

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2012年9月13日(13.09.2012)



(10) 国際公開番号
WO 2012/121076 A1

- (51) 国際特許分類:
C08L 67/00 (2006.01) C08J 5/18 (2006.01)
C08G 63/83 (2006.01) C08K 3/32 (2006.01)
 - (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/055061
 - (22) 国際出願日: 2012年2月29日(29.02.2012)
 - (25) 国際出願の言語: 日本語
 - (26) 国際公開の言語: 日本語
 - (30) 優先権データ:
特願 2011-048108 2011年3月4日(04.03.2011) JP
 - (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 東レ株式会社(Toray Industries, Inc.) [JP/JP]; 〒1038666 東京都中央区日本橋室町2丁目1番1号 Tokyo (JP).
 - (72) 発明者; および
 - (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 鈴木維允(SU-ZUKI Tadamasa) [JP/JP]; 〒5208558 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社 滋賀事業場内 Shiga (JP). 青山滋(AOYAMA Shigeru) [JP/JP]; 〒5208558 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社 滋賀事業場内 Shiga (JP). 小島博二(KOJIMA Hiroji) [JP/JP]; 〒4118652 静岡県三島市4845番地 東レ株式会社 三島工場内 Shizuoka (JP). 高橋弘造(TAKAHASHI Kozo) [JP/JP]; 〒5208558 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社 滋賀事業場内 Shiga (JP).
 - (74) 代理人: 伴俊光, 外(BAN Toshimitsu et al.); 〒1600023 東京都新宿区西新宿8丁目1番9号 シンコービル オネスト国際特許事務所 Tokyo (JP).
 - (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
 - (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告(条約第21条(3))

(54) Title: POLYESTER COMPOSITION AND FILM USING SAME, SHEET-LIKE STRUCTURE, ELECTRIC INSULATION SHEET, AND SOLAR CELL BACK SHEET, AND MANUFACTURING METHODS THEREFOR

(54) 発明の名称: ポリエステル組成物およびそれを用いたフィルム、シート状構造体、電気絶縁シート、太陽電池バックシート並びにそれらの製造方法

(57) Abstract: Provided is a polyester composition having polyester as a main component. The polyester composition is characterized by: comprising phosphoric acid and an alkali metal phosphate, with a phosphorous element content P (mol/t) at 1.8 mol/t-5.0 mol/t with respect to the whole polyester composition; containing one type of metal element of either Mn and Ca, with the respective contents of divalent metal elements other than Mn and Ca of 5 ppm or lower with respect to the whole polyester composition; wherein, if the alkali metal element content with respect to the whole polyester composition is M1 (mol/t), and the total sum of the Mn element content and the Ca element content with respect to the whole polyester composition is M2 (mol/t), a metal content M (mol/t) and the phosphorous element content P (mol/t) in the polyester composition found using formula (i) satisfy formula (ii). (i) $M=M1/2+M2$ (ii) $1.1 \leq M/P \leq 3.0$. Further provided is a film using the polyester compound, a sheet-like structure, an electric insulation sheet, and a solar cell back sheet for use with the polyester composition, and manufacturing method therefor. The polyester composition and the film, the sheet-like structure, the electric insulation sheet, and the solar cell back sheet using the polyester composition exhibit excellent heat resistance and moist heat resistance.

(57) 要約: ポリエステルを主成分とするポリエステル組成物であって、リン酸とリン酸アルカリ金属塩を含有し、リン元素の含有量P (mol/t) が該ポリエステル組成物全体に対して1.8 mol/t以上5.0 mol/t以下であり、Mn、Caの少なくともいずれか1種類の金属元素を含有し、Mn、Ca以外の2価の金属元素の含有量がそれぞれ該ポリエステル組成物全体に対して5 ppm以下であり、前記ポリエステル組成物全体に対するアルカリ金属元素の含有量をM1 (mol/t) とし、前記ポリエステル組成物全体に対するMn元素含有量とCa元素含有量の合計をM2 (mol/t) とするとき、下記(i)式で求められる、前記ポリエステル組成物における金属含有量M (mol/t) と、前記リン元素の含有量P (mol/t) とが、下記(ii)式を満たすことを特徴とするポリエステル組成物を提供する。(i) $M=M1/2+M2$ (ii) $1.1 \leq M/P \leq 3.0$ また、上記ポリエステル組成物を用いたフィルム、シート状構造体、電気絶縁シート、太陽電池バックシート並びにそれらの製造方法も提供する。このようなポリエステル組成物ならびにそれを用いたフィルム、シート状構造体、電気絶縁シートおよび太陽電池バックシートは、耐熱性および耐湿熱性に優れている。

WO 2012/121076 A1

明 細 書

発明の名称：

ポリエステル組成物およびそれを用いたフィルム、シート状構造体、電気絶縁シート、太陽電池バックシート並びにそれらの製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、耐湿熱性の良好なポリエステル組成物、その製造方法、またそれを用いたフィルム、および該フィルムを用いた積層構造体からなるシート状構造体、該シート状構造体からなる電気絶縁シートに関する。また、該フィルムを用いた太陽電池バックシートに関する。

背景技術

[0002] ポリエステル（特にポリエチレンテレフタレートや、ポリエチレン2，6-ナフタレンジカルボキシレートなど）樹脂は機械特性、熱特性、耐薬品性、電気特性、成形性に優れ、様々な用途に用いられている。そのポリエステルをフィルム化したポリエステルフィルム、中でも二軸配向ポリエステルフィルムは、その機械的特性、電気的特性などから、太陽電池バックシート、給湯器モーター用電気絶縁材料や、ハイブリッド車などに使用されるカーエアコン用モーターや駆動モーター用などの電気絶縁材料、磁気記録材料や、コンデンサ用材料、包装材料、建築材料、写真用途、グラフィック用途、感熱転写用途などの各種工業材料として使用されている。

[0003] これらの用途のうち、特に高い耐熱性、耐湿熱性が要求される電気絶縁材料（例えばカーエアコン用モーターや駆動モーター用など）では、ポリエステル単体からなるフィルムでは、耐熱性、耐湿熱性が充分でないため、ポリフェニレンスルフィド（以下PPSと略すことがある）をポリエステルフィルムの両表層に積層する構成が検討されている（特許文献1）。一般的に、ポリエステルの湿熱雰囲気下における加水分解は、ポリエステルのCOOH末端基を自己触媒として進行し、ポリエステルが加水分解した結果さらにCOOH末端基量が増加していく。COOH末端基量が増加すると加水分解が

より進行するため、湿熱雰囲気下でのCOOH末端基量の増加を抑える必要がある。特許文献2、3では、リン酸とリン酸アルカリ金属塩を添加することで、湿熱雰囲気下におけるポリエステル中のCOOH末端基量の増加を抑制し、そのポリエステル組成物からなるフィルムの耐湿熱性を向上させる技術が検討されている。特許文献4でも、リン酸とリン酸アルカリ金属塩を添加することで、湿熱雰囲気下におけるポリエステルのCOOH末端基量の増加を抑制し、そのポリエステル組成物からなるフィルムの耐湿熱性を向上させる技術が検討されている。特許文献5、6、7、8では、リン化合物の含有量と金属含有量の比率を調節し、ポリエステルの耐久性を向上させる技術が検討されている。特許文献9、10では、ポリエステルに顔料を添加する技術が検討されている。

先行技術文献

特許文献

- [0004] 特許文献1：特開昭62-292431号公報
特許文献2：特開2010-248492号公報
特許文献3：国際公開第2010/103945号
特許文献4：国際公開第2011/052290号
特許文献5：特開2003-306536号公報
特許文献6：特開2008-81533号公報
特許文献7：特開2006-265792号公報
特許文献8：特開2000-309649号公報
特許文献9：特開2011-119651号公報
特許文献10：国際公開第2005/026241号

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、これらのポリエステルフィルムの湿熱雰囲気下におけるCOOH末端基量増加の抑制は充分ではなく、長期間にわたる使用ではポリエ

ステルフィルムの加水分解反応が進行するため、機械特性や電気絶縁性を保てなくなるといった問題があった。特許文献2～7では、ポリエステルに含有させる金属元素の、耐湿熱性向上に対する効果が充分でなく、得られるポリエステル組成物の耐湿熱性も充分なものではない。特許文献8、9では、ポリエステルに含有させるリン化合物の、耐湿熱性向上に対する効果が充分でなく、得られるポリエステル組成物の耐湿熱性も充分なものではない。特許文献10では、ポリエステルの耐湿熱性向上のために金属元素やリン化合物を添加しておらず、ポリエステル組成物の耐湿熱性が充分でない。

[0006] 本発明の課題は、かかる従来技術の背景に鑑み、湿熱雰囲気下でのCOOH末端基量の増加を抑制することで優れた耐湿熱性を発現するポリエステル組成物とその製造方法を提供し、さらに、それを用いたフィルム、および該フィルムを用いた積層構造体からなるシート状構造体、該シート状構造体を用いた耐熱性、耐湿熱性に優れた電気絶縁用シート、並びにそれらの製造方法を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0007] 上記課題を解決するために、本発明に係るポリエステル組成物は以下の構成をとる。すなわち、

ポリエステルを主成分とするポリエステル組成物であって、リン酸とリン酸アルカリ金属塩を含有しており、リン元素の含有量 P (mol/t) が該ポリエステル組成物全体に対して 1.8 mol/t 以上 5.0 mol/t 以下であり、Mn、Caの少なくともいずれか1種類の金属元素を含有しており、Mn、Ca以外の2価の金属元素の含有量がそれぞれ該ポリエステル組成物全体に対して5 ppm以下であり、前記ポリエステル組成物全体に対するアルカリ金属元素の含有量を $M1$ (mol/t) とし、前記ポリエステル組成物全体に対するMn元素含有量とCa元素含有量の合計を $M2$ (mol/t) とするとき、下記(i)式で求められる、前記ポリエステル組成物における金属含有量 M (mol/t) と、前記リン元素の含有量 P (mol/t) とが、下記(ii)式を満たすことを特徴とするものである。

$$(i) M = (M1) / 2 + M2$$

$$(ii) 1. 1 \leq M/P \leq 3. 0$$

(以下、このポリエステル組成物を、単に「ポリエステル組成物 (a)」とも表す。)

[0008] また、本発明のポリエステル組成物においては、ポリエステル組成物の主成分であるポリエステルが、カルボン酸基および／または水酸基を3つ以上有する構成成分を共重合成分として、該ポリエステルの全構成成分に対して0.025mol%以上1.5mol%以下含有することが好ましい。

[0009] 本発明に係るフィルムは、ポリエステルを主成分とするポリエステル組成物からなる層 (P層) を有するフィルムであって、該ポリエステルが二軸配向されており、前記ポリエステル組成物がリン酸とリン酸アルカリ金属塩を含有しており、前記ポリエステル組成物におけるリン元素の含有量P (mol/t) が該ポリエステル組成物全体に対して1.8mol/t以上5.0mol/t以下であり、前記ポリエステル組成物がMn、Caの少なくともいずれか1種類の金属元素を含有しており、前記ポリエステル組成物におけるMn、Ca以外の2価の金属元素の含有量がそれぞれ該ポリエステル組成物全体に対して5ppm以下であり、前記ポリエステル組成物全体に対するアルカリ金属元素の含有量をM1 (mol/t) とし、前記ポリエステル組成物全体に対するMn元素含有量とCa元素含有量の合計をM2 (mol/t) とするとき、下記 (i) 式で求められる、前記ポリエステル組成物における金属含有量M (mol/t) と、前記リン元素の含有量P (mol/t) とが、下記 (ii) 式を満たすことを特徴とするものからなる。

$$(i) M = M1 / 2 + M2$$

$$(ii) 1. 1 \leq M/P \leq 3. 0$$

(以下、このフィルムを、単に「フィルム (b)」とも表す。)

[0010] 上記フィルムにおいて、上記P層は、ポリエステル組成物と着色顔料とを含んでなるP'層であってもよい。上記P'層においては、着色顔料としての白色顔料の含有量がP'層全体に対して1wt%以上20wt%以下であ

るか、または着色顔料としての黒色顔料の含有量がP'層全体に対して0.5wt%以上5wt%以下であることが好ましい。

[0011] また、本発明に係るシート状構造体は、ポリエステルを主成分とするポリエステル組成物からなる層（P層）を有するフィルムをa層（芯層）とし、該a層の一方の片側にポリアアリーレンスルフィドを主成分とするシートまたはアラミドを主成分とするシートのいずれかの層（b1層）を積層し、前記a層のもう一方の片側にポリアアリーレンスルフィドを主成分とするシートまたはアラミドを主成分とするシートのいずれかの層（b2層）を積層するシート状構造体であって、前記a層の厚みをA（ μm ）、前記b1層の厚みをB1（ μm ）、前記b2層の厚みをB2（ μm ）とすると、A、B1、B2が関係式 $0.1 \leq (B1 + B2) / A \leq 4.0$ を満たし、前記ポリエステルが二軸配向されており、該ポリエステル組成物がリン酸とリン酸アルカリ金属塩を含有しており、前記ポリエステル組成物におけるリン元素の含有量Pが該ポリエステル組成物全体に対して $1.8 \text{ mol} / \text{t}$ 以上 $5.0 \text{ mol} / \text{t}$ 以下であり、前記ポリエステル組成物がMn、Caの少なくともいずれか1種類の金属元素を含有しており、前記ポリエステル組成物におけるMn、Ca以外の2価の金属元素の含有量がそれぞれ該ポリエステル組成物全体に対して5ppm以下であり、前記ポリエステル組成物全体に対するアルカリ金属元素の含有量をM1（ mol / t ）とし、前記ポリエステル組成物全体に対するMn元素含有量とCa元素含有量の合計をM2（ mol / t ）とすると、下記（i）式で求められる、前記ポリエステル組成物における金属含有量M（ mol / t ）と、前記リン元素の含有量P（ mol / t ）とが、下記（ii）式を満たすことを特徴とするものからなる。

$$(i) \quad M = M1 / 2 + M2$$

$$(ii) \quad 1.1 \leq M / P \leq 3.0$$

（以下、このシート状構造体を、単に「シート状構造体（c）」とも表す。

）

[0012] このようなシート状構造体においては、レーザーラマン分光法による16

15 cm⁻¹のラマンバンドスペクトルにおいて、フィルム平面方向に垂直な偏光配置での強度を I (ND)、フィルム平面の長手方向に平行な偏光配置での強度を I (MD)、フィルム平面の幅方向に平行な偏光配置での強度を I (TD) とするとき、下記式で求められる上記 a 層の面配向係数 R が 5.0 以上 10.0 以下であることが好ましい。

$$R = (R (MD) + R (TD)) / 2$$

$$R (MD) = I (MD) / I (ND)$$

$$R (TD) = I (TD) / I (ND)$$

[0013] また、本発明に係る電気絶縁用シートは、ポリエステルを主成分とするポリエステル組成物からなる層 (P 層) を有するフィルムを a 層 (芯層) とし、該 a 層の一方の片側にポリアリーレンスルフィドを主成分とするシートまたはアラミドを主成分とするシートのいずれかの層 (b 1 層) を積層し、前記 a 層のもう一方の片側にポリアリーレンスルフィドを主成分とするシートまたはアラミドを主成分とするシートのいずれかの層 (b 2 層) を積層するシート状構造体を用いてなる電気絶縁用シートであって、前記 a 層の厚みを A (μm)、前記 b 1 層の厚みを B 1 (μm)、前記 b 2 層の厚みを B 2 (μm) とするとき、A、B 1、B 2 が関係式 $0.1 \leq (B 1 + B 2) / A \leq 4.0$ を満たし、前記ポリエステルが二軸配向されており、該ポリエステル組成物がリン酸とリン酸アルカリ金属塩を含有しており、前記ポリエステル組成物におけるリン元素の含有量 P が該ポリエステル組成物全体に対して $1.8 \text{ mol} / \text{t}$ 以上 $5.0 \text{ mol} / \text{t}$ 以下であり、前記ポリエステル組成物が Mn、Ca の少なくともいずれか 1 種類の金属元素を含有しており、前記ポリエステル組成物における Mn、Ca 以外の 2 価の金属元素の含有量がそれぞれ該ポリエステル組成物全体に対して 5 ppm 以下であり、前記ポリエステル組成物全体に対するアルカリ金属元素の含有量を M 1 (mol / t) とし、前記ポリエステル組成物全体に対する Mn 元素含有量と Ca 元素含有量の合計を M 2 (mol / t) とするとき、下記 (i) 式で求められる、前記ポリエステル組成物における金属含有量 M (mol / t) と、前記リン

元素の含有量 P (mol/t) とが、下記 (ii) 式を満たすことを特徴とするものからなる。

$$(i) M = (M1) / 2 + M2$$

$$(ii) 1.1 \leq M/P \leq 3.0$$

(以下、この電気絶縁用シートを、単に「電気絶縁用シート (d)」とも表す。)

[0014] 本発明に係る太陽電池バックシートは、ポリエステルを主成分とするポリエステル組成物を用いてなる太陽電池バックシートであって、前記ポリエステル組成物がリン酸とリン酸アルカリ金属塩を含有しており、前記ポリエステル組成物におけるリン元素の含有量 P (mol/t) が該ポリエステル組成物全体に対して 1.8 mol/t 以上 5.0 mol/t 以下であり、前記ポリエステル組成物が Mn 、 Ca の少なくともいずれか 1 種類の金属元素を含有しており、前記ポリエステル組成物における Mn 、 Ca 以外の 2 価の金属元素の含有量がそれぞれ該ポリエステル組成物全体に対して 5 ppm 以下であり、前記ポリエステル組成物全体に対するアルカリ金属元素の含有量を $M1$ (mol/t) とし、前記ポリエステル組成物全体に対する Mn 元素含有量と Ca 元素含有量の合計を $M2$ (mol/t) とするとき、下記 (i) 式で求められる、前記ポリエステル組成物における金属含有量 M (mol/t) と、前記リン元素の含有量 P (mol/t) とが、下記 (ii) 式を満たすことを特徴とするものからなる。

$$(i) M = (M1) / 2 + M2$$

$$(ii) 1.1 \leq M/P \leq 3.0$$

[0015] 本発明に係るポリエステル組成物の製造方法は、上記ポリエステル組成物 (a) の製造方法であって、ジカルボン酸のジメチルエステルとジアルコールを用い、酢酸 Mn および/または酢酸 Ca を触媒としてエステル交換反応させるエステル交換工程と、該エステル交換工程で得られた組成物に、リン酸アルカリ金属塩を 0.5 mol/t 以上 3.0 mol/t 以下の量で添加し、リン酸をモル数でリン酸アルカリ金属塩の 0.4 倍以上 1.5 倍以下の

割合で添加してから重合する重合工程とを実施することを特徴とする方法からなる。

[0016] 本発明に係るフィルムの製造方法は、上記フィルム (b) の製造方法であって、ジカルボン酸のジメチルエステルとジアルコールを用い、酢酸Mnおよび/または酢酸Caを触媒としてエステル交換反応させるエステル交換工程と、該エステル交換工程で得られた組成物に、リン酸アルカリ金属塩を0.5 mol/t以上3.0 mol/t以下の量で添加し、リン酸をモル数でリン酸アルカリ金属塩の0.4倍以上1.5倍以下の割合で添加してから重合する重合工程と、ポリエステル組成物のガラス転移温度を T_g (°C) とするとき、該重合工程により得られシート状に成形されたポリエステル組成物を T_g 以上 $T_g + 40$ °C以下の温度で、面積倍率1.4倍以上に逐次二軸延伸する二軸延伸工程と、ポリエステル組成物の融点を T_m (°C)、熱処理温度を T_h (°C) とするとき、前記二軸延伸工程の後、下記 (iii) 式を満たす範囲で熱処理を行う熱処理工程とを実施することを特徴とする方法からなる。

$$(iii) 45^{\circ}\text{C} \leq T_m - T_h \leq 90^{\circ}\text{C}$$

[0017] また、本発明に係るシート状構造体の製造方法は、上記シート状構造体 (c) の製造方法であって、ジカルボン酸のジメチルエステルとジアルコールを用い、酢酸Mnおよび/または酢酸Caを触媒としてエステル交換反応させるエステル交換工程と、該エステル交換工程で得られた組成物に、リン酸アルカリ金属塩を0.5 mol/t以上3.0 mol/t以下の量で添加し、リン酸をモル数でリン酸アルカリ金属塩の0.4倍以上1.5倍以下の割合で添加してから重合する重合工程と、ポリエステル組成物のガラス転移温度を T_g (°C) とするとき、該重合工程により得られシート状に成形されたポリエステル組成物を T_g 以上 $T_g + 40$ °C以下の温度で、面積倍率1.4倍以上に逐次二軸延伸する二軸延伸工程と、ポリエステル組成物の融点を T_m (°C)、熱処理温度を T_h (°C) とするとき、前記二軸延伸工程後に下記 (ii) 式を満たす範囲で熱処理を行う熱処理工程と、前記フィルムをa層 (芯層) とし、a層の一方の片側にポリアアリーレンスルフィドを主成分とするシ

