

(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3月19日(19.03.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/054576 A1

- (51) 国際特許分類:
C08J 5/18 (2006.01) *B32B 27/36* (2006.01)
B32B 7/022 (2019.01) *C08G 63/183* (2006.01)
B32B 7/027 (2019.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2019/035003
- (22) 国際出願日: 2019年9月5日(05.09.2019)
- (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 2018-171673 2018年9月13日(13.09.2018) JP
- (71) 出願人: 三菱ケミカル株式会社(MITSUBISHI CHEMICAL CORPORATION)
[JP/JP]; 〒1008251 東京都千代田区丸の内一丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 鈴木 智博 (SUZUKI, Tomohiro);
〒1008251 東京都千代田区丸の内一丁目1番1号 三菱ケミカル株式会社内 Tokyo (JP). 西河 博以(NISHIKAWA, Hiroyuki); 〒1008251 東京都千代田区丸の内一丁目1番1号 三菱ケミカル株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人竹内・市澤国際特許事務所(TAKEUCHI, ICHIZAWA & ASSOCIATES);
〒1070052 東京都港区赤坂2丁目19番8号 赤坂2丁目アネックス6階 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, 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, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, 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,

(54) Title: COPOLYMERIZED POLYESTER FILM

(54) 発明の名称: 共重合ポリエステルフィルム

(57) Abstract: As a novel copolymerized polyester film that is softer and more flexible, while having adequate elongation, strength and heat resistance at the same time, the present invention proposes a copolymerized polyester film which is provided with a copolymerized polyester layer (layer I) that contains a copolymerized polyester A as a main component resin, and which is characterized in that: the copolymerized polyester A is a copolymer of terephthalic acid and "another dicarboxylic acid component" and ethylene glycol and "another alcohol component"; the ratio of the "another dicarboxylic acid component" in the dicarboxylic acid components in the copolymerized polyester is from 5 mol% to 20 mol% (inclusive); the ratio of the "another alcohol component" in the alcohol components in the copolymerized polyester is 1 mol% or more but less than 25 mol%; the storage elastic modulus at 25°C is 2,500 MPa or less; and the storage elastic modulus at 120°C is 10 MPa or more.

(57) 要約: より柔軟であり、よりしなやかであり、それでいて、伸度、強度及び耐熱性を兼ね備えた新たな共重合ポリエステルフィルムとして、共重合ポリエステルAを主成分樹脂として含有する共重合ポリエステル層(Ⅰ層)を備えた共重合ポリエステルフィルムであって、前記共重合ポリエステルAは、テレフタル酸及び「その他のジカルボン酸成分」と、エチレングリコール及び「その他のアルコール成分」との共重合体であり、当該共重合ポリエステルにおいてジカルボン酸成分に占める「その他のジカルボン酸成分」の割合は5mol%以上20mol%以下であり、アルコール成分に占める「その他のアルコール成分」の割合は1mol%以上25mol%未満であり、25℃の貯蔵弾性率が2500MPa以下であり、且つ、120℃の貯蔵弾性率が10MPa以上であることを特徴とする共重合ポリエステルフィルムを提案する。

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：

一 国際調査報告（条約第21条(3)）

明 細 書

発明の名称： 共重合ポリエステルフィルム

技術分野

[0001] 本発明は、共重合ポリエステルを主成分樹脂として含有する共重合ポリエステル層を備えた共重合ポリエステルフィルムに関する。

背景技術

[0002] ポリエステルフィルムとして代表的なポリエチレンテレフタレート（PET）フィルム、特に２軸延伸PETフィルムは、透明性、機械強度、耐熱性、柔軟性などに優れているため、工業材料、光学材料、電子部品材料、電池用包装材など様々な分野に使用されている。

[0003] この種のポリエステルフィルムに関しては、例えば特許文献１において、従来のポリエステルフィルムにない軟質性を発現し、比較的低温および低圧力で成型性に優れる軟質化ポリエステルフィルムとして、フィルムの弾性率 E' が 120°C において 20MPa 以下であり、かつ 180°C において 5MPa 以下であり、フィルムヘーズが 1.0% 以下であり、ジオール構成成分として $1,4$ -シクロヘキサジメタノール単位を $29\sim 32\text{mol}\%$ 含有し、ジカルボン酸構成成分としてイソフタル酸単位を含まないことを特徴とする軟質化ポリエステルフィルムが提案されている。

[0004] また、特許文献２において、ポリエステルフィルムの少なくとも片面に、共重合率が $5\sim 30\text{mol}\%$ である共重合ポリエステル層から成る受像層を積層して成る感熱転写用受像シートが提案されている。

さらに、特許文献３において、平均粒径 $0.1\sim 2.5\mu\text{m}$ 、細孔容積が $0.05\sim 2.5\text{ml/g}$ 、比表面積 $50\sim 600\text{m}^2/\text{g}$ および耐圧縮力が $1\sim 100\text{MPa}$ である滑剤を $0.05\sim 5.0\text{重量}\%$ 含有する共重合ポリエステルからなる二軸配向フィルムであって、該二軸配向フィルムが、固有粘度が $0.50\sim 0.80\text{dl/g}$ 、ガラス転移点が 70°C 以上、融点が $210\sim 250^{\circ}\text{C}$ であり、また該二軸配向フィルム中の粒径 $20\mu\text{m}$ 以上の上

記滑剤の粗大粒子が高々10個/mm²しか含有しないことを特徴とする金属板貼合せ成形加工用ポリエステルフィルムが提案されている。

- [0005] 加えて、特許文献4においては、脂肪族ジカルボン酸成分を全酸成分に対し1～20mol%含有する共重合ポリエステルよりなり、150℃の雰囲気下、100%伸長時のフィルム強度 F_{100} が0.5～5kg/mm²であり、且つ該フィルムの厚さ斑が40%以下であることを特徴とする成形用二軸延伸ポリエステルフィルムが提案されている。

また、特許文献5において、ポリエステル(A)を主成分とするポリエステル(A)層の少なくとも片面に、ポリエステル(B)を主成分とするポリエステル(B)層が積層された積層フィルムであって、該積層フィルムの23℃雰囲気下での弾性率が20～1000MPa、120℃雰囲気下での弾性率が10～200MPa、かつ実質的に無配向であることを特徴とする積層ポリエステルフィルムが提案されている。

- [0006] 近年、画像表示装置として、携帯端末の小型化及び高性能化により身体に装着可能なサイズに小型したコンピュータ（ウェアラブルコンピュータ）が注目されている。

ウェアラブルコンピュータに使われる電子デバイス（ウェアラブル端末）は、腕時計のような人体の身の回りのものに備わっていることが理想的である（特許文献6）。

- [0007] ほかに、次世代の画像表示装置として、自由自在に屈曲可能なフレキシブルディスプレイが注目を浴びている。フレキシブルディスプレイには、有機エレクトロルミネッセンス（有機EL）ディスプレイが主に使用されている。

フレキシブルディスプレイには、薄いガラス基板やプラスチック基板が用いられることから、これら画像表示装置用部材に用いられるポリエステルフィルムには、従来の平面状ディスプレイパネルで必要とされた光学特性や耐久性に加えて、屈曲試験をしても折れなどが発生しないことが要求される。

先行技術文献

特許文献

- [0008] 特許文献1：特開2014-169371号公報
特許文献2：特開平04-086293号公報
特許文献3：特開2000-001552号公報
特許文献4：特開平03-067629号公報
特許文献5：国際公開第09/078304号公報
特許文献6：特開2014-134903号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0009] 前述のように、ウェアラブル端末やフレキシブルディスプレイなどにポリエステルフィルムを用いることを考えると、従来一般的に使用されているポリエステルフィルムに比べて、単に柔軟であるばかりでなく、よりしなやかであり、それでいて、伸度及び強度を有しているポリエステルフィルムを開発する必要があった。また、加熱された際に収縮しない耐熱性も必要であった。
- [0010] そこで本発明の課題は、従来一般的に使用されているポリエステルフィルムに比べて、より柔軟であり、よりしなやかであり、それでいて、伸度、強度及び耐熱性を兼ね備えた新たな共重合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

