(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
2008 年12 月18 日 (18.12.2008)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2008/153188 A1

(51) 国際特許分類:
B32B 27/36 (2006.01) *G11B 5/73* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2008/061072

(22) 国際出願日: 2008 年6 月11 日 (11.06.2008)

(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2007-156330 2007 年6 月13 日 (13.06.2007) JP
特願2008-009228 2008 年1 月18 日 (18.01.2008) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 帝人株式会社 (TEIJIN LIMITED) [JP/JP]; 〒5410054 大阪府大阪市中央区南本町１丁目６番７号 Osaka (JP).

(72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 木下 英司 (KINOSHITA, Eiji) [JP/JP]; 〒5030123 岐阜県安八郡安八町南條１３５７番地 帝人デュポンフィルム株式会社内 Gifu (JP). 小林 家康 (KOBAYASHI, Ieyasu) [JP/JP]; 〒5030123 岐阜県安八郡安八町南條１３５７番地 帝人デュポンフィルム株式会社内 Gifu (JP). 東條 光峰 (TOJO, Mitsuo) [JP/JP]; 〒5030123 岐阜県安八郡安八町南條１３５７番地 帝人デュポンフィルム株式会社内 Gifu (JP). 岸野 友行 (KISHINO, Tomoyuki) [JP/JP]; 〒7918041 愛媛県松山市北吉田町７７番地 帝人株式会社 松山事業所内 Ehime (JP). 河野 一輝 (KOHNO, Kazuteru) [JP/JP]; 〒7400014 山口県岩国市日の出町２番１号 帝人株式会社 岩国研究センター内 Yamaguchi (JP).

(74) 代理人: 大島 正孝 (OHSHIMA, Masataka); 〒1600022 東京都新宿区新宿１丁目１７番１１号ＢＮ御苑ビル 大島特許事務所 Tokyo (JP).

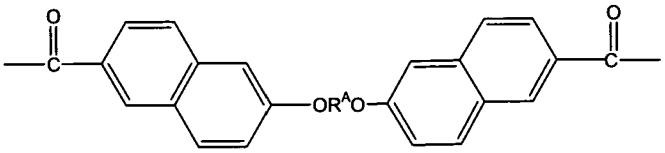
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, 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, LS, MW, MZ, NA, 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 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

(54) **Title:** BIAXIALLY ORIENTED MULTILAYER FILM

(54) 発明の名称: 二軸配向積層フィルム



(A)

(57) **Abstract:** Disclosed is a biaxially oriented multilayer polyester film which is excellent in dimensional stability against environmental changes such as temperature change and moisture change, while exhibiting excellent flatness and excellent wind-up property. Specifically disclosed is a biaxially oriented multilayer polyester film wherein a film layer B is arranged on one side of a film layer A and the surface roughness (RaB) on the film B side is larger than the surface roughness (RaA) on the film A side by 1.0 nm or more. In this biaxially oriented multilayer polyester film, at least one film layer is a film made of an aromatic polyester (I) which is composed of a glycol component and a dicarboxylic acid component containing not less than 5% by mole but less than 80% by mole of a repeating unit represented by the following formula (A). (In the formula, R^A represents an alkylene group having 1-10 carbon atoms.)

(57) 要約: 本発明の目的は、温度、湿度などの環境の変化に対する寸法安定性に優れ、平坦性および巻取性に優れる二軸配向積層ポリエステルフィルムを提供することにある。本発明は、フィルム層Ａの片面にフィルム層Ｂが積層され、フィルム層Ｂ側の表面粗さ(ＲａＢ)がフィルム層Ａ側の表面粗さ(ＲａＡ)よりも１．０ｎｍ以上大きい二軸配向積層ポリエステルフィルムであって、少なくとも一方のフィルム層は、グリコール成分および下記式(Ａ)(式中R^Aは、炭素数１～１０のアルキレン基を示す。)で表される繰り返し単位を５モル%以上８０モル%未満含有するジカルボン酸成分により構成される芳香族ポリエステル(Ｉ)からなる前記フィルムである。

WO 2008/153188 A1

明 細 書

二軸配向積層フィルム

技術分野

本発明は、６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸を共重合した芳香族ポリエステルからなるフィルムを積層した二軸配向積層フィルムに関する。

背景技術

ポリエチレンテレフタレートやポリエチレン－２，６－ナフタレンカルボキシレートに代表される芳香族ポリエステルは、機械的特性、寸法安定性および耐熱性に優れ、フィルムなどに幅広く使用されている。特にポリエチレン－２，６－ナフタレンジカルボキシレートは、ポリエチレンテレフタレートよりも優れた機械的特性、寸法安定性および耐熱性を有し、寸法安定性の要求される高密度磁気記録媒体のベースフィルムなどに使用されている。しかしながら、近年の高密度磁気記録媒体に対する寸法安定性の要求はますます高くなってきており、さらなる特性の向上が求められている。

特許文献１～４には、６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸のエステル化合物であるジエチル－６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエートから得られるポリアルキレン－６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエートが提案されている。これらの文献には、結晶性で融点が２９４℃のポリエチレン－６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエートが具体的に提示されている。

しかしながら、これら特許文献に記載のポリエチレン－６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエートは、融点が非常に高く、また結晶性も非常に高いので、溶融状態での流動性に乏しく、製膜時の押出しが不均一化し、また高倍率で延伸すると結晶化が進み破断するなどの問題点があった。

また、特許文献３では、ポリエチレン－６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエートを用いたフィルムで、最大の温度膨張率を１０～３５（ｐｐｍ／℃）、最大の湿度膨張率を０～８（ｐｐｍ／％ＲＨ）、最大と最小の温度膨張率の差が０～６．０（ｐｐｍ／℃）、そして最大と最小の湿度膨張率の差を０～４．０（ｐｐｍ／％ＲＨ）にすることで、トラッキングズレの小さな磁気記録フレキシブルディスクが得られることを教示している。そして、具体的にはその実施例で、製膜方向のヤング率が４８５ｋｇ／mm^2（４．８ＧＰａ）および幅方向のヤング率が１，１００ｋｇ／mm^2（１０．９ＧＰａ）で、最大の温度膨張率が１９（ｐｐｍ／℃）、最小の温度膨張率が１６．５（ｐｐｍ／℃）、最大の湿度膨張率が６（ｐｐｍ／％ＲＨ）、そして最小の湿度膨張率が４．５（ｐｐｍ／％ＲＨ）のフィルムが開示されている。

しかしながら、近年の磁気記録媒体などにおける記録密度向上への要求は厳しく、それに伴ってベースフィルムに求められる寸法安定性も、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレン－２，６－ナフタレンジカルボキシレート、特許文献３に提示されたフィルムでも達成できない状況となってきている。また、一層良好な走行性、耐摩耗性等の表面特性が求められている。

（特許文献１）　特開昭６０－１３５４２８号公報

（特許文献２）　特開昭６０－２２１４２０号公報

（特許文献３）　特開昭６１－１４５７２４号公報

（特許文献４）　特開平６－１４５３２３号公報

発明の開示

そこで本発明の目的は、温度、湿度などの環境の変化に対する寸法安定性に優れ、平坦性および巻取性に優れる二軸配向積層フィルムを提供することにある。また本発明の目的は、高温化で荷重を負荷したときの伸びの小さい二軸配向積層フィルムを提供することにある。また本発明の目的は、熱処理によるカールが発生し難い二軸配向積層フィルムを提供することにある。また本発明の目的は、フィルム層の厚みに対して比較的大きな粒子を含有させてもボイドが少なく耐削れ

性に優れた二軸配向積層フィルムを提供することにある。

二軸配向フィルムにおいて、湿度膨張係数（αｈ）および温度膨張係数（αｔ）はともに、ヤング率と非常に密接な関係にある。湿度膨張係数（αｈ）および温度膨張係数（αｔ）は、ヤング率が高いほど一般的に低くなる。しかしながら、ヤング率はいくらでも高められるというわけではなく、製膜性や直交する方向のヤング率を確保するためには自ずと限界がある。

ポリアルキレン－６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエートからなるフィルムは、ヤング率が低くても低い湿度膨張係数（αｈ）を示す傾向がある。

しかしながら、前述の特許文献１～４を見ると、ポリアルキレン－６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエートからなるフィルムは、一方のヤング率はきわめて高くできるものの、それに直交する方向のヤング率が極めて低くなるという欠点がある。また、湿度膨張係数（αｈ）は非常に小さいものの温度膨張係数（αｔ）が高いという欠点もある。ちなみに、特許文献３の実施例１に開示されたフィルムを見ると、温度膨張係数（αｔ）は１６．５～１９ｐｐｍ／℃と非常に高い値を示す。

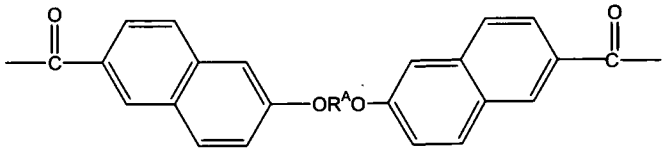
本発明者は、湿度膨張係数（αｈ）が小さいポリアルキレン－６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエートの特性を生かし、かつ、温度膨張係数（αｔ）の上昇を防止する方法について鋭意検討した。

その結果、６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸と、ナフタレンジカルボン酸などの他の芳香族カルボン酸とを重合させた芳香族ポリエステル（Ｉ）からなるフィルムは、湿度膨張係数（αｈ）および温度膨張係数（αｔ）が共に小さく、寸法安定性に優れることを見出した。さらに、芳香族ポリエステル（Ｉ）からなるフィルムを、少なくとも一方の層に用いると、寸法安定性、平坦性および巻取性に優れた積層フィルムが得られることを見出した。

また、芳香族ポリエステル（Ｉ）からなるフィルム層Ｂにフィルム層Ｂの厚みに対して比較的大きな粒子を含有させると、大きな突起が均一に分布し、ボイド

の形成が抑制され、耐削れ性に優れた二軸配向積層フィルムが得られることを見出した。本発明はこれらの知見に基づく。

即ち本発明は、フィルム層Ａの片面にフィルム層Ｂが積層され、フィルム層Ｂ側の表面粗さ（ＲａＢ）がフィルム層Ａ側の表面粗さ（ＲａＡ）よりも１ｎｍ以上大きい二軸配向積層フィルム（以下、積層フィルムということがある）であって、少なくとも一方のフィルム層は、グリコール成分および下記式（Ａ）



（Ａ）

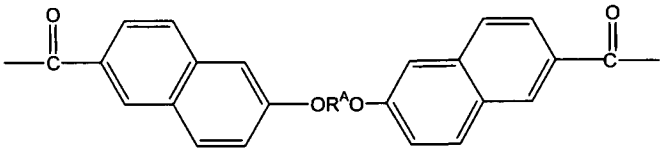
（式中R^Aは、炭素数１～１０のアルキレン基を示す。）

で表される単位を５モル％以上８０モル％未満含有するジカルボン酸成分を有する芳香族ポリエステル（Ｉ）からなる前記フィルムである。

発明を実施するための最良の形態

＜芳香族ポリエステル（Ｉ）＞

本発明において、少なくとも一方のフィルム層は、グリコール成分および下記式（Ａ）



（Ａ）

（式中のR^Aは、炭素数１～１０のアルキレン基を示す。）

で表される単位を５モル％以上８０モル％未満含有するジカルボン酸成分を有する芳香族ポリエステル（Ｉ）からなる。

（式（Ａ）で表される単位）

式（Ａ）で表される単位は、６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸（以下、ＡＮＡということある）由来の単位である。

ジカルボン酸成分中のＡＮＡの含有量が５モル％未満であると、湿度膨張係数（αｈ）の低減効果が発現され難い。ＡＮＡの含有量は、成形性などの観点から、

８０モル％未満である。また、驚くべきことに、ＡＮＡによる湿度膨張係数（αｈ）の低減効果は、少量で非常に効率的に発現され５０モル％でほぼ飽和状態に近い。そのような観点からジカルボン酸成分中のＡＮＡの含有量の上限は、好ましくは４５モル％、より好ましくは４０モル％、さらに好ましくは３５モル％、特に好ましくは３０モル％である。ジカルボン酸成分中のＡＮＡの含有量の下限は、好ましくは５モル％、より好ましくは７モル％、さらに好ましくは１０モル％、特に好ましくは１５モル％である。

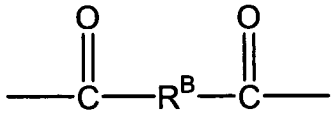
このような特定量のＡＮＡを共重合した芳香族ポリエステルを少なくとも一つのフィルム層に用いることで、温度膨張係数（αｔ）と湿度膨張係数（αｈ）の両方がともに低いフィルムを得ることができる。

式（Ａ）中のR^Aは、炭素数１～１０のアルキレン基である。アルキレン基として、エチレン基、プロピレン基、イソプロピレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ヘキサメチレン基、オクタメチレン基等が挙げられる。

式（Ａ）は、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸、６，６’－（トリメチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸、６，６’－（ブチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸由来の単位であることが好ましい。中でも本発明の効果の点からは、式（Ａ）におけるR^Aの炭素数が偶数のものが好ましく、特に６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸由来の単位であることが好ましい。

（他のジカルボン酸成分）

ジカルボン酸成分中の式（Ａ）で表される単位以外の単位として、下記式（Ｂ）で表される単位が好ましい。



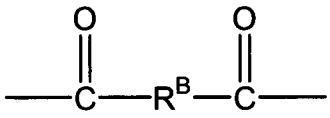
（Ｂ）

式（Ｂ）中、R^Bはフェニレン基またはナフタレンジイル基である。式（Ｂ）で表される単位として、テレフタル酸、イソフタル酸、２，６－ナフタレンジカルボン酸、２，７－ナフタレンジカルボン酸由来の単位が挙げられる。得られるフィルムの力学的特性の点からテレフタル酸、２，６－ナフタレンジカルボン酸

由来の単位が好ましく、特に２，６－ナフタレンジカルボン酸由来の単位が好ましい。

ジカルボン酸成分中の式（Ｂ）で表される単位の含有量は、２０モル％を超え９５モル％以下である。ジカルボン酸成分中の式（Ｂ）で表される単位の含有量の下限は、好ましくは５５モル％、より好ましくは６０モル％、さらに好ましくは６５モル％、特に好ましくは７０モル％である。ジカルボン酸成分中の式（Ｂ）で表される単位の含有量の上限は、好ましくは９５モル％、より好ましくは９３モル％以上、さらに好ましくは９０モル％、特に好ましくは８５モル％である。

従って、芳香族ポリエステル（Ｉ）は、ジカルボン酸成分として、５モル％以上８０モル％未満の式（Ａ）で表される単位および２０モル％を超え９５モル％以下の下記式（Ｂ）



（Ｂ）

（式（Ｂ）中、R^Bはフェニレン基またはナフタレンジイル基である。）

で表される単位を有することが好ましい。

（ジオール成分）

ジオール成分は、９０～１００モル％の下記式（Ｃ）で表される単位を含有することが好ましい。式（Ｃ）で表される単位の含有量は、好ましくは９５～１００モル％、より好ましくは９８～１００モル％である。



（Ｃ）

式（Ｃ）中、R^Cは炭素数２～１０のアルキレン基である。R^Cのアルキレン基として、エチレン基、プロピレン基、イソプロピレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ヘキサメチレン基、オクタメチレン基等が挙げられる。これらの中でも式（Ｃ）で表される単位として、エチレングリコール、トリメチレングリコール、テトラメチレングリコール、シクロヘキサンジメタノール等に由来する単位が好ましく挙げられる。ジオール成分のエチレングリコール由来の単位の含有量は、好ましくは９０モル％以上、より好ましくは９０～１００モル％、さ

