

(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
2020年9月3日(03.09.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/175067 A1

(51) 国際特許分類:
B29C 55/12 (2006.01) *B29C 48/08* (2019.01)
C08J 5/18 (2006.01) *B29C 48/88* (2019.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2020/004372

(22) 国際出願日: 2020年2月5日(05.02.2020)

(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 2019-032400 2019年2月26日(26.02.2019) JP
特願 2019-138219 2019年7月26日(26.07.2019) JP
特願 2019-144668 2019年8月6日(06.08.2019) JP
特願 2020-011501 2020年1月28日(28.01.2020) JP

(71) 出願人: 東洋紡株式会社(**TOYOBO CO., LTD.**)
[JP/JP]; 〒5308230 大阪府大阪市北区堂島浜
二丁目2番8号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 玉利 昇(**TAMARI, Noboru**); 〒4848508
愛知県犬山市大字木津字前畑344番地

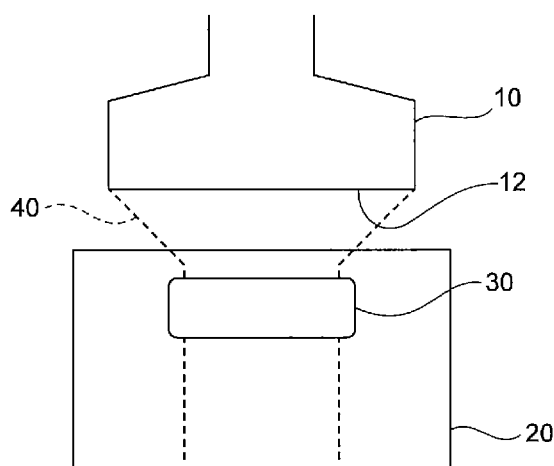
東洋紡株式会社内 Aichi (JP). 後藤 考道
(**GOTO, Takamichi**); 〒4848508 愛知県犬山市大字
木津字前畑344番地 東洋紡株式会社
内 Aichi (JP). 春田 雅幸(**HARUTA, Masayuki**);
〒4848508 愛知県犬山市大字木津字前畑344
番地 東洋紡株式会社内 Aichi (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人 ユニウス国際特許事
務所(**UNIUS PATENT ATTORNEYS OFFICE**);
〒5320011 大阪府大阪市淀川区西中島5丁目1
3-9 新大阪MTビル1号館2階 Osaka (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, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,
CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO,
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT,
HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH,
KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY,
MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ,
NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT,

(54) **Title:** BIAXIALLY ORIENTED POLYESTER FILM, AND PRODUCTION METHOD FOR BIAXIALLY ORIENTED POLYESTER FILM

(54) 発明の名称: 二軸配向ポリエステルフィルム、及び、二軸配向ポリエステルフィルムの製造方法



(57) **Abstract:** Provided is a biaxially oriented polyester film characterized by: comprising a polyester resin composition that contains a polybutylene terephthalate resin (A) at a proportion of 60-100 mass%; having at most 7 layers; and satisfying requirements (1)-(4). (1) The intrinsic viscosity of the biaxially oriented polyester film is 0.7 dl/g or higher. (2) The planar orientation ΔP of the biaxially oriented polyester film is 0.145-0.160. (3) The puncture strength of the biaxially oriented polyester film as measured by a puncture test conforming to JIS-Z1707 is 0.40 N/ μ m or greater. (4) The thickness variation in the biaxially oriented polyester film is 0.7% or less.



QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,
ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG,
US, UZ, VC, VN, WS, 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, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, 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, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(57) 要約: ポリブチレンテレフタレート樹脂 (A) を 60 ~ 100 質量% 含有するポリエステル樹脂組成物を含み、積層数が7層以下であり、下記要件 (1) ~ (4) を満たすことを特徴とする二軸配向ポリエステルフィルム。 (1) 二軸配向ポリエステルフィルムの固有粘度が 0.7 dl/g 以上。 (2) 二軸配向ポリエステルフィルムの面配向度 ΔP が 0.145 ~ 0.160。 (3) JIS-Z 1707 に準じた突き刺し試験で測定した二軸配向ポリエステルフィルムの突き刺し強さが 0.40 N/ μm 以上。 (4) 二軸配向ポリエステルフィルムの厚み斑が 0.7 % 以下。

明 細 書

発明の名称：

二軸配向ポリエステルフィルム、及び、二軸配向ポリエステルフィルムの製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、二軸配向ポリエステルフィルム、及び、二軸配向ポリエステルフィルムの製造方法に関する。

背景技術

[0002] ポリブチレンテレフタレート（以下、ポリブチレンテレフタレートを「P B T」と略す場合がある）樹脂は、ポリエチレンテレフタレート（以下、ポリエチレンテレフタレートをP E Tと略す）樹脂より成型性が優れることから、真空断熱材の外装材、絞り成形用フィルム、缶の内袋用フィルム、離型フィルムなどの分野において応用が検討されている。

[0003] 例えば、特許文献1では、P B T樹脂が60重量%以上であり、長手方向および幅方向の降伏応力が70MPa以上、破断強度が160MPa以上、破断伸度が100%以上とすることでナイロンフィルムやその他柔軟フィルム用途に好適に用いられることができると開示されている。

[0004] 特許文献2では、実質的に粒子を含有しないポリエステルフィルムの片面に酸変性オレフィン樹脂および架橋剤が含有されてなる離型層を設け、他方の最外層に易滑層を設けた離型フィルムが開示されている。また、離型層表面の算術平均粗さが10nm以下、最大高さが100nm以下であり、かつ易滑層が粒子を含有し、易滑層が粒子を含有し、易滑層表面の算術平均粗さが10nm未満とすることで好適に用いることができると開示されている。

[0005] 特許文献3では、表面粗さが0.005～0.050μmであり、30μm以上のフィッシュアイ個数が5個/1000cm²以下であり、フィルム両端の長手方向の熱収縮率差が0～0.3%であり、かつ異方性差が0～0.20とすることにより離型用フィルムとして好適に用いることができると開

示されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特許第5994864号公報

特許文献2：特開2016-221737号公報

特許文献3：特許第3031520号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] PBT樹脂は結晶化速度が速いため、キャスト時にも結晶化が進行する。特に、キャストして得られたフィルムの端部は、製造上の理由で中央部に比較して厚くなる傾向にある。そのため、キャストして得られるフィルムの端部において、結晶化はより顕著となる。

上記の特許文献1ではスタティックミキサーを用いて溶融樹脂をT-ダイスから押し出す前に超多層している。そのため、層間で結晶が成長せずに結果的にキャスト時の結晶化を抑制することができる。一方でメルトラインにスタティックミキサーを導入したことによってデッド部分（滞留部分）が増え、その部分にゲルが発生して、結果的に得られたフィルム中のフィッシュアイ（小さな粒子状欠陥）が増加して、高い品位が求められる工業用途としては不十分な品位となる可能性がある。

上記の特許文献2、3では、ポリエチレンテレフタレートを基材フィルムとして用いることで離型フィルムとして好適に用いられている。一方で、成型が伴う離型フィルム用途では、基材であるポリエチレンテレフタレートの特性に基づいて深い絞り成形には対応できない可能性がある。

[0008] 本発明は、上述した課題に鑑みてなされたものである。すなわち、本発明の目的は、工業用途にも対応できる良好なフィルム品位を有し、且つ、深絞り成型が伴う離型フィルムにも好適な二軸配向ポリエステルフィルムを提供することにある。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明者らは、二軸配向ポリエステルフィルムについて鋭意検討を行った。その結果、下記構成を採用することにより、良好な深絞り成型性を有し、且つ、品位に優れる二軸配向ポリエステルフィルムが得られること見出し、本発明を完成するに至った。

[0010] すなわち、本発明に係る二軸配向ポリエステルフィルムは、
ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）を60～100質量%含有するポリエステル樹脂組成物を含み、
積層数が7層以下であり、
下記要件（1）～（4）を満たすことを特徴とする。

（1）二軸配向ポリエステルフィルムの固有粘度が0.7 dl/g以上。

（2）二軸配向ポリエステルフィルムの面配向度 ΔP が0.145～0.160。

（3）JIS-Z1707に準じた突き刺し試験で測定した二軸配向ポリエステルフィルムの突刺し強さが0.40 N/ μ m以上。

（4）二軸配向ポリエステルフィルムの厚み斑が0.70%以下。

[0011] 前記構成によれば、ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）を60質量%以上含有するポリエステル樹脂組成物を含むため、突刺し強さを向上させることができる。また、ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）を60質量%以上含有するポリエステル樹脂組成物を含むため、絞り成型性を良好なものとすることができる。

また、積層数が7層以下であるため、メルトラインにスタティックミキサーを導入しなくても製造することが可能である。従って、スタティックミキサーを導入することによって生じるフィルム中のフィッシュアイ（小さな粒子状欠陥）の発生を防止することができる。その結果、高い品位を有するフィルムとすることができる。

また、前記フィルムの固有粘度が、0.70 dl/g以上であるため、キャスト時の結晶化が抑制され、未延伸シートの降伏応力が低くなるため、結

果的に延伸時に破断が生じ難くなる傾向となる。

また、前記面配向度 ΔP が0.145以上であるため、面配向が好適に高く、突刺し強さが充分となり、深絞り成型性により優れる。また、前記面配向度 ΔP が0.160以下であるため、熱収縮率を低く維持することができる、熱安定性をより良好なものとすることができる。

また、前記突刺し強さが0.40N/ μm 以上であるため、深絞り成型性を良好なものとすることができる。

また、前記厚み斑が0.70%以下であるため、深絞り成型を行った際に均一な成型ができ、フィルムの裂けやピンホールが発生しにくい。

[0012] 前記構成において、前記ポリエステル樹脂組成物は、ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）以外のポリエステル樹脂（B）を含有することが好ましい。

[0013] 前記ポリエステル樹脂組成物が、ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）以外のポリエステル樹脂（B）を含有すると、二軸延伸を行う時の製膜性や得られたフィルムの力学特性を調整することができる。

[0014] 前記構成においては、二軸配向ポリエステルフィルム上の最大直径が0.3mm以上のフィッシュアイが5個/ m^2 以下であることが好ましい。

[0015] 前記フィッシュアイが5個/ m^2 以下であると、当該二軸配向ポリエステルフィルム的一方の面に、離型層を有していても、巻き取り保管時に、離型層とは反対側の面上に、フィッシュアイによる離型層への凹凸転写を抑制することができる。その結果、フィルム品位を損ない難くすることができる。また、フィルムに精巧な印刷層をも設けることができる。

[0016] 前記構成においては、二軸配向ポリエステルフィルムの前記一方の面での三次元平均粗さ SRa と、前記他方の面での三次元平均粗さ SRa との差（絶対値）が0.01 μm 以下であることが好ましい。

[0017] 前記差が0.010 μm 以下であると、前記一方の面のラミネート強度と前記他方の面のラミネート強度との差が大きくなりすぎることを抑制する。すなわち、ラミネート強度が低い面に応力が集中することを抑制し、耐破袋

性をより充分なものとすることができる。

[0018] 前記構成においては、二軸配向ポリエステルフィルムの150℃で15分間加熱後の熱収縮率が、縦方向（MD方向）が0～5%、横方向（TD方向）が－1～5%であることが好ましい。

[0019] 前記二軸配向ポリエステルフィルムのMD方向における150℃で15分間加熱後の熱収縮率が5%以下であると、後加工で熱を加えた際にフィルムが大きく縮んでしまうことを抑制でき、加工がより容易となる。

前記二軸配向ポリエステルフィルムのMD方向における150℃で15分間加熱後の熱収縮率が0%以上であると、突刺し強さを高めることができ、耐破袋性を高く維持できる。

前記二軸配向ポリエステルフィルムのTD方向における150℃で15分間加熱後の熱収縮率が5%以下であると、後加工で熱を加えた際にフィルムが大きく縮んでしまうことを抑制でき、加工がより容易となる。

前記二軸配向ポリエステルフィルムのTD方向における150℃で15分間加熱後の熱収縮率が－1%以上であると、突刺し強さを高めることができ、耐破袋性を高く維持できる。