- [0011] 本発明は、共重合ポリエステルAを主成分樹脂として含有する共重合ポリエステル層（1層）を備えた共重合ポリエステルフィルムであって、
前記共重合ポリエステルAは、テレフタル酸及び「その他のジカルボン酸成分」と、エチレングリコール及び「その他のアルコール成分」との共重合体であり、当該共重合ポリエステルにおいてジカルボン酸成分に占める「その他のジカルボン酸成分」の割合は5mol%以上20mol%以下であり、アルコール成分に占める「その他のアルコール成分」の割合は1mol%

以上 25 mol %未満であり、

25℃の貯蔵弾性率が2500MPa以下であり、且つ、120℃の貯蔵弾性率が10MPa以上であることを特徴とする共重合ポリエステルフィルムを提案する。

[0012] 本発明はまた、1種又は2種以上のポリエステルを含有する共重合ポリエステル層（1層）を備えた共重合ポリエステルフィルムであって、

共重合ポリエステル層（1層）に含まれる全ポリエステルにおいて、ジカルボン酸成分の含有量合計に占める「その他のジカルボン酸成分」の含有量合計の割合は5 mol %以上20 mol %以下であり、アルコール成分の含有量合計に占める「その他のアルコール成分」の含有量合計の割合は1 mol %以上25 mol %未満であり、

25℃の貯蔵弾性率が2500MPa以下であり、且つ、120℃の貯蔵弾性率が10MPa以上であることを特徴とする共重合ポリエステルフィルムを提案する。

発明の効果

[0013] 本発明が提案する共重合ポリエステルフィルムは、常温で柔軟性に優れており、単に柔軟であるだけでなく、よりしなやかであり、それでいて、伸度及び強度を有しており、さらには実用上十分な耐熱性を有することができる。よって、本発明が提案する共重合ポリエステルフィルムは、例えば電池用包装材、画像表示用部材、特にフレキシブルディスプレイやウェアラブル端末などの構成部材として好適に用いることができる。

図面の簡単な説明

[0014] [図1]実施例で行ったたわみ測定法の方法を模式的に示した図である。

発明を実施するための形態

[0015] 次に、本発明の実施形態の一例について説明する。但し、本発明が、次に説明する実施形態に限定されるものではない。

[0016] <本共重合ポリエステルフィルム>

本発明の実施形態の一例に係る共重合ポリエステルフィルム（「本共重合

ポリエステルフィルム」と称する)は、共重合ポリエステルAを主成分樹脂として含有する共重合ポリエステル層(1層)を備えた単層又は積層のフィルムである。

[0017] 本共重合ポリエステルフィルムは、無延伸フィルム(シート)であっても延伸フィルムであってもよい。中でも、一軸方向又は二軸方向に延伸された延伸フィルムであるのが好ましい。その中でも、力学特性のバランスや平面性に優れる点で、二軸延伸フィルムであるのが好ましい。本共重合ポリエステルフィルムが、このような延伸フィルムであれば、120℃の貯蔵弾性率を10MPa以上とすることが容易となる傾向がある。

[0018] <共重合ポリエステル層(1層)>

共重合ポリエステル層(1層)は、共重合ポリエステルAを主成分樹脂として含有する層である。

[0019] ここで、前記「主成分樹脂」とは、共重合ポリエステル層(1層)を構成する樹脂のうち最も含有割合の多い樹脂の意味である。当該主成分樹脂は、共重合ポリエステル層(1層)を構成する樹脂のうち30質量%以上、中でも50質量%以上、その中でも80質量%以上(100質量%を含む)を占める場合がある。

[0020] 共重合ポリエステル層(1層)は、構成する樹脂が共重合ポリエステルAのみであってもよいし、共重合ポリエステルA以外の樹脂Bを含むものであってもよい。

この際、樹脂Bとしては、共重合ポリエステルAと相溶する樹脂であるのが好ましい。

共重合ポリエステル層(1層)が、共重合ポリエステルAと、これと相溶する樹脂Bとを含む場合については後述する。

[0021] (共重合ポリエステルA)

共重合ポリエステルAは、テレフタル酸及びその他のジカルボン酸成分と、エチレングリコール及びその他のアルコール成分との共重合体である共重合ポリエステルであるのが好ましい。

[0022] 共重合ポリエステルAは、結晶性であっても、非晶性であってもよい。

なお、本発明において、なお、結晶性のポリエステル樹脂とは、一般に結晶融解ピーク温度（融点）が存在するとされるポリエステル樹脂を指し、より具体的にはJIS K 7121（1987）に準拠して行う示差走査熱量測定（DSC）において融点が観測されるポリエステル樹脂であって、いわゆる半結晶性の状態のものを包含する。逆に、DSCにおいて融点が観測されない熱可塑性樹脂を「非晶性」と称する。結晶性のポリエステルとは、一般に結晶融解ピーク温度（融点）が存在するとされるポリエステルを指す。より具体的にはJIS K 7121（1987）に準拠して行う示差走査熱量測定（DSC）において融点が観測されるポリエステルであって、いわゆる半結晶性の状態のものを包含する。

逆に、DSCにおいて融点が観測されない熱可塑性樹脂を「非晶性」と称する。

[0023] 前記「その他のジカルボン酸成分」としては、芳香族ジカルボン酸、脂環族ジカルボン酸、脂肪族ジカルボン酸、多官能酸などを挙げることができる。なお、「その他のジカルボン酸成分」は2種以上を併用してもよい。このように2種以上を併用することにより、共重合ポリエステルフィルムをより効果的に柔軟化できるだけでなく、結晶構造を保持させることができ、耐熱性を有する場合もある。

中でも、本共重合ポリエステルフィルムを柔軟化し易くする観点から、「その他のジカルボン酸成分」としては、イソフタル酸、2，6-ナフタレンジカルボン酸、ジフェニルジカルボン酸などの芳香族ジカルボン酸、アジピン酸、セバシン酸、ドデカン二酸、エイコ酸及びそれらの誘導体などの脂肪族ジカルボン酸、1，4-シクロヘキサンジカルボン酸、1，2-シクロペタンジカルボン酸、シクロオクタンジカルボン酸などの脂環族ジカルボン酸、又は、ダイマー酸が好ましい。中でも、脂肪族ジカルボン酸又はダイマー酸を含むことが好ましい。

脂肪族ジカルボン酸の中でも、ガラス転移温度をより下げることができる

観点から、炭素数20～80、中でも30以上或いは60以下、その中でも36以上或いは48以下の脂肪族ジカルボン酸が特に好ましい。

[0024] 前記ダイマー酸としては、不飽和脂肪酸の二量体からなるジカルボン酸であって不飽和脂肪酸の炭素数が18以上のものが好ましい。そのようなダイマー酸の例として、オレイン酸、エライジン酸、セトレイン酸、エルカ酸、ブラシジン酸、リノール酸、リノレン酸等から選ばれた互いに異なる又は同一の不飽和脂肪酸を用いて二量化したものを挙げることができる。さらに、そのような二量化後に水素添加したものも使用することができる。なお、前記ダイマー酸は芳香族環や脂環族単環および脂環族多環を含むものでもよい。

このようなダイマー酸の中でも、ガラス転移温度をより下げることができる観点から、炭素数20～80、中でも26以上或いは60以下、その中でも30以上或いは50以下のダイマー酸が好ましい。

[0025] 前記の通り、「その他のジカルボン酸成分」は任意に選択することができる。中でも、芳香族ジカルボン酸から1種以上を選択し、脂肪族ジカルボン酸、脂環族ジカルボン酸、ダイマー酸から1種以上を選択して併用することが好ましい。中でも、イソフタル酸、脂肪族ジカルボン酸及びダイマー酸のうちの2種類以上を含むのが特に好ましく、とりわけ、イソフタル酸、炭素数が20～80の脂肪族ジカルボン酸及びダイマー酸のうちの2種類以上を含むのが特に好ましい。

「その他のジカルボン酸成分」として芳香族ジカルボン酸を用いると、強度及び耐熱性を維持しつつフィルムを柔軟化することが出来る傾向がある。一方、「その他のジカルボン酸成分」として脂肪族ジカルボン酸、脂環族ジカルボン酸、ダイマー酸から選択して用いると、伸度（破断伸度）を維持しつつ、より少量の含有割合でフィルムを柔軟化することが出来る傾向があり、中でも、ダイマー酸を用いることが最も効果的である。従って、「その他のジカルボン酸成分」を上記のように組み合わせて併用することにより、強度、耐熱性、伸度、柔軟性を良好に兼ね備えたフィルムとすることが可能と