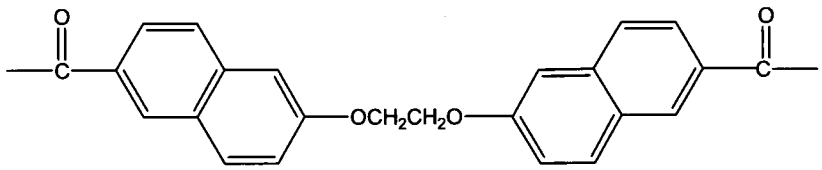
らに好ましくは９５～１００モル％、最も好ましくは９８～１００モル％である。

ジオール成分は、式（C）で表されるジオール成分に以外の他のジオール成分を含有していてもよい。他のジオール成分の含有量は、好ましくは０～１０モル％、より好ましくは０～５モル％、さらに好ましくは０～２モル％である。他のジオール成分として、式（C）のジオール成分で例示されたものが挙げられる。例えば、式（C）のジオール成分がエチレングリコール由来の単位のとき、他のジオール成分はエチレングリコール由来の単位以外の単位である。

式（A）で表される単位と、式（C）で表される単位で構成されるエステル単位（－（A）－（C）－）の含有量は、全単位中、好ましくは５モル％以上５０モル％未満、より好ましくは５～４５モル％、さらに好ましくは１０～４０モル％である。

他のエステル単位として、ポリエチレンテレフタレート、ポリトリメチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレートなどのポリアルキレンテレフタレート単位、ポリエチレン－２，６－ナフタレンジカルボキシレート、ポリトリメチレン－２，６－ナフタレンジカルボキシレート、ポリブチレン－２，６－ナフタレンジカルボキシレートなどのポリアルキレン－２，６－ナフタレンジカルボキシレート単位が好ましく挙げられる。これらの中でも機械的特性などの点からエチレンテレフタレート単位やエチレン－２，６－ナフタレンジカルボキシレート単位が好ましく、特にエチレン－２，６－ナフタレンジカルボキシレート単位が好ましい。

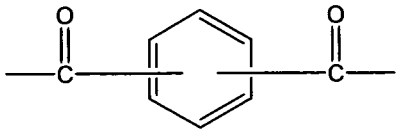
従って、式（A）で表される単位が下記式（A－１）



（A－１）

であるポリエステルが好ましい。

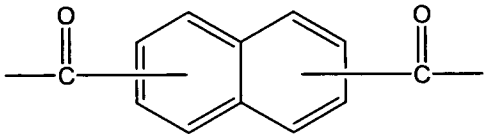
ジカルボン酸成分が１０～４０モル％の式（A）で表される単位および９０～６０モル％の下記式（B－１）



（Ｂ－１）

で表される単位を含有するポリエステルが好ましい。

またジカルボン酸成分が５～４５モル％の式（Ａ）で表される単位および９５～５５モル％の下記式（Ｂ－２）



（Ｂ－２）

で表される単位を含有するポリエステルが好ましい。

芳香族ポリエステル（Ｉ）のＤＳＣで測定した融点は、好ましくは２００～２６０℃、より好ましくは２１０～２５５℃、さらに好ましくは２２０～２５３℃の範囲である。融点が上記上限を越えると、溶融粘度が大きく溶融押し出しして成形する際に、流動性が劣り、吐出などが不均一化しやすくなり、製膜性が低下しやすい。一方、上記下限未満になると、製膜性は優れるものの、芳香族ポリエステル（Ｉ）の機械的特性などが損なわれやすくなる。一般的に芳香族ポリエステルは、他の酸成分を共重合して融点を下げれば、同時に機械的特性なども低下する。しかし本発明で用いる芳香族ポリエステル（Ｉ）からなるフィルムは、共重合により製膜性が向上するため、特許文献２に記載の式（Ａ）で表される単位のみからなるホモポリマーと同様な機械的特性を有する。融点は、共重合成分の種類と共重合量、そして副生物であるジアルキレングリコールの制御などによって調整できる。

また、芳香族ポリエステル（Ｉ）のＤＳＣで測定したガラス転移温度（以下、Ｔｇと称することがある）は、好ましくは９０～１２０℃、より好ましくは９５～１１９℃、さらに好ましくは１００～１１７℃の範囲である。Ｔｇがこの範囲にあると、耐熱性、寸法安定性に優れたフィルムとなる。ガラス転移温度は、共重合成分の種類と共重合量、そして副生物であるジアルキレングリコールの制御などによって調整できる。

芳香族ポリエステル（Ｉ）のＰ－クロロフェノール／１，１，２，２－テトラクロロエタン（重量比４０／６０）の混合溶媒を用いて３５℃で測定した固有粘度は、好ましくは０．４～１．５ｄｌ／ｇ、より好ましくは０．５～１．３ｄｌ／ｇの範囲である。

＜芳香族ポリエステル（Ｉ）の製造＞

芳香族ポリエステル（Ｉ）の製造方法について説明する。まず、６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸もしくはそのエステル形成性誘導体を含有するジカルボン酸成分と、グリコール成分とを反応させ、ポリエステル前駆体を製造する。そして、得られたポリエステル前駆体を重合触媒の存在下で重合することにより、芳香族ポリエステル（Ｉ）を製造することができる。必要に応じて固相重合などを施しても良い。

なお、前述のポリエステル前駆体を製造する工程でグリコール成分は、全ジカルボン酸成分のモル数に対して、１．１～６倍、さらに２～５倍、特に３～５倍用いることが生産性の点から好ましい。

また、ポリエステルの前駆体を製造する際の反応は、エチレングリコールの沸点以上で行うことが好ましく、特に１９０℃～２５０℃の範囲で行うことが好ましい。１９０℃よりも低いと反応が十分に進行しにくく、２５０℃よりも高いと副反応物であるジエチレングリコールが生成しやすい。また、反応を常圧下で行うこともできるが、さらに生産性を高めるために加圧下で反応を行ってもよい。より詳しくは、反応圧力は絶対圧力で１０ｋＰａ以上２００ｋＰａ以下、反応温度は通常１５０℃以上２５０℃以下、好ましくは１８０℃以上２３０℃以下で、反応時間１０分以上１０時間以下、好ましくは３０分以上７時間以下で行なうことが好ましい。このエステル化反応によってポリエステル前駆体としての反応物が得られる。

ポリエステルの前駆体を製造する反応工程では、公知のエステル化もしくはエステル交換反応触媒を用いてもよい。例えばアルカリ金属化合物、アルカリ土類金属化合物、チタン化合物などが挙げられる。

つぎに、重縮合反応について説明する。重縮合温度は、得られるポリマーの融

点以上でかつ２３０～２８０℃、より好ましくは融点より５℃以上高い温度から融点より３０℃高い温度の範囲である。重縮合反応では通常３０Ｐａ以下の減圧下で行うことが好ましい。３０Ｐａより高いと重縮合反応に要する時間が長くなり且つ重合度の高い芳香族ポリエステル（Ｉ）を得ることが困難になる。

重縮合触媒としては、少なくとも一種の金属元素を含む金属化合物が挙げられる。なお、重縮合触媒はエステル化反応においても使用することができる。金属元素としては、チタン、ゲルマニウム、アンチモン、アルミニウム、ニッケル、亜鉛、スズ、コバルト、ロジウム、イリジウム、ジルコニウム、ハフニウム、リチウム、カルシウム、マグネシウムなどが挙げられる。より好ましい金属としては、チタン、ゲルマニウム、アンチモン、アルミニウム、スズなどであり、中でも、チタン化合物はエステル化反応と重縮合反応との双方の反応で、高い活性を発揮するので特に好ましい。

これらの触媒は単独でも、あるいは併用してもよい。かかる触媒量は、共重合芳香族ポリエステルの繰り返し単位のモル数に対して、０．００１～０．５モル％、さらには０．００５～０．２モル％が好ましい。

具体的な重縮合触媒としてのチタン化合物としては、例えば、テトラ－ｎ－プロピルチタネート、テトライソプロピルチタネート、テトラ－ｎ－ブチルチタネート、テトライソブチルチタネート、テトラ－ｔｅｒｔ－ブチルチタネート、テトラシクロヘキシルチタネート、テトラフェニルチタネート、テトラベンジルチタネート、蓚酸チタン酸リチウム、蓚酸チタン酸カリウム、蓚酸チタン酸アンモニウム、酸化チタン、チタンのオルトエステル又は縮合オルトエステル、チタンのオルトエステル又は縮合オルトエステルとヒドロキシカルボン酸からなる反応生成物、チタンのオルトエステル又は縮合オルトエステルとヒドロキシカルボン酸とリン化合物からなる反応生成物、チタンのオルトエステル又は縮合オルトエステルと少なくとも２個のヒドロキシル基を有する多価アルコール、２－ヒドロキシカルボン酸、又は塩基からなる反応生成物などが挙げられる。

（添加剤）

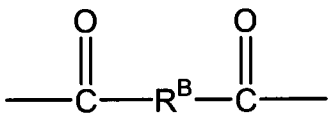
芳香族ポリエステル（Ｉ）は、本発明の効果を阻害しない範囲で、他の熱可塑

性ポリマー、紫外線吸収剤等の安定剤、酸化防止剤、可塑剤、滑剤、難燃剤、離型剤、顔料、核剤、充填剤あるいはガラス繊維、炭素繊維、層状ケイ酸塩などを必要に応じて含有していても良い。他の熱可塑性ポリマーとしては、脂肪族ポリエステル系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリカーボネート、ＡＢＳ樹脂、ポリメチルメタクリレート、ポリアミド系エラストマー、ポリエステル系エラストマー、ポリエーテルイミド、ポリイミドなどが挙げられる。

＜芳香族ポリエステル（ＩＩ）＞

本発明の積層フィルムは、少なくとも一方のフィルム層が芳香族ポリエステル（Ｉ）からなる。他方のフィルム層は、芳香族ポリエステル（Ｉ）以外の芳香族ポリエステル（以下、芳香族ポリエステル（ＩＩ）ということがある）からなるものであってもよい。

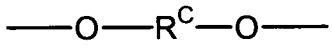
芳香族ポリエステル（ＩＩ）は、ジカルボン酸成分として９０～１００モル％の下記式（Ｂ）



（Ｂ）

（式（Ｂ）中、R^Bはフェニレン基またはナフタレンジイル基である。）

で表される単位を有し、ジオール成分として下記式（Ｃ）



（Ｃ）

（式（Ｃ）中、R^Cは炭素数２～１０のアルキレン基である。）

で表される単位を有することが好ましい。

芳香族ポリエステル（ＩＩ）として、ポリエチレンテレフタレート、ポリトリメチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレートなどのアルキレンテレフタレートが挙げられる。また、ポリエチレン－２，６－ナフタレンジカルボキシレート、ポリトリメチレン－２，６－ナフタレンジカルボキシレート、ポリブチレン－２，６－ナフタレンジカルボキシレートなどのアルキレン－２，６－ナフタレンジカルボキシレートが挙げられる。これらの中でも機械的特性などの点からポリエチレンテレフタレート、ポリエチレン－２，６－ナフタレンジカルボキシレートが好ましく、特にポリエチレン－２，６－ナフタレンジカルボキシレー

トが好ましい。芳香族ポリエステル（ＩＩ）は、本発明の効果を阻害しない範囲で他の共重合成分を含有していても良い。芳香族ポリエステル（ＩＩ）は、芳香族ポリエステル（Ｉ）と同様に添加剤を含有していても良い。芳香族ポリエステル（ＩＩ）は、それ自体公知の方法で製造されたものを好適に用いることができる。

＜積層フィルム＞

本発明の積層フィルムは、フィルム層Ａの片面にフィルム層Ｂが積層されたものである。本発明の積層フィルムの少なくとも一方のフィルム層は、芳香族ポリエステル（Ｉ）からなる。もちろん、環境変化に対する寸法安定性の観点からは、フィルム層Ａおよびフィルム層Ｂが、芳香族ポリエステル（Ｉ）からなることが好ましい。環境変化に対する寸法安定性を向上させる観点からは、芳香族ポリエステル（Ｉ）は、より厚いフィルム層に用いられていることが好ましい。本発明には、フィルム層Ａが芳香族ポリエステル（ＩＩ）からなり、フィルム層Ｂが芳香族ポリエステル（Ｉ）からなる積層フィルムが包含される。

（フィルム層Ｂ）

フィルム層Ｂの表面粗さ（ＲａＢ）は、好ましくは５～１５ｎｍ、より好ましくは５～１０ｎｍ、さらに好ましくは６～８ｎｍの範囲である。フィルム層Ｂの表面粗さ（ＲａＢ）をこの範囲にすることで、得られる積層フィルムに優れた巻取性を付与できる。

フィルム層Ｂ側の表面粗さ（ＲａＢ）は、フィルム層Ａ側の表面粗さ（ＲａＡ）よりも、１ｎｍ以上、好ましくは２ｎｍ以上、さらに好ましくは３ｎｍ以上大きい。ＲａＡとＲａＢとの表面粗さの差を下限以上にすることで、単層フィルムに比べ、優れた平坦性と巻取性とを高度に具備させることができる。なお、ＲａＡとＲａＢとの差の上限は、特に制限されないが、フィルム層Ａの表面を、フィルム層Ｂによって損なわれないようにする点から、８ｎｍ以下、好ましくは５ｎｍ以下、さらに好ましくは４ｎｍ以下であることが好ましい。

通常フィルムの表面粗さを粗くするには、粗くしたい側のフィルム層に不活性粒子を含有させたりして、突起を形成すればよい。フィルム層Ｂに含有させる不

活性粒子としては、（1）有機高分子粒子（例えば、架橋シリコーン樹脂、架橋ポリスチレン、架橋アクリル樹脂、メラミンーホルムアルデヒド樹脂、芳香族ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂、架橋ポリエステルなどからなる粒子）が挙げられる。また、（2）金属酸化物（例えば、酸化アルミニウム、二酸化チタン、二酸化ケイ素（シリカ）、酸化マグネシウム、酸化亜鉛、酸化ジルコニウムなど）、金属の炭酸塩（例えば、炭酸マグネシウム、炭酸カルシウムなど）、金属の硫酸塩（例えば、硫酸カルシウム、硫酸バリウムなど）、炭素（例えば、カーボンブラック、グラファイト、ダイアモンドなど）および粘土鉱物（例えば、カオリン、クレー、ベントナイトなど）などのような無機化合物からなる粒子が挙げられる。また、（3）異なる素材を例えばコアとシェルに用いたコアシェル型などの複合粒子など粒子の状態で添加する外部添加粒子が挙げられる。さらに、（4）触媒などの析出によって形成する内部析出粒子などが挙げられる。

これらの中で、架橋シリコーン樹脂、架橋アクリル樹脂、架橋ポリエステル、架橋ポリスチレン、酸化アルミニウム、二酸化チタン、二酸化ケイ素、カオリン及びクレーからなる群から選ばれる少なくとも１種の粒子が好ましい。特に架橋シリコーン樹脂、架橋アクリル樹脂、架橋ポリエステル、架橋ポリスチレンおよび二酸化ケイ素（但し、多孔質シリカなどは除く）からなる群から選ばれる少なくとも１種の粒子であることが、粒子の粒径のバラツキを小さくしやすいことから好ましい。もちろん、これらは２種以上を併用しても良い。

フィルム層Ｂに含有させる不活性粒子の平均粒径は、好ましくは０．０５～１．０μm、より好ましくは０．１～０．８μmの範囲である。特に磁気記録媒体として用いる場合は０．１～０．５μm、さらに０．１～０．３μmの範囲にあることが好ましい。また、フィルム層Ｂに含有させる不活性粒子の含有量は、フィルム層Ｂの重量を基準として、好ましくは０．１～１．０重量%、より好ましくは０．１５～０．５重量%の範囲である。特に磁気記録媒体として用いる場合は０．２～０．４重量%、さらに０．２～０．３重量%の範囲にあることが好ましい。

