다층 적층 필름의 적층 구조의 일례를 나타내는 모식도이다.

도 2는 본 발명에 있어서의 다층 적층 구조의 층 두께 프로파일의 일례를 나타내는 모식도이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0027] 본 발명의 각 구성에 대하여 이하에 상세하게 설명한다.

[0028] [다층 적층 필름]

[0029] 본 발명의 일 실시 형태의 다층 적층 필름은, 제1 수지로 주로 이루어지는 제1층과 제2 수지로 주로 이루어지는 제2층이 교대로 적층된 다층 적층 구조를 갖는다. 본 개시에 있어서 「주로 이루어지는」이란, 각 층에 있어서 수지를 포함하는 것을 의미한다. 구체적으로는, 수지가 각 층의 전체 질량에 대하여 70질량% 이상을 차지하는 것을 말하고, 바람직하게는 80질량% 이상, 보다 바람직하게는 90질량% 이상이다.

[0030] 본 발명의 일 실시 형태에 있어서는, 제1층과 제2층에 의한 광의 간섭 효과가 발현되는 형태로 하고, 임의의 파장 영역에 있어서 반사 가능한 양태로 해도 된다. 이 경우, 제1층을 복굴절성으로 하고, 제2층을 등방성으로 하는 것이 바람직하다. 또한, 간섭 효과 발현에는, 적층수는 합계로 30층 이상으로 하는 것이 바람직하다.

[0031] 이러한 반사 특성으로 하기 위해서, 다층 적층 구조는, 제1 수지로 주로 이루어지는 막 두께가 10 내지 1000nm인 복굴절성의 제1층과, 제2 수지로 주로 이루어지는 막 두께가 10 내지 1000nm인 등방성의 제2층이 합계 30층 이상으로 두께 방향으로 교대로 적층한 구조를 갖는 것이 바람직하다. 또한, 이 경우, 각 층을 구성하는 수지에 대하여는, 상세한 것은 후술하지만, 복굴절성의 층 및 등방성의 층을 형성할 수 있는 것이면 특별히 제한되지 않는다. 어느 것도, 필름을 제조하기 쉬운 관점에서, 열가소성 수지가 바람직하다. 또한, 본 개시에 있어서는, 세로 방향, 가로 방향, 두께 방향의 굴절률에 대하여, 최대와 최소의 차가 0.1 이상인 것을 복굴절성, 0.1 미만인 것을 등방성이라 한다.

[0032] 또한 본 발명의 일 실시 형태의 다층 적층 필름은, 상기 다층 적층 구조에 접한 후막층을 갖는다. 다층 적층 구조에서는, 각 층의 두께가 광학 특성에 영향을 미치기 때문에, 요구하는 광학 특성이 있는 경우, 함부로 각 층의 두께를 변경할 수 없다. 그 때문에, 후막층을 가짐으로써, 다층 적층 필름의 전체로서의 두께를 두껍게 하여, 예를 들어 핸들링성을 향상시키거나 할 수 있다.

[0033] 도 1에 본 발명의 다층 적층 필름의 적층 구조의 일례의 모식도를 나타낸다. 도 1에 있어서는, 다층 적층 구조(3)가 후막층(1, 2)과 접해 있다.

[0034] 본 발명의 일 실시 형태의 다층 적층 필름은, 각종 광학 두께의 제1층 및 제2층을 가짐으로써, 폭넓은 파장 범위의 광을 반사하는 것이 가능해진다. 이것은, 반사 파장이 다층 적층 필름을 구성하는 각 층의 광학 두께에서 기인하기 때문이다. 일반적으로 다층 적층 필름의 반사 파장은, 하기 (식 1)로 나타난다.

[0035] $\lambda=2(n1\times d1+n2\times d2)$ (식 1)

[0036] 상기 식 중, λ는 반사 파장(nm), n1, n2는 각각 제1층, 제2층의 굴절률, d1, d2는 각각 제1층, 제2층의 물리 두께(nm)를 나타낸다.

[0037] 상기한 것을 감안하면, 파장 380 내지 780nm에 있는 광을 폭넓게 반사 가능한 층 두께 프로파일로 할 수 있다. 예를 들어, 단조 증가 영역에 있어서의 두께 범위를 넓게 하여, 폭넓은 파장 범위의 광을 반사하도록 설계할 수도 있고, 이러한 단조 증가 영역에서는 특정한 파장 범위의 광을 반사하도록 하고, 다른 영역에서 이러한 특정한 파장 범위 이외의 광을 반사하도록 하여, 전체로서 폭넓은 파장 범위의 광을 반사하도록 설계할 수도 있다.

[0038] 단조 증가 영역에 있어서의 두께 범위를 넓게 한다는 것은, 예를 들어 단조 증가 영역에 있어서의 반복 단위의 물리 두께에서의 최소 두께를 약 130nm 이하, 바람직하게는 약 128nm 이하, 바람직하게는 약 80 내지 약 130nm, 바람직하게는 약 86 내지 약 128nm로 하고, 최대 두께를 약 240nm 이상, 바람직하게는 약 245nm 이상, 바람직하게는 약 240 내지 약 320nm, 바람직하게는 약 245 내지 약 314nm로 할 수 있다.

[0039] 본 개시에 있어서 반사 가능이란, 적어도 필름면내의 임의의 일 방향에 있어서, 이러한 방향과 평행한 편광의 법선 입사에서의 평균 반사율이 50% 이상인 것을 말한다. 이러한 반사는, 각 파장 범위에서의 평균 반사율로서 50% 이상이면 되고, 바람직하게는 60% 이상, 보다 바람직하게는 70% 이상이다.

[0040] 본 개시에 있어서 평균 반사율이란, 편광 필름 측정 장치(니혼 분코 가부시키가이샤제 「VAP7070S」)를 사용하여 구한, 파장 380 내지 780nm에서의 평균 투과율을 100으로부터 뺀 값이다.

[0041] [층 두께 프로파일]

[0042] 본 발명의 일 실시 형태에 있어서는, 다층 적층 구조의 층 두께 프로파일을 특정한 형태로 함으로써, 층간 밀착성을 개선할 수 있다.

[0043] 구체적으로는, 본 발명의 일 실시 형태에 있어서의 다층 적층 구조는, 하나의 제1층과 하나의 제2층을 갖는 반복 단위의 물리 두께에서의 층 두께 프로파일을 갖고, 당해 층 두께 프로파일은 두께 단조 증가 영역과 박층 영역을 갖고 있다. 당해 박층 영역은 적어도 3개의 반복 단위를 갖고, 박층 영역에 있어서의 반복 단위의 최대 막 두께를 L2라 하여, 두께 단조 증가 영역에 있어서의 반복 단위의 최대 두께 L1과의 비 L2/L1이 0.85 이하이고, 또한 박층 영역의 평균 두께를 A2라 하여, 두께 단조 증가 영역에 있어서의 반복 단위의 최대 두께 L1과의 비 A2/L1이 0.70 이하인 영역이다. 그리고, 상기 박층 영역이 두께 단조 증가 영역의 두께가 두꺼운 측에 있고, 후막층과 접하도록 구성된다.

[0044] 도 2에, 본 발명에 있어서의 다층 적층 구조의 층 두께 프로파일의 일례의 모식도를 나타낸다. 여기에서는, 반복 단위 번호 1 내지 133이 두께 단조 증가 영역이며, 반복 단위 번호 134 내지 138이 박층 영역이다. 부언하면, 하나의 반복 단위(이것은 하나의 제1층과 하나의 제2층을 갖는 것임)에 하나의 번호를 붙이고 있다. 또한, 이러한 도면에서는, 번호가 큰 쪽이 두께 단조 증가 영역의 두께가 두꺼운 측이다. 그리고, 반복 단위 번호 138의 반복 단위의 번호가 더 큰 측에, 이것에 접하여 후막층을 갖게 된다. 단조 증가 영역과 박층 영역 사이에는 다른 영역을 갖고 있어도 된다.