なる。

[0026] 共重合ポリエステルAにおいて、ジカルボン酸成分、すなわちテレフタル酸及び「その他のジカルボン酸成分」の合計に占める「その他のジカルボン酸成分」の割合は、5～20mol%であるのが好ましく、中でも8mol%以上或いは18mol%以下、その中でも10mol%以上或いは15mol%以下であるのがさらに好ましい。ここで「その他のジカルボン酸成分」を2種以上併用する場合は、それらの合計量を意味する。

「その他のジカルボン酸成分」の割合が前記範囲であると、本共重合ポリエステルフィルムが、良好な伸度、強度及び耐熱性を有しつつ、効果的に柔軟化できる傾向がある。

[0027] 前記「その他のアルコール成分（ジオール成分）」としては、1,4-ブタンジオール、1,6-ヘキサジオール、ジエチレングリコール、トリメチレングリコール、ネオペンチルグリコール、1,4-シクロヘキサジメタノール、ビスフェノールおよびそれらの誘導体などを挙げることができる。中でも、柔軟性の観点からはジエチレングリコールが好ましく、耐熱性及び強度の観点からは1,4-ブタンジオールが好ましい。

なお、通常、エチレングリコールを原料の1つとしてポリエステルの製造（重縮合）する場合、エチレングリコールの一部は変性してジエチレングリコールとなってポリエステル骨格に導入される。このジエチレングリコールを副生ジエチレングリコールと称し、その副生量は、重縮合の様式（エステル交換法、直接重縮合）等によっても異なるが、エチレングリコールのうち1～5mol%程度である。本発明においては、このようにエチレングリコールから副生されるジエチレングリコールも共重合成分として扱い、「その他のアルコール成分」に包含するものとする。

[0028] 共重合ポリエステルAにおいて、アルコール成分（ジオール成分）、すなわちエチレングリコール及び「その他のアルコール成分」の合計に占める「その他のアルコール成分（ジオール成分）」の割合は1mol%以上25mol%未満であるのが好ましく、中でも2mol%以上或いは20mol%

以下、その中でも3m o l %以上或いは18m o l %以下であるのがさらに好ましい。ここで「その他のアルコール成分」を2種以上併用する場合は、それらの合計量を意味する。

「その他のアルコール成分」の割合が前記範囲であると、本共重合ポリエステルフィルムが、良好な伸度、強度及び耐熱性を有しつつ、効果的に柔軟化できる傾向がある。

なお、「その他のアルコール成分」は2種以上を併用してもよい。2種以上を併用することにより、共重合ポリエステルフィルムをより効果的に柔軟化できる場合がある。

[0029] また、「その他のジカルボン酸成分」と「その他のアルコール成分」とを合計して、3種以上を併用することが好ましい。共重合成分を複数併用することにより、より少量の含有割合でフィルムを柔軟化することが出来る傾向がある。なお、共重合成分の種類が多すぎると、フィルムの特性を安定化させることが困難な場合があるため、「その他のジカルボン酸成分」と「その他のアルコール成分」は、合計して3～5種であることが好ましく、中でも3種又は4種であることが好ましい。

[0030] 前記の中でも特に好ましい共重合ポリエステルAとして、テレフタル酸、イソフタル酸及び脂肪族ジカルボン酸もしくはダイマー酸と、エチレングリコール及びジエチレングリコールとの共重合体であり、共重合ポリエステルを構成するジカルボン酸成分に占めるイソフタル酸、脂肪族ジカルボン酸もしくはダイマー酸の割合が5m o l %以上20m o l %以下であり、共重合ポリエステルを構成するアルコール成分に占めるジエチレングリコールの割合が1m o l %以上25m o l %未満であり、結晶性の共重合ポリエステルA aを挙げることができる。

通常、共重合ポリエステルは、弾性率を下げるために共重合成分の比率を高めると結晶性が低下し、更にその比率を高めると非晶性となる。前記共重合ポリエステルA aは共重合成分の比率が高く、低い弾性率を実現することができるにもかかわらず、結晶性を維持しているため、延伸後の熱処理によ

り熱固定することができる。その結果、共重合ポリエステルA aはしなやかであり、それでいて、伸度、強度が良好であり、更に、熱収縮を抑えることができる。

[0031] (樹脂B)

上述したように、共重合ポリエステル層(1層)は、共重合ポリエステルAと、これと相溶する樹脂Bとを含む層であってもよい。

なお、本発明において、「相溶」とは、混合した2種類以上の樹脂が分子レベルで完全に混ざり合う状態を意味する。この際、分子レベルで混ざり合っている非晶領域は単一の相と見なすことができ、ミクロブラウン運動も単一の温度で生じる。従って、2種類以上の樹脂が相溶する場合、当該2種類以上の樹脂の混合樹脂の融点又はガラス転移温度は単一となり、主分散のピークも単一となる。よって、逆に言えば、共重合ポリエステルAに相溶する樹脂とは、共重合ポリエステルAに混合した際、共重合ポリエステルAの融点又はガラス転移温度を変更させることができる樹脂であると定義することもできる。

なお、この際のガラス転移温度とは、例えば歪み0.1%、周波数10Hz、昇温速度3℃/分の条件にて動的粘弾性の温度分散測定(JIS K 7244法の動的粘弾性測定)を行った際の、損失正接($\tan \delta$)の主分散のピークの温度である。

[0032] 共重合ポリエステル層(1層)が、共重合ポリエステルA及び樹脂Bを含む層である場合、樹脂Bは、共重合ポリエステルAと相溶する樹脂であって、融点が270℃以下、或いは、非晶性であり、ガラス転移温度が30～120℃である樹脂が好ましい。このような樹脂Bを選択することにより、共重合ポリエステル層(1層)のガラス転移温度を高くすることができ、耐熱性を高めることができる。樹脂Bとして、例えばポリエチレンテレフタレート(PET)などのポリエステルを選択することにより、寸法安定性、耐熱性を付与することができる。

[0033] また、柔軟性と耐熱性を両立させる観点から、樹脂Bとして、1種又は2

種以上のポリエステルを含み、当該ポリエステル（１種又は２種以上のポリエステル含む）は、ジカルボン酸成分であるテレフタル酸及び「その他のジカルボン酸成分」と、アルコール成分であるエチレングリコール及び「その他のアルコール成分」とを含み、ジカルボン酸成分の合計含有量（２種以上のポリエステル含む場合は、各ポリエステルに含まれるジカルボン酸成分の合計）に対する「その他のジカルボン酸成分」の合計含有量の割合が５ｍｏｌ％以上２０ｍｏｌ％以下、中でも好ましくは８ｍｏｌ％以上或いは１８ｍｏｌ％以下、その中でも好ましくは１０ｍｏｌ％以上或いは１５ｍｏｌ％以下であり、アルコール成分の合計含有量（２種以上のポリエステル含む場合は、各ポリエステルに含まれるアルコール成分の合計）に対する「その他のアルコール成分」の合計含有量の割合が１ｍｏｌ％以上２５ｍｏｌ％未満、中でも好ましくは２ｍｏｌ％以上或いは２０ｍｏｌ％以下、その中でも好ましくは３ｍｏｌ％以上或いは１８ｍｏｌ％以下であるのが好ましい。

[0034] なお、共重合ポリエステル層（１層）は、共重合ポリエステルＡと、これと相溶しない樹脂Ｄとを含む層であってもよい。樹脂Ｄとしては、例えば、ポリオレフィン、ポリスチレン、アクリル樹脂、ウレタン樹脂等が挙げられる。

[0035] 共重合ポリエステル層（１層）において、共重合ポリエステルＡと樹脂Ｂの質量割合は９８：２～５０：５０であるのが好ましく、中でも９５：５～６０：４０、その中でも９０：１０～６５：３５であるのがさらに好ましい。

[0036] なお、共重合ポリエステル層（１層）に含まれるポリエステル全体の成分割合が、共重合ポリエステルＡと同様の成分割合であれば、共重合ポリエステルＡを主成分樹脂として含む場合と同様の効果を得ることができると考えられる。

よって、共重合ポリエステル層（１層）が、１種又は２種以上のポリエステルを含有する場合において、共重合ポリエステル層（１層）に含まれる全ポリエステルの成分量合計において、ジカルボン酸成分の含有量合計に占め

