

(19)대한민국특허청(KR)  
(12) 등록특허공보(B1)

(51) 。 Int. Cl. C08J 5/18 (2006.01)	(45) 공고일자 (11) 등록번호 (24) 등록일자	2006년09월25일 10-0626771 2006년09월14일
--	-------------------------------------	--

(21) 출원번호	10-1999-0038497	(65) 공개번호	10-2000-0023039
(22) 출원일자	1999년09월10일	(43) 공개일자	2000년04월25일

(30) 우선권주장	98-258061	1998년09월11일	일본(JP)
	99-45971	1999년02월24일	일본(JP)
	99-47999	1999년02월25일	일본(JP)

(73) 특허권자            도레이 가부시끼가이샤  
일본 103 도쿄도 류오쿠 니혼바시 무로마찌 2쵸메 1방 1고

(72) 발명자                쓰네카와, 데쓰야  
일본520-2134시가켄오쓰시세따5쵸메33-9

                             호소카와, 히로후미  
일본520-0842시가켄오쓰시소노야마2쵸메13-1쵸-123

                             히가시오지, 다쿠지  
일본607-8088교또후교또시아마시나꾸다께하나지조지미나미마찌16반  
지에이2-22

(74) 대리인                주성민  
                             위혜숙

심사관 : 정진성

(54) 이축 배향 폴리에스테르 필름 및 그 제조 방법

요약

본 발명은 열치수 안정성, 투명성이 우수하고, 생산성의 점에서도 우수한 고품질의 이축 배향 폴리에스테르 필름 및 그 제조법을 제공한다. 또한, 폴리에스테르 필름의 각종 용도에서 중요시되어 온 실용 특성, 예를 들어, 자기 기록 테이프 용도에서의 기록 트랙 이탈, 자기 기록 카드 용도에 있어서의 결성, 제판 용도에 있어서의 가공시의 찢어짐, 리본 용도에서의 인쇄 어긋남, 콘텐서 용도에서의 내열성, 감열 공판 인쇄 원지 용도에서의 천공 감도, 저온 컬성 등을 대폭으로 개량하는 이축 배향 폴리에스테르 필름을 제공한다.

본 발명은 에틸렌테레프탈레이트를 주성분으로 하는 폴리에스테르(A) 및 폴리에테르이미드(B)로 이루어지고, 단일한 유리 전이 온도를 갖는 폴리에스테르 필름으로서, 길이 방향과 폭 방향의 적어도 한쪽 방향의 굴절률이 1.60 내지 1.80인 이축 배향 폴리에스테르 필름을 제공한다.

색인어

에틸렌테레프탈레이트, 이축 배향 폴리에스테르 필름, 유리 전이 온도, 굴절률, 시차 주사 열분석, 열침수 안정성, 켈성, 면 배향 계수, 크립 컴플라이언스 (creep compliance), 용융 압출, 내열성, 천공 감도, 표면 조도, 분산 직경

명세서

발명의 상세한 설명

발명의 목적

발명이 속하는 기술 및 그 분야의 종래기술

본 발명은 품질을 대폭으로 향상시킨 폴리에스테르 필름 및 그 제조 방법에 관한 것이다. 더욱 상세하게는 열침수 안정성 및 투명성이 우수하고, 생산성이 양호한 자기 기록용 필름, 포장용 필름, 감열 공판 인쇄 원지용 필름, 콘텐서용 필름, 감열 전사 리본용 필름, 사진·제판용 필름, 전기 절연용 필름 등의 각종 공업 재료용 필름으로서 적합한 폴리에스테르 필름 및 그 제조 방법에 관한 것이다.

플라스틱 필름은 다른 소재로부터는 얻지 못하는 대면적의 필름의 연속 생산이 가능하고, 그 강도, 내구성, 투명성, 유연성, 표면 특성의 부여 등의 특징을 살려 자기 기록용, 농업용, 포장용, 건재용 등의 대량 수요가 있는 분야에서 사용되고 있다. 그 중에서도, 이축 배향 폴리에스테르 필름은 그 우수한 기계적 특성, 열적 특성, 전기적 특성 및 내약품성 때문에 다양한 분야에서 이용되고 있고, 특히 자기 테이프용 베이스 필름으로서의 유용성은 다른 필름의 추종을 불허한다. 그러나, 용도에 따라서는 폴리에스테르 필름에서는 침수 안정성 및 내열성이 충분하지 않아 각종 공업 재료용 필름으로의 적용시, 한계가 있었다. 특히, 자기 기록 용도에서는 소형화 및 장시간 기록화를 위하여 박막화 및 고밀도 기록화가 진행되고 있고, 베이스 필름의 고강도화, 사용 환경하에서의 형태 안정성 및 침수 안정성의 개선 요구가 점점 높아지고 있지만, 이들 요구에 부응하는 유효한 수단이 없었다. 또한, 일반적으로 열침수 안정성 및 내열성을 높이는 데 있어서 폴리에스테르의 유리 전이 온도를 높이는 것이 유효하지만, 고품질의 유리 전이 온도가 높은 이축 배향 폴리에스테르 필름을 얻기 위한 유효한 수단이 확립되어 있지 않았다.

한편, 이축 배향 폴리에스테르 필름의 고강도화를 위한 종래 기술로서는 종, 횡 두방향으로 연신한 필름을 다시 종방향으로 연신하고 횡방향으로 고강도화하는 2차 종연신법이 일반적이다. 또한, 횡방향으로도 강도를 부여하고 싶은 경우에는 2차 종연신을 행한 후, 다시 횡방향으로 연신하는 2차 종, 횡연신법 등이 제안되어 있다(예를 들어, 미국 특허 제4226826호 등). 이러한 종래 기술에서 얻어진 고강도화 폴리에스테르 필름에서는 대용량의 고밀도 자기 기록 테이프에 대한 적용시, 응력 신도 변형 또는 환경 조건에 의한 침수 변화에 의해, 기록 트랙을 이탈하여 기록 재생시에 에러가 발생하여 원하는 자기 변환 특성을 얻지 못하는 등의 문제가 있다.

폴리에틸렌테레프탈레이트(PET)와 폴리에테리미드(PEI)의 블렌드는 PEI분율의 증가에 따라서 유리 전이 온도가 상승하는 것이 개시되어 있다(예를 들어, 미국 특허 제4141927호, "JOURNAL of APPLIED POLYMER SCIENCE 48 935-937(1993)", "Macromolecules 28 2845-2851(1995)", "POLYMER, 38 4043-4048(1997)" 등). 그러나, 이들 문헌, 특허 및 간행물에는 PET와 PEI로 이루어지는 고품질의 이축 배향 폴리에스테르 필름은 개시되어 있지 않고, 이 필름의 연신 배향성 및 이축 배향 폴리에스테르 필름의 강도, 열침수 안정성, 투명성 등의 필름 품질 및 필름 용도 특성 등에 대해서도 전혀 기재되어 있지 않다. 또한, 미국 특허 제4141927호에서는 용액법 또는 용융 혼련 장치에 의한 용융법에 의해 PET와 PEI의 상용성 블렌드를 얻는 방법을 개시하고 있다. 그러나, 용액법에 의해 상용성 블렌드를 제조하고 시트상으로 캐스트하는 방법에서는 용매 분자를 제막한 후 제거해야만 하고, 필름의 캐스트 속도도 느리기 때문에 저비용으로 제막하는 것이 곤란하다. 또한, 브라벤테, 밴버리 믹서 등의 용융 혼련 장치에 의한 용융법을 사용하여 상용성 블렌드를 얻는 방법에서는 용융 전단장에서 장시간 혼련할 필요가 있어, 공업적인 연속 제막에 부적합하다는 문제가 있다. 또한, 종래의 용융법에 의한 PET와 PEI의 블렌드의 필름은 폴리에테리미드를 주성분으로 하는 조대 입자를 다수 함유하기 때문에, 이축 연신시에 필름 파단이 빈번히 발생하거나, 표면 조대 돌기가 많아 고밀도 자기 기록용 베이스 필름으로서 사용하지 못한다는 문제가 있었다. 이들 문제는 특히 필름 두께가 10 μm 미만의 박물(薄物)을 고강도화한 이축 배향 폴리에스테르 필름에서는 심각하여 공업화에서의 기술적인 해결이 절실히 요망되고 있었다.

일본 특허 공개 제(평)7-228761호 공보에는 PET 및 폴리에틸렌-2,6-나프탈렌디카르복실산 (PEN)의 공중합체(PET/N)과 PEI의 수치 조성물 및 그 사출 성형품이 개시되어 있다. 그러나, 이것은 유리 전이 온도가 단일하지 않은 부분 상용 타입의 블렌드에 관한 발명으로, 본 발명과 다르다.

일본 특허 공개 제(평)1-315465호 공보에서는 PET와 PEI의 혼합물(A)와 에틸렌-글리시딜메타크릴레이트 공중합체(B)의 조성물이 개시되어 있다. 그러나, 이것도 유리 전이 온도가 단일하지 않은 비상용성 중합체 블렌드에 관한 발명으로, 본 발명과는 전혀 다르다.

또한, 일본 특허 공개 제(평)10-204268호 공보에서는 PET와 PEI로 이루어지는 수지 조성물로 구성된 중공 성형체가 개시되어 있지만, 이축 배향 폴리에스테르 필름에 대해서는 전혀 기재되어 있지 않다. 물론, 고품질의 이축 배향 폴리에스테르 필름을 얻는 방법 및 조대 입자를 줄이는 방법에 대해서도 전혀 기재되어 있지 않다.

이상 설명한 바와 같이, 단일한 유리 전이 온도를 갖는 PET와 PEI의 상용성 블렌드로 이루어지는 고품질의 이축 배향 폴리에스테르 필름에 대해서는 과거에 알려진 사실이 없으며 공업화되어 있지 않다.

### 발명이 이루고자 하는 기술적 과제

본 발명의 과제는 열치수 안정성, 투명성이 우수하고, 생산성도 우수한 고품질의 이축 배향 폴리에스테르 필름 및 그 제조법을 제공하는 것이다. 또한, 폴리에스테르 필름의 각종 용도에서 중요시되어 온 실용 특성, 예를 들어, 자기 기록 테이프 용도에서의 기록 트랙 이탈, 자기 기록 카드 용도에서의 결성, 제판 용도에서의 가공시 칫수 변화, 리본 용도에서의 인쇄 어긋남, 콘덴서 용도에서의 내열성, 감열 공판 인쇄 원지 용도에서의 천공 감도, 저온 결성 등을 대폭으로 개선한 이축 배향 폴리에스테르 필름을 제공하는 것이다.

### 발명의 구성 및 작용

본 발명자들은 상기 과제를 해결하기 위하여 예의 검토하였다. 그 결과, 우선 에틸렌테레프탈레이트를 주성분으로 하는 폴리에스테르(A)와 폴리에테르이미드(B)를 특정한 방법으로 용융 압출, 제막함으로써 얻어지는 단일한 유리 전이 온도를 갖고, 길이 방향과 폭 방향 중 적어도 한쪽 방향의 굴절률이 1.60 내지 1.80인 필름에 의해 열치수 안정성, 투명성이 우수하고, 두께 불균일이 작은 고품질의 이축 배향 폴리에스테르 필름을 얻을 수 있는 것을 발견하였다. 이어서, 필름의 고품질화를 추구하여 본 발명에서 개시한 바람직한 제조법에 의하면, 필름의 강성이 높고, 표면 조대 돌기가 적으며 생산성 면에서 우수한, 각종 용도 전가가 가능한 고품질의 이축 배향 폴리에스테르 필름을 얻을 수 있는 것을 발견하였다.

즉, 본 발명은 에틸렌테레프탈레이트를 주성분으로 하는 폴리에스테르(A) 및 폴리에테르이미드(B)로 이루어지고, 단일한 유리 전이 온도를 갖는 폴리에스테르 필름으로서, 길이 방향과 폭 방향 중 적어도 한쪽 방향의 굴절률이 1.60 내지 1.80인 이축 배향 폴리에스테르 필름에 관한 것이다.

또한, 본 발명은 상기의 이축 배향 폴리에스테르 필름을 사용하는 것을 특징으로 하는 자기 기록 매체, 콘덴서, 열전사 리본 또는 감열 공판 인쇄 원지에 관한 것이다.

또한, 본 발명은 에틸렌테레프탈레이트를 주성분으로 하는 폴리에스테르(A)와 폴리에테르이미드(B)를 용융 압출하여 단일한 유리 전이 온도를 갖는 수지 시트로 성형하고, 그 후 이 수지 시트를 길이 방향으로 3.0 내지 10배, 폭 방향으로 3.0 내지 10배의 배율로 연신하는 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름의 제조 방법이다.

이하, 본 발명을 상세히 설명한다.

본 발명에서 말하는 폴리에스테르(A)란 에틸렌테레프탈레이트 단위를 적어도 70 몰% 이상 함유하는 중합체이다. 본 발명의 목적을 달성하기 위해 에틸렌테레프탈레이트 단위는 80 몰% 이상 함유하는 것이 보다 바람직하고, 95 몰% 이상인 것이 더욱 바람직하다. 가장 바람직하게는, 폴리(에틸렌테레프탈레이트)이다. 산 성분은 테레프탈산이 주성분이지만, 소량의 다른 디카르복실산 성분을 공중합할 수도 있고, 또 글리콜 성분은 에틸렌글리콜을 주성분으로 하지만, 다른 글리콜 성분을 공중합 성분으로서 첨가할 수도 있다. 테레프탈산 이외의 디카르복실산으로서는 예를 들면, 나프탈렌디카르복실산, 이소프탈산, 디페닐술폰디카르복실산, 벤조페논디카르복실산, 4,4'-디페닐디카르복실산, 3,3'-디페닐디카르복실산 등의 방향족 디카르복실산, 아디프산, 숙신산, 아젤라산, 세박산, 도데칸디온산 등의 지방족 디카르복실산, 헥사히드로테레프탈산, 1,3-아다만탄디카르복실산 등의 지환족 디카르복실산을 들 수 있다. 또한, 에틸렌글리콜 이외의 글리콜 성분으로서는 예를 들면, 클로로히드로퀴논, 메틸히드로퀴논, 4,4'-디히드록시비페닐, 4,4'-디히드록시디페닐술폰, 4,4'-디히드록시디페닐술폰, 4,4'-디히드록시벤조페논, p-크실렌글리콜 등의 방향족 디올, 1,3-프로판디올, 1,4-부탄디올, 1,6-헥산디올, 네오펜틸글리콜, 1,4-시클로헥산디메탄올, 1,4-부탄디올, 1,6-헥산디올, 네오펜틸글리콜 등의 지방족, 지환식 디올을 들

수 있다. 또한, 산 성분, 글리콜 성분 이외에 p-히드록시벤조산, m-히드록시벤조산, 2,6-히드록시나프토에산 등의 방향족 히드록시카르복실산 및 p-아미노페놀, p-아미노벤조산 등을 본 발명의 목적을 해치지 않을 정도의 소량이라면 더욱 공중합시킬 수 있다.

본 발명에서 사용되는 폴리에스테르(A) 원료의 고유 점도는 폴리에테르이미드(B)와의 용융 혼련성, 제막성, 용융 압출시의 분해성 등의 관점에서 바람직하게는 0.55 내지 2.0 dl/g, 보다 바람직하게는 0.6 내지 1.4 dl/g, 가장 바람직하게는 0.70 내지 1.0 dl/g이다.