[0045] 본 발명의 일 실시 형태에 있어서는, 후술하는 바와 같이 더블링 등에 의해 층수를 증가하는 것도 가능하지만, 이러한 경우에 있어서는, 하나의 패킷에 관한 층 두께 프로파일을 보면 되고, 이러한 하나의 패킷은 다층 적층 필름이 될 수 있다. 패킷은, 다층 적층 필름의 전체의 층 두께 프로파일을 보았을 때, 예를 들어 동일한 층 두께 프로파일의 부분이 복수이면, 각각이 패킷이라고 간주할 수 있고, 중간층 등으로 구획된 각각의 다층 구조 부분은 다른 패킷이라고 간주할 수 있다.

[0046] [반복 단위의 물리 두께]

[0047] 본 개시에 있어서 반복 단위의 물리 두께는, 하기 (식 2)로 표시된다.

[0048] dp=d1+d2 (식 2)

[0049] 상기 식 중, dp는 반복 단위의 물리 두께, d1, d2는 각각 당해 반복 단위를 구성하는 제1층, 제2층의 물리 두께(nm)를 나타낸다.

[0050] 여기에서의 물리 두께는 투과형 전자 현미경을 사용하여 촬영한 사진으로부터 구한 것을 채용할 수 있다.

[0051] [두께 단조 증가 영역]

[0052] 본 발명의 일 실시 형태에 있어서 「두께 단조 증가 영역」은, 두께 단조 증가 영역의 전부에 있어서 보다 두꺼운 측의 반복 단위가 보다 얇은 측의 반복 단위보다도 두꺼워져 있는 것이 바람직하지만, 여기에 한정되지 않고, 전체를 보아 두께가 보다 얇은 측으로부터 보다 두꺼운 측으로 두께가 증가하고 있는 경향이 보이면 된다. 보다 구체적으로는, 반복 단위의 물리 두께가 보다 얇은 측으로부터 보다 두꺼운 측을 향해 반복 단위에 번호를 붙여, 그것을 횡축이라 하고, 각 반복 단위의 물리 두께에서의 막 두께를 종축에 플롯하였을 때, 막 두께가 증가 경향을 나타내는 범위 내에서의 반복 단위수를 5 등분하고, 막 두께가 두꺼워지는 방향으로, 등분된 각 에어리어에서의 막 두께의 평균값이 단조로 증가하고 있는 경우에는 단조 증가라고 하고, 그렇지 않은 경우

에는 단조 증가가 아니라고 하였다.

[0053] 부언하면, 상기 두께 단조 증가 영역은, 다층 적층 구조에 있어서, 반복 단위수로 80% 이상, 바람직하게는 90% 이상, 보다 바람직하게는 95% 이상의 부분을 차지하는 양태여도 된다.

[0054] 제1층과 제2층은 교대로 다층 적층되어 다층 적층 구조를 형성하는 바, 단조 증가 영역의 범위는, 다층 적층 구조로서 광학 간섭에 의해 파장 380 내지 780nm의 광을 반사 가능한 범위를 가져도 된다. 또한, 단조 증가 영역의 범위는, 다층 적층 구조를 형성하였을 때에 파장 380 내지 780nm의 광을 반사 가능한 범위를 초과하는 넓이를 가져도 된다.

[0055] [박층 영역]

[0056] 본 발명의 일 실시 형태에 있어서 「박층 영역」은, 두께 단조 증가 영역에 속하지 않는 두께 프로파일의 부분이며, 두께 단조 증가 영역의 두께가 두꺼운 측에 존재하는, 적어도 3개의 반복 단위로 구성되는 영역이다.

[0057] 본 발명자들은, 다층 적층 필름의 층간 박리는, 후막층과 다층 적층 구조의 경계 계면에서 일어나기 쉬운 것, 그리고 두께가 두꺼운 제1층과 제2층이 교대로 적층된 영역보다도, 그것보다도 두께가 얇은 제1층과 제2층이 교대로 적층된 영역쪽이, 후막층과의 밀착성이 높은 것을 발견하고, 이것에 착안하였다. 그래서, 두께 단조 증가 영역이 두꺼운 쪽, 이것은 즉, 상대적으로 두께가 두꺼운 제1층과 제2층이 교대로 적층된 영역이 되지만, 이러한 영역과 후막층 사이에 그것보다도 상대적으로 두께가 얇은 영역인 박층 영역을 마련함으로써, 이러한 박층 영역은, 상대적으로 두께가 얇은 제1층과 제2층이 교대로 적층된 영역이기 때문에, 후막층과의 경계 계면에서 발생하는 응력을 작게 하여, 층간 밀착성을 개선하는 것이 가능해진다고 생각된다.

[0058] 그 박층 영역의 최대 두께는, 두께 단조 증가 영역의 최대 두께보다도 얇은 것이 필요하다. 구체적으로는, 박층 영역에 있어서의 반복 단위의 최대 두께 L2와, 두께 단조 증가 영역에 있어서의 반복 단위의 최대 두께 L1의 비 L2/L1이 0.85 이하이다. 또한, 박층 영역의 평균 두께 A2와, 두께 단조 증가 영역에 있어서의 반복 단위의 최대 두께 L1의 비 A2/L1이 0.70 이하이다. 이렇게 얇은 박층 영역을 가짐으로써, 층간 밀착성 향상의 효과가 발휘된다. 이러한 관점에서, L2/L1은 0.80 이하인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 0.75 이하이고, 더욱 바람직하게는 0.70 이하이다. 또한, A2/L1은 0.65 이하인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 0.60 이하이고, 더욱 바람직하게는 0.55 이하이다.

[0059] 박층 영역의 최대 두께 L2가 두께 단조 증가 영역의 최소 두께 S1과 동일하거나 그것보다도 얇은 경우, 통상적으로 단조 증가 영역에 대하여, 박층 영역이 전체적으로 상당히 얇게 되어, 그러한 박막을 고정밀도로 제조하는 것이 곤란한 경향이 있고, 박막이 형성되지 않거나 하면 층간 밀착성의 향상 효과가 작아지는 경향이 있다. 그 때문에, 박층 영역의 최대 두께 L2와 단조 증가 영역의 최소 두께 S1과의 두께비 L2/S1은, 1.0을 초과하는 범위가 바람직하고, 1.05 이상이 보다 바람직하고, 더욱 바람직하게는 1.10 이상이며, 특히 바람직하게는 1.15 이상이다. 또한, 박층 영역의 평균 두께 A2와 단조 증가 영역의 최소 두께 S1의 두께비 A2/S1은, 1.0을 초과하는 범위가 바람직하고, 1.05 이상이 보다 바람직하고, 더욱 바람직하게는 1.10 이상이며, 특히 바람직하게는 1.15 이상이다.

[0060] 박층 영역에 있어서의 제1층과 제2층의 반복 단위의 수는, 3 이상이며, 4 이상이나 5 이상이어도 된다. 반복 단위수가 적절하게 많은 쪽이, 층간 밀착성이 더욱 향상된다. 한편, 너무 많으면 단조 증가 영역에 있어서의 반복 단위수가 저감하는 방향이 되고, 폭넓은 파장 범위에 걸친 반사가 어려워지는 경향이 되기 때문에, 15 이하나 10 이하가 바람직하다. 또한, 박층 영역에는, 제1층과 제2층의 반복 단위 이외에도, 단독으로 제1층 또는 제2층을 갖고 있어도 된다.

[0061] 구체적으로는, 이하와 같은 박층 영역일 수 있다.

[0062] · 반복 단위의 수가 3이며, 이러한 범위에 있어서, 상기 L2/L1, A2/L1, 바람직하게는 L2/S1, A2/S1을 만족시키는 양태.

[0063] · 반복 단위의 수가 4이며, 이러한 범위에 있어서, 상기 L2/L1, A2/L1, 바람직하게는 L2/S1, A2/S1을 만족시키는 양태.

[0064] · 반복 단위의 수가 5이며, 이러한 범위에 있어서, 상기 L2/L1, A2/L1, 바람직하게는 L2/S1, A2/S1을 만족시키는 양태.

[0065] · 반복 단위의 수가 6이며, 이러한 범위에 있어서, 상기 L2/L1, A2/L1, 바람직하게는 L2/S1, A2/S1을 만족시키

는 양태.