る「その他のジカルボン酸成分」の含有量合計の割合は5 m o l %以上20 m o l %以下であり、アルコール成分の含有量合計に占める「その他のアルコール成分」の含有量合計の割合は1 m o l %以上25 m o l %未満であれば、共重合ポリエステルAを主成分樹脂として含む場合と同様の効果を得ることができる。

この際、ジカルボン酸成分の含有量合計に占める「その他のジカルボン酸成分」の含有量合計の割合の好ましい範囲は、共重合ポリエステルAにおける、ジカルボン酸成分に占める「その他のジカルボン酸成分」の割合の好ましい範囲と同様である。また、アルコール成分の含有量合計に占める「その他のアルコール成分」の含有量合計の割合の好ましい範囲は、共重合ポリエステルAにおける、アルコール成分に占める「その他のアルコール成分」の割合の好ましい範囲と同様である。

[0037] <積層構成の場合>

本共重合ポリエステルフィルムは、上述したように、共重合ポリエステル層（Ⅰ層）と他の層を備えた積層フィルムであってもよい。

[0038] 例えば、共重合ポリエステル層（Ⅰ層）の表裏両側に、ポリエステルCを主成分樹脂として含有するポリエステル層（Ⅱ層）を積層してなる構成を備えた積層フィルムを挙げることができる。

この際、当該ポリエステルCは、共重合ポリエステルAが結晶性の場合には、共重合ポリエステルAの融点よりも高い融点を有するポリエステルであるのが好ましく、共重合ポリエステルAが非晶性の場合には、共重合ポリエステルAのガラス転移点よりも高い温度の融点を有するポリエステルであるのが好ましい。

[0039] このようなポリエステルCを主成分樹脂として含有するポリエステル層（Ⅱ層）を積層してなる構成を備えた積層フィルムであれば、ポリエステル層（Ⅱ層）／共重合ポリエステル層（Ⅰ層）／ポリエステル層（Ⅱ層）となるように原料樹脂組成物を共押出などによって積層し、延伸した後、共重合ポリエステル層（Ⅰ層）の単層からなる場合に比べて高い温度で熱固定

処理することができるため、共重合ポリエステル層（Ⅰ層）の単層では達成することができないレベルに柔軟化することができたり、耐熱性を上げたり、熱収縮をより一層防ぐことができたりする。

具体的には、本共重合ポリエステルフィルムの25℃での貯蔵弾性率を300～2500MPa、中でも500MPa以上或いは2000MPa以下とすることができる。

[0040] 前記積層フィルムにおいて、ポリエステル層（ⅠⅠ層）の各層厚みは、共重合ポリエステル層（Ⅰ層）の厚みの1～20%であるのが好ましい。

ポリエステル層（ⅠⅠ層）の各層厚みが、共重合ポリエステル層（Ⅰ層）の厚みの1%以上であれば生産性を大きく損なうことなく製膜が可能であり、20%以下であれば要求される柔軟性を十分に確保できるから好ましい。

かかる観点から、ポリエステル層（ⅠⅠ層）の各層厚みは、共重合ポリエステル層（Ⅰ層）の厚みの1～20%であるのが好ましく、中でも3%以上或いは15%以下、その中でも5%以上或いは12%以下であるのがさらに好ましい。

なお、共重合ポリエステル層（Ⅰ層）の表裏両側に存在するポリエステル層（ⅠⅠ層）の厚みは、表裏で異なってもよいし、同一でもよい。

[0041] ポリエステルCは、共重合ポリエステルAが結晶性の場合、共重合ポリエステルAの融点よりも10～100℃高い、中でも20℃以上或いは90℃以下高い、その中でも40℃以上或いは70℃以下高い融点を有するポリエステルであるのが好ましく、他方、共重合ポリエステルAが非晶性の場合、共重合ポリエステルAのガラス転移点よりも120～260℃高い、中でも140℃以上或いは230℃以下高い、その中でも160℃以上或いは200℃以下高い融点を有するポリエステルであるのが好ましい。

なお、共重合ポリエステル層（Ⅰ層）の表裏両側に存在するポリエステル層（ⅠⅠ層）の主成分となるポリエステルCは、表裏で異なってもよいし同一でもよい。中でも、表裏のポリエステルCの融点が大きく異なることが好ましい。具体的には、表裏両側に存在するポリエステル層（ⅠⅠ層

）の融点の差が80℃以下、中でも60℃以下、その中でも40℃以下であることが好ましい。

共重合ポリエステル層Aの表裏両側に存在するポリエステル層（11層）中のポリエステルCが同一であると、2種3層の共押出成形が可能となるので、この態様も好ましい。

[0042] ポリエステルCとしては、例えば、ジカルボン酸成分としてテレフタル酸を含み、アルコール成分としてエチレングリコールを含むホモポリエステル若しくは共重合ポリエステルを好適に用いることができる。但し、これに限定するものではない。

[0043] ポリエステルCが共重合ポリエステルである場合には、テレフタル酸以外のジカルボン酸成分としては、芳香族ジカルボン酸、脂環族ジカルボン酸、脂肪族ジカルボン酸、多官能酸などが挙げられる。

ポリエステルCにおいて、ジカルボン酸成分に占める「テレフタル酸以外のジカルボン酸成分」の割合は、1～30mol%であるのが好ましく、中でも5mol%以上或いは25mol%以下、その中でも10mol%以上或いは20mol%以下であるのがさらに好ましい。

[0044] ポリエステルCが共重合ポリエステルである場合には、エチレングリコール以外のアルコール成分としては、1,4-ブタンジオール、1,6-ヘキサジオール、ジエチレングリコール、トリメチレングリコール、ネオペンチルグリコール、1,4-シクロヘキサジメタノール、ビスフェノールおよびそれらの誘導体などを挙げることができる。

ポリエステルCにおいて、アルコール成分に占める「エチレングリコール以外のアルコール成分」の割合は、1～100mol%であるのが好ましく、中でも5mol%以上或いは95mol%以下、その中でも10mol%以上或いは90mol%以下であるのがさらに好ましい。

[0045] <本共重合ポリエステルフィルムの厚み>

本共重合ポリエステルフィルムの厚みは、特に限定するものではなく、用途によって適切な厚みを選択することができる。

中でも、本共重合ポリエステルフィルムの特徴をより発揮するという観点から、フィルムの全厚みが $20\mu\text{m}$ を超えるのが好ましい。

フィルムのコシの強さは厚さの三乗に比例すると言われている。しかし、本共重合ポリエステルフィルムは、 $20\mu\text{m}$ を超える厚みを有していても、コシが弱くてしなやかであるという特徴を有しており、本発明の利益をより一層享受することができる。

かかる観点から、本共重合ポリエステルフィルムの全厚みは $20\mu\text{m}$ を超えるのが好ましく、中でも $23\mu\text{m}$ 以上、その中でも $30\mu\text{m}$ 以上であるのがさらに好ましい。

一方、本共重合ポリエステルフィルムの全厚みの上限は特に限定するものではない。 $1000\mu\text{m}$ 以下であるのが好ましく、中でも $500\mu\text{m}$ 以下、その中でも $250\mu\text{m}$ 以下、その中でも $100\mu\text{m}$ 以下であるのがさらに好ましい。

[0046] <本共重合ポリエステルフィルムの物性>

本共重合ポリエステルフィルムは、 25°C の貯蔵弾性率が 2500MPa 以下であるのが好ましい。

25°C すなわち常温時の貯蔵弾性率が 2500MPa 以下であることによって、例えばウェアラブル端末を装着時において、皮膚に十分追随することができる。

かかる観点から、本共重合ポリエステルフィルムは、 25°C の貯蔵弾性率が 2500MPa 以下であるのが好ましく、中でも 2000MPa 以下、その中でも 1200MPa 以下であるのがさらに好ましい。

当該 25°C の貯蔵弾性率は、工程におけるハンドリング性の観点から、 300MPa 以上であるのが好ましく、中でも 500MPa 以上、その中でも 700MPa 以上であるのがさらに好ましい。

なお、 25°C の貯蔵弾性率は、後述の実施例に記載された測定方法によって得られる値である。

[0047] 本共重合ポリエステルフィルムにおいて、 25°C の貯蔵弾性率を前記範囲

にするには、例えば、共重合ポリエステルAの共重合成分の種類と含有量を調整することによって達成することができる。

また、前記の通り、共重合ポリエステル層（Ⅰ層）の表裏両側に、ポリエステルCを主成分樹脂として含有するポリエステル層（Ⅱ層）を積層してなる構成を備えた積層フィルムとすることによっても、調整することができる。

