

 (19) 대한민국특허청(KR) (12) 공개특허공보(A)	(11) 공개번호 10-2014-0041803 (43) 공개일자 2014년04월04일
(51) 국제특허분류(Int. Cl.) <i>B32B 27/08</i> (2006.01) <i>B32B 27/32</i> (2006.01) <i>B32B 27/36</i> (2006.01) <i>C08J 5/18</i> (2006.01) (21) 출원번호 10-2014-7002224 (22) 출원일자(국제) 2012년06월29일 심사청구일자 없음 (85) 번역문제출일자 2014년01월27일 (86) 국제출원번호 PCT/GB2012/000560 (87) 국제공개번호 WO 2013/001269 국제공개일자 2013년01월03일 (30) 우선권주장 1111245.5 2011년06월30일 영국(GB) 1112454.2 2011년07월19일 영국(GB)	(71) 출원인 듀폰 데이진 필름즈 유.에스. 리미티드 파트너쉽 미국 델라웨어 (우편번호 19805) 월밍턴 피.오. 박스 2915 센터 로드 974 체스트넛 런 플라자 728 (72) 발명자 맥케론, 던칸 헨리 영국 티에스14 8제이엑스 클리블랜드 게이스보로 우 판데일 드라이브 118 이시다, 다케시 일본 503-0856 기후 오가끼 신덴조 1-16 (뒷면에 계속) (74) 대리인 김영, 양영준, 양영환

전체 청구항 수 : 총 40 항

(54) 발명의 명칭 **치수적으로 안정한 다층 폴리에스테르 필름**

(57) 요약

방향족 폴리에스테르 (a)를 포함하는 제1 층 (A) 및 230 내지 290℃의 용점을 갖는 폴리올레핀 (b)을 포함하는 제2 층 (B), 및 층 (A)과 층 (B) 사이의 접착 중간층 (C)을 포함하며, 여기서 상기 폴리올레핀은 스티렌 중합체이고, 여기서 상기 접착 중간층 (C)은 무수물-개질된 에틸렌 공중합체로부터 선택된 타이층(tie-layer) 물질 (c)을 포함하며, 여기서 공중합체에 존재하는 무수물의 비율은 중합체의 3.0 중량% 이하이고, 에틸렌 공중합체는 스티렌 이외의 1종 이상의 추가의 공단량체를 포함하는 것인 다층 이축 배향 필름이 기재되어 있다.

(72) 발명자

프란시스, 존

영국 티에스15 9알제이 야름 레벤데일 마운트 레벤
로드 35

루니, 모리스 키어런

영국 디엘2 2제이제이 달링턴 허워스 엘름필드 로
드 24

특허청구의 범위

청구항 1

방향족 폴리에스테르 (a)를 포함하는 제1 층 (A) 및 230 내지 290℃의 용점을 갖는 폴리올레핀 (b)을 포함하는 제2 층 (B), 및 층 (A)과 층 (B) 사이의 접착 중간층 (C)을 포함하며, 여기서 상기 폴리올레핀은 스티렌 중합체이고, 여기서 상기 접착 중간층 (C)은 무수물-개질된 에틸렌 공중합체로부터 선택된 타이층(tie-layer) 물질 (c)을 포함하며, 여기서 공중합체에 존재하는 무수물의 비율은 중합체의 3.0 중량% 이하이고, 에틸렌 공중합체는 스티렌 이외의 1종 이상의 추가의 공단량체를 포함하는 것인 다층 이축 배향 필름.

청구항 2

제1항에 있어서, 상기 1종 이상의 추가의 공단량체가 비닐 방향족 화합물 이외의 공단량체로부터 선택된 것인 필름.

청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서, 상기 무수물이 말레산 무수물인 필름.

청구항 4

제1항 내지 제3항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 무수물이 공중합체 백본에 그래프팅된 것인 필름.

청구항 5

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 무수물이 공중합체의 2.5 중량% 이하로 공중합체에 존재하는 것인 필름.

청구항 6

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 무수물-개질된 에틸렌 공중합체가 에틸렌을 40 중량% 내지 95 중량% 범위의 수준으로 포함하는 것인 필름.

청구항 7

제1항 내지 제6항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 무수물-개질된 에틸렌 공중합체가 하기 공단량체:

- (i) 바람직하게는 0 내지 40 중량% 수준의, 프로필렌;
- (ii) 바람직하게는 0 내지 5 중량% 수준의, 부텐;
- (iii) 바람직하게는 0 내지 15 중량% 수준의, 메틸, 에틸, 프로필 또는 부틸 에스테르로서의 아크릴레이트 에스테르;
- (iv) 바람직하게는 0 내지 30 중량% 수준의, 비닐 아세테이트; 및
- (v) 바람직하게는 3 중량% 이하 수준의, 말레산 무수물

중 1종 이상을 추가로 포함하는 것인 필름.

청구항 8

제1항 내지 제7항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 무수물-개질된 에틸렌 공중합체가 무수물-개질된 에틸렌 아크릴레이트 중합체 수지인 필름.

청구항 9

제8항에 있어서, 에틸렌 단위가 90 중량% 내지 95 중량%의 양으로 존재하고; 아크릴레이트 단위가 5 중량% 내지 10 중량%의 양으로 존재하고; 무수물 단위가 0.1 중량% 내지 2 중량%의 양으로 존재하는 것인 필름.

청구항 10

제1항 내지 제7항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 무수물-개질된 에틸렌 공중합체가 무수물-개질된 에틸렌 비닐

아세테이트 공중합체인 필름.

청구항 11

제10항에 있어서, 에틸렌 단위가 70 중량% 내지 80 중량%의 양으로 존재하고; 비닐 아세테이트 단위가 20 중량% 내지 30 중량%의 양으로 존재하고; 무수물 단위가 0.1 중량% 내지 2 중량%의 양으로 존재하는 것인 필름.

청구항 12

제1항 내지 제7항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 무수물-개질된 에틸렌 공중합체가, 바람직하게는 프로필렌 및 부텐으로부터 선택된 1종 이상의 추가의 알켄 단량체 반복 단위를 포함하고, 바람직하게는 프로필렌과 부텐 둘 다가 공중합체에 존재하는 것인 필름.

청구항 13

제12항에 있어서, 에틸렌 단위가 60 중량% 내지 80 중량%의 양으로 존재하고; 상기 1종 이상의 추가의 알켄 단량체 반복 단위가 약 20 중량% 내지 약 40 중량%의 양으로 존재하고, 바람직하게는 여기서 프로필렌 단위가 약 30% 내지 약 40%의 양으로 존재하고, 부텐 단위가 약 0.5% 내지 약 2.5%의 양으로 존재하고; 무수물 단위가 0.1 중량% 내지 2 중량%의 양으로 존재하는 것인 필름.

청구항 14

제1항 내지 제13항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 무수물-개질된 에틸렌 공중합체가 30℃ 내지 70℃ 범위의, ASTM D1525에 따라 측정된 비캣(Vicat) 연화 온도; 및/또는 4 내지 10 g/10분의, ASTM D1238에 따라 측정된 용융 유동 지수 (MFI)를 나타내고/거나; 질소 분위기 하에 10분의 기간 동안 310℃에서 등온 가열하였을 때 5% 이하의 중량 손실을 나타내는 것인 필름.

청구항 15

제1항 내지 제14항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 방향족 폴리에스테르 (a)가 폴리에틸렌-2,6-나프탈렌 디카르복실레이트인 필름.

청구항 16

제1항 내지 제15항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 폴리올레핀이 폴리스티렌, 폴리(알킬스티렌) 및 폴리(아릴스티렌)으로부터 선택된 스티렌 중합체인 필름.

청구항 17

제1항 내지 제15항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 폴리올레핀이 폴리스티렌, 폴리메틸스티렌, 폴리디메틸스티렌 및 폴리부틸스티렌으로부터 선택된 것인 필름.

청구항 18

제1항 내지 제15항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 폴리올레핀이 신디오택틱(syndiotactic) 구조를 갖는 스티렌 중합체인 필름.

청구항 19

제18항에 있어서, 상기 신디오택틱 스티렌 중합체가 폴리스티렌, 폴리(알킬스티렌) 및 폴리(아릴스티렌)으로부터 선택된 것인 필름.

청구항 20

제19항에 있어서, 상기 폴리(알킬스티렌)이 폴리(메틸)스티렌, 폴리(에틸스티렌), 폴리(프로필스티렌) 및 폴리(부틸스티렌)으로부터 선택된 것인 필름.

청구항 21

제19항에 있어서, 상기 폴리(아릴스티렌)이 폴리(페닐스티렌)인 필름.

청구항 22

제19항에 있어서, 상기 신디오택틱 스티렌 중합체가 폴리스티렌, 폴리(p-메틸스티렌), 폴리(m-메틸스티렌) 및 폴리(p-3급 부틸스티렌)으로부터 선택된 것인 필름.

청구항 23

제1항 내지 제22항 중 어느 한 항에 있어서, 총 필름 중량에 대한 폴리올레핀 (b)의 중량비가 2 내지 60 중량%인 필름.

청구항 24

제1항 내지 제23항 중 어느 한 항에 있어서, 하나 이상의 추가의 폴리에스테르 층, 하나 이상의 추가의 폴리올레핀 층, 및 하나 이상의 추가의 접착 중간층을 포함하며, 여기서 접착 중간층은 인접한 폴리에스테르 층과 폴리올레핀 층 사이에 존재하는 것인 필름.