[0020] また、本発明は、前記二軸配向ポリエステルフィルムの製造方法であって、

二軸配向ポリエステルフィルム製造用の樹脂組成物を冷却ロールにキャストして未延伸シートを形成する工程Aと、

前記冷却ロール上の前記未延伸シートに5℃以下の風を吹き付ける工程Bとを有することを特徴とする。

[0021] 前記構成によれば、冷却ロール上の未延伸シートに5℃以下の風を吹き付け、未延伸シートのB面（冷却ロールに接した面とは反対の面）を急冷することによって、F面（冷却ロールに接した面）との結晶化度の差が小さくなる。また、未延伸シート全体の結晶化度が低く結晶化度の斑が少なくなる。その結果、2軸延伸が容易にでき、面配向度と突刺し強さが高く、厚み斑が少ないフィルムを得ることができる。

発明の効果

[0022] 本発明によれば、良好な深絞り成型性を有し、且つ、品位に優れる二軸配向ポリエステルフィルムを提供することができる。

図面の簡単な説明

[0023] [図1]冷却ロール上の未延伸シートのB面にマルチダクトからの冷却風を吹き付ける方法を説明するための正面模式図である。

[図2]図1の側面図である。

[図3]深絞り成型性の評価に用いた金型の横断面図である。

[図4]図3に示した金型の平面図である。

発明を実施するための形態

[0024] 以下、本発明の実施形態について説明する。

[0025] 本実施形態に係る二軸配向ポリエステルフィルムは、PBT樹脂(A)を60～100質量%含有するポリエステル樹脂組成物を含み、

積層数が7層以下であり、

下記要件(1)～(4)を満たすことを特徴とする二軸配向ポリエステルフィルム。

(1) 二軸配向ポリエステルフィルムの固有粘度が0.7dl/g以上。

(2) 二軸配向ポリエステルフィルムの面配向度 ΔP が0.145～0.160。

(3) JIS-Z1707に準じた突き刺し試験で測定した二軸配向ポリエステルフィルムの突刺し強さが0.40N/ μm 以上。

(4) 二軸配向ポリエステルフィルムの厚み斑が0.70%以下。

[0026] [二軸配向ポリエステルフィルムの組成]

本実施形態に係る二軸配向ポリエステルフィルムは、PBT樹脂(A)を60～100質量%含有するポリエステル樹脂組成物を含む。前記PBT樹脂(A)の含有率は、70質量%以上が好ましく、80質量%以上がより好ましく、90質量%以上がさらに好ましい。PBT樹脂(A)を60質量%以上含有するポリエステル樹脂組成物を含むため、突刺し強さを向上させる

ことができる。また、PBT樹脂（A）を60質量%以上含有するポリエステル樹脂組成物を含むため、絞り成型性を良好なものとすることができる。

主たる構成成分として用いるPBT樹脂（A）は、ジカルボン酸成分として、テレフタル酸が90モル%以上であることが好ましく、より好ましくは95モル%以上であり、さらに好ましくは98モル%以上であり最も好ましくは100モル%である。グリコール成分として1,4-ブタンジオールが90モル%以上であることが好ましく、より好ましくは95モル%以上である。

[0027] 前記PBT樹脂（A）の固有粘度の下限は好ましくは0.8dl/gであり、より好ましくは0.95dl/gであり、更に好ましくは1.0dl/gである。PBT樹脂（A）の固有粘度を0.8dl/g以上とすることで、製膜して得られるフィルムの固有粘度を高くすることができ、耐破袋性や製膜性を向上させることができる。

前記PBT樹脂（A）の固有粘度の上限は好ましくは1.3dl/gである。1.3dl/g以下とすることにより、フィルム延伸時の応力が高くなりすぎることを抑制し、製膜性を良好とすることができる。さらには、固有粘度の高いPBT樹脂を使用した場合、樹脂の熔融粘度が高くなるため押出し温度を高温にする必要があるが、固有粘度が1.3dl/g以下のPBT樹脂（A）を用いることにより、高温押出しなくてもよくなり、分解物の発生を抑制することができる。

[0028] 前記ポリエステル樹脂組成物は二軸延伸を行う時の製膜性や得られたフィルムの力学特性を調整する目的でPBT樹脂（A）以外のポリエステル樹脂（B）を含有することが好ましい。

前記ポリエステル樹脂（B）としては、PET、ポリエチレンナフタレート、ポリブチレンナフタレート、ポリプロピレンテレフタレートなどのポリエステル樹脂、又はイソフタル酸、オルソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、ビフェニルジカルボン酸、シクロヘキサンジカルボン酸、アジピン酸、アゼライン酸及びセバシン酸からなる群から選択される少なくとも1種のジ

カルボン酸が共重合されたPBT樹脂、エチレングリコール、1,3-プロピレングリコール、1,2-プロピレングリコール、ネオペンチルグリコール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサジオール、ジエチレングリコール、シクロヘキサジオール、ポリエチレングリコール、ポリテトラメチレングリコール及びポリカーボネートからなる群から選択される少なくとも1種のジオール成分が共重合されたPBT樹脂、イソフタル酸、オルソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、ビフェニルジカルボン酸、シクロヘキサレンジカルボン酸、アジピン酸、アゼライン酸及びセバシン酸からなる群から選択される少なくとも1種のジカルボン酸が共重合されたPBT樹脂、若しくは1,3-ブタンジオール、1,3-プロピレングリコール、1,2-プロピレングリコール、ネオペンチルグリコール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサジオール、ジエチレングリコール、シクロヘキサジオール、ポリエチレングリコール、ポリテトラメチレングリコール及びポリカーボネートからなる群から選択される少なくとも1種のジオール成分が共重合されたPET樹脂から選ばれる少なくとも1種の樹脂が挙げられる。

[0029] 中でもPETを主成分とする樹脂は融点が高く耐熱性に優れ、PBT樹脂との相溶性が良く透明性に優れるので、PET樹脂又は共重合されたPET樹脂が好ましく、特にPET樹脂が好ましい。

[0030] 前記ポリエステル樹脂(B)の添加量としては、前記ポリエステル樹脂組成物全体に対して30質量%以下が好ましく、より好ましくは20質量%以下であり、さらに好ましくは10質量%以下である。前記ポリエステル樹脂(B)の添加量が30質量%以下であると、突刺し強さをより高めることができ、耐破袋性により優れる。また、透明性を高く保つことができる。

前記ポリエステル樹脂(B)の添加量は、前記ポリエステル樹脂組成物全体に対して0質量%以上、5質量%以上、10質量%以上等とすることができる。

[0031] 前記ポリエステル樹脂(B)の固有粘度の下限は好ましくは0.5dl/gであり、より好ましくは0.6dl/gであり、更に好ましくは0.8dl/g

l / g である。前記ポリエステル樹脂 (B) の固有粘度の上限は好ましくは 1.3 dl / g である。前記ポリエステル樹脂 (B) の固有粘度を上記数値範囲内とすることにより、PBT樹脂 (A) とより良好に混合することが可能となる。

[0032] 前記二軸配向ポリエステルフィルムは、前記ポリエステル樹脂組成物とは別に、従来公知の添加剤、例えば、滑剤、安定剤、着色剤、酸化防止剤、静電防止剤、紫外線吸収剤等を含有していてもよい。

[0033] 前記二軸配向ポリエステルフィルム全体を 100 質量%としたとき、前記ポリエステル樹脂組成物の含有量は、99.5 質量%以上が好ましく、99.6 質量%以上がより好ましく、99.7 質量%以上がさらに好ましい。

前記ポリエステル樹脂組成物の含有量は、前記二軸配向ポリエステルフィルム全体を 100 質量%としたとき、100 質量%以下が好ましく、99.9 質量%以下がより好ましく、99.8 質量%以下がさらに好ましい。

[0034] 前記滑剤は、フィルムの動摩擦係数を調整することができるものであり、シリカ、炭酸カルシウム、アルミナなどの無機系滑剤、有機系滑剤が挙げられる。シリカ、炭酸カルシウムがより好ましく、中でもシリカがヘイズを低減する点で特に好ましい。これらにより透明性と滑り性と発現することができる。

[0035] 前記二軸配向ポリエステルフィルムにおける滑剤の含有量の下限は好ましくは 100 質量 ppm であり、より好ましくは 800 質量 ppm である。100 質量 ppm 以上とすることにより、滑り性を向上させることができる。

前記滑剤の含有量の上限は好ましくは 20000 質量 ppm であり、より好ましくは 1000 質量 ppm であり、特に好ましくは 1800 質量 ppm である。20000 質量 ppm 以下とすることにより、透明性を維持することができる。

[0036] [二軸配向ポリエステルの層構成]

前記二軸配向ポリエステルフィルムは、積層数が 7 層以下である。前記積層数は、積層数は 3 層以下がより好ましい。フィッシュアイを低減させる観

点からは、単層が最も好ましい。フィルムの表面の特性を改善したい場合は、組成の異なる複数種の層を積層させた2種2層、2種3層、あるいは3種3層の層構成が好ましい。改善する特性としては、滑り性、帯電防止性、紫外線カット性、易接着性などが挙げられる。これらの表面特性の改善は、複数層のうちの表層に、滑剤、帯電防止剤、紫外線吸収剤、共重合ポリマー、及びそれらの助剤を添加することで達成できる。

[0037] [二軸配向ポリエステルフィルムの特性]

(1) 二軸配向ポリエステルフィルムの固有粘度

前記二軸配向ポリエステルフィルムの固有粘度は、 0.7 dl/g 以上である。前記固有粘度は、より好ましくは 0.75 dl/g であり、さらに好ましくは 0.80 dl/g であり、特に好ましくは 0.90 dl/g である。 0.70 dl/g 以上であるため、キャスト時の結晶化が抑制され、未延伸シートの降伏応力が低くなるため、結果的に延伸時に破断が生じ難くなる傾向となる。

得られる未延伸シートの固有粘度の上限は好ましくは 1.2 dl/g であり、さらに好ましくは 1.1 dl/g である。 1.2 dl/g 以下であると、延伸時の応力が高くなりすぎず、製膜性がより良好となる。

なお、未延伸シートの固有粘度は、前記二軸配向ポリエステルフィルムの固有粘度とほぼ同じであり、下限は好ましくは 0.7 dl/g であり、より好ましくは 0.75 dl/g であり、さらに好ましくは 0.80 dl/g であり、特に好ましくは 0.90 dl/g である。

なお、前記二軸配向ポリエステルフィルムの固有粘度を好ましい範囲とするためには、可能な限り低温での押出温度とすることが好ましい。使用するポリエステル樹脂の固有粘度、押出機の形状等により温度は変化するが、低温での押出により前記二軸配向ポリエステルフィルムの固有粘度の低下を抑制することができ、結果的に延伸時に破断が生じ難くなる傾向となる。

[0038] (2) 二軸配向ポリエステルフィルムの面配向度 ΔP

前記二軸配向ポリエステルフィルムの面配向度 ΔP は $0.145 \sim 0.1$

60である。前記面配向度 ΔP は、好ましくは0.148以上であり、より好ましくは0.151以上である。前記面配向度 ΔP は、好ましくは0.158以下であり、より好ましくは0.156以下であり、さらに好ましくは0.154以下である。前記面配向度 ΔP が0.145以上であるため、面配向が好適に高く、突刺し強さが充分となり、深絞り成型性により優れる。また、前記面配向度 ΔP が0.160以下であるため、熱収縮率を低く維持することができ、熱安定性をより良好なものとすることができる。

[0039] (3) 突刺し強さ

JIS-Z1707に準じた突き刺し試験で測定した前記二軸配向ポリエステルフィルムの突刺し強さは0.40N/ μm 以上である。前記突刺し強さは、好ましくは0.5N/ μm であり、より好ましくは0.6N/ μm である。前記突刺し強さが0.40N/ μm 以上であるため、深絞り成型性を良好なものとすることができる。

前記突刺し強さの上限は0.9N/ μm が好ましい。より好ましくは0.8N/ μm であり、さらに好ましくは0.7N/ μm である。0.9N/ μm 以下であると、熱収縮率が抑制され、熱安定性により優れる。