更には、本発明の共重合ポリエステルフィルムを製造する際の延伸条件及びその後の熱固定条件によっても、調整することができる。

但し、これらの方法に限定するものではない。

[0048] また、本共重合ポリエステルフィルムは、 120°C の貯蔵弾性率が 10MPa 以上であるのが好ましい。

このように高温時の貯蔵弾性率が 10MPa 以上であることによって、十分な耐熱性を有し、加工時におけるシワの発生を抑制することができる。

かかる観点から、本共重合ポリエステルフィルムは、 120°C の貯蔵弾性率が 10MPa 以上であるのが好ましく、中でも 30MPa 以上、その中でも 50MPa 以上であるのがさらに好ましい。

本共重合ポリエステルフィルムは、加工時に必要となる熱量を抑制できる観点から、 120°C の貯蔵弾性率が 500MPa 以下であるのが好ましく、中でも 400MPa 以下、その中でも 300MPa 以下であるのがさらに好ましい。

なお、 120°C の貯蔵弾性率は、後述の実施例に記載された測定方法によって得られる値である。

本共重合ポリエステルフィルムにおいて、 120°C の貯蔵弾性率を前記範囲に調整するための方法は、 25°C の貯蔵弾性率を調整する方法として、前記した手段と同様の方法を挙げることができる。これらの中でも特に、延伸条件及びその後の熱固定条件を調整する方法が効果的である。但し、この方法に限定するものではない。

[0049] 本共重合ポリエステルフィルムは、 25°C の損失正接（ $\tan \delta$ ）が0.

0.2以上であるのが好ましい。

25℃すなわち常温時の損失正接が0.02以上であることによって、例えばウェアラブル端末を装着時において、皮膚に十分追随することができる。

かかる観点から、本共重合ポリエステルフィルムは、25℃の損失正接が0.05以上であるのが好ましく、中でも0.08以上、その中でも0.10以上であるのがさらに好ましい。

なお、当該25℃の損失正接（ $\tan \delta$ ）は、工程におけるハンドリング性の観点から、1.5以下であるのが好ましく、中でも1.0以下、その中でも0.5以下であるのがさらに好ましい。

[0050] 本共重合ポリエステルフィルムにおいて、25℃の損失正接を前記範囲に調整するための方法は、25℃の貯蔵弾性率を調整する方法として前記した手段と同様の方法を挙げることができる。これらの中でも特に、共重合ポリエステルAの共重合成分の種類と含有量を調整することによって、調整する方法が効果的である。但し、この方法に限定するものではない。

[0051] 本共重合ポリエステルフィルムは、共重合ポリエステルAが結晶性の場合、結晶融解エンタルピー ΔH_m は3.0 J/g以上であるのが好ましく、中でも5.0 J/g以上、その中でも7.0 J/g以上であるのがさらに好ましい。 ΔH_m は結晶化度の指標となるものであり、3.0 J/g以上であることにより、十分な耐熱性が得られ、熱収縮性を抑えることができる。

[0052] 本共重合ポリエステルフィルムは、後述の実施例に記載されているたわみ測定法によって測定される「しなやかさ（コシ）」すなわち、垂直方向に下がった長さを（a）、水平方向に突き出た長さを（b）とした時、（a）と（b）との比の値（（a）／（b））は0.3以上であることが好ましく、中でも0.5以上、その中でも1.0以上であることがさらに好ましい。

前記（a）／（b）が0.3以上であることによって、フィルムに十分なしなやかさを有することが示唆される。

一方、前記（a）／（b）の上限は特に限定されないが、工程におけるハ

ンドリング性の観点から、15.0以下であるのが好ましく、中でも10.0以下、その中でも6.0以下であるのがさらに好ましい。

[0053] 本共重合ポリエステルフィルムにおいて、(a)/(b)を前記範囲に調整するには、まずはフィルムの厚みを調整することが大切であり、次に、同一のフィルム厚みにおいては、共重合ポリエステルAの共重合成分の種類と含有量を調整することによって達成することができる。但し、この方法に限定するものではない。

かかる観点から、共重合ポリエステルAの共重合成分は、前記「その他のジカルボン酸成分」が脂肪族ジカルボン酸もしくはダイマー酸であるのが好ましく、その含有量は5mol%以上20mol%以下であるのが好ましい。他方、前記「その他のアルコール成分」がジエチレングリコールであるのが好ましく、その含有量は1mol%以上25mol%未満であるのが好ましい。

[0054] <本共重合ポリエステルフィルムの製造方法>

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

[0055] まずは、公知の方法により、原料例えばポリエステルチップを溶融押出装置に供給し、それぞれのポリマーの融点以上に加熱し、溶融ポリマーをダイから押し出し、回転冷却ドラム上でポリマーのガラス転移点以下の温度となるように冷却固化し、実質的に非晶状態の未配向シートを得るようにすればよい。

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

次いで、一段目の延伸方向と直交する方向に延伸する。この際、延伸温度は通常50～140℃であり、延伸倍率は通常3.0～7倍、好ましくは3

、 5 ～ 6 倍である。

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

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

[0056] 前記熱固定処理（「熱処理」とも称する）は、共重合ポリエステル層（Ⅰ層）の単層からなる場合、共重合ポリエステル A の融点よりも 10 ～ 70℃ 低い温度で行うのが好ましい。

[0057] 本共重合ポリエステルフィルムが共重合ポリエステル層（Ⅰ層）とポリエステル層（Ⅱ層）との積層構成を備える場合、共重合ポリエステル層（Ⅰ層）及びポリエステル層（Ⅱ層）は共押出した後、上述のように、一体のフィルムとして、延伸及び熱固定処理を行えばよい。

この際の熱固定処理は、ポリエステル C の融点よりも低い温度に加熱して熱固定処理するのが好ましい。更に、共重合ポリエステル A が結晶性である場合は、共重合ポリエステル A の融点よりも高い温度で熱固定処理するのが好ましい。そのような温度で熱固定処理することにより、共重合ポリエステル層（Ⅰ層）の単層では達成することができないレベルに柔軟化することができる。

これは、ポリエステル C の融点よりも低い温度で熱固定することにより、表層の延伸配向が固定されるため、伸度、強度及び耐熱性（熱収縮性）が良好となる一方、共重合ポリエステル A の融点よりも高い温度で熱固定することにより、中間層の延伸配向や歪みが緩和されるため、より一層しなやかなフィルムとすることが出来るためである。

[0058] <本共重合ポリエステルフィルムの用途>

本共重合ポリエステルフィルムは、上述したように、常温で柔軟性に優れており、単に柔軟であるだけでなく、コシが殆ど無いという特徴を有している一方、それでいて実用上の十分な耐熱性を発揮することができる。よって

、例えば電池用包装材、表面保護フィルム、画像表示用部材、特にフレキシブルディスプレイ、ウェアラブル端末などの構成部材として好適に用いることができる。

なお、本共重合ポリエステルフィルムの用途は前記に限定されるものではなく、例えば、各種包装用材料、建材、文房具、自動車部材、その他の構造部材等に用いることができる。

[0059] <語句の説明など>

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

また、画像表示パネル、保護パネル等のように「パネル」と表現する場合、板体、シート及びフィルムを包含するものである。

[0060] 本発明において、「X～Y」（X，Yは任意の数字）と記載した場合、特にことわらない限り「X以上Y以下」の意と共に、「好ましくはXより大きい」或いは「好ましくはYより小さい」の意も包含するものである。

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

実施例

[0061] 次に、実施例により本発明をさらに詳しく説明する。但し、本発明が、以下に説明する実施例に限定されるものではない。

[0062] <評価方法>

以下において、種々の物性等の測定及び評価は次のようにして行った。

[0063] （１）貯蔵弾性率 E' 、正接損失 $\tan \delta$

J I S K 7 2 4 4に基づき、アイティー計測制御（株）製の動的粘弾性測定装置DVA-200を用い、共重合ポリエステルフィルム（サンプル）の幅方向（TD）について、振動周波数10Hz、歪み0.1%、昇温速度1℃/分で-100℃から200℃まで測定し、得られたデータから、25

