

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7700518号
(P7700518)

(45)発行日 令和7年7月1日(2025.7.1)

(24)登録日 令和7年6月23日(2025.6.23)

| | | | | |
|------------------------|----------------------------|----------|-------------------|---------|
| (51)国際特許分類 | | F I | | |
| C 0 8 J | 5/18 (2006.01) | C 0 8 J | 5/18 | C F D |
| B 3 2 B | 27/36 (2006.01) | B 3 2 B | 27/36 | |
| H 0 1 G | 4/32 (2006.01) | H 0 1 G | 4/32 | 5 1 1 L |
| H 0 1 B | 3/42 (2006.01) | H 0 1 B | 3/42 | D |
| H 0 1 B | 17/56 (2006.01) | H 0 1 B | 17/56 | A |
| 請求項の数 12 (全23頁) 最終頁に続く | | | | |
| (21)出願番号 | 特願2021-93929(P2021-93929) | (73)特許権者 | 000006035 | |
| (22)出願日 | 令和3年6月3日(2021.6.3) | | 三菱ケミカル株式会社 | |
| (65)公開番号 | 特開2022-185966(P2022-185966 | | 東京都千代田区丸の内一丁目1番1号 | |
| | A) | (74)代理人 | 100207756 | |
| (43)公開日 | 令和4年12月15日(2022.12.15) | | 弁理士 田口 昌浩 | |
| 審査請求日 | 令和6年5月13日(2024.5.13) | (74)代理人 | 100129746 | |
| | | | 弁理士 虎山 滋郎 | |
| | | (74)代理人 | 100119666 | |
| | | | 弁理士 平澤 賢一 | |
| | | (72)発明者 | 木村 秀孝 | |
| | | | 東京都千代田区丸の内一丁目1番1号 | |
| | | | 三菱ケミカル株式会社内 | |
| | | (72)発明者 | 中澤 佑介 | |
| | | | 東京都千代田区丸の内一丁目1番1号 | |
| | | | 三菱ケミカル株式会社内 | |
| | | | 最終頁に続く | |

(54)【発明の名称】 ポリエステルフィルム

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

ポリエステル樹脂（X）と、ポリプロピレン樹脂（Y）とを含み、前記ポリエステル樹脂（X）100質量部に対して、相溶化剤（Z）を0.01～40質量部含み、前記相溶化剤（Z）が酸無水物構造[- C(=O) - O - C(=O) -]を有する樹脂またはアイオノマーであり、パルスNMR法にて得られるポリプロピレン樹脂（Y）成分の緩和時間Tについて、150で1分熱処理した後の緩和時間（T2）（μs）と、熱処理する前の緩和時間（T1）（μs）の関係が、下記式（1）を満たすポリエステルフィルム。

$$(T2)/(T1) \geq 1.20 \cdots (1)$$

【請求項2】

ポリエステル樹脂（X）100質量部に対して、ポリプロピレン樹脂（Y）を1～30質量部含む、請求項1に記載のポリエステルフィルム。

【請求項3】

前記ポリエステル樹脂（X）の重縮合触媒がTi系又はSb系である、請求項1又は2に記載のポリエステルフィルム。

【請求項4】

ポリエステル樹脂（X）がポリエチレンテレフタレート及びポリエチレン-2,6-ナフタレートから選ばれる少なくとも1種である、請求項1～3の何れか1項に記載のポリエステルフィルム。

【請求項5】

前記ポリエステルフィルムの少なくとも一方の表面に硬化樹脂層が設けられた、請求項 1 ~ 4 の何れか 1 項に記載のポリエステルフィルム。

【請求項 6】

フィルム厚みが $0.5 \sim 12.0 \mu\text{m}$ である、請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載のポリエステルフィルム。

【請求項 7】

1 kHz における誘電正接 ($\tan \delta$) が 0.55 以下である、請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載のポリエステルフィルム。

【請求項 8】

前記請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載のポリエステルフィルムの少なくとも片面に金属層が設けられた、金属積層フィルム。

10

【請求項 9】

コンデンサー用である、請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載のポリエステルフィルム。

【請求項 10】

コンデンサー用である、請求項 8 に記載の金属積層フィルム。

【請求項 11】

自動車に搭載するコンデンサー用である、請求項 9 に記載のポリエステルフィルム。

【請求項 12】

自動車に搭載するコンデンサー用である、請求項 10 に記載の金属積層フィルム。

【発明の詳細な説明】

20

【技術分野】

【0001】

本発明は、ポリエステルフィルムに関し、特にコンデンサー用として好適なポリエステルフィルムに関する。

【背景技術】

【0002】

工業材料、光学材料、電子部品材料、電池用包装材など様々な分野で、ポリエステルフィルムとして代表的なポリエチレンテレフタレート (PET) フィルム、特に 2 軸延伸 PET フィルムが、透明性、機械強度、耐熱性、柔軟性などに優れることから広く使用されている。

30

【0003】

また、低い誘電損失特性等の優れた電気特性、並びに高い耐湿性のために、例えば、高電圧コンデンサー、各種スイッチング電源、コンバーター及びインバーター等のフィルター用コンデンサー及び平滑用コンデンサー等のコンデンサー用誘電体フィルムとして、二軸延伸ポリプロピレンフィルムなどの樹脂フィルムが利用されている。

近年、コンデンサーのさらなる小型化及び高容量化が必要な状況になってきている。例えば、電気自動車及びハイブリッド自動車等の駆動モーターを制御するインバーター電源機器用コンデンサーに樹脂フィルムを使用する場合には、小型、軽量及び高容量が必要になる (特許文献 1)。コンデンサーの高容量化に伴い、例えば、120 を超える温度領域下で、長期間にわたる高い耐電圧特性 (静電容量の安定性) が必要とされる傾向にある。

40

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【文献】特開 2014 - 231584 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

しかしながら、例えば、汎用の二軸延伸ポリプロピレンフィルムでは、電気特性は良好な反面、使用温度範囲が 120 以上の温度領域であると、フィルム自体の耐熱性が限界レベルに達し、対応困難な状況にあった。

50

そこで、本発明は、以上の問題点に鑑みてなされたものであり、コンデンサー用ポリエステルフィルムとして、従来並みの電気特性を維持しつつ、それでいて耐熱性が良好であり、且つ薄膜化可能なコンデンサー用ポリエステルフィルムを新規に提案するものである。

【課題を解決するための手段】

【0006】

本発明者らは、鋭意検討の結果、ポリエステル樹脂(X)とポリプロピレン樹脂(Y)とを含み、パルスNMR法にて得られるポリプロピレン樹脂(Y)成分の緩和時間Tについて、150 で1分熱処理した後の緩和時間(T2)(μs)と、熱処理する前の緩和時間(T1)(μs)の関係が、特定範囲を満たすポリエステルフィルムを用いることで、上記課題を解決できること見出し、以下の本発明を完成させた。

10

すなわち、本発明は、以下の[1]～[14]を提供するものである。

[1]ポリエステル樹脂(X)とポリプロピレン樹脂(Y)とを含み、パルスNMR法にて得られるポリプロピレン樹脂(Y)成分の緩和時間Tについて、150 で1分熱処理した後の緩和時間(T2)(μs)と、熱処理する前の緩和時間(T1)(μs)の関係が、下記式(1)を満たすポリエステルフィルム。

$$(T2)/(T1) \quad 1.20 \cdots (1)$$

[2]ポリエステル樹脂(X)100質量部に対して、ポリプロピレン樹脂(Y)を1～30質量部含む、上記[1]に記載のポリエステルフィルム。

[3]ポリエステル樹脂(X)100質量部に対して、相溶化剤(Z)を0.01～40質量部含む、上記[1]又は[2]に記載のポリエステルフィルム。

20

[4]前記相溶化剤(Z)が酸無水物構造[$-C(=O)-O-C(=O)-$]を有する樹脂またはアイオノマーである、上記[3]に記載のポリエステルフィルム。

[5]前記ポリエステル樹脂(X)の重縮合触媒がTi系又はSb系である、上記[1]～[4]のいずれかに記載のポリエステルフィルム。

[6]ポリエステル樹脂(X)がポリエチレンテレフタレート及びポリエチレン-2,6-ナフタレートから選ばれる少なくとも1種である、上記[1]～[5]の何れかに記載のポリエステルフィルム。

[7]前記ポリエステルフィルムの少なくとも一方の表面に硬化樹脂層が設けられた、上記[1]～[6]の何れかに記載のポリエステルフィルム。

[8]フィルム厚みが0.5～12.0 μm である、上記[1]～[7]のいずれかに記載のポリエステルフィルム。

30

[9]1kHzにおける誘電正接($\tan \delta$)が0.55以下である、上記[1]～[8]のいずれかに記載のポリエステルフィルム。

[10]上記[1]～[9]のいずれかに記載のポリエステルフィルムの少なくとも片面に金属層が設けられた、金属積層フィルム。

[11]コンデンサー用である、上記[1]～[9]のいずれかに記載のポリエステルフィルム。

[12]コンデンサー用である、上記[10]に記載の金属積層フィルム。

[13]自動車に搭載するコンデンサー用である、上記[11]に記載のポリエステルフィルム。

40

[14]自動車に搭載するコンデンサー用である、上記[12]に記載の金属積層フィルム。

【発明の効果】

【0007】

本発明では、コンデンサー用ポリエステルフィルムとして、従来並みの電気特性を維持しつつ、それでいて耐熱性が良好であるポリエステルフィルムを提案するものである。

【発明を実施するための形態】

【0008】

次に、本発明の実施形態の一例について説明する。但し、本発明は、次に説明する実施形態に限定されるものではない。

50

【 0 0 0 9 】

[ポリエステルフィルム]

本発明のポリエステルフィルム（以下、「本ポリエステルフィルム」と記載することがある。）は、ポリエステル樹脂（X）と、ポリプロピレン樹脂（Y）を含む。

本ポリエステルフィルムは、耐熱性、平面性、光学特性、強度などの物性が優れる。上記ポリエステルフィルムは単層でも、性質の異なる2以上の層を有する多層フィルム（すなわち、積層フィルム）でもよい。