청구항 25

제1항 내지 제24항 중 어느 한 항에 있어서, 필름의 층 구조가

(i) 층 순서가 ACB인 3층 구조;

(ii) 층 순서가 ACBCA인 5층 구조; 및

(iii) 9개 또는 13개 또는 그 초과인 층, 바람직하게는 51개 이하의 층, 바람직하게는 25개 이하의 층을 갖는 다층 구조로서, 여기서 층 (A) 및 층 (B)는 교호 배열되고, 그 사이에 필름 층의 중간층 (C)가 있어, 층 순서가 [...ACBCACBCA...]인 다층 구조

로부터 선택된 것인 필름.

청구항 26

제1항 내지 제25항 중 어느 한 항에 있어서, 5개 이상의 층을 가지며, 여기서 외부 층이 층 (A)인 필름.

청구항 27

제1항 내지 제26항 중 어느 한 항에 있어서, 접착 중간층 (C) 또는 각각의 접착 중간층 (C)의 두께가 0.05 μm 내지 2.5 μm , 바람직하게는 0.1 μm 내지 1.5 μm 인 필름.

청구항 28

제1항 내지 제27항 중 어느 한 항에 있어서, 총 필름 두께가 1 내지 10 μm 인 필름.

청구항 29

제1항 내지 제28항 중 어느 한 항에 있어서, 층 순서가 ACBCA인 5개의 층을 포함하며, 여기서 필름의 총 두께는 4 내지 6 μm 이고, 층 (C) 각각의 두께는 약 0.4 내지 약 0.5 μm 이고, 바람직하게는 폴리에스테르 층 (A) 각각의 두께는 폴리올레핀 층 (B) 두께의 약 2배인 필름.

청구항 30

제1항 내지 제27항 중 어느 한 항에 있어서, 총 필름 두께가 약 5 내지 약 350 μm 의 범위인 필름.

청구항 31

제1항 내지 제30항 중 어느 한 항에 있어서, 필름의 횡방향으로의 습도 팽창계수가 0.1×10^{-6} 내지 $13 \times 10^{-6} \text{ \% / RH\%}$ 이고/거나, 필름의 횡방향으로의 온도 팽창계수가 -5×10^{-6} 내지 $15 \times 10^{-6} \text{ \% / }^{\circ}\text{C}$ 인 필름.

청구항 32

제1항 내지 제31항 중 어느 한 항에 있어서, 필름의 횡방향 및 기계 방향 둘 다에서의 영률(Young's modulus)이

5 GPa 이상이고, 여기서 한 실시양태에서는 이들 둘 다에 대한 총합이 22 GPa 이하인 필름.

청구항 33

제1항 내지 제32항 중 어느 한 항에 있어서, 필름의 층간박리(delamination) 저항성이 약 500 mN/25 mm 이상인 필름.

청구항 34

제1항 내지 제33항 중 어느 한 항에 있어서, 공압출 필름인 필름.

청구항 35

제1항 내지 제34항 중 어느 한 항에 있어서, 자기 기록 매체용 베이스 필름으로서 사용하기에 적합한 필름.

청구항 36

제1항 내지 제34항 중 어느 한 항에 따른 필름, 및 그의 한 표면 상에 배치된 자기층(magnetic layer)을 포함하는 자기 기록 매체.

청구항 37

제36항에 있어서, LTO 자기 기록 매체인 자기 기록 매체.

청구항 38

제1항 내지 제34항 중 어느 한 항에 따른 필름을 포함하는 전자 또는 광전자 장치.

청구항 39

제38항에 있어서, 전계발광 디스플레이 장치, 전기영동 디스플레이 장치, 광기전력 전지 및 반도체 장치로부터 선택된 장치.

청구항 40

제38항 또는 제39항에 있어서, 가요성인 장치.

명세서

기술 분야

[0001] 본 발명은 변화하는 습도 및 온도 조건 하의 우수한 치수 안정성 및 높은 기계적 무결성을 나타내는 이축 배향 다층 필름에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 이러한 특성이 중요한 적용 분야는 가요성 전자기기, 가요성 디스플레이 및 자기 기록을 포함한다. 각 경우에, 마이크로-회로가 구축되거나 자기 기록 층이 지지되는 기판 또는 기체는, 각각 조작하는 동안의 연속적인 단계에서 적용되었을 때 초소형-전자공학 특징의 신뢰할 수 있는 레지스트리(registry)를 제공하기 위해 또는 데이터 저장에 있어 보다 고용량을 위해 요구되는 좁지만 안정한 트랙 간격을 허용하기 위해 우수한 치수 안정성을 가져야 한다.

[0003] 이축 중합체 필름에 있어서, 온도의 변화 (예를 들어, 직선형 열 팽창계수, CTE) 및 주위 습도의 변화 (예를 들어, 습도 팽창계수, CHE)에 대한 치수 안정성의 개선이 필름의 평면에서 측정된 모듈러스(modulus)의 증가를 통해 달성가능함이 보고되었다. 그러한 증가는 공정 조건의 선택에 의해, 특히 이축 필름의 제조 동안에 연신율의 증가에 의해 제공된다. 중합체 필름의 연신은 통상적인 관행이고, 보통 두 방향으로, 즉 순방향, 공정 방향 또는 기계 방향 (MD) 및 측방향, 평면 방향 또는 횡방향 (TD)으로 수행된다. 그러나, 제조하는 동안에 분열 또는 붕괴를 피하기 위해서는 연신율에 있어서 실질적인 한계가 인식되었고, 게다가 높은 연신율은 MD 및 TD 특성의 균형을 손상시킬 수 있었다.

[0004] 치수 안정성의 개선에 이르는 다른 경로를 기본 필름을 포함하는 별개의, 독립적인 층으로서 또는 블렌드로서,

중합체 물질을 조합하는 것에서 찾았다. 실제로, EP-0592284-A, US-5759467, US-2005/0058825-A1에 교시된 바와 같이, 여러 요구되는 명세를 충족시키도록 고안된 필름이 종종 다층 구조체의 형태로 중합체 물질의 조합을 사용함으로써 수득되었다. 예를 들어, EP-1712592-A에서 폴리에스테르와 조합된 폴리올레핀계 물질이 보고되었으며, 이는 습도와 관련하여 치수 안정성의 개선을 초래한다.

[0005] 그러나, 다층 전략에는 문제가 있다. 대부분의 중합체가 상호 비상용성인 것으로 공지되어 있으며, 충분한 분자 이동성을 갖는 조건 하에서는 (예를 들어, 그의 용융 온도보다 높은 온도에서는) 자발적으로 상 분리될 것이다. 그 결과, 상이한 중합체 물질의 층을 포함하는 다층 필름 구조체는 종종 불량한 층간 접착력을 보이고 최소한의 응력하에서도 층간박리(delamination)될 가능성이 있다. 다른 중합체 물질 사이의 불량한 층간 접착력을 극복하기 위한 적어도 두 가지의 전략이 있다.

[0006] 첫번째 전략은 해당 물질 중 어느 하나 또는 양쪽에 상용화제를 직접 첨가하는 것이다. 이의 이점은 가장 단순한 공정 기술의 보유를 가능하게 한다는 점이고; 별개의 중합체 물질이 상용화제와 블렌딩됨으로써 개질되고 동일한 압출 및 필름-성형 공정이 적합해진다. 그러나, 블렌딩의 작용이 종종 중합체의 핵심 특성을 약화시킬 것이고, 제2 중합체 물질과의 충분한 상용화를 달성하기 위해서 매우 다량의 첨가제가 필요할 수 있다.

[0007] 두번째 전략은 다층 구조체에 "타이층(tie-layer)"을 포함시키는 것이다. 타이층의 물질은 특히 라미네이트(laminate) 또는 다층 구조체의 층 사이 계면에서의 접착력을 증진시키도록 고안된다. 다양한 타이층 물질이 시판되고 있으나, 상기에 언급된 것과 유사한 이유로 그의 유효성에는 한계가 있다. 적절한 필름 공정 조건 하에서 모든 중합체에 부착될 수 있는 제품은 존재하지 않으며, 실제로 각각의 타이층 물질은 극소수의 특정 유형의 중합체 사이에서만 결합을 제공할 것이다. 다층 필름 또는 라미네이트에 타이층 물질을 사용하는 선행 기술에도 불구하고, 이들 물질 및 그의 선택에 관한 과학 및 이해는 완전하지 않다. 그에 따라, 일부 연구가 타이층을 함유하는 다층 필름 구조체의 기본적인 파손 메커니즘을 밝혀냈다 (문헌 [Dias et al., Polymer **49**, 2937 (2008)]; 및 [Kamdar et al., Polymer **50**, 3319 (2009)]). 그러나, 그러한 메커니즘은 전형적으로 각각의 시스템에 대하여 특이적이고, 타이층 물질의 유효성을 예측하기 위해 전반적으로 이해되고 있는 바를 전환시키기 불가능하다. 혼합 환경에서 다른 중합체 시스템의 상호 비상용성을 개질시킴으로써 중합체 블렌드에서 관련 기능을 수행하는 중합체 상용화제로부터 유래된 지식을 적용하기 위한 연구를 수행해 왔지만, 문헌은 이와 관련하여 모순되는 증거만을 제시하였다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0008] 본 발명의 목적은 자기 기록 매체, 가요성 전자기기, 가요성 디스플레이 등에 적용하기 위한 개선된 특성의 조합을 갖는 신규한 중합체 필름을 제공하는 것이다. 본 발명의 추가의 목적은 크리프(creep), 인장 강도 및 모듈러스, 열 팽창계수 및 습도 팽창계수로부터 선택된 하나 이상의 특성에서 개선을 나타내는 신규한 중합체 필름을 제공하는 것이다. 본 발명의 추가의 목적은 층간박리 저항성 및 우수한 필름-성형 능력과 함께 우수한 치수 안정성을 나타내는, 예를 들어 층 무결성 및 우수한 평탄성 및 층 프로파일을 나타내는 신규한 다층 중합체 필름을 제공하는 것이다.