℃及び120℃での貯蔵弾性率 E' と、25℃での正接損失 $\tan \delta$ を得た。

[0064] (2) 結晶融解エンタルピー ΔH_m

JIS K7141-2(2006年)に基づき、測定サンプルの示差走査熱量計(DSC)測定を行った。30℃から280℃まで10℃/分で昇温後、1分間保持し、次に280℃から30℃まで10℃/分で降温後、1分間保持し、更に30℃から280℃まで10℃/分で再昇温させた。このとき再昇温過程における結晶融解ピーク面積から結晶融解エンタルピー(ΔH_m)を算出した。

なお、単層の場合は共重合ポリエステルフィルムを測定サンプルとし、積層の場合は中間層を測定サンプルとした。

[0065] (3) ヤング率

実施例・比較例で得た共重合ポリエステルフィルム(サンプル)について、引張試験機((株)インテスコ製、インテスコモデル2001型)を用いて温度23℃、湿度50%RHに調節された室内において、長さ300mm、巾20mmの共重合ポリエステルフィルム(サンプル)を10%/分の歪み速度で引張り、引張応力-ひずみ曲線の初め直線部分を用いて次式によって計算した。

$$E = \Delta \sigma / \Delta \varepsilon$$

(前記式中、 E はヤング率(GPa)、 $\Delta \sigma$ は直線の2点間の元の平均断面積による応力差(GPa)、 $\Delta \varepsilon$ は同一2点間の歪み差/初期長さである)

[0066] (4) 引張破断強度

実施例・比較例で得た共重合ポリエステルフィルム(サンプル)について、引張試験機((株)インテスコ製、インテスコモデル2001型)を用いて温度23℃、湿度50%RHに調節された室内において、幅15mmの共重合ポリエステルフィルム(サンプル)をチャック間50mmとなるように試験機にセットして、200mm/分の歪み速度で、フィルムの長手方向(

MD)又は幅方向(TD)に引張り、下記式により引張破断強度を求めた。

$$\text{引張破断強度 (MPa)} = F / A$$

ただし、前記式中、Fは破断時に於ける荷重(N)であり、Aは試験片の元の断面積(mm²)である。

[0067] (5) 引張破断伸度

前記の引張破断強度と同様の試験を行い、実施例・比較例で得た共重合ポリエステルフィルム(サンプル)について、下記式により引張破断伸度を求めた。

$$\text{引張破断伸度 (\%)} = 100 \times (L - L_0) / L_0$$

ただし、前記式中、Lは破断時の標点間距離(mm)であり、L₀は元の標点間距離(mm)である。

[0068] (6) 加熱収縮率

実施例・比較例で得た共重合ポリエステルフィルム(サンプル)を無張力状態で120℃に保ったオープン中で5分間静置し、その前後の試料の長さを測定して次式にて、フィルムの長手方向(MD)及び幅方向(TD)それぞれの加熱収縮率を算出した。

$$\text{加熱収縮率 (\%)} = \{ (L_0 - L_1) / L_0 \} \times 100$$

(前記式中、L₀は加熱処理前のサンプル長、L₁は加熱処理後のサンプル長)

フィルムの長手方向(MD)と幅方向(TD)に5点ずつ測定し、それぞれについて平均値を求めた。

[0069] (7) しなやかさ(コシ)の評価 (たわみ測定法)

試料サンプルは、実施例・比較例で得た共重合ポリエステルフィルム(サンプル)を23℃、50%RH雰囲気下で24時間静置した後に、長さ150mm、幅50mmのサイズに切り出して作製した。

図1に示すように、共重合ポリエステルフィルム(サンプル)を、23℃の環境下、机の端から長さ50mm外へ突き出すように机の上に載置する共に、机の上の共重合ポリエステルフィルム(サンプル)の上に200gの錘

を置いて固定し、机の端から突き出たサンプルの先端側を自重によって下方へ撓ませた。3分後、机の端から突き出たサンプルの先端部が垂直下方に撓んで垂れ下がった長さ（a）と、当該先端部が机の端から水平方向に突き出た長さ（b）とを測定した。

そして、水平方向に突き出た長さ（b）に対する撓んで垂れ下がった長さ（a）の比率（（a）／（b））を計算し、0.30以上であれば「合格」、0.30未満であれば「不合格」と評価した。

[0070] （原料）

実施例及び比較例では次の原料を使用した。

[0071] 共重合ポリエステル1（「共PS1」）：酸成分がテレフタル酸88モル%、炭素数36の水添ダイマー酸7モル%及びイソフタル酸5モル%からなり、ジオール成分がエチレングリコール90モル%及びジエチレングリコール10モル%からなる結晶性共重合ポリエステル。融点208℃、固有粘度0.68dl/g。

[0072] 共重合ポリエステル2（「共PS2」）：酸成分がテレフタル酸88モル%及び炭素数36の水添ダイマー酸12モル%からなり、ジオール成分がエチレングリコール67モル%及び1,4-ブタンジオール33モル%（副生ジエチレングリコール0.1mol%未満）からなる結晶性共重合ポリエステル。融点200℃、固有粘度0.72dl/g。

[0073] 共重合ポリエステル3（「共PS3」）：酸成分がテレフタル酸78モル%及びイソフタル酸22モル%からなり、ジオール成分がエチレングリコール98mol%及び副生ジエチレングリコール2mol%からなる結晶性共重合ポリエステル。融点198℃、固有粘度0.70dl/g。

[0074] ポリエステル（「PET」）：ポリエチレンテレフタレート（副生ジエチレングリコール：2mol%）。融点250℃、固有粘度0.64dl/g。

[0075] [実施例1]

表層および中間層として、共重合ポリエステル1（共PS1）のチップを

280℃に設定したベント付き押出機に送り込み、ギャポンプ、フィルターを介して、押出機の口金から押出し、静電印加密着法を用いて表面温度を30℃に設定した冷却ロール上で急冷固化させ、未延伸シートを得た。

次いで、得られた未延伸シートを、長手方向（MD）に50℃で3.3倍延伸した後、テンターに導き、次いで幅方向（TD）に80℃で4.2倍に延伸した後、200℃で10秒間熱処理を施し、幅方向（TD）に10%弛緩して、実質的に単層からなる厚み25μmの二軸延伸共重合ポリエステルフィルム（サンプル）を得た。

[0076] [実施例2]

中間層として、共重合ポリエステル1（共PS1）のチップを280℃に設定したメインのベント付き二軸押出機に送り込んだ。

また表層として、ポリエステル（PET）のチップを280℃に設定したサブのベント付き二軸押出機に送り込んだ。

ギャポンプ、フィルターを介して、メイン押出機からのポリマーが中間層、サブ押出機からのポリマーが表層となるように2種3層（表層／中間層／表層）の層構成で共押出して口金から押出し、静電印加密着法を用いて表面温度を30℃に設定した冷却ロール上で急冷固化させ、未延伸シートを得た。

次いで、得られた未延伸シートを、長手方向（MD）に80℃で3.2倍延伸した後、テンターに導き、次いで幅方向（TD）に100℃で4.0倍に延伸した後、200℃で10秒間熱処理を施し、幅方向（TD）に10%弛緩して、1μm（表層）／23μm（中間層）／1μm（表層）の厚み構成からなる厚み25μmの二軸延伸共重合ポリエステルフィルム（サンプル）を得た。

[0077] [実施例3～5]

表1に示すように条件を変更した以外は、実施例2と同様にして二軸延伸共重合ポリエステルフィルム（サンプル）を得た。

なお、表において、例えば実施例3の「共PS1／PET＝80／20」

とは、共P S 1を80質量部と、P E Tを20質量部とを混合したという意味であり、他の実施例についても同様に質量割合を示している。

[0078] [比較例1]

ポリエステル（P E T）のチップを280℃に設定したベント付き押出機に送り込み、ギャポンプ、フィルターを介して、押出機の口金から押出し、静電印加密着法を用いて表面温度を30℃に設定した冷却ロール上で急冷固化させ、未延伸シートを得た。

次いで、得られた未延伸シートを、長手方向（MD）に86℃で3.5倍延伸した後、テンターに導き、次いで幅方向（TD）に110℃で4.3倍に延伸した後、235℃で10秒間熱処理を施し、幅方向（TD）に10%弛緩して、厚み50μmの二軸延伸共重合ポリエステルフィルム（サンプル）を得た。

[0079] [比較例2]

共P S 3のチップ85質量部と、P E Tのチップ15質量部とを混合したものを280℃に設定したベント付き押出機に送り込み、ギャポンプ、フィルターを介して、押出機の口金から押出し、静電印加密着法を用いて表面温度を30℃に設定した冷却ロール上で急冷固化させ、未延伸シートを得た。