フィルム層Ｂの厚みは、積層フィルム全体の厚みに対して、好ましくは５０～９０％、より好ましくは５５～８５％、さらに好ましくは６０～８０％の範囲にある。フィルム層Ｂはフィルム層Ａよりも表面粗さが大きいことから、フィルム層Ａに比べより大きな粒子を含有するか、より多く粒子を含有することになり、そのような粒子の脱落をフィルム層Ｂの厚みを下限以上にすることでより抑制しやすくなる。また、積層フィルムを製膜する際に生じる製品とならない部分を回収して用いようとする場合、フィルム層Ｂの厚みを下限以上にすることで、フィルム層Ｂに大量の回収されたポリマー（回収チップ）を用いることができ、フィルムコストを抑制することができる。なお、フィルム層Ａに回収チップを用いると、フィルム層Ｂだけに粒径の大きな粒子を含有させることができなくなり、表面粗さの調整が難しくなったり、フィルム層Ａの平坦性が損なわれたりする。他方、フィルム層Ｂの厚み割合が上限を越えると、フィルム層Ａの厚みが非常に薄くなり、フィルム層Ｂの粒子の影響がフィルム層Ａに影響するようになり、表面が粗くなり、電磁変換特性が悪化しやすくなる。寸法安定性の観点から、芳香族ポリエステル（Ｉ）はより厚いフィルム層に用いられていることが好ましく、そのような観点から、芳香族ポリエステル（Ｉ）は、フィルム層Ｂに用いられるのが好ましい。

本発明の積層フィルムにおいて、フィルム層Ｂは、芳香族ポリエステル（Ｉ）および平均粒子径が５０ｎｍ以上の粒子を含有し、フィルム層Ｂの厚さ（ｔＢ）に対して平均粒子径（ｄＢ）が下記式（１）

０．２≦ｔＢ／ｄＢ≦１０　　（１）

を満足する粒子Ｂを最も平均粒子径の大きな粒子として含有することが好ましい。

式（１）を満足する粒子Ｂを含有することによりフィルム層Ｂの比較的大きな突起を均一にすることができる。

好ましいｔＢ／ｄＢは１～７、さらに１～４の範囲である。ｔＢ／ｄＢが上記の範囲より小さいということは、フィルム層Ｂの厚み（ｔＢ）が薄すぎたり、フィルム層Ｂの厚みに対して粒子径が過度に大きいものがあることを意味し、粒子Ｂがフィルム層Ｂより脱落しやすくなる。他方ｔＢ／ｄＢが上記範囲よりも大き

いということは、フィルム層Ｂの厚み（ｔＢ）が厚すぎたり、フィルム層Ｂの厚みに対して粒子径が過度に小さいものしかないことを意味し、突起を均一にしにくくなったり、二軸配向積層フィルム全体に占めるフィルム層Ｂの厚みが厚くなってフィルム層Ａ側の表面が粗くなりやすかったりする。

このような粒子Ｂとしては、前述の不活性粒子の説明で挙げたものが好ましく用いることができる。粒子Ｂは、シリカ粒子および有機高分子粒子からなる群より選ばれる少なくとも一種の粒子であることが好ましい。有機高分子粒子が、シリコーン樹脂粒子および架橋ポリスチレン粒子からなる群より選ばれる少なくとも一種であることが好ましい。

もちろん、フィルム層Ｂは上述の粒子Ｂを含有していれば良く、本発明の効果を損なわない範囲で、他の粒子を併用しても良い。なお、本発明におけるフィルム層Ｂが複数の粒子を併用しているかどうかは、後述の平均粒子径の測定で作成した粒度分布から確認および判断できる。例えば、縦軸に頻度、横軸に粒子径とする粒度分布を作成し、２つのピークが確認され、それぞれのピークの最大高さに対して、高さが半分に満たない谷部があるとき、２つの粒子が併用されているといえる。そして、本発明では、それら粒子の平均粒子径は、その谷部を境に、それぞれのピークを形成する粒子の粒径から平均粒子径を求める。

粒子Ｂの平均粒径は、好ましくは０．０５～１．０μｍ、より好ましくは０．１～０．８μｍである。特に磁気記録媒体として用いる場合は、好ましくは０．１～０．６μｍ、より好ましくは０．２～０．４μｍの範囲である。また、好ましい粒子Ｂの含有量は、フィルムＢの重量を基準として、好ましくは０．００１～１．０重量％、より好ましくは０．００５～０．８重量％である。特に磁気記録媒体として用いる場合は好ましくは０．０１～０．５重量％、より好ましくはさらに０．０１～０．３重量％の範囲である。

また、本発明のフィルム層Ｂは、フィルム層Ａ側の表面をフィルム層Ｂが含有する粒子による突き上げによって粗くしないために、二軸配向積層フィルム全体の厚みに対してフィルム層Ｂの厚みは少ない方が好ましく、そのような観点からフィルム層Ａよりも薄いことが好ましい。また、前述の含有する粒子Ｂの平均粒

子径との関係から、フィルム層Bの厚みは0．００５～３μm、さらに0．０５～２．０μm、特に0．１～１．５μmであることが好ましい。

フィルム層B側の表面粗さ（ＲａB）は5～１０nmの範囲にあることが好ましい。

（フィルム層A）

フィルム層Aの表面粗さ（ＲａA）は、好ましくは1～７nm、より好ましくは1．５～５nm、さらに好ましくは2～４nmの範囲である。フィルム層Aの表面粗さ（ＲａA）をこの範囲にすることで、得られる積層フィルムに優れた平坦性を付与することができる。

また、フィルム層Aは、不活性粒子を含有しないか、含有する場合は、不活性粒子の平均粒径は、好ましくは0．０１～0．３μm、より好ましくは0．０５～0．２５μmである。特に磁気記録媒体として用いる場合、不活性粒子の平均粒径は、0．１～0．２μm、さらに0．１～0．１５μmの範囲にあることが好ましい。また、フィルム層Aの不活性粒子の含有量は、フィルム層Aの重量を基準として、好ましくは0．００５～0．３重量%、より好ましくは0．０１～0．２重量%の範囲である。特に磁気記録媒体として用いる場合は0．０５～0．１５重量%の範囲にあることが好ましい。フィルム層Aに含有させる不活性粒子として、フィルム層Bに含有させるものと同じ粒子が挙げられる。

（ヤング率）

本発明の積層フィルムは、磁気テープなどのベースフィルムとして用いたとき、ベースフィルムが伸びないようにフィルム面方向における少なくとも一方向のヤング率が6．０ＧＰａ以上であることが好ましい。しかも、このようにヤング率を高くすることで、より湿度膨張係数（αh）を小さくすることができる。ヤング率の上限は制限されないが、通常１１ＧＰａである。ヤング率は、積層フィルムの長手方向が好ましくは4～１１ＧＰａ、より好ましくは5～１０ＧＰａ、さらに好ましくは5．５～９ＧＰａの範囲である。フィルムの幅方向が、好ましくは5～１１ＧＰａ、より好ましくは6～１１ＧＰａ、さらに好ましくは7～１０ＧＰａ、特に好ましくは8～１０ＧＰａの範囲である。

（温度膨張係数：αｔ）

本発明の積層フィルムは、優れた寸法安定性を発現する点から、少なくとも一方向、好ましくはフィルムの幅方向の温度膨張係数（αｔ）が１０ｐｐｍ／℃以下であることが好ましい。フィルムの少なくとも一方向における温度膨張係数（αｔ）が１０ｐｐｍ／℃以下であることで、環境変化に対する優れた寸法安定性を発現することができる。なお、特許文献３の結果から、アルキレン－６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸を共重合した場合、温度膨張係数（αｔ）は大きくなってしまうと予想されるが、特定の共重合量の範囲で共重合させ、かつそれを延伸することで、驚くべきことに温度膨張係数（αｔ）を小さくすることもできる。温度膨張係数（αｔ）の下限は制限されないが、通常－１５ｐｐｍ／℃である。温度膨張係数（αｔ）は、好ましくは－１０～１０ｐｐｍ／℃、より好ましくは－７～７ｐｐｍ／℃、さらに好ましくは－５～５ｐｐｍ／℃の範囲である。この範囲にあると、例えば磁気記録テープとしたとき、雰囲気の温湿度変化による寸法変化に対して優れた寸法安定性を発現できることから好ましい。

（湿度膨張係数：αｈ）

本発明の積層フィルムは、少なくとも一方向、好ましくはフィルムの幅方向における温度膨張係数（αｔ）の関係を満足する方向の湿度膨張係数（αｈ）は、好ましくは３～７ｐｐｍ／％ＲＨ、より好ましくは３～６ｐｐｍ／％ＲＨの範囲にある。この範囲にあると、磁気記録テープにしたときの寸法安定性の点で好ましい。特に、磁気記録テープをベースフィルムに用いる場合、湿度膨張係数（αｈ）の小さい方向が積層フィルムの幅方向であることが、トラックずれなどを極めて抑制できることから好ましい。なお、本発明において、フィルムの幅方向とは、フィルムの製膜方向（長手方向、縦方向と称することもある。）に直交する方向であり、横方向と称することもある。

また、温度膨張係数（αｔ）が１０ｐｐｍ／℃以下の方向については、少なくとも一方向、好ましくは前述のとおり、幅方向が満足していれば良いが、それに直交する方向も寸法安定性の点からは、同様な温度膨張係数（αｔ）や湿度膨張

係数（αh）、さらにヤング率などを満足することが好ましい。

ところで、磁気記録媒体の中でも、磁性層が片側だけに形成される磁気記録テープなどの場合、磁性層側をより平坦にしつつ優れた巻取性を発現させやすいことから、フィルム層Ａの表面に磁性層を形成し、フィルム層Ｂの表面を走行面側にするのが好ましい。

（芳香族ポリエステル（ＩＩ）との積層フィルム）

本発明の二軸配向積層フィルムは、前述の通り、温度および湿度膨張係数の観点から両方の層が芳香族ポリエステル（Ｉ）であることが好ましいが、一方の層が芳香族ポリエステル（Ｉ）で、他方の層が芳香族ポリエステル（ＩＩ）であってもよい。一方の層が芳香族ポリエステル（Ｉ）で、他方の層が芳香族ポリエステル（ＩＩ）である場合、製膜方向に沿って粘弾性測定をしたときの高温側ｔａｎδのピーク温度が１３５℃以上であることが好ましい。高温側ｔａｎδのピーク温度が１３５℃以上であると、１２０℃程度の高温での加工における張力負荷方向への伸びを抑制でき、加工後のしわの発生を防止できる利点がある。

このようなｔａｎδのピーク温度を高くするには、芳香族ポリエステル（ＩＩ）としてＤＳＣにおけるＴｇ（ガラス転移温度）が１１０℃以上であるような芳香族ポリエステル（ＩＩ）を選択し、製膜方向により分子鎖を配向させる条件を選択すればよい。好ましい芳香族ポリエステル（ＩＩ）のガラス転移温度の下限は１１０℃以上、さらに１１５℃以上であり、上限は特に制限されないがフィルム層（Ｂ）と積層したときの製膜性の点から１７０℃以下、さらに１５０℃以下が好ましい。

このような点から、好ましい芳香族ポリエステル（ＩＩ）としては、繰り返し単位の９５モル％以上がエチレン－２，６－ナフタレンジカルボキシレートからなるポリエチレン－２，６－ナフタレンジカルボキシレートが好ましく、さらにＴｇを高くできるような成分を共重合したり、ブレンドしたものであっても良い。また、芳香族ポリエステル（ＩＩ）はエチレンテレフタレートを主たる繰り返し単位とするポリエチレンテレフタレートであってもよい。しかし、ポリエチレンテレフタレートの場合は、前述のポリエチレン－２，６－ナフタレンジカルボキ

シレートと異なり、ホモポリマーそのものでは、前述のｔａｎδを満足させるのが困難である。そのため、ガラス転移温度を高くできる共重合成分を共重合したり、ポリエーテルイミドや液晶樹脂をブレンドすること（例えば、特開２０００－３５５６３１号公報、特開２０００－１４１４７５号公報および特開平１１－１５６８号公報などを参照）などが好ましい。

また、芳香族ポリエステル（ＩＩ）との積層は、芳香族ポリエステル（ＩＩ）からなるフィルム層と、芳香族ポリエステル（Ｉ）からなるフィルム層とが交互に１１層以上積層されている多層積層フィルムであることがカールをさらに抑えられることから好ましい。好ましい積層数は、両層の合計層数で３１～１０，００１の範囲、さらに５１～１，００１の範囲にあることが層構成の均一性と効果の発現性の点から好ましい。積層数が下限未満であると、カールの発生を抑制しがたくなる。なお、積層数の上限は特に制限されないが、積層構造を維持しやすい点から、上記上限以下であることが好ましい。また、各層の１層あたり厚みは、０．１～１，０００ｎｍの範囲、さらに１～１００ｎｍの範囲にあることが層構成の均一性と効果の発現性の点から好ましい。

＜積層フィルムの製造方法＞

本発明の積層フィルムは、製膜方向と幅方向に延伸してそれぞれの方向の分子配向を高めたものであり、例えば以下のような方法で製造することが、製膜性を維持しつつ、ヤング率を向上させやすいことから好ましい。

まず、フィルム層ＡおよびＢ用の芳香族ポリエステル（少なくとも一方は芳香族ポリエステル（Ｉ））を乾燥後、溶融状態でダイ内において積層してからフィルム状に押出すか、それぞれを溶融状態でシート状にダイから押出した後に積層する。溶融温度は、好ましくはそれぞれの層を形成するポリエステルの融点（Ｔｍ：℃）ないし（Ｔｍ＋７０）℃の温度である。押出した後、急冷固化して積層未延伸フィルムとした後、二軸延伸する。

本発明で規定する両方向のヤング率、さらにαｔやαｈを満足させるには、その後の延伸を進行させやすくすることから、冷却ドラムによる冷却を非常に速やかに行うことが好ましい。そのような観点から、冷却ドラムの温度は、特許文献

３に記載されるような８０℃といった高温ではなく、２０～６０℃という低温で行うことが好ましい。このような低温で行うことで、未延伸フィルムの状態での結晶化が抑制され、その後の延伸をよりスムーズに行うことができる。

二軸延伸は、逐次二軸延伸でも同時二軸延伸でもよい。ここでは、逐次二軸延伸で、縦延伸、横延伸および熱処理をこの順で行う製造方法を一例として挙げて説明する。まず、最初の縦延伸はそれぞれのフィルム層を形成するポリエステルのガラス転移温度（Ｔｇ：℃）ないし（Ｔｇ＋４０）℃の温度で、３～８倍に延伸し、次いで横方向に先の縦延伸よりも高温で（Ｔｇ＋１０）～（Ｔｇ＋５０）℃の温度で３～８倍に延伸し、さらに熱処理としてポリマーの融点以下の温度でかつ（Ｔｇ＋５０）～（Ｔｇ＋１５０）℃の温度で１～２０秒熱固定処理するのが好ましい。特に、突起を均一としつつ寸法安定性高める観点からは、熱固定処理の温度を１８０～２２０℃、さらに好ましくは１９０～２１０℃の範囲で１～１５秒行うことが好ましい。

前述の説明は逐次二軸延伸について説明したが、本発明の積層フィルムは縦延伸と横延伸とを同時に行う同時二軸延伸でも製造でき、例えば先で説明した延伸倍率や延伸温度などを参考にすればよい。

本発明の積層フィルムの厚みは、用途に応じて適宜決めればよく、磁気記録テープのベースフィルムに用いる場合は、２～１０μｍ、さらに３～７μｍ、特に４～６μｍの範囲が好ましい。

なお、粒子を含有させる方法については、それ自体公知の方法を採用でき、例えばポリエステルの製造工程において、反応系に添加しても良いし、ポリエステルに溶融混練によって添加してもよい。粒子の分散性の点から、好ましくはポリエステルの反応系に添加して、粒子濃度の高いポリエステル組成物をマスターポリマーとして製造し、それを粒子を含まないか、粒子濃度の低いポリエステル組成物と混ぜ合わせる方法が好ましい。