[0066] 동일하게 하여, 반복 단위의 수가 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 14, 15인 경우에, 각각의 범위에 있어서, 상기 L2/L1, A2/L1, 바람직하게는 L2/S1, A2/S1을 만족시키는 양태일 수 있다. 또한, 반복 단위의 수가 4 이상인 경우, 후막층으로부터 3개의 반복 단위의 범위에 있어서도 A2/L1을 만족시키고 있는 것이 바람직하지만, 만족시키지 않아도 된다. 후막층으로부터 4개째 이후의 반복 단위도 포함하여 박층 영역 전체로서 밀착성 향상의 효과를 발휘할 수 있기 때문이다.

[0067] 본 발명의 일 실시 형태는, 이와 같이, 적절한 두께 범위에 있는 박층 영역을, 후막층과 접하도록 가짐으로써, 다층 적층 구조와 후막층의 밀착성을 향상시킨다고 하는 것이다.

[0068] [다층 적층 필름의 구성]

[0069] 본 발명의 일 실시 형태에 의한 층간 밀착성 개선의 효과는, 다층 적층 구조와 그것에 접한 후막층을 갖는 다층 적층 필름이면, 용도에 구애받지 않고 발휘되는 것이다.

[0070] 다층 적층 필름의 바람직한 용도로서, 제1층과 제2층의 광학 간섭을 이용하는 용도를 들 수 있다. 이하, 이러한 광학 간섭을 이용하는 용도에 적합한 다층 적층 필름의 바람직한 구성에 대하여 설명한다.

[0071] [제1층]

[0072] 본 발명의 일 실시 형태의 다층 적층 필름을 구성하는 제1층은, 복굴절성의 층일 수 있고, 이 경우 이것을 구성하는 수지(본 개시에 있어서, 제1 수지라고도 함)는, 복굴절성의 층을 형성할 수 있는 것이다. 따라서, 제1층을 구성하는 수지로서는 배향 결정성의 수지가 바람직하고, 이러한 배향 결정성의 수지로서 특히 폴리에스테르가 바람직하다. 해당 폴리에스테르는, 그것을 구성하는 반복 단위를 기준으로 하여 바람직하게는 에틸렌테레프탈레이트 단위 및/또는 에틸렌나프탈레이트 단위를, 보다 바람직하게는 에틸렌나프탈레이트 단위를, 80몰% 이상 100몰% 이하의 범위로 함유하는 것이, 더 높은 굴절률의 층으로 하기 쉽고, 그것에 의해 제2층과의 굴절률차를 크게 하기 쉬운 점에서 바람직하다. 여기서 수지가 병용되는 경우에는, 합계의 함유량이다.

[0073] (제1층의 폴리에스테르)

[0074] 제1층의 바람직한 폴리에스테르로서, 디카르복실산 성분으로서 나프탈렌디카르복실산 성분을 함유하고, 그의 함유량은 해당 폴리에스테르를 구성하는 디카르복실산 성분을 기준으로 하여 80몰% 이상 100몰% 이하인 것이 바람직하다. 이러한 나프탈렌디카르복실산 성분으로서는, 2,6-나프탈렌디카르복실산 성분, 2,7-나프탈렌디카르복실산 성분 또는 이들의 조합으로부터 유도되는 성분, 혹은 그들의 유도체 성분을 들 수 있고, 특히 2,6-나프탈렌디카르복실산 성분 혹은 그의 유도체 성분이 바람직하게 예시된다. 나프탈렌디카르복실산 성분의 함유량은 바람직하게는 85몰% 이상, 보다 바람직하게는 90몰% 이상이며, 또한 바람직하게는 100몰% 미만, 보다 바람직하게는 98몰% 이하, 더욱 바람직하게는 95몰% 이하이다.

[0075] 제1층의 폴리에스테르를 구성하는 디카르복실산 성분으로서는, 나프탈렌디카르복실산 성분 이외에 추가로 본 발명의 목적을 손상시키지 않는 범위에서 테레프탈산 성분, 이소프탈산 성분 등을 함유해도 되고, 그 중에서도 테레프탈산 성분을 함유하는 것이 바람직하다. 함유량은 0몰%를 초과하고, 20몰% 이하의 범위인 것이 바람직하다. 이러한 제2 디카르복실산 성분의 함유량은 보다 바람직하게는 2몰% 이상, 더욱 바람직하게는 5몰% 이상이며, 또한 보다 바람직하게는 15몰% 이하, 더욱 바람직하게는 10몰% 이하이다.

[0076] 액정 디스플레이 등에 사용되는 휘도 향상 부재나 반사형 편광판으로서 사용하는 경우, 제1층이 제2층보다도 상대적으로 고굴절률 특성을 갖는 층이고, 제2층이 제1층보다도 상대적으로 저굴절률 특성을 갖는 층이며, 또한 1축 방향으로 연신하는 것이 바람직하다. 부언하면, 이 경우, 본 개시에 있어서는, 1축 연신 방향을 TD 방향, 필름면내에 있어서 TD 방향과 직교하는 방향을 MD 방향(비연신 방향이라고도 한다.), 필름면에 대하여 수직인 방향을 Z 방향(두께 방향이라고도 한다.)이라 칭하는 경우가 있다.

[0077] 제1층에, 상기와 같이 나프탈렌디카르복실산 성분을 주성분으로서 함유하는 폴리에스테르를 사용함으로써, TD 방향으로 고굴절률을 나타냄과 동시에 1축 배향성이 높은 복굴절률 특성을 실현할 수 있고, TD 방향에 대하여 제2층과의 굴절률차를 크게 할 수 있어, 고편광도에 기여한다. 한편, 나프탈렌디카르복실산 성분의 함유량이 하한값 미만이면, 비정질성의 특성이 커지고, TD 방향의 굴절률 nTD와, MD 방향의 굴절률 nMD의 차이가 작아지는 경향이 있기 때문에, 다층 적층 필름에 있어서, 필름면을 반사면으로 하고, 1축 연신 방향(TD 방향)을 포함하는 입사면에 대하여 평행한 편광 성분이라 정의되는 본 발명에 있어서의 P 편광 성분에 대하여 충분한 반사 성능을 얻기 어려워지는 경향이 있다. 부언하면, 본 발명에 있어서의 S 편광 성분이란, 다층 적층 필름에 있어

서, 필름면을 반사면으로 하고, 1축 연신 방향(TD 방향)을 포함하는 입사면에 대하여 수직인 편광 성분이라 정의된다.

[0078] 제1층의 바람직한 폴리에스테르를 구성하는 디올 성분으로서는, 에틸렌글리콜 성분이 사용되고, 그의 함유량은 해당 폴리에스테르를 구성하는 디올 성분을 기준으로 하여 80몰% 이상 100몰% 이하인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 85몰% 이상 100몰% 이하, 더욱 바람직하게는 90몰% 이상 100몰% 이하, 특히 바람직하게는 90몰% 이상 98몰% 이하이다. 해당 디올 성분의 비율이 하한값 미만인 경우에는, 전술한 1축 배향성이 손상되는 경우가 있다.

[0079] 제1층의 폴리에스테르를 구성하는 디올 성분으로서, 에틸렌글리콜 성분 이외에, 추가로 본 발명의 목적을 손상시키지 않는 범위에서 트리메틸렌글리콜 성분, 테트라메틸렌글리콜 성분, 시클로헥산디메탄올 성분, 디에틸렌글리콜 성분 등을 함유해도 된다.

[0080] (제1층의 폴리에스테르의 특성)

[0081] 제1층에 사용되는 폴리에스테르의 융점은, 바람직하게는 220 내지 290℃의 범위, 보다 바람직하게는 230 내지 280℃의 범위, 더욱 바람직하게는 240 내지 270℃의 범위이다. 융점은 시차 주사 열량계(DSC)로 측정하여 구할 수 있다. 해당 폴리에스테르의 융점이 상한값을 초과하면, 용융 압출하여 성형할 때에 유동성이 떨어지고, 토출 등이 불균일화되기 쉬워지는 경우가 있다. 한편, 융점이 하한값 미만이면, 제막성은 우수하기는 하지만, 폴리에스테르가 갖는 기계적 특성 등이 손상되기 쉬워지고, 또한 액정 디스플레이의 휘도 향상 부재나 반사형 편광판으로서 사용될 때의 굴절률 특성이 발현되기 어려운 경향이 있다.