次いで、得られた未延伸シートを、長手方向（MD）に80℃で3.4倍延伸した後、テンターに導き、次いで幅方向（TD）に145℃で3.9倍に延伸した後、186℃で10秒間熱処理を施し、幅方向（TD）に10%弛緩して、厚み50μmの二軸延伸共重合ポリエステルフィルム（サンプル）を得た。

[0080] [比較例3]

共重合ポリエステル2（共P S 2）のチップを280℃に設定したベント付き押出機に送り込み、ギャポンプ、フィルターを介して、押出機の口金から押出し、静電印加密着法を用いて表面温度を30℃に設定した冷却ロール上で急冷固化させ、厚み200μmの未延伸共重合ポリエステルフィルム（サンプル）を得た。

[0081] [表1]

表層 (II層)	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	
	共PS1	PET	共PS1	PET	共PS1/PET =80/20	PET	共PS1/共 PS2 =80/20	PET	共PS1/共 PS2 =50/50	PET	—	—	—	
中間層 (I層)	共PS1		共PS1		共PS1/PET =80/20		共PS1/共 PS2 =80/20		共PS1/共 PS2 =50/50		PET	共PS3/PET =85/15	共PS2	
	共PS1		共PS1		共PS1/PET =80/20		共PS1/共 PS2 =80/20		共PS1/共 PS2 =50/50		PET	共PS3/PET =85/15	共PS2	
	共PS1		共PS1		共PS1/PET =80/20		共PS1/共 PS2 =80/20		共PS1/共 PS2 =50/50		PET	共PS3/PET =85/15	共PS2	
	共PS1		共PS1		共PS1/PET =80/20		共PS1/共 PS2 =80/20		共PS1/共 PS2 =50/50		PET	共PS3/PET =85/15	共PS2	
その他のジカルボン酸成分	[mol%]		[mol%]		[mol%]		[mol%]		[mol%]		[mol%]		[mol%]	
	[mol%]		[mol%]		[mol%]		[mol%]		[mol%]		[mol%]		[mol%]	
	[—]		[—]		[—]		[—]		[—]		[—]		[—]	
	[μm]		[μm]		[μm]		[μm]		[μm]		[μm]		[μm]	
	MD		TD		MD		TD		MD		TD		MD	
	TD		MD		TD		MD		TD		MD		TD	
	MD		TD		MD		TD		MD		TD		MD	
	TD		MD		TD		MD		TD		MD		TD	
	25℃		120℃		25℃		120℃		25℃		120℃		25℃	
	120℃		25℃		120℃		25℃		120℃		25℃		120℃	
	tanδ		ΔHm*		tanδ		ΔHm*		tanδ		ΔHm*		tanδ	
	ヤング率		破断強度		破断伸び度		ヤング率		破断強度		破断伸び度		ヤング率	
	破断強度		破断伸び度		ヤング率		破断強度		破断伸び度		ヤング率		破断強度	
	破断伸び度		ヤング率		破断強度		破断伸び度		ヤング率		破断強度		破断伸び度	
加熱収縮率 (120℃x5min)		しなやかさ (コシ)		加熱収縮率 (120℃x5min)		しなやかさ (コシ)		加熱収縮率 (120℃x5min)		しなやかさ (コシ)		加熱収縮率 (120℃x5min)		
[mm]		[mm]		[mm]		[mm]		[mm]		[mm]		[mm]		
(a)/(b)		(a)/(b)		(a)/(b)		(a)/(b)		(a)/(b)		(a)/(b)		(a)/(b)		
[—]		[—]		[—]		[—]		[—]		[—]		[—]		

* 積層の場合は中間層

[0082] 前記実施例及び発明者がこれまで行ってきた試験結果より、前記共重合ポリエステルAを主成分樹脂として含有する共重合ポリエステル層（1層）を備えた共重合ポリエステルフィルムであって、25℃の貯蔵弾性率が2500MPa以下であることで、常温で柔軟性に優れており、単に柔軟であるだけでなく、よりしなやかであり、それでいて、伸度及び強度を有することができる。且つ、120℃の貯蔵弾性率が10MPa以上であることで、実用上十分な耐熱性を有することができることが分かった。

[0083] 実施例2～5のように、中間層の主成分樹脂が結晶性の共重合ポリエステルである場合、表層の主成分樹脂としてのポリエステルが、前記共重合ポリエステルの融点よりも高い融点を有するポリエステルであれば、前記中間層のみからなる単層の場合に比べて、延伸後の熱処理（熱固定）温度をより高くすることができ、熱収縮性をさらに抑えることができることが確かめられた。

なお、中間層の主成分樹脂が非晶性の共重合ポリエステルである場合は、表層の主成分樹脂としてのポリエステルが、前記共重合ポリエステルのガラス転移点よりも高い融点を有するポリエステルであれば、前記中間層のみからなる単層の場合に比べて、延伸後の熱処理（熱固定）温度をより高くすることができるから、熱収縮性をさらに抑えることができると考えられる。

請求の範囲

- [請求項1] 共重合ポリエステルAを主成分樹脂として含有する共重合ポリエステル層（1層）を備えた共重合ポリエステルフィルムであって、
- 前記共重合ポリエステルAは、テレフタル酸及び「その他のジカルボン酸成分」と、エチレングリコール及び「その他のアルコール成分」との共重合体であり、当該共重合ポリエステルにおいてジカルボン酸成分に占める「その他のジカルボン酸成分」の割合は5 mol %以上20 mol %以下であり、アルコール成分に占める「その他のアルコール成分」の割合は1 mol %以上25 mol %未満であり、
- 25℃の貯蔵弾性率が2500 MPa以下であり、且つ、120℃の貯蔵弾性率が10 MPa以上であることを特徴とする共重合ポリエステルフィルム。
- [請求項2] 前記共重合ポリエステル層（1層）は、前記共重合ポリエステルAと、これと相溶する樹脂Bとを含む層であることを特徴とする請求項1に記載の共重合ポリエステルフィルム。
- [請求項3] 前記樹脂Bとして、1種又は2種以上のポリエステルを含み、当該ポリエステルは、ジカルボン酸成分の合計含有量に対する「その他のジカルボン酸成分」の合計含有量の割合が5 mol %以上20 mol %以下であり、アルコール成分の合計含有量に対する「その他のアルコール成分」の合計含有量の割合が1 mol %以上25 mol %未満であることを特徴とする請求項1又は2に記載の共重合ポリエステルフィルム。
- [請求項4] 1種又は2種以上のポリエステルを含有する共重合ポリエステル層（1層）を備えた共重合ポリエステルフィルムであって、
- 共重合ポリエステル層（1層）に含まれる全ポリエステルにおいて、ジカルボン酸成分の含有量合計に占める「その他のジカルボン酸成分」の含有量合計の割合は5 mol %以上20 mol %以下であり、アルコール成分の含有量合計に占める「その他のアルコール成分」の

含有量合計の割合は1 mol %以上25 mol %未満であり、

25℃の貯蔵弾性率が2500 MPa以下であり、且つ、120℃の貯蔵弾性率が10 MPa以上であることを特徴とする共重合ポリエステルフィルム。

[請求項5] 前記「その他のジカルボン酸成分」が、脂肪族ジカルボン酸又はダイマー酸を含むことを特徴とする請求項1～4の何れかに記載の共重合ポリエステルフィルム。

[請求項6] 前記「その他のジカルボン酸成分」が、イソフタル酸、脂肪族ジカルボン酸、及び、ダイマー酸のうちの2種類以上を含むことを特徴とする請求項1～5の何れかに記載の共重合ポリエステルフィルム。

[請求項7] 前記「その他のジカルボン酸成分」が、イソフタル酸、炭素数が20～80の脂肪族ジカルボン酸、及び、ダイマー酸のうちの2種類以上を含むことを特徴とする請求項1～5の何れかに記載の共重合ポリエステルフィルム。