本発明の二軸配向積層フィルムは、寸法安定性、平坦性、巻取性、耐削れ性に優れ、加熱処理による伸びが小さく、耐カール性に優れるので磁気記録媒体のベースフィルムに用いることができる。即ち、本発明によれば、本発明の積層フィ

ルムをベースフィルムとし、そのフィルム層Ａ側の表面に非磁性層および磁性層がこの順で形成され、フィルム層Ｂ側の表面にバックコート層を形成することなどで磁気記録テープが提供される。

実施例

以下に実施例及び比較例を挙げ、本発明をより具体的に説明する。なお、本発明では、以下の方法により、その特性を測定および評価した。

（１）固有粘度

得られた芳香族ポリエステルの固有粘度はＰ－クロロフェノール／１，１，２，２－テトラクロロエタン（４０／６０重量比）の混合溶媒を用いてポリマーを溶解して３５℃で測定して求めた。

（２）ガラス転移点および融点

ガラス転移点、融点はＤＳＣ（ＴＡインスツルメンツ（株）製、商品名：Ｔｈｅｒｍａｌ　ｌｙｓｔ２１００）により昇温速度２０℃／ｍｉｎで測定した。

（３）共重合量

グリコール成分は、試料１０ｍｇをｐ－クロロフェノール：１，１，２，２－テトラクロロエタン＝３：１（容積比）混合溶液０．５ｍｌに８０℃で溶解した。イソプロピルアミンを加えて、十分に混合した後に６００Ｍの^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日立電子製　ＪＥＯＬ　Ａ６００）にて８０℃で測定した。

芳香族ジカルボン酸成分は、試料５０ｍｇをｐ－クロロフェノール：１，１，２，２－テトラクロロエタン＝３：１混合溶液０．５ｍｌに１４０℃で溶解し、４００Ｍ　１３Ｃ－ＮＭＲ（日立電子　ＪＥＯＬ　Ａ６００）にて１４０℃で測定した。

（４）ヤング率

得られたフィルムを試料幅１０mm、長さ１５ｃｍで切り取り、チャック間１００mm、引張速度１０mm／分、チャート速度５００mm／分の条件で万能引張試験装置（東洋ボールドウィン製、商品名：テンシロン）にて引っ張り、得られた荷重―伸び曲線の立ち上がり部の接線よりヤング率を計算した。

（５）温度膨張係数（αｔ）

得られたフィルムを、フィルムの製膜方向または幅方向が測定方向となるように長さ１５mm、幅５mmに切り出し、真空理工製ＴＭＡ３０００にセットし、窒素雰囲気下（０％ＲＨ）、６０℃で３０分前処理し、その後、室温まで降温させた後、２５℃から７０℃まで2℃／ｍｉｎで昇温して、各温度でのサンプル長を測定し、次式より温度膨張係数（αｔ）を算出した。なお、測定方向が切り出した試料の長手方向であり、５回測定し、その平均値を用いた。

$$\alpha t = \{(L60 - L40)\} / (L40 \times \triangle T)\} + 0.5$$

ここで、上記式中のＬ４０は４０℃のときのサンプル長（mm）、Ｌ６０は６０℃のときのサンプル長（mm）、△Ｔは２０（＝６０－４０）℃、０．５は石英ガラスの温度膨張係数（ｐｐｍ／℃）である。

（６）湿度膨張係数（αｈ）

得られたフィルムを、フィルムの製膜方向または幅方向が測定方向となるように長さ１５mm、幅５mmに切り出し、真空理工製ＴＭＡ３０００にセットし、３０℃の窒素雰囲気下で、湿度３０％ＲＨと湿度７０％ＲＨにおけるそれぞれのサンプルの長さを測定し、次式にて湿度膨張係数（αｈ）を算出した。なお、測定方向が切り出した試料の長手方向であり、５回測定し、その平均値をαｈとした。

$$\alpha h = (L70 - L30) / (L30 \times \triangle H)$$

ここで、上記式中のＬ３０は３０％ＲＨのときのサンプル長（mm）、Ｌ７０は７０％ＲＨのときのサンプル長（mm）、△Ｈ：４０（＝７０－３０）％ＲＨである。

（７）中心面平均粗さ（Ｒａ）

Ｚｙｇｏ社製　非接触三次元表面構造解析顕微鏡（ＮｅｗＶｉｅｗ５０２２）を用いて測定倍率２５倍、測定面積２８３μm×２１３μm（＝０．０６０３mm^2）の条件にて測定し、該粗さ計に内蔵された表面解析ソフトにより中心面平均粗さＲａを以下の式より求めた。

$$Ra=\sum_{k=1}^{M}\sum_{j=1}^{N}|Z_{jk}-\bar{Z}|/(M\cdot N)$$

ここで

$$\bar{Z}=\sum_{k=1}^{M}\sum_{j=1}^{N}Z_{jk}/(M\cdot N)$$

Z_{jk}は測定方法（２８３μm)、それと直行する方法（２１３μm）をそれぞれM分割、N分割したときの各方向のｊ番目、ｋ番目の位置における２次元粗さチャート上の高さである。

（８）巻取性

スリット速度６０m／分で、スリット幅１，０００mmのサイズで、８，０００m巻いた時の巻き上がったフィルムロールを観察し、以下の基準で巻取性を評価した。

◎ ： シワが見られない

○ ： シワが多少見られるが、実用的には問題ないレベル

× ： シワが多数発生

（９）電磁変換特性

電磁変換特性測定には、ヘッドを固定した１／２インチリニアシステムを用いた。記録は、電磁誘導型ヘッド（トラック幅２５μm、ギャップ０．１μm）を用い、再生はＭＲヘッド（８μm）を用いた。ヘッド／テープの相対速度は１０m／秒とし、記録波長０．２μmの信号を記録し、再生信号をスペクトラムアナライザーで周波数分析し、キャリア信号（波長０．２μm）の出力Ｃと、スペクトル全域の積分ノイズＮの比をＣ／Ｎ比とし、実施例１を０ｄＢとした相対値を求め、以下の基準で、評価した。

◎ ： ＋１ｄＢ以上

○ ： －１ｄＢ以上、＋１ｄＢ未満

× ： －１ｄＢ未満

なお、電磁変換特性測定に供する磁気記録テープは、以下の方法で作成した。まず、各実施例及び比較例で得られたフィルムの一方の表面（積層フィルムの場

合はフィルム層Ｂの表面）に下記組成のバックコート層塗料をダイコータで塗布し、乾燥させた後、フィルムの他方の表面（積層フィルムの場合はフィルム層Ａの表面）に下記組成の非磁性塗料、磁性塗料をダイコータで同時に膜厚を変えて塗布し、磁気配向させて乾燥させる。さらに、小型テストカレンダー装置（スチールロール／ナイロンロール、５段）で、温度：７０℃、線圧：２００ｋｇ／ｃｍでカレンダー処理した後、７０℃、４８時間キュアリングする。上記テープを１２．６５mmにスリットし、カセットに組み込み磁気記録テープとした。なお、乾燥後のバックコート層、非磁性層および磁性層の厚みは、それぞれ０．５μｍ、１．２μｍおよび０．１μｍであった。

＜非磁性塗料の組成＞

・二酸化チタン微粒子 ：１００重量部
・エスレックＡ（積水化学製塩化ビニル／酢酸ビニル共重合体） ：１０重量部
・ニッポラン２３０４（日本ポリウレタン製
ポリウレタンエラストマー） ：１０重量部
・コロネートＬ（日本ポリウレタン製ポリイソシアネート） ：　５重量部
・レシチン ：　１重量部
・メチルエチルケトン ：７５重量部
・メチルイソブチルケトン ：７５重量部
・トルエン ：７５重量部
・カーボンブラック ：　２重量部
・ラウリン酸 ：１．５重量部

＜磁性塗料の組成＞

・鉄（長さ：０．３μｍ、針状比：１０／１、１８００エルステッド）：
１００重量部
・エスレックＡ（積水化学製塩化ビニル／酢酸ビニル共重合体 ：１０重量部
・ニッポラン２３０４（日本ポリウレタン製ポリウレタンエラストマー）：
１０重量部
・コロネートＬ（日本ポリウレタン製ポリイソシアネート） ：　５重量部

・レシチン : １重量部
・メチルエチルケトン : ７５重量部
・メチルイソブチルケトン : ７５重量部
・トルエン : ７５重量部
・カーボンブラック : ２重量部
・ラウリン酸 : １．５重量部

＜バックコート層塗料の組成＞

カーボンブラック : １００重量部
熱可塑性ポリウレタン樹脂 : ６０重量部
イソシアネート化合物 : １８重量部
（日本ポリウレタン工業（株）製コロネートＬ）
シリコーンオイル : ０．５重量部
メチルエチルケトン : ２５０重量部
トルエン : ５０重量部

（１０）積層フィルムおよびフィルム層の厚み

積層フィルムを層間の空気を排除しながら１０枚重ね、ＪＩＳ規格のＣ２１５１に準拠し、（株）ミツトヨ製ダイヤルゲージＭＤＣ－２５Ｓを用いて、１０枚重ね法にて厚みを測定し、１枚当りのフィルム厚みを計算する。この測定を１０回繰り返して、その平均値を１枚あたりの積層フィルム全体の厚みとした。

一方、フィルム層Ａおよびフィルム層Ｂの厚みは、フィルムの小片をエポキシ樹脂にて固定成形し、ミクロトームにて約６０ｎｍの厚みの超薄切片（フィルムの製膜方向および厚み方向に平行に切断する）を作成する。この超薄切片の試料を透過型電子顕微鏡（日立製作所製Ｈ－８００型）にて観察し、フィルム層Ａとフィルム層Ｂのポリマーが異なり、境界が観察できる場合はその境界からフィルム層ＡとＢの厚みを求め、境界が観察できないような同種のポリマーの場合は、不活性粒子の存在量が変化する厚みの位置を、それぞれの表面側からそれぞれ１００箇所求め、それらの平均値からＡ層とＢ層の厚みを求めた。

（１１）フィルムの生産性

フィルム層Ｂに入れられる回収チップの回収可能比率から、以下の基準で、評価した。

◎ ： ６０％以上

○ ： ４０％以上、６０％未満

× ： ４０％未満

（１２）粒子の平均粒子径

試料フィルム小片を走査型電子顕微鏡用試料台に固定し、日本電子（株）製スパッターリング装置（ＪＦＣ－１１００型イオンエッチング装置）を用いてフィルム表面に下記条件にてイオンエッチング処理を施す。条件は、ベルジャー内に試料を設置し、約１０－３Ｔｏｒｒの真空状態まで真空度を上げ、電圧０．２５ｋＶ、電流１２．５ｍＡにて約１０分間イオンエッチングを実施する。更に同装置にて、フィルム表面に金スパッターを施し、走査型電子顕微鏡にて５，０００～１０，０００倍で観察し、日本レギュレーター（株）製ルーゼックス５００にて各粒子の面積円相当径を１０００個求め、それらの平均を平均粒子径とした。

なお、複数種の粒子が併用されている場合は、面積円相当径を横軸、縦軸を頻度とする粒度分布を作成し、ピークの最大高さに対して高さが半分に満たない谷部に挟まれたピークを一つの粒子とし、それぞれの粒子について平均粒子径を算出した。

（１３）粒子の含有量

ポリエステル樹脂は溶解し粒子は溶解させない溶媒を選択し、ポリエステル樹脂を溶解処理した後、粒子をポリエステル樹脂から遠心分離し、粒子の全体重量に対する比率（重量％）をもって粒子の含有量とする。尚、複数種の粒子が併存する場合は、前述の「（６）粒子の面積円相当径（μｍ）」の測定結果に基づき、それぞれの粒子の存在比率から含有量を算出した。

（１４）耐削れ性

幅１２．５ｍｍにスリットしたフィルムのＢ面側を、市販の剃刀に接触させ、６０ｍ／分の速度で走行させたとき剃刀に付着する白粉の量で評価し、次のランク付けした。

◎：白粉の発生がほとんどない

○：白粉がうっすらと発生

×：白粉の発生が多い

（１５）加工時の伸びによる塗布斑

幅５００mmにスリットされた長さ５００mのフィルムサンプルを用意し、２０ＭＰａの張力条件で、一方の表面に、上記組成の非磁性塗料、磁性塗料をダイコータで同時に、乾燥後の非磁性層および磁性層の厚みが、それぞれ１．２μmおよび０．１μmとなるように膜厚を変えて塗布し、磁気配向させて１２０℃×３０秒の条件で乾燥させる。さらに、小型テストカレンダー装置（スチールロール／ナイロンロール、５段）で、温度：７０℃、線圧：２００ｋｇ／ｃｍでカレンダー処理した後、７０℃、４８時間キュアリングする。そして、得られた磁性層付フィルムについて、目視判定により、以下の基準で塗布斑を評価した。なお、目視判定は、フィルムの裏側に蛍光灯を設置し、磁性層の抜けによる光の漏れをカウントすることで行ない、この磁性層付フィルムを必要に応じてバックコート層などを設けた上で、幅１２．６５mmにスリットし、カセットに組み込みことで磁気記録テープにできる。

○：塗布抜けが２個／２５０m^2 未満

△：塗布抜けが２個／２５０m^2 以上１０個／２５０m^2 未満

×：塗布抜けが１０個／２５０m^2 以上

（１６）粘弾性測定

フィルムサンプルをフィルムの製膜方向（ＭＤ）に長さ３５mm、幅方向（ＴＤ）に幅３mmとなるように切り、オリエンテック（株）製のバイブロン装置（ＤＤＶ－０１ＦＰ）を用い、荷重３ｇ、周波数１Ｈｚで室温から２００℃まで５℃／分で昇温して、ＭＤ方向に測定する。得られたチャートよりｔａｎδのピーク温度及びピーク強度を求める。

（１７）カール

フィルムサンプルをフィルムの製膜方向（ＭＤ）に長さ２５０mm、幅方向（ＴＤ）に幅１００mmとなるように切り取り、２０ＭＰａの荷重で１２０℃

×１分処理し、カールの度合いを下記基準により判断した。

○：カールなし

△：フィルムサンプルの四方のみが軽くめくれる程度のカール。

×：フィルムサンプルが筒状に丸まる程のカール

実施例１

（芳香族ポリエステルの製造）

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．６６ｄｌ／ｇで、酸成分の７３モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の２７モル％が６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９８モル％がエチレングリコール成分、グリコール成分の２モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用の芳香族ポリエステル（Ａ－１）を得た。なお、芳香族ポリエステルには、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％含有させた。この芳香族ポリエステル（Ａ－１）の融点は２４０℃、ガラス転移温度は１１７℃であった。

また平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．１５重量％と、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％含有させた以外は同様にして、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステル（Ｂ－１）を得た。この芳香族ポリエステル（Ｂ－１）の融点は２４０℃、ガラス転移温度は１１７℃であった。

（積層）

得られた芳香族ポリエステル（Ａ－１）と（Ｂ－１）とを、それぞれ別の押し出し機に供給して２９０℃で厚み比が１：２となるようダイ内で積層し、溶融状態で回転中の温度５０℃の冷却ドラム上にシート状に押し出し未延伸積層フィルムとした。そして、製膜方向に沿って回転速度の異なる二組のローラー間で、上方よりＩＲヒーターにてフィルム表面温度が１３５℃になるように加熱して縦方

向（製膜方向）の延伸を、延伸倍率５．６倍で行い、一軸延伸フィルムを得た。そして、この一軸延伸フィルムをステンターに導き、１４０℃で横方向（幅方向）に延伸倍率７．７倍で延伸し、その後１９０℃で１０秒間熱固定処理を行い、厚さ５μｍの二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表１に示す。

実施例２

（芳香族ポリエステルの製造）

実施例１において、含有する不活性粒子を平均粒径０．１５μｍのシリカ粒子に変更し、かつその含有量を０．２重量％に変更した以外、芳香族ポリエステル（Ａ－１）と同様な操作を繰り返して芳香族ポリエステル（Ａ－２）を製造した。