[0040] (4) 二軸配向ポリエステルフィルムの厚み及び厚み斑

前記二軸配向ポリエステルフィルムの厚みの下限は5 μm が好ましい。より好ましくは7 μm であり、さらに好ましくは9 μm である。5 μm 以上であると、フィルムとしての強度を充分なものとすることができる。

前記二軸配向ポリエステルフィルムの厚みの上限は40 μm が好ましい。より好ましくは30 μm であり、さらに好ましくは20 μm である。

柔軟性や省資源の点からは、厚みは薄い方が好ましい。

[0041] 前記二軸配向ポリエステルフィルムの厚み斑は、0.7%以下である。前記厚み斑は、好ましくは0.6%以下であり、より好ましくは0.5%以下である。前記厚み斑が0.007%以下であるため、深絞り成型を行った際に均一な成型ができ、フィルムの裂けやピンホールが発生しにくい。前記厚み斑の求め方は、実施例に記載の方法による。

[0042] (5) フィッシュアイ

前記二軸配向ポリエステルフィルムは、二軸配向ポリエステルフィルム上の最大直径が0.3 mm以上のフィッシュアイが5個/m²以下であることが好ましい。前記フィッシュアイは、4個/m²以下であることがより好ましく、3個/m²以下であることがさらに好ましい。前記フィッシュアイが5個/m²以下であると、当該二軸配向ポリエステルフィルムの一方向の面に、離型層を有していても、巻き取り保管時に、離型層とは反対側の面上に、フィッシュアイによる離型層への凹凸転写を抑制することができる。その結果、フィルム品位を損ない難くすることができる。

[0043] (6) 三次元平均粗さS R aの差

前記二軸配向ポリエステルフィルム表面の前記一方の面での三次元平均粗さS R aと、前記他方の面での三次元平均粗さS R aとの差（絶対値）は、0.01 μm以下であることが好ましい。前記差は、より好ましくは0.008 μm以下であり、さらに好ましくは0.006 μm以下である。前記差が0.010 μm以下であると、前記一方の面のラミネート強度と前記他方の面のラミネート強度との差が大きくなりすぎることを抑制する。すなわち、ラミネート強度が低い面に応力が集中することを抑制し、耐破袋性を充分なものとすることができる。

[0044] 前記二軸配向ポリエステルフィルムの前記一方の面の三次元平均粗さS R a、及び、前記他方の面の三次元平均粗さS R aの下限は0.01 μmが好ましい。より好ましくは0.02 μmであり、さらに好ましくは0.03 μmである。前記三次元平均粗さS R aが0.01 μm以上であると、フィルムの滑り性をより充分なものとすることができる。

前記二軸配向ポリエステルフィルムの前記一方の面の三次元平均粗さS R a、及び、前記他方の面の三次元平均粗さS R aの上限は0.10 μmが好ましい。より好ましくは0.08 μmであり、さらに好ましくは0.06 μmである。前記三次元平均粗さS R aが0.10 μm以下であると、フィルム張り合わせ時の接触面積を十分に確保することができ、ラミネート強度を

より高め、耐破袋性をより充分なものとすることができる。

[0045] (7) 熱収縮率

前記二軸配向ポリエステルフィルムのMD方向における150℃で15分間加熱後の熱収縮率の上限は5%が好ましい。より好ましくは3.0%であり、さらに好ましくは2.5%である。5%以下であると、後加工で熱を加えた際にフィルムが大きく縮んでしまうことを抑制でき、加工がより容易となる。

前記二軸配向ポリエステルフィルムのMD方向における150℃で15分間加熱後の熱収縮率の下限は0%が好ましい。より好ましくは0.8%であり、さらに好ましくは1.2%である。0%以上であると、突刺し強さを高めることができ、耐破袋性を高く維持できる。

前記二軸配向ポリエステルフィルムのTD方向における150℃で15分間加熱後の熱収縮率の上限は5%が好ましい。より好ましくは3.0%であり、さらに好ましくは2.5%である。5%以下であると、後加工で熱を加えた際にフィルムが大きく縮んでしまうことを抑制でき、加工がより容易となる。

前記二軸配向ポリエステルフィルムのTD方向における150℃で15分間加熱後の熱収縮率の下限は-1%が好ましい。より好ましくは0.8%であり、さらに好ましくは1.2%である。-1%以上であると、突刺し強さを高めることができ、耐破袋性を高く維持できる。

[0046] 前記二軸配向ポリエステルフィルムの衝撃強度の下限は0.65 J/15 μ mが好ましい。より好ましくは0.70 J/15 μ mであり、さらに好ましくは0.75 J/15 μ mである。

0.65 J/15 μ m以上であると、深絞り成型性を良好なものとすることができる。

前記二軸配向ポリエステルフィルムの衝撃強度の上限は1.20 J/15 μ mが好ましい。より好ましくは1.10 J/15 μ mであり、さらに好ましくは1.00 J/15 μ mである。1.20 J/15 μ m以下であると、

熱収縮率が抑制され、熱安定性により優れる。

[0047] 前記二軸配向ポリエステルフィルムの耐ピンホール性は、ゲルボフレックススターによる屈曲テスト（5℃で1分間あたり40サイクルの速度で、連続して2000サイクル繰り返す）後に生じたピンホール数が15個以下が好ましい。より好ましくは10個以下であり、さらに好ましくは5個以下である。

[0048] 前記二軸配向ポリエステルフィルムは、下記要件（X）を満たすことが好ましい。

（X）フーリエ変換型赤外分光法スペクトル強度における全反射法を用いて得られる $1450 \pm 10 \text{ cm}^{-1}$ のピークの吸収強度Aと $1410 \pm 10 \text{ cm}^{-1}$ のピークの吸収強度Bとの比A/Bの値において、一方の面の比A/Bと他方の面の比A/Bとの差（絶対値）が0.1以下。

前記差は、より好ましくは0.08以下であり、さらに好ましくは0.06以下である。

上記の $1450 \pm 10 \text{ cm}^{-1}$ のピークの吸収強度AはPBTの α 型結晶のメチレン基に由来する吸収であり、 $1410 \pm 10 \text{ cm}^{-1}$ のピークの吸収強度Bはベンゼン環の炭素結合に由来する吸収である。また、吸収強度比A/Bの値は配向係数を示す。配向係数は、小さいほど結晶性が低く、高いほど結晶性が高いことを意味する。

前記二軸配向ポリエステルフィルムは、前記差が0.1以下であると、結晶性が同等であるため、一方の面と他方の面とのラミネート強度の差が小さくなる。その結果、ラミネート強度が低い面に応力が集中することを抑制することができ、耐破袋性を充分なものとすることができる。

なお、本明細書では、前記差や前記吸収強度比A/Bは、測定サンプルをセットする方向をMD方向として測定した値を用いている。これは、MD方向の測定値が結晶性をより明確に反映しているためである。より詳細な測定方法は、実施例に記載の方法による。

なお、測定対象の二軸配向ポリエステルフィルムが枚葉のフィルムの場合

、MD方向が不明な場合がある。この場合は、複数の方向に対して吸収強度比 A/B を求め、前記差が最も大きくなる方向をMD方向とする。

[0049] 前記二軸配向ポリエステルフィルムは、前記一方の面、前記他方の面のいずれもの面においても、前記吸収強度 A と前記吸収強度 B の比 A/B の値の下限は0.2が好ましい。より好ましくは0.3であり、さらに好ましくは0.4である。前記比 A/B が0.2以上であると配向がより高くなり、結晶性が高くなり、力学強度をより充分なものとすることができる。

前記比 A/B の値の上限は0.9が好ましい。より好ましくは0.8であり、さらに好ましくは0.7である。前記比 A/B が0.9以下であると、配向が高くなりすぎず、結晶性を適度なものとすることができる。その結果、接着剤との親和性を高めることができ、ラミネート強度をより充分なものとすることができる。また、耐破袋性も充分なものとすることができる。

[0050] 前記二軸配向ポリエステルフィルムの前記一方の面の厚み方向の屈折率 N_z の値、及び、前記他方の面の厚み方向の屈折率 N_z の値の下限は、1.480が好ましい。より好ましくは1.485であり、さらに好ましくは1.490である。1.480以上であると、熱収縮率が抑制され、熱安定性により優れる。

前記二軸配向ポリエステルフィルムの前記一方の面の厚み方向の屈折率 N_z の値、及び、前記他方の面の厚み方向の屈折率 N_z の値の上限は、1.510が好ましい。より好ましくは1.505であり、さらに好ましくは1.500である。1.510以下であると、突刺し強さをより高めることができ、結果的に耐破袋性をより十分なものとすることができる。

[0051] 前記二軸配向ポリエステルフィルムの前記一方の面、及び、前記他方の面のラミネート強度がともに4.0N/15mm以上であることが好ましい。より好ましくは5.0N/15mmであり、より好ましくは6.0N/15mmである。

4.0N/15mm以上であると、袋を作製し、床に対して平行に落とした時にラミネート部分から破袋することを抑制でき、耐破袋性により優れる

。

- [0052] 前記二軸配向ポリエステルフィルムには、印刷層を積層していてもよい。印刷層を形成する印刷インクとしては、水性及び溶媒系の樹脂含有印刷インクが好ましく使用できる。ここで印刷インクに使用される樹脂としては、アクリル系樹脂、ウレタン系樹脂、ポリエステル系樹脂、塩化ビニル系樹脂、酢酸ビニル共重合樹脂及びこれらの混合物が例示される。印刷インクには、帯電防止剤、光線遮断剤、紫外線吸収剤、可塑剤、滑剤、フィラー、着色剤、安定剤、潤滑剤、消泡剤、架橋剤、耐ブロッキング剤、酸化防止剤等の公知の添加剤を含有させてもよい。
- [0053] 印刷層を設けるための印刷方法としては、特に限定されず、オフセット印刷法、グラビア印刷法、スクリーン印刷法等の公知の印刷方法が使用できる。印刷後の溶媒の乾燥には、熱風乾燥、熱ロール乾燥、赤外線乾燥等公知の乾燥方法が使用できる。
- [0054] また、前記二軸配向ポリエステルフィルムには、本発明の目的を損なわない限りにおいて、コロナ放電処理、グロー放電処理、火炎処理、表面粗面化処理が施されてもよく、また、公知のアンカーコート処理、印刷、装飾などが施されてもよい。
- [0055] 前記二軸配向ポリエステルフィルムの少なくとも片面に無機薄膜層やアルミ箔のような金属箔などのガスバリア層を設けることができる。
- [0056] ガスバリア層として無機薄膜層を用いる場合の無機薄膜層としては、金属又は無機酸化物からなる薄膜である。無機薄膜層を形成する材料は、薄膜にできるものなら特に制限はないが、ガスバリア性の観点から、酸化ケイ素（シリカ）、酸化アルミニウム（アルミナ）、酸化ケイ素と酸化アルミニウムとの混合物等の無機酸化物が好ましく挙げられる。特に、薄膜層の柔軟性と緻密性を両立できる点からは、酸化ケイ素と酸化アルミニウムとの複合酸化物が好ましい。
- [0057] この複合酸化物において、酸化ケイ素と酸化アルミニウムとの混合比は、金属分の質量比でA1が20～70%の範囲であることが好ましい。A1濃

度を20%以上であると、水蒸気ガスバリア性をより高くすることができる。一方、70%以下であると、無機薄膜層を柔らかくすることができ、印刷やラミネートといった二次加工の際に膜が破壊されてガスバリア性が低下することを抑制することができる。なお、ここでいう酸化ケイ素とは SiO や SiO_2 等の各種珪素酸化物又はそれらの混合物であり、酸化アルミニウムとは、 AlO や Al_2O_3 等の各種アルミニウム酸化物又はそれらの混合物である。

[0058] 無機薄膜層の膜厚は、通常1～100nm、好ましくは5～50nmである。無機薄膜層の膜厚が1nm以上であると、より満足のいくガスバリア性が得られやすくなる。一方、100nm以下であると、耐屈曲性や製造コストの点で有利となる。