본 발명에서 말하는 폴리에테르이미드(B)란 지방족, 지환족 또는 방향족계의 에테르 단위와 환상 이미드기를 반복 단위로 하여 함유하는 중합체로서 용융 성형성을 갖는 중합체이다. 예를 들어, 미국 특허 제4141927호, 특허 제2622678호, 특허 제2606912호, 특허 제2606914호, 특허 제2596565호, 특허 제2596566호, 특허 제2598478호의 폴리에테르이미드, 특허 제2598536호, 특허 제2599171호, 일본 특허 공개 제(평)9-48852 공보, 특허 제256556호, 특허 제2564636호, 특허 제2564637호 공보, 특허 제2563548호, 특허 제2563547호, 특허 제2558341호, 특허 제2558339호, 특허 제2834580호에 기재된 중합체 등을 사용할 수 있다. 본 발명의 효과를 저해하지 않는 범위라면, 폴리에테르이미드(B)의 주쇄에 환상 이미드, 에테르 단위 이외의 구조 단위, 예를 들어 방향족, 지방족, 지환족 에스테르 단위, 옥시카르보닐 단위 등이 함유되어 있을 수도 있다.

본 발명에서는 유리 전이 온도가 350 °C 이하, 보다 바람직하게는 250 °C 이하의 폴리에테르이미드가 바람직하고, 2,2-비스[4-(2,3-디카르복시페녹시)페닐]프로판 이무수물과 m-페닐렌디아민 또는 p-페닐렌디아민과의 축합물이 폴리에스테르(A)와의 상용성, 비용, 용융 성형성 등의 면에서 가장 바람직하다. 이 폴리에테르이미드는 제너럴 엘렉트릭(General Electric)사 제품 "Ultem" 1000 시리즈, 또는 "Ultem" 5000 시리즈의 상품명(Electric사의 등록 상표)으로 알려져 있는 것이다.

본 발명에서 개시하는 이축 배향 폴리에스테르 필름은 폴리에스테르(A)와 폴리에테르이미드(B)로 이루어지고, 단일한 유리 전이 온도(Tg)를 가지며, 길이 방향과 폭 방향의 적어도 한쪽 방향의 굴절률이 1.60 내지 1.80인 것이 필수이다.

본 발명에서 말하는 유리 전이 온도는 시차 주사 열분석에서의 승온시의 열류다발 값에서 JIS K7121에 따라서 구할 수 있다. 시차 주사 열분석에 의한 방법만으로 판단하기 어려운 경우에는 동적 점탄성 측정 또는 현미경 관찰 등의 형태학적 방법을 병용할 수도 있다. 또한, 시차 주사 열분석에 의해 유리 전이 온도를 판정하는 경우에는 온도 변조법 및 고감도법을 사용하는 것도 유효하다. 이 필름이 두개 이상의 유리 전이 온도를 갖는 경우에는 필름에서 폴리에스테르(A)와 폴리에테르이미드(B)가 상용되지 않아 본 발명의 효과는 얻지 못한다. 또한, 길이 방향과 폭 방향의 양쪽 굴절률이 1.60 미만이면, 필름의 두께 불균일이 악화되고, 반대로 굴절률이 1.80를 넘으면 필름 파단이 다발하기 때문에, 본 발명의 이축 배향 폴리에스테르 필름을 얻지 못한다. 길이 방향과 폭 방향의 적어도 한쪽 방향의 굴절률은 필름의 열치수 안정성, 두께 불균일의 면에서 1.63 내지 1.72가 보다 바람직하고, 1.64 내지 1.70이 더욱 바람직하다.

본 발명의 필름 밀도는 필름의 강성, 열치수 안정성의 관점에서 1.35 내지 1.42 g/cm<sup>3</sup>인 것이 바람직하다. 보다 바람직하게는 밀도가 1.36 내지 1.39, 더욱 바람직하게는 밀도가 1.37 내지 1.38이다. 감열 공판 용도에서는 실시예 27에 나타난 바와 같이 고온에서의 열수축률, 열수축 응력을 높이기 위하여 밀도를 낮추는 것이 유효하고 1.34 내지 1.35가 바람직하지만, 자기 기록 테이프, 플로피 디스크, 감열전사 리본, 콘텐서, 제판, 카드의 각 용도에서는 상기 밀도 범위에 있는 것이 바람직하다. 필름 중에 존재하는 폴리에스테르의 결정 크기는 필름의 열치수 안정성, 강직성의 관점에서 폴리에스테르의 주쇄 방향에 상당하는 (-1 0 5) 방향의 결정 크기가 15 옴스트롬 내지 55 옴스트롬인 것이 바람직하다. 보다 바람직한 결정 크기는 감열 공판 용도에서는 15 옴스트롬 내지 35 옴스트롬이고, 대부분의 다른 용도에서는 40 옴스트롬 내지 53 옴스트롬이다.

본 발명의 필름 면 배향 계수는 0.03 내지 0.19인 것이 바람직하다. 면 배향 계수가 이 범위에 있음으로써 장기 보존시의 명도 저하 및 필름의 두께 불균일을 방지할 수 있다. 보다 바람직한 면 배향 계수의 범위는 본 발명의 효과를 달성하기 위해 0.08 내지 0.175이고, 더욱 바람직하게는 0.10 내지 0.165이다.

본 발명에서는 외삽(外插) 유리 전이 개시 온도(Tg-onset)가 90 내지 150 °C인 것이 바람직하다. 필름의 Tg-onset은 95 내지 130 °C가 보다 바람직하고, 100 내지 120 °C의 범위내에 있는 것이 더욱 바람직하다. Tg-onset이 90 °C 이상이면, 필름의 열치수 안정성이 현저히 향상되고, 또 Tg-onset가 150 °C 이하이면 이축 연신이 용이하여 고강도의 필름을 얻을 수 있다.

또한, 본 발명에서는 폴리에스테르 결정의 용해 열량  $\Delta H$ 가 15 내지 45 J/g인 것이 바람직하다. 시차 주사 열분석계(DSC)에서 구한 결정의 용해 열량  $\Delta H$ 가 15 내지 45 J/g인 것은 결정 존재에 의한 구조 안정화를 피하고, 열 수축을 작게 하는 데 있어서 바람직하며, 특히 필름의 유리 전이 온도 이상의 온도에서의 열수축률을 작게 하는 데 있어서 유효하다.  $\Delta H$ 는 25 내지 40 J/g이 보다 바람직하고, 더욱 바람직하게는 30 내지 38 J/g이다.

또한, 본 발명은 돌기 높이 0.5  $\mu\text{m}$  이상의 표면 조대 돌기가 30개/100  $\text{cm}^2$  미만인 것이 바람직하다. 돌기 높이 0.5  $\mu\text{m}$  이상의 표면 조대 돌기가 필름 중에 30개/100  $\text{cm}^2$  이상 존재하면, 고밀도 자기 기록 용도 등의 각종 필름 용도에서 문제가 될 뿐만 아니라, 필름의 연신성이 악화되어 필름 파단의 빈도가 높아지거나 균일 연신성이 저하된다. 돌기 높이 0.5  $\mu\text{m}$  이상의 표면 조대 돌기는 제막성, 투명성면에서 10개/100  $\text{cm}^2$  미만인 것이 보다 바람직하고, 5개/100  $\text{cm}^2$  미만인 것이 더욱 바람직하다. 여기에서 말하는 표면 조대 돌기는 주로 폴리에테르이미드(B)를 주성분으로 하는 조대 입자에 기인하는 것이다. 본 발명에서는 표면 조대 돌기의 측정법으로서 자기 기록 매체용 필름의 평가에서 일반적으로 사용하는 정전 인가법을 간편법으로서 바람직하게 사용하는데, 그 다른 공지된 방법으로 적절히 카운트해도 상관없다. 1  $\mu\text{m}$  이상의 평균 입경을 갖는 무기 입자를 외부 입자로서 첨가하는 공업 재료용 필름에서는 무작위로 100 시야의 미세 부분에 대하여 측정하고, 각 시야에서의 표면 조대 돌기수를 카운트하고, 그 평균치를 표면 조대 돌기수로 한다. 돌기 높이 0.5  $\mu\text{m}$  이상의 표면 조대 돌기가 폴리에테르이미드(B)를 주성분으로 하는 것인지의 여부 판정은 예를 들어, 유기물인지 무기물인지의 판정을 SEM-XMA 또는 분석 전자 현미경에 의해 행하고, 유기물의 경우에는 헬륨 네온 레이저에 의한 레이저 라만 측정으로 이미드환의 카르보닐 신축 진동에 귀속되는 밴드(본 발명에서 바람직하게 사용하는 General Electric사의 폴리에테르이미드 "Utem"에서는 1770  $\text{cm}^{-1}$  부근)의 라만 강도를 조사함으로써 판정할 수 있다.

본 발명에서는 각종 필름 용도로의 전개 측면에서 필름의 헤이즈값은 0.1 % 이상, 15 % 이하인 것이 바람직하다. 본 발명에서 말하는 헤이즈값이란 JIS K6714에 따라서 필름 시험편을 테트라린 중에 침지하여 측정된 25  $\mu\text{m}$  환산의 내부 헤이즈값(%)이다. 본 발명에 의하면, 헤이즈값이 15 % 이하인 투명성이 우수한 폴리에스테르 필름을 얻을 수 있다. 또한, 헤이즈값을 0.1 % 미만으로 하는 것은 공업적으로 매우 어려우며, 실용상 필수도 아니다. 보다 바람직한 헤이즈값의 범위는 0.3 내지 10 %, 더욱 바람직하게는 1.0 내지 5.0 %이다.

본 발명에서는 필름의 연신성 및 투명성, 열치수 안정성 등의 품질면에서 필름에서의 상기 폴리에테르이미드(B)의 함유량은 1 내지 50 중량%인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 5 내지 40 중량%, 더욱 바람직하게는 10 내지 35 중량%이다. 폴리에스테르(A)와 폴리에테르이미드(B)를 압출기로 혼련하여 서로 상용시키고, 폴리에스테르(A)의 내열성을 개량하기 위해서는 폴리에테르이미드(B)의 함유량은 1 중량% 이상으로 하는 것이 바람직하다. 또한, 용융 압출 공정에서 얻어진 필름에 대하여 이축 연신 및 열처리를 행하여 필름에 강도와 열치수 안정성을 부여하기 위해 폴리에테르이미드(B)의 함유량은 50 중량% 이하로 하는 것이 바람직하다.

본 발명의 필름의 고유 점도(IV)는 0.55 dl/g 이상, 2.0 dl/g 이하인 것이 표면 결점, 이물질, 표면 조대 돌기의 저감 및 제막성의 측면에서 바람직하다. 바람직한 필름의 고유 점도는 0.60 내지 1.0 dl/g의 범위이고, 더욱 바람직하게는 0.63 내지 0.85 dl/g의 범위이며, 0.65 내지 0.80 dl/g의 범위가 가장 바람직하다. 고유 점도가 0.55 미만인 필름은 제막시에 필름 파단이 일어나기 쉬워 안정하게 제막하는 것이 곤란하다. 고유 점도가 2.0를 넘는 필름은 용융 압출시에 전단 발열이 커져 열분해, 겔화물이 필름 중에 증가하여 고품질의 폴리에스테르 필름을 얻기 어렵기 때문에 주의가 필요하다.

본 발명에서는 열치수 안정성 측면에서, 필름의 길이 방향 및 폭 방향의 100  $^{\circ}\text{C}$ 에서의 열수축률은 1 % 이하인 것이 바람직하다. 보다 바람직하게는 0.5 % 이하이다. 100  $^{\circ}\text{C}$ 의 열수축률이 1 %를 넘는 경우에는 자기 테이프용 필름으로서 사용하였을 때, 자기 테이프와 기록 헤드와의 마찰열에 의해 변형이 일어나 스쿠 특성이 악화되거나, 테이프의 보존성이 악화되는 경향이 있기 때문에 주의해야 한다.

본 발명의 이축 배향 필름의 길이 방향의 영률(Young Modulus)( $Y_{MD}$ )과 폭 방향의 영률( $Y_{TD}$ )의 합( $Y_{MD} + Y_{TD}$ )는 8 내지 25 GPa의 범위인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 10 내지 20 GPa, 가장 바람직하게는 12 내지 18 GPa이다. 영률의 합이 8 GPa 이상이면 두께 불균일이 작고 열치수 안정성이 양호한 고품질의 필름을 쉽게 얻을 수 있다. 또한, 영률의 합이 25 GPa 이하이면, 필름의 투명성, 제막성이 우수한 이축 배향 필름을 쉽게 얻을 수 있고, 내인열성, 열수축 특성 측면에서도 바람직하다.

본 발명의 필름 두께는 용도, 목적에 따라서 적절히 결정할 수 있지만, 0.5 내지 300  $\mu\text{m}$ 의 범위가 바람직하다. 필름의 두께는 본 발명의 목적을 달성하기 위해 150  $\mu\text{m}$  미만이 보다 바람직하고, 10  $\mu\text{m}$  미만이 더욱 바람직하다. 자기 기록 재료 용도

에서는 1  $\mu\text{m}$  이상, 15  $\mu\text{m}$  이하, 데이터용 도포형 자기 기록 매체 용도에서는 2  $\mu\text{m}$  이상, 10  $\mu\text{m}$  이하, 데이터용 증착형 자기 기록 매체 용도에서는 3  $\mu\text{m}$  이상, 9  $\mu\text{m}$  이하의 범위가 바람직하다. 또한, 콘텐서 용도에서는 필름의 두께는 0.5 내지 15  $\mu\text{m}$  가 바람직하다. 필름의 두께가 이 범위에 있으면 절연 파괴 전압 및 유전 특성이 우수한 필름이 되기 때문이다. 또한, 감열 전사 리본 용도에서는 필름 두께는 1 내지 6  $\mu\text{m}$ 가 바람직하고, 2 내지 4  $\mu\text{m}$ 가 보다 바람직하다. 필름 두께가 이 범위에 있으면 인쇄할 때 주름이 없고, 인쇄 불균일 및 잉크의 과전사 없이 고정밀한 인쇄가 가능해지기 때문이다. 감열 공판 원지 용도에서는 0.5 내지 5  $\mu\text{m}$ 의 두께를 가진 필름이 바람직하다. 필름 두께가 이 범위에 있으면, 낮은 에너지에서의 천공성이 우수하고, 에너지 수준에 따라서 천공 직경을 변화시키는 것이 가능하며, 복수 관에서의 칼라 인쇄를 행하는 경우 등의 인쇄성도 우수하기 때문이다. 제판, 카드용 필름에서 필름의 두께는 30 내지 150  $\mu\text{m}$ 가 바람직하고, 보다 바람직하게는 70 내지 125  $\mu\text{m}$ 이다.

본 발명에서는 각종 필름 용도로의 전개, 안정 제판의 측면에서 필름의 길이 방향의 두께 불균일은 15 % 미만인 것이 바람직하다. 필름의 두께 불균일은 10 % 미만인 것이 보다 바람직하고, 8 % 미만인 것이 더욱 바람직하며, 6 % 미만이 가장 바람직하다.