[0082] 제1층에 사용되는 폴리에스테르의 유리 전이 온도(이하, Tg라 칭하는 경우가 있다.)는, 바람직하게는 80 내지 120℃, 보다 바람직하게는 82 내지 118℃, 더욱 바람직하게는 85 내지 118℃, 특히 바람직하게는 100 내지 115℃의 범위에 있다. Tg가 이 범위에 있으면, 내열성 및 치수 안정성이 우수하고, 또한 액정 디스플레이의 휘도 향상 부재나 반사형 편광판으로서 사용될 때의 굴절률 특성을 발현하기 쉽다. 이러한 융점이나 유리 전이 온도는, 공중합 성분의 종류와 공중합량, 그리고 부생물인 디에틸렌글리콜의 제어 등에 의해 조정할 수 있다.

[0083] 제1층에 사용되는 폴리에스테르는, o-클로로페놀 용액을 사용하여 35℃에서 측정한 고유 점도가 0.50 내지 0.75dl/g인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 0.55 내지 0.72dl/g, 더욱 바람직하게는 0.56 내지 0.71dl/g이다. 이것에 의해 적당한 배향 결정성을 갖기 쉬워지는 경향이 있고, 제2층과의 굴절률차를 발현하기 쉬워지는 경향이 있다.

[0084] [제2층]

[0085] 본 발명의 일 실시 형태의 다층 적층 필름을 구성하는 제2층은, 등방성의 층일 수 있고, 이 경우 이것을 구성하는 수지(본 개시에 있어서, 제2 수지라고도 함)는, 등방성의 층을 형성할 수 있는 것이다. 따라서, 제2층을 구성하는 수지로서는 비정질성의 수지가 바람직하다. 그 중에서도 비정질성인 폴리에스테르가 바람직하다. 또한 여기에서 「비정질성」이란, 약간의 결정성을 갖는 것을 배제하는 것은 아니고, 본 발명의 일 실시 형태의 다층 적층 필름이 목적으로 하는 기능을 발휘할 정도로 제2층을 등방성으로 할 수 있으면 된다.

[0086] (제2층의 공중합 폴리에스테르)

[0087] 제2층을 구성하는 수지로서는, 공중합 폴리에스테르가 바람직하고, 특히, 나프탈렌디카르복실산 성분, 에틸렌글리콜 성분 및 트리메틸렌글리콜 성분을 공중합 성분으로서 포함하는 공중합 폴리에스테르를 사용하는 것이 바람직하다. 또한, 이러한 나프탈렌디카르복실산 성분으로서는, 2,6-나프탈렌디카르복실산 성분, 2,7-나프탈렌디카르복실산 성분, 또는 이들의 조합으로부터 유도되는 성분, 혹은 그들의 유도체 성분을 들 수 있고, 특히 2,6-나프탈렌디카르복실산 성분 혹은 그의 유도체 성분이 바람직하게 예시된다. 또한, 본 개시에 있어서의 공중합 성분이란, 폴리에스테르를 구성하는 어느 성분인 것을 의미하고 있으며, 종된 성분(공중합량으로서 전체 산 성분 또는 전체 디올 성분에 대하여 50몰% 미만인 성분)으로서의 공중합 성분에 한정되지 않고, 주된 성분(공중합량으로서 전체 산 성분 또는 전체 디올 성분에 대하여 50몰% 이상인 성분)도 포함하여 사용된다.

[0088] 본 발명의 일 실시 형태에 있어서는, 상술한 바와 같이, 제2층의 수지로서 에틸렌나프탈레이트 단위를 주성분으로 하는 폴리에스테르를 사용하는 것이 바람직하고, 그 때, 제2층의 수지로서 나프탈렌디카르복실산 성분을 포함하는 공중합 폴리에스테르를 사용함으로써 제1층과의 상용성이 높아지고, 제1층과의 층간 밀착성이 향상되는 경향이 있어, 층간 박리가 발생하기 어려워지기 때문에 바람직하다.

[0089] 제2층의 공중합 폴리에스테르는, 디올 성분이 에틸렌글리콜 성분과 트리메틸렌글리콜 성분의 적어도 2 성분을

포함하는 것이 바람직하다. 이 중, 에틸렌글리콜 성분은, 필름 제막성 등의 관점에서 주된 디올 성분으로서 사용되는 것이 바람직하다.

[0090] 본 발명의 일 실시 형태에 있어서의 제2층의 공중합 폴리에스테르는, 디올 성분으로서 트리메틸렌글리콜 성분을 함유하는 것이 바람직하다. 트리메틸렌글리콜 성분을 함유함으로써, 층 구조의 탄성을 보충하고, 층간 박리를 억제하는 효과가 높아진다.

[0091] 나프탈렌디카르복실산 성분, 바람직하게는 2,6-나프탈렌디카르복실산 성분은, 제2층의 공중합 폴리에스테르를 구성하는 전체 카르복실산 성분의 30몰% 이상 100몰% 이하인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 30몰% 이상 80몰% 이하, 더욱 바람직하게는 40몰% 이상 70몰% 이하이다. 이에 의해 제1층과의 밀착성을 보다 높일 수 있다. 나프탈렌디카르복실산 성분의 함유량이 하한 미만이면, 상용성의 관점에서 밀착성이 저하되는 경우가 있다. 또한, 나프탈렌디카르복실산 성분의 함유량의 상한은 특별히 제한되지 않지만, 너무 많으면 제1층과의 굴절률차를 발현하기 어려워지는 경향이 있다. 또한, 제1층과의 굴절률의 관계를 조정하기 위해 다른 디카르복실산 성분을 공중합시켜도 된다.

[0092] 에틸렌글리콜 성분은, 제2층의 공중합 폴리에스테르를 구성하는 전체 디올 성분의 50몰% 이상 95몰% 이하인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 50몰% 이상 90몰% 이하, 더욱 바람직하게는 50몰% 이상 85몰% 이하, 특히 바람직하게는 50몰% 이상 80몰% 이하이다. 이에 의해 제1층과의 굴절률차를 발현하기 쉬워지는 경향이 있다.

[0093] 트리메틸렌글리콜 성분은, 제2층의 공중합 폴리에스테르를 구성하는 전체 디올 성분의 3몰% 이상 50몰% 이하인 것이 바람직하고, 5몰% 이상 40몰% 이하인 것이 더욱 바람직하고, 보다 바람직하게는 10몰% 이상 40몰% 이하, 특히 바람직하게는 10몰% 이상 30몰% 이하이다. 이에 의해 제1층과의 층간 밀착성을 보다 높일 수 있다. 또한, 제1층과의 굴절률차를 발현하기 쉬워지는 경향이 있다. 트리메틸렌글리콜 성분의 함유량이 하한 미만이면 층간 밀착성의 확보가 어려워지는 경향이 있고, 상한을 초과하면 원하는 굴절률과 유리 전이 온도의 수지로 하기가 어려워진다.

[0094] 본 발명의 일 실시 형태에 있어서의 제2층은, 본 발명의 목적을 손상시키지 않는 범위라면, 제2층의 질량을 기준으로 하여 10질량% 이하의 범위 내에서 해당 공중합 폴리에스테르 이외의 열가소성 수지를 제2 폴리머 성분으로서 함유해도 된다.

[0095] (제2층의 폴리에스테르의 특성)

[0096] 본 발명의 일 실시 형태에 있어서, 상술하는 제2층의 공중합 폴리에스테르는, 85℃ 이상의 유리 전이 온도를 갖는 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 90℃ 이상 150℃ 이하, 더욱 바람직하게는 90℃ 이상 120℃ 이하, 특히 바람직하게는 93℃ 이상 110℃ 이하이다. 이에 의해 내열성이 보다 우수하다. 또한, 제1층과의 굴절률차를 발현하기 쉬워지는 경향이 있다. 제2층의 공중합 폴리에스테르의 유리 전이 온도가 하한 미만인 경우, 내열성을 충분히 얻지 못하는 경우가 있고, 예를 들어 90℃ 부근에서의 열처리 등의 공정을 포함할 때에 제2층의 결정화나 취화에 의해 헤이즈가 상승하고, 휘도 향상 부재나 반사형 편광판으로서 사용될 때의 편광도의 저하를 수반하는 경우가 있다. 또한, 제2층의 공중합 폴리에스테르의 유리 전이 온도가 너무 높은 경우에는, 연신 시에 제2층의 폴리에스테르도 연신에 의한 복굴절성이 발생하는 경우가 있고, 이에 따른 연신 방향에 있어서 제1층과의 굴절률차가 작아지고, 반사 성능이 저하되는 경우가 있다.