なお、多層フィルムの場合には、各層のいずれかが、ポリプロピレン樹脂（Y）を有すればよいが、全層がポリプロピレン樹脂（Y）を有することが好ましい。例えば表層／中層／表層の3層構成の多層フィルムの場合に、いずれかの層がポリプロピレン樹脂（Y）を含有すればよいが、中層がポリプロピレン樹脂（Y）を含有することが好ましく、全層がポリプロピレン樹脂（Y）を含有することがさらに好ましい。したがって、多層の場合には、いずれかの層が、後述するポリプロピレン樹脂（Y）を含有すればよく、また、ポリプロピレン樹脂（Y）を含有する層が適宜後述する相溶化剤（Z）を含有することが好ましい。

10

また、ポリエステルフィルムは、無延伸フィルム（シート）であっても延伸フィルムであってもよい。中でも、一軸方向又は二軸方向に延伸された延伸フィルムであるのが好ましい。その中でも、力学特性のバランスや平面性の観点で、二軸延伸フィルムであるのがより好ましい。したがって、二軸延伸ポリエステルフィルムがよりさらに好ましい。

【 0 0 1 0 】

（ポリエステル樹脂（X））

本ポリエステルフィルムの主成分樹脂であるポリエステル樹脂（X）は、ホモポリエステルであっても、共重合ポリエステルであってもよい。なお、主成分樹脂とは、ポリエステルフィルムを構成する樹脂の中で最も質量割合の大きい樹脂の意味であり、ポリエステルフィルムを構成する樹脂の50質量%以上、或いは75質量%以上、或いは90質量%以上、或いは100質量%を占めればよい。

20

【 0 0 1 1 】

上記ホモポリエステルとしては、芳香族ジカルボン酸と脂肪族グリコールとを重縮合させて得られるものが好ましい。芳香族ジカルボン酸としては、テレフタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸などが挙げられ、脂肪族グリコールとしては、エチレングリコール、ジエチレングリコール、1,4-ブタンジオール、1,4-シクロヘキサンジメタノール等を挙げることができる。

30

代表的なホモポリエステルとしては、ポリエチレンテレフタレート（PET）やポリブチレンテレフタレート（PBT）、ポリエチレン-2,6-ナフタレート（PEN）等を例示することができる。

本発明においては、ポリエチレンテレフタレート（PET）及びポリエチレン-2,6-ナフタレート（PEN）が特に好ましく、これらを併用することもできる。

【 0 0 1 2 】

一方、上記ポリエステルが共重合ポリエステルの場合は、30モル%以下の第三成分を含有した共重合体であることが好ましい。

40

共重合ポリエステルのジカルボン酸成分としては、イソフタル酸、フタル酸、テレフタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、アジピン酸、セバシン酸等の一種又は二種以上が挙げられ、グリコール成分として、エチレングリコール、ジエチレングリコール、プロピレングリコール、1,4-ブタンジオール、1,4-シクロヘキサンジメタノール、ネオペンチルグリコール等の一種または二種以上を挙げることができる。

中でも、本ポリエステルフィルムとしては、60モル%以上、好ましくは80モル%以上がエチレンテレフタレート単位であるポリエチレンテレフタレート又は60モル%以上、好ましくは80モル%以上がエチレン-2,6-ナフタレート単位であるポリエチレン-2,6-ナフタレートが好ましい。

【 0 0 1 3 】

50

(ポリエステル重縮合触媒)

上記ポリエステルを重縮合して得る際の重縮合触媒としては、アンチモン化合物、ゲルマニウム化合物、アルミニウム化合物、チタン化合物等が挙げられる。これらの中では、アンチモン化合物及びチタン化合物の少なくともいずれかが好ましく、とりわけ、チタン化合物を用いて得られるポリエステルを使用することが好ましい。

したがって、ポリエステルフィルムは、アンチモン化合物 (S b 系) 及びチタン化合物の少なくともいずれかを含有することが好ましく、チタン化合物 (T i 系) を含有ことがより好ましい。

前記チタン化合物を使用することで、フィルム中に当該チタン化合物に由来する金属含有凝集体、いわゆる粗大異物の個数を低減化することができる。

10

【 0 0 1 4 】

本フィルムの最外層 (「表面層」 ともいう、例えば、後述する硬化樹脂層が積層される表面層) を構成するポリエステルは、その重縮合触媒としてチタン化合物を使用することが好ましく、例えば、表面層がチタン化合物を含有することが好ましい。

なお、最外層とは、積層フィルムである場合には、複数ある層のうち、最も外側にある層であり、単層である場合には当該層の表面層である。

当該最外層中に当該チタン化合物に由来するチタン元素含有量は 3 質量 p p m 以上 4 0 質量 p p m 以下であることが好ましく、 4 質量 p p m 以上 3 5 質量 p p m 以下であることがより好ましい。

上記範囲内であれば、ポリエステルの製造効率を低下することなく、触媒起因の異物を低減化することができる。

20

また、同様の観点から、本フィルムの最外層中のアンチモン化合物の含有量は 1 0 0 質量 p p m 以下であることが好ましい。

【 0 0 1 5 】

(粒子)

ポリエステル樹脂 (X) 中には、易滑性の付与および各工程での傷発生防止を主たる目的として、粒子を配合することも可能である。粒子を配合する場合、配合する粒子の種類は、易滑性付与可能な粒子であれば特に限定されるものではなく、具体例としては、例えば、シリカ、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、炭酸バリウム、硫酸カルシウム、リン酸カルシウム、リン酸マグネシウム、カオリン、酸化アルミニウム、酸化チタン等の無機粒子、アクリル樹脂、スチレン樹脂、尿素樹脂、フェノール樹脂、エポキシ樹脂、ベンゾグアナミン樹脂等の有機粒子等が挙げられる。さらに、ポリエステルの製造工程中、触媒等の金属化合物の一部を沈殿、微分散させた析出粒子を用いることもできる。

30

【 0 0 1 6 】

一方、使用する粒子の形状に関しても特に限定されるわけではなく、球状、塊状、棒状、扁平状等のいずれを用いてもよい。また、その硬度、比重、色等についても特に制限はない。これら一連の粒子は、必要に応じて 2 種類以上を併用してもよい。

また、用いる粒子の平均粒径は、好ましくは 3 μ m 以下、より好ましくは 0 . 1 ~ 2 μ m、その中でも特に 0 . 1 ~ 1 μ m の範囲であることが好ましい。平均粒径が上記範囲である粒子を用いることにより、ポリエステルフィルムに適度な表面粗度を与え、良好な滑り性と平滑性が確保できる。

40

粒子を配合する場合、例えば、表層と、中間層を設けて、表層に粒子を含有させることができる。この場合、粒子を含有する表層、中間層、及び粒子を含有する表層をこの順に有する多層構造とすることもできる。

【 0 0 1 7 】

また、ポリエステル樹脂 (X) 中には実質的に粒子を含有しない態様も好ましい。ここでいう、「実質的に粒子を含有しない」とは、意図して含有しないという意味であり、具体的には、粒子の含有量 (粒子濃度) が 2 0 0 質量 p p m 以下、より好ましくは 1 5 0 質量 p p m 以下のことを指す。

本発明のポリエステルフィルムは、ポリエステルを構成するポリエステル樹脂 (X) に

50

対して、非相溶なポリプロピレン樹脂（Ｙ）を含有するため、ポリプロピレン樹脂（Ｙ）により、フィルム表面に微細な凹凸を形成できる。そのため、フィルム中の粒子量を上記範囲内とすることにより、フィルムの透明性を確保しつつ、フィルムに滑り性を付与しやすくなる。

なお、ポリエステルフィルムに粒子が含有されない場合、あるいは含有量が少ない場合は、基材フィルムの透明性が高くなり外観の良好なポリエステルフィルムが得られるが、滑り性が不十分となる場合がある。そのような場合には、後述する硬化樹脂層中に粒子を配合するなどにより、滑り性を向上させるとよい。

【００１８】

（ポリプロピレン樹脂（Ｙ））

ポリプロピレン樹脂（Ｙ）は、プロピレンの単独重合体であってもよいし、プロピレンとエチレン及び／又は炭素数４～２０のα-オレフィンとの共重合体であってもよい。

本発明においては、共重合成分は１種類でもよいし、必要に応じて、２種類以上を併用してもよい。

【００１９】

ポリプロピレン樹脂（Ｙ）の製造方法は特に限定されるものではなく、例えば、プロピレン及び任意のコモノマーをチーグラ－・ナッタ触媒で重合する方法など、従来から公知の方法を採用することができる。「ポリプロピレンハンドブック」エドワード・Ｐ・ムーアＪｒ．編著、保田哲男・佐久間暢翻訳監修、工業調査会（１９９８）の２．３．１節（２０～５７ページ）にも記載がある。

【００２０】

（ＭＦＲ（メルトフローレート））

本発明において、ＭＦＲは、０．１～１０ｇ／１０分の範囲であることが好ましく、より好ましくは０．５～８ｇ／１０分、さらに好ましくは１～８ｇ／１０分である。上記範囲を満足することで、フィルム成形加工時に良好な流動性が確保できる。

なお、ＭＦＲは、ＩＳＯ １１３３：１９９７に準拠して測定したものである。

【００２１】

（融点）

ポリプロピレン樹脂（Ｙ）の融点は、好ましくは１５０℃以上、より好ましくは１６０℃以上である。融点が前記範囲を満足する場合、所望する耐熱性が確保できる。融点の上限については、特に限定されるわけではないが、通常、１７０℃である。なお、本発明における融点は、示差走査熱量測定（ＤＳＣ）によって求めることができる。具体的には、一旦、室温から２００℃まで昇温して、熱履歴を消去した後、１０℃／分の降温速度で４０℃まで温度を降下させ、再度、昇温速度１０℃／分にて測定した際の吸熱ピークトップの温度と定義する。

【００２２】

（配合量）

ポリエステル樹脂（Ｘ）１００質量部に対するポリプロピレン樹脂（Ｙ）の配合量は１～３０質量部であることが好ましい。さらに好ましくは、５～２０質量部、その中でも特に５～１５質量部がよい。

上記範囲を満足することにより、コンデンサー用ポリエステルフィルムとして、良好な電気特性を有することができる。

なお、本ポリエステルフィルムが多層フィルムである場合には、上記配合量は、本ポリエステルフィルム全体における配合量である。したがって、例えば、ポリプロピレン樹脂の配合量の異なる層を有する多層ポリエステルフィルムであっても、積層フィルム全体としてのポリプロピレン樹脂の配合量を指す。