본 발명의 필름에는 상용화제, 무기 입자 및 유기 입자, 그 외의 각종 첨가제, 예를 들어 산화 방지제, 대전 방지제, 결정핵제 등을 본 발명의 효과를 해치지 않을 정도의 소량으로 첨가할 수 있다. 무기 입자의 구체예로서는 산화 규소, 산화 알루미늄, 산화 마그네슘, 산화 티탄 등의 산화물, 카올린, 활석, 몬모릴로나이트 등의 복합 산화물, 탄산 칼슘, 탄산 바륨 등의 탄산염, 황산 칼슘, 황산 바륨 등의 황산염, 티탄산 바륨, 티탄산 칼륨 등의 티탄산염, 인산 제3칼슘, 인산 제2칼슘, 인산 제1칼슘 등의 인산염 등을 사용할 수 있지만, 이들로 한정되는 것은 아니다. 또한, 이들은 목적에 따라서 2종 이상을 사용해도 상관없다. 유기 입자의 구체예로서는 폴리스티렌 또는 가교 폴리스티렌 입자, 스티렌-아크릴계 및 아크릴계 가교 입자, 스티렌-메타크릴계 및 메타크릴계 가교 입자 등의 비닐계 입자, 벤조구아나민-포름알데히드, 실리콘, 폴리테트라플루오로에틸렌 등의 입자를 사용할 수 있지만, 이들로 한정되는 것은 아니며, 입자를 구성하는 부분 중 적어도 일부가 폴리에스테르에 대하여 불용인 유기 고분자 미립자라면 어떠한 입자라도 좋다. 또한, 유기 입자는 이활성, 필름 표면의 돌기 형성의 균일성으로부터 입자 형상이 구형상이고 균일한 입도 분포의 것이 바람직하다.

이들 입자의 입경, 배합량, 형상 등은 용도, 목적에 따라서 선택하는 것이 가능하지만, 통상은 평균 입자경으로서 0.01  $\mu\text{m}$  이상, 3  $\mu\text{m}$  이하, 배합량으로서는 0.01 중량% 이상, 10 중량% 이하가 바람직하다.

본 발명의 필름은 2층 이상의 적층 필름이어도 상관없다. 2층 이상 적층된 적층 필름의 경우에는 특히 자기 기록 매체의 베이스 필름에 있어서, 용도에 따라 자기 기록면이 되는 필름면과 그 반대측의 주행면의 표면 조도를 다른 설계로 하는 방법으로서 바람직하게 사용할 수 있다.

이어서, 본 발명의 필름 제조 방법에 대해서 설명하겠지만, 본 발명은 물론 하기의 제조 방법으로 한정되는 것은 아니다.

본 발명의 바람직한 제조 방법은 에틸렌테레프탈레이트를 주성분으로 하는 폴리에스테르(A)와 폴리에테르이미드(B)를 용융 압출하여 단일한 유리 전이 온도를 갖는 수지 시트를 성형하고, 그 후 이 수지 시트를 길이 방향으로 3.0 내지 10배, 폭 방향으로 3.0 내지 10배의 배율로 연신하는 것을 특징으로 하는 것이다.

본 발명에서는 필름의 길이 방향 및 폭 방향으로 각각 3.0 내지 10배의 배율로 연신하는 것이 바람직하다. 길이 방향 및 폭 방향의 연신 배율이 3배 미만인 경우, 두께 불균일이 커져 열찢수 안정성이 우수한 이축 배향 필름을 얻기 어렵기 때문이다. 또한, 연신 배율이 10배를 넘으면 연신시의 필름 파단 빈도가 높아져 생산성이 저하되기 때문에 주의해야 한다. 필름의 총면적 배율은 강성, 열찢수 안정성의 측면에서 15 내지 70배가 보다 바람직하고, 20 내지 50배가 가장 바람직하다. 여기에서 총면적 배율이란 길이 방향의 연신 배율과 폭 방향의 연신 배율의 곱이다. 연신 방법으로는 순차 이축 연신법 또는 동시 이축 연신법을 사용할 수 있다. 또한, 본 발명에서는 필름의 종방향과 횡방향으로 1회씩 연신하는 이른바 통상의 이축 연신법을 비롯하여 2차 중연신법, 2차 중횡 연신법 등의 방법을 바람직하게 사용할 수 있다. 또한, 중연신, 횡연신, 동시 이축 연신 등의 각 연신에 있어서, 일방향으로 행하는 연신 조작을 적어도 2회 이상 분할하여 연신하는 이른바 다단 연신법을 적용해도 상관없다.

이축 연신 후의 열 처리는 100 내지 260  $^{\circ}\text{C}$ 의 온도 범위에서 행하는 것이 바람직하다. 열처리 온도는 필름의 용도에 따라서 다르지만, 열찢수 안정성을 높이는 측면에서 150 내지 240  $^{\circ}\text{C}$ 가 보다 바람직하고, 180 내지 240  $^{\circ}\text{C}$ 가 가장 바람직하다. 열처리 시간은 필름의 열찢수 안정성과 생산성의 측면에서 0.1 내지 20초간 실시하는 것이 바람직하고, 0.5초 내지 10초가 보다 바람직하며, 1 내지 5초가 가장 바람직하다. 또한, 본 발명의 필름은 필름의 열찢수 안정성을 더욱 향상시킨다는 목적에서 50  $^{\circ}\text{C}$  내지 필름의 유리 전이 온도의 온도에서 10분 내지 1개월간, 장시간 에이징하는 것도 바람직하게 행할 수 있다.

본 발명에서는 폴리에스테르(A)와 폴리에테르이미드(B)의 중량 분율(A/B)이 70/30 내지 10/90인 블렌드 원료를 미리 조제하는 것이 바람직하다. 또한, 이 블렌드 원료를 폴리에스테르(A) 및 필요에 따라서 이들의 회수 원료와 함께 압출기에 투입하여 폴리에테르이미드(B)의 중량 분율을 낮추고 목적하는 조성의 필름을 제작하는 것이 바람직하다.

이와 같이 폴리에테르이미드(B)를 고농도로 첨가한 블렌드 원료를 미리 조제하여 얇게 사용함으로써 필름 중의 조대 입자를 급격히 감소시킬 수 있고, 생산성이 우수한 고품질의 이축 배향 폴리에스테르 필름을 쉽게 얻을 수 있다. 폴리에스테르(A)의 통상의 용융 압출 온도인 280 내지 320 °C의 온도 영역에서 높은 용융 점도를 갖는 폴리에테르이미드(B)를 상기 범위의 농도로 설정하면, 혼련시의 전단력이 높아져 그 결과, 중합체의 분산 불량 등에 의한 조대 입자가 급격히 감소하는 것이라고 여겨진다. 블렌드 원료 중의 폴리에테르이미드(B)의 중량 분율이 30 중량% 미만인 경우에는 PEI를 주성분으로 하는 조대 입자가 잔존하여 상기 효과를 얻기 어렵다. 반대로, 블렌드 원료 중의 폴리에테르이미드(B)의 중량 분율이 90 중량%를 넘는 경우에는 블렌드 원료 제조시에 압출기에서의 전단 발열이 커지기 때문에 폴리에스테르(A)의 열분해, 겔화가 진행되어 필름 품질이 저하되거나, 이 블렌드 원료와 폴리에스테르(A)를 다시 압출기에 투입하여 용융 혼합할 때, 두 중합체의 상용화가 충분히 진행되지 않아 단일한 유리 전이 온도를 갖는 본 발명의 필름을 얻기가 어려워진다. 또한, 사용하는 폴리에스테르(A)와 폴리에테르이미드(B)에 따라서도 다르겠지만, 2종의 중합체를 충분히 상용화시키기 위해 블렌드 원료 중의 폴리에테르이미드(B)의 중량 분율은 40 내지 70 중량%로 설정하는 것이 보다 바람직하고, 40 내지 60 중량%가 가장 바람직하다. 여기에서, 폴리에틸렌테레프탈레이트(A)와 폴리에테르이미드(B)를 일정한 비율로 용융 혼합하여 블렌드 원료를 미리 조제할 때에는 270 내지 300 °C로 가열된 벨트식의 2축 혼련 압출기에 공급하여 용융 혼련하는 것이 바람직하다. 블렌드 원료를 조제할 때의 압출기 스크류의 전단 속도는 50 내지 300 sec<sup>-1</sup>이 바람직하고, 100 내지 200 sec<sup>-1</sup>이 보다 바람직하다. 또한, 블렌드 원료를 조제할 때의 용융 혼련의 토출 시간은 0.5 내지 10분이 바람직하고, 1 내지 5분이 보다 바람직하다.

이어서, 상기 블렌드 원료, 폴리에스테르(A) 및 필요에 따라서 이들에 의한 필름의 회수 원료를 적절히 선택하여 혼합하고, 단일한 유리 전이 온도를 갖는 수치 시트를 성형하는 공정에 대해서 설명한다. 본 발명에서는 에틸렌테레프탈레이트를 주성분으로 하는 폴리에스테르(A)와 폴리에테르이미드(B)의 원료를 혼합하여 압출기에 투입하고, (1)스크류 전단 속도를 30초<sup>-1</sup> 이상, 300초<sup>-1</sup> 미만, (2) 중합체 온도를 280 °C 이상, 320 °C 이하, 및 (3) 중합체의 토출 시간을 60초 이상, 10분 이하로 설정하여 수치 시트를 성형하는 것이 바람직하다.

상기 (1)에 대해서는 압출기의 스크류 전단 속도(=πDN/h; D:스크류 직경, N: 스크류 회전수, h: 스크류 계량부의 홈 깊이)는 50초<sup>-1</sup> 이상, 250초<sup>-1</sup> 미만이 보다 바람직하고, 90초<sup>-1</sup> 이상, 200초<sup>-1</sup> 미만으로 설정하는 것이 폴리에스테르(A)의 열분해 억제 및 폴리에스테르(A)와 폴리에테르이미드(B)의 상용화 측면에서 바람직하다. 또한, 용융 압출시에 사용하는 스크류는 풀 플라이트드(full flighted), 배리어 플라이트드 등, 모든 형상의 스크류를 사용할 수 있지만, 폴리에스테르(A) 또는 폴리에테르이미드(B)의 미분산화 촉진과 상용화 및 조대 입자를 감소시키기 위해 스크류의 길이와 직경비는 20 이상, 바람직하게는 25 이상의 각종 믹싱형 스크류를 사용하는 것이 바람직하다. 믹싱형 스크류란 스크류 압축부, 계량부 또는 이들의 중간 위치에 믹싱부를 갖는 스크류로, 예를 들어 플루티드 배리어(fluted barrier), 덜미지(Dulmage), 유니멜트, 멀티플 핀 등을 가진 스크류를 들 수 있다. 압출기는 일축일 수도, 이축 혼련 타입 중 하나일 수도 있지만, 고전단·저발열 타입의 스크류를 사용하는 것이 유효하고, 일축 타입의 경우에는 이단 압출기도 바람직하게 사용할 수 있다. 또한, 본 발명에서는 폴리에스테르(A)와 폴리에테르이미드(B)의 상용화 및 폴리에스테르(A)의 열분해 억제의 측면에서 중합체 온도는 290 °C 이상, 310 °C 이하로 하는 것이 바람직하다. 또한, 중합체의 토출 시간은 90초 이상, 6분 이하로 하는 것이 보다 바람직하고, 2분 이상, 4분 이하로 설정하는 것이 가장 바람직하다. 또한, 여기에서 중합체 온도란 구금 선단의 중앙부를 통과하는 중합체의 온도를 직접 열전쌍으로 측정된 온도이고, 상기 설명에서의 중합체의 토출 시간이란 압출기 및 단일관, 필터, 구금도 포함한 압출 공정의 전체 용적 V를 중합체의 토출량 Q로 나눈 값 V/Q이다.

본 발명에서는 폴리에스테르(A)와 폴리에테르이미드(B)의 블렌드 원료 중에 존재하는 분산 도메인의 평균 분산 직경을 상기 바람직한 용융 혼련법에 의해 1 μm 미만으로 조절해 두는 것이 바람직하다. 여기에서, 평균 분산 직경이란 상분리 구조를 형성하고 있는 폴리에스테르(A) 또는 폴리에테르이미드(B)의 분산 도메인 크기이다. 본 발명에서는 이축 연신성, 투명성, 표면 조대 돌기 저감 등의 측면에서 블렌드 칩 중의 평균 입자 직경은 0.5 μm 미만인 것이 바람직하고, 0.2 μm 미만인 것이 더욱 바람직하다. 평균 분산경이 1 μm 이상인 경우, 용융 압출된 미연신 필름 중에 이 분산 도메인이 잔존하여 본 발명에서 목적으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름을 얻기 어려워진다.

폴리에스테르(A)와 폴리에테르이미드(B)로 이루어지는 상기 블렌드 원료는 고유 점도가 0.65 내지 2.0 dl/g인 폴리에스테르(A)의 원료 및 고유 점도가 0.65 내지 2.0인 폴리에테르이미드(B)의 원료를 사용하고, 원료의 고유 점도비(폴리에스

테르(A)의 고유 점도/폴리에테르이미드의 고유 점도(B))를 1.1 내지 1.7의 범위가 되도록 양 중합체를 선택하여 사용하고, 용융 혼합하는 것이 바람직하다. 폴리에스테르(A)와 폴리에테르이미드(B)의 원료 칩의 보다 바람직한 고유 점도비는 1.2 내지 1.55이다.

이하, PET와 General Electric사제 "Ultem" 1010으로 이루어지는 필름을 예로서, 본 발명의 제조법을 구체적으로 설명하겠지만, 사용하는 원료, 목적하는 필름 용도에 따라 제조법은 다르다.

통상의 중축합에 의해 얻어진 PET의 펠렛(IV=0.85) 60 중량부와 "Ultem"1010 (IV=0.68)의 펠렛 40 중량부를 혼합하여 290 °C로 가열된 벨트식 이축 혼련 압출기에 공급하여 전단 속도, 압출 시간을 조정하여 압출, 펠레타이즈함으로써 "Ultem"으로 이루어지는 분산 도메인의 평균 분산경이 1 μm 미만인 블렌드 칩을 얻는다.

이어서, 상기 펠레타이즈 작업에 의해 얻은 PET와 "Ultem"으로 이루어지는 블렌드 칩, PET의 원료 칩 및 필요에 따라서 제막 후의 회수 원료를 PET와 "Ultem"1010이 중량 비율로 80/20이 되도록 혼합하고, 필요에 따라서 저온에서 예비 건조한 후, 180 °C에서 3시간 이상 진공 건조한다. 그 후, 이들을 압출기에 투입하고 300 °C로 용융 압출하여 섬유 소결 스테인레스 금속 필터 내를 통과시킨 후, 드래프트비 2 내지 30으로 T 다이로부터 시트상으로 토출하고, 이 시트를 표면 온도 10 내지 70 °C의 냉각 드럼상에 밀착시켜 급냉 고화하여 단일한 유리 전이 온도를 갖는 실질적으로 무배향의 필름을 얻는다.

이어서, 이 무배향 필름을 50 내지 180 °C, 바람직하게는 80 내지 130 °C, 더욱 바람직하게는 90 내지 120 °C의 범위에 있는 가열 롤군에서 가열하고, 길이 방향으로 3 내지 10배의 총배율로 연신한 후, 20 내지 50 °C의 냉각 롤군에서 냉각한다. 1회의 길이 방향 연신 조작에 의한 배율은 1.1 내지 6.0배가 바람직하고, 1.5 내지 4.0배가 더욱 바람직하며, 2.0 내지 3.5배가 가장 바람직하다. 이어서, 필름을 클립으로 파지하여 제1 텐터로 유도하고, 폭 방향으로 3 내지 10배의 총배율로 연신한다. 1회의 폭 방향 연신 조작에 의한 배율은 2.0 내지 6.0배가 바람직하고, 보다 바람직하게는 3.0 내지 5.5배이다. 또한, 연신 온도는 50 내지 180 °C의 범위가 바람직하지만, 보다 바람직하게는 80 내지 130 °C의 범위, 더욱 바람직하게는 90 내지 120 °C의 범위이다.