[0059] 無機薄膜層を形成する方法としては、特に制限はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等の物理蒸着法（PVD法）、あるいは化学蒸着法（CVD法）等、公知の蒸着法を適宜採用すればよい。以下、無機薄膜層を形成する典型的な方法を、酸化ケイ素・酸化アルミニウム系薄膜を例に説明する。例えば、真空蒸着法を採用する場合は、蒸着原料として SiO_2 と Al_2O_3 の混合物、あるいは SiO_2 と Al の混合物等が好ましく用いられる。これら蒸着原料としては通常粒子が用いられるが、その際、各粒子の大きさは蒸着時の圧力が変化しない程度の大きさであることが望ましく、好ましい粒子径は1nm～5nmである。加熱には、抵抗加熱、高周波誘導加熱、電子ビーム加熱、レーザー加熱などの方式を採用することができる。また、反応ガスとして酸素、窒素、水素、アルゴン、炭酸ガス、水蒸気等を導入したり、オゾン添加、イオンアシスト等の手段を用いた反応性蒸着を採用することも可能である。さらに、被蒸着体（蒸着に供する積層フィルム）にバイアスを印加したり、被蒸着体を加熱もしくは冷却するなど、成膜条件も任意に変更することができる。このような蒸着材料、反応ガス、被蒸着体のバイアス、加熱・冷却等は、スパッタリング法やCVD法を採用する場合にも同様に変更可能である。さらに、上記無機薄膜層上に印刷

層を積層していてもよい。

[0060] 本実施形態においては、前記ガスバリア層の上に保護層を設けることが好ましい。金属酸化物からなるガスバリア層は完全に密な膜ではなく、微小な欠損部分が点在している。金属酸化物層上に後述する特定の保護層用樹脂組成物を塗工して保護層を形成することにより、金属酸化物層の欠損部分に保護層用樹脂組成物中の樹脂が浸透し、結果としてガスバリア性が安定するという効果が得られる。加えて、保護層そのものにもガスバリア性を持つ材料を使用することで、積層フィルムのガスバリア性能も大きく向上することになる。

[0061] 前記保護層としては、ウレタン系、ポリエステル系、アクリル系、チタン系、イソシアネート系、イミン系、ポリブタジエン系等の樹脂に、エポキシ系、イソシアネート系、メラミン系等の硬化剤を添加したものが挙げられる。保護層を形成させる際に使用する溶媒（溶剤）としては、例えば、ベンゼン、トルエン等の芳香族系溶剤；メタノール、エタノール等のアルコール系溶剤；アセトン、メチルエチルケトン等のケトン系溶剤；酢酸エチル、酢酸ブチル等のエステル系溶剤；エチレングリコールモノメチルエーテル等の多価アルコール誘導体等が挙げられる。

[0062] 前記のウレタン樹脂は、ウレタン結合の極性基が無機薄膜層と相互作用するとともに、非晶部分の存在により柔軟性をも有するため、屈曲負荷がかかった際にも無機薄膜層へのダメージを抑えることができるため好ましい。

ウレタン樹脂の酸価は10～60 mg KOH/gの範囲内であるのが好ましい。より好ましくは15～55 mg KOH/gの範囲内、さらに好ましくは20～50 mg KOH/gの範囲内である。ウレタン樹脂の酸価が前記範囲であると、水分散液とした際に液安定性が向上し、また保護層は高極性の無機薄膜上に均一に堆積することができるため、コート外観が良好となる。

[0063] 前記のウレタン樹脂は、ガラス転移温度（ T_g ）が80℃以上であることが好ましく、より好ましくは90℃以上である。 T_g を80℃以上にすることで、湿熱処理過程（昇温～保温～降温）における分子運動による保護層の

膨潤を低減できる。

[0064] 前記のウレタン樹脂は、ガスバリア性向上の面から、芳香族又は芳香脂肪族ジイソシアネート成分を主な構成成分として含有するウレタン樹脂を用いることがより好ましい。

その中でも、メタキシリレンジイソシアネート成分を含有することが特に好ましい。上記樹脂を用いることで、芳香環同士のスタッキング効果によりウレタン結合の凝集力を一層高めることができ、結果として良好なガスバリア性が得られる。

[0065] 本実施形態においては、ウレタン樹脂中の芳香族又は芳香脂肪族ジイソシアネートの割合を、ポリイソシアネート成分（F）100モル%中、50モル%以上（50～100モル%）の範囲とすることが好ましい。芳香族又は芳香脂肪族ジイソシアネートの合計量の割合は、60～100モル%が好ましく、より好ましくは70～100モル%、さらに好ましくは80～100モル%である。このような樹脂として、三井化学社から市販されている「タケラック（登録商標）WPB」シリーズは好適に用いることができる。芳香族又は芳香脂肪族ジイソシアネートの合計量の割合が50モル%以上であると、より良好なガスバリア性が得られる。

[0066] 前記ウレタン樹脂は、無機薄膜層との親和性向上の観点から、カルボン酸基（カルボキシル基）を有することが好ましい。ウレタン樹脂にカルボン酸（塩）基を導入するためには、例えば、ポリオール成分として、ジメチロールプロピオン酸、ジメチロールブタン酸等のカルボン酸基を有するポリオール化合物を共重合成成分として導入すればよい。また、カルボン酸基含有ウレタン樹脂を合成後、塩形成剤により中和すれば、水分散体のウレタン樹脂を得ることができる。塩形成剤の具体例としては、アンモニア、トリメチルアミン、トリエチルアミン、トリイソプロピルアミン、トリーn-プロピルアミン、トリーn-ブチルアミン等のトリアルキルアミン類、N-メチルモルホリン、N-エチルモルホリン等のN-アルキルモルホリン類、N-ジメチルエタノールアミン、N-ジエチルエタノールアミン等のN-ジアルキルア

ルカノールアミン類等が挙げられる。これらは単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0067] 前記二軸配向ポリエステルフィルムには他素材の層を積層しても良く、その方法として、二軸配向ポリエステルフィルムを作製後に貼り合わせるか、製膜中に貼り合わせることができる。

[0068] 前記二軸配向ポリエステルフィルムは、例えば、前記二軸配向ポリエステルフィルムに無機蒸着層を設け、更にシーラントと呼ばれるヒートシール性樹脂層（シーラント層ともいう）を形成し、包装材料として使用することができる。ヒートシール性樹脂層の形成は、通常、押出しラミネート法あるいはドライラミネート法によりなされる。ヒートシール性樹脂層を形成する熱可塑性重合体としては、シーラント接着性が十分に発現できるものであればよく、HDPE、LDPE、LLDPEなどのポリエチレン樹脂類、ポリプロピレン樹脂、エチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン- α -オレフィンランダム共重合体、アイオノマー樹脂等を使用できる。

[0069] シーラント層は、単層フィルムであってもよく、多層フィルムであってもよく、必要とされる機能に応じて選択すればよい。例えば、防湿性を付与する点では、エチレン-環状オレフィン共重合体やポリメチルペンテン等の樹脂を介在させた多層フィルムが使用できる。

また、シーラント層は、難燃剤、スリップ剤、アンチブロッキング剤、酸化防止剤、光安定剤、粘着付与剤等の各種添加剤が配合されてもよい。

シーラント層の厚さは、10～100 μm が好ましく、20～60 μm がより好ましい。

[0070] 前記二軸配向ポリエステルフィルムは、包装用積層体の基材フィルム（基材層）として使用することができる。包装用積層体の層構成としては、／で層の境界を表わすと、例えば、基材層／ガスバリア層／保護層、基材層／ガスバリア層／保護層／接着剤層／シーラント層、基材層／ガスバリア層／保護層／接着剤層／樹脂層／接着剤層／シーラント層、基材層／接着剤層／樹脂層／ガスバリア層／保護層／接着剤層／シーラント層、基材層／ガスバリ

ア層／保護層／印刷層／接着剤層／シーラント層、基材層／印刷層／ガスバリア層／保護層／接着剤層／シーラント層、基材層／ガスバリア層／保護層／接着剤層／樹脂層／印刷層／接着剤層／シーラント層、基材層／接着剤層／樹脂層／印刷層／ガスバリア層／保護層／接着剤層／シーラント層、基材層／印刷層／ガスバリア層／保護層／接着剤層／樹脂層／接着剤層／シーラント層、基材層／印刷層／接着剤層／樹脂層／ガスバリア層／保護層／接着剤層／シーラント層、基材層／接着剤層／樹脂層／ガスバリア層／保護層／印刷層／接着剤層／シーラント層、等が挙げられる。

[0071] 前記二軸配向ポリエステルフィルムを用いた積層体は、包装製品、各種ラベル材料、蓋材、シート成型品、ラミネートチューブ等の用途に好適に使用することができる。特に、包装用袋（例えば、ピロー袋、スタンディングパウチや4方パウチ等のパウチ）に用いられる。積層体の厚さは、その用途に応じて、適宜決定することができる。例えば、5～500 μm 、好ましくは10～300 μm 程度の厚みのフィルムないしシート状の形態で用いられる。

[0072] [二軸配向ポリエステルフィルムの製造方法]

前記二軸配向ポリエステルフィルムを得るための好適な方法として、幅方向の厚み精度の観点からTダイ方式が好ましい。インフレーション方式ではその製造方法に起因して延伸倍率が上がりにくく、幅方向の厚み不良が生じることがある。

また前記二軸配向ポリエステルフィルムを得るための好適な方法として、溶融ポリエステル樹脂組成物を冷却ロールにキャストする時に、従来はスタティックミキサーなどで同一組成の樹脂を8層以上に多層化することによって結晶化を抑えて均一な未延伸シートを得る方法が提案されているが、高い品位を有するフィルムが得られる観点、及び、設備の簡便さや保守性の観点から以下に記載する均質な未延伸シートを得るキャスト方法で、溶融押出しする際に7層以下の積層にすることが好ましい。積層数は3層以下が更に好ましい。設備のメンテナンスの面では、単層が最も好ましい。フィルムの表

面の特性を改善したい場合は、2種2層、2種3層、あるいは3種3層の層構成が好ましい。

PBT樹脂は結晶化速度が速いため、得られる未延伸シートの固有粘度の下限は好ましくは 0.7 dl/g であり、より好ましくは 0.75 dl/g であり、さらに好ましくは 0.80 dl/g であり、特に好ましくは 0.90 dl/g である。 0.70 dl/g 以上であると、キャスト時の結晶化が抑制され、未延伸シートの降伏応力が低くなるため、結果的に延伸時に破断が生じ難くなる傾向となる。

得られる未延伸シートの固有粘度の上限は好ましくは 1.2 dl/g であり、さらに好ましくは 1.1 dl/g である。 1.2 dl/g 以下であると、延伸時の応力が高くなりすぎず、製膜性がより良好となる。

[0073] ダイス温度の下限は好ましくは 240°C であり、より好ましくは 245°C であり、特に好ましくは 250°C である。 240°C 以上であると、吐出がより安定し、厚みをより均一とすることができる。

また、 240°C 以上であると、樹脂の溶融押出し工程内で滞留したPET樹脂が未溶融物となってフィルム中に混入し、フィルムの品位を損ねてしまうことを防止することができる。樹脂溶融温度の上限は好ましくは 275°C であり、より好ましくは 270°C であり、最も好ましくは 265°C である。 275°C 以下であると、樹脂の分解を抑制することができ、フィルムが脆くなってしまうことを防止することができる。また、得られるフィルムの固有粘度を高く維持することができ、製膜性をより良好とすることができる。

ダイス温度の上限は好ましくは 300°C であり、より好ましくは 290°C 以下であり、さらに好ましくは 280°C 以下である。 300°C 以下であると、厚みが不均一となることを抑制することができる。また、樹脂の劣化が起こり、ダイリップ汚れなどで外観不良となることを抑制することができる。

[0074] 樹脂の溶融押出し工程におけるスクリュウの回転数の下限は好ましくは 70 rpm であり、より好ましくは 80 rpm であり、特に好ましくは 90 rpm である。 70 rpm 以上であると吐出がより安定し、厚みがより均一と

なる。また、樹脂の混ざりがより十分となり、外観不良をより抑制することができる。

樹脂の熔融押し出し工程におけるスクリュウの回転数の上限は好ましくは150rpmであり、より好ましくは130rpmであり、特に好ましくは110rpmである。150rpm以下であると、せん断発熱により熔融樹脂の分解が進行することを抑制することができ、得られるフィルムの固有粘度の低下を抑制でき、製膜性をより良好とすることができる。