[0009] 본 발명은 높은 내부 견고성 및 층간박리 저항성을 보유하기 위해 다른 중합체 물질 및 타이층을 포함하는 다층 구조체를 제공함으로써 상기 목적을 충족시킨다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0010] 따라서, 본 발명에 따라서, 방향족 폴리에스테르 (a)를 포함하는 제1 층 (A) 및 230 내지 290°C의 용점을 갖는 폴리올레핀 (b)을 포함하는 제2 층 (B), 및 층 (A)과 층 (B) 사이의 접착 중간층 (C)을 포함하며, 여기서 상기 폴리올레핀은 스티렌 중합체이고, 여기서 상기 접착 중간층 (C)은 무수물-개질된 에틸렌 공중합체로부터 선택된 타이층(tie-layer) 물질 (c)을 포함하며, 여기서 공중합체에 존재하는 무수물의 비율은 중합체의 3.0 중량% 이하이고, 에틸렌 공중합체는 스티렌 이외의 1종 이상의 추가의 공단량체를 포함하는 것인 다층 이축 배향 필름이 제공된다.

[0011] 본 발명의 다층 필름은 예상밖으로 층간박리에 대한 높은 저항성 및 우수한 필름 품질을 함께 나타낸다.

[0012] 본 발명의 필름에서, 습도 및/또는 온도의 변화로부터 발생하는 치수의 변화는 화학적 및 물리적 구조체의 설계를 통해 예정된 범위 내에 있도록 조절된다. 따라서, 본 발명의 필름은 자기 기록 매체, 특히 좁지만 안정한

트랙 간격을 허용하고 보다 고밀도 또는 고용량 정보의 기록을 가능하게 하기 위해 감소한 트랙 편차를 나타내는 데에 필요한 자기 기록 매체, 예를 들어 서버 백업(server back-up)/데이터 저장에 적합한 자기 기록 매체, 예컨대 LTO (개방 선형 테이프) 포맷을 위한 베이스 필름으로서 적합하다.

[0013] 본 발명의 필름의 열 및 습도 의존성 치수 안정성으로부터 이점을 얻는 추가의 적용 분야는, 치수적으로 안정한 뒤판이 완성 제품의 조작 동안에 중요한 전자 및 디스플레이 장치이다 (특히 여기서, 필름은 이러한 전자 및 디스플레이 장치에서 가요성일 필요가 있음). 따라서, 본 발명의 필름은 전자 또는 광전자 장치, 예컨대 전계발광 (EL) 디스플레이 장치 (특히, 유기 발광 디스플레이 (OLED) 장치), 전기영동 디스플레이 (전자종이), 광기전력 (PV) 전지 및 반도체 장치 (예컨대, 유기 전계 효과 트랜지스터, 박막 트랜지스터 및 범용 집적회로)의 제조에 유리하게 사용될 수 있고, 특히 이러한 장치는 가요성이다.

[0014] 본원에서 사용된 용어 "라미네이트 필름"은 용어 "다층 필름"과 동의어로 이해되며, 임의의 특정 제조 방법의 의미하기 위한 것이 아니다.

[0015] 본 발명의 이축 배향 필름은 방향족 폴리에스테르 (a)를 포함하는 하나 이상의 별개의 층 (A), 폴리에테렌 (b)을 포함하는 하나 이상의 별개의 층 (B), 및 타이층 물질 (c)을 포함하는 하나 이상의 별개의 접착 중간층 (C)을 포함한다. 접착 중간층은 구조체에서 폴리에스테르 층 (A)과 폴리에테렌 층 (B) 사이에 위치한다. 바람직하게는, 층 (A)는 각각 동일한 방향족 폴리에스테르 (a)를 포함한다. 바람직하게는, 층 (B)는 각각 동일한 폴리에테렌 (b)을 포함한다. 바람직하게는, 접착 중간층 (C)는 각각 동일한 타이층 물질 (c)을 포함한다.

[0016] 이축 배향 필름에 존재하는 폴리에테렌 (b)의 비율은 바람직하게는 필름의 전체 중량을 기준으로, 약 2 내지 약 70 중량%, 바람직하게는 약 2 내지 약 60 중량%, 보다 바람직하게는 약 3 내지 약 55 중량%, 보다 바람직하게는 약 3 내지 약 50 중량%, 보다 바람직하게는 약 5 내지 약 50 중량%, 보다 바람직하게는 약 5 내지 약 30 중량%의 범위 내에 있다. 한 실시양태에서, 이축 배향 필름에 존재하는 폴리에테렌 (b)의 비율은 약 30 내지 약 60 중량%이다. 폴리에테렌 (b)의 함량이 너무 낮으면, 습도와 관련하여 치수 안정성이 불량해진다. 폴리에테렌 (b)의 함량이 너무 높으면, 필름의 기계적 특성이 불량해지고, 연신에 의한 필름의 성형이 어려워진다.

[0017] 타이층 물질 (c)의 비율은 이축 배향 필름에서의 타이층 물질의 각각의 개별 층의 두께와 관련하여 적합하게 기술된다. 특히 자기 매체에 사용할 경우에는, 타이층 물질의 각각의 개별 층의 두께가 바람직하게는 약 0.05 μm 이상 및 바람직하게는 약 2.5 μm 이하이고, 바람직하게는 약 0.1 μm 내지 약 1.5 μm , 보다 바람직하게는 약 0.2 μm 내지 약 1.0 μm , 보다 바람직하게는 약 0.3 μm 내지 약 0.5 μm 의 범위이고, 한 실시양태에서는 약 0.4 μm 내지 약 0.5 μm 의 범위이다. 층 두께가 너무 얇으면, 층 (A)과 층 (B) 사이의 층간 접착력이 다층 필름의 허용되는 물리적 무결성에 있어서 부적절해질 수 있다. (c)의 비율이 그의 층 두께가 바람직한 상한보다 클 정도로 너무 높으면, 다층 필름의 기계적 강도 및 온도 및 습도의 변화에 대한 치수 안정성이 불량해질 수 있다.

[0018] 특히 본 발명의 필름이 자기 기록 매체에 사용될 경우에, 다층 필름의 두께는 바람직하게는 약 1 내지 약 10 μm , 보다 바람직하게는 약 2 내지 약 10 μm , 보다 바람직하게는 약 2 내지 약 7 μm , 보다 바람직하게는 약 3 내지 약 7 μm , 한 실시양태에서는 약 4 내지 약 6 μm 의 범위이다. 두께가 약 10 μm 를 초과하면, 자기 테이프의 길이가 바람직하지 않게 감소하고 (테이프는 특정 크기의 카세트 내에 함유되어야 하므로), 자기 기록 용량이 바람직하지 않게 감소한다. 필름 두께가 너무 얇으면, 제조 중에 필름 파손이 보다 빈번히 발생하거나, 필름의 권취 특성이 때로는 불량해진다.

[0019] 필름이 본원에 기재된 바와 같이 전자 및 디스플레이 장치에 층으로서 사용될 경우에, 다층 필름의 두께는 전형적으로 약 5 내지 약 350 μm 의 범위 내에 있고, 바람직하게는 약 250 μm 이하, 한 실시양태에서는 약 100 μm 이하, 또한 추가의 실시양태에서는 약 50 μm 이하이고, 전형적으로 12 μm 이상, 보다 더 전형적으로는 약 20 μm 이상이다. 상기 실시양태에서, 접착 중간층(들) (C)의 두께는 그에 상응하게 상기에 기재된 것보다 클 것이다.

[0020] 방향족 폴리에스테르 (a)는 디올 및 방향족 디카르복실산의 중축합에 의해 수득된다. 방향족 디카르복실산에는, 예를 들어 테레프탈산, 이소프탈산, 1,4-, 2,5-, 2,6- 또는 2,7-나프탈렌디카르복실산 (이들 중에서, 2,6-나프탈렌 디카르복실산이 바람직함), 및 4,4'-디페닐디카르복실산이 포함되고, 디올에는, 예를 들어 에틸렌 글리콜, 1,4-부탄디올, 1,4-시클로헥산 디메탄올, 및 1,6-헥산디올이 포함된다. 바람직한 폴리에스테르는, 특히 그의 기계적 특성 및 내열성 때문에 폴리에틸렌 테레프탈레이트 (PET) 및 폴리에틸렌-2,6-나프탈렌 디카르복실레이트 (본원에서, 폴리에틸렌-2,6-나프탈레이트라고도 함)이다. 본원에서 사용된 용어 "PEN"은 폴리에틸렌 나프탈레이트, 바람직하게는 폴리에틸렌-2,6-나프탈레이트를 말한다. PEN이 특히 본 발명에서 유용하다.