[0097] 상술한 공중합 폴리에스테르 중에서도, 90℃×1000시간의 열처리로 결정화에 의한 헤이즈 상승을 매우 우수하게 억제할 수 있는 점에서, 비정질성의 공중합 폴리에스테르인 것이 바람직하다. 여기에서 말하는 비정질성이란, DSC에 있어서 승온 속도 20℃/분으로 승온시켰을 때의 결정 융해열량이 0.1mJ/mg 미만인 것을 가리킨다.

[0098] 제2층의 공중합 폴리에스테르의 구체예로서, (1) 디카르복실산 성분으로서 2,6-나프탈렌디카르복실산 성분을 포함하고, 디올 성분으로서 에틸렌글리콜 성분 및 트리메틸렌글리콜 성분을 포함하는 공중합 폴리에스테르, (2) 디카르복실산 성분으로서 2,6-나프탈렌디카르복실산 성분 및 테레프탈산 성분을 포함하고, 디올 성분으로서 에틸렌글리콜 성분 및 트리메틸렌글리콜 성분을 포함하는 공중합 폴리에스테르를 들 수 있다.

[0099] 제2층의 공중합 폴리에스테르는, o-클로로페놀 용액을 사용하여 35℃에서 측정한 고유 점도가 0.50 내지 0.70dl/g인 것이 바람직하고, 더욱 바람직하게는 0.55 내지 0.65dl/g이다. 제2층에 사용되는 공중합 폴리에스테르가 공중합 성분으로서 트리메틸렌글리콜 성분을 갖는 경우, 제막성이 저하되는 경우가 있고, 해당 공중합 폴리에스테르의 고유 점도를 상술한 범위로 함으로써 제막성을 보다 높일 수 있다. 제2층으로서 상술하는 공중합 폴리에스테르를 사용하는 경우의 고유 점도는, 제막성의 관점에서는 보다 높은 쪽이 바람직하기는 하지만,

상한을 초과하는 범위에서는 제2층의 폴리에스테르와의 용융 점도차가 커져, 각 층의 두께가 불균일해지는 경우가 있다.

[0100] [후막층]

[0101] 본 발명의 일 실시 형태에 있어서의 후막층으로서는, 하기에 기재하는 최외층이나 중간층을 들 수 있다.

[0102] 본 발명의 일 실시 형태의 다층 적층 필름은, 한쪽 또는 양쪽의 표면에 후막의 최외층을 갖고 있어도 된다. 여기서 후막이란, 광학적으로 후막인 것을 말한다. 이러한 최외층은 수지로 주로 이루어진다. 부언하면, 여기에서 「주로 이루어진다」란, 층에 있어서 수지가 층의 전체 질량에 대하여 70질량% 이상을 차지하는 것을 말하고, 바람직하게는 80질량% 이상, 보다 바람직하게는 90질량% 이상이다. 또한, 최외층은 등방성의 층인 것이 바람직하고, 제조상의 용이성의 관점에서는 제2층과 동일한 수지여도 되고, 상술한 제2층의 공중합 폴리에스테르로 구성할 수 있고, 그러한 양태가 바람직하다.

[0103] 본 발명의 일 실시 형태의 다층 적층 필름은, 중간층을 갖고 있어도 된다. 해당 중간층은, 본 발명의 일 실시 형태에 있어서 내부 후막층 등이라 칭하는 경우가 있지만, 다층 구조의 내부에 존재하는 후막의 층을 가리킨다. 본 발명의 일 실시 형태에 있어서는, 다층 적층 필름의 제조의 초기 단계에서 교대 적층 구성의 양측에 막 두께가 두꺼운 층(두께 조정층, 버퍼층이라 칭하는 경우가 있다.)을 형성하고, 그 후 더블링에 의해 적층수를 증가시키는 방법이 바람직하게 사용되지만, 그 경우에는, 이러한 막 두께가 두꺼운 층끼리가 2층 적층되어 중간층이 형성되고, 내부에 형성된 후막의 층이 중간층이 되며, 외측에 형성된 후막의 층이 최외층이 된다.

[0104] 두께에 대하여 보다 구체적으로는, 최외층은 예를 들어 층 두께가 바람직하게는 1㎛를 초과하는 범위이며, 보다 바람직하게는 3㎛ 이상, 더욱 바람직하게는 5㎛ 이상, 또한 바람직하게는 25㎛ 이하, 보다 바람직하게는 20㎛ 이하의 두께인 것이 바람직하다. 중간층은, 예를 들어 층 두께가 바람직하게는 5㎛ 이상, 또한 바람직하게는 100㎛ 이하, 보다 바람직하게는 50㎛ 이하의 두께인 것이 바람직하다. 이러한 최외층 및/또는 중간층을 다층 구조의 일부에 갖는 경우, 편광 기능 등의 광학 기능에 영향을 미치지 않고, 제1층 및 제2층을 구성하는 각 층 두께를 균일하게 조정하기 쉬워진다. 최외층이나 중간층은, 제1층, 제2층 중 어느 것과 동일한 조성, 또는 이들의 조성을 부분적으로 포함하는 조성이어도 되고, 층 두께가 두껍기 때문에, 반사 특성에는 기여하지 않는다. 한편, 투과 특성에는 영향을 주는 경우가 있기 때문에, 층 중에 입자를 포함하는 경우에는 광선 투과율을 고려하여 입자 직경이나 입자 농도를 선택하면 된다. 또한, 최외층이나 중간층에 의해, 필름의 전체 두께를 두껍게 할 수 있어, 예를 들어 핸들링성을 향상시킬 수 있다.

[0105] 최외층 및/또는 중간층의 두께가 하한 미만인 경우에는, 다층 구조의 층 구성에 혼란이 발생하는 경우가 있고, 반사 성능이 저하되는 경우가 있다. 한편, 최외층 및/또는 중간층의 두께가 상한을 초과하는 경우에는, 다층 적층 필름 전체의 두께가 너무 두꺼워지고, 박형의 액정 디스플레이의 반사형 편광판이나 휘도 향상 부재로서 사용한 경우에 공간 절약화하기 어려워지게 된다. 또한, 다층 적층 필름의 양쪽 표층에 최외층을 갖는 경우나, 다층 적층 필름 내에 복수의 중간층을 포함하는 경우에는, 각각의 최외층 및/또는 중간층의 두께는, 상기 각각의 두께 범위의 하한 이상인 것이 바람직하고, 또한 최외층의 두께의 합계 및/또는 중간층의 두께의 합계는, 상기 각각의 두께 범위의 상한 이하인 것이 바람직하다.

[0106] 최외층이나 중간층에 사용되는 폴리머는, 본 발명의 일 실시 형태의 다층 적층 필름의 제조 방법을 사용하여 다층 구조 중에 존재시킬 수 있으면, 제1층 또는 제2층과 다른 수지를 사용해도 되지만, 층간 밀착성을 보다 높이는 관점에서, 제1층 또는 제2층 중 어느 것과 동일한 조성이거나, 이들 조성을 부분적으로 포함하는 조성인 것이 바람직하다.

[0107] 최외층 및 중간층의 형성 방법은 특별히 한정되지 않지만, 예를 들어 더블링을 행하기 전의 교대 적층 구성의 양측에 막 두께가 두꺼운 층을 마련하고, 그것을 레이어 더블링 블록이라 불리는 분지 블록을 사용하여 교대 적층 방향에 수직인 방향으로 2분할하고, 그것들을 교대 적층 방향으로 재적층함으로써, 최외층을 2층, 중간층을 1층 마련할 수 있다. 중간층은 분할의 수를 증가시키거나, 분할하는 횟수를 증가시키거나 함으로써 추가로 복수 마련할 수도 있다.