また、実施例１において、含有する不活性粒子を、平均粒径０．５μｍのシリコーン粒子と平均粒径０．１５μｍのシリカ粒子とに変更し、かつそれらの含有量をそれぞれ０．０２重量％と０．２重量％に変更した以外は、芳香族ポリエステル（Ｂ－１）と同様な操作を繰り返して、芳香族ポリエステル（Ｂ－２）製造した。

（積層）

得られた芳香族ポリエステル（Ａ－２）をフィルム層Ａ用に、また芳香族ポリエステル（Ｂ－２）をフィルム層Ｂ用とし、それぞれ別の押し出し機に供給して２９０℃で厚み比が１：１となるようダイ内で積層し、溶融状態で回転中の温度５０℃の冷却ドラム上にシート状に押し出し未延伸積層フィルムとした以外は、実施例１と同様な操作を繰り返して、二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表１に示す。

実施例３

（芳香族ポリエステルの製造）

芳香族ポリエステル（Ａ－１）の不活性粒子を、平均粒径０．０５μｍのシリカ粒子０．３重量％に変更した以外、実施例１と同様にして、フィルム層Ａ用の

芳香族ポリエステル（Ａ－３）を製造した。

また芳香族ポリエステル（Ｂ－１）の不活性粒子を、平均粒径０．２μｍのシリカ粒子０．２重量％と、平均粒径０．０５μｍのシリカ粒子０．３重量％に変更した以外は実施例１と同様にしてフィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステル（Ｂ－３）を製造した。

（積層）

得られた芳香族ポリエステル（Ａ－３）と（Ｂ－３）とを、それぞれ別の押し出し機に供給して２９０℃で厚み比が１：４となるようダイ内で積層し、溶融状態で回転中の温度５０℃の冷却ドラム上にシート状に押し出し未延伸積層フィルムとした以外は、実施例１と同様な操作を繰り返して、二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表１に示す。

実施例４

（芳香族ポリエステルの製造）

芳香族ポリエステル（Ａ－１）の不活性粒子を、平均粒径（一次粒子径）０．０６μｍのアルミナ粒子０．２重量％に変更した以外、実施例１と同様にしてフィルム層Ａ用の芳香族ポリエステル（Ａ－４）を製造した。

芳香族ポリエステル（Ｂ－１）の不活性粒子を、平均粒径０．３μｍの架橋ポリスチレン粒子０．１５重量％と、平均粒径（一次粒子径）０．０６μｍのアルミナ粒子０．２重量％に変更した以外、実施例１と同様にして、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステル（Ｂ－４）を製造した。

（積層）

得られた芳香族ポリエステル（Ａ－４）と（Ｂ－４）とを、それぞれ別の押し出し機に供給して２９０℃で厚み比が１：２となるようダイ内で積層し、溶融状態で回転中の温度５０℃の冷却ドラム上にシート状に押し出し未延伸積層フィルムとした以外は、実施例１と同様な操作を繰り返して、二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表１に示す。

実施例５

（芳香族ポリエステルの製造）

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．７２ｄｌ／ｇで、酸成分の９４モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の６モル％が６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９９モル％がエチレングリコール成分、１モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用の芳香族ポリエステル（Ａ－５）を得た。なお、芳香族ポリエステル（Ａ－５）には、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％含有させた。この芳香族ポリエステル（Ａ－５）の融点は２５５℃、ガラス転移温度は１１９℃であった。

また、不活性粒子を平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．１５重量％と、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更した以外は芳香族ポリエステル（Ａ－５）と同様にして、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステル（Ｂ－５）を得た。この芳香族ポリエステル（Ｂ－５）の融点は２５５℃、ガラス転移温度は１１９℃であった。

（積層）

得られた芳香族ポリエステルを、実施例１と同様にして未延伸積層フィルムとし、製膜方向に沿って回転速度の異なる二組のローラー間で、上方よりＩＲヒーターにてフィルム表面温度が１４０℃になるように加熱して縦方向（製膜方向）の延伸を、延伸倍率５．３倍で行い、一軸延伸フィルムを得た。そして、この一軸延伸フィルムをステンターに導き、１４０℃で横方向（幅方向）に延伸倍率４．０倍で延伸し、その後２００℃で１０秒間熱固定処理を行い、厚さ５μｍの二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表１に示す。

実施例６

（芳香族ポリエステルの製造）

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．７７ｄｌ／ｇで、酸成分の８０モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の２０モル％が６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９９モル％がエチレングリコール成分、１モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用の芳香族ポリエステル（Ａ－６）を得た。なお、芳香族ポリエステル（Ａ－６）には、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％含有させた。この芳香族ポリエステル（Ａ－６）の融点は２５２℃、ガラス転移温度は１１６℃であった。

また、不活性粒子を、平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．１５重量％と、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更した以外は芳香族ポリエステル（Ａ－６）と同様にして、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステル（Ｂ－６）を得た。この芳香族ポリエステル（Ｂ－６）の融点は２５２℃、ガラス転移温度は１１６℃であった。

（積層）

得られた芳香族ポリエステルを、実施例１と同様にして積層未延伸フィルムとし、製膜方向に沿って回転速度の異なる二組のローラー間で、上方よりＩＲヒーターにてフィルム表面温度が１３５℃になるように加熱して縦方向（製膜方向）の延伸を、延伸倍率５．５倍で行い、一軸延伸フィルムを得た。そして、この一軸延伸フィルムをステンターに導き、１４０℃で横方向（幅方向）に延伸倍率４．３倍で延伸し、その後２１０℃で１０秒間熱固定処理を行い、未延伸フィルムの厚みを調整して厚さ５μｍの二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表１に示す。

実施例７

（芳香族ポリエステルの製造）

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．７７ｄｌ／ｇで、酸成分の６５モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の３５モル％が６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９８モル％がエチレングリコール成分、２モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用の芳香族ポリエステル（Ａ－７）を得た。なお、芳香族ポリエステル（Ａ－７）には、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％含有させた。この芳香族ポリエステル（Ａ－７）の融点は２４７℃、ガラス転移温度は１１６℃であった。

また、不活性粒子を、平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．１５重量％と、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更した以外は芳香族ポリエステル（Ａ－７）と同様にして、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステル（Ｂ－７）を得た。この芳香族ポリエステル（Ｂ－７）の融点は２４７℃、ガラス転移温度は１１６℃であった。

（積層）

得られた芳香族ポリエステルを、押し出し機に供給して２９０℃でダイから溶融状態で回転中の温度５０℃の冷却ドラム上にシート状に押し出し未延伸フィルムとした。そして、製膜方向に沿って回転速度の異なる二組のローラー間で、上方よりＩＲヒーターにてフィルム表面温度が１４０℃になるように加熱して縦方向（製膜方向）の延伸を、延伸倍率５．５倍で行い、一軸延伸フィルムを得た。そして、この一軸延伸フィルムをステンターに導き、１４０℃で横方向（幅方向）に延伸倍率６．０倍で延伸し、その後２１０℃で１０秒間熱固定処理を行い、未延伸フィルムの厚みを調整して厚さ５μｍの二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表１に示す。

実施例８

（芳香族ポリエステルの製造）

テレフタル酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．７３ｄｌ／ｇで、酸成分の６５モル％がテレフタル酸成分、酸成分の３５モル％が６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９８．５モル％がエチレングリコール成分、１．５モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用の芳香族ポリエステル（Ａ－８）を得た。なお、芳香族ポリエステル（Ａ－８）には、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％含有させた。この芳香族ポリエステル（Ａ－８）の融点は２３３℃、ガラス転移温度は９１℃であった。

また、不活性粒子を、平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．１５重量％と、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更した以外は芳香族ポリエステル（Ａ－８）と同様にして、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステル（Ｂ－８）を得た。この芳香族ポリエステル（Ｂ－８）の融点は２３３℃、ガラス転移温度は９１℃であった。

（積層）

得られた芳香族ポリエステルを、実施例１と同様にして積層未延伸フィルムとし、、製膜方向に沿って回転速度の異なる二組のローラー間で、上方よりＩＲヒーターにてフィルム表面温度が１１０℃になるように加熱して縦方向（製膜方向）の延伸を、延伸倍率５．０倍で行い、一軸延伸フィルムを得た。そして、この一軸延伸フィルムをステンターに導き、１２０℃で横方向（幅方向）に延伸倍率６．０倍で延伸し、その後２１０℃で３秒間熱固定処理を行い、未延伸フィルムの厚みを調整して厚さ５μｍの二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表１に示す。

実施例９

（芳香族ポリエステルの製造）

テレフタル酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．６８ｄｌ／ｇで、酸成分の８０モル％がテレフタル酸成分、酸成分の２０モル％が６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９８モル％がエチレングリコール成分、２モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用の芳香族ポリエステル（Ａ－９）を得た。なお、芳香族ポリエステル（Ａ－９）には、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％含有させた。この芳香族ポリエステル（Ａ－９）の融点は２３０℃、ガラス転移温度は８５℃であった。

また、不活性粒子を平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．１５重量％と、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更した以外は芳香族ポリエステル（Ａ－９）と同様にして、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステル（Ｂ－９）を得た。この芳香族ポリエステル（Ｂ－９）の融点は２３０℃、ガラス転移温度は８５℃であった。

（積層）

得られた芳香族ポリエステルを、実施例１と同様にして積層未延伸フィルムとした。そして、製膜方向に沿って回転速度の異なる二組のローラー間で、上方よりＩＲヒーターにてフィルム表面温度が１０５℃になるように加熱して縦方向（製膜方向）の延伸を、延伸倍率５．０倍で行い、一軸延伸フィルムを得た。そして、この一軸延伸フィルムをステンターに導き、１１５℃で横方向（幅方向）に延伸倍率５．２倍で延伸し、その後２１０℃で３秒間熱固定処理を行い、未延伸フィルムの厚みを調整して厚さ５μｍの二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表１に示す。

実施例１０

（芳香族ポリエステルの製造）

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．７０ｄｌ／ｇで、酸成分の７０モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の３０モル％が６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９８モル％がエチレングリコール成分、２モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用の芳香族ポリエステル（Ａ－１０）を得た。なお、芳香族ポリエステル（Ａ－１０）には、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％含有させた。この芳香族ポリエステル（Ａ－１０）の融点は２６８℃、ガラス転移温度は１０１℃であった。

また、不活性粒子を平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．１５重量％と、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更した以外は芳香族ポリエステル（Ａ－１０）と同様にして、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステル（Ｂ－１０）を得た。この芳香族ポリエステル（Ｂ－１０）の融点は２６８℃、ガラス転移温度は１０１℃であった。

（積層）

得られた芳香族ポリエステルを、押し出し機に供給して３００℃でダイから溶融状態で回転中の温度５０℃の冷却ドラム上にシート状に押し出し未延伸フィルムとした。そして、製膜方向に沿って回転速度の異なる二組のローラー間で、上方よりＩＲヒーターにてフィルム表面温度が１３５℃になるように加熱して縦方向（製膜方向）の延伸を、延伸倍率３．０倍で行い、一軸延伸フィルムを得た。そして、この一軸延伸フィルムをステンターに導き、１４０℃で横方向（幅方向）に延伸倍率３．８倍で延伸し、その後２００℃で１０秒間熱固定処理を行い、未延伸フィルムの厚みを調整して厚さ５μｍの二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表１に示す。

実施例１１

フィルム層Ａとフィルム層Ｂの厚み比（Ａ：Ｂ）を２：１に変更した以外は、実施例１と同様に行い、二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表１に示す。

比較例１（単層フィルム）

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．６６ｄｌ／ｇで、酸成分の７３モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の２７モル％が６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９８モル％がエチレングリコール成分、グリコール成分の２モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム単層用の芳香族ポリエステル（Ａ－１１）を得た。なお、芳香族ポリエステル（Ａ－１１）には、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．１５重量％含有させた。この芳香族ポリエステル（Ａ－１１）の融点は２４０℃、ガラス転移温度は１１７℃であった。

得られた芳香族ポリエステルを、溶融状態で回転中の温度５０℃の冷却ドラム上にシート状に押し出し未延伸（単層）フィルムとした以外は、実施例１と同様な操作を繰り返して、二軸配向フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表１に示す。

比較例２（単層フィルム）

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．６６ｄｌ／ｇで、酸成分の７３モル％が２，６－ナ

フタレンジカルボン酸成分、酸成分の２７モル％が６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９８モル％がエチレングリコール成分、２モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム単層用の芳香族ポリエステル（Ａ－１２）を得た。なお、芳香族ポリエステル（Ａ－１２）には、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％含有させた。この芳香族ポリエステル（Ａ－１２）の融点は２４０℃、ガラス転移温度は１１７℃であった。

得られた芳香族ポリエステルを、溶融状態で回転中の温度５０℃の冷却ドラム上にシート状に押し出し未延伸（単層）フィルムとした以外は、実施例１と同様な操作を繰り返して、二軸配向フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表１に示す。

比較例３

（芳香族ポリエステルの製造）

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチルとエチレングリコールとを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．６２ｄｌ／ｇで、グリコール成分の１．５モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用のポリエチレン－２，６－ナフタレート（Ａ－１３）を得た。なお、ポリエチレン－２，６－ナフタレート（Ａ－１３）には、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％含有させた。

また、不活性粒子を平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．１５重量％と、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更した以外は同様にして、フィルム層Ｂ用のポリエチレン－２，６－ナフタレート（Ｂ－１１）を得た。これらのポリエチレン－２，６－ナフタレート（Ａ－１３）と（Ｂ－１１）の融点は２７０℃、ガラス転移温度は１２０℃であった。

（積層）

そして、実施例１と同様にして未延伸積層フィルムとした。そして、製膜方向

に沿って回転速度の異なる二組のローラー間で、上方よりＩＲヒーターにてフィルム表面温度が１４０℃になるように加熱して縦方向（製膜方向）の延伸を、延伸倍率３．０倍で行い、一軸延伸フィルムを得た。そして、この一軸延伸フィルムをステンターに導き、１４０℃で横方向（幅方向）に延伸倍率４．３倍で延伸し、その後２００℃で１０秒間熱固定処理を行い、厚さ５μｍの二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表１に示す。

比較例４

比較例３において、製膜方向の延伸温度を１４０℃に、製膜方向の延伸倍率を４．０倍に、幅方向の延伸温度を１４０℃に、幅方向の延伸倍率を４．０倍に、熱固定処理温度を２００℃に、そして未延伸フィルムの厚みを変更するほかは同様な操作を繰り返して厚さ５μｍの二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表１に示す。

比較例５

比較例３において、製膜方向の延伸温度を１４０℃に、製膜方向の延伸倍率を４．５倍に、幅方向の延伸温度を１４０℃に、幅方向の延伸倍率を３．４倍に、熱固定処理温度を２００℃に、そして未延伸フィルムの厚みを変更するほかは同様な操作を繰り返して厚さ５μｍの二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表１に示す。

表1

	ポリエステル組成物				フィルム厚み		
	フィルム層A		フィルム層B		厚み比	比率	全層
	組成物種	ANA割合	組成物種	ANA割合	B層／A層	B層／全層	
	－	モル%	－	モル%	－	%	μm
実施例1	A－1	27	B－1	27	2／1	66.7	5
実施例2	A－2	27	B－2	27	1／1	50.0	5
実施例3	A－3	27	B－3	27	4／1	80.0	5
実施例4	A－4	27	B－4	27	2／1	66.7	5
実施例5	A－5	6	B－5	6	2／1	66.7	5
実施例6	A－6	20	B－6	20	2／1	66.7	5
実施例7	A－7	35	B－7	35	2／1	66.7	5
実施例8	A－8	35	B－8	35	2／1	66.7	5
実施例9	A－9	20	B－9	20	2／1	66.7	5
実施例10	A－10	70	B－10	70	2／1	66.7	5
実施例11	A－1	27	B－1	27	1／2	33.3	5
比較例1	A－11	27	－	－	単層	－	5
比較例2	A－12	27	－	－	単層	－	5
比較例3	A－13	0	B－11	0	2／1	66.7	5
比較例4	A－13	0	B－11	0	2／1	66.7	5
比較例5	A－13	0	B－11	0	2／1	66.7	5
参考例1	－						