[0075] 冷却ロール温度の上限は好ましくは40℃であり、より好ましくは10℃以下である。40℃以下であると、熔融したポリエステル樹脂組成物が冷却固化する際の結晶化度が高くなりすぎず、延伸がより容易となる。また、ラミネート強度を高くすることができ、耐破袋性をより良好とすることができる。

冷却ロール温度の下限は好ましくは0℃である。0℃以上であると、熔融したポリエステル樹脂組成物が冷却固化する際の結晶化抑制の効果を十分に発揮できる。また冷却ロールの温度を上記の範囲とする場合、結露防止のため冷却ロール付近の環境の湿度を下げておくことが好ましい。

[0076] 冷却ロール表面に熔融ポリエステル樹脂組成物をキャストした時、表面に高温の樹脂が接触するため冷却ロール表面の温度が上昇する。通常、チルロールは内部に配管を通して冷却水を流して冷却するが、十分な冷却水量を確保する、配管の配置を工夫する、配管にスラッジが付着しないようメンテナンスを行う、などして、チルロール表面の幅方向の温度差を少なくする必要がある。特に8層以上に多層化することによって均一な未延伸シートを得る方法を用いない場合には、未延伸シートの結晶化が進みやすいので注意が必要である。

このとき、未延伸シートの厚みは15～2500μmの範囲が好適である。より好ましくは500μm以下であり、さらに好ましくは300μm以下である。

[0077] 未延伸シートのF面（冷却ロールに接する面）とB面（冷却ロールに接し

た面とは反対側の面)の結晶化度の差を小さくする観点から、二軸配向ポリエステルフィルム製造用の樹脂組成物を冷却ロールにキャストした後(工程Aの後)、冷却ロール上の未延伸シートのB面も急冷することが好ましい。B面を急冷することによって、F面との結晶化度の差が小さくなる。また、未延伸シート全体の結晶化度が低く結晶化度の斑が少なくなる。その結果、2軸延伸が容易にでき、面配向度と突刺し強さが高く、厚み斑が少ないフィルムを得ることができる。急冷する方法は特に限定されないが、設備の簡便さや保守性の面から、マルチダクトによる冷却風を吹き付ける方法が好ましい。

冷却風の温度の上限は好ましくは20℃であり、より好ましくは5℃以下である。20℃以下であると、未延伸シートのB面の結晶化度が高くなりすぎず、ラミネート強度を高く維持でき、耐破袋性をより良好とすることができる。

冷却風の温度の下限は-5℃である。-5℃以上であると、未延伸シートのB面の結晶化抑制効果が十分に得られる。

[0078] 図1は、冷却ロール上の未延伸シートのB面にマルチダクトからの冷却風を吹き付ける方法を説明するための正面模式図であり、図2は、その側面図である。

図1、図2に示すように、ダイス10は、吐出口12が冷却ロール20の面に対向するように配置されている。吐出口12と冷却ロール20の面との距離(最短距離)は、特に限定されないが、一般的に、2cm~10cm程度である。

また、冷却ロール20の外周面上には、マルチダクト30が配設されている。

マルチダクト30の位置は、側面図(図2)において、冷却ロール20の中心に対して、ダイス10の位置を0°としたときに、冷却ロール20の回転方向(図2では右回転方向)に対して、0~45°の範囲に設置されていることが好ましく、10~35°の範囲内に設置されていることがより好ま

しい。マルチダクト30が前記範囲内に配置されていると、冷却ロール20上にキャストされる未延伸シート40のB面を、キャスト後すぐに冷却することが可能となる。

また、二軸配向ポリエステルフィルム製造用の樹脂組成物が冷却ロールにキャストされた時点（触れた時点）から、当該部分に前記風が吹き付けられるまでの時間は、2.0秒以内が好ましく1.0秒以内がより好ましく、0.5秒以内がさらに好ましい。二軸配向ポリエステルフィルム製造用の樹脂組成物が冷却ロールにキャストされた時点（触れた時点）から、当該部分に前記風が吹き付けられるまでの時間（当該部分がマルチダクト30の直下に移動するまでの時間）が、2.0秒以内であると、未延伸シート40のB面を、キャスト後すぐに冷却することが可能となる。

[0079] マルチダクト30の横幅（図1における左右方向の長さ）は、キャストされる未延伸シート40の幅以上となるものであることが好ましい。マルチダクト30の横幅を、キャストされる未延伸シート40の幅以上とすることにより、未延伸シート40のB面の端部まで十分に結晶化抑制効果が得られやすくなる。その結果、端部のラミネート強度と中央部のラミネート強度とを同等に高くすることが可能となる。

[0080] マルチダクト30の縦幅（図1における上下方向の長さ）は、30cm以上80cm以下であることが好ましく、50cm以上60cm以下であることがより好ましい。

また、冷却ロール20上において未延伸シート40が移動する速度は、20m/分～100m/分であることが好ましく、40m/分～80m/分であることがより好ましい。

マルチダクト30の縦幅を前記数値範囲内とし、未延伸シート40の速度を前記数値範囲内とすることにより、好適な量の冷却風を未延伸シート40のB面に吹き付けることができる。

[0081] マルチダクト30の冷却ロール20からの高さの上限は20cm以下であり、より好ましくは10cm以下である。20cm以下であると冷却効率が

向上し、未延伸シート40のB面の結晶化抑制効果が十分に得られ、ラミネート強度を大きくすることができる。

マルチダクト30の冷却ロール20からの高さの下限は特に制限されないが、未延伸シート40に接触しない範囲が望ましい。

[0082] マルチダクト30からの冷却風の風速の上限は好ましくは200m/minであり、より好ましくは180m/min以下である。200m/min以下であると、熔融したシート形成用樹脂組成物をキャストする際の接地点が冷却風によりぶれることを抑制することができる。

冷却風の風速の下限は50m/minが好ましい。50m/min以上であると、未延伸シート40のB面の結晶化抑制効果が十分に得られ、ラミネート強度を高くすることができる。

[0083] 上述した中でも、本実施形態に係る二軸配向ポリエステルフィルムの製造方法は、二軸配向ポリエステルフィルム製造用の樹脂組成物を冷却ロールにキャストして未延伸シートを形成する工程Aと、前記冷却ロール上の前記未延伸シートに5℃以下の風を吹き付ける工程Bとを有することが好ましい。

[0084] 次に延伸方法について説明する。延伸方法は、同時二軸延伸でも逐次二軸延伸でも可能であり、特に限定されない。

[0085] 長手方向（以下、MD方向ともいう）の延伸温度の下限は好ましくは55℃であり、より好ましくは60℃である。55℃以上であると、破断をより抑制することができる。また、縦方向の配向が強くなりすぎるのを防ぎ、MD方向の熱収縮率が大きくなることを抑制することができる。MD方向の延伸温度の上限は好ましくは100℃であり、より好ましくは95℃である。100℃以下であると、配向を十分に持たせることができ、力学特性をより高めることができる。

[0086] MD方向の延伸倍率の下限は好ましくは2.5倍であり、特に好ましくは2.7倍である。2.5倍以上であると、配向を十分に持たせることができ、力学特性をより高めることができる。また、2.5倍以上であると、厚みムラを抑制することができ、フィルムロールの弛みを防止することができる。

。

M D方向の延伸倍率の上限は好ましくは3.8倍であり、より好ましくは3.6倍であり、特に好ましくは3.4倍である。3.8倍以下であると、力学強度や厚みムラ改善の効果が十分に得られる。

[0087] 幅方向（以下、T D方向ともいう）の延伸温度の下限は好ましくは55℃であり、より好ましくは60℃である。55℃以上であると、破断を起こりにくくすることができる。また、横方向の配向が強くなりすぎるのを防ぎ、T D方向の熱収縮率が大きくなることを抑制することができる。

T D方向の延伸温度の上限は好ましくは100℃であり、より好ましくは95℃である。100℃以下であると、配向を十分に持たせることができ、力学特性をより高めることができる。

[0088] T D方向の延伸倍率の下限は好ましくは3.7倍であり、より好ましくは3.8倍であり、特に好ましくは3.9倍である。3.7倍以上であると幅方向の配向度を大きくすることができ、力学強度を高くすることができる。

T D方向の延伸倍率の上限は好ましくは5.0倍であり、より好ましくは4.6倍であり、特に好ましくは4.3倍である。5.0倍以下であると、フィルムの破断が少なく、かつ力学強度や厚みムラ改善の効果が充分得られる。

[0089] 熱固定温度の下限は好ましくは185℃であり、より好ましくは190℃である。185℃以上であると熱収縮率をより小さくすることができる。

熱固定温度の上限は好ましくは220℃である。220℃以下であると、フィルムが融けてしまうことや、著しく脆くなることを防止することができる。

熱固定温度は、B面とF面とで異なる温度としてもよい。B面とF面とで熱固定温度を異ならせることにより、結晶性を調整してラミネート強度をより高めることができる。その結果、耐破袋性をより高めることができる。熱固定温度を、B面とF面とで異ならせる場合、その温度差は、10℃以上30℃以下が好ましく、10℃以上20℃以下がより好ましい。

[0090] リラックス率の下限は好ましくは0.5%である。0.5%以上であるとTD方向の熱収縮率を低く保つことができる。

リラックス率の上限は好ましくは10%である。10%以下であるとたるみなどが生じることを防止でき、平面性を向上させることができる。

[0091] リラックス工程の温度の下限は好ましくは130℃であり、より好ましくは150℃である。130℃以上であるとリラックスを行った際にフィルムが十分に縮み、熱収縮率低減効果を十分に得ることが可能となる。

リラックス工程温度の上限は好ましくは190℃であり、より好ましくは170℃である。190℃以下であると、シワ等によりフィルムの平面性の悪化が生じることを抑制することができる。

[0092] 以上、本実施形態に係る二軸配向ポリエステルフィルムの製造方法を説明した。

実施例

[0093] 次に、実施例により本発明をさらに詳細に説明するが、本発明は以下の例に限定されるものではない。なお、フィルムの評価は次の測定法によって行った。

[0094] [フィルムの固有粘度]

実施例、比較例で作製したフィルムから、フィルム幅方向の中央位置を中心とする縦5mm×横5mmのサンプルをそれぞれ切り出した。

サンプルについて、固有粘度は（株）紫山科学機器製作所社製、自動粘度測定装置「SS-600-L1」を使用して測定した。溶媒液としては、p-クロロフェノール／1，1，2，2-テトラクロロエタン＝6／4（質量比）の混合液を使用した。

[0095] [フィルムの面配向度ΔP]

実施例、比較例で作製したフィルムから、フィルム幅方向の中央位置を中心とする縦5mm×横5mmのサンプルをそれぞれ切り出した。

サンプルについてJIS K 7142-1996 A法により、ナトリウムD線を光源として接触液としてジヨードメタンを用いてアッペ屈折率計

によりフィルム長手方向の屈折率（ N_x ）、幅方向の屈折率（ N_y ）、厚み方向の屈折率（ N_z ）を測定し、下式により ΔP を算出した。

$$\text{面配向度}(\Delta P) = [(N_x + N_y) / 2] - N_z$$

[0096] [フィルムの突刺し強さ]

実施例、比較例で作製したフィルムから、フィルム幅方向の中央位置を中心とする縦5 mm×横5 mmのサンプルをそれぞれ切り出した。

サンプルについて、JIS-Z1707に記載の試験法で測定した値を下式により1 μm 換算で算出した。

$$\text{突刺し強さ}(N / \mu\text{m}) = \text{突刺し強さ実測値} / \text{フィルムの厚み}$$

[0097] [フィルムの厚み及び厚み斑]

長手方向及び幅方向にフィルムを長さ1 m×幅40 mmの長尺な短冊状にサンプリングし、ミクロン測定器株式会社製の連続接触式厚み計を用いて、5 m／分の速度で測定した。

測定された厚みの標準偏差及び厚みの平均値から下式1で長手方向の厚み斑（％）と幅方向の厚み斑（％）とを算出し、さらに長手方向の厚み斑（％）及び幅方向の厚み斑（％）の平均値を厚み斑（％）とした。

$$\text{厚み斑} = \{ (\text{厚みの標準偏差}) / (\text{厚みの平均値}) \} \times 100 \quad (\%) \quad \cdot \cdot \cdot \text{式1}$$

[0098] [フィルムの150℃で15分間加熱後の熱収縮率]

ポリエステルフィルムの熱収縮率は、試験温度150℃、加熱時間15分間とした以外は、JIS-C-2318記載の寸法変化試験法で測定した。

[0099] [フィルムの衝撃強度]

東洋精機製作所株式会社製のフィルムインパクトテスターを使用し、温度23℃、相対湿度65％の環境下で10回測定し、その平均値で評価した。衝撃球面は、直径1／2インチのものをを用いた。単位はJ／15 μm を用いた。

[0100] [耐ピンホール性]

実施例、比較例にかかるフィルムを、20.3 cm（8インチ）×27.