[0108] [그 밖의 층]

[0109] (도포층)

[0110] 본 발명의 일 실시 형태의 다층 적층 필름은, 적어도 한쪽 표면에 도포층을 가질 수 있다. 이러한 도포층으로서는, 미끄럼성을 부여하기 위한 이활층이나, 프리즘층이나 확산층 등과의 접착성을 부여하기 위한 프라이머층

등을 들 수 있다. 도포층은 결합제 성분을 포함하고, 미끄럼성을 부여하기 위해서는, 예를 들어 입자를 함유시키면 된다. 접착성을 부여하기 위해서는, 사용하는 결합제 성분을, 접착하고자 하는 층의 성분과 화학적으로 가까운 것으로 하는 것을 들 수 있다. 또한, 도포층을 형성하기 위한 도포액은, 환경의 관점에서 물을 용매로 하는 수계 도포액인 것이 바람직하지만, 특히 그러한 경우 등에 있어서, 다층 적층 필름에 대한 도포액의 습윤성을 향상시킬 목적으로, 계면 활성제를 함유할 수 있다. 그 밖에, 도포층의 강도를 높이기 위해 가교제를 첨가하는 등, 기능제를 첨가해도 된다.

[0111] [다층 적층 필름의 제조 방법]

[0112] 본 발명의 일 실시 형태의 다층 적층 필름의 제조 방법에 대하여 상세하게 설명한다. 부언하면, 여기에서 이하에 나타내는 제조 방법은 일례이며, 본 발명은 이것에 한정되지 않는다. 또한, 다른 양태에 대해서도, 이하를 참조하여 얻을 수 있다.

[0113] 본 발명의 일 실시 형태의 다층 적층 필름은, 제1층을 구성하는 폴리머와 제2층을 구성하는 폴리머를, 다층 피드 블록 장치를 사용하여 용융 상태에서 교대로 중첩하여, 예를 들어 합계로 30층 이상의 교대 적층 구성을 제작하고, 그의 양면에 버퍼층을 마련하고, 그 후 레이어 더블링이라 불리는 장치를 사용하여 해당 버퍼층을 갖는 교대 적층 구성을 예를 들어 2 내지 4 분할하고, 해당 버퍼층을 갖는 교대 적층 구성을 1 블록으로 하여 블록의 적층수(더블링수)가 2 내지 4배가 되도록 다시 적층하는 방법으로 적층수를 증가시킴으로써 얻을 수 있다. 이러한 방법에 의하면, 다층 구조의 내부에 버퍼층끼리가 2층 적층된 중간층과, 버퍼층 1층으로 이루어지는 최외층을 양면에 갖는 다층 적층 필름을 얻을 수 있다.

[0114] 이러한 교대 적층 구성은, 제1층과 제2층의 각 층의 두께가 원하는 경사 구조를 갖도록 적층된다. 이것은, 예를 들어 다층 피드 블록 장치에 있어서 슬릿의 간격이나 길이를 변화시킴으로써 얻어진다. 예를 들어, 단조 증가 영역을 형성하는 부분과 박층 영역을 형성하는 부분을 갖도록 슬릿의 간격이나 길이를 조정하면 된다.

[0115] 상술한 방법으로 원하는 적층수로 적층한 후, 다이로 압출하고, 캐스팅 드럼 상에서 냉각시켜, 다층 미연신 필름을 얻는다. 다층 미연신 필름은, 제막 기계 축방향(세로 방향, 길이 방향 또는 MD 방향이라 하는 경우가 있다.), 또는 그것에 필름면내에서 직교하는 방향(가로 방향, 폭 방향 또는 TD 방향이라 하는 경우가 있음)의 적어도 1축 방향(이러한 1축 방향은 필름면을 따른 방향이다.)으로 연신되는 것이 바람직하다. 연신 온도는, 제1층의 폴리머의 유리 전이점 온도(Tg) 내지 (Tg+20)℃의 범위에서 행하는 것이 바람직하다. 종래보다도 조금 낮은 온도에서 연신을 행함으로써, 필름의 배향 특성을 보다 고도로 제어할 수 있다.

[0116] 연신 배율은 2.0 내지 7.0배로 행하는 것이 바람직하고, 더욱 바람직하게는 4.5 내지 6.5배이다. 이러한 범위 내에서 연신 배율이 클수록, 제1층 및 제2층에 있어서의 개개의 층의 면 방향의 굴절률 변동이 연신에 의한 박층화에 의해 작아지고, 다층 적층 필름의 광 간섭이 면 방향으로 균일화되며, 또한 제1층과 제2층의 연신 방향의 굴절률차가 커지므로 바람직하다. 이 때의 연신 방법은, 막대 형상 히터에 의한 가열 연신, 롤 가열 연신, 텐터 연신 등 공지된 연신 방법을 사용할 수 있지만, 롤과의 접촉에 의한 흠집의 저감이나 연신 속도 등의 관점에서, 텐터 연신이 바람직하다.

[0117] 또한, 이러한 연신 방향과 필름면내에서 직교하는 방향(MD 방향)으로도 연신 처리를 실시하고, 2축 연신을 행하는 경우에는, 용도에 따라서 다르지만, 반사 편광 특성을 구비시키고자 할 때는, 1.01 내지 1.20배 정도의 연신 배율에 그치는 것이 바람직하다. MD 방향의 연신 배율을 더 이상 높게 하면, 편광 성능이 저하되는 경우가 있다.

[0118] 또한, 연신 후에 추가로 (Tg) 내지 (Tg+30)℃의 온도에서 열 고정을 행하면서, 5 내지 15%의 범위에서 연신 방향으로 토아웃(재연신)시킴으로써, 얻어진 다층 적층 필름의 배향 특성을 고도로 제어할 수 있다.

[0119] 본 발명의 일 실시 형태에 있어서 상술한 도포층을 마련하는 경우, 다층 적층 필름으로의 도포는 임의의 단계에서 실시할 수 있지만, 필름의 제조 과정에서 실시하는 것이 바람직하고, 연신 전의 필름에 대하여 도포하는 것이 바람직하다.

[0120] 이렇게 하여 본 발명의 일 실시 형태의 다층 적층 필름이 얻어진다.

[0121] 또한, 금속 광택 필름이나 반사 미러의 용도에 사용하는 다층 적층 필름인 경우에는, 2축 연신 필름으로 하는 것이 바람직하고, 이 경우에는, 축차 2축 연신법, 동시 2축 연신법 중 어느 것이어도 된다. 또한, 연신 배율은, 제1층 및 제2층의 각 층의 굴절률 및 막 두께가, 원하는 반사 특성을 발휘하도록 조정하면 되지만, 예를 들어 이들 층을 구성하는 수지의 통상적인 굴절률을 고려하면, 세로 방향 및 가로 방향 모두 2.5 내지 6.5배

정도로 하면 된다.

[0122] **실시예**

[0123] 이하에, 본 발명의 실시 형태를 실시예를 들어 설명하지만, 본 발명은 이하에 나타낸 실시예에 제한되는 것은 아니다. 또한, 실시예 중의 물성이나 특성은 하기 방법으로 측정 또는 평가하였다.

[0124] (1) 각 층의 두께

[0125] 다층 적층 필름을 필름 길이 방향 2㎜, 폭 방향 2㎝로 잘라내고, 포매 캡슐에 고정 후, 에폭시 수지(리파인텍(주)제 에포마운트)로 포매하였다. 포매된 샘플을 마이크로톰(LEICA제 ULTRACUT UCT)으로 폭 방향에 수직으로 절단하고, 50㎚ 두께의 박막 절편으로 하였다. 투과형 전자 현미경(히타치 S-4300)을 사용하여 가속 전압100kV에서 관찰 촬영하고, 사진으로부터 각 층의 두께(물리 두께)를 측정하였다.

[0126] 1㎛를 초과하는 두께의 층에 대하여, 다층 구조의 내부에 존재하고 있는 것을 중간층, 최표층에 존재하고 있는 것을 최외층이라 하고, 각각의 두께를 측정하였다.

[0127] 또한, 제1층인지 제2층인지는, 굴절률의 양태에 의해 판단할 수 있지만, 그것이 곤란한 경우에는, NMR에서의 해석이나, TEM에서의 해석에 의한 전자 상태에 의해 판단하는 것도 가능하다. 또한, 각 층의 굴절률은 각 층과 동일한 단층 필름으로부터 구할 수도 있다.