表1（つづき）

	フィルム物性						表面粗さ		フィルム特性		
	ヤング率(Y)		湿度膨張係数(αh)		温度膨張係数(αt)		B面	A面	巻取性	電磁変換特性	フィルム生産性
	MD	TD	MD	TD	MD	TD					
	GPa	GPa	ppm／%RH	ppm／%RH	ppm／℃	ppm／℃	nm	nm	−	−	−
実施例1	6.0	8.6	5.5	4.5	7.0	−3.0	8.0	3.0	◎	○	◎
実施例2	6.0	8.6	5.5	4.5	7.0	−3.0	6.0	5.0	◎	○	○
実施例3	6.0	8.6	5.5	4.5	7.0	−3.0	7.0	2.0	○	◎	◎
実施例4	6.0	8.6	5.5	4.5	7.0	−3.0	8.0	4.0	◎	○	◎
実施例5	7.3	6.4	6.7	7.6	6.2	2.5	8.0	4.0	◎	○	◎
実施例6	7.0	5.7	5.6	9.4	6.5	11.6	8.0	4.0	◎	○	◎
実施例7	5.5	8.4	5.0	3.8	10.5	0.1	8.0	4.0	◎	○	◎
実施例8	4.0	7.0	6.0	4.0	14	3.0	8.0	4.0	◎	○	◎
実施例9	4.9	5.0	7.9	7.8	10.6	13.5	8.0	4.0	◎	○	◎
実施例10	4.1	6.0	7.0	6.4	16	11.9	8.0	4.0	◎	○	◎
実施例11	6.0	8.6	5.5	4.5	7.0	−3.0	8.0	3.0	◎	◎	×
比較例1	6.0	8.6	5.5	4.5	7.0	−3.0	8.0	8.0	◎	×	◎
比較例2	6.0	8.6	5.5	4.5	7.0	−3.0	2.0	2.0	×	◎	◎
比較例3	5.5	9.5	13.5	8.6	14	−3.8	8.0	4.0	◎	○	◎
比較例4	7.1	7.3	11.5	10.5	7.1	4.5	8.0	4.0	◎	○	◎
比較例5	9.2	5.7	8.9	13.5	−2.0	13.5	8.0	4.0	◎	○	◎
参考例1	4.8	10.9	4.5〜6		16.5〜19		−	−	−	−	−

表１中の、Ａ－１～１３およびＢ－１～１１は、それぞれ各実施例で説明した芳香族ポリエステルの種類、ＡＮＡ割合は全酸成分中の６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分のモル％、ＭＤはフィルムの製膜方向、ＴＤはフィルムの幅方向を示す。

実施例１２

（芳香族ポリエステルの製造）

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．６６ｄｌ／ｇで、酸成分の７３モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の２７モル％が６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９８モル％がエチレングリコール成分、２モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用の芳香族ポリエステル（Ａ）を得た。なお、芳香族ポリエステルには、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．０３重量％含有させた。この芳香族ポリエステル（Ａ）の融点は２４０℃、ガラス転移温度は１１７℃であった。

また平均粒径０．１μｍのシリカ粒子０．２重量％を含有させた以外は同様にして、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステルを得た。この芳香族ポリエステル（Ｂ）の融点は２４０℃、ガラス転移温度は１１７℃であった。

（積層）

このようにして得られた芳香族ポリエステル（Ａ）と（Ｂ）とを、それぞれ別の押し出し機に供給して２９０℃で厚み比が４：１となるようダイ内で積層し、溶融状態で回転中の温度５０℃の冷却ドラム上にシート状に押し出し未延伸積層フィルムとした。そして、製膜方向に沿って回転速度の異なる二組のローラー間で、上方よりＩＲヒーターにてフィルム表面温度が１３５℃になるように加熱して縦方向（製膜方向）の延伸を、延伸倍率５．６倍で行い、一軸延伸フィルムを

得た。そして、この一軸延伸フィルムをステンターに導き、１４０℃で横方向（幅方向）に延伸倍率８．０倍で延伸し、その後１９０℃で１０秒間熱固定処理を行い、厚さ５μｍの二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムは、温度膨張係数がＭＤ方向１０ｐｐｍ／℃およびＴＤ方向－２．０ｐｐｍ／℃、湿度膨張係数がＭＤ方向６．５ｐｐｍ／％ＲＨおよびＴＤ方向４．０ｐｐｍ／％ＲＨであり、その他の特性を表２に示す。

実施例１３

実施例１２において、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステルに含有する粒子を平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．１重量％および小粒子として平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更し、芳香族ポリエステル（Ａ）と（Ｂ）との厚み比を３：２に変更した以外は同様な操作を繰り返した。得られた二軸配向積層フィルムは、温度膨張係数がＭＤ方向１０ｐｐｍ／℃およびＴＤ方向－２．０ｐｐｍ／℃、湿度膨張係数がＭＤ方向６．５ｐｐｍ／％ＲＨおよびＴＤ方向４．０ｐｐｍ／％ＲＨであり、その他の特性を表２に示す。

実施例１４

実施例１２において、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステルに含有する粒子を平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．１重量％および小粒子として平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更し、芳香族ポリエステル（Ａ）と（Ｂ）との厚み比を４：１に変更した以外は同様な操作を繰り返した。得られた二軸配向積層フィルムは、温度膨張係数がＭＤ方向１０ｐｐｍ／℃およびＴＤ方向－２．０ｐｐｍ／℃、湿度膨張係数がＭＤ方向６．５ｐｐｍ／％ＲＨおよびＴＤ方向４．０ｐｐｍ／％ＲＨであり、その他の特性を表２に示す。

実施例１５

実施例１２において、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステルに含有する粒子を平均粒径０．８μｍの架橋シリコーン粒子を０．０１重量％および小粒子として

平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更し、芳香族ポリエステル（Ａ）と（Ｂ）との厚み比を４５：５に変更した以外は同様な操作を繰り返した。得られた二軸配向積層フィルムは、温度膨張係数がＭＤ方向１０ｐｐｍ／℃およびＴＤ方向－２．０ｐｐｍ／℃、湿度膨張係数がＭＤ方向６．５ｐｐｍ／％ＲＨおよびＴＤ方向４．０ｐｐｍ／％ＲＨであり、その他の特性を表２に示す。

実施例１６

実施例１２において、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステルに含有する粒子を平均粒径０．６μｍの架橋ポリスチレン粒子を０．０２重量％および小粒子として平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更し、芳香族ポリエステル（Ａ）と（Ｂ）との厚み比を４８：２に変更以外は同様な操作を繰り返した。得られた二軸配向積層フィルムは、温度膨張係数がＭＤ方向１０ｐｐｍ／℃およびＴＤ方向－２．０ｐｐｍ／℃、湿度膨張係数がＭＤ方向６．５ｐｐｍ／％ＲＨおよびＴＤ方向４．０ｐｐｍ／％ＲＨであり、その他の特性を表２に示す。

実施例１７

（芳香族ポリエステルの製造）

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．７２ｄｌ／ｇで、酸成分の９４モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の６モル％が６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９９モル％がエチレングリコール成分、１モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用の芳香族ポリエステル（Ａ）を得た。なお、芳香族ポリエステルには、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．０３重量％含有させた。

また平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．１重量％および小粒子として平均

粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更した以外は同様にして、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステル（Ｂ）を得た。これら芳香族ポリエステル（Ａ）および芳香族ポリエステル（Ｂ）の融点は２５５℃、ガラス転移温度は１１９℃であった。

（積層）

このようにして得られた芳香族ポリエステルを、実施例１４と同様にして未延伸積層フィルムとし、製膜方向に沿って回転速度の異なる二組のローラー間で、上方よりＩＲヒーターにてフィルム表面温度が１４０℃になるように加熱して縦方向（製膜方向）の延伸を、延伸倍率５．３倍で行い、一軸延伸フィルムを得た。そして、この一軸延伸フィルムをステンターに導き、１４０℃で横方向（幅方向）に延伸倍率４．０倍で延伸し、その後２００℃で１０秒間熱固定処理を行い、厚さ５μｍの二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムは、温度膨張係数がＭＤ方向４ｐｐｍ／℃およびＴＤ方向８ｐｐｍ／℃、湿度膨張係数がＭＤ方向８．５ｐｐｍ／％ＲＨおよびＴＤ方向１０．０ｐｐｍ／％ＲＨであり、その他の特性を表２に示す。

実施例１８

（芳香族ポリエステルの製造）

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．７７ｄｌ／ｇで、酸成分の８０モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の２０モル％が６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９９モル％がエチレングリコール成分、１モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用の芳香族ポリエステル（Ａ）を得た。なお、芳香族ポリエステルには、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．０３重量％含有させた。

また平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．１重量％および小粒子として平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更した以外は同様にして、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステル（Ｂ）を得た。これらの芳香族ポリエステルの融点は２５２℃、ガラス転移温度は１１６℃であった。

（積層）

このようにして得られた芳香族ポリエステルを、実施例１４と同様にして積層未延伸フィルムとし、製膜方向に沿って回転速度の異なる二組のローラー間で、上方よりＩＲヒーターにてフィルム表面温度が１３５℃になるように加熱して縦方向（製膜方向）の延伸を、延伸倍率５．５倍で行い、一軸延伸フィルムを得た。そして、この一軸延伸フィルムをステンターに導き、１４０℃で横方向（幅方向）に延伸倍率４．３倍で延伸し、その後２１０℃で１０秒間熱固定処理を行い、厚さ５μｍの二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムは、温度膨張係数がＭＤ方向６．０ｐｐｍ／℃およびＴＤ方向１２ｐｐｍ／℃、湿度膨張係数がＭＤ方向７．０ｐｐｍ／％ＲＨおよびＴＤ方向９．０ｐｐｍ／％ＲＨであり、その他の特性を表２に示す。

実施例１９

（芳香族ポリエステルの製造）

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．７７ｄｌ／ｇで、酸成分の６５モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の３５モル％が６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９８モル％がエチレングリコール成分、２モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用の芳香族ポリエステル（Ａ）を得た。なお、芳香族ポリエステルには、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．０３重量％含有させた。

また平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．１重量％および小粒子として平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更した以外は同様にして、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステル（Ｂ）を得た。これらの芳香族ポリエステルの融点は２４７℃、ガラス転移温度は１１６℃であった。

（積層）

得られた芳香族ポリエステルを、実施例１４と同様にして積層未延伸フィルムとし、製膜方向に沿って回転速度の異なる二組のローラー間で、上方よりＩＲヒーターにてフィルム表面温度が１４０℃になるように加熱して縦方向（製膜方向）の延伸を、延伸倍率５．５倍で行い、一軸延伸フィルムを得た。そして、この一軸延伸フィルムをステンターに導き、１４０℃で横方向（幅方向）に延伸倍率６．０倍で延伸し、その後２１０℃で１０秒間熱固定処理を行い、厚さ５μｍの二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムは、温度膨張係数がＭＤ方向１３．０ｐｐｍ／℃およびＴＤ方向０ｐｐｍ／℃、湿度膨張係数がＭＤ方向７．０ｐｐｍ／％ＲＨおよびＴＤ方向４．０ｐｐｍ／％ＲＨであり、その他の特性を表２に示す。

実施例２０

（芳香族ポリエステルの製造）

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．７０ｄｌ／ｇで、酸成分の３０モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の７０モル％が６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９８モル％がエチレングリコール成分、２モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用の芳香族ポリエステル（Ａ）を得た。なお、芳香族ポリエステルには、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．０３重量％含有させた。

また平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．１重量％および小粒子として平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更した以外は同様にして、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステル（Ｂ）を得た。これらの芳香族ポリエステルの融点は２６８℃、ガラス転移温度は１０１℃であった。

（積層）

得られた芳香族ポリエステルを、実施例１４と同様にして積層未延伸フィルムとし、製膜方向に沿って回転速度の異なる二組のローラー間で、上方よりＩＲヒーターにてフィルム表面温度が１３５℃になるように加熱して縦方向（製膜方向）の延伸を、延伸倍率３．０倍で行い、一軸延伸フィルムを得た。そして、この一軸延伸フィルムをステンターに導き、１４０℃で横方向（幅方向）に延伸倍率３．８倍で延伸し、その後２００℃で１０秒間熱固定処理を行い、厚さ５μｍの二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムは、温度膨張係数がＭＤ方向１６ｐｐｍ／℃およびＴＤ方向１０ｐｐｍ／℃、湿度膨張係数がＭＤ方向８．０ｐｐｍ／％ＲＨおよびＴＤ方向６．０ｐｐｍ／％ＲＨであり、その他の特性を表２に示す。

実施例２１

（芳香族ポリエステルの製造）

テレフタル酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．７３ｄｌ／ｇで、酸成分の６５モル％がテレフタル酸成分、酸成分の３５モル％が６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９８．５モル％がエチレングリコール成分、１．５モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用の芳香族ポリエステル（Ａ）を得た。なお、芳香族ポリエステルには、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．０３重量％含有させた。

また平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．１重量％および小粒子として平均

粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更した以外は同様にして、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステル（Ｂ）を得た。これらの芳香族ポリエステルの融点は２３３℃、ガラス転移温度は９１℃であった。

（積層）

このようにして得られた芳香族ポリエステルを、実施例１４と同様にして積層未延伸フィルムとし、製膜方向に沿って回転速度の異なる二組のローラー間で、上方よりＩＲヒーターにてフィルム表面温度が１１０℃になるように加熱して縦方向（製膜方向）の延伸を、延伸倍率５．０倍で行い、一軸延伸フィルムを得た。そして、この一軸延伸フィルムをステンターに導き、１２０℃で横方向（幅方向）に延伸倍率６．０倍で延伸し、その後２１０℃で３秒間熱固定処理を行い、厚さ５μｍの二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムは、温度膨張係数がＭＤ方向２０ｐｐｍ／℃およびＴＤ方向５．０ｐｐｍ／℃、湿度膨張係数がＭＤ方向８．０ｐｐｍ／％ＲＨおよびＴＤ方向５．０ｐｐｍ／％ＲＨであり、その他の特性を表２に示す。

実施例２２

（芳香族ポリエステルの製造）

テレフタル酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．６８ｄｌ／ｇで、酸成分の８０モル％がテレフタル酸成分、酸成分の２０モル％が６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９８モル％がエチレングリコール成分、２モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用の芳香族ポリエステル（Ａ）を得た。なお、芳香族ポリエステルには、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．０３重量％含有させた。

また平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．１重量％および小粒子として平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更した以外は同様にして、フィ

ルム層Ｂ用の芳香族ポリエステル（Ｂ）を得た。これらの芳香族ポリエステルの融点は２３０℃、ガラス転移温度は８５℃であった。

（積層）

得られた芳香族ポリエステルを、実施例１４と同様にして積層未延伸フィルムとした。そして、製膜方向に沿って回転速度の異なる二組のローラー間で、上方よりＩＲヒーターにてフィルム表面温度が１０５℃になるように加熱して縦方向（製膜方向）の延伸を、延伸倍率５．０倍で行い、一軸延伸フィルムを得た。そして、この一軸延伸フィルムをステンターに導き、１１５℃で横方向（幅方向）に延伸倍率５．２倍で延伸し、その後２１０℃で３秒間熱固定処理を行い、厚さ５μｍの二軸積層フィルムを得た。得られたフィルムは、温度膨張係数がＭＤ方向１５ｐｐｍ／℃およびＴＤ方向１５ｐｐｍ／℃、湿度膨張係数がＭＤ方向９．５ｐｐｍ／％ＲＨおよびＴＤ方向９．５ｐｐｍ／％ＲＨであり、その他の特性を表２に示す。