[請求項8] 前記「その他のアルコール成分」がジエチレングリコールを含むことを特徴とする請求項1～7の何れかに記載の共重合ポリエステルフィルム。

[請求項9] 共重合ポリエステル層（Ⅰ層）の表裏両側に、ポリエステルCを主成分樹脂として含有するポリエステル層（Ⅱ層）を積層してなる構成を備えており、

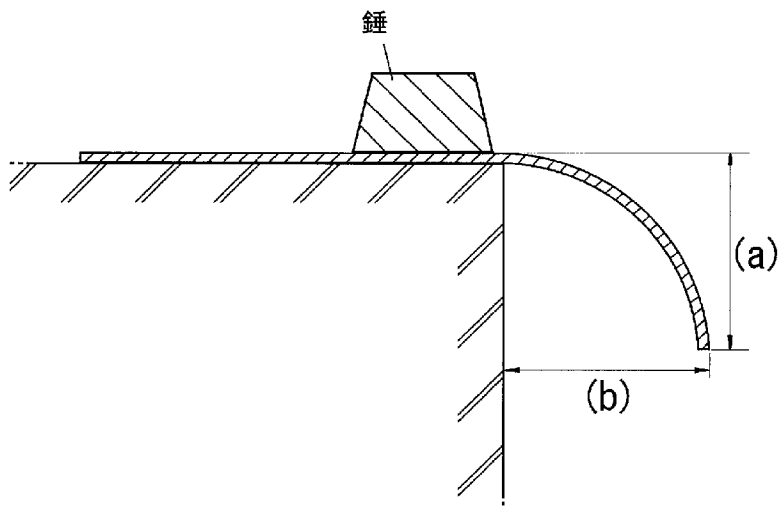
当該ポリエステルCは、共重合ポリエステルAが結晶性の場合は、共重合ポリエステルAの融点よりも高い融点を有するポリエステルであり、共重合ポリエステルAが非晶性の場合は、共重合ポリエステルAのガラス転移点よりも高い温度の融点を有するポリエステルであることを特徴とする請求項1～8の何れかに記載の共重合ポリエステルフィルム。

[請求項10] ポリエステル層（Ⅱ層）の各層厚みは、共重合ポリエステル層（Ⅰ層）の厚みの1～20%であることを特徴とする請求項9に記載の

共重合ポリエステルフィルム。

- [請求項11] 25℃の損失正接 ($\tan \delta$) が0.02以上であることを特徴とする請求項1～10の何れかに記載の共重合ポリエステルフィルム。
- [請求項12] フィルムの全厚みが20 μm を超えることを特徴とする請求項1～11の何れかに記載の共重合ポリエステルフィルム。
- [請求項13] 請求項1～12の何れかに記載の共重合ポリエステルフィルムを用いた表面保護フィルム。
- [請求項14] 請求項1～12の何れかに記載の共重合ポリエステルフィルムを用いた光学部材。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/035003

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C08J5/18 (2006.01) i, B32B7/022 (2019.01) i, B32B7/02 (2019.01) i,
B32B27/36 (2006.01) i, C08G63/183 (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)

Int.Cl. C08J5/18, B32B7/022, B32B7/027, B32B27/36, C08G63/183

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	1971-2019
Registered utility model specifications of Japan	1996-2019
Published registered utility model applications of Japan	1994-2019

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.
X A	WO 2010/038655 A1 (TORAY INDUSTRIES, INC.) 08 April 2010, claim 1, paragraphs [0001], [0002], [0007], [0012], [0016], [0094], [0098], [0105], [0117], [0136], examples & US 2011/0177311 A1, claim 1, paragraphs [0002]-[0003], [0007], [0012], [0016], [0137]-[0138], [0145]-[0146], [0159], [0171], examples, table 4 & EP 2336243 A1 & CN 102171288 A & KR 10-2011-0076873 A	1-4, 8-14 5-7

☒ 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
13 November 2019 (13.11.2019)

Date of mailing of the international search report
26 November 2019 (26.11.2019)

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

International application No.

PCT/JP2019/035003

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	WO 2015/093307 A1 (TORAY INDUSTRIES, INC.) 25 June 2015, claims 1, 13-14, 17, paragraphs [0001], [0006], [0008], [0119], [0121]-[0122], [0126]-[0130], [0133]-[0134], [0138], [0146]-[0147], [0150], [0154], examples & KR 10-2016-0100901 A	1-4, 8-14 5-7
X A	JP 2004-202702 A (MITSUBISHI CHEMICAL POLYESTER FILM COPP.) 22 July 2004, claim 1, paragraphs [0001], [0025]-[0026], [0028], [0030]-[0031], [0034], examples (Family: none)	4, 8-11, 13 1-3, 5-7, 12, 14
X A	JP 5-170944 A (KANEBO KABUSHIKI KAISHA) 09 July 1993, claim 1, paragraphs [0004], [0008], [0011]-[0015], [0018]-[0019], [0025], [0027], examples (Family: none)	1-8, 11-13 9-10, 14
A	WO 2009/078304 A1 (TORAY INDUSTRIES, INC.) 25 June 2009, entire text & US 2010/0272974 A1, entire text & CN 101873931 A & KR 10-2010-0099167 A	1-14
A	WO 2013/099608 A1 (TORAY INDUSTRIES, INC.) 04 July 2013, entire text & US 2015/0017406 A1, entire text & EP 2799469 A1 & CN 104024311 A & KR 10-2014-0113664 A	1-14
A	WO 2017/164190 A1 (KURARAY CO., LTD.) 28 September 2017, entire text & EP 3434442 A1, entire text & CN 108883569 A & TW 201805345 A	1-14
A	WO 2018/025663 A1 (TORAY INDUSTRIES, INC.) 08 February 2018, entire text (Family: none)	1-14
A	WO 2018/147249 A1 (TOYOBO CO., LTD.) 16 August 2018, entire text (Family: none)	1-14

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C08J5/18(2006.01)i, B32B7/022(2019.01)i, B32B7/027(2019.01)i, B32B27/36(2006.01)i, C08G63/183(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. C08J5/18, B32B7/022, B32B7/027, B32B27/36, C08G63/183

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	1971-2019年
日本国実用新案登録公報	1996-2019年
日本国登録実用新案公報	1994-2019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
X A	WO 2010/038655 A1（東レ株式会社）2010.04.08, 請求項 1, 段落 0001, 0002, 0007, 0012, 0016, 0094, 0098, 0105, 0117, 0136, 実施例 & US 2011/0177311 A1, 請求項 1, 段落 0002-0003, 0007, 0012, 0016, 0137-0138, 0145-0146, 0159, 0171, 実施例, 表 4 & EP 2336243 A1 & CN 102171288 A & KR 10-2011-0076873 A	1-4, 8-14 5-7

☒ 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

13.11.2019

国際調査報告の発送日

26.11.2019

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

岩田 行剛

4 F

1779

電話番号 03-3581-1101 内線 3430

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	WO 2015/093307 A1 (東レ株式会社) 2015. 06. 25,	1-4, 8-14
A	請求項 1, 13-14, 17, 段落 0001, 0006, 0008, 0119, 0121-0122, 0126-0130, 0133-0134, 0138, 0146-0147, 0150, 0154, 実施例 & KR 10-2016-0100901 A	5-7
X	JP 2004-202702 A (三菱化学ポリエステルフィルム株式会社) 2004. 07. 22,	4, 8-11, 13
A	請求項 1, 段落 0001, 0025-0026, 0028, 0030-0031, 0034, 実施例 (ファミリーなし)	1-3, 5-7, 12, 14
X	JP 5-170944 A (鐘紡株式会社) 1993. 07. 09,	1-8, 11-13
A	請求項 1, 段落 0004, 0008, 0011-0015, 0018-0019, 0025, 0027, 実施例 (ファミリーなし)	9-10, 14
A	WO 2009/078304 A1 (東レ株式会社) 2009. 06. 25, 全文 & US 2010/0272974 A1, 全文 & CN 101873931 A & KR 10-2010-0099167 A	1-14
A	WO 2013/099608 A1 (東レ株式会社) 2013. 07. 04, 全文 & US 2015/0017406 A1, 全文 & EP 2799469 A1 & CN 104024311 A & KR 10-2014-0113664 A	1-14
A	WO 2017/164190 A1 (株式会社クラレ) 2017. 09. 28, 全文 & EP 3434442 A1, 全文 & CN 108883569 A & TW 201805345 A	1-14
A	WO 2018/025663 A1 (東レ株式会社) 2018. 02. 08, 全文 (ファミリーなし)	1-14
A	WO 2018/147249 A1 (東洋紡株式会社) 2018. 08. 16, 全文 (ファミリーなし)	1-14