ートまたはアラミドを主成分とするシートのいずれかの層（b 1 層）を積層し、a 層のもう一方の片側にポリアリーレンスルフィドを主成分とするシートまたはアラミドを主成分とするシートのいずれかの層（b 2 層）を積層する積層工程とを実施することを特徴とする方法からなる。

$$(iii) 45 \leq T_m - T_h \leq 90$$

[0018] さらに、本発明に係る電気絶縁用シートの製造方法は、上記電気絶縁用シート（d）の製造方法であって、ジカルボン酸のジメチルエステルとジアルコールを用い、酢酸M nおよび／または酢酸C aを触媒としてエステル交換反応させるエステル交換工程と、該エステル交換工程で得られた組成物に、リン酸アルカリ金属塩を0.5 mol / t 以上3.0 mol / t 以下の量で添加し、リン酸をモル数でリン酸アルカリ金属塩の0.4倍以上1.5倍以下の割合で添加してから重合する重合工程と、ポリエステル組成物のガラス転移温度をT g（°C）とするとき、該重合工程により得られシート状に成形されたポリエステル組成物をT g 以上T g + 40°C以下の温度で、面積倍率1.4倍以上に逐次二軸延伸する二軸延伸工程と、ポリエステル組成物の融点をT m（°C）、熱処理温度をT h（°C）とするとき、前記二軸延伸工程後に下記（iii）式を満たす範囲で熱処理を行う熱処理工程と、前記フィルムをa 層（芯層）とし、a 層の一方の片側にポリアリーレンスルフィドを主成分とするシートまたはアラミドを主成分とするシートのいずれかの層（b 1 層）を積層し、a 層のもう一方の片側にポリアリーレンスルフィドを主成分とするシートまたはアラミドを主成分とするシートのいずれかの層（b 2 層）を積層する積層工程とを実施することを特徴とする方法からなる。

$$(iii) 45 \leq T_m - T_h \leq 90$$

発明の効果

[0019] 本発明によれば、長期に渡って、耐湿熱性を満足するポリエステル組成物、およびフィルムを提供することができる。さらには、かかるフィルムを用いることで、高い耐湿熱性を有する電気絶縁シートを提供することができる。また、かかるフィルムを用いることで、高い耐湿熱性を有する太陽電池バ

ックシートを提供することができる。

発明を実施するための形態

[0020] 以下に、本発明の実施の形態について、詳細に説明する。

本発明に係るポリエステル組成物は、ポリエステルを主成分とするポリエステル組成物であって、該ポリエステル組成物が下記(1)から(3)の要件を満たすことが必要である。

(1) リン酸とリン酸アルカリ金属塩を含有し、リン元素の含有量Pがポリエステル組成物全体に対して 1.8 mol/t 以上 5.0 mol/t 以下であること。

(2) Mn、Caの少なくともいずれか1種類の金属元素を含有し、それ以外の2価の金属元素の含有量はそれぞれ多くともポリエステル組成物全体に対して5 ppm以下であること。

(3) ポリエステル組成物全体に対するアルカリ金属元素の含有量をM1 (mol/t)とし、ポリエステル組成物全体に対するMn元素含有量とCa元素含有量の合計をM2 (mol/t)とするとき、下記(i)式で求められるポリエステル組成物における金属含有量M (mol/t)と、リン元素の含有量P (mol/t)とが、下記式(ii)を満たすこと。

$$(i) M = (M1) / 2 + M2$$

$$(ii) 1.1 \leq M/P \leq 3.0$$

上記(1)～(3)の要件を満たすことによって、長期に渡って、耐湿熱性を高いレベルで満足するポリエステル組成物、フィルム、およびシート状構造体、さらには電気絶縁シートを提供することができる。

[0021] 以下、具体例を挙げつつ、本発明について詳細に説明する。

本発明のポリエステル組成物は、ポリエステルを主成分とするポリエステル組成物である必要がある。ここでポリエステルの主成分とするとは、組成物中にポリエステルが80重量%以上含有されているものであることを示す。ポリエステルの含有量は、好ましくは90重量%以上、さらに好ましくは95重量%以上、特に好ましくは98重量%以上である。

ここでいうポリエステルは、ジカルボン酸構成成分とジオール構成成分を有してなるものである。なお、本明細書内において、構成成分とはポリエステルを加水分解することで得ることが可能な最小単位のことを示す。

[0022] かかるポリエステルを構成するジカルボン酸構成成分としては、例えば、脂肪族ジカルボン酸類、脂環族ジカルボン酸類、芳香族ジカルボン酸類などのジカルボン酸およびそのエステル誘導体が挙げられるが、これらに限定されるものではない。脂肪族ジカルボン酸類としては、例えば、マロン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、スベリン酸、セバシン酸、ドデカンジオン酸、ダイマー酸、エイコサンジオン酸、ピメリン酸、アゼライン酸、メチルマロン酸、エチルマロン酸などが挙げられる。また、脂環族ジカルボン酸類としては、例えば、アダマンタンジカルボン酸、ノルボルネンジカルボン酸、イソソルビド、シクロヘキサンジカルボン酸、デカリンジカルボン酸などが挙げられる。また、芳香族ジカルボン酸としては、例えば、テレフタル酸、イソフタル酸、フタル酸、1,4-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、1,8-ナフタレンジカルボン酸、4,4'-ジフェニルジカルボン酸、4,4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸、5-ナトリウムスルホイソフタル酸、フェニルエンダンジカルボン酸、アントラセンジカルボン酸、フェナントレンジカルボン酸、9,9'-ビス(4-カルボキシフェニル)フルオレン酸などが挙げられる。

[0023] また、かかるポリエステルを構成するジオール構成成分としては、例えば、脂肪族ジオール類、脂環式ジオール類、芳香族ジオール類などのジオールおよびこのようなジオールが複数個連なったものなどが挙げられるが、これらに限定されるものではない。脂肪族ジオール類としては、例えば、エチレングリコール、1,2-プロパンジオール、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、1,2-ブタンジオール、1,3-ブタンジオールなどが挙げられる。また、脂環式ジオール類としては、例えば、シクロヘキサンジメタノール、スピログリコール、イソソルビドなどが挙げられる。ま

た、芳香族ジオール類としては、例えば、ビスフェノールA、1,3-ベンゼンジメタノール、1,4-ベンゼンジメタノール、9,9'-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレンなどが挙げられる。

[0024] また、上記ポリエステル組成物において、主成分であるポリエステルは、機械特性、結晶性、耐湿熱性の観点からテレフタル酸とエチレングリコールを主たる構成成分とするポリエステルまたは2,6-ナフタレンジカルボン酸とエチレングリコールを主たる構成成分とするポリエステルであることが好ましい。テレフタル酸とエチレングリコールを主たる構成成分とするポリエステルとは、全ジカルボン酸構成成分中におけるテレフタル酸構成成分の割合が90mol%以上100mol%以下、好ましくは95mol%以上100mol%以下であり、かつ全ジオール構成成分中のエチレングリコール構成成分の割合が90mol%以上100mol%以下、好ましくは95mol%以上100mol%以下のポリエステルである。テレフタル酸構成成分の割合が90mol%に満たない、および/またはエチレングリコール構成成分の割合が90mol%に満たないと、機械特性が低下したり、結晶性が低下し耐湿熱性が低下する場合がある。また、2,6-ナフタレンジカルボン酸とエチレングリコールを主たる構成成分とするポリエステルとは、全ジカルボン酸構成成分中における2,6-ナフタレンジカルボン酸構成成分の割合が90mol%以上100mol%以下、好ましくは95mol%以上100mol%以下であり、かつポリエステル組成物における全ジオール構成成分中のエチレングリコール構成成分の割合が90mol%以上100mol%以下、好ましくは95mol%以上100mol%以下であるものをさす。2,6-ナフタレンジカルボン酸構成成分が90mol%に満たない、および/またはエチレングリコール構成成分の割合が、90mol%に満たないと、機械特性が低下したり、結晶性が低下し耐湿熱性が低下する場合がある。

[0025] 上記ポリエステル組成物の主成分であるポリエステルは、カルボン酸基および/または水酸基を3つ以上有する構成成分を共重合成分として、該ポリ

エステルの全構成成分に対して0.025mol%以上1.5mol%以下含有することが好ましい。

ここでいうカルボン酸基および／または水酸基を3つ以上有する構成成分とは、カルボン酸基数と水酸基数のどちらか、あるいは両方を1分子中に3基以上持つもののことを指す。

[0026] カルボン酸基および／または水酸基を3つ以上有する構成成分を共重合した場合は、多官能化合物成分の部分で分子鎖同士が架橋される。架橋された結果、分子鎖の分子運動性が低下し、加水分解の進行がより抑制されるため好ましい。カルボン酸基および／または水酸基を3つ以上有する構成成分としては、トリメリット酸、シクロヘキサントリカルボン酸、ビフェニルテトラカルボン酸、ピロメリット酸、ブタンテトラカルボン酸、長鎖脂肪族カルボン酸を3量体化したトリマー酸などの多価カルボン酸ならびにその無水物およびエステル、グリセリン、ペンタエリスリトール、ジペンタエリスリトール、トリメチロールプロパン、ジトリメチロールプロパン、トリヒドロキシベンゼン、トリヒドロキシヘキサンなどの多価アルコール、クエン酸、ジヒドロキシベンゼンカルボン酸、ジヒドロキシナフタレンカルボン酸などの多価ヒドロキシカルボン酸ならびにその無水物およびエステルなどを挙げることができる。特にカルボン酸基および／または水酸基を3つ有する構成成分であることが耐湿熱性、フィルム成形性の点から好ましい。

[0027] 上記ポリエステル組成物は、リン化合物としてリン酸アルカリ金属塩およびリン酸を含有することが必要である。リン酸アルカリ金属塩としては、例えば、リン酸二水素ナトリウム、リン酸水素二ナトリウム、リン酸三ナトリウム、リン酸二水素カリウム、リン酸水素二カリウム、リン酸三カリウム、リン酸二水素リチウム、リン酸水素二リチウム、リン酸三リチウムなどが挙げられる。好ましくはリン酸二水素アルカリ金属塩、リン酸水素二アルカリ金属塩である。また、アルカリ金属元素がNa, Kであるリン酸アルカリ金属塩が長期の耐湿熱性の点から好ましい。特に好ましくはリン酸二水素ナトリウム、リン酸二水素カリウムである。

[0028] また、上記ポリエステル組成物は、リン元素の含有量Pがポリエステル組成物全体に対して1.8 mol/t以上5.0 mol/t以下であることが必要である。

また、上記ポリエステル組成物はMn、Caの少なくともいずれか1種類の金属元素を含有し、それ以外の2価の金属元素の含有量はそれぞれ多くてもポリエステル組成物全体に対して5 ppm以下である必要がある。ここで、金属元素とは、原子だけではなく、イオン状態でポリエステル組成物中に存在するものも含むものとする。なお、一般的には、金属元素は、ポリエステル組成物中ではイオン状態として存在する。

[0029] また、上記ポリエステル組成物は、ポリエステル組成物全体に対するアルカリ金属元素の含有量をM1 (mol/t)とし、ポリエステル組成物全体に対するMn元素含有量とCa元素含有量の合計をM2 (mol/t)とすると、下記(i)式で求められる金属含有量M (mol/t)と、リン元素の含有量P (mol/t)とが、下記式(ii)を満たすことが必要である。

$$(i) M = (M1) / 2 + M2$$

$$(ii) 1.1 \leq M / P \leq 3.0$$

[0030] 上述の2価の金属元素とは、化学周期表第3周期までのアルカリ土類金属元素と、第5周期以降の第1族から12族までの元素、およびTiを除く第4周期の遷移金属元素を指す。本発明における金属元素の価数とは、金属原子の電子軌道のうち、最外殻または最外殻に最も近い位置にあるs軌道に存在する電子の個数の合計である。

[0031] ポリエステル組成物に含まれるMn元素、Ca元素は、これらの金属元素を含む金属化合物である必要がある。これらの金属化合物はエステル交換反応触媒としての機能を有する。

[0032] 上記ポリエステル組成物は、Na、Li、Kからなる群より選ばれる少なくとも1種の金属元素を含む金属化合物と、Sb、Ti、Geからなる群より選ばれる少なくとも1種の金属元素を含む金属化合物とを含み、これら金属元素の含有量の合計は、ポリエステル組成物全体に対して30 ppm以上

2000 ppm以下とすることが好ましい。金属元素の含有量の合計をこの範囲とすることでCOOH末端基量の抑制ができ、耐熱性が向上する。なお、Na、Li、Kはアルカリ金属元素である。またSb、Ti、Geは重合触媒能を有する金属元素であり、重合触媒として機能する。

[0033] 上記ポリエステル組成物は、上述の通り、リン化合物としてリン酸アルカリ金属塩とリン酸の両方を含有している。このような構成によれば、緩衝作用により、ポリエステルのCOOH末端基の活性が低下し、湿熱雰囲気下での加水分解の進行を抑制する結果、耐湿熱性を大きく向上させることができる。

[0034] 上記ポリエステル組成物においては、リン元素の含有量Pがポリエステル組成物全体に対して1.8 mol/t以上5.0 mol/t以下であることが必要である。リン元素の含有量Pが1.8 mol/t未満であると、リン酸アルカリ金属塩およびリン酸の含有量が充分でないため、湿熱雰囲気下でのCOOH末端基量の増加を抑えることができず、ポリエステル組成物の加水分解が進行しやすくなり、耐湿熱性の低下を招くおそれがある。またリン元素の含有量Pが5.0 mol/tを超えると、リン酸アルカリ金属塩および/またはリン酸の含有量が過剰となる。リン酸アルカリ金属塩が過剰な場合はリン酸アルカリ金属塩が異物化する懸念があり、リン酸が過剰である場合は、リン酸により重合触媒が失活して重合反応が遅延し、COOH末端基量が増加するため、ポリエステル組成物の耐湿熱性が低下するおそれがある。また、上記ポリエステル組成物におけるリン酸アルカリ金属塩の含有量は、ポリエステル組成物全体に対して1.3 mol/t以上3.0 mol/t以下であることが耐湿熱性の点から好ましい。また、リン酸の含有量は、リン酸アルカリ金属塩に対して、モル数で0.4倍以上1.5倍以下であることが長期的な耐湿熱性の点から好ましい。

[0035] ポリエステル組成物に含有されるアルカリ金属元素とMn元素、Ca元素は、リン元素を含む化合物またはポリエステルのCOOH末端基と化学結合し、リン化合物による重合触媒の失活を抑制したり、COOH末端基の自己

触媒作用を抑制して加水分解を抑制する効果をもたらす。アルカリ金属元素は重合触媒の失活の抑制に効果があり、Mn元素、Ca元素は重合触媒の失活抑制と、COOH末端基の自己触媒作用の抑制による加水分解の抑制に効果的である。

[0036] 一般的に、ポリエステル組成物中に含有される金属イオンは、COOH末端基を含むカルボニル基と化学結合する。特に金属イオンがCOOH末端基のカルボニル基と化学結合した場合、水分子が存在することでCOOH末端基の自己触媒作用が発現し、それによって加水分解が起こり、ポリエステルが劣化するに至る。この加水分解を抑制するためには、COOH末端基と化学結合する金属イオンと、水分子とを、安定化させることが効果的である。つまり、金属イオンと水分子とを水和せしめることが効果的である。この効果の指標として、金属イオンの水和エンタルピーと金属イオンの半径の積を用いることができる。この積の値が大きい金属元素としてMn、Ca、Alイオンが挙げることができる。これらの金属イオンはより効果的に水分子を安定化させることが可能であり、その結果ポリエステル組成物の耐湿熱性を向上させることができる。とくに、Mn元素、Ca元素の化合物は、エステル交換反応触媒としての性能が高いため、含有させる金属元素としてより好ましい。

[0037] また、リン化合物は、ポリエステル組成物中で陰イオンとして存在するため、ポリエステル組成物中にイオン状態で存在する金属元素と化学結合する。リン化合物に由来する陰イオンが、重合触媒に由来する金属元素のイオンと化学結合すると、重合触媒が失活することになる。ポリエステル組成物中に、重合触媒由来の金属元素以外の金属元素のイオンを存在させることで、重合触媒に由来する金属元素イオンとリン化合物に由来する陰イオンとの化学結合を抑制することができ、重合触媒の失活を抑制できる。ここで、リン化合物による重合触媒失活の抑制またはポリエステル組成物のCOOH末端基の自己触媒作用の抑制の指標となるのが、上述の(ii)式で表されるM/Pである。この式におけるMは、ポリエステル組成物において、リン化合物

に由来する陰イオンと化学結合する、金属元素のイオンの含有量を表すものである。

ただし、ポリエステル組成物中でリン化合物に由来する陰イオンは2価であるので、2価の金属元素の陽イオンと1:1で相互作用する。そのため、ポリエステル組成物中で1価の陽イオンとなる金属元素の含有量M1に対しては係数0.5を乗じる必要がある。

[0038] 上記ポリエステル組成物においては、M/Pが1.1以上3.0以下である必要があるが、1.1に満たないと、リン化合物量に対する金属元素量が少なすぎて、リン化合物による重合触媒失活の抑制またはポリエステル組成物のCOOH末端基の自己触媒作用の抑制が充分でないため、重合反応時にCOOH末端基量が増加したり、湿熱雰囲気下での加水分解反応の進行を抑えることができず、耐湿熱性が低下するおそれがある。また、M/Pが3.0を超えると、金属元素を含有する化合物が過剰となり、異物化するおそれがある。M/Pを上記の範囲とすることによって、異物が少なく、耐湿熱性に優れたポリエステル組成物が得られる。M/Pは、より好ましくは、1.15以上1.4以下である。

[0039] 上述の通り、上記ポリエステル組成物において、Mn、Ca以外の2価の金属元素の含有量は、それぞれポリエステル組成物全体に対して5ppm以下である。Mn元素、Ca元素以外の2価の金属元素の含有量のうちいずれかの金属元素含有量がポリエステル組成物全体に対して5ppmを超えると、Mn元素、Ca元素による重合触媒の失活抑制効果やCOOH末端基の自己触媒抑制作用を妨げ、耐湿熱性が低下するおそれがある。より好ましくは、Mn元素、Ca元素以外の2価の金属元素の含有量の合計が5ppm以下である。

[0040] 上記ポリエステル組成物においては、固有粘度が0.6以上1.0以下であることが機械特性、耐熱性の点から好ましい。より好ましくは、0.7以上0.9以下である。

[0041] 上記ポリエステル組成物においては、COOH末端基量が15eq./t

(equivalent/ton) 以下であることが耐湿熱性の点から好ましい。さらに好ましくは12eq./t以下である。

[0042] 上記ポリエステル組成物には、本発明の効果が損なわれない範囲で、耐熱安定剤、耐酸化安定剤、紫外線吸収剤、紫外線安定剤、有機系/無機系の易滑剤、有機系/無機系の微粒子、充填剤、核剤、染料、分散剤、カップリング剤等の添加剤が配合されていてもよい。

[0043] 本発明のフィルムは、上記ポリエステル組成物からなる層(P層)を有するフィルムである。なお、当該P層は、上記ポリエステル組成物と着色顔料とを含んでなる層(P'層)であってもよい。

[0044] 上記着色顔料が白色顔料である場合は、該顔料の含有量がP'層全体に対して1wt%以上20wt%以下であることが好ましい。白色顔料としては、紫外線に対する安定性(耐UV性)の観点から、硫酸バリウム、酸化チタンなどが好ましいが、ルチル型酸化チタンであることが、耐UV性と耐湿熱性の観点から特に好ましい。含有量が1wt%に満たないと耐UV性が十分に発揮されない。含有量が20%を超えると、耐湿熱性が低下するおそれがある。

[0045] また、上記着色顔料が黒色顔料である場合は、該顔料の含有量がP'層全体に対して0.5wt%以上5wt%以下であることが好ましい。黒色顔料としては、耐UV性と耐湿熱性の観点からカーボンブラックであることが好ましい。含有量が0.5wt%に満たないと、耐UV性が充分でなく、5wt%を超えると耐湿熱性が低下するおそれがある。