比較例６

実施例１２において、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステルに含有する粒子を平均粒径０．８μｍの架橋シリコーン粒子を０．０１重量％および小粒子として平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更し、芳香族ポリエステル（Ａ）と（Ｂ）との厚み比を４９：１に変更した以外は同様な操作を繰り返した。得られた二軸配向積層フィルムの特性を表２に示す。

比較例７

実施例１２において、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステルに含有する粒子を平均粒径０．０５μｍのシリカ粒子を０．２重量％に変更し、芳香族ポリエステル（Ａ）と（Ｂ）との厚み比を４３：７に変更した以外は同様な操作を繰り返した。得られた二軸配向積層フィルムの特性を表２に示す。

比較例８

（芳香族ポリエステルの製造）

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチルとエチレングリコールとを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．６２ｄｌ／ｇで、グリコール成分の１．５モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用の芳香族ポリエステル（ポリエチレン－２，６－ナフタレート）（Ａ）を得た。なお、芳香族ポリエステルには、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．０３重量％含有させた。

また平均粒径０．５μｍの架橋シリコーン粒子を０．０３重量％および小粒子として平均粒径０．１μｍのシリカ粒子を０．１重量％に変更した以外は同様にして、フィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステル（ポリエチレン－２，６－ナフタレート）（Ｂ）を得た。これら芳香族ポリエステル（Ａ）および芳香族ポリエステル（Ｂ）の融点は２７０℃、ガラス転移温度は１２０℃であった。

（積層）

このようにして得られた芳香族ポリエステル（Ａ）と（Ｂ）とを、それぞれ別の押し出し機に供給して２９０℃で厚み比が４：１となるようダイ内で積層し、溶融状態で回転中の温度５０℃の冷却ドラム上にシート状に押し出し未延伸積層フィルムとした。そして、製膜方向に沿って回転速度の異なる二組のローラー間で、上方よりＩＲヒーターにてフィルム表面温度が１４０℃になるように加熱して縦方向（製膜方向）の延伸を、延伸倍率４．０倍で行い、一軸延伸フィルムを得た。そして、この一軸延伸フィルムをステンターに導き、１４５℃で横方向（幅方向）に延伸倍率５．４倍で延伸し、その後２００℃で１０秒間熱固定処理を行い、厚さ５μｍの二軸延伸フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表２に示す。

表2

	フィルム層B										フィルム層A				
	酸成分		粒子1				粒子2				酸成分		フィルム層Aの粒子		
	ANA	他成分	種類	平均粒径	含有量	粒径/厚み	種類	平均粒径	含有量	粒径/厚み	ENA	他成分	種類	平均	含有量
	モル%	種類	—	μm	重量%	—	—	μm	重量%	—	モル%	種類	—	μm	重量%
実施例12	27	NA	シリカ	0.1	0.20	10.0	—	—	—	—	27	NA	シリカ	0.1	0.03
実施例13	27	NA	シリカ	0.3	0.10	6.67	シリカ	0.1	0.1	20	27	NA	シリカ	0.1	0.03
実施例14	27	NA	シリカ	0.3	0.10	3.33	シリカ	0.1	0.1	10	27	NA	シリカ	0.1	0.03
実施例15	27	NA	架橋シリコーン	0.8	0.01	0.63	シリカ	0.1	0.1	5	27	NA	シリカ	0.1	0.03
実施例16	27	NA	架橋ポリスチレン	0.6	0.02	0.33	シリカ	0.1	0.1	2	27	NA	シリカ	0.1	0.03
実施例17	6	NA	シリカ	0.3	0.10	3.33	シリカ	0.1	0.1	10	6	NA	シリカ	0.1	0.03
実施例18	20	NA	シリカ	0.3	0.10	3.33	シリカ	0.1	0.1	10	20	NA	シリカ	0.1	0.03
実施例19	35	NA	シリカ	0.3	0.10	3.33	シリカ	0.1	0.1	10	35	NA	シリカ	0.1	0.03
実施例20	70	NA	シリカ	0.3	0.10	3.33	シリカ	0.1	0.1	10	70	NA	シリカ	0.1	0.03
実施例21	35	TA	シリカ	0.3	0.10	3.33	シリカ	0.1	0.1	10	35	TA	シリカ	0.1	0.03
実施例22	20	TA	シリカ	0.3	0.10	3.33	シリカ	0.1	0.1	10	20	TA	シリカ	0.1	0.03
比較例6	27	NA	架橋シリコーン	0.8	0.01	0.13	シリカ	0.1	0.1	1	27	NA	シリカ	0.1	0.03
比較例7	27	NA	シリカ	0.05	0.20	14.0	—	—	—	—	27	NA	シリカ	0.1	0.03
比較例8	—	NA	架橋シリコーン	0.5	0.03	2.00	シリカ	0.1	0.1	10	—	NA	シリカ	0.1	0.03

表２（つづき）

	二軸配向積層フィルム									
	フィルム厚み			ヤング率		表面粗さRa		耐削れ性		巻取性
	B層 (t_B)	A層 (t_A)	全層 (t)	MD	TD	B面	A面	B面		
	μm	μm	μm	GPa	GPa	nm	nm	—		—
実施例12	1.0	4.0	5.0	6.0	9.0	5	2	◎		○
実施例13	2.0	3.0	5.0	6.0	9.0	7	3	◎		◎
実施例14	1.0	4.0	5.0	6.0	9.0	7	2	◎		◎
実施例15	0.5	4.5	5.0	6.0	9.0	6	2	○		◎
実施例16	0.2	4.8	5.0	6.0	9.0	6	2	○		◎
実施例17	1.0	4.0	5.0	7.3	6.4	7	2	○		◎
実施例18	1.0	4.0	5.0	7.0	5.7	7	2	◎		◎
実施例19	1.0	4.0	5.0	5.5	8.4	7	2	◎		◎
実施例20	1.0	4.0	5.0	4.9	6.0	7	2	◎		◎
実施例21	1.0	4.0	5.0	4.0	7.0	7	2	◎		◎
実施例22	1.0	4.0	5.0	4.9	5.0	7	2	◎		◎
比較例6	0.1	4.9	5.0	6.0	9.0	6	2	×		◎
比較例7	0.7	4.3	5.0	6.0	9.0	4	1.5	◎		×
比較例8	1.0	4.0	5.0	6.0	9.0	6	2	×		◎

実施例２３

（芳香族ポリエステルの製造）

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチルとエチレングリコールとを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行い、グリコール成分の１．５モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用のポリエチレン－２，６－ナフタレート（Ａ－１）を得た。なお、ポリエチレン－２，６－ナフタレート（３Ａ－１）には、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．１５μｍのシリカ粒子を０．１重量％含有させた。

また、２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行い、酸成分の７３モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の２７モル％が６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９８モル％がエチレングリコール成分、グリコール成分の２モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステル（３Ｂ－１）を得た。なお、芳香族ポリエステルには、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．１５重量％、平均粒径０．１５μｍのシリカ粒子を０．１０重量％含有させた。この芳香族ポリエステル（３Ｂ－１）の融点は２４０℃、ガラス転移温度は１１７℃であった。

（積層）

このようにして得られた芳香族ポリエステル（３Ａ－１）と（３Ｂ－１）とを、それぞれ別の押し出し機に供給して２９５℃で厚み比が１：２となるようダイ内で積層し、溶融状態で回転中の温度５０℃の冷却ドラム上にシート状に押し出し未延伸積層フィルムとした。そして、製膜方向に沿って回転速度の異なる二組のローラー間で、上方よりＩＲヒーターにてフィルム表面温度が１３５℃になるように加熱して縦方向（製膜方向）の延伸を、延伸倍率５．３倍で行い、一軸延伸

フィルムを得た。そして、この一軸延伸フィルムをステンターに導き、１４５℃で横方向（幅方向）に延伸倍率６．０倍で延伸し、その後１９０℃で５秒間熱固定処理を行い、厚さ５μｍの二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表３に示す。

実施例２４

実施例２３において、含有する不活性粒子を表３に示すように変更し、Ｂ層とＡ層の厚み比率が１：１となるように変更する以外は、実施例２３と同様な操作を繰り返して、二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表３に示す。

実施例２５

実施例２３において、含有する不活性粒子を表３に示すように変更し、Ｂ層とＡ層の厚み比率が４：１となるように変更する以外は、実施例２３と同様な操作を繰り返して、二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表３に示す。

実施例２６

実施例２３において、含有する不活性粒子を表３に示すように変更する以外は、実施例２３と同様な操作を繰り返して、二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表３に示す。

実施例２７

実施例２３において、縦の延伸倍率を５．５倍、横の延伸倍率を５．３倍に変更する以外は、実施例２３と同様な操作を繰り返して、二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表３に示す。

実施例２８

実施例２３において、縦の延伸倍率を５．０倍、横の延伸倍率を７．５倍に変更する以外は、実施例２３と同様な操作を繰り返して、二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表３に示す。

実施例２９

実施例２３において、フィルム層Ｂの芳香族ポリエステルを、酸成分の６５モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の３５モル％が６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分であるものに変更する以外は、実施例２３と同様な操作を繰り返して、二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表３に示す。

実施例３０

実施例２３において、フィルム層Ｂの芳香族ポリエステルを、酸成分の７２モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の１８モル％が６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分であるものに変更する以外は、実施例２３と同様な操作を繰り返して、二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表３に示す。

比較例９

実施例２３において、二軸配向積層フィルムをフィルム層Ｂの単層フィルムと変更する以外は、実施例２３と同様な操作を繰り返して、二軸配向フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表３に示す。

比較例１０

（芳香族ポリエステルの製造）

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチルとエチレングリコールとを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．６２ｄｌ／ｇで、グリコール

成分の１．５モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ｂ用のポリエチレン－２，６－ナフタレート（３Ｂ－１１）を得た。なお、ポリエチレン－２，６－ナフタレート（３Ｂ－１１）には、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．３０μｍのシリカ粒子を０．１５重量％、平均粒径０．１５μｍのシリカ粒子を０．１０重量％含有させた。

（積層）

実施例２３において、フィルム層Ｂの芳香族ポリエステルを（３Ｂ－１１）のポリエステルに変更し、縦の延伸倍率を５．０倍、横の延伸倍率を６．４倍、横の延伸温度を１５０℃に変更する以外は実施例２３と同様な操作を繰り返して、二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表３に示す。

実施例３１

実施例２３において、Ｂ層とＡ層の厚み比率が１：２となるように変更する以外は、実施例２３と同様な操作を繰り返して、二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表３に示す。

比較例１１

実施例２３において、フィルム層Ａの芳香族ポリエステルを、酸成分の９４モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の６モル％が６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分であるものに変更する以外は、実施例２３と同様な操作を繰り返して、二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表３に示す。

実施例３２

実施例２３において、含有する不活性粒子を表３に示すように変更し、積層構成を表２に示すようにＡ層／Ｂ層／Ａ層の３層構成で厚みの比率が１／４／１に変更する以外は実施例２３と同様な操作を繰り返して、二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表３に示す。

実施例３３

実施例２３において、フィルム層Ａの芳香族ポリエステルを、酸成分の９８モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の２モル％が６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分であるものに変更する以外は、実施例２３と同様な操作を繰り返して、二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表３に示す。

表3

	フィルム層B									フィルム層A					
	粒子①			粒子②			ANA	Tg	Tm	粒子			ANA	Tg	Tm
	種類	平均粒径	含有量	種類	平均粒径	含有量	割合			種類	平均粒径	含有量	割合		
		μm	重量%		μm	重量%	mol%	℃	℃		μm	重量%	mol%	℃	℃
実施例23	シリカ	0.30	0.15	シリカ	0.15	0.10	27	117	238	シリカ	0.15	0.10	0	120	270
実施例24	シリコーン	0.50	0.02	シリカ	0.10	0.15	27	117	238	シリカ	0.10	0.15	0	120	270
実施例25	シリカ	0.15	0.15	シリカ	0.05	0.30	27	117	238	シリカ	0.05	0.30	0	120	270
実施例26	Pst	0.30	0.07	アルミナ	0.06	0.20	27	117	238	アルミナ	0.06	0.20	0	120	270
実施例27	シリカ	0.30	0.15	シリカ	0.15	0.10	27	117	238	シリカ	0.15	0.10	0	120	270
実施例28	シリカ	0.30	0.15	シリカ	0.15	0.10	27	117	238	シリカ	0.15	0.10	0	120	270
実施例29	シリカ	0.30	0.15	シリカ	0.15	0.10	35	116	243	シリカ	0.15	0.10	0	120	270
実施例30	シリカ	0.30	0.15	シリカ	0.15	0.10	18	117	255	シリカ	0.15	0.10	0	120	270
比較例9	シリカ	0.30	0.15	シリカ	0.15	0.10	27	117	238	（単層）					
比較例10	シリカ	0.30	0.15	シリカ	0.15	0.10	0	120	270	シリカ	0.15	0.10	0	120	270
実施例31	シリカ	0.30	0.15	シリカ	0.15	0.10	27	117	238	シリカ	0.15	0.10	0	120	270
比較例11	シリカ	0.30	0.15	シリカ	0.15	0.10	27	117	238	シリカ	0.15	0.10	6	119	255
実施例32	シリカ	0.30	0.15				27	117	238	シリカ	0.3	0.15	0	120	270
実施例33	シリカ	0.30	0.15	シリカ	0.15	0.10	27	117	238	シリカ	0.15	0.10	2	120	265

表3（つづき）

	フィルム厚み			フィルム特性								塗布斑
	厚み比 B層／A層	比率 B層／全層 %	全層	ヤング率(Y) GPa		湿度膨張係数(αh) ppm/%RH		温度膨張係数(αt) ppm/℃		表面粗さ nm		tanδ ピーク温度 ℃	
				MD	TD	MD	TD	MD	TD	B面	A面		
実施例23	2/1	67	5.0	5.5	7.1	8.2	6.1	12.9	4.8	8.0	3.0	147	○
実施例24	1/1	50	5.0	5.5	7.1	9.3	7.1	13.8	5.0	7.6	2.6	147	○
実施例25	4/1	80	5.0	5.5	7.2	6.5	5.1	11.0	4.2	8.7	3.5	147	△
実施例26	2/1	67	5.0	5.5	7.1	8.2	6.1	12.9	4.8	7.3	2.9	147	○
実施例27	2/1	67	5.0	7.6	6.1	5.6	7.3	2.0	10.5	7.9	3.2	150	○
実施例28	2/1	67	5.0	5.3	8.6	8.5	4.6	14.1	−3.7	8.1	3.1	146	○
実施例29	2/1	67	5.0	5.5	7.1	6.0	4.9	8.1	4.7	8.6	3.2	147	○
実施例30	2/1	67	5.0	5.5	7.1	9.5	7.5	14.0	5.1	7.5	2.8	147	○
比較例9	-	-	5.0	5.8	8.5	5.6	4.4	7.5	−2.6	8.2	8.1	125	×
比較例10	2/1	67	5.0	5.5	9.5	13.5	8.6	14.0	−3.8	7.3	2.3	155	○
実施例31	1/2	33	5.0	5.5	7.1	12.0	7.3	13.0	5.0	6.3	2.0	147	○
比較例11	2/1	67	5.0	5.5	7.1	6.1	4.7	12.3	4.8	8.0	3.1	130	×
実施例32	A/B/A=1/4/1	67	5.0	5.5	7.1	8.2	6.1	12.9	4.8	6.3	6.2	147	○
実施例33	2/1	67	5.0	5.5	7.1	8.0	5.9	12.9	4.9	8.0	3.1	144	○

ここで、表３中の、Ｐｓｔは架橋ポリスチレン粒子、ＡＮＡ割合は、全酸成分のモル数を基準としたときの、６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分の割合を意味し、実施例１０の表面粗さは冷却ドラムと接する側をＢ面とし、その反対面をＡ面とした。