필름의 강도를 높이고 싶은 경우에는 계속해서 필름을 100 내지 260 °C의 범위, 바람직하게는 120 내지 250 °C의 범위, 더욱 바람직하게는 130 내지 240 °C의 범위에 있는 가열 롤군에서 가열하고, 길이 방향으로 1.1 내지 5.0배, 바람직하게는 1.4 내지 3.5배, 더욱 바람직하게는 1.6 내지 2.5배로 2차 종연신하고, 20 내지 50 °C의 냉각 롤군에서 냉각한다. 그 후, 제2 텐터를 사용하여 다시 폭 방향으로 연신한다. 연신 배율은 1.1 내지 3.0배가 바람직하지만, 더욱 바람직하게는 1.2 내지 2.5배, 가장 바람직하게는 1.3 내지 2.0배이다. 연신 온도는 100 내지 260 °C의 범위가 바람직하지만, 더욱 바람직하게는 120 내지 250 °C의 범위, 가장 바람직하게는 130 내지 240 °C의 범위이다.

그 후, 필요에 따라서 이 이축 배향 필름을 길이 방향 또는 폭 방향으로 0.5 내지 20% 이완하면서 180 내지 140 °C 및 140 내지 80 °C의 온도 범위로 유도한다. 그 후, 실온까지 냉각하고 필름 에지를 제거하여 본 발명의 이축 배향 폴리에스테르 필름을 얻는다.

(물성의 측정 방법 및 효과의 평가 방법)

물성치의 측정 방법 및 효과의 평가 방법은 다음과 같다.

(1) 고유 점도

오르토클로로페놀 중에 25 °C에서 측정된 용액 점도로부터 하기 식으로 계산한 값을 사용하였다. 즉,

$$n_{sp}/C=[\eta]+K[\eta]^2\cdot C$$

여기에서,  $n_{sp}$ =(용액 점도/용매 점도)-1이고, C는 용매 100 ml 당의 용해 중합체 중량(g/100 ml, 통상 1.2), K는 허깅스(Huggin's) 정수(0.343으로 한다)이다. 또한, 용액 점도, 용매 점도는 오스트 월드 점도계를 사용하여 측정하였다. 단위는 [dl/g]로 표시한다.

(2) 헤이즈



JIS K6714에 따라서 헤이즈 미터(스가 시깁끼제)를 사용하여 측정하였다. 테트라린에 침지한 상태에서 내부 헤이즈를 측정하고, 아래 식에 의해 25  $\mu\text{m}$  환산으로 표시하였다.

$$\text{헤이즈(\%)} = \text{필름 내부 헤이즈(\%)} \times (25(\mu\text{m}) / \text{필름 두께}(\mu\text{m}))$$

(3) 유리 전이 온도(Tg), 외삽 유리 전이 개시 온도(Tg-onset)

유사 등온법으로 하기 장치 및 조건으로 비열 측정을 행하고, JIS K7121에 따라서 결정하였다.

장치: TA Instrument사제 온도 변조 DSC

측정 조건:

가열 온도: 270 내지 570 K(RCS 냉각법)

온도 교정: 고순도 인듐 및 주석의 용점

온도 변조 진폭:  $\pm 1$  K

온도 변조 주기: 60초

승온 스텝: 5 K

시료 중량: 5 mg

시료 용기: 알루미늄제 개방형 용기(22 mg)

참조 용기: 알루미늄제 개방형 용기(18 mg)

또한, 유리 전이 온도는 하기 식에 의해 산출하였다.

$$\text{유리 전이 온도} = (\text{외삽 유리 전이 개시 온도} + \text{외삽 유리 전이 종료 온도}) / 2$$

(4) 용해 온도, 용해 열량

상기 (3)과 동일한 장치 및 조건으로 측정하고, JIS K7122에 따라서 결정하였다.

(5) 평균 분산 직경

폴리에스테르(A)와 폴리에테르이미드(B)의 블렌드 칩을 절단하고, 그 절단면을 투과형 전자 현미경으로 관찰한다. 절단면이 해도 구조를 갖고 있는 경우, 도상으로 상분리되어 있는 분산 도메인의 평균 분산 직경을 구하였다. 이들 절단면에 나타난 분산 도메인 100개를 무작위로 측정하고, 다음 식으로부터 평균 분산 직경 D를 구하였다.

$$D = \sum D_i / 100$$

여기에서,  $D_i$ 는 분산 도메인의 원상당 직경이다. 또한, 블렌드 원료가 칩 형상을 갖고 있지 않는 경우에는 적절히 수지에 매입하여 그 절단면을 관찰한다.

(6) 돌기 높이 0.5  $\mu\text{m}$  이상의 표면 조대 돌기의 수

측정면 100  $\text{cm}^2$ 를 두장 겹쳐 정전기력(인가 전압 5.4 kV)으로 밀착시킨 후, 두장의 필름 사이에서 조대 돌기의 광 간섭에 의해 발생하는 뉴턴환으로부터 조대 돌기의 높이를 판정하였다. 2중환 이상의 조대 돌기를 돌기 높이 0.5  $\mu\text{m}$  이상의 표면 조대 돌기로서 판정하고, 그 수를 세었다. 또한, 광원은 할로젠 램프에 564 nm의 핸드 패스 필터를 걸어 사용하였다.

(7) 영률

ASTM-D882에 규정된 방법에 따라서 인스트론 타입의 인장 시험기를 사용하여 측정하였다. 측정은 하기 조건으로 하였다.

측정 장치: 오리엔틱(주)제 필름 강신도 자동 측정 장치

"텐시론 AMF/RTA-100"

시료 크기: 폭 10 mm x 시료 길이 100 mm,

인장 속도: 10 mm/분

측정 환경: 온도 23 °C, 습도 65 %RH

(8) 열침수 안정성

JIS C2318에 따라서 하기 조건으로 열수축률을 측정하였다.

시료 크기: 폭 10 mm, 지표선 간격 200 mm

측정 조건 1: 온도 100 °C, 처리 시간 30분, 무하중 상태

측정 조건 2: 온도 65 °C, 처리 시간 60분, 무하중 상태

열수축률은 다음 식에 의해 구하였다.

$$\text{열수축률(\%)} = [(L_0 - L) / L_0] \times 100$$

$L_0$ : 가열 처리 전의 지표선 간격

L: 가열 처리 후의 지표선 간격

(9) 크립 컴플라이언스 (creep compliance)

필름을 폭 4 mm로 샘플링하고, 시료 길이가 15 mm가 되도록 싱꾸 리프(주)제 TMA TM-3000 및 가열 제어부 TA-1500에 세트하였다. 50 °C, 65 %RH의 조건하에 28 MPa의 하중을 필름에 걸어 30분 유지하고 그 때의 필름 신도량을 측정하였다. 필름의 신축량(% 표시,  $\Delta L$ )은 카노프스 덴시(주)제 AD 컨버터 ADX-98E를 개재하여 닛본 덴끼(주)제 퍼스널 컴퓨터 PC-9801에 의해 구하고, 다음 식으로부터 크립 컴플라이언스를 산출하였다.

$$\text{크립 컴플라이언스(GPa}^{-1}\text{)} = (\Delta L / 100) / 0.028$$

(10) 굴절률 및 면배향 계수( $f_n$ )

굴절률은 JIS K7105에 규정된 방법에 따라서 나트륨 D선을 광원으로 하여 (주)아타고제의 아베 굴절률계 4형을 사용하여 측정하였다. 또한, 마운트액은 요오드화메틸렌을 사용하고, 23 °C, 65 %RH로 측정하였다.

면배향 계수( $f_n$ )은 측정된 각 굴절률로부터 다음 식으로 구하였다.

$$\text{면배향 계수}(f_n) = (n_{MD} + n_{TD}) / 2 - n_{ZD}$$

$n_{MD}$ : 길이 방향의 굴절률

$n_{TD}$ : 폭 방향의 굴절률

$n_{ZD}$ : 두께 방향의 굴절률

(11) 밀도

JIS-K-7112의 밀도 기술품관법에 의해 브롬화나트륨 수용액을 사용하여 필름의 밀도를 측정하였다.

(12) 결정 크기

X선 회절 장치((주)리가꾸 덴끼사제 4036A2형)를 사용하여 하기의 조건에서 투과법에 의해 측정하였다.

X선 회절 장치 (주) 리가꾸 덴끼사제 4036A2형

X선원: CuK $\alpha$ 선(Ni 필터 사용)

출력: 40 kV 20 mA

고니오미터 (주) 리가꾸 덴끼사제

슬릿: 2 mm $\phi$ -1°-1°

검출기: 발광 현상 계수관

계수 기록 장치 (주) 리가꾸 덴끼사제 RAD-C형

2 cm x 2 cm로 절단하여 방향을 가지런히 겹치고, 콜로디온·에탄올 용액으로 고정된 시료를 세트하여 광각 X선 회절 장치에서 얻어진 2 $\theta$ / $\theta$  강도 데이터 중 각 방향면의 반값 폭으로부터 하기의 Scherrer의 식을 사용하여 계산하였다. 여기에서 결정 크기는 배향 주축 방향을 측정하였다.

$$\text{결정 크기 } L(\text{\AA}) = K\lambda / \beta_0 \cos\theta_B$$

K: 정수(=1.0)

$\lambda$ : X선의 파장(=1.5418 Å)

$\theta_B$ : 플래그 각

$$\beta_0 = (\beta_E^2 - \beta_1^2)^{1/2}$$

$\beta_E$ : 외관의 반값 폭(실측치)

$\beta_1$ : 장치 정수(=1.046 x 10<sup>-2</sup>)

(13) 파단 빈도

제막에 따른 필름 파단을 관찰하여, 다음 기준으로 판정하였다.

◎: 필름 파단이 전무한 경우

O: 필름 파단이 극히 드물게 발생하는 경우

△: 필름 파단이 때때로 생기는 경우

X: 필름 파단이 빈발한 경우

(14) 필름의 길이 방향 두께 불균일

안리쯔 가부시끼가이샤제 필름 시크니스(sickness) 테스터 "KG601A" 및 전자 마이크로 미터 "K306C"를 사용하여 필름의 종 방향으로 30 mm 폭, 10 m 길이로 샘플링한 필름의 두께를 연속적으로 측정한다. 필름의 반송 속도는 3 m/분으로 하였다. 10 m 길이에서의 두께 최대치  $T_{max}(\mu m)$ , 최소치  $T_{min}(\mu m)$ 로부터,

$$R = T_{max} - T_{min}$$

를 구하고, R과 10 m 길이의 평균 두께  $T_{ave}(\mu m)$ 로부터 다음식에 의해 두께 불균일을 구하였다.

$$\text{두께 불균일}(\%) = (R / T_{ave}) \times 100$$

(15) 중심선 평균 표면 조도( $R_a$ )

(주) 고사카 겐꾸쇼제의 고밀도 박막 단차계 ET-10를 사용하여 측정하고, JIS B0601에 준하여 중심선 평균 표면 조도 ( $R_a$ )를 구하였다. 측정 선단 반경 0.5  $\mu m$ , 침압 5 mg, 측정 길이 1 mm, 커트 오프 0.08 mm로 하였다.

(16) 자기 테이프의 전자 변환 특성(C/N)

본 발명의 필름 표면에 하기 조성의 자성 도료 및 비자성 도료를 익스톨전 코터에 의해 중층 도포(상층은 자성 도료로 도포층 0.1  $\mu m$ , 비자성 하층의 두께는 적절히 변화시킨다)하고, 자기 배향시켜 건조시킨다. 이어서, 반대면에 하기 조성의 백 코트층을 형성한 후, 소형 테스트 칼렌더 장치(스틸/스틸 롤, 5단)로 온도: 85  $^{\circ}C$ , 선압: 200 kg/cm으로 칼렌더 처리한 후, 70  $^{\circ}C$ 에서 48시간 큐어링한다. 상기 테이프 원판을 8 mm 폭으로 슬릿하여 펜 케이크를 만든다. 이어서, 이 펜 케이크에서 길이 200 m분을 카세트에 삽입하여 카세트 테이프를 만든다.

이 테이프에 시판되고 있는 Hi8용 VTR(SONY사제 EV-BS3000)를 사용하여 7 MHz+ 1 MHz의 C/N(캐리어 대 노이즈 비율)를 측정한다. 이 C/N를 시판되고 있는 Hi8용 비디오 테이프(SONY사제 120분 MP)와 비교하여 + 3dB 이상은 O, + 1 이상 + 3dB 미만은 △, + 1dB 미만은 X로 판정한다. O가 바람직하지만, △라도 실용적으로는 사용 가능하다.

(자성 도료의 조성)

- 강자성 금속 분말 : 100 중량부
- 술폰산 Na 변성 염화비닐 공중합체 : 10 중량부
- 술폰산 Na 변성 폴리우레탄 : 10 중량부
- 폴리이소시아네이트 : 5 중량부
- 스테아르산 : 1.5 중량부
- 올레산 : 1 중량부
- 카본 블랙 : 1 중량부

·알루미나 : 10 중량부

·메틸에틸케톤 : 75 중량부

·시클로헥사논 : 75 중량부

·톨루엔 : 75 중량부

(비자성 하층 도료의 조성)

·산화티탄 : 100 중량부

·카본 블랙 : 10 중량부

·술폰산 Na 변성 염화비닐 공중합체 : 10 중량부

·술폰산 Na 변성 폴리우레탄 : 10 중량부

·메틸에틸케톤 : 30 중량부

·메틸이소부틸케톤 : 30 중량부

·톨루엔 : 30 중량부

(백 코트의 조성)

·카본 블랙(평균 입경 20 nm) : 95 중량부

·카본 블랙(평균 입경 280 nm) : 10 중량부

· $\alpha$  알루미나 : 0.1 중량부

·산화아연 : 0.3 중량부

·술폰산 Na 변성 폴리우레탄 : 20 중량부

·술폰산 Na 변성 염화비닐 공중합체 : 30 중량부

·시클로헥사논 : 200 중량부

·메틸에틸케톤 : 300 중량부

·톨루엔 : 100 중량부

#### (17) 고속 꺾임성

필름을 폭 1/2 인치의 테이프상으로 슬릿한 것을 테이프 주행성 시험기를 사용하여 가이드 핀(표면 조도: Ra로 100 nm)상을 주행시킨다(주행 속도 250 m/분, 주행 횟수 1 패스, 와인딩각: 60°, 주행 장력: 90 g). 이 때, 필름을 완전히 주행시킨 후의 가이드 핀을 육안으로 관찰하고, 백색분의 부착이 보이지 않는 것을 O, 백색분의 부착이 약간 보이는 것을  $\Delta$ , 백색분이 많이 부착되어 있는 것을 X로 판정한다. O가 바람직하지만,  $\Delta$ 라도 실용적으로는 사용 가능하다.

#### (18) 자기 테이프의 주행 내구성 및 보존성

본 발명의 필름 표면에 하기 조성의 자성 도료를 도포 두께 2.0  $\mu\text{m}$ 가 되도록 도포하고 자기 배향시켜 건조시킨다. 이어서, 반대면에 하기 조성의 백 코트층을 형성한 후, 칼렌더 처리한 후, 70  $^{\circ}\text{C}$ 에서 48시간 큐어링한다. 상기 테이프 원판을 1/2인치 폭으로 슬릿하고 자기 테이프로서 길이 670 m분을 카세트에 삽입하여 카세트 테이프로 한다.

(자성 도료의 조성)

- 강자성 금속 분말 : 100 중량부
- 변성 염화비닐 공중합체 : 10 중량부
- 변성 폴리우레탄 : 10 중량부
- 폴리이소시아네이트 : 5 중량부
- 스테아르산 : 1.5 중량부
- 올레산 : 1 중량부
- 카본 블랙 : 1 중량부
- 알루미나 : 10 중량부
- 메틸에틸케톤 : 75 중량부
- 시클로헥사논 : 75 중량부
- 톨루엔 : 75 중량부

(백 코트의 조성)

- 카본 블랙(평균 입경 20 nm) : 95 중량부
- 카본 블랙(평균 입경 280 nm) : 10 중량부
- $\alpha$  알루미나 : 0.1 중량부
- 변성 폴리우레탄 : 20 중량부
- 변성 염화비닐 공중합체 : 30 중량부
- 시클로헥사논 : 200 중량부
- 메틸에틸케톤 : 300 중량부
- 톨루엔 : 100 중량부

제작한 카세트 테이프를 IBM제 Magstar 3590 MODEL B1A Tape Drive를 사용하여 100시간 주행시키고, 다음의 기준으로 테이프의 주행 내구성을 평가한다. O가 합격품이다.