[0046] 上記フィルムにおいて、P層の厚みは10 μ m以上500 μ m以下が好ましく、20 μ m以上300 μ m以下がより好ましい。更に好ましくは、25 μ m以上250 μ m以下である。なお、P層が上記P'層である場合も同様である。

[0047] 上記フィルムの全体厚みは10 μ m以上500 μ m以下が好ましく、20 μ m以上300 μ m以下がより好ましい。更に好ましくは、25 μ m以上250 μ m以下である。

また、上記フィルムにおいて、耐湿熱性の点から、フィルム全体厚みに対するP層の厚みの割合は、好ましくは50%以上、より好ましくは70%以上、さらに好ましくは80%以上であり、最も好ましくは上記フィルムがP層のみからなるのがよい。なお、P層が上記P'層である場合も同様である。

[0048] 上記フィルムにおいては、耐湿熱性をより高くできるという点から、上述のポリエステルが二軸配向されていることが好ましい。

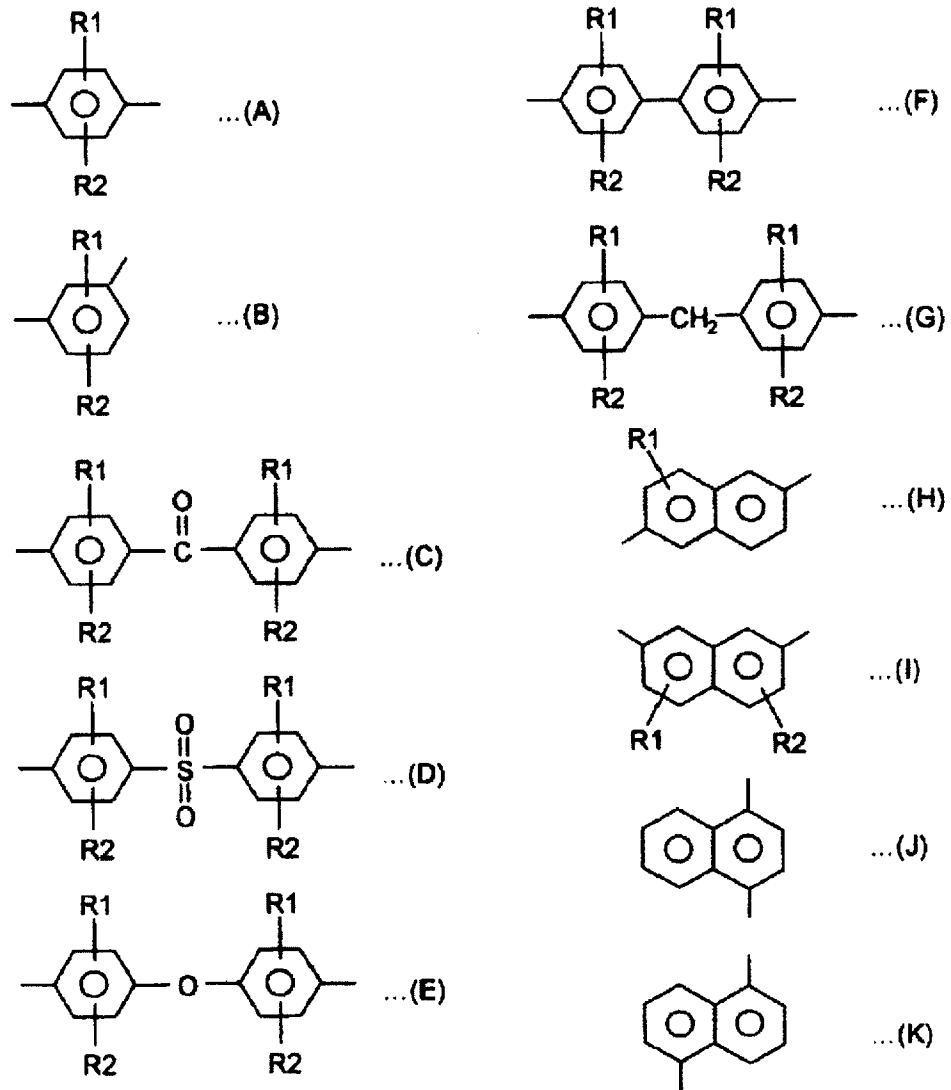
[0049] 上記ポリエステル組成物およびそれを用いたフィルムは、高い耐湿熱性を有するものであり、その特長を生かして、太陽電池バックシート、給湯器モーター用電気絶縁材料や、ハイブリッド車などに使用されるカーエアコン用モーターや駆動モーター用などの電気絶縁材料、コンデンサ用材料、自動車用材料、建築材料を初めとした耐湿熱性が重視されるような用途に好適に使用することができる。これらの用途の中でも、太陽電池用バックシート用フィルムやモーター用絶縁材料として好適に用いられ、特にモーター用絶縁材料として好適に用いられる。

[0050] 本発明のシート状構造体は、本発明のフィルムを芯層（a層）とし、a層の一方の片側にポリアリーレンスルフィドを主成分とするシートまたはアラミドを主成分とするシートのいずれかの層（b1層）を積層し、a層のもう一方の片側にポリアリーレンスルフィドを主成分とするシートまたはアラミドを主成分とするシートのいずれかの層（b2層）を積層するシート状構造体である。本構成とすることで、高い耐熱性、耐湿熱性、加工性を有する電気絶縁用シートが得られる。

[0051] 上記シート状構造体のb1層および／またはb2層に用いられるポリアリーレンスルフィドを主成分とするシートとは、 $-(Ar-S)-$ の繰り返し単位を有するホモポリマーあるいはコポリマーを、シートを構成する樹脂成分のうち80重量%以上含有するものであることを示す。上記シート状構造体において、ホモポリマーあるいはコポリマーの含有量は、好ましくは90重量%以上、さらに好ましくは95重量%以上、特に好ましくは98重量%以上である。上記Arとしては、例えば、下記化学式1(A)～(K)で表され

る構成単位などが挙げられる。(なお、下記化学式1において、R1、R2は、水素、アルキル基、アルコキシ基、ハロゲン基から選ばれた置換基であり、R1とR2は同一でも異なってもよい。)

[0052] [化1]

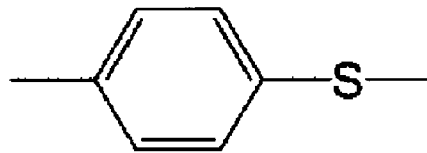


[0053] 上記シート状構造体において、b1層および/またはb2層に用いられるポリアリレンスルフィドの繰返し単位としては、上記化学式1(A)で表される構造単位が好ましく、これらの代表的なものとして、ポリフェニレンスルフィド、ポリフェニレンスルフィドスルホン、ポリフェニレンスルフィドケトン、これらのランダム共重合体、ブロック共重合体およびそれらの混合物などが挙げられる。特に好ましいポリアリレンスルフィドとしては

、樹脂の加工性や重合工程における経済性の観点から、ポリフェニレンスルフィドが好ましく例示される。

[0054] 上記シート状構造体は、上記ポリアーレンスルフィドの繰り返し単位として、下記化学式2の構造単位で示されるパラアーレンスルフィド単位を好ましくは80mol%以上、より好ましくは90mol%以上、さらに好ましくは95mol%以上含む。パラアーレンスルフィド単位が80mol%未満では、樹脂の結晶性やガラス転移温度などが低く、ポリアーレンスルフィドの特徴である耐熱性、寸法安定性および機械特性などを損なうことがある。

[0055] [化2]



[0056] 上記シート状構造体におけるポリアーレンスルフィドを主成分とするシートは、繊維シート、無配向のシート、少なくとも一軸以上に配向されたシートでも構わないが、二軸配向シートとすることが耐熱性、加工性の観点から好ましい。

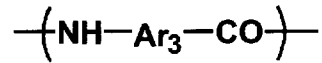
[0057] 上記シート状構造体のb1層および/またはb2層に用いられるアラミドを主成分とするシートとは、下記化学式3および/または化学式4で表される繰り返し単位を有する芳香族ポリアミドを、シートを構成する樹脂成分うち、80重量%以上含有するものであることを示す。上記シート状構造体において、芳香族ポリアミドの含有量は、好ましくは90重量%以上、さらに好ましくは95重量%以上、特に好ましくは98重量%以上である。

[0058] [化3]



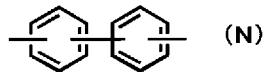
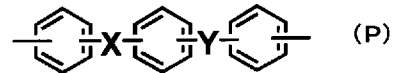
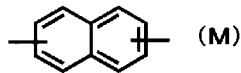
[0059]

[化4]



[0060] ここで、Ar₁、Ar₂、Ar₃の基としては、例えば、下記化学式5（L）～（P）などが挙げられる。

[0061] [化5]



[0062] また、X、Yの基は、

A群： -O-、-CO-、-CO₂-、-SO₂-、

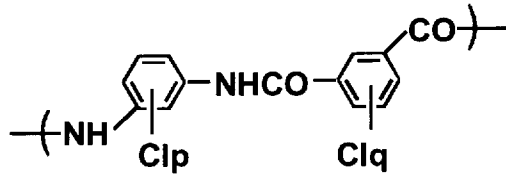
B群： -CH₂-、-S-、-C(CH₃)₂-

などから選択することができる。

[0063] 上記シート状構造体において、b1層および/またはb2層に用いられる芳香族ポリアミドは、上記の芳香環がメタ配向性を有しているものが、全芳香環の80mol%以上を占めていることが好ましく、90mol%以上を占めていることがより好ましい。さらに、芳香族ポリアミドが下記化学式6で表される繰り返し単位を80mol%以上含有する場合、耐熱性、機械特性に優れるため好ましい。

[0064]

[化6]



(ここでp, qは0～4の整数)

- [0065] また、上述のシート状構造体においては、上記アラミドからなる繊維で構成されたシートも、耐熱性、機械特性の観点から好適に用いることができる。
- [0066] 上述のシート状構造体においては、a層とb1層の間、および／またはa層とb2層の間に接着層(c層)を介在させることも好ましい。
- [0067] ここでいう接着層(c層)とは、上記シート状構造体(すなわち、積層フィルム)のa層とb1層および／またはb2層の間に積層されることにより、積層しない場合に比べてa層-b1層間、および／またはa層-b2層間の接着力を向上させることができる層をいう。
- [0068] かかるc層に用いる化合物としては、エポキシ系化合物、イソシアネート系化合物、アクリル系化合物やウレタン系化合物に代表される接着剤、オレフィン系、ポリエステル系、ポリアミド系、ポリイミド系などの種々の樹脂の単体または混合物、化合物、変成物等を用いることができ、溶液系、無溶剤系を問わない。
- [0069] 上述のc層に用いる化合物としては、特に、耐熱性やハンドリング性などの観点からエポキシ系化合物が好ましく使用される。エポキシ系化合物はエポキシ基を分子中に少なくとも2個以上含むものであればよく、例えばビスフェノールA型エポキシ系化合物、ビスフェノールF型エポキシ系化合物、あるいはビフェノール型エポキシ系化合物あるいはノボラック型エポキシ系化合物などが挙げられる。また、難燃性付与のために、ハロゲン化エポキシ系化合物、特に臭素化エポキシ系化合物を用いることが有効である。この際

、臭素化エポキシ系化合物のみでは難燃性の付与はできるものの接着剤の耐熱性の低下が大きくなるため、非臭素化エポキシ系化合物との混合系とすることがさらに有効である。臭素含有量およびエポキシ当量を考慮して2種類以上混合して用いても良い。

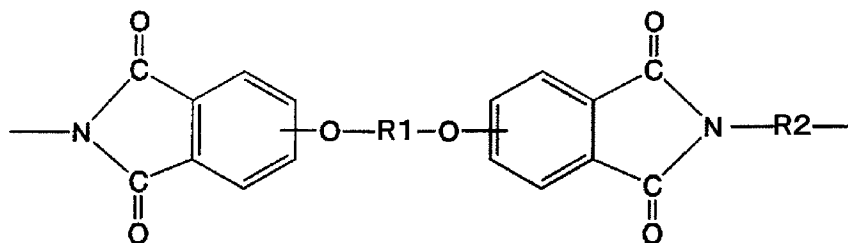
[0070] また、c層に用いる化合物には硬化剤を使用することも好ましい。硬化剤としては、例えば、ジシアンジアミド、ジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニルスルフィド、ジアミノベンゾフェノン、ジアミノジフェニルスルホン、ジエチルトリアミンなどのアミン系化合物、2-アルキル-4-メチルイミダゾール、2-フェニル-4-アルキルイミダゾール、2-フェニル-4-アルキルイミダゾール、1-シアノエチル-2-メチルイミダゾール等のイミダゾール誘導体、1,8-ジアザビシクロ[5,4,0]ウンデセン、7,1,4-ジアザビシクロ[2,2,2]オクタン等の化合物、トリフェニルホスフィン、トリエチルホスフィン等のリン系化合物、ベンジルジメチルアミン、2-(ジメチルアミノ)フェノール、2,4,6-トリス(ジアミノメチル)フェノール等の芳香族三級アミン類、ジメチルシクロヘキシルアミン等の脂環族三級アミン類、無水フタル酸、無水トリメリット酸、ピロメリット酸等の有機酸、三フッ化ホウ素トリエチルアミン錯体、三フッ化ホウ素ピペラジン錯体等の三フッ化ホウ素のアミン錯体、三塩化ホウ素のアミン錯体、五フッ化リン、五フッ化ヒ素、五フッ化アンチモン、四フッ化ホウ素アミン塩、ホウフッ化亜鉛、ホウフッ化スズ等のホウフッ化金属等が挙げられ、これらを単独または2種以上混合して用いても良い。硬化剤としてレゾール型、ノボラック型フェノール樹脂等のフェノール樹脂を用いてもよい。フェノール樹脂としてはたとえばフェノール、ビフェノール、クレゾール、p-tert-ブチルフェノール等のアルキル置換フェノール、テルペン、ジシクロペンタジエン等の環状アルキル変性フェノール、ニトロ基、ハロゲン基、アミノ基、シアノ基等のヘテロ原子を含む官能基を有するもの、ナフタレン、アントラセン等の骨格を有するもの等が挙げられる。硬化剤の添加量は、c層を形成する化合物全体に対して0.01重量%以上50重量%

以下が好ましい。0.01重量%未満では硬化が不十分となり十分な耐熱性が得られない。また50重量%を越えると塗膜が脆くなり接着性が低下するおそれがある。耐熱性の良好なものを得るためジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニルスルフィド、ジアミノベンゾフェノン、ジアミノジフェニルスルホン等の芳香族ポリアミンを使用することが特に好ましい。

[0071] 接着層（c層）を積層する方法は、グラビアコータ法、リバースコータ法、ダイコータ法などのコーティング法、またドライラミネート法やエクストルジョンラミネート法などのラミネート法などの周知の方法を適用することができる。

[0072] 上記フィルム（a層）とポリアリーレンスルフィドを主成分とするシート（b1層および／またはb2層）とを共押出により積層する場合、a層にポリエーテルイミドをa層全体に対して10重量%から20重量%添加することが、積層性、成形性の観点から好ましい。ここでいうポリエーテルイミドとは、脂肪族、脂環族または芳香族系のエーテル単位と環状イミド基を繰り返し単位として含有するものであり、下記化学式7で示されるポリマーが好適に用いられる。

[0073] [化7]



[0074] ただし、上記式中、R1は、6～30個の炭素原子を有する2価の芳香族または脂肪族残基であり、R2は、6～30個の炭素原子を有する2価の芳香族残基、2～20個の炭素原子を有するアルキレン基、2～20個の炭素原子を有するシクロアルキレン基、および2～8個の炭素原子を有するアルキレン基で連鎖停止されたポリジオルガノシロキサン基からなる群より選択された2価の有機基である。

[0075] ポリエーテルイミドの添加量が a 層全体に対して 10 重量%に満たない場合、積層性が悪くなり、a 層と b 1 層および／または a 層と b 2 層の間で剥離する可能性がある。添加量が 20 重量%を超える場合、製膜中に破れが生じやすくなったり、加工性が悪化するおそれがある。

[0076] 上記シート状構造体においては、a 層の厚み A (μm) と b 1 層の厚み B 1 (μm) と b 2 層の厚み B 2 (μm) が下記 (4) 式の要件を満たすことが好ましい。

$$(4) \quad 0.1 \leq (B1 + B2) / A \leq 4.0$$

(4) 式の値が 0.1 未満であると、ポリエステル組成物からなる a 層の割合が大きく、高温下での使用に耐えられなくなるおそれがある。(4) 式の値が 4.0 を超えると、ポリエステル組成物からなる a 層の割合が少なく、靱性が低くなるため加工性が低下するおそれがある。(4) 式の値が 0.1 以上 4.0 以下の範囲にあることによって、耐熱性と加工性を両立させることができる。

[0077] 上記シート状構造体において、上述の c 層を設ける場合、c 層の積層厚みは、0.1 μm 以上 30 μm 以下であることが好ましい。c 層の積層厚みが 0.1 μm に満たないと、層間接着力を十分向上できない場合がある。c 層の積層厚みが 30 μm を超えると、例えば上述の電気絶縁用シートとして用いる場合、c 層が溶融、剥離して工程を汚してしまう場合がある。c 層の積層厚みは、より好ましくは、0.2 μm 以上 20 μm 以下、さらに好ましくは 0.5 μm 以上 10 μm 以下である。

[0078] また、上記シート状構造体に含まれるフィルム (a 層) においては、ラマンバンドスペクトル法における面配向係数 R が 5.0 以上 10.0 以下であることが好ましい。ラマンバンドスペクトル法における面配向係数 R は、フィルムにレーザーを照射し、1615 cm^{-1} のラマンバンドスペクトルのピーク強度から求める。まず、レーザーの偏光がフィルム平面方向に垂直な偏光配置での強度 (I (ND))、フィルム平面の長手方向に平行な偏光配置での強度 (I (MD))、およびフィルム平面の幅方向に平行な偏光配置で

の強度（ $I(TD)$ ）を求める。ラマンスペクトルにおいて、 1615 cm^{-1} のラマンバンドはベンゼン環の $C=C$ 伸縮振動（ $\nu C=C$ ）に帰属されることから、 $I(MD)$ 、 $I(TD)$ それぞれを $I(ND)$ で除算することでフィルム長手方向と幅方向それぞれの配向係数 $R(MD)$ 、 $R(TD)$ を求めた。さらに、下記式に示す通り、 $R(MD)$ 、 $R(TD)$ の平均を求め、フィルム面方向の配向係数（面配向係数） R とした。

$$R = (R(MD) + R(TD)) / 2$$

$$R(MD) = I(MD) / I(ND)$$

$$R(TD) = I(TD) / I(ND)$$

[0079] 一般に、 a 層を構成するフィルム、特にポリエチレンテレフタレートやポリエチレン2,6-ナフタレートといった結晶性ポリエステルから製造されるポリエステルフィルム中には、ポリエステルの結晶部と非晶部が存在し、結晶性ポリエステルを二軸延伸して得られるポリエステルフィルム中にも、分子鎖が延伸方向に配向することによりポリエステルが結晶化した部分（以下、配向結晶部とする）と、かかる配向を経ずに結晶化した部分（以下、単に結晶部とする）と、非晶部が存在する。そして、非晶部は、結晶部、配向結晶部に比べて密度が低く、平均の分子間距離が大きい状態にあると考えられる。

[0080] ポリエステルフィルムが湿熱雰囲気下に曝された場合、水分（水蒸気）は密度の低いこの非晶部の分子鎖間を通して内部に進入し、非晶部を可塑化させ分子鎖の運動性を高める。また、ポリエステルはその原料に由来して $COOH$ 末端基を有するが、内部に進入した水分は、 $COOH$ 末端基を自己触媒として、相対的に分子鎖の運動性の高い非晶部を加水分解する。このようにして、加水分解されることにより、非晶部において低分子量化が進行することに伴い分子鎖の運動性が更に高まり、非晶部において低分子量化したポリエステルの結晶化が進行する。このようにして本来靱性の高い非晶部が低分子量化し、結晶部に变化した結果、フィルムの脆化が進行し、最終的には僅かな衝撃でも破断に至る状態となるものと考えられる。