9 cm (11 インチ) の大きさに切断し、その切断後の長方形テストフィルムを、温度 23℃ の相対湿度 50% の条件下に、24 時間以上放置してコンディショニングした。しかる後、その長方形テストフィルムを巻架して長さ 20.32 cm (8 インチ) の円筒状にした。そして、その円筒状フィルム的一端を、ゲルボフレックステスター（理学工業社製、NO. 901 型）（MILL-B-131C の規格に準拠）の円盤状固定ヘッドの外周に固定し、円筒状フィルム他端を、固定ヘッドと 17.8 cm (7 インチ) 隔てて対向したテスターの円盤状可動ヘッドの外周に固定した。そして、可動ヘッドを固定ヘッドの方向に、平行に対向した両ヘッドの軸に沿って 7.6 cm (3.5 インチ) 接近させる間に 440° 回転させ、続いて回転させることなく 6.4 cm (2.5 インチ) 直進させた後、それらの動作を逆向きに実行させて可動ヘッドを最初の位置に戻すという 1 サイクルの屈曲テストを、1 分間あたり 40 サイクルの速度で、連続して 2000 サイクル繰り返した。実施は 5℃ で行った。しかる後に、テストしたフィルムの固定ヘッドおよび可動ヘッドの外周に固定した部分を除く 17.8 cm (7 インチ) × 27.9 cm (11 インチ) 内の部分に生じたピンホール数を計測した（すなわち、497 cm² (77 平方インチ) 当たりのピンホール数を計測した）。

[0101] [フーリエ変換型赤外分光法（全反射法）]

Varian 社製の Varian 3100 FT-IR を用い、媒質結晶をダイヤモンドとしてフィルム表層に密着させ、MD 方向に平行に光を入射しつつ、全反射法によってスペクトル強度を測定した。分光器の分解能は 4 cm⁻¹、スペクトル積算回数は 64 回として測定した。スペクトル強度は各波数での吸光度とする。下式により算出した。

吸光度比 (A/B) = 吸光度 A (1450 ± 10 cm⁻¹ のピークのスペクトル強度) / 吸光度 B (1410 ± 10 cm⁻¹ のピークのスペクトル強度)

また、TD 方向に平行に光を入射しつつ、MD 方向での測定と同様の方法にてスペクトル強度の測定も行った。

[0102] [フィルムの三次元平均粗さ S R a]

株式会社小坂研究所製の接触式三次元表面粗計（型式E T - 4 0 0 0 A）を用いて、フィルムの表面の平均粗さ（S R a）を下記の条件で触針法により測定した。条件は下記の通りであり、3回の測定の平均値をもって値とした。

触針先端半径：0. 5 μ m

触針圧：5 0 μ N

カットオフ値：8 0 0 μ m

測定長：5 0 0 μ m

測定速度：0. 1 μ m / 秒

測定間隔：5 μ m

[0103] [フィルムの厚み方向の屈折率N z]

サンプルについてJ I S K 7 1 4 2 - 1 9 9 6 A法により、ナトリウムD線を光源として接触液としてジヨードメタンを用いてアッペ屈折率計で測定した。

[0104] [評価用ラミネートフィルム（積層体）の作製]

ポリエステルフィルムのB面側にウレタン系2液効果型接着剤（三井化学株式会社製「タケラック（登録商標）A 5 2 5 S」と「タケネート（登録商標）A 5 0」を1 3. 5 : 1（質量比）の割合で配合）を用いてドライラミネート法により、ヒートシール性樹脂層として厚さ7 0 μ mの無延伸ポリプロピレンフィルム（東洋紡株式会社製「P 1 1 4 7」）を貼り合わせ、4 0 °Cにて4日間エージングを施すことにより、ラミネートフィルム（積層体）を得た。なお、ウレタン系2液硬化型接着剤で形成される接着剤層の乾燥後の厚みはいずれも約4 μ mであった。

[0105] [評価用レトルト処理済み製袋品の作製]

前記のラミネートフィルムを1 5 c m四方の大きさにカットし、シーラントが内側になるように2枚を重ね合わせ、3方を1 6 0 °Cのシール温度、シール幅1. 0 c mにてヒートシールすることで内寸1 3 c mの3方シール袋を得た。

得られた3方シール袋に水250mLを充填した後、ヒートシールにて4方目の口を閉じ、水が充填された4方シール袋を作製した。

得られた水が充填された4方シール袋を、130℃の熱水中に30分間浸漬してレトルト処理済みの袋を得た。なお、本実施例ではポリエステルフィルムのB面側にシーラント（ヒートシール性樹脂層）を形成しており、ポリエステルフィルムのB面同士をシーラントを介して貼り合わせた場合、耐破袋性は、B面側のラミネート強度にのみ依存し、F面側のラミネート強度には依存しない。

ポリエステルフィルムにおいては、B面側のラミネート強度の方がF面側のラミネート強度よりも低いため、ポリエステルフィルムのB面同士をシーラントを介して貼り合わせた袋について耐破袋性が良好であれば、当然に、ポリエステルフィルムのF面同士をシーラントを介して貼り合わせた袋についても耐破袋性は良好となる。従って、以下では、ポリエステルフィルムのB面同士をシーラントを介して貼り合わせた袋についてのみ耐破袋性を評価した。

[0106] [耐破袋性の評価]

前記のレトルト処理済みの水が充填された袋を室温5℃、相対湿度35%の環境下、高さ100cmの位置からコンクリート板の上に袋の面を水平にして10回落下させ、水平方向での落下で破れが発生しなかった袋の割合を算出した。同様に袋の面を垂直にして10回落下させ、垂直方向での落下で破れが発生しなかった袋の割合を算出した。なお、試験に用いた袋の数は水平方向、垂直方向ともに20個ずつとした。

[0107] [ラミネート強度]

前記のラミネートフィルムから幅15mm、長さ200mmで試験片を切り出して、温度23℃、相対湿度65%の条件下で、テンシロン万能材料試験機（東洋ボールドウイン社製「テンシロンUMT-11-500型」）を用いてラミネート強度を測定した。ラミネート強度は、引張速度を200mm/分とし、ポリエステルフィルムとヒートシール性樹脂層との間を、剥離

角度 90 度で剥離させたときの強度を測定した。

[0108] [製膜性の評価]

各実施例、比較例のフィルムの作製時に、30 分以上破断無く、連続製膜が可能であった場合を○、30 分以内に少なくとも 1 回破断が生じた場合を×として評価した。

[0109] [フィッシュアイの評価]

実施例、比較例で作製したフィルムから、幅方向に 210 mm、長手方向に 300 mm のサンプルを切り出し、東海産業社製ルーペ (L-10X) (観測倍率 10 倍) を用いて、偏向下、フィッシュアイの個数をカウントした。同様の操作を 10 回繰り返して、10 回のカウント数の平均値を下式により、1 m²あたりのフィッシュアイの個数として算出した。

$$[\text{フィッシュアイ (個/m}^2\text{)}] = [\text{フィッシュアイの平均カウント数 (個)}] / [\text{測定範囲 (63 m}^2\text{)}]$$

[0110] [離型層への転写の評価]

基材の一方の面に乾燥後の塗布量が 0.05 g/m² になるように、下記の離型層形成用塗布液を塗工した。次いで、塗工後のフィルムを 130℃、5 m/秒の熱風で 10 秒間、170℃、20 m/秒の熱風で 10 秒間、さらに 130℃、20 m/秒の熱風で 10 秒間乾燥させた。以上により、基材の一方の面に離型層を積層した。その後、ロールとして巻き取った。

得られたロールの離型層側を幅方向に 210 mm、長手方向に 300 mm の範囲でプロモライトを用いて目視で転写痕の個数をカウントした。同様の操作を 10 回繰り返して、10 回のカウント数の平均値を下式により、1 m²あたりの転写痕の個数として算出し、個数によって判定をした。カウントの対象となる箇所は、ロールの長手方向中央よりも巻芯側とした。

$$[\text{転写痕 (個/m}^2\text{)}] = [\text{平均転写痕のカウント数 (個)}] / [\text{測定範囲 (63 m}^2\text{)}]$$

判定 3 個/m² 以下 : ○、4 個/m² 以上 : ×

[0111] [離型層形成用塗布液の作製]

以下に示す組成で各成分を混合し、離型層形成用塗布液を得た。

トルエン：56.05質量%

イソプロパノール：14.01質量%

酸変性ポリオレフィン樹脂溶解液：29.4質量%

ヘキサメチレンジイソシアネート系ブロックイソシアネート化合物：0.54質量%

(旭化成ケミカルズ社製デュラネート（登録商標）MF-K60B 固形分濃度60% NCO%=6.5%)

なお、酸変性ポリオレフィン樹脂溶液の作製方法を次に示す。80℃に加熱したトルエン98gに酸化ワックス（日本製蠟社製 NPS-9125 酸価32mg KOH/g）2gを投入し、30分間攪拌し、溶解させた。溶解した酸変性ポリオレフィン樹脂溶解液を25℃まで冷却したのち、300メッシュのステンレス製フィルター（線径0.035mm、平織）でろ過し、酸変性ポリオレフィン樹脂溶解液を得た。

[0112] [深絞り成型性の評価]

実施例、比較例で作製したフィルムから、縦（長手方向）15cm×横（幅方向）10cmのサンプルを切り出した。このサンプルを図3、図4に示す金型にセットし、上からプレスをして絞り成形を行った。図3は、深絞り成型性の評価に用いた金型の横断面図であり、図4は、図3に示した金型の平面図である。具体的には、縦89mm、横54mm、Rサイズ3mmの金型50上にフィルムF（実施例、比較例のフィルム）を配置し、フィルム抑え52でフィルムFを抑えた状態で、金型50に対応する形状のパンチ54でプレスした。絞り速度は6mm/sとした。

各絞り深さに対してN=10で実施し、N=10でフィルムの裂けやピンホールが発生しなかった時の最大の絞り深さをそのサンプルの深絞り成型値とした。

[0113] [実施例1]

一軸押出機を用い、PBT樹脂（1100-211XG（CHANG C

HUN PLASTICS CO., LTD.、固有粘度 1.28 dl/g （とテレフタル酸／／エチレングリコール＝ $100／／100$ （モル％）からなる固有粘度 0.62 dl/g のPET樹脂を表1の記載の通りの比率としたポリエステル樹脂組成物と、平均粒径 $2.4\text{ }\mu\text{m}$ のシリカ粒子とを配合した二軸配向ポリエステルフィルム製造用の樹脂組成物を 290°C で熔融させた後、 250°C のTーダイスからキャストし、 10°C の冷却ロールに静電密着法により密着させながら、図1に示すように未延伸シート全幅に冷風がかかるように冷却ロールから 15 cm の高さにマルチダクトを設置して、 5°C 、 150 m/min の冷風をB面に吹き付けて未延伸シートを得た。この際、マルチダクトの縦幅は、 50 cm であり、未延伸シートの移動速度は、 60 m/分 であった。また、前記樹脂組成物が冷却ロールにキャストされた時点から、当該部分に冷風が吹き付けられるまでの時間は、 0.6 秒であった。