O: 테이프 단면의 신장, 꺾여짐이 없고, 깎인 흔적이 보이지 않음.

$\Delta$ : 테이프 단면의 신장, 꺾여짐이 없지만, 일부 깎인 흔적이 보임.

X: 테이프 단면의 일부가 신장, 미역상의 변형이 보이고 짙은 흔적이 보임.

또한, 상기 제작한 카세트 테이프를 IBM사제 Magstar3590 MODEL B1A Tape Drive에 데이터를 입력한 후, 카세트 테이프를 50 °C, 80 %RH의 분위기 중에 100시간 보존한 후, 데이터를 재생하여 다음의 기준으로 테이프의 보존성을 평가한다. O가 합격품이다.

O: 트랙 이탈도 없고, 정상적으로 재생하였다.

△: 테이프 폭에 이상이 없지만, 일부 해독 불가능이 보인다.

X: 테이프폭에 변화가 있고, 해독 불가능이 보인다.

(19) 플로피 디스크의 내트랙킹성

A. 온도 변화에 의한 트랙킹 이탈 테스트

트랙킹 이탈 테스트로서는 다음과 같은 방법을 사용한다. 금속 박막을 스퍼터법에 의해 기재 필름 양면에 자기 기록층을 형성하고 디스크상으로 타발한 금속 박막으로 이루어지는 플로피 디스크를 온도 15 °C, 습도 60 % RH로 링 헤드를 사용하여 자기 기록하고, 그 때의 최대 출력과 자기 시트의 출력 엔베로프를 측정한다. 이어서, 분위기 온도 60 °C, 온도 80 % RH가 되도록 유지하고, 그 온도에서의 최대 출력과 출력 엔베로프를 조사하여 온도 15 °C, 습도 60 % RH일 때의 출력 엔베로프와 온도 60 °C, 습도 80 %RH일 때의 출력 엔베로프를 비교하여 트랙킹의 상태를 판정한다. 이 차이가 적을 수록 우수한 내트랙킹성을 갖는다. 이 차이가 3 dB를 넘으면 트랙킹이 X, 3 dB 이내이면 O으로서 평가한다.

B. 습도 변화에 의한 트랙킹 이탈 테스트

전항과 동일하게 하여 제작한 플로피 디스크를 온도 25 °C, 상대 습도 20 %의 분위기에서 기록하고, 다시 분위기 조건을 온도 25 °C, 상대 습도 70 %로 유지하여, 양 조건에서의 출력 엔베로프를 비교하고 트랙킹의 상태를 판정한다. 전항과 마찬가지로 이 차이가 3 dB를 넘으면 트랙킹이 X, 3 dB 이내이면 O으로서 평가한다.

(20) 플로피 디스크의 내스크래치성

상기 (13)과 동일하게 하여 얻어진 플로피 디스크에 자기 기록한 동일 트랙을 상대 주행 속도 6 m/초로 10만회 이상 주사하고, 그 출력 엔베로프를 조사한다. 평가 기준은 자성층 표면에 생긴 흠을 확인하고, 동시에 출력 엔베로프가 불안정하게 된 것을 X로 한다. 자성층 표면에 흠이 발생하지 않고, 동시에 출력 엔베로프가 안정한 것을 O으로 평가한다.

(21) 열전사 리본의 인쇄성

본 발명의 이축 배향 필름에 하기 조성을 가진 열전사 잉크를 도포 두께가 3.5 μm가 되도록 핫 멜트 코터로 용착 방지층과 반대면에 도포하고, 열전사 리본을 제작한다.

(열전사 잉크의 조성)

카르나우바 왁스 : 60.6 중량%

마이크로 크리스탈린 왁스 : 18.2 중량%

아세트산비닐·에틸렌 공중합체 : 0.1 중량%

카본 블랙 : 21.1 중량%

제작한 열전사 리본에 대하여 오크스사 제품 바 코드 프린터(BC-8)로 흑색 솔리드를 인쇄하여 인쇄성을 평가한다. O가 합격품이다.

O: 선명하게 인쇄

△: 인쇄의 피치가 어긋남

X: 리본에 주름이 생겨 인쇄가 흐트러짐

XX: 핫 멜트 도공시에 필름에 주름이 들어가, 열전사 잉크를 균일하게 도포할 수 없음.

(22) 콘덴서용 특성 평가

A. 절연 저항

30 mm폭에서 1.5 mm폭의 마진을 갖는 좌우 대칭의 알루미늄 증착 필름 한쌍을 겹쳐, 1.5  $\mu$ F의 용량이 되는 길이로 권회한다. 이 권회물을 150  $^{\circ}$ C, 70 kg/cm<sup>2</sup>의 압력으로 10분간 압축하여 성형한다. 양단면에 메타리콘을 용사(溶射)하여 전극으로 하고, 리드선을 감아 콘덴서 샘플로 한다. 이어서, 여기에서 제작한 1.5  $\mu$ F의 콘덴서 샘플 1000개를 23  $^{\circ}$ C, 65 %RH의 분위기 하에서 YHP사제의 초절연 저항계 4329 A에 의해 인가 전압 500 V에서의 1분치로서 측정하고, 절연 저항이 5000 M $\Omega$  미만의 콘덴서 샘플을 불량품으로 하여 이하의 기준으로 판정한다. 또한, 본 발명에서는 ◎, ○, △가 합격품이다.

◎: 불량품이 10개 미만

○: 불량품이 10개 이상 20개 미만

△: 불량품이 20개 이상 50개 미만

X: 불량품이 50개 이상

B. 절연 파괴 전압

JIS-C-2318에 기재된 방법에 준하여 단, 금속 증착을 행하지 않은 필름을 시험편으로 사용하여 다음과 같이 평가한다.

적당한 크기의 금속제 평판 위에 고무 쇼어 경도 약 60도, 두께 약 2 mm의 고무판을 한장 얹고, 그 위에 두께 약 6  $\mu$ m의 알루미늄박을 10장 겹친 것을 하부 전극으로 하고, 약 50 g의 두께로 주변에 약 1 mm의 둥글린 부분을 가진 직경 8 mm의 저면이 평활하고 흠이 없는 황동제 원추를 상부 전극으로 한다.

이어서, 하기의 두가지 조건 하에서 테스트를 행하고, 실온 및 고온에서의 절연 파괴 전압을 측정한다. 우선, 각 분위기 하에 48시간 이상 방치한 후, 상부 전극과 하부 전극 사이에 시험편을 끼우고, 각 분위기에서 양 전극 사이에 직류 전원에 의해 직류 전압을 인가하고, 이 직류 전압을 1초에 100 V의 속도로 0 V에서 절연 파괴될 때까지 상승시킨다. 시료 50개에 대하여 시험을 행하고, 절연 파괴 전압을 시험편의 두께에서 뺀 것의 평균치를 구하여, 그 값이 조건 1에서는 400 V/ $\mu$ m 이상, 조건 2에서는 350 V/ $\mu$ m 이상을 합격(○)으로 한다.

조건 1: 온도 20 $\pm$ 5  $^{\circ}$ C, 상대 습도 65 $\pm$ 5 %

조건 2: 온도 125 $\pm$ 5  $^{\circ}$ C, 상대 습도 65 $\pm$ 5 %

(23) 감열 공판 인쇄의 실용 특성

필름과 종이를 붙여 원지를 제작하였다. 얻어진 원지를 서멀 헤드에 의해 인가 에너지 0.09 mJ 및 0.12 mJ로 문자 화상 및 16 단계의 계조 화상을 제판하였다. 제판된 원지의 필름측으로부터 현미경으로 계조 화상부의 천공 상태를 관찰하고, 이하의 항목에 대하여 평가하였다.

A. 천공 감도



○: 소정의 천공이 확실히 행해져 양호.

△: 소정의 천공을 얻지 못하는 부분이 부분적으로 있지만, 실용상 문제 없음.

X: 소정의 천공을 얻지 못하는 부분이 다수 있어 실용상 지장 있음.

B. 독립 천공성

○: 도트마다 독립적으로 천공되어 있음.

△: 거의 독립적으로 천공되어 있어, 실용상 문제는 없음.

X: 인(P)끼리의 도트가 연결되어 있어, 실용상 지장 있음.

또한, 제판 원지를 사용하고 리소 가가꾸 고교(주)제 리소그래프 AP7200를 사용하여 인쇄하고, 얻어진 문자, 화상에 대하여 하기 특성을 육안으로 판정하였다.

C. 문자 인쇄성

○: 문자의 누락 유무 및 문자의 굵기 불균일 유무에 있어서 전혀 문제 없음.

△: 누락, 굵기 불균일은 있지만, 사용 가능.

X: 누락, 굵기 불균일에 있어서 확실히 문제가 있어 사용 불가능.

D. 솔리드 인쇄성의 평가

●(둥글고 안이 검게 칠해져 있는 것)으로 0.5, 1.0, 3.0, 10.0 및 30.0 mm $\psi$ 의 원지를 사용하여 제판, 인쇄한 것을 다음과 같이 평가하였다.

○: 솔리드 인쇄의 원지와 대응성, 농담 불균일의 점에서 전혀 문제 없음.

△: 대응성, 농담 불균일의 점에서 다소 문제가 있지만, 사용 가능.

X: 대응성, 농담 불균일의 점에서 확실히 문제가 있어 사용 불가능.

이하, 본 발명을 실시예, 비교예에 근거하여 설명한다.

<실시예 1>

고유 점도 0.85의 PET(PET)의 펠렛(50 중량%)과 General Electric사제의 고유 점도 0.68의 "Ultem" 1010(50 중량%)를 290 °C로 가열된 동일 방향 회전 타입의 벨트식 2축 혼련 압출기에 공급하여 "Ultem"를 50 중량% 함유한 블렌드 칩을 제작하였다. 여기에서 얻어진 칩은 조금 백탁되어 있고, 분산 도메인의 평균 분산 직경은 0.5  $\mu$ m였다.

이어서, 상기 펠레타이즈 조작에 의해 얻은 블렌드 칩 40 중량부와 고유 점도 0.65의 PET 칩 60 중량부를 180 °C에서 3시간 진공 건조한 후, 290 °C로 가열된 직경 150 mm의 스크류를 갖춘 단축 압출기에 투입하여 하기 표 1의 조건으로 용융 압출하고, 섬유 소결 스테인레스 금속 필터(5  $\mu$ m 커트)내를 전단 속도 10 초<sup>-1</sup>로 통과시킨 후, T 다이로부터 시트상으로 압출하여 이 시트를 표면 온도 25 °C의 냉각 드럼상에 드래프트비 10으로 30 m/분의 속도로 밀착 고화시켜 급냉하고, 실질적으로 무배향의 미연신 필름을 얻었다.

이어서, 이 미연신 필름을 가열된 복수의 물군으로 이루어지는 종연신기를 사용하고 물의 주속차를 이용하여 105 °C의 온도에서 필름의 종방향으로 3.8배의 배율로 연신하였다. 그 후, 이 필름의 양말단을 클립으로 파지하고, 텐터로 유도하여 연

신 온도 100 °C, 연신 배율 4배로 필름의 폭 방향으로 연신하고, 이어서 210 °C의 온도에서 열처리한 후, 150 °C와 100 °C로 조절된 두개의 냉각 범위에서 횡방향으로 2 % 및 1 %의 이완 처리를 각각 행하고, 실온까지 냉각한 후, 필름 에지를 제거하여 두께 9 μm의 이축 배향 폴리에스테르 필름을 얻었다.

블렌드 비율, 용융 압출 조건 및 연신 배율을 표 1에, 얻어진 필름의 고유 점도, 굴절률, 밀도, 면배향 계수, 유리 전이 온도 (Tg), 외삽 유리 전이 개시 온도(Tg-onset), 폴리에스테르의 (-1 0 5)방향의 결정 크기, 두께 불균일, 제막시의 파단 빈도를 하기 표 2에, 용해 열량, 돌기 높이 0.5 μm의 표면 조대 돌기의 갯수, 헤이즈, 영률, 100 °C 열수축률, 크립 컴플라이언스를 하기 표 3에 나타내었다. 여기에서 얻어진 필름은 단일한 유리 전이 온도를 갖고, 굴절률이 본 발명의 범위에 있기 때문에 두께 불균일이 양호하고, 투명성, 열치수 안정성이 우수한 고품질의 폴리에스테르 필름이었다. 또한, 본 필름의 제막시에는 필름 파단도 적고, 생산성도 양호하였다.

<실시예 2 내지 4>

표 1에 나타낸 조건으로 용융 압출한 것 이외는 실시예 1과 동일하게 제막하여 PET와 "Ultem"으로 이루어지는 폴리에스테르 필름을 얻었다. 필름 특성을 표 2 및 3에 나타내었다. 두께 불균일, 열치수 안정성은 양호하였지만, 바람직한 압출 조건을 벗어났기 때문에 실시예 1과 비교하여 투명성은 조금 나빠졌다. 또한, 표면 조대 돌기가 많아졌다.

<실시예 5, 6>

"Ultem"의 함유율 및 제막 조건을 표 1에 나타낸 바와 같이 변경한 것 이외는 실시예 1과 동일하게 제막하였다. 필름 특성을 표 2 및 3에 나타내었다. "Ultem"의 함유율을 변경해도 단일한 유리 전이 온도를 갖고, 표면 조대 돌기가 적은 투명성이 양호하고 열치수 안정성이 우수한 고품질의 폴리에스테르 필름을 얻을 수 있었다.

<실시예 7>

고유 점도 0.75의 PET 칩을 블렌드 칩과 함께 압출기에 투입한 것 이외는 실시예 1과 동일한 조건으로 제막하였다. 필름 특성을 표 2 및 3에 나타내었다. 필름의 고유 점도를 높이면 표면 조대 돌기가 더욱 감소하고, 투명성, 열치수 안정성이 우수한 필름을 얻을 수 있으며, 제막시의 필름 파단도 전혀 없어진다.

<실시예 8 내지 10>

PET와 "Ultem"의 중량 분율 또는 PET 원료의 고유 점도를 하기 표 4에 나타낸 바와 같이 변경하여 블렌드 칩을 제작한 것 이외는, 실시예 7과 동일하게 제막하였다. 필름 특성을 표 2 및 3에 나타내었다. "Ultem"의 중량 분율을 높이자 블렌드 칩 중에 존재하는 분산 도메인의 평균 분산 직경이 작아졌지만, 표면 조대 돌기는 어느 정도 증가하였다. 한편, PET의 고유 점도를 높여 PET와 "Ultem"의 고유 점도비를 본 발명의 보다 바람직한 범위로 설정한 경우, 블렌드 칩 중의 분산 도메인의 평균 분산 직경이 작아지고, 용융 압출, 이축 연신 후에 얻어진 필름의 표면 조대 돌기도 전혀 확인되지 않았다.

<비교예 1>

미리 블렌드 칩을 제작하지 않고, 고유 점도 0.65의 PET 80 중량부와 고유 점도 0.68의 "Ultem"1010 20 중량부를 180 °C에서 3시간 진공 건조한 후, 290 °C로 가열된 직경 150 mm의 스크류를 구비한 단축 압출기에 투입하여 표 1의 조건으로 용융 압출하였다. 여기에서 얻어진 실질적으로 무배향의 미연신 필름은 PET와 "Ultem"에 의한 두개의 유리 전이 온도를 갖고 있어 연신할 수 없었다. 또한, 미연신 필름은 무수한 조대 입자를 함유하고 있었다.