[0081] 面配向係数Rが5.0未満である場合、a層を構成するフィルム中の配向結晶化部が少ないため、非晶部の緊張がなく運動性が高いため湿熱雰囲気下で結晶の肥大化が進行しやすく、フィルムの脆化が起こりやすくなるおそれがある。また、面配向係数Rが10.0より大きい場合、配向結晶化部の割合が多く、非晶部が湿熱雰囲気下で結晶化した場合に非晶部の量が極めて少なくなり、フィルムの脆化が起こりやすくなるおそれがある。

[0082] 次に、本発明のポリエステル組成物、フィルム、シート状構造体の製造方法について、その一例を説明するが、本発明は、かかる例のみに限定されるものではない。

[0083] 本発明のポリエステル組成物の製造方法は、下記(5)、(6)の工程をこの順で含むことが、COOH末端基量の抑制の観点から好ましい。

(5) ジカルボン酸のジメチルエステルとジアルコールを用い、酢酸Mnおよび/または酢酸Caを触媒としてエステル交換反応させるエステル交換工程。

(6) (5)で得られた組成物に、ポリエステル組成物全体に対してリン酸アルカリ金属塩を0.5mol/t以上3.0mol/t以下の量で添加し、リン酸をモル数でリン酸アルカリ金属塩の0.4倍以上1.5倍以下の割合で添加してから重合する重合工程。

[0084] 工程(5)(すなわち、エステル交換工程)は、ジカルボン酸のジメチルエステルとジアルコールを、酢酸Mnおよび/または酢酸Caを反応触媒としてエステル交換反応をさせ、ポリエステルの低重合体を含む組成物を得る工程である。ここでいうポリエステルの低重合体を含む組成物とは、該固有粘度が0.3未満のものを指す。本発明のポリエステル組成物主成分であるポリエステルが、カルボン酸基および/または水酸基を3つ以上有する構成成分を共重合成分として含有するため、(5)の工程において、該ポリエステルの全構成成分に対して、カルボン酸基および/または水酸基を3つ以上有する構成成分を0.025mol%以上1.5mol%以下含有させることが好ましい。

- [0085] 工程（６）（すなわち、重合工程）は、（５）で得られたポリエステル
低重合体を含む組成物に、リン酸とリン酸アルカリ金属塩を添加し、ポリ
エステルを重合させて、ポリエステル組成物を得る工程である。
- [0086] 工程（６）の重合の触媒として、二酸化ゲルマニウムのエチレングリ
コール溶液、三酸化アンチモン、チタンアルコキシド、チタンキレート化合物な
どを添加することも好適に行われる。
- [0087] （６）の工程におけるリン酸アルカリ金属塩の添加量がポリエステル組成
物全体に対して 1.3 mol/t 未満の場合、長期における耐湿熱性が不足
することがある。また、リン酸アルカリ金属塩の添加量がポリエステル組成
物全体に対して 3.0 mol/t を越
えると、異物化しやすくなる。特に、アルカリ金属元素として 1.3 mol
 $/t$ 以上 6.0 mol/t 以下とすることが耐熱性、耐湿熱性の点から好ま
しく、リン元素として 1.8 mol/t 以上 5.0 mol/t 以下とするこ
とが、耐熱性、耐湿熱性の点から必要である。また、（６）の工程におい
ては、異物生成抑制、長期の耐湿熱性の点からリン化合物としてリン酸をリン
酸アルカリ金属塩に対して、モル数で 0.4 倍以上 1.5 倍以下添加するこ
とが好ましい。さらに好ましい添加量は 0.8 倍以上 1.4 倍以下である。
 0.4 倍未満では、長期耐湿熱性が低下することがある。 1.5 倍を越える
と過剰なリン酸により重合触媒が失活し、重合反応が遅延し、 COOH 末端
基量が増加するため、ポリエステル組成物の耐湿熱性が低下することがある
。
- [0088] リン酸、リン酸アルカリ金属塩の添加方法としては、あらかじめエチレ
ングリコールなどに溶解し、混合して添加することが長期の耐湿熱性の点から
好ましい。このときの溶媒、分散媒の種類は、本発明のポリエステルに含有
される炭素数 $2\sim 4$ の直鎖状アルキレングリコールと同じアルキレングリコ
ールを用いることが耐熱性、耐湿熱性の点から好ましい。異なる種類のアル
キレングリコールを使用すると、共重合され、耐熱性が低下することがある
。特に、このときの混合液の pH を 2.0 以上 6.0 以下の酸性に調整する

ことが異物生成抑制の点から好ましい。さらに好ましくは4.0以上6.0以下である。これらのリン化合物は重合触媒と添加間隔を5分以上あけて添加することが重合反応性の点から好ましく、重合触媒の添加後でも添加前でも構わない。

[0089] 工程(6)においては、ポリエステル組成物の固有粘度が0.5以上となるまで重合することが好ましい。

ここで、ポリエステル組成物の固有粘度を0.5以上に高める場合には、COOH末端基量を20等量/t以下の範囲で、さらにより少なくする事ができるという点で、重合反応温度を $T_m + 30^\circ\text{C}$ 以下とするのが好ましい。

[0090] 固有粘度を増加させる観点とCOOH末端基量低減の観点から、工程(6)において固有粘度0.5以上0.6以下で一旦チップ化した後、固相重合反応を行うことが好ましい。本発明における固相重合反応は、重合温度をポリエステル組成物の $T_m - 30^\circ\text{C}$ 以下、 $T_m - 60^\circ\text{C}$ 以上、真空度0.3 Torr以下で行うことが好ましい。

[0091] 次に、このようにして得られたポリエステル組成物を用いてフィルムを製造する方法を説明する。

[0092] 上述のフィルムがP層のみからなる単膜構成の場合、P層用原料を押出機内で加熱溶融し、口金から冷却したキャストドラム上に押し出してシート状に加工する方法(溶融キャスト法)を使用することができる。その他の方法として、P層用の原料を溶媒に溶解させ、その溶液を口金からキャストドラム、エンドレスベルト等の支持体上に押し出して膜状とし、次いでかかる膜層から溶媒を乾燥除去させてシート状に加工する方法(溶液キャスト法)等も使用することができる。

[0093] P層を溶融キャスト法により製造する場合、乾燥したポリエステル組成物を押出機を用いて口金からシート状に溶融押し出し、表面温度 10°C 以上 60°C 以下に冷却されたドラム上で静電気により密着冷却固化し、未延伸シートを作製する。この未延伸シートを二軸延伸する事により本発明のシートを得

ることができる。

[0094] 押出機での熔融押出する際は、窒素雰囲気下で熔融させ、押出機へのチップ供給から、口金までに押出される時間は短い程良く、目安としては30分以下、より好ましくは15分以下、更に好ましくは5分以下とすることが、COOH末端基増加抑制の点で好ましい。

[0095] この得られた未延伸シートを T_g 以上の温度にて二軸延伸する。二軸延伸する方法としては、フィルムの長手方向とフィルムの幅方向（フィルムの長手方向に垂直な方向）の延伸とを分離して行う逐次二軸延伸方法の他に、長手方向と幅方向の延伸を同時に行う同時二軸延伸方法が挙げられる。

[0096] 得られた二軸延伸フィルムの結晶配向を完了させて、平面性と寸法安定性を付与するために、 T_g 以上 T_m 未満の温度で1秒間以上30秒間以下の熱処理を行ない、均一に徐冷後、室温まで冷却することによって、本発明のフィルムが得られる。

[0097] ここで、上述のシート状構造体においてa層の面配向係数Rを上記の値とするために、本発明のフィルムは、下記(7)、(8)の工程をこの順で含む方法で製造されてなることが好ましい。なお、下記の T_g 、 T_m 、 T_h を得る方法としては、例えば、示差走査熱量測定などを挙げることができる。

(7) ポリエステル組成物のガラス転移温度を T_g (°C) とするとき、シート状に成形したポリエステル組成物を T_g 以上 $T_g + 40$ °C以下の温度で、面積倍率1.4倍以上に逐次延伸する二軸延伸工程。

(8) ポリエステル組成物の融点を T_m (°C)、熱処理温度を T_h (°C) とするとき、(7)の工程の後、下記式(iii)を満たす範囲で熱処理を行う熱処理工程。

$$(iii) 45^{\circ}\text{C} \leq T_m - T_h \leq 90^{\circ}\text{C}$$

[0098] 延伸温度が T_g 以下である場合、延伸ができない。また、延伸温度が $T_g + 40$ °Cを超えると、フィルムを配向させることができなくなるおそれがある。面積倍率が1.4倍に満たないと、配向結晶部の量が充分でなく、面配向係数Rが5.0に満たないため耐湿熱性が低下するおそれがある。熱処理温

度 T_h が高くなり (iii) 式の範囲を外れた場合、延伸による配向結晶部に加え、非晶部が配向結晶部に取り込まれて R が 10.0 を超えるため耐湿熱性が低下するおそれがある。また、熱処理温度 T_h が低くなり (iii) 式の範囲を外れた場合、延伸による配向結晶部の分子鎖の配向を十分なものとしてすることができず、 R が 5.0 に満たなくなるため耐湿熱性が低下するおそれがある。上記 (7)、(8) の工程をこの順で含む方法でフィルムを製造することにより、面配向係数 R を上記の範囲とすることができ、耐湿熱性に優れた二軸配向フィルムを得ることができる。

[0099] 次に、このようにして得られたフィルムを用いてシート状構造体を製造する方法を説明する。

[0100] 上述のシート状構造体において、上記フィルム (a 層) とポリアリーレンスルフィドを主成分とするシート (b 1 層および/または b 2 層) を積層する方法として、a 層と b 1 層の間、および/または a 層と b 2 層の間に接着層 (c 層) を介在させて張りあわせる方法、または少なくとも 2 台以上の押出機を用いて共押し出しにより積層する方法、溶融ラミネート法、熱ラミネート法などの方法が好適に用いられる。

[0101] 上記シート状構造体において、上記フィルム (a 層) とアラミドを主成分とするシート (b 1 層および/または b 2 層) を積層する方法として、a 層と b 1 層の間、および/または a 層と b 2 層の間に接着層 (c 層) を介在させて張りあわせる方法、熱ラミネート法、溶液ラミネート法などの方法が好適に用いられる。

[0102] a 層と、ポリアリーレンスルフィドを主成分とするシートおよび/またはアラミドを主成分とするシート (b 1 層および/または b 2 層) を接着層 (c 層) を介在させて張りあわせる場合、c 層を設ける方法はコーティング法が好ましい。その場合、a 層に c 層を塗布してから b 1 層および/または b 2 層を積層する方法、b 1 層および/または b 2 層に c 層を塗布してから a 層を積層する方法が適用できる。必要に応じて、乾燥や効果処理を施すことによって、上記の積層シート状構造体を得られる。

[0103] a層と、ポリアリレンスルフィドを主成分とするシート（b1層およびb2層）を2台の押出機を用い、共押出しによりb1/a/b2の構成となるシート状構造体を作製する場合について以下に述べる。上記ポリエステル組成物とポリアリレンスルフィドからなる組成物（a層を形成する組成物）を乾燥したのち、押出機1に供給し、個々の組成物の融点以上に加熱し溶融させる。また、ポリアリレンスルフィド樹脂（b1層およびb2層を形成する樹脂）を乾燥した後別の押出機2に供給し、ポリアリレンスルフィドを主成分とする組成物の融点以上に加熱し、溶融させる。これらを押出装置と口金の中に設けられた合流装置で溶融状態でb1/a/b2の構成となるように積層し、スリット状の口金出口より押し出した後、表面温度10℃以上60℃以下に冷却されたドラム上で静電気により密着冷却固化し、未延伸のシート状構造体を作製する。

[0104] この得られた未延伸シートを、T_g以上の温度にて二軸延伸する。二軸延伸する方法としては、フィルム長手方向とフィルム幅方向（フィルム長手方向に垂直な方向）の延伸とを分離して行う逐次二軸延伸方法の他に、フィルム長手方向とフィルム幅方向の延伸を同時に行う同時二軸延伸方法が挙げられる。

[0105] 得られた二軸延伸フィルムの結晶配向を完了させて、平面性と寸法安定性を付与するために、ポリエステル組成物のT_g以上T_m未満の温度で1秒間以上30秒間以下の熱処理を行ない、均一に徐冷後、室温まで冷却することによって、上記シート状構造体を得られる。

[0106] このようにして得られたポリエステル組成物、およびそれを用いたフィルム、当該フィルムを用いた積層シート状構造体は耐湿熱性に非常に優れたものとなる。そのため、当該フィルムを用いた積層シート状構造体は、耐湿熱性に優れた電気絶縁シートとして特に好適に用いることができる。

[0107] （特性の測定・評価方法）

特性の測定・評価方法を以下に述べる。

なお、以下のA～E、およびLに記載の「試料」とはポリエステル組成物

のことである。

また、F、Hに記載の「試料」とは、ポリエステル組成物からなる層（P層）を有するフィルム、またはポリエステル組成物からなる層（P層）を有するフィルムを含むシート状構造体、またはポリエステル組成物からなる層（P層）を有するフィルムを含む太陽電池バックシートのことである。

また、Gに記載の「試料」とは、ポリエステル組成物からなる層（P層）を有するフィルムのことである。

また、I～Kに記載の「試料」とは、ポリエステル組成物からなる層（P層）を有するフィルムを含むシート状構造体のことである。

また、M、Nに記載の「試料」とは、ポリエステル組成物以外のポリマーのことである。

[0108] A. 固有粘度IVの測定方法

オルトクロロフェノール100mlに試料を溶解させ（溶液濃度C = 1.2g/ml）、その溶液の25℃での粘度をオストワルド粘度計を用いて測定した。また、同様に溶媒の粘度を測定した。得られた溶液粘度、溶媒粘度を用いて、下記式(iv)により、 $[\eta]$ を算出し、得られた $[\eta]$ の値を固有粘度（IV）とした。

$$(iv) \eta_{sp}/C = [\eta] + K [\eta]^2 \cdot C$$

（ここで、 $\eta_{sp} = (\text{溶液粘度} / \text{溶媒粘度}) - 1$ 、Kはハギンス定数（0.343とする）である。）

[0109] B. リン量、アルカリ金属元素を除く金属元素量の定量測定方法

理学電機（株）製蛍光X線分析装置（型番：3270）を用いて元素量を測定した。

凍結粉碎した試料8gを、JIS K0119の記載に準じて分析試料とした。試料中の各元素の含有量の定量は、JIS K0119（1999）10.1d）の記載に準じて行った。

[0110] C. アルカリ金属量の定量測定方法

試料1gを白金皿にとり、700℃にて1.5hrかけて完全に灰化させ

、つぎに灰化物を、体積が50 mlになるように0.1 Nの塩酸に溶かし、溶液Aを得た。溶液Aに不溶物が無い場合は、これを測定試料として用いた。

一方、溶液Aに不溶物がある場合は、以下の方法によって、測定試料を得た。新たに試料1 gを白金皿にとり、700℃にて1.5 hrかけて完全に灰化させ、つぎに灰化物を6.5 Nの硝酸5 mlに溶かし、溶液Bを得た。溶液Bを加熱し、硝酸を蒸発せしめ、残渣を得た。当残渣を、体積が50 mlになるように0.1 Nの塩酸に溶かし、溶液Bを得た。当該溶液Bを測定試料として用いた。

上記の測定試料を用いて、原子吸光分析法（日立製作所製：偏光ゼーマン原子吸光光度計180-80。フレーム：アセチレン-空気）にて定量を行った。定量は、JIS K0121（1999）9.1a）の記載に準じて行った。

[0111] D. COOH末端基量の測定方法

Mauliceの方法によって測定した。（文献M. J. Maulice, F. Huizinga, Anal. Chim. Acta, 22 363（1960））

[0112] E. ポリエステル組成物の融点（ T_m ）の測定方法

JIS K-7121（1999）に基づいた方法により、測定装置としてセイコー電子工業（株）製示差走査熱量測定装置“ロボットDSC-RDC220”を、データ解析にはディスクセッション“SSC/5200”を用いて、下記の要領にて、試料の測定を実施した。

サンプルパンに試料を5 mgずつ秤量し、試料を25℃から300℃まで20℃/分の昇温速度で加熱（1st RUN）、その状態で5分間保持し、次いで25℃以下となるよう急冷し、再度室温から20℃/分の昇温速度で300℃まで昇温を行った（2nd RUN）。そして、得られた2nd RUNの結晶融解ピークにおけるピークトップの温度を求めた。ピークトップが複数ある場合は、最も高温のピークトップを融点とした。

[0113] F. 破断伸度の測定方法

ASTM-D882(1997)に基づいて、試料を1cm×20cmの大きさに切り出し、チャック間5cm、引っ張り速度300mm/minにて引っ張ったときの破断伸度を測定した。なお、試料数はn=5とし、また、フィルムの長手方向、幅方向のそれぞれについて測定した後、それらの平均値として求めた。

[0114] G. 面配向係数Rの測定方法

堀場製作所Jovin Yvon製T64000を用い、レーザー光源をArレーザー(514.5nm、レーザーパワー30mW)として、試料にレーザーを照射し、1615cm⁻¹のラマンバンドスペクトルの、試料の厚みの中央でのピーク強度を求めた。レーザーの偏光がフィルム平面方向に垂直な偏光配置での強度(I(ND))、フィルム平面の長手方向に平行な偏光配置での強度(I(MD))、およびフィルム平面の幅方向に平行な偏光配置での強度(I(TD))を求め、次にI(MD)、I(TD)それぞれをI(ND)で除算することでフィルム長手方向と幅方向それぞれの配向係数R(MD)、R(TD)を求めた。さらにR(MD)、R(TD)の平均を求め、フィルム面方向の配向係数Rとした。

[0115] H. 機械特性の耐湿熱性の評価方法

フィルムの機械特性の耐湿熱性については、試料を測定片の形状(1cm×20cm)に切り出した後、タバイエスペック(株)製プレッシャークーナーにて、温度140℃、相対湿度80%RHの条件下にて処理を行い、その後上記F.項に従って破断伸度を測定した。なお、試料数はn=5とし、また、フィルムの長手方向、幅方向のそれぞれについて測定した後、その平均値を破断伸度E1とした。また、処理を行う前のフィルムについても上記F.項に従って破断伸度E0を測定し、得られた破断伸度E0、E1を用いて、次の(v)式により伸度保持率を算出し、伸度保持率が50%となる処理時間を伸度半減期とした。

$$(v) \quad \text{伸度保持率}(\%) = E1 / E0 \times 100$$

得られた伸度半減期について、以下のように判定した。

伸度半減期が35時間以上の場合：S

伸度半減期が30時間以上35時間未満の場合：A

伸度半減期が25時間以上30時間未満の場合：B

伸度半減期が25時間未満の場合：C

S～Bが良好であり、その中でもSが最も優れている。

[0116] また、シート状構造体の破断伸度は、上記と同様に処理前のシート状構造体の破断伸度 E_0' 、温度140℃、湿度80%RHの条件下にて処理後の破断伸度を E_1' を求めて、下記式(v')により伸度保持率を算出した。なお、測定方法としては、シート状構造体を構成するa層のフィルムの長手方向、幅方向それぞれについて測定した後、その平均値を破断伸度 E_1' とした。また、処理を行う前のシート状構造体についても上記F.項に従って破断伸度 E_0' を測定した。

$$(v') \quad \text{伸度保持率}(\%) = E_1' / E_0' \times 100$$

得られた伸度半減期について、以下のように判定した。

伸度半減期が40時間以上の場合：S

伸度半減期が35時間以上40時間未満の場合：A

伸度半減期が30時間以上35時間未満の場合：B

伸度半減期が30時間未満の場合：C

S～Bが良好であり、その中でもSが最も優れている。

[0117] また、バックシートの破断伸度は、上記と同様に処理前のバックシートの破断伸度 E_0'' 、温度140℃、湿度80%RHの条件下にて処理後の破断伸度 E_1'' を求めて、下記式(v'')により伸度保持率を算出した。なお、測定方法としては、バックシートを構成する二軸配向フィルムの長手方向、幅方向それぞれについて測定した後、その平均値を破断伸度 E_1'' とした。

$$(v'') \quad \text{伸度保持率}(\%) = E_1'' / E_0'' \times 100$$

得られた伸度半減期について、以下のように判定した。

伸度半減期が35時間以上の場合：S

伸度半減期が30時間以上35時間未満の場合：A

伸度半減期が25時間以上30時間未満の場合：B

伸度半減期が25時間未満の場合：C

S～Bが良好であり、その中でもSが最も優れている。

[0118] I. 耐熱性の評価方法

試料を測定片の形状（1cm×20cm）に切り出した後、ギアオーブンにて、200℃にて処理を行い、その後上記F. 項に従って破断伸度を測定した。なお、測定する試料数は $n=5$ とし、また、フィルムの長手方向、幅方向のそれぞれについて測定した後、その平均値を破断伸度 E''_1 とした。また、処理を行う前のシート状構造体についても上記F. 項に従って破断伸度 E''_0 を測定し、得られた破断伸度 E''_0 、 E''_1 を用いて、次の(vi)式により伸度保持率を算出し、伸度保持率が50%となる処理時間を伸度半減期とした。

$$(vi) \quad \text{伸度保持率}(\%) = E''_1 / E''_0 \times 100$$

得られた伸度半減期について、以下のように判定した。

伸度半減期が100時間以上の場合：A

伸度半減期が100時間未満の場合：B

Aが耐熱性良好である。

[0119] J. 電気特性の耐湿熱性の評価方法

試料を測定片の形状（100mm×100mm）に切り出し、タバイエスペック（株）製プレッシャークッカーにて、温度140℃、相対湿度80%RHの条件下にて24hr処理を行った後、JIS C2318 6.3.6項に従って体積抵抗（ $\Omega \cdot \text{cm}$ ）を測定した。測定する試料数は $n=3$ とし、平均値を体積抵抗とした。