- [0021] 폴리에스테르는 단독으로, 또 다른 폴리에스테르와의 공중합체로서, 또는 2종 이상의 폴리에스테르의 혼합물로서 사용될 수 있고, 기계적 특성 및 내열성의 측면에서 단독으로 사용하는 것이 바람직하다. 공중합체 또는 혼합물 중의 다른 성분(들)은 바람직하게는 반복 구조 단위의 몰수를 기준으로, 10 몰% 이하, 보다 바람직하게는 5 몰% 이하이다. 공중합 성분은 디올 성분, 예컨대 디에틸렌 글리콜, 네오헥틸 글리콜, 및 폴리알킬렌 글리콜, 및/또는 디카르복실산 성분, 예컨대 아디프산, 세박산, 프탈산, 이소프탈산, 테레프탈산, 및 5-나트륨 술포이소프탈산을 포함할 수 있다.
- [0022] 기관이 제조되는 폴리에스테르 (a)의 고유 점도 (IV)는 0.40 이상, 전형적으로 약 0.58 이상, 보다 더 전형적으로는 약 0.60 이상이고, 또한 전형적으로 약 0.80 이하, 보다 더 전형적으로는 약 0.70 이하이다. 바람직한 실시양태에서, PET 폴리에스테르는 약 0.6 내지 약 0.65 범위의 IV를 갖고, PEN 폴리에스테르는 약 0.58 내지 약 0.68 범위의 IV를 갖는다. 대안의 실시양태에서, 기관은 보다 큰 고유 점도, 예를 들어 약 0.70 이상, 추가의 실시양태에서는 약 0.80 이상이고, 또한 전형적으로 0.90 이하의 IV를 갖는 폴리에스테르로부터 제조될 수 있다. 당업계에 널리 공지된 통상의 기술, 예를 들어 유동층, 예컨대 질소 유동층 또는 회전 진공 건조기를 사용하는 진공 유동층을 사용하는 고체 상태 중합을 사용하여 고유 점도를 목적하는 값까지 증가시킬 수 있다. 고유 점도가 0.4 미만이면, 필름 성형 중에 분열이 발생할 수 있거나, 또는 조작 후의 필름 강도가 부적절해질 수 있다. 고유 점도가 0.8을 초과하면, 중합 단계의 생산성이 낮아진다.
- [0023] 본 발명에서 폴리에스테르 수지의 용점은 바람직하게는 200 내지 300°C, 보다 바람직하게는 240 내지 300°C, 특히 바람직하게는 260 내지 290°C이다. 용점이 하한보다 낮아지면, 폴리에스테르 필름의 내열성이 부적절해질 수 있다.
- [0024] 폴리오레핀 (b)는 바람직하게는 약 230 내지 약 280°C, 바람직하게는 약 240 내지 약 275°C의 용점을 갖는다. 보다 낮은 용점에서는, 생성된 이축 배향 필름의 내열성이 손상될 수 있다.
- [0025] 폴리오레핀에는, 예를 들어 폴리스티렌, 폴리메틸스티렌, 폴리디메틸스티렌 및 폴리부틸스티렌이 포함된다. 이들 중에서, 내열성 및 기계적 특성의 측면에서, 신디오택틱(syndiotactic) 구조를 갖는 스티렌 중합체가 바람직하다.
- [0026] 바람직한 신디오택틱 스티렌 중합체는 입체화학 구조 측면에서 신디오택틱 구조를 갖는 폴리스티렌이고, 핵자기 공명법 (13C-NMR 방법)으로 측정된 입체규칙성이 디아드 (diad; 구성 단위: 2개)의 경우에는 75% 이상, 바람직하게는 85% 이상이고, 펜타드 (pentad; 구성 단위: 5개)의 경우에는 30% 이상, 바람직하게는 50% 이상이다.
- [0027] 신디오택틱 스티렌 중합체에는 폴리스티렌, 폴리(알킬스티렌) (예컨대, 폴리(메틸)스티렌, 폴리(에틸스티렌), 폴리(프로필스티렌) 및 폴리(부틸스티렌)), 및 폴리(아릴스티렌) (바람직하게는, 폴리(페닐스티렌))이 포함된다. 이들 중에서, 폴리스티렌, 폴리(p-메틸스티렌), 폴리(m-메틸스티렌) 및 폴리(p-3급 부틸스티렌)이 바람직한 예로 언급될 수 있다.
- [0028] 본 발명에서 신디오택틱 스티렌 중합체는 단독으로 사용될 수 있거나, 또는 이들 중 2종 이상이 조합되어 사용될 수 있다. 본 발명에서 신디오택틱 스티렌 중합체의 중합 평균 분자량은 바람직하게는 약 10,000 이상, 보다 바람직하게는 약 50,000 이상이다. 중합 평균 분자량이 상기 하한보다 작으면, 내열성 및 기계적 특성이 부적절해질 수 있다. 중합 평균 분자량은 바람직하게는 약 500,000 이하인데, 그 이유는 필름 성형 특성이 손상될 수 있기 때문이다.
- [0029] 타이층 물질 (c)로서 사용되는 열가소성 중합체는 무수물-개질된 에틸렌 공중합체, 즉 무수물에 의해 개질되었고, 1종 이상의 추가의 공단량체를 추가로 포함하는 폴리에틸렌을 기계로 하는 공중합체이다. 1종 이상의 추가의 공단량체는 스티렌 (비닐 벤젠) 이외의 공단량체로부터 선택되고, 한 실시양태에서는 비닐 방향족 화합물 ($\text{CH}_2=\text{CH}-\text{Ar}$, 여기서 Ar은 방향족 기임) 이외의 공단량체로부터 선택된다. 따라서, 중합체는 에틸렌 반복 단위, 무수물 반복 단위, 및 상기 1종 이상의 추가의 공단량체의 반복 단위로 이루어진다. 무수물 반복 단위는 중합체 백본 쇄로 공중합되거나, 또는 바람직하게는 그래프팅된다. 무수물은 바람직하게는 말레산 무수물이다. 중합체는 에틸렌 반복 단위 및 상기 1종 이상의 추가의 공단량체의 반복 단위를 포함하는 중합체 백본 쇄로 공중합되거나, 또는 바람직하게는 그래프팅된 말레산 무수물 모이어티의 혼입에 의해 접착력 성능이 추가로 개선된다. 공중합체는 바람직하게는 약 40 중량% 내지 약 95 중량%, 보다 바람직하게는 약 60 중량% 내지 약 95 중량%, 한 실시양태에서는 약 90 중량% 내지 약 95 중량%, 또한 제1 대안의 실시양태에서는 약 70 중량% 내지 약 80 중량%, 제2 대안의 실시양태에서는 약 60 중량% 내지 약 80 중량%, 바람직하게는 약 65 내지 약 75 중량%의 수준으로 존재하는 단량체 에틸렌 단위를 포함한다. 공중합체는 바람직하게는 하기로부터 선택된 1종 이상의 공

단량체(들)를 추가로 포함한다:

- [0030] (i) 바람직하게는 0 내지 약 40 중량%, 바람직한 실시양태에서는 약 30 중량% 내지 약 40 중량% 수준의, 프로필렌;
- [0031] (ii) 바람직하게는 0 내지 약 5 중량%, 바람직한 실시양태에서는 약 0.5 중량% 내지 약 2.5 중량% 수준의, 부텐;
- [0032] (iii) 바람직하게는 0 내지 약 15 중량%, 바람직한 실시양태에서는 약 5 중량% 내지 약 10 중량% 수준의, 메틸, 에틸, 프로필 또는 부틸 에스테르로서의 아크릴레이트 에스테르;
- [0033] (iv) 0 내지 30 중량%, 바람직한 실시양태에서는 약 20 중량% 내지 약 30 중량% 수준의, 비닐 아세테이트; 및
- [0034] (v) 바람직하게는 약 3.0 중량% 이하, 바람직하게는 약 0.1 내지 3.0 중량%, 보다 바람직하게는 약 2.5 중량% 이하, 전형적으로는 약 2.0 중량% 이하 수준의, 말레산 무수물.
- [0035] 제1 바람직한 실시양태에서, 공중합체는 무수물-개질된 에틸렌 비닐 아세테이트 공중합체이며, 즉 에틸렌, 비닐 아세테이트 및 무수물 단량체 단위를 포함하고 (이들로 이루어지는 것이 바람직함), 여기서 바람직하게는 무수물 단위는 에틸렌 및 비닐 아세테이트 단량체 단위를 포함하는 (이들로 이루어지는 것이 바람직함) 중합체 백본으로 그래프팅되고, 바람직하게는 무수물은 말레산 무수물이다. 상기 실시양태에서, 에틸렌 단위는 바람직하게는 약 70 중량% 내지 약 80 중량%의 양으로 존재하고; 비닐 아세테이트 단위는 바람직하게는 약 20 중량% 내지 약 30 중량%의 양으로 존재하고; 무수물 단위는 바람직하게는 약 0.1 중량% 내지 약 2.5 중량%, 바람직하게는 약 0.1 내지 약 2 중량%의 양으로 존재한다.
- [0036] 제2의 특히 바람직한 실시양태에서, 공중합체는 무수물-개질된 에틸렌 아크릴레이트 공중합체이며, 즉 에틸렌, 아크릴레이트 및 무수물 단량체 단위를 포함하고 (이들로 이루어지는 것이 바람직함), 여기서 바람직하게는 무수물 단위는 에틸렌 및 아크릴레이트 단량체 단위를 포함하는 (이들로 이루어지는 것이 바람직함) 중합체 백본으로 그래프팅되고, 바람직하게는 무수물은 말레산 무수물이다. 상기 실시양태에서, 에틸렌 단위는 바람직하게는 약 90 중량% 내지 약 95 중량%의 양으로 존재하고; 아크릴레이트 단위는 바람직하게는 약 5 중량% 내지 약 10 중량%의 양으로 존재하고; 무수물 단위는 바람직하게는 약 0.1 중량% 내지 약 2.5 중량%, 바람직하게는 약 0.1 내지 약 2 중량%의 양으로 존재한다.
- [0037] 제3의 특히 바람직한 실시양태에서, 공중합체는 하나 이상의 추가의 알켄 단량체 반복 단위를 포함하는 무수물-개질된 에틸렌 공중합체이며, 즉 에틸렌 및 하나 이상의 추가의 알켄 단량체 반복 단위, 및 무수물 단량체 단위를 포함하고 (이들로 이루어지는 것이 바람직함), 여기서 바람직하게는 무수물 단위는 에틸렌 및 하나 이상의 추가의 알켄 단량체 단위를 포함하는 (이들로 이루어지는 것이 바람직함) 중합체 백본으로 그래프팅되고, 바람직하게는 무수물은 말레산 무수물이다. 상기 실시양태에서, 추가의 알켄 단량체 단위는 바람직하게는 프로필렌 및 부텐으로부터 선택되고, 바람직하게는 이들 두 종이 모두 공중합체에 존재한다. 상기 실시양태에서, 에틸렌 단위는 바람직하게는 약 60 중량% 내지 약 80 중량%, 바람직하게는 약 65 중량% 내지 약 75 중량%의 양으로 존재하고; 하나 이상의 추가의 알켄 단량체 반복 단위는 바람직하게는 약 20 중량% 내지 약 40 중량%의 양으로 존재하고 (여기서, 바람직하게는 프로필렌 단위는 약 30% 내지 약 40%의 양으로 존재하고, 부텐 단위는 약 0.5% 내지 약 2.5%의 양으로 존재함); 무수물 단위는 바람직하게는 약 0.1 중량% 내지 약 2.5 중량%, 바람직하게는 약 0.1 내지 약 2 중량%의 양으로 존재한다.
- [0038] 바람직하게는, 무수물-개질된 에틸렌 공중합체는 직전에 기재된 제2 및 제3의 특히 바람직한 실시양태로부터 선택된다.
- [0039] 다층 필름의 인접한 층 사이에 적절한 접착력 수준을 부여할 뿐만 아니라, 타이층은 또한 폴리에스테르 및/또는 폴리올레핀 다층 필름의 제조에서 사용되는 공정 조건에 적합성을 보여야 하고, 그에 따라 적절한 압출 및 공정 온도에서 적절한 열안정성 및 레올로지(rheology)를 가져야 한다. 예를 들어, 타이층 열가소성 물질은 바람직하게는:
- [0040] (i) 약 30℃ 내지 약 100℃ (바람직하게는, 30℃ 내지 70℃) 범위의 비캣(Vicat) 연화 온도를 나타내고/거나;
- [0041] (ii) 약 4 내지 약 10 g/10분의 용융 유동 지수 (MFI)를 나타내고/거나;

- [0042] (iii) 전형적으로 약 260℃ 이상이고, 전형적으로 약 260℃ 내지 약 310℃의 범위에 있는 적절한 압출 및 공정 온도에서 충분히 열적으로 안정하고,
- [0043] 적어도 비켓 및 MFI 특징을 나타내는 것이 바람직하고, 상기 특징 3가지를 모두 나타내는 것이 보다 더 바람직하다.
- [0044] 본 발명에서, 열안정성은 질소하 승온에서 중합체 샘플을 가열한 결과로서 질량의 변화 (또는 보다 통상적으로는 중량 손실)를 측정하는 열중량 분석법 (TGA)을 사용하여 평가된다. 바람직한 실시양태에서, "충분히 열적으로 안정한"이란 용어는 하기에 기재된 시험에 따라 질소 분위기 하에 310℃에서 10분의 기간 동안 등은 가열하였을 때, 물질이 5% 이하, 바람직하게는 4% 이하, 바람직하게는 3% 이하의 중량 손실, 가장 바람직하게는 본질적으로 0의 중량 손실을 나타내야 함을 의미한다.
- [0045] 타이층 물질 (c)는 폴리에스테르 및 폴리올레핀보다 실질적으로 낮은 용점을 나타낼 수 있지만, 공정 및 제조 기간 동안에 열적으로 안정하게 유지될 수 있다.
- [0046] 이층 배향 필름에서, 필름 층 (A)는 방향족 폴리에스테르 (a)를 포함하고, 본 발명의 목적을 저해하지 않는 범위에서 또 다른 수지와 혼합되거나 공중합될 수 있다. 필름 층 (A)에서 방향족 폴리에스테르 (a)의 함량은 바람직하게는 필름 층 (A)의 중량을 기준으로, 90 중량% 이상, 보다 바람직하게는 95 중량% 이상이다.
- [0047] 이층 배향 필름에서, 필름 층 (B)는 폴리올레핀 (b)을 포함하고, 본 발명의 목적을 저해하지 않는 범위에서 또 다른 수지와 혼합되거나 공중합될 수 있다. 필름 층 (B)에서 폴리올레핀 (b)의 함량은 바람직하게는 필름 층 (B)의 중량을 기준으로, 90 중량% 이상, 보다 바람직하게는 95 중량% 이상이다.
- [0048] 우수한 층간박리 저항성을 나타내는 이층 배향 필름의 바람직한 층 구조는 하기를 포함한다:
- [0049] (i) 필름 층 (A)가 중간 필름 층 (C)의 존재에 의해 필름 층 (B)의 한 표면에 라미네이팅된 3층 구성;
- [0050] (ii) 필름 층 (A)가 총 2개의 필름 중간층 (C)에 의해 필름 층 (B)의 양 표면에 라미네이팅된 5층 구성; 및
- [0051] (iii) 필름 층 (A) 및 필름 층 (B)가 중간 필름 층 (C)를 사용하여 라미네이팅되어 총 7개 또는 9개 또는 그 초과층, 한 실시양태에서는 9개 또는 13개 또는 그 초과층, 또한 한 실시양태에서는 13개 이상의 층으로 된 적층체를 제조하는 다층 구조. 상한이 특별히 제한되지는 않지만, 제조 공정의 복잡성을 줄이기 위해 51개 이하의 층이 바람직하고, 25개 이하의 층이 보다 더 바람직하다. 필름 층 (A) 및 필름 층 (B)는 바람직하게는 교호 배열되고, 그 사이에 필름 층 C의 중간층을 갖는데, 즉 층 순서가 [...ACBCACBCA...]이다.
- [0052] 5개 이상의 층을 갖는 다층 필름, 예를 들어 5층 적층체 (ii) 및 다층 적층체 (iii)가 컬링(curling) 저항성의 측면에서 바람직하다.
- [0053] 5개 이상의 층을 갖는 다층 필름, 예를 들어 5층 적층체 (ii) 및 다층 적층체 (iii)의 경우에, 필름 라미네이트의 외부 층이 필름 층 (A)인 것이 바람직하고, 이는 컬링 저항성에 추가의 개선을 제공한다.
- [0054] 다층 적층체 (iii)의 경우에, 특히 이층 필름에 실제 두께의 상한을 부여할 필요가 있을 수 있는 자기 기록 매체에 본 발명의 필름을 사용한다면, 접착 중간층 (C) 또는 각각의 접착 중간층 (C)의 두께 하한이 존재하는 층의 개수의 상한을 암시할 수 있다. 예를 들어, 각각 0.1 μm 의 두께를 갖는 필름 층 (C)를 포함하고, 타이층 중합체 (c)가 전체 구조체의 5%를 차지하는, 51개의 층을 갖는 다층 적층체는 다층 필름의 전체 두께가 약 34 μm 임을 암시할 것이다. 상기 예는 다층 적층체가 가공될 수 있는 층의 개수에 본질적으로 기술상의 한계는 없지만, 자기 기록 매체용 기관과 같이 필름의 최종 용도에 따라, 제품의 최종 전체 두께에 의해 부여되는 실제 한계가 있을 수 있음을 설명해준다.
- [0055] 한 실시양태에서, 본 발명의 이층 배향 다층 필름은 폴리에스테르 층 (A)가 총 2개의 접착 중간층 (C)에 의해 폴리올레핀 층 (B)의 양 표면에 라미네이팅되어 그의 구조체에 5개의 층을 포함하고, 여기서 이층 배향 라미네이트 필름의 총 두께는 약 4 내지 약 6 μm 이고, 층 (C) 각각의 두께는 약 0.4 내지 약 0.5 μm 이고, 특히 폴리에스테르 층 (A) 각각의 두께는 폴리올레핀 층 (B) 두께의 약 2배이다.
- [0056] 구체적인 예를 들어, 본 발명에서 이층 배향 필름은 폴리에스테르 층 (A)가 총 2개의 접착 중간층 (C)에 의해 폴리올레핀 층 (B)의 양 표면에 라미네이팅되어 그의 구조체에 5개의 층을 포함하는, 상기에 기재된 다층 필름을 포함한다. 이층 배향 라미네이트 필름의 총 두께는 약 6 μm 이고, 그 중 층 (C)는 총 0.8 μm (2개의 층이 각각 0.4 μm)를 차지하고, 폴리에스테르 층 (A)는 4.2 μm (2개의 층이 각각 2.1 μm)를 차지하고, 폴리올레핀 층

(B)는 1.0 μm 를 차지한다.