<비교예 2>

PEI를 사용하지 않고 PET 단독 원료를 사용하여 제막한 것 이외는, 실시예 1과 동일하게 용융 압출, 제막하여 두께 9 μm의 이축 배향 폴리에스테르 필름을 얻었다. 필름 특성을 표 2 및 3에 나타내었다. 본 비교예의 필름은 PEI를 함유하지 않기 때문에 투명성, 표면성은 특히 문제될 것 없지만, 두께 불균일이 크고 열치수안정성도 대폭으로 악화되었다.

<비교예 3>

PEI를 20 중량% 함유하는 미연신 필름을 실시예 1과 동일하게 제작하였다. 이어서, 이 미연신 필름을 가열된 복수의 롤군으로 이루어지는 종연신기를 사용하고, 롤의 주속차를 이용하여 125 °C의 온도에서 필름의 종방향으로 2.8배의 배율로 연

신하였다. 그 후, 이 필름의 양단부를 클립으로 과지하여 텐터로 유도하고, 연신 온도 120 ℃, 연신 배율 2.8배로 필름의 폭 방향으로 연신하고, 이어서 150 ℃에서 0.1초간 열처리한 후, 실온까지 냉각하고 그 후, 필름 에지를 제거하여 두께 9 μm의 이축 배향 폴리에스테르 필름을 얻었다. 필름 특성을 표 2 및 3에 나타내었다.

여기에서 얻어진 이축 배향 필름은 길이 방향, 폭 방향 모두 굴절률이 1.60 미만이고, 두께 불균일이 매우 컸다.

<비교예 4>

이축 연신 후의 열 처리를 210 ℃에서 2초간 행한 것 이외는, 비교예 3과 동일하게 제막하여 두께 9 μm의 이축 배향 폴리에스테르 필름을 얻었다. 필름 특성을 표 2 및 3에 나타내었다. 여기에서 얻은 이축 배향 필름은 길이 방향, 폭 방향 모두 굴절률이 1.60 미만이고, 필름의 두께 불균일이 매우 컸다.

<비교예 5>

PEI를 사용하지 않고 PET 단독 원료를 사용하여 제막한 것 이외는, 실시예 1과 동일하게 용융 압출하여 미연신 필름을 얻었다.

이어서, 이 미연신 필름을 120 ℃의 온도에서 필름의 종방향으로 2.0배의 배율로 연신한 후, 80 ℃의 온도에서 2.7배 연신하였다. 그 후, 이 필름의 양단단을 클립으로 과지하여 텐터로 유도하고, 연신 온도 100 ℃, 연신 배율 4배로 필름의 폭 방향으로 연신하고, 이어서 210 ℃의 온도에서 열처리한 후, 150 ℃와 100 ℃로 조절된 냉각 범위에서 횡방향으로 2 % 및 1 %의 이완 처리를 각각 행하고, 실온까지 냉각한 후, 필름 에지를 제거하여 두께 9 μm의 이축 배향 폴리에스테르 필름을 얻었다. 필름 특성을 표 2 및 3에 나타내었다. 본 비교예의 필름은 PEI를 함유하지 않기 때문에 투명성, 표면성은 특히 문제될 것이 없지만, 두께 불균일이 크고 열치수 안정성도 대폭으로 악화되었다.

<비교예 6>

실시예 1과 동일하게 블렌드 원료를 조제하고, 이 블렌드 원료 40 중량%와 고유 점도 0.65의 PET 60 중량%를 압출기에 투입하여 미연신 필름을 제작하였다.

이어서, 이 미연신 필름을 비교예 5와 동일한 조건으로 연신하고자 하였다. 우선, 120 ℃의 온도에서 필름의 종방향으로 2.0배의 배율로 연신하였다. 이어서, 80 ℃의 온도에서 2.7배 연신하고자 했더니, 필름이 찢어져 이축 배향 필름을 얻을 수 없었다.

또한, 상기 종방향으로 2배 연신한 일축 배향 필름은 두께 불균일이 22 %, 길이 방향의 100 ℃의 열수축률이 45 %로, 본 발명의 이축 배향 필름과 비교하여 품질이 대폭으로 떨어지는 것이었다.

[표 1]

	PET/PEI 중량분율	용융 압출 조건				연신 배율
		마스터칩	전단속도 (초 <sup>-1</sup> )	중합체 온도(℃)	토출 시간 (분)	종배율x횡배율
실시예 1	80/20	사용	150	300	4.0	3.8 x 4.0
실시예 2	80/20	사용	180	300	0.8	3.8 x 4.0
실시예 3	80/20	사용	200	325	4.0	3.8 x 4.0
실시예 4	80/20	사용	25	300	4.0	3.8 x 4.0
비교예 1	80/20	미사용	320	332	12.0	연신 불가능
실시예 5	60/40	사용	120	305	4.4	3.5 x 3.8
실시예 6	90/10	사용	150	302	4.0	3.7 x 4.2

[표 2]

	고유 점도 (dl/g)	굴절률		밀도 (g/cm <sup>3</sup> )	면 배향 계수	Tg (°C)	Tg-onset (°C)	결정 크기 (Å)	두께 불균일 (%)	파단 빈도
		MD	TD							
실시에 1	0.63	1.64	1.66	1.371	0.130	123	103	52	7	○
실시에 2	0.68	1.64	1.66	1.370	0.130	120	102	50	8	△
실시에 3	0.58	1.65	1.66	1.372	0.131	118	100	52	9	△
실시에 4	0.70	1.64	1.66	1.370	0.130	122	102	50	10	△
실시에 5	0.61	1.64	1.65	1.360	0.102	137	102	43	8	○
실시에 6	0.63	1.63	1.67	1.377	0.140	115	102	53	7	◎
실시에 7	0.68	1.64	1.66	1.370	0.130	123	103	51	7	◎
실시에 8	0.65	1.64	1.66	1.370	0.130	121	101	53	7	○
실시에 9	0.63	1.64	1.66	1.370	0.130	120	102	53	7	○
실시에 10	0.70	1.64	1.66	1.370	0.130	124	103	49	7	◎
비교예 1	0.54	-	-	-	-	-	-	-	-	-
비교예 2	0.60	1.63	1.67	1.387	0.170	102	82	57	18	△
비교예 3	0.60	1.58	1.59	1.365	0.078	105	98	31	26	△
비교예 4	0.60	1.58	1.59	1.386	0.075	104	99	51	24	△
비교예 5	0.60	1.69	1.64	1.390	0.182	103	85	58	16	△
비교예 6	0.63	-	-	-	-	-	-	-	-	-

주) MD: 필름의 길이 방향, TD: 필름의 폭 방향

[표 3]

	용해열량 (J/g)	표면조대들기 (개/cm <sup>3</sup> )	헤이즈 (%)	영률 (GPa)		100°C 열수축률 (%)		크립 컴플라이언스 (GPa <sup>-1</sup> )	
				MD	TD	MD	TD	MD	TD
실시에 1	3.5	5	2.5	4.1	5.5	0.2	0.2	0.53	0.51
실시에 2	3.4	4.0	6.0	4.1	5.5	0.2	0.2	0.54	0.52
실시에 3	3.8	7.3	8.5	4.1	5.5	0.3	0.2	0.55	0.52
실시에 4	3.4	12.0	12.5	4.1	5.5	0.3	0.2	0.55	0.52
실시에 5	2.5	7	5.2	4.1	5.2	0.0	0.1	0.53	0.49
실시에 6	3.7	4	1.3	4.2	5.7	0.3	0.2	0.54	0.52
실시에 7	3.4	2	2.4	4.2	5.4	0.1	0.2	0.52	0.50
실시에 8	3.6	4	4.0	4.1	5.5	0.3	0.3	0.54	0.51
실시에 9	3.5	1.0	7.0	4.0	5.7	0.2	0.2	0.54	0.48
실시에 10	3.5	0	1.8	4.2	5.5	0.2	0.2	0.53	0.51
비교예 1	-	-	-	-	-	-	-	-	-
비교예 2	4.7	1	1.3	3.3	3.4	1.2	1.0	0.85	0.76
비교예 3	8	1	1.4	3.2	3.2	1.4	1.2	1.40	1.22
비교예 4	4.8	1	1.5	3.3	3.4	1.0	0.7	0.62	0.58
비교예 5	4.6	1	1.4	7.2	4.1	2.0	0.5	0.38	0.70
비교예 6	-	-	-	-	-	-	-	-	-

주) MD: 필름의 길이 방향, TD: 필름의 폭 방향

용해 열량: 폴리에스테르 결정의 용해 열량, DSC에 의한 측정

[표 4]

	PET/PEI 마스터			이축 배향 필름
	PET/PEI 분율 (중량 %)	원료 IV비	평균 분산 직경 ( $\mu\text{m}$ )	PET/PEI 분율 (중량 %)
실시에 7	50/50	1.25 (0.85/0.68)	0.3	80/20
실시에 8	30/70	1.25 (0.85/0.68)	0.2	80/20
실시에 9	10/90	1.25 (0.85/0.68)	0.1	80/20
실시에 10	50/50	1.47 (1.00/0.68)	0.1	80/20

주) 마스터의 원료 IV 비율은 (PET 원료의 IV)/(PEI 원료의 IV)이고, 괄호안은 그 값을 나타낸다.

<실시에 11>

여기에서는 순차 이축 연신 방식의 2차 중형 연신법에 의해 강력화 필름을 제조한 예를 나타낸다.

실시에 1과 동일하게 PET가 50 중량부, "Ultem"1010이 50 중량부로 이루어지는 블렌드 칩을 제작하고, 이 블렌드 칩 40 중량부와 고유 점도 0.75의 PET 칩 60 중량부를 180 °C에서 3시간 진공 건조한 후, 290 °C로 가열된 직경 150 mm의 스크류를 구비한 단축 압출기에 투입하여 용융 압출하고, 섬유 소결 스테인레스 금속 필터(5  $\mu\text{m}$  커트)내를 전단 속도 10 초<sup>-1</sup>로 통과시킨 후, T 다이로부터 시트상으로 토출하고, 이 시트를 표면 온도 25 °C의 냉각 드럼상에 드래프트비 10으로 30 m/분의 속도로 밀착 고화시켜 급냉하고, 실질적으로 무배향의 PET 80 중량부, PEI 20 중량부로 이루어지는 고유 점도 0.67의 미연신 필름을 얻었다. 용융 압출시의 스크류 전단 속도는 120 초<sup>-1</sup>, 토출 시간은 5분이고, 중합체 온도는 304 °C였다.

이어서, 이 미연신 필름을 가열된 복수의 롤 균으로 이루어지는 종연신기를 사용하고 롤의 주축차를 이용하여 105 °C의 온도에서 필름의 종방향으로 3.5배의 배율로 연신한 후, 이 필름의 양단부를 클립으로 파지하고, 제1 텐터로 유도하여 연신 온도 110 °C, 연신 배율 3.5배로 필름의 폭 방향으로 연신하였다. 이어서, 이 중형 방향으로 연신한 필름을 다시 롤 종연신기에서 연신 온도 160 °C의 온도로 1.65배의 배율로 2차 중연신하였다. 그 후, 다시 필름을 제2 스텐터로 유도하고 180 °C의 온도에서 1.4배의 배율로 2차 횡연신하고, 이어서 200 °C의 온도에서 열처리한 후, 150 °C의 온도 범위에서 횡방향으로 3 %, 100 °C의 온도 범위에서 횡방향으로 1 %의 이완 처리를 하고 실온까지 냉각한 후, 필름 에지를 제거하고, 두께 5  $\mu\text{m}$ 의 이축 배향 폴리에스테르 필름을 얻었다. 필름의 특성을 표 6 및 7에 나타내었다. 여기에서 얻어진 필름은 표면 조대 돌기가 적고, 투명성이 양호하며 종방향의 영률이 높고 저열 수축성을 가진 고품질의 폴리에스테르 필름이었다. 총 면적 배율이 27.2배라는 고배율 연신을 행함에도 불구하고, 필름 파단이 적고 생산성이 양호하였다.

<실시에 12>

폴리에틸렌테레프탈레이트(고유 점도 0.85)의 펠렛(50 중량%)과 폴리에테르이미드의 펠렛("Ultem" 1010(General Electric사 등록 상표))(50 중량%)를 280 °C로 가열된 벨트식의 2축 혼련 압출기에 공급하고, 전단 속도 100 sec<sup>-1</sup>, 체류 시간 1분으로 용융 압출하여 폴리에테르이미드를 50 중량% 함유한 블렌드 칩을 얻었다.

얻어진 블렌드 칩과 폴리에틸렌테레프탈레이트(고유 점도 0.62)를 40:60의 비율로 드라이 블렌드하였다. 180 °C에서 3시간 진공 건조한 후, 압출기에 투입하여 285 °C에서 용융 압출하고, 섬유 소결 스테인레스 금속 필터(5  $\mu\text{m}$  커트)내를 전단 속도 10 초<sup>-1</sup>로 통과시킨 후, T 다이로부터 시트상으로 압출하였다. 다시 이 시트를 표면 온도 25 °C의 냉각 드럼상에, 4 m/분의 속도로 밀착시켜 냉각 고화하고, 실질적으로 무배향 상태의 폴리에테르이미드 20 중량% 함유 필름을 얻었다.

이어서, 이 얻어진 필름을 하기 표 5에 나타낸 조건으로 연신하였다. 우선, 여러 개의 롤이 배치된 종연신기를 사용하고 롤의 주축차를 이용하여 종방향으로 연신(MD 연신 1)하고, 이어서 스텐터에 의해 횡연신(TD 연신 1)하고, 다시 롤 종연신기로 2차 종연신(MD 연신 2)한 후, 스텐터에 의해 2차 횡연신(TD 연신 2), 열 처리하고 실온으로 냉각한 후, 필름 에지를 제거하여 두께 6.9  $\mu\text{m}$ 의 이축 연신 필름을 얻었다.

얻어진 필름의 특성은 하기 표 6 및 7에 나타낸 바와 같다. 적어도 한쪽 방향의 굴절률이 본 발명의 범위 내이고, 강성이 높고 동시에 열치수 안정성이 우수한 고품질의 필름을 얻을 수 있었다.

<실시에 13 내지 16>

폴리에테르이미드의 첨가량, 제막 조건을 표 5에 나타낸 바와 같이 변경한 것 이외는 실시예 12와 동일한 방법으로 필름을 제막하였다. 필름의 특성을 표 6 및 7에 나타내었다. 폴리에테르이미드의 첨가량이 40 %, 10 %, 5 %인 경우에 있어서도 열치수 안정성, 투명성이 양호한 이축 배향 필름을 얻을 수 있었다.

<비교예 7>

실시에 1과 동일한 방법으로 폴리에테르이미드를 50 중량% 함유한 블렌드 칩을 얻었다. 이 블렌드 칩과 폴리에틸렌테레프탈레이트(고유 점도 0.62)를 40: 60의 비율로 혼합하고, 330 °C로 용융 압출하여 섬유 소결 스테인레스 금속 필터(5 μm 커트)내를 전단 속도 10 초<sup>-1</sup>로 통과시킨 후, T 다이로부터 시트상으로 토출하였다. 또한, 이 시트를 표면 온도 25 °C의 냉각 드럼상에 4 m/분의 속도로 밀착시켜 냉각 고화하고, 실질적으로 무배향 상태의 폴리에테르이미드 20 중량% 함유 필름을 얻었다. 얻어진 필름은 백탁된 필름이었다.