得られた体積抵抗について、以下のように判定した。

体積抵抗が $1.0 \times 10^{16} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上：A

測定中に試料が破壊され、測定不可能なもの：B

Aが電気特性の耐湿熱性に優れている。

[0120] K. 加工性の評価方法

モーター加工機（小田原エンジニアリング社製）を用いて、試料を12 mm×80 mmのサイズ（フィルムの長手方向を80 mmとした）に打ち抜き、さらに折り目をつける加工をトータルの加工速度2個/秒の速度で1,000個の試料を作成し、割れや亀裂の発生数を数えて、以下のように判断した。

割れや亀裂の発生数が200個未満：A

割れや亀裂の発生数が200個以上：B

Aが加工性良好である。

[0121] L. ポリエステル組成物のガラス転移温度（T_g）の測定方法

JIS K7121（1999）に準じて、測定装置としてセイコー電子工業（株）製示差走査熱量測定装置“ロボットDSC-RDC220”を、データ解析にはディスクセッション“SSC/5200”を用いて、下記の要領にて、測定を実施した。

サンプルパンに試料を5 mgずつ秤量し、試料を25℃から300℃まで20℃/分の昇温速度で加熱し、その状態で5分間保持し、次いで25℃以下となるよう急冷した。直ちに引き続いて、再度室温から20℃/分の昇温速度で300℃まで昇温を行って測定を行った。得られた示差走査熱量測定チャートから、JIS K7121（1999）9.3（1）に記載の方法により、ガラス転移温度を求めた。複数のガラス転移温度が得られる場合は、最も高温のガラス転移温度をポリエステル組成物のガラス転移温度とした。

[0122] M. ポリマーの融点の測定方法

JIS K-7121（1999）に基づいた方法により、測定装置としてセイコー電子工業（株）製示差走査熱量測定装置“ロボットDSC-RDC220”を、データ解析にはディスクセッション“SSC/5200”を用いて、下記の要領にて、試料の測定を実施した。

サンプルパンにサンプルを5mgずつ秤量し、試料を25℃から300℃まで20℃/分の昇温速度で加熱（1st RUN）、その状態で5分間保持し、次いで25℃以下となるよう急冷し、再度室温から20℃/分の昇温速度で300℃まで昇温を行った（2nd RUN）。そして、得られた2nd RUNの結晶融解ピークにおけるピークトップの温度を求めた。複数のピークトップがある場合は、それらのうち最も高温のピークトップを融点とした。

[0123] N. ポリマーのガラス転移温度の測定方法

JIS K7121（1999）に準じて、測定装置としてセイコー電子工業（株）製示差走査熱量測定装置“ロボットDSC-RDC220”を、データ解析にはディスクセッション“SSC/5200”を用いて、下記の要領にて、測定を実施した。

サンプルパンに試料を5mgずつ秤量し、試料を25℃から300℃まで20℃/分の昇温速度で加熱し、その状態で5分間保持し、次いで25℃以下となるよう急冷した。直ちに引き続いて、再度室温から20℃/分の昇温速度で300℃まで昇温を行って測定を行った。得られた示差走査熱量測定チャートから、JIS K7121（1999）9.3（1）に記載の方法により、ガラス転移温度を求めた。複数のガラス転移温度が得られる場合は、最も高温のガラス転移温度をポリマーのガラス転移温度とした。

実施例

[0124] 以下、本発明について実施例を挙げて説明するが、本発明は必ずしもこれらに限定されるものではない。

[0125] （PPS原料（PPS-1）の作製）

攪拌機付きの70リットルオートクレーブに、47.5%水酸化ナトリウム8267.37g（70.00mol）、96%水酸化ナトリウム2957.21g（70.97mol）、N-メチル-2-ピロリドン（NMP）11434.50g（115.50mol）、酢酸ナトリウム2583.00g（31.50mol）、およびイオン交換水10500gを仕込み、常

圧で窒素を通じながら245℃まで約3時間かけて徐々に加熱し、水14780.1gおよびNMP280gを留出した後、反応容器を160℃に冷却した。

[0126] 次に、p-ジクロロベンゼン10235.46g(69.63mol)、NMP9009.0g(91.00mol)を加え、反応容器を窒素ガス下に密封し、240rpmで攪拌しながら、0.6℃/分の速度で238℃まで昇温した。238℃で95分反応を行った後、0.8℃/分の速度で270℃まで昇温した。270℃で100分反応を行った後、1260g(70mol)の水を15分かけて圧入しながら250℃まで1.3℃/分の速度で冷却した。その後200℃まで1.0℃/分の速度で冷却してから、室温近傍まで急冷した。内容物を取り出して洗浄した後、得られた含水PPS粒子を80℃で熱風乾燥し120℃で減圧乾燥した。得られたPPSは、ガラス転移温度が90℃、融点が285℃であった。

[0127] (実施例1)

テレフタル酸ジメチル100質量部、エチレングリコール57.5質量部、酢酸マンガン0.03質量部(Mn金属元素換算で1.35mol/t)、三酸化アンチモン0.03質量部を150℃、窒素雰囲気下で溶融した。この溶融物を攪拌しながら230℃まで3時間かけて昇温し、メタノールを留出させ、エステル交換反応を終了した。エステル交換反応終了後、リン酸0.005質量部(0.52mol/t相当)とリン酸二水素ナトリウム2水和物0.021質量部(1.30mol/t相当)をエチレングリコール0.5質量部に溶解したエチレングリコール溶液(pH5.0)を添加した。このときのポリエステル組成物の固有粘度は0.2未満であった。この後、重合反応を最終到達温度285℃、真空度0.1Torrで行い、固有粘度0.52、COOH末端基量15eq./tのポリエチレンテレフタレートを得た。得られたポリエチレンテレフタレートを160℃で6時間乾燥、結晶化させた。その後、220℃、真空度0.3Torr、8時間の固相重合を行い、固有粘度0.85、COOH末端基量10.2eq./tのポリ

エチレンテレフタレートを得た。得られたポリエチレンテレフタレート組成物のガラス転移温度は82℃、融点は255℃であった。

[0128] 固相重合後のポリエチレンテレフタレートを180℃の温度で2時間真空乾燥した後窒素雰囲気下で押出機に供給した。押出温度280℃でTダイから吐出させ、キャストイングドラム(20℃)にて急冷し、静電印加法にてシート化した。このシートをフィルムの長手方向に延伸温度90℃、延伸倍率3.5倍で延伸したのち、フィルムの幅方向に延伸温度100℃、延伸倍率4.2倍で延伸し、熱処理を200℃で8秒間行い、厚さ50μmの二軸配向フィルムを得た。

[0129] 次に、b1層、b2層として厚み12μmのポリフェニレンスルフィド(PPS)フィルム(東レ製“トレリナ”)のそれぞれの片面にエポキシ系接着剤“ケミットTE2301”(東レファインケミカル製)(c層)を乾燥後の厚みで5μmとなるように調整してグラビアロールで塗布し、100℃で3分間乾燥した。さらに、得られた厚み50μmの二軸配向ポリエチレンテレフタレート(a層)が中央層になるように、PPSフィルム(b1層、b2層)を重ねてから150℃で1時間かけてc層を硬化させて、厚み84μmの電気絶縁シート(b1層/c層/a層/c層/b2層)を得た。得られたシート特性の評価を実施した。結果を表1、11に示す。高い特性を有することがわかった。

[0130] また、この二軸配向フィルム(上記a層として用いたフィルム)を第1層として用い、接着層として“タケラック(登録商標)”A310(三井武田ケミカル(株)製)90質量部、“タケネート(登録商標)”A3(三井武田ケミカル(株)製)を塗布し、その上に第2層として厚さ75μm二軸延伸ポリエステルフィルム“ルミラー(登録商標)”S10(東レ(株)製)を貼り合わせた。次に第2層上に上述の接着層を塗布し、厚さ12μmバリアロックス“HGTS”(東レフィルム加工(株)製のアルミナ蒸着PETフィルム)を蒸着層が第2層と反対側になるように貼り合わせ、バックシートを形成した。得られたバックシートの機械特性の耐湿熱性の評価を実施し

た。結果を表に示す。

[0131] (実施例 2～11、17、18、21、22、30～45、47～50)

ポリエステル組成物の組成を表 1、2、3、5～10に記載のように変えた以外は、実施例 1 と同様の方法にてポリエステル組成物を得た。ポリエステル組成物の組成が表の記載となるように、用いる原料の量や種類を変更した。例えば、リン元素の含有量を変えた実施例では、エステル交換反応終了後に添加するリン酸とリン酸二水素ナトリウムの添加量を変更した。また、ポリエステル組成物に Ca 元素を含有させる実施例では、酢酸マンガンの一部または全部に代えて、酢酸カルシウムを用いた。また、アルカリ金属塩の種類がカリウムである実施例では、エステル交換反応終了後に添加するリン酸二水素ナトリウムに代えて、リン酸二水素カリウムを用いた。また、リン酸アルカリ金属塩の種類をリン酸三ナトリウムに代えた実施例では、エステル交換反応終了後に添加するリン酸二水素ナトリウムに代えてリン酸三ナトリウムを添加した。得られたポリエチレンテレフタレート組成物のガラス転移温度を表 1、2、3、5～10に示す。また、実施例 1 と同様にして二軸配向フィルム、電気絶縁シートを得た。また、実施例 1 と同様に太陽電池バックシートを得た。得られたシート特性の評価を実施した。結果を表 11～19に示す。実施例 5、6、10、17、18、21、22、30～45では実施例 1 よりも機械特性の耐湿熱性が良好であり、その他特性は実施例 1 と同様に高いものであった。実施例 2～4、7～9、11は実施例 1 と同様高い特性を有することがわかった。

[0132] (実施例 12～16、19、20、46)

カルボン酸基および／または水酸基を 3 つ以上有する構成成分として表 2、3、5、9に記載の構成成分を、表に記載の割合となるように重合し、ポリエステル組成物の組成とした以外は実施例 1 と同様にしてポリエステル組成物を得た。具体的には、実施例 12ではテレフタル酸ジメチル 99.87 質量部、トリメリット酸トリメチル 0.13 質量部、エチレングリコール 57.5 質量部に変更した。また、実施例 16では、テレフタル酸ジメチル 1

00質量部、エチレングリコール57.5質量部、グリセリン0.047質量部に変更した。得られたポリエステル組成物のガラス転移温度、融点を表2、3、5、9に示す。次に延伸条件を表2、3、5、9の通りとした以外は実施例1と同様にして二軸配向フィルムを得た。また、実施例1と同様にして電気絶縁シートを得た。また、実施例1と同様に太陽電池バックシートを得た。得られたシートの特性的評価を実施した。結果を表12~14、18に示す。実施例1よりも機械特性の耐湿熱性が高いことがわかった。

[0133] (実施例23~25)

ポリエステルフィルムの厚みを表14、15の記載の通りに変更した以外は、実施例5と同様にして二軸配向フィルムを得た。またb1層、b2層に用いる“トレリナ”の厚みを表14、15に記載のとおりに変えた以外は、実施例1と同様にして電気絶縁シートを得た。また、実施例1と同様に太陽電池バックシートを得た。得られたシートの特性的評価を実施した。結果を表3、6、14、15に示す。実施例5と同様の高い特性を有することがわかった。

[0134] (実施例26)

テレフタル酸ジメチルの代わりに、2,6-ナフタレンジカルボン酸ジメチル100質量部を用いた以外は実施例5と同様にして固有粘度0.90、COOH末端基12.5eq./tのポリエチレン2,6-ナフタレート(PEN)を得た。得られたポリエチレン2,6-ナフタレート組成物のガラス転移温度は123℃、融点は265℃であった。

得られたポリエチレン2,6-ナフタレートを180℃の温度で2時間真空乾燥した後窒素雰囲気下で押出機に供給した。押出温度300℃でTダイから吐出させ、キャストイングドラム(20℃)にて急冷し、静電印加法にてシート化した。このシートをフィルムの長手方向に延伸温度135℃、延伸倍率3.5倍で延伸したのち、フィルムの幅方向に延伸温度140℃、延伸倍率4.2倍で延伸し、熱処理を230℃で8秒間行い、厚さ50μmの二軸配向フィルムを得た。このフィルムを用い、実施例1と同様にして電気

絶縁シートを得た。また、実施例1と同様に太陽電池バックシートを得た。得られたシートの特性的評価を実施した。結果を表6、15に示す。実施例5と同様の高い特性を有することがわかった。

[0135] (実施例27)

実施例5で得たポリエチレンテレフタレート(PET)50重量%とGeneral Electric社製のポリエーテルイミド(PEI)チップ“ウルテム”1010(ガラス転移温度217℃、固有粘度0.68)を50重量%、150℃で5時間除湿乾燥した後、320~290℃に加熱された(スクリーゾーン、押出ヘッド部で温度勾配を設定)二軸3段タイプのスクリー(PETとPEIの混練可塑化ゾーン/ダルメージ混練ゾーン/逆ネジダルメージによる微分散相溶化ゾーン)を具備したベント式二軸押出機(L/D=40、ベント孔の減圧度は200Paとした)に供給して、滞留時間3分にて溶融押し出し、ウルテムを50重量%含有したPET/PEIブレンドチップを得た。

[0136] 次いで、得られたPET/PEIブレンドチップ30重量%と実施例5で得たPETチップ70重量%とを混合させ、(PETとPEIの混合比率、PET;85重量%、PEI;15重量%)、180℃で3時間減圧乾燥した後、溶融部が280℃に加熱された押出機1に供給した。また、一方、PPS原料(PPS-1)を180℃で3時間減圧乾燥した後、溶融部が320℃に加熱された押出機2に供給した。次いでこれらの2台の押出機で溶融したポリマー温度290℃に設定した3層用の合流ブロック用いて合流させて3層積層(b1/a/b2)とした。合流ブロックを通過させるポリマー流量は、二軸延伸・熱処理後の最終フィルムの全厚みに対する表層部(b1層、b2層)の合計積層厚み比率が20%となるように、各層の厚さをそれぞれのラインに設置されたギアポンプの回転数を調節し、押出量を制御することによって合わせた。このように溶融ポリマーを3層積層状態にし、温度290℃に設定したTダイの口金から溶融押し出した後、表面温度20℃のキャストドラムに静電荷を印加させながら密着冷却固化し、未延伸積層シート

を作製した。この未延伸積層シートを、110℃の温度でフィルムの長手方向に3.8倍の倍率で延伸し次いで延伸温度115℃、延伸倍率4.0倍でフィルムの幅方向に延伸を行い、引き続いて温度210℃で8秒間の熱処理を行い、厚さ30μmの電気絶縁シートを得た。得られたシートの特性的評価を実施した。結果を表6、15に示す。実施例5と同様の高い特性を有することがわかった。

[0137] (実施例28)

a層に用いるポリエステルフィルムを実施例23と同様にし、b1層、b2層として厚み50μmのアラミド繊維シート(帝人アドバンスフィルム社製“ノーマックス”)を用いた以外は、実施例1と同様にして電気絶縁シートを得た。得られたシートの特性的評価を実施した。結果を表6、15に示す。実施例23と同様の高い特性を有することがわかった。

[0138] (実施例29)

a層に用いるポリエステルフィルムを実施例23と同様にし、b1層として厚み50μmのアラミド繊維シート(帝人アドバンスフィルム社製“ノーマックス”)をもちい、b2層として25μmの“トレリナ”を用いた以外は、実施例1と同様にして電気絶縁シートを得た。得られたシートの特性的評価を実施した。結果を表6、15に示す。実施例23と同様の高い特性を有することがわかった。

[0139] (実施例51、52)

実施例5で得られたポリエステル組成物80重量部と、平均粒径が200nmの二酸化チタン20重量部とを、ベントした押出機に投入し、該押出機内で溶融混練せしめ、二酸化チタンを含有したポリエステル組成物を得た。この二酸化チタンを含有したポリエステル組成物と実施例5で得られたポリエステル組成物を、P'層に含まれる顔料の含有量が表の記載になるようにブレンドし、P'層からなる二軸配向フィルムを得た。また、そのフィルムを用いて、実施例1と同様に電気絶縁シート、太陽電池バックシートを得た。結果を表10、19に示す。

[0140] (実施例 5 3、5 4)

実施例 5 で得られたポリエステル組成物 8 0 重量部と、一次平均粒径が 4 0 n m のカーボンブラック 2 0 重量部とを、ベントした押出機に投入し、該押出機内で熔融混練せしめ、カーボンブラックを含有したポリエステル組成物を得た。このカーボンブラックを含有したポリエステル組成物と実施例 5 で得られたポリエステル組成物を、P' 層に含まれる顔料の含有量が表の記載になるようにブレンドし、P' 層からなる二軸配向フィルムを得た。また、そのフィルムを用いて、実施例 1 と同様に電気絶縁シート、太陽電池バックシートを得た。結果を表 1 0、1 9 に示す。

[0141] (比較例 1 ~ 1 8)

ポリエステル組成物の組成を記載のように変えた以外は、実施例 1 と同様の方法にてポリエステル組成物を得た。得られたポリエチレンテレフタレートのガラス転移温度を表 4、2 0、2 1 に示す。また、実施例 1 と同様にして二軸配向フィルム、電気絶縁シートを得た。また、実施例 1 と同様にして太陽電池バックシートを得た。得られたシート特性の評価を実施した。結果を表 2 2 ~ 2 4 に示す。耐熱性、加工性に優れるものの、実施例 1 ~ 5 4 に比べて機械特性の耐湿熱性、電気特性の耐湿熱性に劣ることがわかった。

[0142]

[表1]

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6
ジカルボン酸 構成成分	種類	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸
	量 (mol%)	100	100	100	100	100	100
	ジオール構成成分	エチレングリコール	エチレングリコール	エチレングリコール	エチレングリコール	エチレングリコール	エチレングリコール
ポリエステル	種類	—	—	—	—	—	—
	カルボン酸基を3つ以上有する構成成分と、水酸基を3つ以上有する構成成分	—	—	—	—	—	—
ポリエステル組成物	種類	リン酸二水素ナトリウム	リン酸二水素ナトリウム	リン酸二水素ナトリウム	リン酸二水素ナトリウム	リン酸二水素ナトリウム	リン酸二水素ナトリウム
	アルカリ金属塩	Na	Na	Na	Na	Na	Na
	アルカリ金属元素量 (mol/t)	1.30	1.30	3.00	1.70	1.70	1.20
	リン酸	0.52	0.52	2.00	1.90	1.90	0.60
	リン酸/リン酸アルカリ金属塩	0.40	0.40	0.67	1.12	1.12	0.50
	リン量 (mol/t)	1.82	1.82	5.00	3.60	3.60	1.80
	2価の金属元素	Mn	Mn	Mn	Mn	Mn	Mn
	金属元素量 (mol/t)	1.35	4.81	4.00	3.11	3.83	1.74
	Mn/Ca	1.35	4.81	4.00	3.11	3.83	1.74
	Mn/Ca以外	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
物性	種類	—	—	—	—	—	—
	含有量 (mol/t)	—	—	—	—	—	—
	M	2.00	5.46	5.50	3.96	4.68	2.34
	M/P	1.10	3.00	1.10	1.10	1.30	1.30
物性	Tg (°C)	82	82	82	82	82	82
	Tm (°C)	255	255	255	255	255	255
	IV	0.85	0.85	0.85	0.85	0.85	0.85
	COOH (eq./t)	10.2	10.5	10.0	10.0	9.0	9.0