- [0057] 본 발명의 이축 배향 필름은 필름에 비활성 입자, 예를 들어 주기율표의 IIA, IIB, IVA 및 IVB 족 원소 (예를 들어, 카올리나이트(kaolinite), 알루미나, 산화티타늄, 탄산칼슘, 및 이산화규소)를 함유하는 무기 입자, 및 고내열성 중합체를 포함하는 미세 입자, 예컨대 가교 실리콘 수지 입자, 가교 폴리스티렌 입자, 가교 아크릴 입자를 함유할 수 있다. 이러한 비활성 또는 무기 입자의 존재는 제조 및 최종 제품으로의 전환 동안에, 예를 들어 필름 관리, 권취 및 슬리팅(slitting)에서의 이점을 제공할 수 있다.
- [0058] 자기 기록 매체로서 사용되는 필름의 경우에, 입자의 혼입은 카세트 하우징을 통한, 또한 매체 기록 및 녹음 헤드 상의 슬리팅 테이프의 권취 및 전개를 용이하게 하는 장점을 가질 수 있다. 그러나, 후자의 경우에, 최적의 성능은 뒷면의 평탄도와 상이한, 기록 헤드와 접촉하는 필름 표면의 평탄도에 의해 달성될 수 있고, 이는 신속한 전개 및 권취를 위해 가공될 수 있다. 종종, 최상의 전자기 전환 특징을 제공하기 위해서는 자기 기록 헤드와 접촉하는 표면에 대하여 활면 또는 평면 표면이 최적이고, 반면에 우수한 권취 성능을 유도하기 위해서는 뒷면에 대하여 조면 프로파일이 보다 더 적합하다. 각각의 표면에서 상이한 조도(roughness)를 나타내는 다층 필름이 각각의 층에 상이한 입자 성분을 혼입함으로써 수득될 수 있다. 게다가 제조, 가공 및 최종 사용하는 동안에, 표면 조도의 최적의 값이 하나를 초과하여 존재할 것이고, 그에 따라 바람직한 절충안이 충전제 크기, 크기 범위 및 크기 분포, 필름의 전체 중량을 기준으로 한 로딩 중량, 및 2종 이상의 상이한 충전제 성분 조합의 신중한 선택에 의해 달성될 것이다.
- [0059] 비활성 입자의 평균 입자 직경은 바람직하게는 약 0.001 내지 약 5 μm , 바람직하게는 약 0.01 내지 약 0.8 μm , 보다 바람직하게는 약 0.02 내지 약 0.6 μm , 특히 바람직하게는 약 0.03 내지 약 0.4 μm 의 범위 내에 있다.
- [0060] 비활성 입자는 바람직하게는 필름의 전체 중량을 기준으로, 약 0.01 내지 약 10 중량%의 범위로 함유된다. 특히 이축 배향 필름이 자기 기록 매체에 사용될 경우에는, 비활성 입자가 활면 또는 평면 표면 쪽의 표면 층에는 존재하지 않거나, 또는 존재한다면, 활면 또는 평면 표면 쪽의 표면을 형성하는 필름 층의 중량을 기준으로 최대 0.5 중량%, 바람직하게는 최대 0.4 중량%, 보다 바람직하게는 최대 0.3 중량%이다. 그에 반해, 조면 표면 쪽의 표면 층에는, 비활성 입자가 바람직하게는 조면 표면을 형성하는 필름 층의 중량을 기준으로, 약 0.01 내지 약 1.0 중량%, 바람직하게는 약 0.03 내지 약 0.8 중량%, 특히 바람직하게는 약 0.05 내지 약 0.6 중량%의 양으로 존재하는 것이 바람직하다.
- [0061] 필름에 함유된 비활성 입자는 단일 성분 시스템이거나 다성분 시스템일 수 있다. 그러나, 필름은 바람직하게는 테이프의 전자기 전환 특징 및 필름의 권취 특성을 적합화하기 위해 2성분 시스템 또는 그 보다 다성분의 시스템으로 비활성 입자를 포함한다. 필름 표면의 표면 조도(WRa)는 바람직하게는 상기에 기재된 범위 내에서 비활성 입자의 평균 입자 직경 및 첨가량을 적절하게 선택함으로써 조절된다.
- [0062] 본 발명의 이축 배향 필름은 바람직하게는 필름의 횡방향으로 (또한 바람직하게는, 필름의 기계 방향으로) 약 0.1×10^{-6} 내지 약 $13 \times 10^{-6}/\%RH$, 바람직하게는 약 0.5×10^{-6} 내지 약 $11 \times 10^{-6}/\%RH$, 특히 바람직하게는 약 0.5×10^{-6} 내지 약 $10 \times 10^{-6}/\%RH$ 의 범위 내에 있는 습도 팽창계수 a_h 를 갖는다. a_h 가 너무 낮으면, 폴리올레핀 (b)가 과량의 비율로 존재할 수 있고, 이는 필름 성형 특성을 감소시키거나 그의 기계적 성능을 저해할 수 있다. a_h 가 너무 높으면, 습도 변화로 인한 필름 팽창이 자기 기록 매체에 사용될 경우에 트랙 편차 등을 초래할 수 있다. 연신에 의해 측정 방향으로의 영률(Young's modulus)을 개선함으로써 보다 낮은 a_h 가 달성될 수 있다. 필름이 폭방향으로 연신되지 않으면, 폭방향으로의 영률이 낮고 상기에 기재된 범위 내의 습도 팽창계수가 달성될 수 없다.
- [0063] 본 발명의 이축 배향 필름은 바람직하게는 필름의 횡방향으로 (또한 바람직하게는, 필름의 기계 방향으로) 약 -10×10^{-6} 내지 약 $+15 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$, 바람직하게는 약 -8.3×10^{-6} 내지 약 $+10 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$, 특히 약 $-5-6 \times 10^{-6}$ 내지 약 $+5 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$ 의 범위 내에 있는 온도 팽창계수 a_t 를 갖는다. a_t 가 너무 낮으면, 비가역적인 열 수축이 관찰될 수 있다. a_t 가 너무 높으면, 온도 변화로 인한 필름 신장이 자기 기록 매체에 사용될 경우에 트랙 편차 등을 초래할 수 있다. 연신에 의해 측정 방향으로의 영률을 개선함으로써, 또한 존재하는 폴리올레핀의 양을 상기에 기재된 상한보다 적게 설정함으로써 보다 낮은 a_t 가 달성될 수 있다. 필름이 횡방향으로 연신되지 않으면, 횡방향으로의 영률이 낮고, 상기에 기재된 범위 내의 온도 팽창계수가 달성될 수 없다.
- [0064] 본 발명의 이축 배향 필름은 바람직하게는 필름의 횡 (또는 폭) 방향 (TD) 및 바람직하게는 필름 성형 방향 (기계 방향 (MD))으로 5 GPa 이상의 영률을 갖는다. 어느 한 방향으로의 영률이 너무 낮으면, 자기 기록 매체로서

사용될 경우에 적용되는 부하를 때로는 견딜 수 없거나, 또는 습도 변화에 의한 치수 변화가 작다 하더라도 온도/습도 변화에 의해 변형된다. 또한, MD 및 TD 영률의 총합은 바람직하게는 22 GPa 이하, 바람직하게는 20 GPa 이하, 바람직하게는 18 GPa 이하이다. MD 및 TD 영률의 총합이 너무 높으면, 필름 성형 중에 증가한 연신율이 때로는 빈번한 필름 파손을 초래하거나 제품의 수율을 감소시킬 수 있다.

[0065] 필름이 직선형 트랙형 자기 테이프에 사용될 경우에는, 기계 방향으로의 신장을 감소시키기 위해 MD 영률이 TD 영률보다 큰 것이 바람직하다. 이와 관련하여, MD 영률은 바람직하게는 6 GPa 이상, 바람직하게는 7 GPa 이상, 특히 8 GPa 이상이고, TD 영률은 5 GPa 이상, 바람직하게는 6 GPa 이상, 특히 7 GPa 이상이다. 추가의 실시양태에서, 횡방향으로의 신장을 크게 감소시키기 위해 TD 영률이 MD 영률보다 클 수 있고, 이와 관련하여 TD 영률은 바람직하게는 7 GPa 이상, 바람직하게는 8 GPa 이상, 특히 9 GPa 이상이고, MD 영률은 바람직하게는 5 GPa 이상, 바람직하게는 6 GPa 이상, 특히 7 GPa 이상이다. 추가로, MD 영률과 TD 영률 사이의 차이가 2 GPa 이하, 특히 1 GPa 이하인 것이 바람직하다. 또한, 기계 방향 및 횡방향 모두로의 신장을 감소시키기 위해, MD 영률이 6 GPa 이상, 바람직하게는 7 GPa 이상, 특히 8 GPa 이상이고, TD 영률이 6 GPa 이상, 바람직하게는 7 GPa 이상, 특히 8 GPa 이상이고, 특히 여기서 MD 영률과 TD 영률 사이의 차이가 상기에 기재된 바와 같은 것이 바람직하다.