이어서, 얻어진 필름을 실시예 12와 동일하게 표 5에 나타낸 조건으로 연신하였다. 필름의 특성을 표 6 및 7에 나타내었다. 여기에서 얻어진 필름은 길이 방향 및 폭 방향의 굴절률이 모두 1.60 미만이기 때문에 두께 불균일이 크고, 열치수 안정성도 불량하였다.

<실시에 17>

폴리에틸렌테레프탈레이트(고유 점도 0.65)의 펠렛(80 중량%)과 폴리에테르이미드의 펠렛("Ultem"1010(General Electric사제, 등록 상표)) (20 중량%)를 280 °C로 가열된 벨트식의 이축 혼련 압출기에 공급하고, 전단 속도 100 sec<sup>-1</sup>, 체류 시간 1분으로 용융 압출하고, 폴리에테르이미드를 20 중량% 함유한 폴리에스테르 칩을 얻었다. 얻어진 칩은 투명하고, 유리 전이 온도는 하나밖에 관측되지 않았다.

얻어진 폴리에테르이미드 함유 칩을 180 °C에서 3시간 진공 건조한 후, 압출기에 투입하고, 285 °C로 용융 압출하여 섬유 소결 스테인레스 금속 필터(10 μm 커트)내를 전단 속도 10 초<sup>-1</sup>로 통과시킨 후, T 다이로부터 시트상으로 토출하였다. 다시 이 시트를 표면 온도 25 °C의 냉각 드럼상에 2.5 m/분의 속도로 밀착시켜 냉각 고화하고, 실질적으로 무배향 상태의 필름을 얻었다.

이어서, 여기에서 얻어진 필름을 표 5에 나타낸 조건으로 연신하였다. 우선, 여러 개의 롤이 배치된 종연신기를 사용하고 롤의 주축차를 이용하여 횡방향으로 연신(MD 연신 1)하고, 이어서 스텐터에 의해 횡연신(TD 연신 1)하고, 다시 롤 종연신기로 2차 종연신(MD 연신 2)한 후, 스텐터에 의해 2차 횡연신(TD 연신 2), 열 처리하여 실온으로 냉각한 후, 필름 에지를 제거하여 두께 10.1 μm의 이축 배향 필름을 얻었다.

얻어진 필름의 특성은 표 6 및 7에 나타낸 바와 같다. 본 실시예의 필름은 외삽 유리 전이 개시 온도가 바람직한 범위에 있고, 영률이 높으며, 열치수 안정성이 우수하였다. 그러나, 본 실시예에서는 바람직한 블렌드 원료를 사용하지 않았기 때문에 상기 실시예 11 내지 16과 비교하여 표면 조대 돌기가 증대되고 제막 중의 필름 파단의 빈도도 높았다.

<실시에 18 내지 20>

폴리에테르이미드의 첨가량을 변경하고, 표 5에 나타낸 조건으로 연신한 것 이외는 실시예 17과 동일하게 제막하여 두께 10 μm의 이축 배향 필름을 얻었다. 필름의 특성을 표 6 및 7에 나타내었다. 폴리에테르이미드의 첨가량을 40 중량%로 하면, 더욱 열치수 안정성이 우수한 필름을 얻을 수 있었다. 폴리에테르이미드의 함유량이 5 중량% 및 10 중량%의 경우에는 폴리에테르이미드의 함유율이 40 중량%인 실시예 18의 경우보다 표면 조대 돌기가 많아져 필름 파단 빈도도 높았다.

<실시에 21>

본 실시예에서는 동시 이축 연신법에 의해 종 및 횡방향으로 강력화한 필름의 제조예를 나타내었다.

우선, 실시예 11과 동일하게 미연신 필름을 제작하였다. 그 후, 필름 양단부를 클립으로 파지하고, 동시 이축 텐터로 유도하여 연신 온도 110 °C, 총 면적 배율 12.25배(필름의 길이 방향으로 3.5배, 폭 방향으로 3.5배)로 연신한 후, 이어서 170 °C의 온도에서 총면적 배율 2.25배(길이 방향 1.5배, 폭 방향으로 1.5배)의 배율로 연신하였다. 이어서, 200 °C의 온도로 열처리한 후, 150 °C의 온도 범위에서 종방향 및 횡방향으로 각각 2%, 100 °C의 온도 범위에서 종방향 및 횡방향으로 각각 1%의 이완 처리를 행하고, 실온까지 냉각한 후, 필름 에지를 제거하여 두께 5 μm의 이축 배향 폴리에스테르 필름을 얻었다. 제막 조건 및 필름 특성을 표 6 및 7에 나타내었다. 여기에서 얻어진 필름은 표면 조대 돌기가 적고 투명성이 양호하며, 고강도 내지 저열 수축성을 가진 고품질의 폴리에스테르 필름이었다. 총 면적 배율이 25.9배라는 고배율 연신을 행했음에도 불구하고, 필름 파단이 적고 생산성도 양호하였다.

[표 5]

	PEI 함유율 (중량%)	MD연신1		TD연신1		MD연신2		TD연신2		열처리		총 면적 배율
		온도 (°C)	배율	온도 (°C)	배율	온도 (°C)	배율	온도 (°C)	배율	온도 (°C)	시간 (초)	
실시예 11	2.0	105	3.5	110	3.5	160	1.65	180	1.4	200	2.0	27.2
실시예 12	2.0	120	3.0	110	4.0	155	1.7	190	1.5	200	0.5	30.6
실시예 13	4.0	130	2.8	115	3.7	160	1.5	195	1.5	205	2.0	23.3
실시예 14	1.0	117	3.0	105	4.0	155	1.7	190	1.5	190	1.0	30.6
실시예 15	5	112	3.0	95	4.0	155	1.7	190	1.5	190	1.0	30.6
실시예 16	2.0	120	3.5	110	4.5	155	1.7	190	1.5	190	0.5	40.2
비교예 7	2.0	130	2.8	130	3.7	160	1.5	195	1.5	200	0.5	23.3
실시예 17	2.0	112	3.2	90	4.6	155	1.7	210	1.5	210	1.0	37.5
실시예 18	4.0	121	3.2	95	4.6	160	1.7	210	1.5	210	1.0	37.5
실시예 19	5	112	3.2	90	4.6	155	1.7	210	1.5	210	1.0	37.5
실시예 20	1.0	117	3.0	105	4.0	155	1.7	190	1.5	190	1.0	30.6

[표 6]

	고유 점도 (dl/g)	굴절률		밀도 (g/cm <sup>3</sup> )	면 배향 계수	Tg (°C)	Tg-onset (°C)	결정 크기 (Å)	두께 불균일 (%)	파단 빈도
		MD	TD							
실시예 11	0.68	1.67	1.62	1.372	0.120	127	103	52	4	○
실시예 12	0.60	1.65	1.67	1.370	0.127	128	102	50	5	○
실시예 13	0.62	1.66	1.66	1.360	0.102	141	116	43	6	○
실시예 14	0.60	1.65	1.68	1.375	0.158	118	101	53	5	○
실시예 15	0.60	1.65	1.68	1.410	0.162	113	96	53	6	○
실시예 16	0.60	1.63	1.68	1.380	0.149	115	102	52	7	○
비교예 7	0.60	1.58	1.59	1.365	0.070	107	101	35	18	×
실시예 17	0.60	1.64	1.66	1.372	0.122	124	102	54	10	△
실시예 18	0.60	1.64	1.66	1.365	0.107	139	117	43	11	△
실시예 19	0.60	1.64	1.66	1.373	0.155	112	95	55	12	△
실시예 20	0.60	1.64	1.66	1.375	0.133	122	102	54	12	△
실시예 21	0.68	1.65	1.65	1.371	0.127	126	103	52	5	○

[표 7]

	용해열량 (J/g)	표면조대돌기 (개/cm <sup>2</sup> )	헤이즈 (%)	영률 (GPa)		100℃ 열수축률(%)		크립 컴플라이언스 (GPa <sup>-1</sup> )	
				MD	TD	MD	TD	MD	TD
실시에 11	3.4	2	3.0	7.4	5.0	0.45	0.3	0.21	0.34
실시에 12	3.1	5	1.2	6.8	8.6	0.0	0.1	0.26	0.22
실시에 13	2.4	4	1.3	7.2	9.2	0.0	0.1	0.20	0.17
실시에 14	3.8	5	1.1	6.4	8.8	0.2	0.1	0.24	0.20
실시에 15	4.1	6	0.5	6.5	8.5	0.6	0.3	0.32	0.29
실시에 16	3.2	5	1.2	7.3	8.2	0.2	0.3	0.54	0.52
비교예 7	2.9	5	15.5	3.4	4.2	2.1	2.3	0.61	0.75
실시에 17	3.4	6.2	5.0	6.8	8.6	0.3	0.1	0.26	0.22
실시에 18	2.8	2.8	9.0	7.2	9.2	0.1	0.0	0.20	0.17
실시에 19	4.2	5.0	6.8	6.5	8.5	0.8	0.3	0.32	0.29
실시에 20	3.8	5.5	6.3	6.4	8.4	0.3	0.2	0.28	0.24
실시에 21	3.3	2	2.8	6.0	6.0	0.4	0.4	0.29	0.29

<실시에 22>

PET 중에 평균 입경 0.07 μm의 구형 실리카 입자 0.40 중량%를 배합한 것을 사용한 것 이외는, 실시에 1과 동일한 방법으로 폴리에테르이미드를 50 중량% 함유한 블렌드 칩(PET/PEI(I))을 얻었다. 또한, PET 중에 평균 입경 0.3 μm의 구형 가교 폴리스티렌 입자 0.5 중량%와 평균 직경 0.8 μm의 구형 가교 폴리스티렌 입자 0.025 중량%를 배합한 것을 사용한 것 이외는, 실시에 1과 동일한 방법으로 폴리에테르이미드를 50 중량% 함유한 블렌드 칩(PET/PEI(II))을 얻었다.

이어서, 압출기 A, B 두대를 사용하여 압출기 A가 자성면, 압출기 B가 주행면을 형성하도록 적층 필름을 제작하였다. 280 °C로 가열된 압출기 A에는 PET/PEI(I)의 펠렛 40 중량부와 고유 점도 0.65의 PET 60 중량부를 180 °C에서 3시간 진공 건조한 후, 공급하고, 마찬가지로 280 °C로 가열된 압출기 B에는 PET/PEI(II)의 펠렛 40 중량부와 고유 점도 0.65의 PET 60 중량부를 180 °C에서 3시간 진공 건조한 후 공급하여 T 다이 중에서 합류시킨 후(적층비 I/II=10/1), 표면 온도 25 °C의 캐스팅 드럼상에 정전기에 의해 밀착시켜 냉각 고화하고, 적층 미연신 필름을 얻었다.

이어서, 여기에서 얻어진 필름을 하기 표 8에 나타낸 조건으로 연신하고, 두께 7.5 μm의 이축 배향 필름을 얻었다.

얻어진 필름의 기본 특성을 하기 표 9에, 자기 테이프 특성을 하기 표 10에 나타내었다. 폴리에테르이미드를 함유하는 본 실시예의 필름은 PET 단독으로 이루어지는 비교예 8의 필름과 비교하여 강도, 열차수 안정성이 우수하고, 주행 내구성, 보존 안정성, 고속 박리성, 전자 변환 특성 등의 자기 테이프 특성에 있어서도 훨씬 우수하였다.

<실시에 23, 24, 비교예 8>

폴리에테르이미드 함유량을 표 8에 나타낸 바와 같이 변경한 것 이외는, 실시에 22와 동일하게 적층 미연신 필름을 제작하였다. 블렌드 원료 중의 입자량은 필름의 두께에 첨가하는 입자의 비율이 실시에 22와 동일해지도록 조정하였다. 이어서, 표 8에 나타낸 조건으로 실시에 22와 동일하게 제작하고, 두께 7.5 μm의 이축 배향 필름을 얻었다.



[표 8]

	PEI 함유율 (중량%)	MD연신1		TD연신1		MD연신2		TD연신2		열처리		총 면적 배율
		온도 (°C)	배율	온도 (°C)	배율	온도 (°C)	배율	온도 (°C)	배율	온도 (°C)	시간 (초)	
실시예 22	2.0	112	3.2	90	4.6	155	1.7	210	1.5	210	1.0	37.5
실시예 23	1.0	107	2.8	90	4.6	155	1.7	210	1.5	210	1.0	37.5
실시예 24	2.0	102	2.8	90	4.6	155	1.7	210	1.5	210	1.0	37.5
비교예 8	0	102	3.2	90	4.6	155	1.7	210	1.5	210	1.0	37.5

[표 9]

	굴절률		밀도 (g/cm <sup>3</sup> )	Tg-onset (°C)	표면 조도Ra (nm)		영률 (GPa)		100°C 열수축률 (%)		크립 컴플라이언스 (GPa <sup>-1</sup> )	
	MD	TD			자성면	주행면	MD	TD	MD	TD	MD	TD
	실시예 22	1.64	1.67	1.371	100	4.0	10.5	6.7	8.5	0.3	0.2	0.27
실시예 23	1.65	1.68	1.377	93	4.0	10.4	6.8	8.4	0.4	0.3	0.35	0.34
실시예 24	1.65	1.67	1.384	88	4.0	10.7	6.5	8.3	0.8	0.4	0.37	0.36
비교예 8	1.65	1.67	1.392	81	4.2	10.6	5.2	6.8	3.0	1.9	0.43	0.40

[표 10]

	고속 박리성	전자 변환 특성	주행 내구성	보존 안정성
실시예 22	○	○	○	○
실시예 23	○	○	○	○
실시예 24	○	△	△	△
비교예 8	×	×	×	×

여기에서 얻어진 필름의 평가 결과를 표 9, 10에 나타내었다. 외삽 유리 전이 개시 온도가 90 °C 미만인 경우에는 강도, 열 찌트수 안정성이 우수하였지만, 자기 테이프로서의 실용 특성이 저하되었다.

<실시예 25>

실시예 1과 동일하게 제작한 PET/PEI(50/50)의 블렌드 원료와 PET(고유 점도 0.65, 유리 전이 온도 75 °C, 용점 255 °C, 평균 직경 0.3 μm의 응집 실리카 입자 0.25 중량% 배합)를 사용하여 PET/PEI(90 중량부/10 중량부)의 미연신 필름을 제작한 것 이외는, 실시예 1과 동일하게 하여 얻은 미연신 필름 편면에 용착 방지층으로서 하기 조성의 도포제를 건조 후의 도포 두께가 0.5 μm가 되도록 그라비아 코터로 도포하였다.

(도포제의 조성)

아크릴산에스테르 : 14.0 중량%

아미노 변성 실리콘: 5.9 중량%

이소시아네이트 : 0.1 중량%

물 : 80.0 중량%

그 후, 미연신 필름을 가열된 복수의 롤 균으로 이루어지는 종연신기를 사용하고, 롤의 주속차를 이용하여 110 °C의 온도에서 필름의 종방향으로 3.8배의 배율로 연신하였다. 그 후, 이 필름의 양말단을 클립으로 과지하여 텐터로 유도하고 연신 온도 105 °C, 연신 배율 4.2배로 필름의 폭 방향으로 연신하고 이어서 235 °C의 온도에서 열처리한 후, 150 °C로 조절된 냉각 범위에서 횡방향으로 1 %의 이완 처리를 하여 실온까지 냉각한 후, 필름 에지를 제거하여 두께 3.5 μm의 이축 배향 폴리에스테르 필름을 얻었다. 이 필름을 가공하여 열전사 리본용으로서의 실용 특성을 평가했더니, 하기 표 11에 나타낸 바와 같이 PET 단독으로 이루어지는 비교예 9의 필름과 비교하여 가열 전사 리본으로서 매우 우수한 특성을 갖고 있었다.