【００２３】

<相溶化剤（Ｚ）>

本発明のポリエステルフィルムは、ポリエステル樹脂（Ｘ）とポリプロピレン樹脂（Ｙ）を相溶させるための相溶化剤（Ｚ）を含有することが好ましい。相溶化剤（Ｚ）として

10

20

30

40

50

は、酸無水物構造を有する樹脂またはアイオノマーであることが好ましい。

【 0 0 2 4 】

(酸無水物構造 $[-C(=O)-O-C(=O)-]$ を有する樹脂)

酸無水物構造 $[-C(=O)-O-C(=O)-]$ を有する樹脂としては、酸無水物構造 $[-C(=O)-O-C(=O)-]$ を有するポリエチレンまたはポリプロピレンのいずれかのポリオレフィン樹脂、酸無水物構造を有するポリスチレン樹脂を用いることができる。

特に、酸無水物構造を有する変性ポリプロピレン樹脂（無水カルボン酸変性されたポリプロピレン樹脂）が好ましい。前記酸無水物構造を有する変性ポリプロピレン樹脂とは、原料としてのプロピレンに加え、酸無水物構造を有するモノマーを用いて合成される樹脂のことを言う。また、酸無水物構造を有する変性ポリプロピレン樹脂と共に、又は当該変性ポリプロピレン樹脂に代えて、酸無水物構造を有する変性ポリエチレン樹脂を用いることもできる。

【 0 0 2 5 】

酸無水物構造を有するモノマーとしては、酸無水物構造を有し、且つ、エチレン性不飽和結合を有する化合物が好ましい。具体例として、無水マレイン酸、無水シトラコン酸、無水アコニット酸、無水イタコン酸等を挙げることができ、その中でも、ポリエステル樹脂（X）とポリプロピレン樹脂（Y）の相溶性が良好となる点で、無水マレイン酸が好ましい。

【 0 0 2 6 】

酸無水物構造 $[-C(=O)-O-C(=O)-]$ を有する樹脂の酸価は、小さすぎると樹脂と樹脂との層間接着力を十分に発揮できない場合がある。一方、酸価が大きすぎる場合には樹脂との相溶性が低下して、ボイドの最大径を所定範囲内に抑えることが困難になる場合がある。その為、酸価は 0.5 ~ 50 が好ましく、さらに好ましくは 0.5 ~ 10 である。また、MFR は 2 ~ 20 g / 10 min が好ましく、さらに好ましくは、3 ~ 10 g / 10 min である。

なお、酸価は、JIS K 0070 に準拠して測定した値を採用する。

【 0 0 2 7 】

酸無水物構造を有する樹脂としては市販品を用いることもできる。例えば、変性ポリプロピレン樹脂を用いる場合は、アドマー（商品名、三井化学社製）、OREVAC（商品名、アルケマ社製）等を用いることができる。変性ポリエチレン樹脂を用いる場合は、アドマー（商品名、三井化学社製）LF128（MFR 2.7）などを用いることができる。

また、無水マレイン酸で変性されたスチレン系熱可塑性樹脂を用いる場合、例えば、旭化成（株）製の「タフブレン912」、クレイトンポリマージャパン（株）の「FG1901」、「FG1924」、旭化成（株）の「タフテックM1911」、「タフテックM1913」、「タフテックM1943」などが例示される。

【 0 0 2 8 】

(アイオノマー)

アイオノマーとは、エチレンと不飽和カルボン酸等の酸性ビニルモノマーとのランダム、ブロック、グラフト共重合体を部分中和金属塩とすることにより、これらの高分子鎖を金属イオンの凝集力を利用して凝集体としたものであり、例えば、エチレン・不飽和カルボン酸共重合樹脂のカルボキシル基の少なくとも一部を金属イオンで中和してなるアイオノマー樹脂などが挙げられる。

【 0 0 2 9 】

エチレン・不飽和カルボン酸共重合樹脂のカルボキシル基の 10 モル%以上、好ましくは 10 ~ 90 モル%、より好ましくは 15 ~ 80 モル%を金属イオンで中和したものが好適に使用される。前記金属イオンとしては、リチウム、ナトリウムなどのアルカリ金属、亜鉛或いは、マグネシウム、カルシウムなどのアルカリ土類金属のような多価金属イオンが例示される。その中でも相溶化効果が良好である点で、亜鉛等の多価金属イオンが好ましい。

10

20

30

40

50

【 0 0 3 0 】

(配合量)

ポリエステル樹脂 (X) 1 0 0 質量部に対する、相溶化剤 (Z) の配合量は 0 . 0 1 ~ 4 0 質量部であることが好ましい。さらに好ましくは、 0 . 1 ~ 2 0 質量部であり、その中でも特に 1 ~ 2 0 質量部が好ましい。

上記範囲を満足することにより、ポリエステル樹脂 (X) とポリプロピレン樹脂 (Y) との相溶性が良好となり、コンデンサー用ポリエステルフィルムとして、電気特性が良好なポリエステルフィルムを得ることができる。

なお、本ポリエステルフィルムが多層フィルムである場合には、上記配合量は、本ポリエステルフィルム全体における配合量である。したがって、例えば、相溶化剤の配合量の異なる層を有する多層ポリエステルフィルムであっても、積層フィルム全体としての相溶化剤の配合量を指す。

10

【 0 0 3 1 】

[硬化樹脂層]

本発明のポリエステルフィルムは、少なくとも一方の表面に硬化樹脂層を設けることが好ましい。硬化樹脂層は、ポリエステルフィルムの少なくとも片面側に備えられていればよく、両面側に備えられてもよい。

硬化樹脂層としては、フッ素含有化合物を含有するのが好ましい。フッ素含有化合物を含有する硬化樹脂層を備えることで、ポリエステルフィルム単独よりも、厚み当たりの帯電電位が向上し、帯電電位の減衰をより抑制させることが可能となり、かつポリエステルフィルム表面に付着した塵や油分を容易に除去することが可能となる。

20

特に、硬化樹脂層は、フッ素含有化合物 (A)、架橋剤 (B)、及びバインダー樹脂 (C) を含む硬化樹脂層組成物を硬化してなることが好ましい。硬化樹脂層は、これら (A) ~ (C) 成分を含有する硬化樹脂層組成物を使用することで、厚み当たりの帯電電位を向上させ、帯電電位の減衰をより抑制させることが可能となり、硬化樹脂層の傷つきの防止、耐溶剤性が良好となり、かつ硬化樹脂層の成膜性、透明性などが向上する。

【 0 0 3 2 】

(フッ素含有化合物 (A))

フッ素含有化合物は、樹脂層の強度を高めるという観点からフッ素含有樹脂であることが好ましい。フッ素含有樹脂の具体例としては、フッ化ビニル、フッ化ビニリデン、テトラフルオロエチレン、ヘキサフルオロプロピレン、クロロトリフルオロエチレン等を単量体とするフルオロオレフィン系共重合樹脂；フルオロメチレンエーテル、ジフルオロメチレンエーテル、フルオロエチレンエーテル、ジフルオロエチレンエーテル、テトラフルオロエチレンエーテル、ヘキサフルオロプロピレンエーテル等の、水素原子の一部又は全てがフッ素原子に置換されたポリアルキレンエーテルとその他の単量体とを重合してなるフッ素系共重合樹脂；ヒドロキシ基含有のフッ素樹脂共重合体と (メタ) アクリル酸エステル系化合物又は他の単量体とをグラフト重合してなるフッ素系共重合樹脂；パーフルオロアルキル基を有するビニル重合体等が挙げられる。中でも帯電電位の向上に優れる点や、塵や油分の拭き取り性に優れるという観点から、フルオロオレフィン系共重合樹脂や、水素原子の一部又は全てがフッ素化されたポリアルキレンエーテル基を含むフッ素樹脂共重合体が好ましい。

30

40

【 0 0 3 3 】

フルオロオレフィン系共重合樹脂の単量体の中でも、フッ化ビニリデン、テトラフルオロエチレン、ヘキサフルオロプロピレンが好ましい。また、水素原子の一部又は全てがフッ素原子に置換されたポリアルキレンエーテルの中でも、ジフルオロメチレンエーテル、ジフルオロエチレンエーテル、テトラフルオロエチレンエーテルが好ましい。フッ素含有樹脂がフッ素含有単量体からなる場合、溶媒への分散性や他の樹脂との相溶性の観点から、その他の成分との混合分散体であることが好ましい。その他の成分としては、後述する。

【 0 0 3 4 】

水素原子の一部又は全てがフッ素原子に置換されたポリアルキレンエーテルとその他の

50

単量体を重合してなるフッ素系共重合樹脂としては、ポリフルオロアルキレンエーテル基を有するウレタン樹脂、ポリフルオロアルキレンエーテル基を有するポリエステル樹脂、ポリフルオロアルキレンエーテル基を有するアクリル樹脂等が挙げられる。

ポリフルオロアルキレンエーテル基を有するウレタン樹脂を構成するその他の単量体としては、イソシアネート化合物が挙げられる。イソシアネート化合物としては、トリレンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、メチレンジフェニルジイソシアネート、フェニレンジイソシアネート、ナフタレンジイソシアネート、トリジンジイソシアネート等の芳香族ジイソシアネート；、、'-テトラメチルキシリレンジイソシアネート等の芳香環を有する脂肪族ジイソシアネート；メチレンジイソシアネート、プロピレンジイソシアネート、リジンジイソシアネート、トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート等の脂肪族ジイソシアネート；シクロヘキサンジイソシアネート、メチルシクロヘキサンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、ジシクロヘキシルメタンジイソシアネート、イソプロピリデンジシクロヘキシルジイソシアネート等の脂環式ジイソシアネート等が例示される。

【 0 0 3 5 】

ウレタン樹脂を構成するその他の単量体として、フッ素原子を含まないポリオール類、ジメチロールプロパン酸、ジメチロールブタン酸、ビス - (2 - ヒドロキシエチル) プロピオン酸、ビス - (2 - ヒドロキシエチル) ブタン酸等のカルボキシ基を有するポリオール等が挙げられる。これらの中でも、水を分散溶媒とする場合に自己乳化できるという観点からカルボキシ基を有するポリオールを含むことが好ましく、中でもジメチロールプロパン酸がより好ましい。