なお、二軸配向ポリエステルフィルム製造用の樹脂組成物中のシリカ粒子の含有量は、シリカ濃度として 0.16 質量％である。

[0114] 次いで、得られた未延伸シートを 70°C の温度で長手方向（MD）に 3.3 倍で延伸し、次いで、テンターに通して 80°C で幅方向（TD）に 4.0 倍で延伸し、 200°C で3秒間の熱固定処理と1秒間9％の緩和処理を実施して、厚さ $15\text{ }\mu\text{m}$ の二軸配向ポリエステルフィルムを得た。ポリエステル樹脂組成物の樹脂組成、および、製膜条件を表1に示した。また、得られたフィルムの物性及び評価結果を表1、表2に示した。

[0115] [実施例2、3、5]

実施例1において、ポリエステル樹脂組成物の樹脂組成を表1に記載したとおり変えた以外は実施例1と同様に二軸配向フィルムを製膜して、厚さ $15\text{ }\mu\text{m}$ の二軸配向ポリエステルフィルムを得た。得られたフィルムの物性及び評価結果を表1、表2に示した。

[0116] [実施例4]

実施例1において、熱固定処理工程においてF面側とB面側の温風の温度

を変えて、ポリエステル樹脂組成物の樹脂組成および製膜条件を表 1 に記載した以外は実施例 1 と同様に二軸配向フィルムを製膜して、厚さ 15 μm の二軸配向ポリエステルフィルムを得た。得られたフィルムの物性及び評価結果を表 1、表 2 に示した。

[0117] [比較例 1 ～ 4]

実施例 1 において、熔融樹脂を冷却ロールに密着させる際に B 面側からマルチダクトで冷風を吹き付けず、ポリエステル樹脂組成物の樹脂組成および製膜条件を表 1 に記載した以外は実施例 1 と同様に二軸配向フィルムを製膜して、厚さ 15 μm の二軸配向ポリエステルフィルムを得た。得られたフィルムはフィルム F 面と B 面の結晶性の差が大きいため、ラミ強度が低く、水平落としの耐破袋性が不良であった。

[0118] [比較例 5]

実施例 1 において、ポリエステル樹脂組成物の樹脂組成を表 1 に記載したとおり変えた以外は実施例 1 と同様に二軸配向フィルムを製膜して、厚さ 15 μm の二軸配向ポリエステルフィルムを得た。得られたフィルムはフィルム F 面と B 面の結晶性の差が大きいため、ラミ強度が低く、水平落としの耐破袋性が不良であった。

[0119] [比較例 6]

実施例 1 において、熔融樹脂を冷却ロールに密着させる際に B 面側からマルチダクトで冷風を吹き付けず、ポリエステル樹脂組成物の樹脂組成および製膜条件を表 1 に記載した以外は実施例 1 と同様に二軸配向フィルムを製膜して、厚さ 15 μm の二軸配向ポリエステルフィルムを得た。得られたフィルムはフィルム F 面と B 面の結晶性の差が大きいため、ラミ強度が低く、水平落としの耐破袋性が不良であったばかりか、PBT 比率が少なく、突刺し強さが低いため、垂直落としの耐破袋性が不良であった。結果を表 1、表 2 に示した。

[0120] [比較例 7]

実施例 1 において、ポリエステル樹脂組成物の樹脂組成を表 1 に記載した

以外は実施例 1 と同様に二軸配向フィルムを製膜して、厚さ 15 μm の二軸配向ポリエステルフィルムを得た。得られたフィルムは PBT の比率が少ないため、突刺し強さが低く、垂直落としの耐破袋性が不良であった。結果を表 1、表 2 に示した。

[0121] [参考例 1]

一軸押出機を用い、PBT 樹脂を 80 質量%と PET 樹脂を 20 質量%混合したものに、不活性粒子として平均粒径 2.4 μm のシリカ粒子をシリカ濃度として混合樹脂に対して 900 ppm となるように配合したものを 290℃で溶融させた後、メルトラインを 10 エLEMENT のスタティックミキサーに導入した。これにより、ポリエステル樹脂溶融体の分割・積層を行い、同一の原料からなる多層溶融体を得た後、250℃の T-ダイスからキャストし、10℃の冷却ロールに静電密着法により密着させながら、未延伸シートを得たこと以外は、実施例 2 と同様に二軸配向フィルムを製膜して、厚さ 15 μm の二軸配向ポリエステルフィルムを得た。得られたフィルムの物性及び評価結果を表 1、表 2 に示した

[0122] [参考例 2]

二軸配向ポリエステルフィルム製造用の樹脂組成物を 290℃で溶融させた後、285℃の T-ダイスからキャストしたこと以外は、実施例 2 と同様に未延伸シートを得た後、二軸配向フィルムを製膜して、厚さ 15 μm の二軸配向ポリエステルフィルムを得た。得られたフィルムの物性及び評価結果を表 1、表 2 に示した。

[0123]

[表1]

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7	参考例1	参考例2
樹脂組成	60	80	100	80	90	60	75	80	100	100	50	50	80	80
PBT(質量部)														
PET(質量部)	40	20	0	20	10	40	25	20	0	0	50	50	20	20
積層数(層)	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1024	1
押出条件	250	250	250	250	250	250	250	250	250	250	250	250	250	285
押出温度(℃)														
冷却ロール温度(℃)	10	10	10	10	10	10	10	10	10	20	10	10	10	10
反冷却ロール温度	5	5	5	5	5	—	—	—	—	20	—	5	—	5
延伸条件	3.3	3.3	3.3	3.3	3.3	3.3	3.6	3.3	3.3	3.5	3.3	3.3	3.3	3.3
MD延伸倍率(-)														
TD延伸倍率(-)	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	3.8	4.0	4.0	3.5	4.0	4.0	4.0	4.0
F面温度(℃)	200	200	200	210	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200
F面温度(℃)														
B面温度(℃)	200	200	200	190	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200
B面温度(℃)														
製膜性	○	○	○	○	○	○	○	○	○	×	○	○	○	×
フィルムの固有粘度 (dl/g)	0.78	0.80	0.88	0.81	0.85	0.77	0.79	0.81	0.87	0.88	0.72	0.71	0.79	0.63
厚み斑 (%)	0.29	0.36	0.64	0.40	0.55	0.82	0.96	0.97	1.28	0.73	0.58	0.23	0.35	—
面配向度ΔP (-)	0.145	0.147	0.157	0.145	0.150	0.146	0.146	0.148	0.159	0.158	0.143	0.142	0.148	—
F面 Nz(-)	1.481	1.500	1.513	1.519	1.498	1.466	1.472	1.477	1.482	1.477	1.462	1.481	1.513	—
B面 Nz(-)	1.482	1.499	1.510	1.491	1.500	1.469	1.474	1.479	1.478	1.475	1.461	1.481	1.511	—
突刺し強さ(N/μm)	0.41	0.63	0.76	0.66	0.72	0.45	0.61	0.67	0.79	0.65	0.33	0.32	0.63	—
衝撃強度(J/15μm)	0.69	0.87	0.92	0.83	0.89	0.68	0.75	0.86	0.91	0.91	0.64	0.64	0.84	—
耐ピンホール性(個)	9	5	4	6	5	9	8	6	4	4	12	11	4	—

[0124] [表2]

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7	参考例1	参考例2
ATR測定	MD													
	F面(-)	0.512	0.476	0.565	0.566	0.522	0.446	0.498	0.577	0.534	0.445	0.499	0.475	—
	B面(-)	0.553	0.561	0.603	0.578	0.573	0.578	0.612	0.698	0.643	0.567	0.553	0.564	—
	B面-F面 (-)	0.041	0.085	0.038	0.012	0.051	0.132	0.114	0.121	0.109	0.122	0.054	0.089	—
TD	F面(-)	0.400	0.335	0.415	0.432	0.414	0.366	0.411	0.345	0.398	0.332	0.356	0.333	—
	B面(-)	0.411	0.345	0.470	0.441	0.454	0.478	0.579	0.544	0.499	0.467	0.477	0.346	—
	B面-F面 (-)	0.011	0.011	0.055	0.009	0.040	0.112	0.168	0.199	0.101	0.135	0.121	0.013	—
	F面(μm)	0.078	0.036	0.044	0.037	0.041	0.055	0.041	0.033	0.043	0.032	0.032	0.032	—
表面粗さ (Sra)	B面(μm)	0.074	0.040	0.050	0.044	0.039	0.074	0.056	0.069	0.030	0.044	0.028	0.041	—
	F面-B面 (μm)	0.004	0.004	0.006	0.007	0.002	0.019	0.015	0.014	0.013	0.012	0.004	0.009	—
	加熱後の熱収縮率	1.6	2.5	2.9	1.5	2.6	1.7	2.3	3.0	3.0	1.3	1.3	2.3	—
	150℃で15分間	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.3	0.3	0.4	—
タネート強度	TD方向(%)	12.3	5.5	4.4	8.1	5.1	12.0	6.1	5.8	4.0	11.5	12.1	4.9	—
	F面(N/15mm)	11.4	5.1	4.0	6.1	4.9	3.9	3.2	3.4	3.3	3.8	11.9	4.3	—
	B面(N/15mm)	100	100	100	100	100	60	50	60	60	60	90	100	—
	耐破袋性 水平落とし(残存率%)	70	90	100	80	90	70	80	100	90	40	40	90	—
耐破袋性 垂直落とし(残存率%)	耐破袋性 垂直落とし(残存率%)	0.0	1.1	2.3	2.3	2.1	0.3	1.1	2.6	2.4	0.0	0.1	15.0	—
	フィッシュアイ(個/m ²)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	x	—
	離型層への転写	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	x	—
	深絞り成型値(mm)	6.4	7.2	7.6	7.0	7.3	5.2	5.5	6.2	5.1	5.5	5.6	7.2	—

[0125] 表1、表2に示すように、本発明によって得られた二軸延伸ポリエステルフィルム（実施例1～5）は、厚み斑が少なく、良好な深絞り成型性を有し、且つ、品位に優れる二軸配向ポリエステルフィルムが得られた。

一方、比較例1～4においては、熔融樹脂を冷却ロールに密着させる際にB面側からマルチダクトで冷風を吹き付けなかったため、得られたフィルムは、厚み斑が大きく、深絞り成型性が劣っていた。また、フィルムF面とB面の結晶性の差が大きいため、ラミ強度が低く、水平落としの耐破袋性が不良であった。

また、比較例6及び7は、PBTの比率が低いため突き刺し強度が悪かった。

参考例1では、メルトラインにスタティックミキサーを導入して1024層からなる同一樹脂組成の多層フィルムを得た。得られたフィルムのフィッシュアイの個数は、実施例に比べて多く、高品位が要求される用途には適さなかった。

参考例2では、樹脂を熔融し押し出す温度が高すぎたためフィルムの固有粘度が低くなり、幅方向の延伸工程でフィルムが破断してフィルムの評価をするためのサンプルが得られなかった。

産業上の利用可能性

[0126] 本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、工業用途にも対応できる良好なフィルム品位を有し、且つ、PBTを主成分にしているので深絞り成型が伴う離型フィルムとして好適である。