[0066] 이축 배향 필름은 또한 가장 외부 층의 적어도 한 표면에 코팅 필름 층 (이하, 코팅층이라고도 함)을 가질 수 있다. 코팅 필름 층은 결합제 수지 및 용매를 포함하는 코팅제를 이축 배향 필름에 코팅함으로써 수득된다. 결합제 수지로서, 다양한 종류의 열가소성 수지 또는 열경화성 수지가 사용될 수 있고, 여기에는, 예를 들어 폴리에스테르, 폴리이미드, 폴리아미드, 폴리에스테르 아미드, 폴리올레핀, 폴리비닐 클로라이드, 폴리(메트)아크릴산 에스테르, 폴리우레탄, 및 폴리스티렌 뿐만 아니라, 이들의 공중합체 또는 혼합물이 포함된다. 결합제 수지 중에서, 폴리에스테르 공중합체가 특히 바람직한 예이다. 용매에는, 예를 들어 유기 용매, 예컨대 톨루엔, 에틸 아세테이트, 및 메틸 에틸 케톤 및 이들의 혼합물이 포함되고, 추가로 물일 수도 있다. 코팅 필름 층은 코팅 필름을 형성하기 위한 성분으로서 가교제, 계면활성제 및 비활성 입자를 추가로 함유할 수 있다. 계면활성제에는, 예를 들어 폴리알킬렌 옥시드가 포함된다. 상기에 기재된 성분 이외에도, 코팅 필름 층은 멜라민 수지, 가요성 중합체, 충전제, 열 안정화제, 풍화 안정화제, 노화방지제, 라벨링제(labeling agent), 정전기방지제, 슬립제(slipping agent), 블로킹방지제(anti-blocking agent), 흐림방지제, 염료, 안료, 천연 오일, 합성 오일, 왁스, 유화제, 경화제, 및 난연제와 같은 다른 수지를 추가로 함유할 수 있고, 블렌딩 비율은 본 발명의 목적을 저해하지 않는 범위에서 적절하게 선택된다.

[0067] 코팅 필름 층을 이축 배향 필름에 배치하는 방법은 이축 배향 필름의 적어도 한 표면에 코팅제를 코팅하고 건조시키는 방법, 또는 연신가능한 필름에 코팅제를 코팅한 다음, 건조시키고, 연신시키고, 임의로 열 처리를 적용하는 방법일 수 있다. 연신가능한 필름은 비-연신 필름, 단축 연신 필름, 또는 이축 배향 필름이고, 이들 중에서 필름 압출 방향 (세로 방향)으로 단축 연신된, 세로 방향으로 연신된 필름이 특히 바람직하다.

[0068] 또한, 코팅제를 필름에 코팅하는 공정 중에, 미오염 분위기에서의 코팅, 즉 필름 성형 단계에서의 코팅이 바람직하고, 이는 코팅제의 필름에 대한 접착력을 개선한다. 통상의 코팅 단계 동안에, 즉 이축 배향 후에 필름 제조 단계와는 독립된 단계에서 열경화 필름을 코팅하는 경우에는, 원치않는 먼지 또는 분진이 혼입되는 경향이 있다.

[0069] 임의의 공지된 코팅 방법이 사용될 수 있고, 예를 들어 롤 코팅 방법, 그라비아(gravure) 코팅 방법, 롤 브러싱 방법, 분무 코팅 방법, 에어 나이프(air knife) 코팅 방법, 침지 방법, 및 커튼(curtain) 코팅 방법이 단독으로 또는 조합되어 사용될 수 있다.

[0070] 본 발명의 이축 배향 필름은 또한 추가의 층이 또 다른 기능을 제공하기 위한 목적으로 적어도 한 표면에 라미네이팅된 라미네이트일 수 있다. 예를 들어, 자기 기록 매체로서 사용될 경우에, 자기층(magnetic layer) 쪽이 보다 더 평면 (즉, 활면) 표면이 되도록 하기 위해, 비활성 입자를 실질적으로 함유하지 않는 폴리에스테르 필름 층이 본 발명의 이축 배향 필름 표면에 자기층 쪽에서 라미네이팅될 수 있다. 추가로, 뒷면 (비-자기층)의 전개성 또는 권취 특성을 개선하기 위해, 함유될 비활성 입자가 비교적 크거나 그 양을 증가시킨 폴리에스테르 필름 층이 본 발명의 이축 배향 필름 표면에 비-자기층 쪽에서 라미네이팅될 수 있다. 이러한 라미네이트 필름은 필름의 전자기 전환 특징 및 권취 특성이 이러한 비대칭 구조체를 한 공정 단계에서 전달하도록 설계된 복잡한 상류 공압출 공정을 필요로 하지 않고도, 동시에 개선될 수 있다는 점에서 바람직하다.

[0071] 본 발명의 이축 배향 필름은 목적하는 최종 용도에 적합한 표면 조도 W_{Ra} (중양 표면 평균 조도)를 가지며, 이는 최종 용도에 따라 달라질 수 있다. 예를 들어, 자기 기록 매체로서 사용될 경우에, 이축 배향 필름의 제1

표면의 표면 조도 W_{Ra}는 바람직하게는 1 내지 10 nm, 또한 2 내지 10 nm, 특히 2 내지 8 nm이다. 표면 조도 W_{Ra}가 너무 높으면, 자기층의 표면이 조면이 되고 만족스러운 전자기 전환 특징이 때로는 달성될 수 없다. 표면 조도 W_{Ra}가 너무 낮으면, 표면이 지나치게 평면(활면)이 되고, 그 결과 패스 롤(pass roll) 또는 캘린더(calendar) 상에서의 미끄러짐이 악화되어, 때로는 주름을 초래하고 효율적으로 자기층을 코팅하거나 캘린더링할 수 없게 된다. 추가로, 제2 표면의 표면 조도 W_{Ra}는 제1 표면의 W_{Ra}와 동일할 수 있거나, 또는 5 내지 20 nm, 바람직하게는 6 내지 15 nm, 특히 8 내지 12 nm와 같이 더 클 수 있다. 제2 표면의 표면 조도 W_{Ra}가 너무 크면, 전개 표면 쪽의 표면 비평탄성이 자기층 쪽의 표면과 접촉할 때 전이되어 자기층 쪽 표면의 조면화를 초래함으로써, 때로는 만족스러운 전자기 전환 특징을 달성할 수 없게 된다. 그에 반해, 표면 조도 W_{Ra}가 너무 낮으면, 표면이 지나치게 평면(활면)이 되고 패스 롤 또는 캘린더 상에서의 미끄러짐을 악화시킬 수 있어, 주름을 초래하고 자기층을 코팅할 수 없게 된다. 두 표면을 상이한 형태의 표면으로 만드는 것이 바람직한데, 그 이유는 전자기 전환 특징 및 전개 특성이 보다 용이하게 조절가능하기 때문이다. 표면 조도 W_{Ra}는 필름에 비활성 입자를 혼입함으로써, 또는 미세한 비평탄성을 초래하는 표면 처리, 예를 들어 코팅제의 코팅 처리에 의해 조절가능하다.

[0072] 본 발명의 이축 배향 필름은 바람직하게는 공압출 방법을 사용하여 제조된다. 바람직하게는, 각각의 층을 구성하는 출발 물질을 용융된 상태로 다이에서의 공압출 방법에 의해 라미네이팅한 다음, 시트-유사 형상으로 압출하거나, 또는 2종 이상의 용융 중합체를 다이로부터 압출 및 라미네이팅하고, 급속 켄칭시켜 라미네이팅된 비-연신 필름으로 고화시키고, 그 후에 이축 배향 및 열에 적용하여 라미네이팅된 이축 배향 필름을 형성한다. 그에 따라, 비-연신 필름이 각각의 용점(T_m °C) 내지(T_m + 70°C)의 온도에서 개별 압출기를 사용하여 모든 중합체 성분을 압출하고, 급속 냉각시켜 비-연신 필름으로 고화시키는 방법을 사용함으로써 초기에 제조될 수 있다. 후속적으로 80°C 내지 120°C의 온도에서 예정된 비율로 단축 방향(세로 방향 또는 횡방향) 연신이 수행되고, 이어서 상기에 기재된 연신 방향에 대하여 수직 방향으로(제1 단계가 세로 방향이었을 경우에, 제2 단계는 횡방향임) 90°C 내지 150°C의 온도에서 예정된 비율로 연신시키고, 추가로 열 처리를 적용한다. 이 경우에, 연신율, 연신 온도, 열 처리 조건 등은 당업계에 공지된 바와 같이, 필름의 목적하는 특징에 따라 선택되고 결정된다. 면적 연신율은 바람직하게는 6 내지 35배, 바람직하게는 15 내지 35배, 또한 20 내지 30배이다. 열경화 온도는 전형적으로 190 내지 250°C의 범위 내에 있고, 처리 시간은 전형적으로 1 내지 60초의 범위 내에 있다. 특히, 내열성이 필요할 경우에는, 승온에서의 치수 안정성을 개선하기 위해 210 내지 240°C의 범위에서 열경화를 적용하는 것이 바람직하다. 이러한 열경화 처리를 수행함으로써, 200°C에서의 수득된 이축 배향 필름의 열 수축이 -3.5 내지 3.5%, 보다 바람직하게는 -3 내지 3%, 특히 바람직하게는 0 내지 3%일 수 있다. 또한, 열 수축을 억제하기 위해, 오프라인(off-line) 단계에서 1 내지 60초 동안 150 내지 220°C에서 열 처리를 적용한 후에, 50 내지 80°C의 온도 범위에서 서서히 냉각시키는 어닐링(annealing) 처리가 또한 사용될 수 있다.