【 0 0 3 6 】

硬化樹脂層は、フッ素含有化合物を含有する硬化樹脂層形成組成物より形成されてなることが好ましい。硬化樹脂層形成組成物（以下、「硬化樹脂層組成物」と記載する。）は、不揮発成分としてフッ素含有化合物からなるものでもよいし、その他の成分を含有してもよい。

硬化樹脂層形成組成物におけるフッ素含有化合物の含有量は、硬化樹脂層組成物における不揮発成分に対して、好ましくは 5 ~ 1 0 0 質量%、より好ましくは 2 0 ~ 9 8 質量%、更に好ましくは 4 5 ~ 9 5 質量%の範囲である。5 質量%以上とすることで、厚み当たりの帯電電位を向上させ、帯電電位の減衰をより抑制させることが可能となり、かつポリ

【 0 0 3 7 】

（架橋剤（B））

硬化樹脂層を形成するための硬化樹脂層組成物は、上記のとおり架橋剤（B）を含有することが好ましい。硬化樹脂層組成物に架橋剤を含有させることで、架橋密度が高い緻密な硬化樹脂層を形成することができる。また、硬化樹脂層の傷つきなども防止でき、耐溶剤性なども良好にしやすい。架橋剤は、特に制限はなく、従来公知の架橋剤を使用することができる。

架橋剤としては、例えば、メラミン化合物、オキサゾリン化合物、エポキシ化合物、イソシアネート系化合物、カルボジイミド系化合物、シランカップリング化合物等が挙げられる。架橋剤は、これらの中でも、メラミン化合物、オキサゾリン化合物及びイソシアネート系化合物から選択される少なくとも 1 種であることが好ましく、剥離性の観点からメラミン化合物であることが好ましい。また、これらの架橋剤は 1 種単独で使用してもよいし、2 種以上を併用してもよい。また、これら架橋剤とともに硬化する成分として、任意の重合性モノマーを硬化樹脂層組成物に含有させてもよい。

【 0 0 3 8 】

（メラミン化合物）

架橋剤に使用するメラミン化合物とは、化合物中にメラミン骨格を有する化合物のことであり、例えば、アルキロール化メラミン誘導体、アルキロール化メラミン誘導体にアルコールを反応させて部分的あるいは完全にエーテル化した化合物、及びこれらの混合物を

10

20

30

40

50

用いることができる。アルキロール化としては、メチロール化、エチロール化、イソプロピロール化、*n*-ブチロール化、イソブチロール化などが挙げられる。これらの中でも、反応性の観点から、メチロール化が好ましい。また、エーテル化に用いるアルコールとしては、メチルアルコール、エチルアルコール、イソプロピルアルコール、*n*-ブタノール、イソブタノール等が好適に用いられる。硬化樹脂層の塗膜強度を向上させ、硬化樹脂層とポリエステルフィルムとの密着性を向上させるという観点から、部分的又は完全にエーテル化したアルキロール化メラミン誘導体であることが好ましく、メチルアルコールでエーテル化したアルキロールであることがより好ましい。部分的にエーテル化したアルキロール基はエーテル化していないアルキロール基に対して、0.5～5当量であることが好ましく、0.7～5当量であることがより好ましい。また、メラミン化合物としては、単量体であってもよいし、2量体以上の多量体のいずれであってもよいし、これらの混合物を用いてもよい。さらに、メラミンの一部に尿素等を共縮合したものを使用してもよい。

10

【0039】

メラミン化合物の反応性を上げるため、硬化樹脂層組成物には、メラミン化合物に加えて架橋触媒を含有させてもよい。架橋触媒としては、種々公知の触媒を使用することができ、例えば、アミン化合物、アミン化合物の塩類、パラトルエンスルホン酸などの芳香族スルホン酸化合物やリン酸化合物などの有機酸類及びそれらの塩、イミン化合物、アミジン化合物、グアニジン化合物、有機金属化合物、ステアリン酸亜鉛やミリスチン酸亜鉛やステアリン酸アルミニウムやステアリン酸カルシウムなどの金属塩類などが挙げられる。これらの中でもアミン化合物、アミン化合物の塩類やパラトルエンスルホン酸が好ましく、アミン化合物やアミン化合物の塩類がより好ましい。

20

【0040】

(オキサゾリン化合物)

オキサゾリン化合物は、分子内にオキサゾリン基を有する化合物であり、特にオキサゾリン基を含有する重合体が好ましく、該重合体は、付加重合性オキサゾリン基含有モノマー単独もしくは他のモノマーとの重合によって作製できる。中でも、付加重合性オキサゾリン基含有モノマーと(メタ)アクリロイル基を有するモノマーであるアクリルモノマーとの共重合体であるアクリル系ポリマーが好ましく、アクリル系ポリマーはポリアルキレンオキシド鎖を有してもよい。

なお、本明細書において、(メタ)アクリロイル基という表現を用いた場合、「アクリロイル基」と「メタクリロイル基」の一方又は両方を意味するものとし、他の類似する用語も同様である。

30

付加重合性オキサゾリン基含有モノマーは、2-ビニル-2-オキサゾリン、2-ビニル-4-メチル-2-オキサゾリン、2-ビニル-5-メチル-2-オキサゾリン、2-イソプロペニル-2-オキサゾリン、2-イソプロペニル-4-メチル-2-オキサゾリン、2-イソプロペニル-5-エチル-2-オキサゾリン等を挙げることができ、これらの1種または2種以上の混合物を使用することができる。これらの中でも2-イソプロペニル-2-オキサゾリンが工業的にも入手しやすく好適である。付加重合性オキサゾリン基含有モノマーは、1種単独で使用してもよいし、2種以上のモノマーを使用してもよい。

【0041】

40

他のモノマーは、付加重合性オキサゾリン基含有モノマーと共重合可能なモノマーであれば制限はなく、例えばアルキル(メタ)アクリレート(アルキル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、2-エチルヘキシル基、シクロヘキシル基)等の(メタ)アクリル酸エステル類；アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、マレイン酸、フマル酸、クロトン酸、スチレンスルホン酸およびその塩(塩としては、ナトリウム塩、カリウム塩、アンモニウム塩、第三級アミン塩等)等の不飽和カルボン酸類；アクリロニトリル、メタクリロニトリル等の不飽和ニトリル類；(メタ)アクリルアミド、*N*-アルキル(メタ)アクリルアミド、*N,N*-ジアルキル(メタ)アクリルアミド、(アルキル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、2

50

- エチルヘキシル基、シクロヘキシル基等)等の不飽和アミド類; 酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル等のビニルエステル類; メチルビニルエーテル、エチルビニルエーテル等のビニルエーテル類; エチレン、プロピレン等の - オレフィン類; 塩化ビニル、塩化ビニリデン、フッ化ビニル等の含ハロゲン , - 不飽和モノマー類; スチレン、 - メチルスチレン等の , - 不飽和芳香族モノマー等を挙げることができる。

【0042】

また、他のモノマーとしては、ポリアルキレンオキシド鎖を有するモノマーも使用できる。ポリアルキレンオキシド鎖を有するモノマーとしては、例えば、アクリル酸、メタクリル酸などの不飽和カルボン酸類のカルボキシル基にポリアルキレンオキシドを付加させたエステル等を好ましく例示することができる。ここで、ポリアルキレンオキシド鎖としては、例えば、ポリメチレンオキシド、ポリエチレンオキシド、ポリプロピレンオキシド、ポリブチレンオキシド等を好ましく例示できる。ポリアルキレンオキシド鎖の繰り返し単位は例えば3~100の範囲であるとよい。

オキサゾリン化合物に使用される他のモノマーは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

【0043】

オキサゾリン化合物のオキサゾリン基量は、好ましくは0.5~10mmol/g、より好ましくは1~9mmol/g、さらに好ましくは3~8mmol/g、特に好ましくは4~6mmol/gの範囲である。上記範囲で使用することで、塗膜(硬化樹脂層)の耐久性が向上しやすくなる。

【0044】

(エポキシ化合物)

エポキシ化合物とは、分子内にエポキシ基を有する化合物であり、例えば、エピクロロヒドリンとエチレングリコール、ポリエチレングリコール、グリセリン、ポリグリセリン、ビスフェノールA等の水酸基又はアミノ基含有化合物との縮合物が挙げられる。エポキシ化合物としては、ポリエポキシ化合物、ジエポキシ化合物、モノエポキシ化合物、グリシジルアミン化合物等が挙げられる。

ポリエポキシ化合物としては、例えば、ソルビトールポリグリシジルエーテル、ポリグリセロールポリグリシジルエーテル、ペンタエリスリトールポリグリシジルエーテル、ジグリセロールポリグリシジルエーテル、トリグリシジルトリス(2-ヒドロキシエチル)イソシアネート、グリセロールポリグリシジルエーテル、トリメチロールプロパンポリグリシジルエーテルが挙げられる。

ジエポキシ化合物としては、例えば、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、1,6-ヘキサンジオールジグリシジルエーテル、レゾルシンジグリシジルエーテル、エチレングリコールジグリシジルエーテル、ポリエチレングリコールジグリシジルエーテル、プロピレングリコールジグリシジルエーテル、ポリプロピレングリコールジグリシジルエーテル、ポリテトラメチレングリコールジグリシジルエーテルが挙げられる。

モノエポキシ化合物としては、例えば、アリルグリシジルエーテル、2-エチルヘキシルグリシジルエーテル、フェニルグリシジルエーテルが挙げられる。

グリシジルアミン化合物としてはN,N,N',N'-テトラグリシジル-m-キシリレンジアミン、1,3-ビス(N,N-ジグリシジルアミノ)シクロヘキサン等が挙げられる。エポキシ化合物は、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

【0045】

(イソシアネート系化合物)

イソシアネート系化合物は、イソシアネート、あるいはブロックイソシアネートに代表されるイソシアネート誘導体構造を有する化合物である。イソシアネートとしては、例えば、トリレンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、メチレンジフェニルジイソシアネート、フェニレンジイソシアネート、ナフタレンジイソシアネート等の芳香族イソシアネート、 , , ' , ' - テトラメチルキシリレンジイソシアネート等の芳香環を有する脂肪族イソシアネート、メチレンジイソシアネート、プロピレンジイソシアネー