符号の説明

- [0127] 10 ダイス
12 吐出口
20 冷却ロール
30 マルチダクト
40 未延伸シート

5 0 深絞り成型用の金型

5 2 フィルム抑え

5 4 パンチ

F フィルム

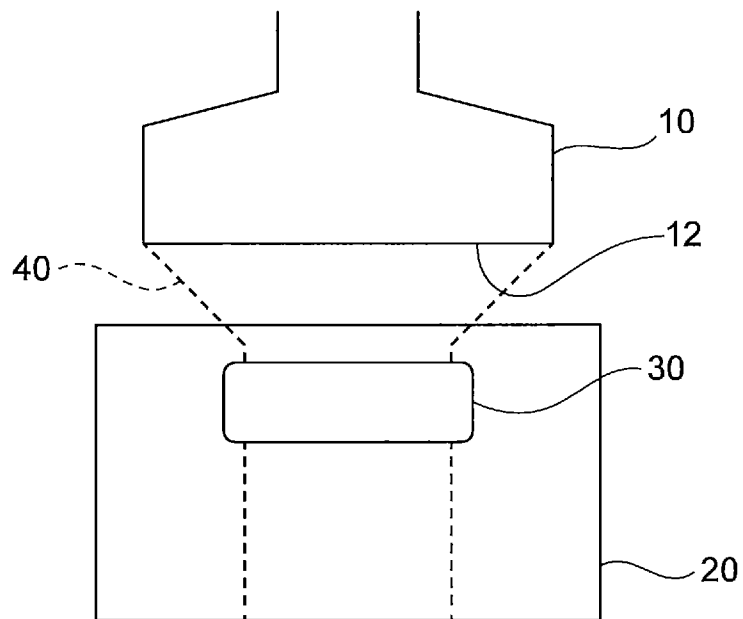
請求の範囲

- [請求項1] ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）を60～100質量%含有するポリエステル樹脂組成物を含み、
 積層数が7層以下であり、
 下記要件（1）～（4）を満たすことを特徴とする二軸配向ポリエステルフィルム。
 （1）二軸配向ポリエステルフィルムの固有粘度が0.7 dl/g以上。
 （2）二軸配向ポリエステルフィルムの面配向度 ΔP が0.145～0.160。
 （3）JIS-Z1707に準じた突き刺し試験で測定した二軸配向ポリエステルフィルムの突刺し強さが0.40 N/ μ m以上。
 （4）二軸配向ポリエステルフィルムの厚み斑が0.7%以下。
- [請求項2] 前記ポリエステル樹脂組成物は、ポリブチレンテレフタレート樹脂（A）以外のポリエステル樹脂（B）を含有することを特徴とする請求項1に記載の二軸配向ポリエステルフィルム。
- [請求項3] 二軸配向ポリエステルフィルム上の最大直径が0.3 mm以上のフィッシュアイが5個/ m^2 以下であることを特徴とする請求項1又は2に記載の二軸配向ポリエステルフィルム。
- [請求項4] 二軸配向ポリエステルフィルムの前記一方の面での三次元平均粗さ SR_a と、前記他方の面での三次元平均粗さ SR_a との差（絶対値）が0.01 μ m以下であることを特徴とする請求項1～3のいずれか1に記載の二軸配向ポリエステルフィルム。
- [請求項5] 二軸配向ポリエステルフィルムの150℃で15分間加熱後の熱収縮率が、縦方向が0～5%、横方向が-1～5%であることを特徴とする請求項1～4いずれかに記載の二軸配向ポリエステルフィルム。
- [請求項6] 請求項1～5のいずれか1に記載の二軸配向ポリエステルフィルムの製造方法であって、

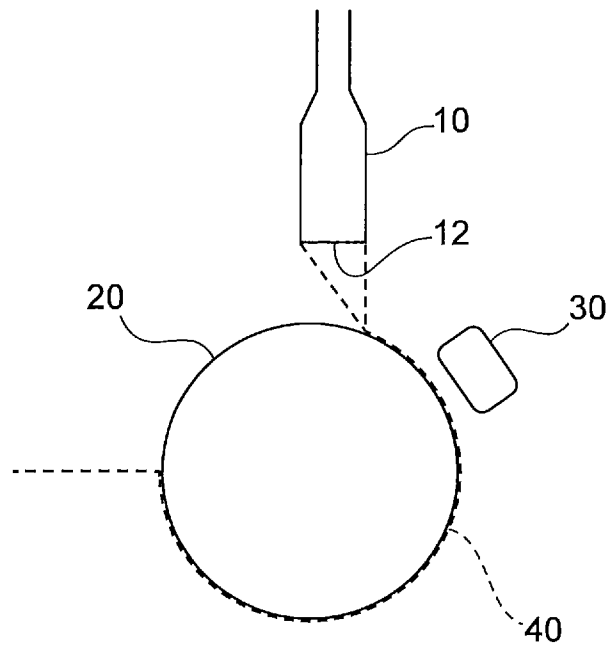
二軸配向ポリエステルフィルム製造用の樹脂組成物を冷却ロールにキャストして未延伸シートを形成する工程 A と、

前記冷却ロール上の前記未延伸シートに 5℃以下の風を吹き付ける工程 B とを有することを特徴とする二軸配向ポリエステルフィルムの製造方法。

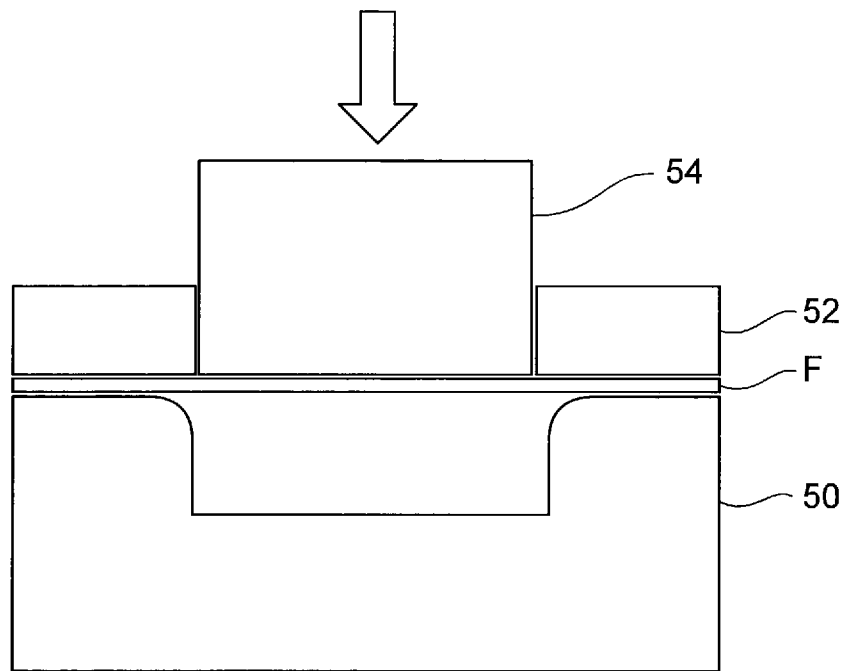
[図1]



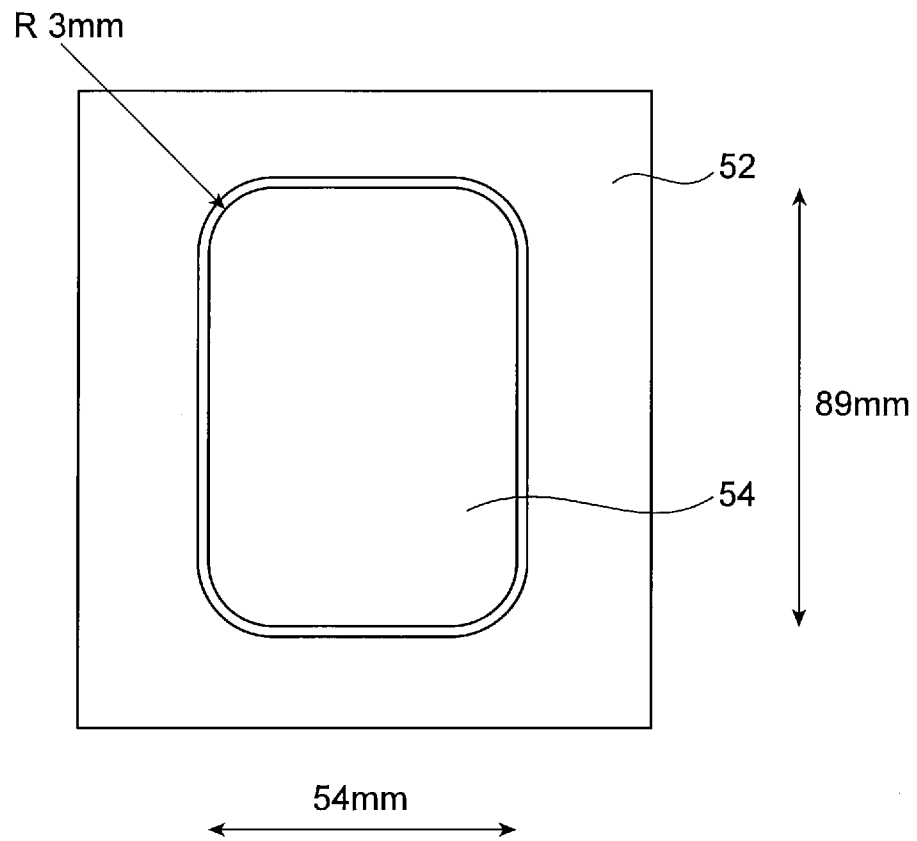
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/004372

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B29C 55/12 (2006.01)i; C08J 5/18 (2006.01)i; B29C 48/08 (2019.01)i; B29C 48/88 (2019.01)i

FI: B29C48/88; B29C48/08; B29C55/12; C08J5/18 CFD

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)

B29C55/00-55/30, C08J5/00-5/02, C08J5/12-5/22, B29C48/00-48/96

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

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2020
Registered utility model specifications of Japan	1996-2020
Published registered utility model applications of Japan	1994-2020

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.
A	JP 2005-060617 A (TOYOBO BOSEKI KABUSHIKI KAISHA) 10.03.2005 (2005-03-10) entire text	1-6
A	WO 2013/172214 A1 (TOYOBO CO., LTD.) 21.11.2013 (2013-11-21) entire text	1-6
A	JP 2007-185898 A (TORAY INDUSTRIES, INC.) 26.07.2007 (2007-07-26) entire text	1-6
P, A	JP 2019-056109 A (TORAY INDUSTRIES, INC.) 11.04.2019 (2019-04-11) entire text	1-6

☐ 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

"I" 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
26 March 2020 (26.03.2020)

Date of mailing of the international search report
07 April 2020 (07.04.2020)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2020/004372

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2005-060617 A	10 Mar. 2005	(Family: none)	
WO 2013/172214 A1	21 Nov. 2013	JP 2013-256110 A	
		JP 2016-172454 A	
		CN 104321372 A	
		KR 10-2015-0008872 A	
		TW 201406831 A	
		CN 109111585 A	
JP 2007-185898 A	26 Jul. 2007	(Family: none)	
JP 2019-056109 A	11 Apr. 2019	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） B29C 55/12(2006.01)i; C08J 5/18(2006.01)i; B29C 48/08(2019.01)i; B29C 48/88(2019.01)i FI: B29C48/88; B29C48/08; B29C55/12; C08J5/18 CFD														
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）） B29C55/00-55/30, C08J5/00-5/02, C08J5/12-5/22, B29C48/00-48/96														
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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2020年</td> </tr> </table>			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2020年	日本国実用新案登録公報	1996-2020年	日本国登録実用新案公報	1994-2020年				
日本国実用新案公報	1922-1996年													
日本国公開実用新案公報	1971-2020年													
日本国実用新案登録公報	1996-2020年													
日本国登録実用新案公報	1994-2020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												
A	JP 2005-060617 A（東洋紡績株式会社）10.03.2005（2005-03-10） 全文	1-6												
A	WO 2013/172214 A1（東洋紡株式会社）21.11.2013（2013-11-21） 全文	1-6												
A	JP 2007-185898 A（東レ株式会社）26.07.2007（2007-07-26） 全文	1-6												
P, A	JP 2019-056109 A（東レ株式会社）11.04.2019（2019-04-11） 全文	1-6												
☐ 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。														
<table border="0"> <tr> <td>* 引用文献のカテゴリー</td> <td>“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抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</td> </tr> <tr> <td>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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）</td> <td>“&” 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td></td> </tr> <tr> <td>“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献</td> <td></td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー	“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抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの	“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	“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	“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	“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	“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）	“&” 同一パテントファミリー文献	“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の日の後に公表された文献	
* 引用文献のカテゴリー	“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抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの													
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	“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													
“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	“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													
“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）	“&” 同一パテントファミリー文献													
“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の日の後に公表された文献														
国際調査を完了した日 26.03.2020	国際調査報告の発送日 07.04.2020													
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 一宮 里枝 4R 3441 電話番号 03-3581-1101 内線 3471													

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2020/004372

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2005-060617	A	10.03.2005	(ファミリーなし)	
WO	2013/172214	A1	21.11.2013	JP	2013-256110 A
				JP	2016-172454 A
				CN	104321372 A
				KR	10-2015-0008872 A
				TW	201406831 A
				CN	109111585 A
JP	2007-185898	A	26.07.2007	(ファミリーなし)	
JP	2019-056109	A	11.04.2019	(ファミリーなし)	