<비교예 9>

압출기에 투입하는 원료로서 폴리에테르이미드를 함유하지 않은 PET(고유 점도 0.65, 유리 전이 온도 75 °C, 용점 255 °C, 평균 직경 0.3 μm의 응집 실리카 입자 0.20 중량% 배합)를 사용하여 길이 방향의 연신 온도를 95 °C, 폭방향의 연신 온도를 90 °C로 한 것 이외는, 실시예 25와 동일하게 제막하여 두께 3.5 μm의 이축 배향 필름을 얻었다. 얻어진 필름의 특성은 표 10에 나타낸 바와 같다. PET 단독으로 이루어지는 본 비교예의 필름은 인쇄 주름이 들어가기 쉬워 열전사 리본 용으로서 사용할 수 없는 것이었다.

<실시예 26>

실시예 1과 동일하게 제작한 PET/PEI(50/50)의 블렌드 원료와 PET(고유 점도 0.65, 유리 전이 온도 75 °C, 용점 255 °C, 평균 직경 0.2 μm의 인산칼슘 입자 0.125 중량% 배합)를 사용하여 PEI를 10 중량% 함유하는 PET-PEI 필름을 제막한 것 이외는, 실시예 25와 동일하게 하여 두께 1.5 μm의 필름을 얻었다. 여기에서 얻어진 필름에 대하여 콘텐서용으로서의 실용 특성을 평가했더니, 표 11에 나타낸 바와 같이 본 실시예의 필름은 콘텐서용으로서 매우 우수한 특성을 갖고 있었다.

<비교예 10>

압출기에 투입하는 원료로서 폴리에테르이미드를 함유하지 않은 PET(고유 점도 0.65, 유리 전이 온도 75 °C, 용점 255 °C, 평균 직경 0.2 μm의 인산칼슘 입자 0.10 중량% 배합)을 사용하여 길이 방향의 연신 온도를 95 °C, 폭 방향의 연신 온도를 90 °C로 한 것 이외는, 실시예 26과 동일하게 하여 제막하였다.

얻어진 필름의 특성은 하기 표 12에 나타낸 바와 같이, 실시예 26의 필름보다도 내열성의 점에서 떨어지는 것이었다.

<실시예 27>

PET와 폴리에틸렌이소프탈레이트(PET/I)의 공중합체(이하, PET-PET/I라고 약칭한다)(고유 점도 0.70, 용점 215 °C, 공중합 몰비 80/20, 평균 직경 1.0 μm의 응집 실리카 0.25 중량% 배합)의 펠렛을 120 °C에서 3시간 진공 건조하여 예비 결정화하였다. 이어서, 이 PET-PET/I 80 중량부와 실시예 1과 동일하게 제작한 PET/PEI(50/50)의 블렌드 원료 20 중량부를 혼합하여 180 °C에서 3시간 진공 건조하고, 270 °C로 가열된 압출기에 공급하여 T 다이로부터 시트상으로 토출시킨 후, 표면 온도 25 °C의 냉각 드림상에 정전기력으로 밀착시켜 냉각 고화하고, PEI를 10 중량% 함유하는 미연신 필름을 얻었다.

이어서, 이 미연신 필름을 가열된 복수의 롤 균으로 이루어지는 종연신기를 사용하고, 롤의 주속차를 이용하여 110 °C의 온도에서 필름의 종방향으로 3.8배의 배율로 연신하였다. 그 후, 이 필름의 양단부를 클립으로 과지하여 텐터로 유도하고 연신 온도 105 °C, 연신 배율 4.2배로 필름의 폭 방향으로 연신하고, 이어서 110 °C의 온도에서 열 처리한 후, 80 °C와 60 °C로 조절된 두개의 냉각 범위를 통과한 후, 실온까지 냉각하여 필름 에지를 제거하고 권취하였다. 필름 두께는 압출량을 조절하여 1.7 μm로 하였다. 얻어진 필름의 결정 용해열 ΔH는 27 J/g, 결정 크기는 18 옴스트롬이었다. 이 필름을 무게당 12 g/m<sup>2</sup>의 종이와 접합하여 감열 공판용 원지로 하고, 감열 공판 인쇄 원지로서의 실용 특성을 평가하였다.

여기에서 얻어진 필름의 특성을 하기 표 13에 나타내었다. 본 실시예의 필름은 PET 단독으로 이루어지는 필름과 비교하여 감열 공판 원지로 가공하였을 때의 실용 특성이 우수하고, 또한 결을 일으키는 원인이 되는 65 °C의 열수축률도 작아 동일 용도의 필름으로서 매우 우수하였다.

<비교예 11>

PET-PET/I 공중합체(유리 전이점 75 °C, 용점 215 °C, 공중합 비율 80/20, 평균 직경 1.0 μm의 응집 실리카 0.2 중량% 배합)의 펠렛을 120 °C에서 3시간 진공 건조하여 예비 결정화한 후, 180 °C에서 3시간 진공 건조하여 270 °C로 가열된 압출기에 공급하고 T 다이로부터 시트상으로 토출하였다. 다시, 이 시트를 표면 온도 25 °C의 냉각 드럼상에 정전기력으로 밀착시켜 냉각 고화하고, 미연신 캐스트 필름을 얻었다. 이어서, 이 미연신 필름을 길이 방향의 연신 온도를 95 °C, 폭 방향의 연신 온도를 90 °C로 한 것 이외는, 실시예 27과 동일한 조건으로 이축 연신, 열 처리하고, 그 후 이 필름을 실온으로서 냉하여 권취하였다. 필름 두께는 압출량을 조절하여 1.7 μm로 하였다. 얻어진 필름의 특성을 표 13에 나타내었다.

<실시예 28>

실시예 1과 동일하게 제작한 PET/PEI(50/50)의 블렌드 원료 20 중량부와 PET(고유 점도 0.65, 평균 입경 0.3 μm의 구형 가교 폴리스티렌 입자 0.25 중량% 배합) 80 중량부를 180 °C에서 3시간 진공 건조하고, 280 °C로 가열된 압출기에 공급하여 T 다이로부터 시트상으로 압출시킨 후, 표면 온도 25 °C의 냉각 드럼상에 정전기력으로 밀착시켜 냉각 고화하고, PEI를 10 중량% 함유하는 미연신 필름을 얻었다.

이어서, 이 미연신 필름을 가열된 복수의 롤 균으로 이루어지는 종연신기를 사용하고, 롤의 주속차를 이용하여 100 °C의 온도에서 필름의 종방향으로 3.8배의 배율로 연신하였다. 그 후, 이 필름의 양단부를 클립으로 파지하고 텐터로 유도하여 연신 온도 110 °C, 연신 배율 3.9배로 필름의 폭 방향으로 연신하고, 이어서 130 °C, 180 °C, 200 °C의 온도에서 단계적으로 온도를 높여 열 처리하였다. 이어서, 100 °C로 조절된 냉각 범위에서 폭 방향으로 2 % 이완 처리를 행한 후, 실온까지 냉각하고, 필름 에지를 제거하여 권취하였다. 필름 두께는 압출량을 조절하여 62 μm로 하였다.

이 필름에 자기 기록 매체용 가공을 행하고, 플로피 디스크로서의 실용 특성을 평가한 결과를 하기 표 14에 나타내었다. 본 실시예에서 얻어진 필름은 PET 단독으로 이루어지는 비교예 12의 필름과 비교하여 열치수 안정성이 우수하고, 플로피 디스크용으로서 매우 우수하였다.

<비교예 12>

PET(고유 점도 0.65, 평균 입경 0.3 μm의 구형 가교 폴리스티렌 입자 0.20 중량% 배합)을 180 °C에서 3시간 진공 건조하고, 280 °C로 가열된 압출기에 공급하여 T 다이로부터 시트상으로 토출시킨 후, 표면 온도 25 °C의 냉각 드럼상에 정전기력으로 밀착시켜 냉각 고화하고, 미연신 필름을 얻었다.

이어서, 이 미연신 필름을 길이 방향의 연신 온도를 95 °C, 폭 방향의 연신 온도를 90 °C로 한 것 이외는, 실시예 28과 동일한 조건으로 제작하고, 두께 62 μm의 이축 배향 필름을 얻었다.

얻어진 필름에 실시예 28과 동일하게 자기 기록 매체용 가공을 행하고, 플로피 디스크로서의 실용 특성을 평가한 결과를 표 14에 나타내었다.

[표 11]

	굴절률		밀도 (g/cm <sup>3</sup> )	T <sub>g</sub> -onset (°C)	두께불균일 (%)	인쇄성
	MD	TD				
실시예 25	1.63	1.66	1.378	93	7	○
비교예 9	1.63	1.67	1.395	82	16	×

[표 12]

	굴절률		밀도 (g/cm <sup>3</sup> )	T <sub>g</sub> -onset (°C)	두께 불균일 (%)	절연저항	절면 파괴 전압	
	MD	TD					20°C, 65%RH	125°C, 65%RH
실시예 26	1.63	1.66	1.378	93	8	◎	○	○
비교예 10	1.63	1.67	1.395	82	16	×	×	×

[표 13]

	굴절률		밀도 (g/cm <sup>3</sup> )	Tg-onset (°C)	두께 불균일 (%)	감열 공판 실용 특성				65°C 열수축률 MD/TD (%)	100°C 열수축률 MD/TD (%)
	MD	TD				천공감도	투명 전공성	문자 인쇄성	슬리드 인쇄성		
실시에 27	1.63	1.64	1.343	91	9	○	○	○	○	0.2/0.3	35.0/32.0
비교예 11	1.62	1.64	1.352	79	17	×	×	△	△	1.1/1.2	28.0/22.0

[표 14]

	굴절률		밀도 (g/cm <sup>3</sup> )	Tg-onset (°C)	두께 불균일 (%)	내트랙킹성		내스크래치성
	MD	TD				온도 변화	습도 변화	
실시에 28	1.63	1.66	1.378	93	9	○	○	○
비교예 12	1.63	1.67	1.395	82	16	×	×	×

**발명의 효과**

본 발명에서 개시하는 에틸렌테레프탈레이트 단위를 주성분으로 하는 폴리에스테르(A)와 폴리에테르이미드(B)로 이루어지고, 단일한 유리 전이 온도를 갖고 동시에 길이 방향과 폭 방향 중 적어도 한쪽 방향의 굴절률이 1.60 내지 1.80인 이축 배향 폴리에스테르 필름은 열치수 안정성, 투명성이 양호하고, 생산성도 우수한 것이다. 본 발명의 필름은 고밀도 자기 기록 용도에서의 산업적 이용 가치가 매우 높지만, 전기 콘덴서, 감열 전사 리본, 감열 공판 원지, 플로피 디스크, 제판·카드 등의 각종 필름 용도에서도 널리 유효하게 활용할 수 있다.

**(57) 청구의 범위**

**청구항 1.**

에틸렌테레프탈레이트 단위를 주성분으로 하는 폴리에스테르(A) 및 폴리에테르이미드(B)로 이루어지고, 단일한 유리 전이 온도를 가지며, 길이 방향과 폭 방향 중 적어도 한쪽 방향의 굴절률이 1.60 내지 1.80인 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름.

**청구항 2.**

제1항에 있어서, 밀도가 1.35 내지 1.42 g/cm<sup>3</sup>인 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름.

**청구항 3.**

제1항에 있어서, 필름의 면배향 계수가 0.03 이상, 0.19 미만인 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름.

**청구항 4.**

제1항에 있어서, 외삽(外挿) 유리 전이 개시 온도(Tg-onset)가 90 내지 150 °C인 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름.

**청구항 5.**

제1항에 있어서, DSC로 측정된 결정의 용해 열량  $\Delta H$ 가 15 내지 45 J/g인 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름.

**청구항 6.**

제1항에 있어서, 돌기 높이 0.5  $\mu\text{m}$  이상의 표면 조대 돌기가 30개/100  $\text{cm}^2$  미만인 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름.

**청구항 7.**

제1항에 있어서, 25  $\mu\text{m}$  환산의 헤이즈가 0.1 내지 15 %인 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름.

**청구항 8.**

제1항에 있어서, 상기 폴리에테르이미드(B)의 함유량이 1 내지 50 %인 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름.

**청구항 9.**

제1항에 있어서, 고유 점도가 0.55 내지 2.0 dl/g인 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름.

**청구항 10.**

제1항에 있어서, 길이 방향의 영률(Young Modulus) ( $Y_{MD}$ )과 폭 방향의 영률 ( $Y_{TD}$ )의 합 ( $Y_{MD} + Y_{TD}$ )이 8 내지 25 GPa인 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름.

**청구항 11.**

제1항에 있어서, 온도 50  $^{\circ}\text{C}$  및 하중 28 MPa의 조건하에서 30분 경과 후의 크립 컴플라이언스 (creep compliance)가 0.10 내지 0.55  $\text{GPa}^{-1}$ 인 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름.

**청구항 12.**

제1항에 있어서, 길이 방향과 폭 방향 중 적어도 한쪽 방향의 100  $^{\circ}\text{C}$  열수축률이 1 % 이하인 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름.

**청구항 13.**

제1항에 있어서, 필름의 두께 불균일이 15 % 미만인 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름.

**청구항 14.**

제1항에 있어서, 필름의 두께가 0.5  $\mu\text{m}$  이상, 300  $\mu\text{m}$  이하인 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름.

**청구항 15.**

제1 내지 14항에 기재한 이축 배향 폴리에스테르 필름을 사용하는 것을 특징으로 하는 자기 기록 매체.

**청구항 16.**

제1 내지 14항에 기재한 이축 배향 폴리에스테르 필름을 사용하는 것을 특징으로 하는 콘덴서.

**청구항 17.**

제1 내지 14항에 기재한 이축 배향 폴리에스테르 필름을 사용하는 것을 특징으로 하는 열전사 리본.

**청구항 18.**

제1 내지 14항에 기재한 이축 배향 폴리에스테르 필름을 사용하는 것을 특징으로 하는 감열 공판 인쇄 원지.

**청구항 19.**

에틸렌테레프탈레이트를 주성분으로 하는 폴리에스테르(A)와 폴리에테르이미드(B)를 용융 압출하여, 단일한 유리 전이 온도를 갖는 수지 시트를 성형하고, 이어서 상기 수지 시트를 길이 방향으로 3.0 내지 10배, 폭 방향으로 3.0 내지 10배의 배율로 연신하는 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름의 제조 방법.

**청구항 20.**

제19항에 있어서, 필름을 이축 연신한 후에 100  $^{\circ}\text{C}$  내지 260  $^{\circ}\text{C}$ 의 온도에서 열고정하는 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름의 제조 방법.

**청구항 21.**

제19항에 있어서, 용융 압출을 압출기로 (1) 스크류 전단 속도를 30 초<sup>-1</sup> 이상, 300 초<sup>-1</sup> 미만, (2) 중합체 온도를 280  $^{\circ}\text{C}$  이상, 320  $^{\circ}\text{C}$  이하, 및 (3) 중합체의 토출 시간을 60초 이상, 10분 이하의 조건으로 행하는 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름의 제조 방법.

**청구항 22.**

제19항에 있어서, 에틸렌테레프탈레이트를 주성분으로 하는 폴리에스테르(A)와 폴리에테르이미드(B)의 중량 분율(A/B)가 70/30 내지 10/90인 블렌드 원료를 미리 제조하고, 이 블렌드 원료와 폴리에스테르(A)를 용융 압출하여 단일한 유리 전이 온도를 갖는 수지 시트를 성형하는 것을 특징으로 하는 이축 배향 폴리에스테르 필름의 제조 방법.