[0128] (2) 단조 증가의 판단

[0129] 상기 방법으로 각 층의 두께를 산출하고, 하기 식 (2)에 따라서 반복 단위의 물리 두께를 구하였다. 각 반복 단위의 물리 두께를 종축에 입력하고, 횡축에 반복 단위의 번호를 입력하였을 때의 층 두께 프로파일의 임의의 영역에 있어서, 막 두께가 증가 경향을 나타내는 범위 내에서의 층수를 5 등분하고, 막 두께가 두꺼워지는 방향으로, 등분된 각 에어리어에서의 막 두께의 평균값이 단조로 증가하고 있는 경우에는 단조 증가라고 하고, 그렇지 않은 경우에는 단조 증가가 아니라고 하였다.

[0130] $dp=d1+d2$ (식 2)

[0131] 상기 식 중, dp는 반복 단위의 물리 두께, d1, d2는 각각 이러한 반복 단위를 구성하는 제1층, 제2층의 물리 두께(㎚)를 나타낸다.

[0132] (3) 층간 밀착성

[0133] 다층 적층 필름의 단부면부에 바늘 등으로 충격을 주거나 하여, 부분적으로 층간 박리한 샘플을 제작하였다. 그 후, 측정의 변동을 작게 하기 위해서, 해당 샘플을 온도 23℃, 상대 습도 50 내지 60%RH의 조건 하에서 1일 방치하고, 그 후 폭 25㎜, 길이 100㎜의 직사각형으로 잘라내었다. 표면이 깨끗한 두께 3㎜의 아크릴판에, 양면 테이프로 샘플을 첩부하고, 직접 고무 롤러로 눌러 밀착시켰다. 이 때, 층간 박리하였을 때에 두께가 두꺼운 측을 아크릴판에 첩부하였다. 이것을 인장 시험기(도요 세끼(주)제 스트로그래프)에 세팅하고, 층간 박리하였을 때에 두께가 얇은 측을 척에 고정하고, 인장 속도 300㎜/분으로 90° 박리하여 강도를 측정하였다. 이 방법으로 다층 적층 필름의 MD 방향, TD 방향에 있어서의, 각각의 강도를 측정하고, 그의 평균값을 층간 밀착력으로 하였다.

[0134] 층간 밀착력으로서는, 바람직하게는 MD 방향과 TD 방향의 평균값으로 100g/25㎜ 이상이며, 보다 바람직하게는 130g/25㎜ 이상, 더욱 바람직하게는 150g/25㎜ 이상, 특히 바람직하게는 170g/25㎜ 이상이며, 높은 것이 바람직하다. 또한, MD 방향과 TD 방향의 모두가 100g/25㎜ 이상인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 120g/25㎜ 이상, 더욱 바람직하게는 140g/25㎜ 이상이다.

[0135] [제조예 1] 폴리에스테르 A

[0136] 제1층용 폴리에스테르로서, 2,6-나프탈렌디카르복실산디메틸, 테레프탈산디메틸, 그리고 에틸렌글리콜을, 티타늄테트라부톡시드의 존재 하에서 에스테르 교환 반응을 행하고, 또한 계속해서 중축합 반응을 행하여, 산 성분의 95몰%가 2,6-나프탈렌디카르복실산 성분, 산 성분의 5몰%가 테레프탈산 성분, 글리콜 성분이 에틸렌글리콜 성분인 공중합 폴리에스테르(고유 점도 0.64dl/g)(o-클로로페놀, 35℃, 이하 동일함)를 준비하였다.

[0137] [제조예 2] 폴리에스테르 B

[0138] 제2층용 폴리에스테르로서, 2,6-나프탈렌디카르복실산디메틸, 테레프탈산디메틸, 그리고 에틸렌글리콜과 트리메틸렌글리콜을, 티타늄테트라부톡시드의 존재 하에서 에스테르 교환 반응을 행하고, 또한 계속해서 중축합 반응

을 행하여, 산 성분의 50몰%가 2,6-나프탈렌디카르복실산 성분, 산 성분의 50몰%가 테레프탈산 성분, 글리콜 성분의 85몰%가 에틸렌글리콜 성분, 글리콜 성분의 15몰%가 트리메틸렌글리콜 성분인 공중합 폴리에스테르(고유 점도 0.63dl/g)를 준비하였다.

[0139] [실시예 1]

[0140] 제1층용으로 폴리에스테르 A를 170℃에서 5시간 건조시킨 후, 제2층용으로 폴리에스테르 B를 85℃에서 8시간 건조시킨 후, 각각 제1, 제2 압출기에 공급하고, 300℃까지 가열하여 용융 상태로 하고, 제1층용 폴리에스테르를 139층, 제2층용 폴리에스테르를 138층으로 분지시킨 후, 제1층과 제2층이 교대로 적층되며, 또한 표 1에 나타내는 바와 같은 층 두께 프로파일이 되는 빗살을 구비하는 다층 피드 블록 장치를 사용하여, 총 수 277층의 적층 상태의 용융체로 하고, 그 적층 상태를 유지한 채, 그의 양측에 제3 압출기로부터 제2층용 폴리에스테르와 동일한 폴리에스테르를 3층 피드 블록으로 유도하고, 층수 277층의 적층 상태(양쪽 표층은 제1층임)의 용융체의 적층 방향의 양측에 버퍼층을 추가로 적층하였다. 양측의 버퍼층의 합계가 전체의 47%가 되도록 제3 압출기의 공급량을 조정하였다. 그 적층 상태를 또한 레이어 더블링 블록으로, 2분지하여 1:1의 비율로 적층하고, 내부에 중간층, 최표층에 2개의 최외층을 포함하는 전체 층수 557층의 미연신 다층 적층 필름을 제작하였다.

[0141] 이 미연신 다층 적층 필름을 130℃의 온도에서 폭 방향으로 5.9배로 연신하였다. 얻어진 1축 연신 다층 적층 필름의 두께는 75㎛였다. 또한, 굴절률 측정의 결과, 제1층은 복굴절성이며, 제2층은 등방성이었다.

[0142] [실시예 2 내지 8, 비교예 1 내지 4]

[0143] 표 1, 2에 나타내는 층 두께 프로파일이 되도록 사용하는 다층 피드 블록 장치를 변경한 것 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 1축 연신 다층 적층 필름을 얻었다.

[0144] 실시예 1 내지 8의 다층 적층 필름에 대하여, 편광 필름 측정 장치(니혼 분코 가부시키가이샤제 「VAP7070S」)를 사용하여 평균 반사율을 구하였다. 파장 380 내지 780nm의 범위에 있어서 5nm 간격에서의 투과율 평균값을 취하고, 평균 투과율을 100으로부터 뺀 값을 법선 입사에 있어서의 반사축의 평균 반사율이라 하고, 평균 반사율이 50% 이상인 점에서, 이러한 파장 범위의 광을 반사 가능하다고 판단하였다. 또한 측정은, 스폿 직경 조정용 마스크 φ1.4 및 편각 스테이지를 사용하고, 측정광의 입사각은 0도 설정으로 하고, 크로스니콜 서치(650nm)로 정해지는 다층 적층 필름의 투과축과 직교하는 축을 반사축이라 하였다.

[0145] 실시예 1 내지 3, 5, 8은, 후막층으로부터 3개 및 4개의 반복 단위의 범위에서도, A2/L1을 만족시키는 것이었다.

[0146] 실시예 4, 6은, 후막층으로부터 3개, 4개 및 5개의 반복 단위의 범위에서도, A2/L1을 만족시키는 것이었다.

[0147] 실시예 4, 6에 있어서 번호 132의 반복 단위는, 최대 두께 L1에 대하여 0.85배를 초과하는 두께를 갖고 있었기 때문에, 번호 133 이후의 반복 단위를 박층 영역이라고 판단하였다.

[0148] 실시예 5에 있어서 번호 133의 반복 단위는, 최대 두께 L1에 대하여 0.85배를 초과하는 두께를 갖고 있었기 때문에, 번호 134 이후의 반복 단위를 박층 영역이라고 판단하였다.

[0149] 비교예 1, 2는, 번호 137의 반복 단위에 있어서 최대 두께 L2를 나타내고, 이것이 최대 두께 L1에 대하여 0.85배를 초과하는 두께였기 때문에, 박층 영역을 갖지 않게 된다. 그래서, 후막층과 접하는 측으로부터 5개의 반복 단위에 대하여 관측하고, 평가를 하였다.