[0143]

[表2]

		実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12
ジカルボン酸 構成成分	種類	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸
	量 (mol%)	100	100	100	100	100	99.9
	ジオール構成成分	エチレングリコール	エチレングリコール	エチレングリコール	エチレングリコール	エチレングリコール	エチレングリコール
ポリエステル	種類	100	100	100	100	100	100
	量 (mol%)	—	—	—	—	—	トリメチル酸
カルボン酸基を3つ以上有する構成成分と、水酸基を3つ以上有する構成成分	種類	—	—	—	—	—	—
	全構成成分に対する含有量 (mol%)	—	—	—	—	—	0.05
リン酸アルカリ金属塩	種類	リン酸二水素ナトリウム	リン酸二水素ナトリウム	リン酸二水素ナトリウム	リン酸二水素ナトリウム	リン酸二水素ナトリウム	リン酸二水素ナトリウム
	アルカリ金属元素量 (mol/t)	Na	Na	Na	Na	Na	Na
	量 (mol/t)	1.20	2.40	1.20	3.00	3.50	1.70
リン酸	リン酸量 (mol/t)	1.80	1.20	1.80	2.00	1.50	1.90
	リン酸/リン酸アルカリ金属塩リン量 (mol/t)	1.50	0.50	1.50	0.67	0.43	1.12
2価の金属元素	リン量 (mol/t)	3.00	3.60	3.00	5.00	5.00	3.60
	種類	Mn	Mn	Mn	Mn	Mn	Mn
Mn/Ca	金属元素量 (mol/t)	2.70	2.76	8.40	5.00	13.25	3.83
	Mnの含有量 (mol/t)	2.70	2.76	8.40	5.00	13.25	3.83
Mn/Ca以外	Caの含有量 (mol/t)	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
	種類	—	—	—	—	—	—
M/P	含有量 (mol/t)	—	—	—	—	—	—
	M	3.30	3.96	9.00	6.50	15.00	4.68
Tg (°C)	P	1.10	1.10	3.00	1.30	3.00	1.30
	Tg (°C)	82	82	82	82	82	82
IV	Tm (°C)	255	255	255	255	255	255
	COOH (eq./t)	0.85	0.85	0.85	0.85	0.85	0.84
物性	COOH (eq./t)	10.2	10.2	10.0	9.0	10.0	9.0

ポリエステル組成物

[表3]

		実施例19	実施例20	実施例21	実施例22	実施例23	実施例24
ジカルボン酸 構成成分	種類	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸
	量 (mol%)	99.95	99.9	100	100	100	100
ポリエステル	ジオール構成成分	エチレングリコール	エチレングリコール	エチレングリコール	エチレングリコール	エチレングリコール	エチレングリコール
	量 (mol%)	100	100	100	100	100	100
カルボン酸基を3つ以上有する構成成分と、水酸基を3つ以上有する構成成分	種類	トリメチル酸	トリメチル酸	-	-	-	-
	全構成成分に対する含有量 (mol%)	0.025	0.05	-	-	-	-
リン酸アルカリ金属塩	種類	リン酸二水素ナトリウム	リン酸二水素ナトリウム	リン酸二水素カリウム	リン酸三ナトリウム	リン酸二水素ナトリウム	リン酸二水素ナトリウム
	アルカリ金属元素量 (mol/t)	Na 1.70	Na 1.70	K 1.70	Na 5.10	Na 1.70	Na 1.70
リン酸	リン酸量 (mol/t)	1.90	1.90	1.90	1.90	1.90	1.90
	リン酸アルカリ金属塩リン量 (mol/t)	1.12 3.60	1.12 3.60	1.12 3.60	0.37 3.60	1.12 3.60	1.12 3.60
2価の金属元素	種類	Ca	Ca	Mn	Mn	Mn	Mn
	金属元素量 (mol/t)	3.83	3.83	3.83	2.13	3.83	3.83
Mn/Ca	Mnの含有量 (mol/t)	0.00	0.00	3.83	2.13	3.83	3.83
	Caの含有量 (mol/t)	3.83	3.83	0.00	0.00	0.00	0.00
Mn/Ca以外	種類	-	-	-	-	-	-
	含有量 (mol/t)	-	-	-	-	-	-
M/P	M	4.68	4.68	4.68	4.68	4.68	4.68
	P	1.30	1.30	1.30	1.30	1.30	1.30
物性	Tg (°C)	82	82	82	82	82	82
	Tm (°C)	255	255	255	255	255	255
IV	IV	0.84	0.84	0.85	0.85	0.85	0.85
	COOH (eq./t)	9.0	9.0	9.0	9.0	9.0	9.0

ポリエステル組成物

[表4]

		比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6
ジカルボン酸 構成成分	種類	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸
	量 (mol%)	100	100	100	100	100	100
ジオール構成 成分	種類	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール
	量 (mol%)	100	100	100	100	100	100
ポリエステル	種類	-	-	-	-	-	-
	カルボン酸基 を3つ以上有 する構成成分 と、水酸基を 3つ以上有す る構成成分	-	-	-	-	-	-
リン酸アルカリ金属塩		リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム
種類		Na	Na	Na	Na	Na	Na
アルカリ金属元素種類		1.70	1.70	1.30	1.70	3.50	1.30
アルカリ金属元素量 (mol/t)		1.90	1.90	0.52	1.90	1.50	0.52
リン酸		1.12	1.12	0.40	1.12	0.43	0.40
リン酸/リン酸アルカリ金属塩 リン量 (mol/t)		3.60	3.60	1.82	3.60	5.00	1.82
2価の金属元素		Mg	Co	Mn	Mn	Mn	Mn
種類		3.83	3.83	1.17	2.75	3.25	4.99
金属元素量 (mol/t)		-	-	1.17	2.75	3.25	4.99
Mn/Ca		-	-	0.00	0.00	0.00	0.00
Caの含有量 (mol/t)		Mg	Co	-	-	-	-
種類		3.83	3.83	-	-	-	-
Mn/Ca以外 含有量 (mol/t)		0.85	0.85	1.82	3.60	5.00	5.64
M		0.24	0.24	1.00	1.00	1.00	3.10
M/P		82	82	82	82	82	82
Tg (°C)		255	255	255	255	255	255
Tm (°C)		0.85	0.85	0.85	0.85	0.85	0.85
IV		14.0	14.0	14.0	14.0	14.0	14.0
COOH (eq./t)							
物性							
ポリエステル組成物							

[0146]

[表5]

		実施例13	実施例14	実施例15	実施例16	実施例17	実施例18
ジカルボン酸 構成成分	種類	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸
	量 (mol%)	99.95	99.9	99.7	100	100	100
ジオール構成 成分	種類	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール
	量 (mol%)	100	100	100	99.9	100	100
ポリエステル	種類	トリメチト酸	トリメチト酸	トリメチト酸	グリセリン	—	—
	カルボン酸基 を3つ以上有 する構成成分 と、水酸基を 3つ以上有す る構成成分	0.025	0.05	1.5	0.05	—	—
リン酸アルカリ金属塩	種類	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム
	アルカリ金属元素 量 (mol/t)	Na 1.70	Na 1.70	Na 1.70	Na 1.70	Na 1.70	Na 1.70
リン酸	リン酸量 (mol/t)	1.90	1.90	1.90	1.90	1.90	1.90
	リン酸/リン酸アルカリ金属塩 リン量 (mol/t)	1.12 3.60	1.12 3.60	1.12 3.60	1.12 3.60	1.12 3.60	1.12 3.60
2価の金属元素	種類	Mn	Mn	Mn	Mn	Ca	Ca
	金属元素量 (mol/t)	3.83	3.83	3.83	3.83	3.83	3.83
Mn/Ca	Mnの含有量 (mol/t)	3.83	3.83	3.83	3.83	0.00	0.00
	Caの含有量 (mol/t)	0.00	0.00	0.00	0.00	3.83	3.83
Mn/Ca以外	種類	—	—	—	—	—	—
	含有量 (mol/t)	—	—	—	—	—	—
M/P	M	4.68	4.68	4.68	4.68	4.68	4.68
	P	1.30	1.30	1.30	1.30	1.30	1.30
物性	Tg (°C)	82	82	82	82	82	82
	Tm (°C)	255	255	255	255	255	255
IV	COOH (eq./t)	0.84	0.83	0.82	0.84	0.85	0.85
		9.0	9.0	9.0	9.0	9.0	9.0

ポリエステル組成物

[表6]

		実施例25	実施例26	実施例27	実施例28	実施例29	実施例30
ジカルボン酸 構成成分	種類	テレフタル酸	2,6-ナフタ レンジカルボン	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸
	量 (mol%)	100	100	100	100	100	100
	ジオール構成 成分	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール
ポリエステル	種類	—	—	—	—	—	—
	カルボン酸基 を3つ以上有 する構成成分 と、水酸基を 3つ以上有す る構成成分	—	—	—	—	—	—
リン酸アルカリ金属塩	種類	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム
	アルカリ金属元素 量 (mol/t)	Na	Na	Na	Na	Na	Na
	リン酸 リン酸/リン酸アルカリ金属塩 リン量 (mol/t)	1.70 1.90 1.12 3.60	1.70 1.90 1.12 3.60	1.70 1.90 1.12 3.60	1.70 1.90 1.12 3.60	1.70 1.90 1.12 3.60	1.70 1.90 1.12 3.60
2価の金属元素	種類	Mn	Mn	Mn	Mn	Mn	Mn
	金属元素量 (mol/t)	3.83	3.83	3.83	3.83	3.83	3.83
	Mn/Ca	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Mn/Ca以外	種類	—	—	—	—	—	—
	含有量 (mol/t)	—	—	—	—	—	—
	M	4.68	4.68	4.68	4.68	4.68	4.68
M/P	M/P	1.30	1.30	1.30	1.30	1.30	1.15
	Tg (°C)	82	123	82	82	82	82
	Tm (°C)	255	265	255	255	255	255
物性	IV	0.85	0.90	0.85	0.85	0.85	0.85
	COOH (eq./t)	9.0	10.0	9.0	9.0	9.0	9.5

ポリエステル組成物

[0148]

[表7]

		実施例3 1	実施例3 2	実施例3 3	実施例3 4	実施例3 5	実施例3 6
ジカルボン酸 構成成分	種類	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸
	量 (mol%)	100	100	100	100	100	100
	ジオール構成成分	エチレングリコール	エチレングリコール	エチレングリコール	エチレングリコール	エチレングリコール	エチレングリコール
ポリエステル	種類	—	—	—	—	—	—
	カルボン酸基を3つ以上有する構成成分と、水酸基を3つ以上有する構成成分	—	—	—	—	—	—
リン酸アルカリ金属塩	種類	リン酸二水素ナトリウム	リン酸二水素ナトリウム	リン酸二水素ナトリウム	リン酸二水素ナトリウム	リン酸二水素ナトリウム	リン酸二水素ナトリウム
	アルカリ金属元素量 (mol/t)	Na	Na	Na	Na	Na	Na
	量 (mol/t)	1.30	3.50	3.50	1.30	1.30	3.50
リン酸	リン酸量 (mol/t)	0.52	1.50	1.50	0.52	0.52	1.50
	リン酸アルカリ金属塩	0.40	0.43	0.43	0.40	0.40	0.43
	リン量 (mol/t)	1.82	5.00	5.00	1.82	1.82	5.00
2価の金属元素	種類	Mn	Mn	Mn	Ca	Ca	Ca
	金属元素量 (mol/t)	1.90	4.00	5.25	1.44	1.90	4.00
	Mn/Ca	1.90	4.00	5.25	0.00	0.00	0.00
Mn/Ca以外	種類	—	—	—	—	—	—
	含有量 (mol/t)	—	—	—	—	—	—
	M	2.55	5.75	7.00	2.09	2.55	5.75
M/P	M/P	1.40	1.15	1.40	1.15	1.40	1.15
	Tg (°C)	82	82	82	82	82	82
	Tm (°C)	255	255	255	255	255	255
物性	IV	0.85	0.85	0.85	0.85	0.85	0.85
	COOH (eq./t)	9.5	9.5	9.5	9.5	9.5	9.5

ポリエステル組成物

[表8]

		実施例37	実施例38	実施例39	実施例40	実施例41	実施例42
ジカルボン酸 構成成分	種類	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸
	量 (mol%)	100	100	100	100	100	100
ジオール構成 成分	種類	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール
	量 (mol%)	100	100	100	100	100	100
ポリエステル	種類	—	—	—	—	—	—
	カルボン酸基 を3つ以上有 する構成成分 と、水酸基を 3つ以上有す る構成成分	—	—	—	—	—	—
リン酸アルカリ金属塩	種類	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 カリウム
	アルカリ金属元素 量 (mol/t)	3.50	1.30	1.30	3.50	Na	K
リン酸	リン酸量 (mol/t)	1.50	0.52	0.52	1.50	1.50	0.52
	リン酸アルカリ金属塩 リン量 (mol/t)	0.43	0.40	0.40	0.43	0.43	0.40
2価の金属元素	種類	Ca	Mn,Ca	Mn,Ca	Mn,Ca	Mn,Ca	Mn
	金属元素量 (mol/t)	5.25	1.44	1.90	4.00	5.25	1.44
Mn/Ca	Mnの含有量 (mol/t)	0.00	0.72	0.95	2.00	3.00	1.44
	Caの含有量 (mol/t)	5.25	0.72	0.95	2.00	2.25	0.00
Mn/Ca以外	種類	—	—	—	—	—	—
	含有量 (mol/t)	—	—	—	—	—	—
M/P	M	7.00	2.09	2.55	5.75	7.00	2.09
	P	1.40	1.15	1.40	1.15	1.40	1.15
物性	Tg (°C)	82	82	82	82	82	82
	Tm (°C)	255	255	255	255	255	255
IV	IV	0.85	0.85	0.85	0.85	0.85	0.85
	COOH (eq./t)	9.5	9.5	9.5	9.5	9.5	9.5

ポリエステル組成物

[0150]

[表9]

		実施例 4 3	実施例 4 4	実施例 4 5	実施例 4 6	実施例 4 7	実施例 4 8
ジカルボン酸 構成成分	種類	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸
	量 (mol%)	100	100	100	99.68	100	100
	成分	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール
ポリエステル	種類	—	—	—	トリメチル酸	—	—
	量 (mol%)	—	—	—	1.6	—	—
	成分	全構成成分に対する 含有量 (mol%)	全構成成分に対する 含有量 (mol%)	全構成成分に対する 含有量 (mol%)	全構成成分に対する 含有量 (mol%)	全構成成分に対する 含有量 (mol%)	全構成成分に対する 含有量 (mol%)
リン酸アルカリ金属塩	種類	リン酸二水素 カリウム	リン酸二水素 カリウム	リン酸二水素 カリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム
	アルカリ金属元素 量 (mol/t)	K 1.30	K 3.50	K 3.50	Na 1.70	Na 1.70	Na 1.70
	リン酸量 (mol/t)	0.52	1.50	1.50	1.90	0.12	0.12
リン酸	種類	リン酸二水素 カリウム	リン酸二水素 カリウム	リン酸二水素 カリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム
	アルカリ金属元素 量 (mol/t)	K 0.40	K 0.43	K 0.43	Na 1.12	Na 0.07	Na 0.07
	リン酸量 (mol/t)	1.82	5.00	5.00	3.60	1.82	1.82
2価の金属元素	種類	Mn	Mn	Mn	Mn	Mn	Mn
	金属元素量 (mol/t)	1.90	4.00	5.25	3.83	1.15	4.61
	Mn/Caの含有量 (mol/t)	1.90	4.00	5.25	3.83	1.15	4.61
Mn/Ca以外	種類	—	—	—	—	—	—
	含有量 (mol/t)	—	—	—	—	—	—
	M	2.55	5.75	7.00	4.68	2.00	5.46
M/P	種類	—	—	—	—	—	—
	含有量 (mol/t)	1.40	1.15	1.40	1.30	1.10	3.00
	Tg (°C)	82	82	82	82	82	82
物性	種類	—	—	—	—	—	—
	含有量 (mol/t)	2.55	2.55	2.55	2.55	2.55	2.55
	IV	0.85	0.85	0.85	0.81	0.85	0.85
COOH (eq./t)	種類	—	—	—	—	—	—
	含有量 (mol/t)	9.5	9.5	9.5	10.0	11.0	11.0
	COOH (eq./t)	9.5	9.5	9.5	10.0	11.0	11.0

ポリエステル組成物

[0151]

[表10]

		実施例 4 9	実施例 5 0	実施例 5 1	実施例 5 2	実施例 5 3	実施例 5 4
ジカルボン酸 構成成分	種類	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸
	量 (mol%)	100	100	100	100	100	100
ジオール構成 成分	種類	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール
	量 (mol%)	100	100	100	100	100	100
ポリエステル	種類	—	—	—	—	—	—
	カルボン酸基 を3つ以上有 する構成成分 と、水酸基を 3つ以上有す る構成成分	—	—	—	—	—	—
リン酸アルカリ金属塩	種類	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム
	アルカリ金属元素量 (mol/t)	1.70	1.70	1.70	1.70	1.70	1.70
リン酸	リン酸量 (mol/t)	3.30	3.30	1.90	1.90	1.90	1.90
	リン酸アルカリ金属塩 リン量 (mol/t)	1.94	1.94	1.12	1.12	1.12	1.12
2価の金属元素	種類	Mn	Mn	Mn	Mn	Mn	Mn
	金属元素量 (mol/t)	4.65	14.15	3.83	3.83	3.83	3.83
Mn / Ca	Mnの含有量 (mol/t)	4.65	14.15	3.83	3.83	3.83	3.83
	Caの含有量 (mol/t)	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Mn / Ca以外	種類	—	—	—	—	—	—
	含有量 (mol/t)	—	—	—	—	—	—
M / P	M	5.50	15.00	4.68	4.68	4.68	4.68
	P	1.10	3.00	1.30	1.30	1.30	1.30
物性	Tg (°C)	82	82	82	82	82	82
	Tm (°C)	255	255	255	255	255	255
IV	IV	0.85	0.85	0.85	0.85	0.85	0.85
	COOH (eq./t)	11.0	11.0	9.0	9.0	9.0	9.0

ポリエステル組成物

[表11]

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6
P'層またはP'層に対する ポリエスチル組成物割合 (%)	100	100	100	100	100	100
P層またはP'層に対する顔料種類	—	—	—	—	—	—
P層またはP'層に対する顔料割合 (%)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
a層全体に対する ポリエスチル組成物の割合 (重量%)	100	100	100	100	100	100
長手方向延伸温度 (°C)	90	90	90	90	90	90
長手方向延伸倍率 (倍)	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5
幅方向延伸温度 (°C)	100	100	100	100	100	100
幅方向延伸倍率 (倍)	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2
熱処理温度 (°C)	200	200	200	200	200	200
厚み (μm)	50	50	50	50	50	50
面配向係数 R	5	5	5	5	5	5
物性	B	B	B	B	A	A
機械特性の耐湿熱性	28	28	28	28	33	33
伸度半減期	$b1/c/a / c/b2$	$b1/c/a / c/b2$	$b1/c/a / c/b2$	$b1/c/a / c/b2$	$b1/c/a / c/b2$	$b1/c/a / c/b2$
構成	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS
b 1 層	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)
b 2 層	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)
積層比 ((B1+B2)/A)	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48
総厚み (μm)	84	84	84	84	84	84
加工性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	B	B	B	B	A	A
伸度半減期	33	33	33	33	38	38
耐熱性	A	A	A	A	A	A
伸度半減期	120	120	120	120	120	120
電気特性の耐湿熱性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	B	B	B	B	A	A
太陽電池 バックシート	B	B	B	B	A	A

[0153]

[表12]

	実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 10	実施例 11	実施例 12
P'層またはP'層に対する ポリエスチル組成物割合 (%)	100	100	100	100	100	100
P'層またはP'層に対する顔料種類	—	—	—	—	—	—
P'層またはP'層に対する顔料割合 (%)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
a層全体に対する ポリエスチル組成物の割合 (重量%)	100	100	100	100	100	100
長手方向延伸温度 (°C)	90	90	90	90	90	90
長手方向延伸倍率 (倍)	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5
幅方向延伸温度 (°C)	100	100	100	100	100	100
幅方向延伸倍率 (倍)	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2
熱処理温度 (°C)	200	200	200	200	200	200
厚み (μm)	50	50	50	50	50	50
面配向係数 R	5	5	5	5	5	5
物性	B	B	B	A	B	S
伸度半減期	28	28	26	33	28	35
構成	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$
b 1 層	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS
種類	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS
厚み (μm)	12	12	12	12	12	12
b 2 層	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS
種類	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS
厚み (μm)	12	12	12	12	12	12
積層比 ((B1+B2)/A)	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48
総厚み (μm)	84	84	84	84	84	84
加工性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	B	B	B	A	B	S
伸度半減期	33	33	31	38	33	40
耐熱性	A	A	A	A	A	A
伸度半減期	120	120	120	120	120	120
電気特性の耐湿熱性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	B	B	B	A	B	S
太陽電池 バックシート	B	B	B	A	B	S