10

20

30

40

50

ト、リジンジイソシアネート、トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート等の脂肪族イソシアネート、シクロヘキサンジイソシアネート、メチルシクロヘキサンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、メチレンビス(4-シクロヘキシルイソシアネート)、イソプロピリデンジシクロヘキシルジイソシアネート等の脂環族イソシアネート等が例示される。また、これらイソシアネートのビュレット化物、イソシアヌレート化物、ウレトジオン化物等の重合体や誘導体も挙げられる。イソシアネートは、これらを単独で用いても、複数種併用してもよい。上記イソシアネートの中でも、紫外線による黄変を避けるために、脂肪族イソシアネートまたは脂環族イソシアネートがより好ましい。

【0046】

ブロックイソシアネートの状態で使用する場合、そのブロック剤としては、例えば重亜硫酸ナトリウムなどの重亜硫酸塩類、フェノール、クレゾール、エチルフェノールなどのフェノール系化合物、プロピレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコール、ベンジルアルコール、メタノール、エタノールなどのアルコール系化合物、マロン酸ジメチル、マロン酸ジエチル、アセト酢酸メチル、アセト酢酸エチル、アセチルアセトンなどの活性メチレン系化合物、ブチルメルカプタン、ドデシルメルカプタンなどのメルカプタン系化合物、カプロラクタム、バレロラクタムなどのラクタム系化合物、ジフェニルアニリン、アニリン、エチレンイミンなどのアミン系化合物、アセトアニリド、酢酸アミドの酸アミド化合物、ホルムアルデヒド、アセトアルドオキシム、アセトンオキシム、メチルエチルケトンオキシム、シクロヘキサノンオキシムなどのオキシム系化合物が挙げられ、これらは単独でも2種以上の併用であってもよい。

【0047】

また、イソシアネート系化合物は単体で用いてもよいし、各種ポリマーとの結合物を用いてもよい。さらに、イソシアネート系化合物は、各種ポリマーの混合物として硬化樹脂層組成物に配合してもよい。イソシアネート系化合物の分散性や架橋性を向上させるという観点から、ポリエステル樹脂又はウレタン樹脂との混合物や結合物を使用することが好ましい。イソシアネート系化合物は、1種単独で使用してもよいし、2種以上を使用してもよい。なお、イソシアネート系化合物を使用した場合の架橋剤の量とは、上記ブロック剤、結合又は混合して配合されるポリマーなども含めた量である。

【0048】

(カルボジイミド系化合物)

カルボジイミド系化合物は、カルボジイミド構造を有する化合物のことである。カルボジイミド系化合物を使用すると、硬化樹脂層の耐湿熱性を向上することができる。カルボジイミド系化合物は従来公知の技術で合成することができ、一般的には、ジイソシアネート化合物の縮合反応が用いられる。ジイソシアネート化合物としては、特に限定されるものではなく、芳香族系、脂肪族系いずれも使用することができ、具体的には、トリレンジイソシアネート、キシレンジイソシアネート、ジフェニルメタンジイソシアネート、フェニレンジイソシアネート、ナフタレンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート、シクロヘキサンジイソシアネート、メチルシクロヘキサンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、ジシクロヘキシルジイソシアネート、ジシクロヘキシルメタンジイソシアネートなどが挙げられる。カルボジイミド系化合物は、1種単独で使用してもよいし、2種以上を使用してもよい。

【0049】

(シランカップリング化合物)

シランカップリング化合物は、1つの分子中に有機官能基とアルコキシ基などの加水分解基を有する有機ケイ素化合物である。例えば、3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシランなどのエポキシ基含有化合物、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシランなどのビニル基含有化合物、p-ス

10

20

30

40

50

チリルトリメトキシシラン、p - スチリルトリエトキシシランなどのスチリル基含有化合物、3 - (メタ) アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3 - (メタ) アクリロキシプロピルトリエトキシシラン、3 - (メタ) アクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、3 - (メタ) アクリロキシプロピルメチルジエトキシシランなどの(メタ) アクリル基含有化合物、3 - アミノプロピルトリメトキシシラン、3 - アミノプロピルトリエトキシシラン、N - 2 - (アミノエチル) - 3 - アミノプロピルトリメトキシシラン、N - 2 - (アミノエチル) - 3 - アミノプロピルトリエトキシシラン、N - 2 - (アミノエチル) - 3 - アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N - 2 - (アミノエチル) - 3 - アミノプロピルメチルジエトキシシラン、3 - トリエトキシシリル - N - (1, 3 - ジメチルブチリデン) プロピルアミン、N - フェニル - 3 - アミノプロピルトリメトキシシラン、N - フェニル - 3 - アミノプロピルトリエトキシシランなどのアミノ基含有化合物、トリス(トリメトキシシリルプロピル) イソシアヌレート、トリス(トリエトキシシリルプロピル) イソシアヌレートなどのイソシアヌレート基含有化合物、3 - メルカプトプロピルトリメトキシシラン、3 - メルカプトプロピルトリエトキシシラン、3 - メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、3 - メルカプトプロピルメチルジエトキシシランなどのメルカプト基含有化合物などが挙げられる。

10

上記化合物の中でも硬化樹脂層の強度の保持の観点から、エポキシ基含有シランカップリング化合物、ビニル基や(メタ) アクリル基などの二重結合含有シランカップリング化合物、アミノ基含有シランカップリング化合物がより好ましい。

シランカップリング化合物は、1 種単独で使用してもよいし、2 種以上を併用してもよい。

20

【0050】

硬化樹脂層組成物中に含まれる架橋剤は、硬化樹脂層を形成する際の乾燥過程や、製膜過程において、反応させて硬化樹脂層の性能を向上させるように設計するとよい。硬化樹脂層組成物から形成された硬化樹脂層中には、これら架橋剤の未反応物、反応後の化合物、あるいはそれらの混合物が存在しているものと推測できる。

【0051】

硬化樹脂層組成物における架橋剤の含有量は、硬化樹脂層組成物中の不揮発成分に対して、5 ~ 60 質量% の範囲とすることが好ましい。硬化樹脂層組成物における不揮発成分に対する架橋剤の含有量を5 ~ 60 質量% とすることで、帯電電位の減衰をより抑制しやすくなる。また、硬化樹脂層の強度が向上し、傷付き防止性なども向上しやすくなる。以上の観点から、より好ましくは10 ~ 50 質量%、さらに好ましくは15 ~ 40 質量%、特に好ましくは20 ~ 40 質量%である。

30

【0052】

また、硬化樹脂層組成物中に架橋触媒を含有する場合、架橋触媒の含有量は、硬化樹脂層組成物中の不揮発成分に対して、0.4 ~ 10 質量% の範囲であると、硬化樹脂層の強度が向上し、傷付き防止性などが向上しやすい傾向にあり、好ましい。以上の観点から、架橋触媒の含有量は、好ましくは0.6 ~ 8 質量%、より好ましくは0.8 ~ 5 質量%である。

【0053】

(バインダー樹脂(C))

バインダー樹脂は、上記架橋剤(B) が架橋してなるポリマー以外に硬化樹脂層組成物に含有されるポリマー成分である。硬化樹脂層組成物がバインダー樹脂を含有することで、硬化樹脂層の成膜性、透明性などが向上する。

40

【0054】

バインダー樹脂の具体例としては、アクリル樹脂、ポリビニルアルコール、ポリエステル樹脂、ウレタン樹脂、ポリアルキレングリコール、ポリアルキレンイミン、メチルセルロース、ヒドロキシセルロース、でんぷん類等が挙げられる。これらの中では、塗布性などの観点から、アクリル樹脂、ポリエステル樹脂、ウレタン樹脂が好ましく、硬化樹脂層自体の耐久性向上の観点から、アクリル樹脂、ポリエステル樹脂がより好ましく、塗布性

50

をさらに向上させる観点などから、アクリル樹脂がさらに好ましい。

【 0 0 5 5 】

(アクリル樹脂)

アクリル樹脂は、アクリル系、メタアクリル系のモノマーを含む重合性モノマーからなる重合体である。これらは、単独重合体あるいは共重合体、さらにはアクリル系、メタアクリル系のモノマー以外の重合性モノマーとの共重合体のいずれでもよい。

また、それら重合体と他のポリマー（例えばポリエステル、ポリウレタン等）との共重合体も含まれる。例えば、ブロック共重合体、グラフト共重合体である。すなわち、アクリル樹脂は、アクリル変性ポリエステル樹脂や、アクリル変性ポリウレタン樹脂であってもよい。

10

さらには、ポリエステル溶液、またはポリエステル分散液中で重合性モノマーを重合して得られたポリマー（場合によってはポリマーの混合物）も含まれる。同様にポリウレタン溶液、ポリウレタン分散液中で重合性モノマーを重合して得られたポリマー（場合によってはポリマーの混合物）も含まれる。同様にして他のポリマー溶液、または分散液中で重合性モノマーを重合して得られたポリマー（場合によってはポリマー混合物）も含まれ、これらも本明細書では、アクリル変性ポリエステル樹脂や、アクリル変性ポリウレタン樹脂とする。なお、アクリル樹脂において使用される上記したポリエステル、ポリウレタンは、後述するバインダー樹脂に使用されるポリエステル、ポリウレタンとして例示されたものから適宜選択して使用できる。

また、アクリル樹脂は、ポリエステルフィルムとの密着性をより向上させるために、ヒドロキシ基、アミノ基を含有してもよい。

20

【 0 0 5 6 】

上記重合性モノマーとしては、特に限定はしないが、特に代表的な化合物としては、例えば、アクリル酸、メタアクリル酸、クロトン酸、イタコン酸、フマル酸、マレイン酸、シトラコン酸のような各種カルボキシ基含有モノマー類、及びそれらの塩；2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、4-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、モノブチルヒドロキシルマレート、モノブチルヒドロキシイタコネートのような各種の水酸基含有モノマー類；メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、プロピル（メタ）アクリレート、ブチル（メタ）アクリレート、ラウリル（メタ）アクリレートのような各種の（メタ）アクリル酸エステル類；（メタ）アクリルアミド、ジアセトンアクリルアミド、N-メチロールアクリルアミドまたは（メタ）アクリロニトリル等のような種々の窒素含有化合物；スチレン、 α -メチルスチレン、ジビニルベンゼン、ビニルトルエンのような各種スチレン誘導体、プロピオン酸ビニルのような各種のビニルエステル類； α -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン等のような種々の珪素含有重合性モノマー類；燐含有ビニル系モノマー類；塩化ビニル、塩化ピリデンのような各種のハロゲン化ビニル類；ブタジエンのような各種共役ジエン類が挙げられる。