[0150] 비교예 3, 4에 있어서 번호 135의 반복 단위는, 최대 두께 L1에 대하여 0.85배를 초과하는 두께를 갖고 있었기 때문에, 번호 136 이후의 반복 단위가 박층 영역일 가능성이 있다. 여기서, 번호 136 내지 138의 3개의 반복 단위의 평균 두께 A2는, 최대 두께 L1에 대하여 0.70배를 초과하는 두께였기 때문에, 박층 영역을 갖지 않게 된다. 그래서, 후막층과 접하는 측으로부터 3개의 반복 단위에 대하여 관측하고, 평가를 하였다.

표 1

		실시예 1	실시예2	실시예3	실시예4	실시예5	실시예6	실시예7	실시예 8
더블링(분지)		2	2	2	2	2	2	2	2
1폐킷의 반복 단위 총 수		138	138	138	138	138	138	138	138
두께 단조 증가 영역	범위 (반복 단위 번호)	1~133	1~133	1~133	1~132	1~133	1~132	1~135	1~133
	반복 단위수 N1	133	133	133	132	133	132	135	133
	반복 단위의 최소 두께(nm) S1	120	86	94	104	91	111	113	128
	최소 두께의 반복 단위 번호	3	1	8	2	2	2	1	1
	반복 단위의 최대 두께(nm) L1	314	245	266	262	248	286	306	279
	최대 두께의 반복 단위 번호	133	133	133	118	130	130	135	133
박층 영역	범위 (반복 단위 번호)	134~138	134~138	134~138	133~138	134~138	133~138	136~138	134~138
	반복 단위수 N2	5	5	5	6	5	6	3	5
	반복 단위의 최대 두께(nm) L2	206	170	170	161	144	201	194	219
	평균 두께 (nm) A2	159	139	132	135	114	175	151	176
	L2/L1	0.66	0.70	0.64	0.61	0.58	0.70	0.63	0.78
	A2/L1	0.51	0.57	0.50	0.51	0.46	0.61	0.49	0.63
	L2/S1	1.72	1.97	1.80	1.55	1.58	1.82	1.72	1.71
층간 밀착성	MD(g/25mm)	180	160	180	170	180	170	140	140
	TD(g/25mm)	200	180	210	220	230	190	160	130
	평균값 (g/25mm)	190	170	195	195	205	180	150	135

[0151]

표 2

		비교예1	비교예2	비교예3	비교예4
더블링(분지)		2	2	2	2
1패킷의 반복 단위 총 수		138	138	138	138
두께 단조 증가 영역	범위 (반복 단위 번호)	1～133	1～133	1～135	1～135
	반복 단위수 N1	133	133	135	135
	반복 단위의 최소 두께(nm) S1	82	107	98	217
	최소 두께의 반복 단위 번호	1	1	1	1
	반복 단위의 최대 두께(nm) L1	264	294	255	273
	최대 두께의 반복 단위 번호	133	133	132	123
박층 영역	관찰 범위 (반복 단위 번호)	134～138	134～138	136～138	136～138
	관찰 범위의 반복 단위수 N2	5	5	3	3
	관찰 범위에서의 반복 단위의 최대 두께(nm) L2	244	281	201	197
	최대 두께의 반복 단위 번호	137	137	137	137
	관찰 범위에서의 평균 두께(nm) A2	195	196	193	196
L2／L1		0.92	0.96	0.79	0.72
A2／L1		0.74	0.67	0.76	0.72
L2／S1		2.98	2.63	2.05	0.91
층간 밀착성	MD(g／25mm)	120	130	140	100
	TD(g／25mm)	30	40	30	30
	평균값(g／25mm)	75	85	85	65

[0152]

산업상 이용가능성

[0153] 본 발명의 일 실시 형태에 의하면, 본 발명의 다층 적층 필름은, 교대로 적층한 제1층과 제2층의 반복 단위의 물리 두께에서의 층 두께 프로파일을 적절하게 설계함으로써, 다층 적층 구조와 후막층의 층간 박리가 어려운 다층 적층 필름을 실현하는 것이 가능해진다. 그 때문에, 예를 들어 휘도 향상 부재, 반사형 편광판 등의 광학 부재로서 사용한 경우에, 다른 부재와의 접합, 액정 디스플레이로의 조립, 사용 시 등에 가해지는 외력에 의해 층간 박리가 발생하지 않는 점에서, 보다 신뢰성이 높은 휘도 향상 부재, 액정 디스플레이용 편광판 등을 제공할 수 있다.

[0154] 2017년 7월 7일에 출원된 일본 특허 출원 제2017-133703호의 개시는, 그의 전체가 참조에 의해 본 명세서에 도입된다.

[0155] 본 명세서에 기재된 모든 문헌, 특허 출원 및 기술 규격은, 개개의 문헌, 특허 출원 및 기술 규격이 참조에 의해 도입되는 것이 구체적이며 또한 개별적으로 기재되었을 경우와 동일한 정도로, 본 명세서에 참조에 의해 도입된다.

부호의 설명

[0156] 1 후막층(최외층)

2 후막층(중간층)

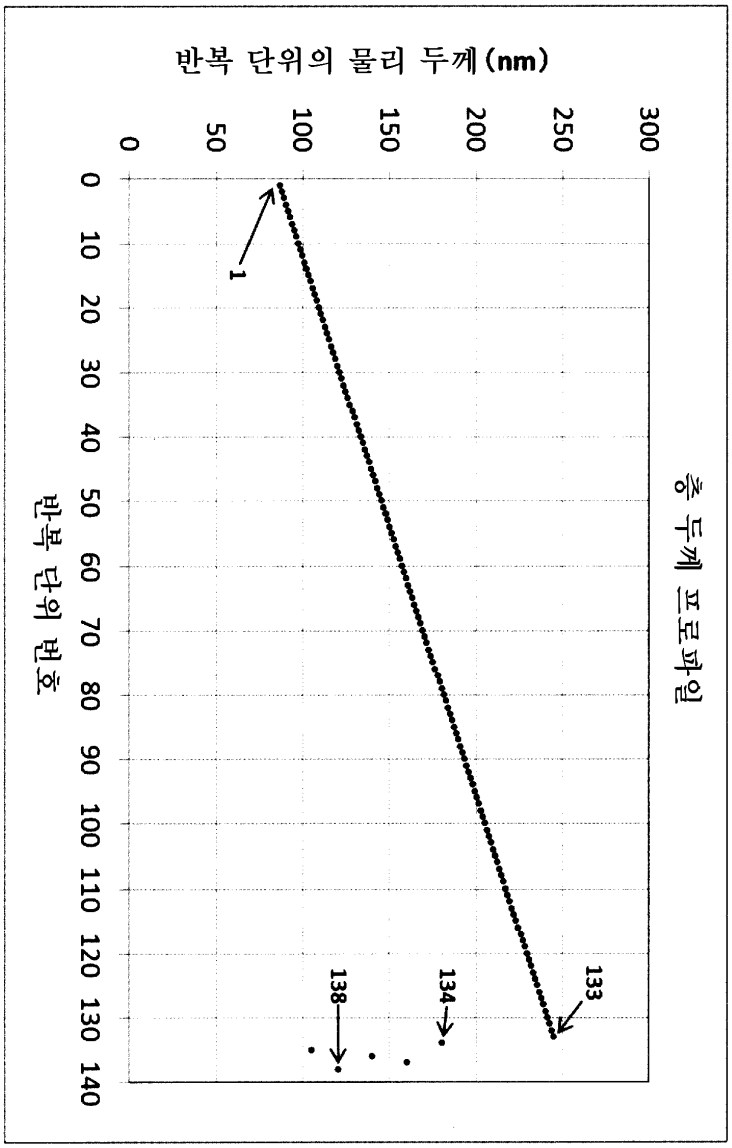
3 다층 적층 구조

도면

도면1



도면2


반복 단위의 물리 두께(nm)
0
50
100
150
200
250
300
층 두께 프로파일
반복 단위 번호
0 10 20 30 40 50 60 70 80 90 100 110 120 130 140
1
133
134
138