[0154]

[表13]

	実施例 13	実施例 14	実施例 15	実施例 16	実施例 17	実施例 18
P'層またはP'層に対する ポリエスチル組成物割合 (%)	100	100	100	100	100	100
P層またはP'層に対する顔料種類	—	—	—	—	—	—
P層またはP'層に対する顔料割合 (%)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
a層全体に対する ポリエスチル組成物の割合 (重量%)	100	100	100	100	100	100
長手方向延伸温度 (°C)	90	90	90	90	90	90
長手方向延伸倍率 (倍)	3.8	3.8	3.8	3.8	3.5	3.8
幅方向延伸温度 (°C)	100	100	100	100	100	100
幅方向延伸倍率 (倍)	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2
熱処理温度 (°C)	200	200	200	200	200	200
厚み (μm)	50	50	50	50	50	50
面配向係数 R	8	8	8	8	5	8
物性	S	S	S	S	A	A
機械特性の耐湿熱性	35	35	35	35	33	33
伸度半減期	$b1/c/a / c/b2$	$b1/c/a / c/b2$	$b1/c/a / c/b2$	$b1/c/a / c/b2$	$b1/c/a / c/b2$	$b1/c/a / c/b2$
構成	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS
b 1 層	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)
b 2 層	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)	種類 厚み (μm)
積層比 ((B1+B2)/A)	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48
総厚み (μm)	84	84	84	84	84	84
加工性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	S	S	S	S	A	A
伸度半減期	40	40	40	40	38	38
耐熱性	A	A	A	A	A	A
伸度半減期	120	120	120	120	120	120
電気特性の耐湿熱性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	S	S	S	S	A	A
太陽電池 バックシート						

[0155]

[表14]

	実施例 19	実施例 20	実施例 21	実施例 22	実施例 23	実施例 24
P'層またはP'層に対する ポリエスチル組成物割合 (%)	100	100	100	100	100	100
P層またはP'層に対する顔料種類	—	—	—	—	—	—
P層またはP'層に対する顔料割合 (%)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
a層全体に対する ポリエスチル組成物の割合 (重量%)	100	100	100	100	100	100
長手方向延伸温度 (°C)	90	90	90	90	90	90
長手方向延伸倍率 (倍)	3.8	3.8	3.5	3.5	3.5	3.5
幅方向延伸温度 (°C)	100	100	100	100	100	100
幅方向延伸倍率 (倍)	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2
熱処理温度 (°C)	200	200	200	200	200	200
厚み (μm)	50	50	50	50	125	188
面配向係数 R	8	8	5	5	5	5
物性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	A	A	A	A	A	A
伸度半減期	34	34	33	33	33	33
構成	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$
b1層	種類 二軸配向PPS	種類 二軸配向PPS	種類 二軸配向PPS	種類 二軸配向PPS	種類 二軸配向PPS	種類 二軸配向PPS
厚み (μm)	12	12	12	12	16	25
b2層	種類 二軸配向PPS	種類 二軸配向PPS	種類 二軸配向PPS	種類 二軸配向PPS	種類 二軸配向PPS	種類 二軸配向PPS
厚み (μm)	12	12	12	12	16	25
積層比 ((B1+B2)/A)	0.48	0.48	0.48	0.48	0.26	0.27
総厚み (μm)	84	84	84	84	167	248
加工性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	A	A	A	A	A	A
伸度半減期	39	39	38	38	38	38
耐熱性	A	A	A	A	A	A
伸度半減期	120	120	120	120	125	130
電気特性の耐湿熱性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	A	A	A	A	A	A
太陽電池 バックシート						

[0156]

[表15]

	実施例 2 5	実施例 2 6	実施例 2 7	実施例 2 8	実施例 2 9	実施例 3 0
P'層またはP'層に対する ポリエスチル組成物割合 (%)	100	100	85	100	100	100
P'層またはP'層に対する顔料種類	—	—	—	—	—	—
P'層またはP'層に対する顔料割合 (%)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
a層全体に対する ポリエスチル組成物の割合 (重量%)	100	100	85	100	100	100
長手方向延伸温度 (°C)	90	135	110	90	90	90
長手方向延伸倍率 (倍)	3.5	3.5	3.8	3.5	3.5	3.5
幅方向延伸温度 (°C)	100	140	115	100	100	100
幅方向延伸倍率 (倍)	4.2	4.2	4.0	4.2	4.2	4.2
熱処理温度 (°C)	200	230	210	200	200	200
厚み (μm)	250	50	24	125	125	50
面配向係数 R	5	5	5	5	5	5
物性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	A	A	A	A	A	A
伸度半減期	33	33	33	33	33	31
構成	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/a/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$
b 1 層	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	アラミド繊維シート	アラミド繊維シート	二軸配向 PPS
種類	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	アラミド繊維シート	アラミド繊維シート	二軸配向 PPS
厚み (μm)	25	12	3	50	50	12
b 2 層	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	アラミド繊維シート	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS
種類	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	アラミド繊維シート	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS
厚み (μm)	25	12	3	50	25	12
積層比 ((B1+B2) / A)	0.20	0.48	0.25	0.80	0.60	0.48
総厚み (μm)	310	84	30	235	210	84
加工性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	A	A	A	A	A	A
伸度半減期	38	38	38	38	38	36
耐熱性	A	A	A	A	A	A
伸度半減期	130	120	110	120	120	120
電気特性の耐湿熱性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	A	A	—	—	—	A
太陽電池バックシート						

[0157]

[表16]

	実施例 3 1	実施例 3 2	実施例 3 3	実施例 3 4	実施例 3 5	実施例 3 6
P'層またはP'層に対する ポリエスチル組成物割合 (%)	100	100	100	100	100	100
P層またはP'層に対する顔料種類	—	—	—	—	—	—
P層またはP'層に対する顔料割合 (%)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
a層全体に対する ポリエスチル組成物の割合 (重量%)	100	100	100	100	100	100
長手方向延伸温度 (°C)	90	90	90	90	90	90
長手方向延伸倍率 (倍)	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5
幅方向延伸温度 (°C)	100	100	100	100	100	100
幅方向延伸倍率 (倍)	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2
熱処理温度 (°C)	200	200	200	200	200	200
厚み (μm)	50	50	50	50	50	50
面配向係数 R	5	5	5	5	5	5
物性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	31	31	31	31	31	31
伸度半減期	$b1/c/a / c/b2$	$b1/c/a / c/b2$	$b1/c/a / c/b2$	$b1/c/a / c/b2$	$b1/c/a / c/b2$	$b1/c/a / c/b2$
構成	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS
b 1 層	12	12	12	12	12	12
b 2 層	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS
種類	12	12	12	12	12	12
厚み (μm)	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48
積層比 ((B1+B2) / A)	84	84	84	84	84	84
総厚み (μm)	A	A	A	A	A	A
加工性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	A	A	A	A	A	A
伸度半減期	36	36	36	36	36	36
耐熱性	A	A	A	A	A	A
伸度半減期	120	120	120	120	120	120
電気特性の耐湿熱性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	A	A	A	A	A	A
太陽電池 バックシート	A	A	A	A	A	A

[0158]

[表17]

	実施例 3 7	実施例 3 8	実施例 3 9	実施例 4 0	実施例 4 1	実施例 4 2
P 層または P' 層	100	100	100	100	100	100
P 層または P' 層に対するポリエステル組成物割合 (%)	—	—	—	—	—	—
P 層または P' 層に対する顔料割合 (%)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
a 層全体に対するポリエステル組成物の割合 (重量%)	100	100	100	100	100	100
長手方向延伸温度 (°C)	90	90	90	90	90	90
長手方向延伸倍率 (倍)	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5
幅方向延伸温度 (°C)	100	100	100	100	100	100
幅方向延伸倍率 (倍)	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2
熱処理温度 (°C)	200	200	200	200	200	200
厚み (μm)	50	50	50	50	50	50
面配向係数 R	5	5	5	5	5	5
物性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	31	31	31	31	31	31
伸度半減期	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$
構成	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS
b 1 層	12	12	12	12	12	12
b 2 層	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS
積層比 (B1 + B2) / A	12	12	12	12	12	12
総厚み (μm)	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48
加工性	84	84	84	84	84	84
機械特性の耐湿熱性	A	A	A	A	A	A
伸度半減期	A	A	A	A	A	A
耐熱性	36	36	36	36	36	36
伸度半減期	A	A	A	A	A	A
電気特性の耐湿熱性	120	120	120	120	120	120
機械特性の耐湿熱性	A	A	A	A	A	A
太陽電池バックシート	A	A	A	A	A	A

[0159]

[表18]

	実施例 4 3	実施例 4 4	実施例 4 5	実施例 4 6	実施例 4 7	実施例 4 8
P層またはP'層	P層またはP'層に対するポリエスチレン組成物割合 (%)	100	100	100	100	100
	P層またはP'層に対する顔料種類	—	—	—	—	—
	P層またはP'層に対する顔料割合 (%)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
	a層全体に対するポリエスチレン組成物の割合 (重量%)	100	100	100	100	100
フィルム (a層)	長手方向延伸温度 (°C)	90	90	90	90	90
	長手方向延伸倍率 (倍)	3.5	3.5	3.5	3.8	3.5
	幅方向延伸温度 (°C)	100	100	100	100	100
	幅方向延伸倍率 (倍)	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2
	熱処理温度 (°C)	200	200	200	200	200
	厚み (μm)	50	50	50	50	50
	面配向係数R	5	5	5	8	5
	機械特性の耐湿熱性	A	A	A	A	B
	伸度半減期	31	31	31	32	26
	構成	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$
シート状態構造体	種類	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS
	厚み (μm)	12	12	12	12	12
	種類	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS
	厚み (μm)	12	12	12	12	12
	積層比 ((B1+B2)/A)	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48
	総厚み (μm)	84	84	84	84	84
	加工性	A	A	A	A	A
	機械特性の耐湿熱性	A	A	A	S	B
	伸度半減期	36	36	36	37	31
	耐熱性	A	A	A	A	A
太陽電池バックシート	伸度半減期	120	120	120	120	120
	電気特性の耐湿熱性	A	A	A	A	A
	機械特性の耐湿熱性	A	A	A	A	B
	伸度半減期	120	120	120	120	120

[0160]

[表19]

	実施例 4 9	実施例 5 0	実施例 5 1	実施例 5 2	実施例 5 3	実施例 5 4
P 層または P' 層	100	100	99	80	99.5	95
P 層または P' 層に対するポリエステル組成物割合 (%)	—	—	二酸化チタン	二酸化チタン	カーボンブラック	カーボンブラック
P 層または P' 層に対する顔料割合 (%)	0.0	0.0	1.0	20.0	0.5	5.0
a 層全体に対するポリエステル組成物の割合 (重量%)	100	100	99	80	99.5	95
長手方向延伸温度 (°C)	90	90	90	90	90	90
長手方向延伸倍率 (倍)	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5
幅方向延伸温度 (°C)	100	100	100	100	100	100
幅方向延伸倍率 (倍)	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2
熱処理温度 (°C)	200	200	200	200	200	200
厚み (μm)	50	50	50	50	50	50
面配向係数 R	5	5	5	5	5	5
物性	B	B	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	26	26	33	31	33	33
伸度半減期	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$
構成	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS
b 1 層	12	12	12	12	12	12
種類	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS
厚み (μm)	12	12	12	12	12	12
b 2 層	12	12	12	12	12	12
種類	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS
厚み (μm)	12	12	12	12	12	12
積層比 ((B1+B2)/A)	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48
総厚み (μm)	84	84	84	84	84	84
加工性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	B	B	A	A	A	A
伸度半減期	31	31	38	36	38	38
性能	A	A	A	A	A	A
耐熱性	120	120	120	120	120	120
伸度半減期	A	A	A	A	A	A
電気特性の耐湿熱性	B	B	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	B	B	A	A	A	A
太陽電池バックシート						

[0161]

[表20]

		比較例7	比較例8	比較例9	比較例10	比較例11	比較例12
ジカルボン酸 構成成分	種類	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸
	量 (mol%)	100	100	100	100	100	100
ジオール構成 成分	種類	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール
	量 (mol%)	100	100	100	100	100	100
ポリエステル	種類	-	-	-	-	-	-
	カルボン酸基 を3つ以上有 する構成成分 と、水酸基を 3つ以上有す る構成成分	-	-	-	-	-	-
ポリエステル組成物		リン酸アルカリ金属塩	リン酸アルカリ金属塩	リン酸アルカリ金属塩	リン酸アルカリ金属塩	リン酸アルカリ金属塩	リン酸アルカリ金属塩
		種類	アルカリ金属元素種類	アルカリ金属元素種類	アルカリ金属元素種類	アルカリ金属元素種類	アルカリ金属元素種類
		リン酸	リン酸	リン酸	リン酸	リン酸	リン酸
		リン酸/リン酸アルカリ金属塩 リン量 (mol/t)	リン酸/リン酸アルカリ金属塩 リン量 (mol/t)	リン酸/リン酸アルカリ金属塩 リン量 (mol/t)	リン酸/リン酸アルカリ金属塩 リン量 (mol/t)	リン酸/リン酸アルカリ金属塩 リン量 (mol/t)	リン酸/リン酸アルカリ金属塩 リン量 (mol/t)
		2価の金属元素	2価の金属元素	2価の金属元素	2価の金属元素	2価の金属元素	2価の金属元素
		Mn/Ca	Mn/Ca	Mn/Ca	Mn/Ca	Mn/Ca	Mn/Ca
		Mn/Ca以外	Mn/Ca以外	Mn/Ca以外	Mn/Ca以外	Mn/Ca以外	Mn/Ca以外
		M	M	M	M	M	M
		M/P	M/P	M/P	M/P	M/P	M/P
物性		Tg (°C)	82	82	82	82	82
		Tm (°C)	255	255	255	255	255
		IV	0.85	0.85	0.85	0.85	0.85
		COOH (eq./t)	14.0	14.0	14.0	14.0	14.0

[0162]

[表21]

		比較例13	比較例14	比較例15	比較例16	比較例17	比較例18
ジカルボン酸 構成成分	種類	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸	テレフタル酸
	量 (mol%)	100	100	100	100	100	100
ジオール構成 成分	種類	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール	エチレン グリコール
	量 (mol%)	100	100	100	100	100	100
ポリエステル	種類	-	-	-	-	-	-
	カルボン酸基 を3つ以上有 する構成成分 と、水酸基を 3つ以上有す る構成成分	-	-	-	-	-	-
リン酸アルカリ金属塩		リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム
種類		Na	Na	Na	Na	Na	Na
アルカリ金属元素種類		3.00	3.00	1.30	1.30	3.00	3.50
アルカリ金属元素量 (mol/t)		2.10	2.10	0.52	0.52	2.00	1.50
リン酸		0.70	0.70	0.40	0.40	0.67	0.43
リン酸/リン酸アルカリ金属塩 リン量 (mol/t)		5.10	5.10	1.82	1.82	5.00	5.00
2価の金属元素		Mn	Mn	Mg	Mg	Mg	Mg
金属元素量 (mol/t)		13.80	3.60	1.35	4.81	4.00	13.25
Mn/Ca		13.80	3.60	0.00	0.00	0.00	0.00
Caの含有量 (mol/t)		0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Mn/Ca以外		-	-	Mg	Mg	Mg	Mg
種類		-	-	1.35	4.81	4.00	13.25
含有量 (mol/t)		15.30	5.10	0.65	0.65	1.50	1.75
M		3.00	1.00	0.36	0.36	0.30	0.35
M/P		82	82	82	82	82	82
Tg (°C)		255	255	255	255	255	255
Tm (°C)		0.85	0.85	0.85	0.85	0.85	0.85
IV		14.0	14.0	14.0	14.0	14.0	14.0
COOH (eq./t)							
物性							
リン酸アルカリ金属塩		リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム
種類		Na	Na	Na	Na	Na	Na
アルカリ金属元素種類		3.00	3.00	1.30	1.30	3.00	3.50
アルカリ金属元素量 (mol/t)		2.10	2.10	0.52	0.52	2.00	1.50
リン酸		0.70	0.70	0.40	0.40	0.67	0.43
リン酸/リン酸アルカリ金属塩 リン量 (mol/t)		5.10	5.10	1.82	1.82	5.00	5.00
2価の金属元素		Mn	Mn	Mg	Mg	Mg	Mg
金属元素量 (mol/t)		13.80	3.60	1.35	4.81	4.00	13.25
Mn/Ca		13.80	3.60	0.00	0.00	0.00	0.00
Caの含有量 (mol/t)		0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Mn/Ca以外		-	-	Mg	Mg	Mg	Mg
種類		-	-	1.35	4.81	4.00	13.25
含有量 (mol/t)		15.30	5.10	0.65	0.65	1.50	1.75
M		3.00	1.00	0.36	0.36	0.30	0.35
M/P		82	82	82	82	82	82
Tg (°C)		255	255	255	255	255	255
Tm (°C)		0.85	0.85	0.85	0.85	0.85	0.85
IV		14.0	14.0	14.0	14.0	14.0	14.0
COOH (eq./t)							
物性							
リン酸アルカリ金属塩		リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム	リン酸二水素 ナトリウム
種類		Na	Na	Na	Na	Na	Na
アルカリ金属元素種類		3.00	3.00	1.30	1.30	3.00	3.50
アルカリ金属元素量 (mol/t)		2.10	2.10	0.52	0.52	2.00	1.50
リン酸		0.70	0.70	0.40	0.40	0.67	0.43
リン酸/リン酸アルカリ金属塩 リン量 (mol/t)		5.10	5.10	1.82	1.82	5.00	5.00
2価の金属元素		Mn	Mn	Mg	Mg	Mg	Mg
金属元素量 (mol/t)		13.80	3.60	1.35	4.81	4.00	13.25
Mn/Ca		13.80	3.60	0.00	0.00	0.00	0.00
Caの含有量 (mol/t)		0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Mn/Ca以外		-	-	Mg	Mg	Mg	Mg
種類		-	-	1.35	4.81	4.00	13.25
含有量 (mol/t)		15.30	5.10	0.65	0.65	1.50	1.75
M		3.00	1.00	0.36	0.36	0.30	0.35
M/P		82	82	82	82	82	82
Tg (°C)		255	255	255	255	255	255
Tm (°C)		0.85	0.85	0.85	0.85	0.85	0.85
IV		14.0	14.0	14.0	14.0	14.0	14.0
COOH (eq./t)							
物性							

[0163]

[表22]

	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6
P'層またはP'層に対するポリエステル組成物割合 (%)	100	100	100	100	100	100
P'層またはP'層に対する顔料種類	—	—	—	—	—	—
P'層またはP'層に対する顔料割合 (%)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
a層全体に対するポリエステル組成物の割合 (重量%)	100	100	100	100	100	100
長手方向延伸温度 (°C)	90	90	90	90	90	90
長手方向延伸倍率 (倍)	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5
幅方向延伸温度 (°C)	100	100	100	100	100	100
幅方向倍率 (倍)	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2
熱処理温度 (°C)	200	200	200	200	200	200
厚み (μm)	50	50	50	50	50	50
面配向係数 R	5	5	5	5	5	5
機械特性の耐温熱性	C	C	C	C	C	C
伸度半減期	20	20	20	20	20	20
構成	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$
b 1 層	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS
種類	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS
厚み (μm)	12	12	12	12	12	12
b 2 層	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS
種類	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS	二軸配向 PPS
厚み (μm)	12	12	12	12	12	12
積層比 ((B1+B2)/A)	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48
総厚み (μm)	84	84	84	84	84	84
加工性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐温熱性	D	D	D	D	D	D
伸度半減期	22	22	22	22	22	22
耐熱性	A	A	A	A	A	A
伸度半減期	110	110	110	110	110	110
電気特性の耐温熱性	B	B	B	B	B	B
機械特性の耐温熱性	C	C	C	C	C	C
本機電池バックシート						

[0164]

[表23]