30

【 0 0 5 7 】

(ポリエステル樹脂)

ポリエステル樹脂とは、主な構成成分として例えば、下記のような多価カルボン酸及び多価ヒドロキシ化合物からなるものが挙げられる。すなわち、多価カルボン酸としては、テレフタル酸、イソフタル酸、オルトフタル酸、フタル酸、4,4'-ジフェニルジカルボン酸、2,5-ナフタレンジカルボン酸、1,5-ナフタレンジカルボン酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、2,7-ナフタレンジカルボン酸、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、2-カリウムスルホテレフタル酸、5-ソジウムスルホイソフタル酸、アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカンジカルボン酸、グルタル酸、コハク酸、トリメリット酸、トリメシン酸、ピロメリット酸、無水トリメリット酸、無水フタル酸、p-ヒドロキシ安息香酸、トリメリット酸モノカリウム塩及びそれらのエステル形成性誘導体などを用いることができる。多価ヒドロキシ化合物としては、エチレングリコール、1,2-プロピレングリコール、1,3-プロピレングリコール、1,3-プロパンジオール

40

50

、 1 , 4 - ブタンジオール、 1 , 6 - ヘキサジオール、 2 - メチル - 1 , 5 - ペンタンジオール、ネオペンチルグリコール、 1 , 4 - シクロヘキサジメタノール、 p - キシリレングリコール、ビスフェノール A - エチレングリコール付加物、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリテトラメチレングリコール、ポリテトラメチレンオキシドグリコール、ジメチロールプロピオン酸、グリセリン、トリメチロールプロパン、ジメチロールエチルスルホン酸ナトリウム、ジメチロールプロピオン酸カリウムなどを用いることができる。これらの化合物の中から、それぞれ適宜 1 つ以上を選択し、常法の重縮合反応によりポリエステル樹脂を合成すればよい。また、ポリエステル樹脂は、水分散体としてもよく、その場合、ポリエステル樹脂には適宜親水性官能基などを導入してもよい。

10

【 0 0 5 8 】

(ポリビニルアルコール)

ポリビニルアルコールとは、ポリビニルアルコール部位を有する化合物であり、例えば、ポリビニルアルコールに対し、部分的にアセタール化やブチラール化等された変性化合物も含め、従来公知のポリビニルアルコールを使用することができる。ポリビニルアルコールの重合度は特に限定されるものではないが、通常 1 0 0 以上、好ましくは 3 0 0 ~ 4 0 0 0 0 の範囲である。重合度を 1 0 0 以上とすることで、硬化樹脂層の耐水性が低下することを防止できる。また、ポリビニルアルコールのケン化度は特に限定されるものではないが、通常 7 0 モル % 以上、好ましくは 7 0 ~ 9 9 . 9 モル % の範囲、より好ましくは 8 0 ~ 9 7 モル % 、特に好ましくは 8 6 ~ 9 5 モル % であるポリ酢酸ビニルケン化合物が実

20

【 0 0 5 9 】

(ウレタン樹脂)

ウレタン樹脂とは、ウレタン結合を分子内に有する高分子化合物のことである。通常ウレタン樹脂はポリオールとイソシアネートの反応により作製される。ポリオールとしては、ポリカーボネートポリオール類、ポリエステルポリオール類、ポリエーテルポリオール類、ポリオレフィンポリオール類、アクリルポリオール類が挙げられ、これらの化合物は単独で用いても、複数種用いてもよい。ウレタン樹脂は、水分散体であってもよく、その場合、例えばポリオールに適宜親水性官能基を導入してもよい。

【 0 0 6 0 】

硬化樹脂層組成物におけるバインダー樹脂の含有量は、硬化樹脂層組成物における不揮発成分に対して、 1 0 ~ 7 0 質量 % の範囲であることが好ましい。バインダー樹脂の含有量を 1 0 ~ 7 0 質量 % とすることで、塗布性及び帯電電位の減衰をより抑制しやすくなる。また、硬化樹脂層の外観や透明性を向上させやすくなる。以上の観点から、より好ましくは 2 0 ~ 6 5 質量 % 、さらに好ましくは 3 0 ~ 6 0 質量 % 、特に好ましくは 3 0 ~ 5 5 質量 % である。

30

硬化樹脂層組成物には、上記した各成分以外にも、反応調整剤、密着強化剤、界面活性剤、帯電防止剤、粒子などの添加剤を適宜配合してもよい。

【 0 0 6 1 】

硬化樹脂層組成物は、液状の塗布液としてポリエステルフィルムに塗布し、必要に応じて乾燥し、かつ硬化させるとよい。硬化樹脂層組成物は、溶媒により希釈することで塗布液とすることが好ましい。硬化樹脂組成物を構成する上記各成分 ((A) ~ (C) 成分など) は、溶媒に溶解させてもよいが、溶媒中に分散させてもよい。

40

硬化樹脂層組成物に用いる溶媒には制限はなく、水及び有機溶剤のいずれかを使用すればよいが、環境保護の観点から、水を溶媒とする水性塗布液とすることが好ましい。水性塗布液には、少量の有機溶剤を含有していてもよい。有機溶剤の具体的な量は、質量基準で水より少なくするとよいが、例えば、溶媒中の 3 0 質量 % 未満、好ましくは 2 0 質量 % 未満、より好ましくは 1 0 質量 % 未満とする。

水と併用する有機溶剤としては、エタノール、イソプロパノール、エチレングリコール、グリセリン等のアルコール類、エチルセロソルブ、 t - ブチルセロソルブ、プロピレン

50

グリコールモノメチルエーテル、テトラヒドロフラン等のエーテル類、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン類、酢酸エチル等のエステル類、ジメチルエタノールアミン等のアミン類等を例示することができる。これらは単独、もしくは複数を組み合わせて用いることができる。水性塗布液に、必要に応じてこれらの有機溶剤を適宜選択し、含有させることで、塗布液の安定性、塗布性を良好にできる場合がある。

【0062】

また、上記溶剤として有機溶剤単独で使用する場合、有機溶剤としては、トルエン等の芳香族炭化水素類、ヘキサン、ヘプタン、イソオクタン等の脂肪族炭化水素類、酢酸エチル、酢酸ブチル等のエステル類、メチルエチルケトン（MEK）、イソブチルメチルケトン等のケトン類、エタノール、2-プロパノール等のアルコール類、ジイソプロピルエーテル、ジブチルエーテル等のエーテル類などを挙げることができる。これらは、溶解性、塗布性や沸点等を考慮して単独で使用してもよいし、複数種を混合して使用してもよい。

10

【0063】

<硬化樹脂層の形成方法>

以下、硬化樹脂層の形成方法について詳細に説明する。硬化樹脂層の形成は、インラインコーティングにより行ってもよいし、オフラインコーティングにより行ってもよい。インラインコーティングは、ポリエステルフィルムを製造する製造ライン上で、ポリエステルフィルム表面に硬化樹脂層組成物の塗布液を塗布する方法である。オフラインコーティングは、一旦製造したポリエステルフィルム上に系外（上記製造ライン外）で塗布液を塗布する方法である。硬化樹脂層は、加工の容易性の点からインラインコーティングにより形成することが好ましい。

20

【0064】

インラインコーティングは、具体的には、ポリエステルを溶融押出ししてから延伸後熱固定して巻き上げるまでのいずれか任意の段階で、ポリエステルフィルムに硬化樹脂層組成物の塗布液の塗布を行う方法である。通常、溶融、急冷して得られる未延伸シート、延伸された一軸延伸フィルム、熱固定前の二軸延伸フィルム、熱固定後で巻上前のフィルムのいずれかでポリエステルフィルムに塗布液を塗布するとよい。

【0065】

塗布液を塗布する方法としては、例えば、エアドクターコート、ブレードコート、ロッドコート、バーコート、ナイフコート、スクイズコート、含浸コート、リバースロールコート、トランスファロールコート、グラビアコート、キスロールコート、キャストコート、スプレーコート、カーテンコート、カレンダーコート、押出コート等従来公知の塗布方法を用いることができる。

30

【0066】

また、特に限定されるものではないが、例えば、逐次二軸延伸においては、特に長手方向（縦方向）に延伸された一軸延伸フィルムに塗布液を塗布した後に横方向に延伸する方法が好ましい。かかる方法によれば、ポリエステルフィルムの製膜と硬化樹脂層の形成を同時に行うことができるため製造コスト上のメリットがあり、また、塗布後に延伸を行うために、硬化樹脂層の厚みを延伸倍率により変化させることもでき、オフラインコーティングに比べ、薄膜コーティングをより容易に行うことができる。さらには、硬化樹脂層の厚みをより均一にすることができる。

40

【0067】

また、延伸前にポリエステルフィルム上に硬化樹脂層組成物の塗布液を塗布することにより、硬化樹脂をポリエステルフィルムと共に延伸することができ、それにより硬化樹脂層をポリエステルフィルムに強固に密着させることができる。

また、二軸延伸フィルムの製造においては、クリップ等によりフィルム端部を把持しつつ延伸することで、ポリエステルフィルムを縦および横方向に拘束することができ、熱固定工程において、しわ等が入らず平面性を維持したまま高温に加熱できる。そのため、硬化樹脂層組成物を塗布した後に施される熱処理が他の方法では達成できない高温とすることができるため、硬化樹脂層とポリエステルフィルムをより強固に密着させることができ

50

る。

【 0 0 6 8 】

また、ポリエステルフィルムに塗布された硬化樹脂層組成物の塗布液は、オフラインコーティングあるいはインラインコーティングのいずれにおいても、熱処理と紫外線照射等の活性エネルギー線照射のいずれか一方のみを行ってもよいし、両方を併用してもよいが、少なくとも熱処理を行うことが好ましい。また、熱処理及び活性エネルギー線照射の一方又は両方により、硬化樹脂層組成物を硬化させるとよい。熱処理は、上記のとおり例えば熱固定工程による加熱により行えばよいが、他の方法により行ってもよい。また、硬化樹脂層組成物の塗布液は、溶媒を含む場合、適宜乾燥されるが、上記熱処理により乾燥されることが好ましい。