実施例３４

（芳香族ポリエステルの製造）

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチルとエチレングリコールとを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行い、グリコール成分の１．５モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用のポリエチレン－２，６－ナフタレート（４Ａ－１）を得た。なお、ポリエチレン－２，６－ナフタレート（４Ａ－１）には、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．３重量％、平均粒径０．１５μｍのシリカ粒子を０．２重量％含有させた。

また、２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行い、酸成分の７３モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の２７モル％が６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９８モル％がエチレングリコール成分、グリコール成分の２モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ｂ用の芳香族ポリエステル（４Ｂ－１）を得た。この芳香族ポリエステル（４Ｂ－１）の融点は２４０℃、ガラス転移温度は１１７℃であった。

（積層）

このようにして得られた芳香族ポリエステル（４Ａ－１）と（４Ｂ－１）を１７０℃で６時間乾燥後、押出し機に供給し、２９５℃まで加熱して溶融状態とし、（４Ａ－１）の層用ポリエステルを１０１層、（４Ｂ－１）の層用ポリエステル

を１００層に分岐させた後、（４Ａ－１）の層と（４Ｂ－１）の層が交互に積層するような多層フィードブロック装置を使用して、その積層状態を保持したままダイへと導き、溶融状態で回転中の温度５０℃の冷却ドラム上にシート状に押し出し、（４Ａ－１）の層と（４Ｂ－１）の層が交互に積層された総数２０１層の未延伸多層積層フィルムを作成した。尚、Ｂ層とＡ層の吐出比率は２：１とした。そして、製膜方向に沿って回転速度の異なる二組のローラー間で、上方よりＩＲヒーターにてフィルム表面温度が１３５℃になるように加熱して縦方向（製膜方向）の延伸を、延伸倍率５．３倍で行い、一軸延伸フィルムを得た。そして、この一軸延伸フィルムをステンターに導き、１４５℃で横方向（幅方向）に延伸倍率６．０倍で延伸し、その後１９０℃で５秒間熱固定処理を行い、厚さ５μｍの二軸配向多層積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表４に示す。

実施例３５

実施例３４において、Ｂ層とＡ層の吐出比率が１：１となるように変更する以外は、実施例３４と同様な操作を繰り返して、二軸配向多層積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表４に示す。

実施例３６

実施例３４において、Ｂ層とＡ層の吐出比率が４：１となるように変更する以外は、実施例３４と同様な操作を繰り返して、二軸配向多層積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表４に示す。

実施例３７

実施例３４において、Ａ層の層数を５１層、Ｂ層の層数を５０層、総数１０１層に変更する以外は、実施例３４と同様な操作を繰り返して、二軸配向多層積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表４に示す。

実施例３８

実施例３４において、縦の延伸倍率を５．５倍、横の延伸倍率を５．３倍に変更する以外は、実施例３４と同様な操作を繰り返して、二軸配向多層積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表４に示す。

実施例３９

実施例３４において、縦の延伸倍率を５．０倍、横の延伸倍率を７．５倍に変更する以外は、実施例３４と同様な操作を繰り返して、二軸配向多層積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表４に示す。

実施例４０

実施例３４において、フィルム層Ｂの芳香族ポリエステルの酸成分の６５モル％を２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の３５モル％を６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分に変更する以外は、実施例３４と同様な操作を繰り返して、二軸配向多層積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表４に示す。

実施例４１

実施例３４において、フィルム層Ｂの芳香族ポリエステルの酸成分の７２モル％を２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の１８モル％を６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分に変更する以外は、実施例３４と同様な操作を繰り返して、二軸配向多層積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表４に示す。

実施例４２

実施例３４において、フィルム層Ａの芳香族ポリエステルを、酸成分の９８モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の２モル％が６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分であるものに変更する以外は、実施例３４と同様な操作を繰り返して、二軸配向多層積層フィルムを得た。得ら

れたフィルムの特性を表４に示す。

比較例１２

（芳香族ポリエステルの製造）

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチル、６，６’－（エチレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸およびエチレングリコールを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さらに引き続いて重縮合反応を行い、酸成分の７３モル％が２，６－ナフタレンジカルボン酸成分、酸成分の２７モル％が６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分、グリコール成分の９８モル％がエチレングリコール成分、グリコール成分の２モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用の芳香族ポリエステル（４Ａ－９）を得た。なお、芳香族ポリエステルには、重縮合反応前に得られる樹脂組成物の重量を基準として、平均粒径０．３μｍのシリカ粒子を０．３重量％、平均粒径０．１５μｍのシリカ粒子を０．２重量％含有させた。

（積層）

実施例３４において、フィルム層Ａの芳香族ポリエステルを（４Ａ－９）のポリエステルに変更し、縦の延伸倍率を５．８倍、横の延伸倍率を７．７倍、横の延伸温度を１４０℃に変更する以外は実施例３４と同様な操作を繰り返して、二軸配向多層積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表４に示す。

比較例１３

実施例３４において、二軸配向多層積層フィルムをフィルム層Ｂの単層フィルムと変更する以外は、実施例３４と同様な操作を繰り返して、二軸配向フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表４に示す。

比較例１４

２，６－ナフタレンジカルボン酸ジメチルとエチレングリコールとを、チタンテトラブトキシドの存在下でエステル化反応およびエステル交換反応を行い、さ

らに引き続いて重縮合反応を行って、固有粘度０．６２ｄｌ／ｇで、グリコール成分の１．５モル％がジエチレングリコール成分であるフィルム層Ａ用のポリエチレン－２，６－ナフタレート（４Ｂ－１１）を得た。実施例３４において、フィルム層Ｂの芳香族ポリエステルを（４Ｂ－１１）のポリエステルに変更し、縦の延伸倍率を５．０倍、横の延伸倍率を６．４倍、横の延伸温度を１５０℃に変更する以外は実施例３４と同様な操作を繰り返して、二軸配向多層積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表４に示す。

比較例１５

実施例３４において、１層のＢ層と１層のＡ層の２層積層フィルムと変更する以外は、実施例３４と同様な操作を繰り返して、二軸配向積層フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表４に示す。

表4

	フィルム層B				フィルム層A				フィルム厚み			
	ANA割合	層数	Tg	Tm	ANA割合	層数	Tg	Tm	厚み比B層／A層	比率B層／全層	全層数	全層
	mol%	層	℃	℃	mol%	層	℃	℃	ー／ー	%	層	μm
実施例34	27	100	117	238	0	101	120	270	2/1	67	201	5.0
実施例35	27	100	117	238	0	101	120	270	1/1	50	201	5.0
実施例36	27	100	117	238	0	101	120	270	4/1	80	201	5.0
実施例37	27	50	117	238	0	51	120	270	2/1	67	101	5.0
実施例38	27	100	117	238	0	101	120	270	2/1	67	201	5.0
実施例39	27	100	117	238	0	101	120	270	2/1	67	201	5.0
実施例40	35	100	116	243	0	101	120	270	2/1	67	201	5.0
実施例41	18	100	117	255	0	101	120	270	2/1	67	201	5.0
実施例42	27	100	117	238	2	101	120	265	2/1	67	201	5.0
比較例12	27	100	117	238	27	101	117	238	2/1	67	201	5.0
比較例13	27	-	117	238	単層				-	-	-	5.0
比較例14	0	100	120	270	0	101	120	270	2/1	67	201	5.0
比較例15	27	1	117	238	0	1	120	270	2/1	67	2	5.0

表４（つづき）

	フィルム特性					塗布斑	カール
	ヤング率(Y)GPa		湿度膨張係数(αh) ppm／%RH		tanδ ピーク温度 ℃		
	MD	TD	MD	TD			
実施例34	6.0	8.0	7.5	5.2	140	○	○
実施例35	6.0	8.1	8.7	5.9	140	○	○
実施例36	5.9	8.1	6.5	4.9	140	△	○
実施例37	6.0	7.9	7.5	5.3	140	○	○
実施例38	7.6	6.1	5.6	7.3	145	○	○
実施例39	5.3	8.6	8.5	4.6	138	○	○
実施例40	6.0	8.0	6.3	4.7	140	○	○
実施例41	6.0	8.0	8.0	6.0	140	○	○
実施例42	6.0	8.0	7.3	5.0	139	○	○
比較例12	5.8	8.5	5.6	4.4	125	×	○
比較例13	5.8	8.5	5.6	4.4	125	×	○
比較例14	5.5	9.5	13.5	8.6	155	○	○
比較例15	5.5	7.1	8.2	6.1	147	○	×

ここで、表４中の、ＡＮＡ割合は、全酸成分のモル数を基準としたときの、６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエ酸成分の割合、Ｔｇがガラス転移温度、Ｔｍは融点を意味する。

発明の効果

本発明の積層フィルムは、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレン－２，６－ナフタレンカルボキシレート、ポリアルキレン－６，６’－（アルキレンジオキシ）ジ－２－ナフトエートでは達成できない、優れた寸法安定性を有する。特に、本発明の積層フィルムは、高温化で荷重を負荷したときの伸びが小さく、高温加工後のしわの発生を防止することができる。本発明の多層積層フィルムは、熱処理してもカールが発生し難い。

また本発明の積層フィルムは、優れた平坦性と巻取性とを有する。また本発明の積層フィルムは、フィルム層の厚みに対して比較的大きな粒子を含有させてもボイドが少なく耐削れ性に優れる。

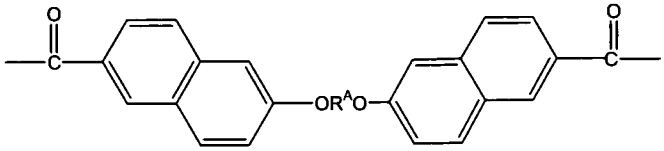
産業上の利用可能性

本発明の積層フィルムは、温度および湿度に対する優れた寸法安定性を有するので、高密度磁気記録媒体のベースフィルムとして好適に使用することができる。

請 求 の 範 囲

1． フィルム層Aの片面にフィルム層Bが積層され、フィルム層B側の表面粗さ（RaB）がフィルム層A側の表面粗さ（RaA）よりも1nm以上大きい二軸配向積層フィルムであって、

少なくとも一方のフィルム層は、グリコール成分および下記式（A）

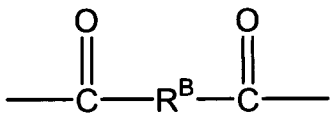


（A）

（式（A）中R^Aは、炭素数1～10のアルキレン基を示す。）

で表される単位を5モル%以上80モル%未満含有するジカルボン酸成分を有する芳香族ポリエステル（I）からなる前記フィルム。

2． 芳香族ポリエステル（I）は、ジカルボン酸成分として、5モル%以上80モル%未満の式（A）で表される単位および20モル%を超え95モル%以下の下記式（B）

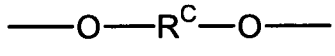


（B）

（式（B）中、R^Bはフェニレン基またはナフタレンジイル基である。）

で表される単位を有する請求項1記載のフィルム。

3． 芳香族ポリエステル（I）は、ジオール成分として、90～100モル%の下記式（C）



（C）

（式（C）中、R^Cは炭素数2～10のアルキレン基である。）

で表される単位を有する請求項1記載のフィルム。

4． 芳香族ポリエステル（I）のP－クロロフェノール／1，1，2，2－テ

トラクロロエタン（重量比４０／６０）の混合溶媒を用いて３５℃で測定した固有粘度が、０．４～１．５ｄｌ／ｇである請求項１記載のフィルム。

５．　フィルム層Ｂは、芳香族ポリエステル（Ｉ）からなる請求項１記載のフィルム。

６．　フィルム層Ａおよびフィルム層Ｂが、芳香族ポリエステル（Ｉ）からなる請求項１記載のフィルム。

７．　フィルム層Ａ側の表面粗さ（ＲａＡ）が１～７ｎｍの範囲で、フィルム層Ｂ側の表面粗さ（ＲａＢ）が５～１５ｎｍの範囲にある請求項１記載のフィルム。

８．　フィルム層Ｂの厚みが、積層フィルム全体の厚みに対して、５０～９０％の範囲にある請求項１記載のフィルム。

９．　フィルム層Ｂは、芳香族ポリエステル（Ｉ）および平均粒子径が５０ｎｍ以上を含有し、フィルム層Ｂの厚さ（ｔＢ）に対して平均粒子径（ｄＢ）が下記式（１）を満足する粒子Ｂを最も平均粒子径の大きな粒子として含有する請求項１記載のフィルム。

$$0.2 \leqq tB/dB \leqq 10 \qquad (1)$$

１０．　フィルム層Ｂ側の表面粗さ（ＲａＢ）が５～１０ｎｍの範囲にある請求項７記載のフィルム。

１１．　粒子Ｂが、シリカ粒子および有機高分子粒子からなる群より選ばれる少なくとも一種の粒子である請求項７記載のフィルム。

１２．　有機高分子粒子が、シリコーン樹脂粒子および架橋ポリスチレン粒子か

らなる群より選ばれる少なくとも一種である請求項１１記載のフィルム。

１３．　フィルム層Ｂ側の表面粗さ（ＲａＢ）が、フィルム層Ａ側の表面粗さ（ＲａＡ）よりも１ｎｍ以上大きい請求項９記載のフィルム。

１４．　磁気記録媒体のベースフィルムに用いる請求項１記載のフィルム。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2008/061072

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
B32B27/36(2006.01)i, *G11B5/73*(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)
B32B1/00-43/00, G11B5/73, C08G63/672, C08J5/18

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 1996-2008
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2008 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2008

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.
Y	WO 2002/047889 A1 (Teijin Ltd.), 20 June, 2002 (20.06.02), Claims 17, 18; page 9, line 20 to page 10, line 12; page 10, line 27 to page 11, line 1; examples; table 1 & EP 1346815 B1 & US 6890471 B2	1-14
Y	JP 61-145724 A (Teijin Ltd.), 03 July, 1986 (03.07.86), Claim 1; page 2, lower left column, line 5 to page 3, lower left column, line 2; examples (Family: none)	1-14

☒ 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	Date of mailing of the international search report
26 August, 2008 (26.08.08)	09 September, 2008 (09.09.08)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2008/061072

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 60-221420 A (Teijin Ltd.), 06 November, 1985 (06.11.85), Claims; page 1, lower right column, line 11 to page 2, upper left column, line 2; page 2, upper right column, line 2 to page 3, upper left column, line 6; examples & EP 151299 B1 & US 4581438 A	1-14
P,A	WO 2008/010607 A1 (Teijin Ltd.), 24 January, 2008 (24.01.08), Full text (Family: none)	1-14

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２００８／０６１０７２

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　B32B27/36(2006.01)i, G11B5/73(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.　B32B1/00-43/00, G11B5/73, C08G63/672, C08J5/18

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	１９７１－２００８年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２００８年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２００８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	関連する請求の範囲の番号
Y	WO 2002/047889 A1（帝人株式会社）2002.06.20, 請求の範囲１７，１８，第９ページ第２０行目－第１０ページ第１２行目，第１０ページ第２７行目－第１１ページ第１行目，実施例，表１ & EP 1346815 B1 & US 6890471 B2	1-14
Y	JP 61-145724 A（帝人株式会社）1986.07.03, 特許請求の範囲第１項，第２ページ左下欄第５行目－第３ページ左下欄第２行目，実施例(ファミリーなし)	1-14

☑　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。

＊　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

国際調査を完了した日 ２６．０８．２００８	国際調査報告の発送日 ０９．０９．２００８
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 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）　４Ｓ　４１７０ 平井　裕彰 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４７４

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	関連する請求の範囲の番号
Y	JP 60-221420 A (帝人株式会社) 1985.11.06, 特許請求の範囲, 第１ページ右下欄第１１行目－第２ページ左上欄第２行目, 第２ページ右上欄第２行目－第３ページ左上欄第６行目, 実施例 & EP 151299 B1 & US 4581438 A	1-14
P,A	WO 2008/010607 A1 (帝人株式会社) 2008.01.24, 全文 (ファミリーなし)	1-14