	比較例7	比較例8	比較例9	比較例10	比較例11	比較例12
P層またはP'層	100	100	100	100	100	100
P層またはP'層に対するポリエステル組成物割合 (%)	—	—	—	—	—	—
P層またはP'層に対する顔料割合 (%)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
a層全体に対するポリエステル組成物の割合 (重量%)	100	100	100	100	100	100
長手方向延伸温度 (°C)	90	90	90	90	90	90
長手方向延伸倍率 (倍)	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5
幅方向延伸温度 (°C)	100	100	100	100	100	100
幅方向延伸倍率 (倍)	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2
熱処理温度 (°C)	200	200	200	200	200	200
厚み (μm)	50	50	50	50	50	50
面配向係数R	5	5	5	5	5	5
機械特性の耐湿熱性	C	C	C	C	C	C
伸度半減期	20	20	20	20	20	20
構成	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$
b1層	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS
厚み (μm)	12	12	12	12	12	12
b2層	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS
厚み (μm)	12	12	12	12	12	12
積層比 (B1+B2)/A)	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48
総厚み (μm)	84	84	84	84	84	84
加工性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	D	D	D	D	D	D
伸度半減期	22	22	22	22	22	22
耐熱性	A	A	A	A	A	A
伸度半減期	110	110	110	110	110	110
電気特性の耐湿熱性	B	B	B	B	B	B
機械特性の耐湿熱性	C	C	C	C	C	C
太陽電池バックシート						

[0165]

[表24]

	比較例13	比較例14	比較例15	比較例16	比較例17	比較例18
P層またはP'層 ポリエステル組成物割合 (%)	100	100	100	100	100	100
P層またはP'層に対する顔料種類	—	—	—	—	—	—
P層またはP'層に対する顔料割合 (%)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
a層全体に対する ポリエステル組成物の割合 (重量%)	100	100	100	100	100	100
長手方向延伸温度 (°C)	90	90	90	90	90	90
長手方向延伸倍率 (倍)	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5	3.5
幅方向延伸温度 (°C)	100	100	100	100	100	100
幅方向延伸倍率 (倍)	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2	4.2
熱処理温度 (°C)	200	200	200	200	200	200
厚み (μm)	50	50	50	50	50	50
面配向係数R	5	5	5	5	5	5
機械特性の耐湿熱性	C	C	C	C	C	C
伸度半減期	20	20	20	20	20	20
構成	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$	$b1/c/a/c/b2$
b1層	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS
厚み (μm)	12	12	12	12	12	12
b2層	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS	二軸配向PPS
厚み (μm)	12	12	12	12	12	12
横層比 ((B1+B2)/A)	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48	0.48
総厚み (μm)	84	84	84	84	84	84
加工性	A	A	A	A	A	A
機械特性の耐湿熱性	D	D	D	D	D	D
伸度半減期	22	22	22	22	22	22
耐熱性	A	A	A	A	A	A
伸度半減期	110	110	110	110	110	110
電気特性の耐湿熱性	B	B	B	B	B	B
機械特性の耐湿熱性	C	C	C	C	C	C
本陽電池バックシート						

産業上の利用可能性

[0166] 本発明のポリエステル組成物、フィルムは、高い耐湿熱性を有するもので

あり、その特長を生かして太陽電池バックシート、給湯器モーター用電気絶縁材料や、ハイブリッド車などに使用されるカーエアコン用モーターや駆動モーター用などの電気絶縁材料、コンデンサ用材料、自動車用材料、建築材料を初めとした耐湿熱性が重視されるような用途に好適に使用することができる。これらの中で、太陽電池用バックシート用フィルムやモーター用絶縁材料として好適に用いられ、特にモーター用絶縁材料として好適に用いられる。

また、本発明のシート状構造体は、長期に渡って高い耐湿熱性に優れ、その特性を生かして電気絶縁材料用途に好適に使用することができる。

請求の範囲

[請求項1] ポリエステルを主成分とするポリエステル組成物であって、リン酸とリン酸アルカリ金属塩を含有し、リン元素の含有量 P (mol/t) が該ポリエステル組成物全体に対して $1.8 \text{ mol}/\text{t}$ 以上 $5.0 \text{ mol}/\text{t}$ 以下であり、 Mn 、 Ca の少なくともいずれか 1 種類の金属元素を含有し、 Mn 、 Ca 以外の 2 価の金属元素の含有量がそれぞれ該ポリエステル組成物全体に対して 5 ppm 以下であり、前記ポリエステル組成物全体に対するアルカリ金属元素の含有量を $M1$ (mol/t) とし、前記ポリエステル組成物全体に対する Mn 元素含有量と Ca 元素含有量の合計を $M2$ (mol/t) とするとき、下記 (i) 式で求められる、前記ポリエステル組成物における金属含有量 M (mol/t) と、前記リン元素の含有量 P (mol/t) とが、下記 (ii) 式を満たすことを特徴とするポリエステル組成物。

$$(i) M = M1 / 2 + M2$$

$$(ii) 1.1 \leq M / P \leq 3.0$$

[請求項2] 前記ポリエステル組成物の主成分であるポリエステルが、カルボン酸基および／または水酸基を 3 つ以上有する構成成分を共重合成分として、該ポリエステルの全構成成分に対して $0.025 \text{ mol}\%$ 以上 $1.5 \text{ mol}\%$ 以下含有する、請求項 1 に記載のポリエステル組成物。

[請求項3] ポリエステルを主成分とするポリエステル組成物からなる層 (P 層) を有するフィルムであって、該ポリエステルが二軸配向されており、前記ポリエステル組成物がリン酸とリン酸アルカリ金属塩を含有し、前記ポリエステル組成物におけるリン元素の含有量 P (mol/t) が該ポリエステル組成物全体に対して $1.8 \text{ mol}/\text{t}$ 以上 $5.0 \text{ mol}/\text{t}$ 以下であり、前記ポリエステル組成物が Mn 、 Ca の少なくともいずれか 1 種類の金属元素を含有し、前記ポリエステル組成物における Mn 、 Ca 以外の 2 価の金属元素の含有量がそれぞれ該ポリ

エステル組成物全体に対して5 ppm以下であり、前記ポリエステル組成物全体に対するアルカリ金属元素の含有量を M_1 (mol/t)とし、前記ポリエステル組成物全体に対するMn元素含有量とCa元素含有量の合計を M_2 (mol/t)とするとき、下記(i)式で求められる、前記ポリエステル組成物における金属含有量 M (mol/t)と、前記リン元素の含有量 P (mol/t)とが、下記(ii)式を満たすことを特徴とするフィルム。

$$(i) M = M_1 / 2 + M_2$$

$$(ii) 1.1 \leq M / P \leq 3.0$$

[請求項4]

前記P層が、着色顔料を含んでなるP'層であり、該P'層において、前記着色顔料としての白色顔料の含有量が前記P'層全体に対して1 wt%以上20 wt%以下であるか、または前記着色顔料としての黒色顔料の含有量が前記P'層全体に対して0.5 wt%以上5 wt%以下である、請求項3に記載のフィルム。

[請求項5]

ポリエステルを主成分とするポリエステル組成物からなる層(P層)を有するフィルムをa層(芯層)とし、該a層の一方の片側にポリアリーレンスルフィドを主成分とするシートまたはアラミドを主成分とするシートのいずれかの層(b1層)を積層し、前記a層のもう一方の片側にポリアリーレンスルフィドを主成分とするシートまたはアラミドを主成分とするシートのいずれかの層(b2層)を積層するシート状構造体であって、前記a層の厚みを A (μm)、前記b1層の厚みを B_1 (μm)、前記b2層の厚みを B_2 (μm)とするとき、 A 、 B_1 、 B_2 が関係式 $0.1 \leq (B_1 + B_2) / A \leq 4.0$ を満たし、前記ポリエステルが二軸配向されており、該ポリエステル組成物がリン酸とリン酸アルカリ金属塩を含有し、前記ポリエステル組成物におけるリン元素の含有量 P が該ポリエステル組成物全体に対して 1.8 mol/t 以上 5.0 mol/t 以下であり、前記ポリエステル組成物がMn、Caの少なくともいずれか1種類の金属元素を含

有し、前記ポリエステル組成物におけるMn、Ca以外の2価の金属元素の含有量がそれぞれ該ポリエステル組成物全体に対して5ppm以下であり、前記ポリエステル組成物全体に対するアルカリ金属元素の含有量をM1(mol/t)とし、前記ポリエステル組成物全体に対するMn元素含有量とCa元素含有量の合計をM2(mol/t)とすると、下記(i)式で求められる、前記ポリエステル組成物における金属含有量M(mol/t)と、前記リン元素の含有量P(mol/t)とが、下記(ii)式を満たすことを特徴とするシート状構造体。

$$(i) M = M1 / 2 + M2$$

$$(ii) 1.1 \leq M / P \leq 3.0$$

[請求項6]

レーザーラマン分光法による 1615 cm^{-1} のラマンバンドスペクトルにおいて、フィルム平面方向に垂直な偏光配置での強度をI(ND)、フィルム平面の長手方向に平行な偏光配置での強度をI(MD)、フィルム平面の幅方向に平行な偏光配置での強度をI(TD)とすると、下記式で求められる前記a層の面配向係数Rが5.0以上10.0以下である、請求項5に記載のシート状構造体。

$$R = (R(MD) + R(TD)) / 2$$

$$R(MD) = I(MD) / I(ND)$$

$$R(TD) = I(TD) / I(ND)$$

[請求項7]

ポリエステルを主成分とするポリエステル組成物からなる層(P層)を有するフィルムをa層(芯層)とし、該a層の一方の片側にポリアリレンスルフィドを主成分とするシートまたはアラミドを主成分とするシートのいずれかの層(b1層)を積層し、前記a層のもう一方の片側にポリアリレンスルフィドを主成分とするシートまたはアラミドを主成分とするシートのいずれかの層(b2層)を積層するシート状構造体を用いてなる電気絶縁用シートであって、前記a層の厚みをA(μm)、前記b1層の厚みをB1(μm)、前記b2層の厚

みを B_2 (μm) とするとき、 A 、 B_1 、 B_2 が関係式 $0.1 \leq (B_1 + B_2) / A \leq 4.0$ を満たし、前記ポリエステルが二軸配向されており、該ポリエステル組成物がリン酸とリン酸アルカリ金属塩を含有し、前記ポリエステル組成物におけるリン元素の含有量 P が該ポリエステル組成物全体に対して $1.8 \text{ mol} / \text{t}$ 以上 $5.0 \text{ mol} / \text{t}$ 以下であり、前記ポリエステル組成物が Mn 、 Ca の少なくともいずれか 1 種類の金属元素を含有し、前記ポリエステル組成物における Mn 、 Ca 以外の 2 価の金属元素の含有量がそれぞれ該ポリエステル組成物全体に対して 5 ppm 以下であり、前記ポリエステル組成物全体に対するアルカリ金属元素の含有量を M_1 (mol / t) とし、前記ポリエステル組成物全体に対する Mn 元素含有量と Ca 元素含有量の合計を M_2 (mol / t) とするとき、下記 (i) 式で求められる、前記ポリエステル組成物における金属含有量 M (mol / t) と、前記リン元素の含有量 P (mol / t) とが、下記 (ii) 式を満たすことを特徴とする電気絶縁用シート。

$$(i) M = (M_1) / 2 + M_2$$

$$(ii) 1.1 \leq M / P \leq 3.0$$

[請求項8]

ポリエステルを主成分とするポリエステル組成物を用いてなる太陽電池バックシートであって、前記ポリエステル組成物がリン酸とリン酸アルカリ金属塩を含有し、前記ポリエステル組成物におけるリン元素の含有量 P (mol / t) が該ポリエステル組成物全体に対して $1.8 \text{ mol} / \text{t}$ 以上 $5.0 \text{ mol} / \text{t}$ 以下であり、前記ポリエステル組成物が Mn 、 Ca の少なくともいずれか 1 種類の金属元素を含有し、前記ポリエステル組成物における Mn 、 Ca 以外の 2 価の金属元素の含有量がそれぞれ該ポリエステル組成物全体に対して 5 ppm 以下であり、前記ポリエステル組成物全体に対するアルカリ金属元素の含有量を M_1 (mol / t) とし、前記ポリエステル組成物全体に対する Mn 元素含有量と Ca 元素含有量の合計を M_2 (mol / t) とす

るとき、下記 (i) 式で求められる、前記ポリエステル組成物における金属含有量 M (mol / t) と、前記リン元素の含有量 P (mol / t) とが、下記 (ii) 式を満たすことを特徴とする太陽電池バックシート。

$$(i) M = (M1) / 2 + M2$$

$$(ii) 1.1 \leq M / P \leq 3.0$$

[請求項9]

請求項1に記載のポリエステル組成物の製造方法であって、ジカルボン酸のジメチルエステルとジアルコールを用い、酢酸 Mn および / または酢酸 Ca を触媒としてエステル交換反応させるエステル交換工程と、該エステル交換工程で得られた組成物に、リン酸アルカリ金属塩を 0.5 mol / t 以上 3.0 mol / t 以下の量で添加し、リン酸をモル数でリン酸アルカリ金属塩の 0.4 倍以上 1.5 倍以下の割合で添加してから重合する重合工程を実施することを特徴とするポリエステル組成物の製造方法。

[請求項10]

請求項3に記載のフィルムの製造方法であって、ジカルボン酸のジメチルエステルとジアルコールを用い、酢酸 Mn および / または酢酸 Ca を触媒としてエステル交換反応させるエステル交換工程と、該エステル交換工程で得られた組成物に、リン酸アルカリ金属塩を 0.5 mol / t 以上 3.0 mol / t 以下の量で添加し、リン酸をモル数でリン酸アルカリ金属塩の 0.4 倍以上 1.5 倍以下の割合で添加してから重合する重合工程と、ポリエステル組成物のガラス転移温度を T_g (°C) とするとき、該重合工程により得られシート状に成形されたポリエステル組成物を T_g 以上 $T_g + 40$ °C 以下の温度で、面積倍率 1.4 倍以上に逐次二軸延伸する二軸延伸工程と、ポリエステル組成物の融点を T_m (°C)、熱処理温度を T_h (°C) とするとき、前記二軸延伸工程の後、下記 (iii) 式を満たす範囲で熱処理を行う熱処理工程を実施することを特徴とするフィルムの製造方法。

$$(iii) 45 \leq T_m - T_h \leq 90$$

[請求項11]

請求項5に記載のシート状構造体の製造方法であって、ジカルボン酸のジメチルエステルとジアルコールを用い、酢酸Mnおよび／または酢酸Caを触媒としてエステル交換反応させるエステル交換工程と、該エステル交換工程で得られた組成物に、リン酸アルカリ金属塩を0.5mol/t以上3.0mol/t以下の量で添加し、リン酸をモル数でリン酸アルカリ金属塩の0.4倍以上1.5倍以下の割合で添加してから重合する重合工程と、ポリエステル組成物のガラス転移温度をTg(°C)とするとき、該重合工程により得られシート状に成形されたポリエステル組成物をTg以上Tg+40°C以下の温度で、面積倍率1.4倍以上に逐次二軸延伸する二軸延伸工程と、ポリエステル組成物の融点をTm(°C)、熱処理温度をTh(°C)とするとき、前記二軸延伸工程後に下記(iii)式を満たす範囲で熱処理を行う熱処理工程と、前記フィルムをa層(芯層)とし、a層の一方の片側にポリアリーレンスルフィドを主成分とするシートまたはアラミドを主成分とするシートのいずれかの層(b1層)を積層し、a層のもう一方の片側にポリアリーレンスルフィドを主成分とするシートまたはアラミドを主成分とするシートのいずれかの層(b2層)を積層する積層工程を実施することを特徴とするシート状構造体の製造方法。

$$(iii) 45 \leq T_m - T_h \leq 90$$

[請求項12]

請求項7に記載の電気絶縁シートの製造方法であって、ジカルボン酸のジメチルエステルとジアルコールを用い、酢酸Mnおよび／または酢酸Caを触媒としてエステル交換反応させるエステル交換工程と、該エステル交換工程で得られた組成物に、リン酸アルカリ金属塩を0.5mol/t以上3.0mol/t以下の量で添加し、リン酸をモル数でリン酸アルカリ金属塩の0.4倍以上1.5倍以下の割合で添加してから重合する重合工程と、ポリエステル組成物のガラス転移温度をTg(°C)とするとき、該重合工程により得られシート状に成形されたポリエステル組成物をTg以上Tg+40°C以下の温度で、

面積倍率 1.4 倍以上に逐次二軸延伸する二軸延伸工程と、ポリエステル組成物の融点を T_m (°C)、熱処理温度を T_h (°C) とするとき、前記二軸延伸工程後に下記 (iii) 式を満たす範囲で熱処理を行う熱処理工程と、前記フィルムを a 層 (芯層) とし、a 層の一方の片側にポリアリレンスルフィドを主成分とするシートまたはアラミドを主成分とするシートのいずれかの層 (b 1 層) を積層し、a 層のもう一方の片側にポリアリレンスルフィドを主成分とするシートまたはアラミドを主成分とするシートのいずれかの層 (b 2 層) を積層する積層工程を実施することを特徴とするシート状構造体の製造方法。

$$(iii) \quad 45 \leq T_m - T_h \leq 90$$

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/055061

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L67/00(2006.01)i, C08G63/83(2006.01)i, C08J5/18(2006.01)i, C08K3/32(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C08K3/00-13/08, C08L1/00-101/14, C08G63/00-63/91

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2012

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2012 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2012

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X P, A	WO 2011/052290 A1 (Toray Industries, Inc.), 05 May 2011 (05.05.2011), paragraphs [0008], [0061]; example 3 (Family: none)	1-4, 8-10 3-7, 11-12
A	JP 2010-248492 A (Toray Industries, Inc.), 04 November 2010 (04.11.2010), entire text (Family: none)	1-12
A	JP 9-183202 A (Toray Industries, Inc.), 15 July 1997 (15.07.1997), claims 1 to 2; paragraph [0001] (Family: none)	1-12

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
19 March, 2012 (19.03.12)Date of mailing of the international search report
03 April, 2012 (03.04.12)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/055061

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2003-136658 A (Toray Industries, Inc.), 14 May 2003 (14.05.2003), claim 1; paragraph [0050] (Family: none)	1-12
A	JP 2010-241974 A (Teijin Fibers Ltd.), 28 October 2010 (28.10.2010), paragraphs [0043], [0045], [0046] (Family: none)	1-12
A	JP 59-62626 A (Toyobo Co., Ltd.), 10 April 1984 (10.04.1984), claims (Family: none)	1-12
A	JP 59-170118 A (Toyobo Co., Ltd.), 26 September 1984 (26.09.1984), claims (Family: none)	1-12
A	JP 59-168024 A (Toyobo Co., Ltd.), 21 September 1984 (21.09.1984), claims (Family: none)	1-12

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））
 Int.Cl. C08L67/00(2006.01)i, C08G63/83(2006.01)i, C08J5/18(2006.01)i, C08K3/32(2006.01)i

B. 調査を行った分野
 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））
 Int.Cl. C08K3/00-13/08, C08L1/00-101/14, C08G63/00-63/91

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの
 日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2012年
 日本国実用新案登録公報 1996-2012年
 日本国登録実用新案公報 1994-2012年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
P, X	WO 2011/052290 A1（東レ株式会社）2011.05.05, 段落【0008】，段落【0061】，実施例3（ファミリーなし）	1-4, 8-10
P, A		3-7, 11-12
A	JP 2010-248492 A（東レ株式会社）2010.11.04, 全文（ファミリーなし）	1-12
A	JP 9-183202 A（東レ株式会社）1997.07.15, 請求項1-2，段落【0001】（ファミリーなし）	1-12

C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

<p>* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</p>	<p>の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献</p>
--	---

国際調査を完了した日 19.03.2012	国際調査報告の発送日 03.04.2012
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/J P） 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 米村 耕一 電話番号 03-3581-1101 内線 3457

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2003-136658 A (東レ株式会社) 2003. 05. 14, 請求項 1, 段落【0050】 (ファミリーなし)	1-12
A	JP 2010-241974 A (帝人ファイバー株式会社) 2010. 10. 28, 段落【0043】, 段落【0045】, 段落【0046】 (ファミリーなし)	1-12
A	JP 59-62626 A (東洋紡績株式会社) 1984. 04. 10, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-12
A	JP 59-170118 A (東洋紡績株式会社) 1984. 09. 26, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-12
A	JP 59-168024 A (東洋紡績株式会社) 1984. 09. 21, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-12