10

また、硬化樹脂層を形成するための塗布液のポリエステルフィルムへの塗布性、硬化樹脂層のポリエステルフィルムに対する接着性を改良するため、塗布液の塗布前に、ポリエステルフィルムの硬化樹脂層が形成される面に化学処理、コロナ放電処理、プラズマ処理、オゾン処理、薬品処理、溶剤処理等の表面処理を施してもよい。

【 0 0 6 9 】

硬化樹脂層付きポリエステルフィルムは、上記のとおり、ポリエステルフィルムと硬化樹脂層との間に他の層を備えていてもよい。当該他の層としては、例えば帯電防止層、易接着層、オリゴマー封止層などの各種機能を備えた層を挙げることができる。

【 0 0 7 0 】

硬化樹脂層の厚みは、 $0.005 \sim 1 \mu\text{m}$ であることが好ましい。 $1 \mu\text{m}$ 以下とすることで、硬化樹脂層を構成する成分が硬化樹脂層等へ移行することを抑制し、さらに巻き取る際のブロッキングなども防止しやすくなる。一方で、 $0.005 \mu\text{m}$ 以上とすることで、帯電電位の減衰をより抑制しやすくなる。

20

これらの観点から $0.01 \mu\text{m}$ 以上がより好ましく、 $0.02 \mu\text{m}$ 以上がさらに好ましく、また、 $0.2 \mu\text{m}$ 以下がより好ましく、 $0.1 \mu\text{m}$ 以下がさらに好ましく、その中でも特に $0.06 \mu\text{m}$ 以下がよい。

【 0 0 7 1 】

< 金属積層フィルム >

本発明のポリエステルフィルムは、その少なくとも片面に金属層が設けられた金属積層フィルムとすることができる。金属層は、ポリエステルフィルムの片面に設けられていても、両面に設けられていてもよい。また、上述の硬化樹脂層上に設けられてもよい。

30

金属としては、銅、銀、クロム、アルミニウム、ニッケル、亜鉛等が挙げられ、これらのうち、コスト、環境対応の点から、アルミニウム、亜鉛が好ましい。金属層の厚みとしては、 $10 \sim 5000$ の範囲であることが好ましく、 $100 \sim 4000$ の範囲であることがより好ましく、 $100 \sim 2000$ の範囲であることがさらに好ましい。上記範囲内であると電気特性の点で有利である。

【 0 0 7 2 】

< 本ポリエステルフィルムの製造方法 >

本ポリエステルフィルムの製造方法の一例として、本ポリエステルフィルムが二軸延伸フィルムの場合の製造方法について説明する。但し、ここで説明する製造方法に限定するものではない。

40

【 0 0 7 3 】

まずは、公知の方法により、原料、例えばポリエステルチップを溶融押出装置に供給し、それぞれのポリマーの融点以上に加熱し、溶融ポリマーをダイから押し出し、回転冷却ドラム上でポリマーのガラス転移点以下の温度となるように冷却固化し、実質的に非晶状態の未配向シートを得るようにすればよい。

【 0 0 7 4 】

次に、当該未配向シートを、一方向にロール又はテンター方式の延伸機により延伸する。この際、延伸温度は、通常 $25 \sim 120$ 、好ましくは $35 \sim 100$ であり、延伸倍率は通常 $2.5 \sim 7$ 倍、好ましくは $2.8 \sim 6$ 倍である。

50

次いで、一段目の延伸方向と直交する方向に延伸する。この際、延伸温度は通常 50 ~ 140 であり、延伸倍率は通常 3.0 ~ 7 倍、好ましくは 3.5 ~ 6 倍である。

なお、上記の延伸においては、一方向の延伸を 2 段階以上で行う方法を採用することもできる。

また、本発明においては、横方向への延伸倍率を高くすることが好ましく、したがって、一段目及び二段目のいずれかにおいて延伸倍率を 4.5 倍以上とすることが好ましい。

【0075】

延伸後、引き続き 130 ~ 270 の温度で緊張下または 30 % 以内の弛緩下で熱固定処理を行い、二軸配向フィルムとしての本ポリエステルフィルムを得ることができる。

本ポリエステルフィルムは、熱固定処理を行うことで、耐熱性などを向上させることができる。

なお、上記は単層フィルムを前提に製造方法を説明したが、多層の場合には、例えば共押出などにより未配向シートを作製して、その後、同様に行うとよい。

【0076】

(フィルム厚み)

フィルム厚みは 0.5 ~ 12.0 μm が好ましい。厚みがこの範囲であると、コンデンサー用途として使用するのに適する。以上の観点から、本ポリエステルフィルムの厚みは、さらに好ましくは 0.5 ~ 10.0 μm 、その中でも特に 1.0 ~ 8.0 μm がよい。

【0077】

< 本ポリエステルフィルムの特性 >

本発明のポリエステルフィルムは、パルス NMR 法にて得られるポリプロピレン樹脂 (Y) 成分の緩和時間 T について、フィルムを 150 で 1 分熱処理した後の緩和時間 (T2) (μs) と熱処理する前の緩和時間 (T1) (μs) の関係が、下記式 (1) を満たすことが必要である。

$$(T2)/(T1) \geq 1.20 \cdots (1)$$

【0078】

(T2)/(T1) の値は、好ましくは 1.40 以上、より好ましくは 2.00 以上、最も好ましくは 4.00 以上、その中でも特に 6.00 以上であることが好ましい。この値が高いほど、高温でも高い絶縁破壊電圧を示し、コンデンサーとしたときに高温環境で長時間の信頼性を発現できると考えられる。

(T2)/(T1) の値を増大させる手法としては、後に詳述する、特定構造の相溶化剤 (Z) を使用することが好ましいが、相溶化剤 (Z) を使用する構成に限定されない。例えば、混練条件を適宜調整して、ポリプロピレン樹脂をポリエステル樹脂に十分に分散させることで、(T2)/(T1) を高くすることができる。

また、フィルム延伸工程において、横延伸倍率を 4.5 倍以上、好ましくは 4.8 倍以上とすることで、より広範囲にポリプロピレン樹脂を分散させることができ、(T2)/(T1) を高くすることに寄与できる。

【0079】

上記式 (1) を満足することは、フィルムを熱処理した時に、フィルム中のポリプロピレン樹脂の分散状態が良好であることを示唆している。すなわち、ポリプロピレン樹脂の分散状態が良好であり、広範囲に分散しているほど、熱処理によりポリプロピレン樹脂の分子運動が活発化するに伴い、緩和時間 (T2) がさらに長くなるものと推察される。特に 120 以上の高温環境において、ポリプロピレン樹脂の分子運動が活発に活動することで、良好な電気特性を発現できているものと推察される。

【0080】

本発明においてはコンデンサー用途に対応するため、フィルム厚みが通常とは異なり、極薄領域 (0.5 ~ 12 μm) が主流となる。そのため、他用途 (例えば、紙代替におけるクッション性付与を目的として) のように、ポリエステル樹脂に対して、非相溶なポリプロピレン樹脂を用いて、空隙 (ボイド) を意図的に形成するものとは異なる。

ポリプロピレン樹脂を用いる理由はコンデンサー用フィルムとして、特に低周波領域に

おける電気特性改良を意図して用いている。かかる観点より、フィルム成形加工後、フィルム中のポリプロピレン樹脂由来の空隙（ポイド）を極力形成しない方が電気特性を良好とするとの設計思想より、前述の通り、フィルム構造をミクロな視点から注目し、ポリプロピレン樹脂の分散性を物理的特性、具体的にはパルスNMRによる緩和時間に置き換え、電気特性（誘電正接）との関係性に着目した結果、両者が良好な相関を示すことを見出し、本発明を完成させるに至った。

【0081】

また、前記特性を発現するメカニズムは不明であるが、極薄領域（ $0.5 \sim 12 \mu\text{m}$ ）の厚みを有するフィルムを延伸する際にはフィルムの厚み方向に上下から力が加わると推察される。フィルムの厚み方向に上下から加わる力により、相溶化剤との相乗効果も加わり、ポリエステル樹脂層（X）とポリプロピレン樹脂層（Y）との密着性を向上させた結果、例えば、両者の界面に存在する空気を押し出すことで、結果的に空隙（ポイド）を形成しにくい構造をとることも関与しているものと推察される。

【0082】

（誘電正接（ \tan ））

本発明のポリエステルフィルムは、 1kHz における \tan が 0.55 以下であることが好ましく、より好ましくは 0.50 以下、さらに好ましくは 0.45 以下、その中でも特に 0.40 以下がよい。

\tan が前記範囲を満足することによりフィルムの電気特性が良好となり、コンデンサー用に好適となる。

【0083】

<用途>

本発明のポリエステルフィルム、及び金属積層フィルムは、低い誘電正接（ \tan ）など優れた電気特性を有することから、コンデンサー用として有用である。特に薄いフィルム状であることから、ハイブリッド自動車、電気自動車など、小型化・軽量化・高容量化が必要とされる自動車に搭載するコンデンサー用として有用である。

【0084】

<語句の説明など>

本発明においては、「フィルム」と称する場合でも「シート」を含むものとし、「シート」と称する場合でも「フィルム」を含むものとする。

本発明において、「 $X \sim Y$ 」（ X ， Y は任意の数字）と記載した場合、特に断らない限り「 X 以上 Y 以下」の意と共に、「好ましくは X より大きい」或いは「好ましくは Y より小さい」の意も包含するものである。

また、「 X 以上」（ X は任意の数字）と記載した場合、特に断らない限り「好ましくは X より大きい」の意を包含し、「 Y 以下」（ Y は任意の数字）と記載した場合、特に断らない限り「好ましくは Y より小さい」の意も包含するものである。

【実施例】

【0085】

次に、実施例により本発明をさらに詳しく説明する。但し、本発明が、以下に説明する実施例に限定されるものではない。

【0086】

<評価方法>

種々の物性及び特性の測定及び評価方法は、以下の通りである。

【0087】

（１）極限粘度（ IV ）

ポリエステル 1g を精秤し、フェノール／テトラクロロエタン＝ $50/50$ （質量比）の混合溶媒 100ml を加えて溶解させ、 30 で測定した。

【0088】

（２）フィルム厚み

フィルム小片をエポキシ樹脂にて固定成形した後、マイクロームで切断し、フィルムの

10

20

30

40

50

断面を透過型電子顕微鏡写真にて観察した。その断面のうちフィルム表面とほぼ平行に2本、明暗によって界面が観察される。その2本の界面とフィルム表面までの距離を10枚の写真から測定し、平均値を積層厚みとした。

【0089】

(3) ポリプロピレン樹脂(Y)の融点

示差走査熱量測定(DSC)によって、室温から200℃まで昇温して、熱履歴を消去した後、10℃/分の降温速度で40℃まで温度を降下させ、再度、昇温速度10℃/分にて測定した際の吸熱ピークトップの温度と定義する。

【0090】

(4) NMR緩和時間(T2)(μs)と(T1)(μs)およびその比(T2)/(T1)

フィルムを150℃で1分熱処理する方法は、厚み2mm、外寸300mm×300mm、内寸280mm×280mmに中抜きされた幅20mmの四角い金属製フレームを用い、そのフレーム面の4辺には両面テープ(ニチバン社製“ナイスタック”NW-H15接着力02)を貼り、金属製フレームの全面にフィルムが被さるようにフィルムを貼り付け、さらに同寸法の金属製フレームでフィルムを挟み込む。このとき、フィルムに皺が入らないように貼り付ける。次いで、金属フレーム/両面テープ/フィルム/金属フレームの状態、フレームの4辺をクリップで挟み固定したサンプルを作成し、150℃に加熱されたオープン中へ1分間放置した。1分後にサンプルを取り出し、常温で5分間放置したあと、金属フレームの内枠に沿ってフィルムを切り出し、150℃1分熱処理後のフィルムとした。フィルムが300mm×300mmの寸法で得られない場合は、貼り付け可能な寸法の金属枠を用いた。

【0091】

次いで150℃で1分の熱処理前のパルスNMR法によるポリエステルフィルム中のポリプロピレン樹脂(Y)成分の緩和時間(T2)(μs)と、処理後のパルスNMR法によるポリエステルフィルム中のポリプロピレン樹脂(Y)成分の緩和時間(T1)(μs)は、以下に示す装置および条件にて求め、その比(T2)/(T1)を算出した。

装置: Bruker Biospin社製mq20

温度: 40℃

観測周波数: 20MHz

90°パルス幅: 2.74μs

パルス繰り返し時間: 2.0s

パルスモード: Solido Echo法

測定は、熱処理前のフィルムと熱処理後のフィルムのそれぞれのフィルムについて、フィルムを裁断して、外径10mmのガラス管の管内に高さ1cmとなるまで断裁したフィルムを詰め込み、ポリエステルフィルム中のポリプロピレン樹脂(Y)成分について1H核のスピン-スピン緩和時間T2を求めた。測定はフィルムを装置に投入して15分間保温した後に開始し、得られた減衰曲線を最小二乗法により、T2の短いガウス関数成分と、T2の長い指数関数成分に分離した。

【0092】

(5) 誘電正接(tanδ)

予め、試料フィルムの両面に円形にAl蒸着したサンプルを装置(HP(HEWLETT PACKARD)社製 型式: 4284A)に載せ、上下から電極を接触させる。電流の周波数を1kHzに設定した時のtanδを計測する。

具体的には、コンデンサーに交流電圧を印可した時に電力損失が発生するが、この時の損失角をδとし、tanδを誘電正接とする。tanδの値が小さいほど、優良なコンデンサーであることを示している。

【0093】

各実施例および比較例におけるポリエステルフィルムの原料は、以下のとおりである。

(ポリエステルフィルム)

(a) ポリエステル樹脂(X1): 極限粘度が0.63であるポリエチレンテレフタレー

10

20

30

40

50

トホモポリマー（重縮合触媒；アンチモン）。

（b）ポリエステル樹脂（X2）：平均粒子径0.8 μmのシリカ粒子を0.5質量％含有する、極限粘度が0.65であるポリエチレンテレフタレートホモポリマー（重縮合触媒；アンチモン）。

（c）ポリプロピレン樹脂（Y）：融点163、MFR=7.5（住友化学社製：FLX80E4）

（d）酸無水物構造を有する樹脂（Z1）：無水マレイン酸変性ポリプロピレン樹脂（アドマーQE800、メルトフローレート：9.1g/10分、酸価4.3、三井化学社製）

（e）酸無水物構造を有する樹脂（Z2）：無水マレイン酸変性ポリスチレン樹脂（タフテックM1943、メルトフローレート：8.0g/10分、旭化成社製）

【0094】

[実施例1]

ポリエステル樹脂X1、ポリプロピレン樹脂Y、相溶化剤としてZ1を、それぞれ87.5質量％、10質量％、2.5質量％の割合で混合した混合原料を押出機に供給し、285で溶融した後、25に設定した冷却ロール上に押出し冷却固化させて未延伸シートを得た。次いで、ロール周速差を利用してフィルム温度85で縦方向（MD）に3.2倍延伸した。この縦延伸フィルムをテンターに導き、横方向（TD）に100で4.9倍延伸した。220で熱処理を行った後、横方向に0.5％弛緩し、厚みが6.9 μmのポリエステルフィルムを得た。

【0095】

[実施例2～3、比較例1]

表1に示すように条件を変更した以外は、実施例1と同様にしてポリエステルフィルムを得た。

【0096】

【表1】

表1

| 項目 | | 単位 | 実施例1 | 実施例2 | 実施例3 | 比較例1 |
|----------------|----|---------|-------|-------|-------|-------|
| ポリエステル（X） | X1 | 質量部 | 87.5 | 75 | 87.5 | 80 |
| | X2 | 質量部 | 0 | 0 | 0 | 20 |
| ポリプロピレン（Y） | | 質量部 | 10 | 20 | 10 | 0 |
| PPのMFR | | g/10min | 7.5 | 7.5 | 7.5 | - |
| 相溶化剤（Z1） | | 質量部 | 2.5 | 5 | 0 | 0 |
| 相溶化剤（Z2） | | 質量部 | 0 | 0 | 2.5 | 0 |
| 縦延伸温度 | | ℃ | 85 | 85 | 85 | 85 |
| 縦延伸倍率 | | — | 3.2 | 3.2 | 3.2 | 3.2 |
| 横延伸温度 | | ℃ | 100 | 100 | 100 | 100 |
| 横延伸倍率 | | — | 4.9 | 4.8 | 5.1 | 4.6 |
| 熱固定温度 | | ℃ | 220 | 220 | 220 | 220 |
| 弛緩率 | | ％ | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 |
| フィルム厚み(t) | | μm | 6.9 | 7.4 | 7.4 | 7.9 |
| NMR緩和時間（T2/T1） | | — | 1.58 | 6.87 | 1.43 | - |
| 誘電正接（tan δ） | | — | 0.490 | 0.385 | 0.506 | 0.579 |

【0097】

特定構造の相溶化剤を併用した実施例1～3は、比較例1と比較して、ポリプロピレン含有量が多いにも関わらず、相溶性が良好であり、フィルムを熱処理する前後における、NMRの緩和時間比率（T2/T1）値が大きい傾向にあった。しかも、誘電正接との関係においては、前記比率（T2/T1）が大きい方が、誘電正接が良好であることもわか

った。フィルム構造面から考察した場合、フィルムを熱処理した時に、フィルム中のポリプロピレン樹脂の分散性が良好であるほど、広範囲に分散しているほど、ポリプロピレン樹脂の分子運動が活発化するに伴い、緩和時間（ T_2 ）がさらに長くなるものと推察される。例えば、ポリエステル樹脂に対する、ポリプロピレン樹脂の配合比率が同じである、実施例 1 と実施例 3 との比較より、実施例 1 の方が、フィルム中のポリプロピレン樹脂の分散性が良好であることが示唆され、誘電正接の傾向とも符合する。

また、本願発明のように極薄領域（ $0.5 \sim 12 \mu\text{m}$ ）の厚みを有するフィルムを延伸する際にはフィルムの厚み方向に上下から力が加わると推察される。フィルムの厚み方向に上下から加わる力により、相溶化剤との相乗効果も加わり、ポリエステル樹脂層（ X ）とポリプロピレン樹脂層（ Y ）との密着性を向上させた結果、例えば、両者の界面に存在する空気を押し出すことで、結果的に空隙（ボイド）を形成しにくい構造をとるものと推察される。

さらに酸無水物構造を有する樹脂からなる相溶化剤を用いれば、特に相溶性が良好であり、電気特性の更なる改良効果が期待できることもわかった。

10

20

30

40

50

フロントページの続き

(51)国際特許分類

F I

C 0 8 L 23/12 (2006.01)

C 0 8 L 23/12

C 0 8 L 67/00 (2006.01)

C 0 8 L 67/00

審査官 大村 博一

(56)参考文献

国際公開第 2 0 0 9 / 0 6 9 7 4 2 (W O , A 1)

特開 2 0 0 2 - 1 5 5 1 5 3 (J P , A)

特開 2 0 0 5 - 1 3 2 9 0 5 (J P , A)

特開 2 0 0 3 - 0 4 8 2 4 6 (J P , A)

特開 2 0 0 1 - 3 4 1 2 3 2 (J P , A)

特開昭 5 7 - 0 4 9 6 4 8 (J P , A)

(58)調査した分野 (Int.Cl., D B 名)

C 0 8 J 5 / 0 0 - 5 / 0 2 ; 5 / 1 2 - 5 / 2 2

B 2 9 C 5 5 / 0 0 - 5 5 / 3 0

C 0 8 K 3 / 0 0 - 1 3 / 0 8

C 0 8 L 1 / 0 0 - 1 0 1 / 1 4

B 3 2 B 1 / 0 0 - 4 3 / 0 0

H 0 1 G 4 / 0 0 - 4 / 1 0 ; 4 / 1 4 - 4 / 2 2 4

4 / 2 5 5 - 4 / 4 0 ; 1 3 / 0 0 - 1 3 / 0 6

H 0 1 B 3 / 1 6 - 3 / 5 6 ; 1 7 / 5 6 - 1 9 / 0 4