[0073] 순차적인 이축 배향 방법 이외에, 동시 이축 배향 방법이 또한 사용될 수 있다. 순차적인 이축 배향 방법에서, 세로 방향 또는 횡방향으로의 연신 단계 수는 한 단계로 제한되지 않으며, 세로 방향 및/또는 횡방향 연신이 수차례 수행될 수 있다. 예를 들어, 필름이 자기 기록용으로 제조되고, 기계적 특성을 추가로 개선하고자 할 경우에는, 열경화 처리 전에 이축 배향 필름을 선행 연신 온도보다 20 내지 50°C 더 높은 온도에서 횡방향 또는 세로 방향으로의 추가의 연신 단계에 적용함으로써, 세로 방향으로의 총 연신율을 3.0 내지 7.0배로 설정하고, 횡방향으로의 총 연신율을 3.0 내지 6.0배로 설정하는 것이 바람직하다.

[0074] 9개 이상의 층을 갖는 라미네이트 필름을 제조할 경우에, 예를 들어 JP-A-2000-326467호의 단락 0028에서 제시되었고, 중합체의 3종의 별개의 용융 스트림을 수용하도록 개량된, 공급 블록을 사용하는 동시 다층 압출 방법을 사용하여 제조할 수 있다. 즉, 필름 층(A)를 구성하는 방향족 폴리에스테르(a) 및 필름 층(B)를 구성하는 폴리올레핀(b) 및 필름 층(C)를 구성하는 접착 물질(c)을 건조시킨 후에, 중합체를 각각 약 300°C로 가열된 특수 압출기로 공급하고, 각각의 용융물을, 예를 들어 공급 블록을 사용함으로써 교호 라미네이팅하고, 다이에서 확산시키고 압출하여 비-연신 라미네이팅 필름을 형성한다. 그 후에, 생수물 다층 필름을 본원에 기재된 것과 동일한 조건 하에 동일한 방법을 사용하여 이축 배향 및 열 처리에 적용한다.

[0075] 추가로, 코팅층을 제공할 경우에는, 목적하는 코팅액을 상기에 기재된 비-연신 필름 또는 단축 연신 필름의 한 표면 또는 양 표면에 코팅하는 것이 바람직하다.

[0076] 본 발명은 베이스 필름으로서 본원에 기재된 이축 배향 필름을 포함하고, 그의 한 표면 상에 자기층을 추가로 포함하는 자기 기록 매체를 추가로 제공한다. 자기 기록 매체는 본 발명의 이축 배향 필름이 베이스 필름으로서 사용되는 한은 특별히 제한되지 않으며, 예를 들어 직선형 트랙 시스템 데이터 저장 테이프, 예컨대 QIC 또는 DLT, 및 추가의 고용량 유형의 SDLT 또는 LTO가 포함된다. 온도/습도 변화로 인한 베이스 필름의 치수 변화

가 매우 작으므로, 보다 작은 트랙 편차를 초래하면서 고밀도 및 고용량에 적합한 자기 기록 매체가, 테이프의 고용량을 보장하기 위해 트랙 간격이 좁을 때도 제공될 수 있다.

[0077] 본 발명은 본원에 기재된 이축 배향 필름을 포함하는 전자 또는 광전자 장치, 특히 전계발광 (EL) 디스플레이 장치 (특히, 유기 발광 디스플레이 (OLED) 장치), 전기영동 디스플레이 (전자종이), 광기전력 (PV) 전지 및 반도체 장치 (예컨대, 유기 전계 효과 트랜지스터, 박막 트랜지스터 및 범용 집적회로)와 같은 전자 또는 광전자 장치를 추가로 제공하고, 특히 이러한 장치는 가요성이다.

[0078] 실시에

[0079] 필름을 하기 방법을 사용하여 특징화하였다. 실시예에서 용어 "부" 및 "%"는 각각 중량부 및 중량%를 의미한다.

[0080] (1) 용점, 유리 전이점

[0081] 전형적으로 방향족 폴리에스테르 (a), 폴리오레핀 (b) 또는 접착 물질 (c) 10 mg을 측정용으로 사용되는 알루미늄 팬에 넣어 밀봉하고, 시차 주사 열량계 DSC 2920 (티에이 인스트루먼트 컴파니(TA instruments Co.))을 사용하여 25℃부터 300℃까지 20℃/분의 온도 상승 속도로 가열하여 각각의 용점 (방향족 폴리에스테르 (a)의 용점 = Tma; 폴리오레핀 (b)의 용점 = Tmb; 접착 물질 (c)의 용점 = Tmc), 및 유리 전이점 (방향족 폴리에스테르 (a)의 유리 전이점 = Tga; 폴리오레핀 (b)의 유리 전이점 = Tgb; 접착 물질 (c)의 유리 전이점 = Tgc)을 측정하였다.

[0082] (2)비켓 연화점, 용융 지수, 용점, 유리 전이

[0083] 공개된 상업용 문헌에서 이용가능할 경우에, 접착 물질의 용융 유동 지수 (MFI) (ASTM 1238D), 비켓 연화점 (ASTM 1525D), 용점 Tm 및 유리 전이점 Tg (DSC) 값을 특징화 및 비교용으로 기록하였다. 용융 유동 지수는 전형적으로 2.16 kg의 샘플 크기에 대하여 190℃에서 측정되고, 본원에서는, 달리 명시하지 않는 한, 상기 측정 조건을 특징한다. 용융 유동 지수는 또한 용융 지수 또는 용융 유량이라고도 한다.

[0084] (3) 습도 팽창계수 (CHE 또는 ah)

[0085] 필름 샘플을 필름의 폭방향이 측정 방향을 따르도록 하여 15 mm의 길이 및 5 mm의 폭으로 절단하고, 이를 신구 리코 인크.(Shinku Riko Inc.) 제조의 TMA 3000에 셋팅하여 30℃의 질소 분위기 하에 30%RH의 일정 습도 및 70%RH의 습도에서 유지하고, 시편의 길이를 측정하여 이 경우에 하기에 기재된 관계식 (1)에 따라 습도 팽창계수를 계산하였다. 측정 방향은 시편의 세로 방향을 따르고, 10개의 시편에 대하여 측정을 수행하여 그의 평균 값을 ah로서 정의하였다.

[0086]
$$\alpha h = (L_{70} - L_{30}) / (L_{30} \times \Delta H) \quad \dots \quad (1)$$

[0087] 상기 식에서,

[0088] L_{30} = 30%RH에서의 시편 길이 (mm)

[0089] L_{70} = 70%RH에서의 시편 길이 (mm)

[0090] ΔH = 40 (= 70-30)%RH

[0091] (4) 온도 팽창계수 (CTE 또는 at)

[0092] 필름 샘플을 필름의 폭방향이 측정 방향을 따르도록 하여 15 mm의 길이 및 5 mm의 폭으로 절단하고, 이를 신구 리코 인크. 제조의 TMA 3000에 셋팅하여 질소 분위기 (0%RH)하에 60℃에서 30분 동안 전처리하고, 이어서 온도를 실온으로 낮췄다. 이어서, 온도를 2℃/분으로 25℃에서 70℃까지 상승시키고, 각 온도에서의 시편 길이를 측정하여 온도 팽창계수 (αt)를 하기에 기재된 관계식 (2)에 따라 계산하였다. 측정 방향은 시편의 세로 방향을 따르고, 10개의 시편에 대하여 측정을 수행하여 그의 평균 값을 사용하였다.

[0093]
$$\alpha t = \{ (L_{60} - L_{40}) / (L_{40} \times \Delta T) \} + 0.5 \times 10^{-6} \quad \dots \quad (2)$$

[0094] 상기 식에서,

[0095] L_{40} = 40℃에서의 시편 길이 (mm)

[0096] L_{60} = 60℃에서의 시편 길이 (mm)

[0097] ΔT = 20 (= 60-40)℃

[0098] 0.5×10^{-6} = 석영 유리의 온도 팽창계수

[0099] (5) 영률

[0100] 필름 시편을 폭 10 mm 및 길이 15 cm의 치수로 절단하고, 인스트론(Instron) 유형의 척(chuck) 거리가 100 mm 인 만능 인장 시험기를 사용하여, 10 mm/분의 굴절 및 500 mm/분의 차트 속도(chart speed)로 변형시키고, 영률을 부하 대 신장에 관하여 기록된 곡선의 상승 부분에서의 탄젠트로부터 계산하였다. 측정 방향은 시편의 세로 방향을 따르고, 시험을 10개의 시편에 대하여 반복하여 평균 값을 얻었다.

[0101] (6) 고유 점도

[0102] 고유 점도 (단위: dL/g)는 25℃에서 o-클로로페놀 중의 0.5 중량% 폴리에스테르 용액을 사용하여, 비스코테크(Viscotek)TM Y-501C 상대 점도계로 ASTM D5225-98(2003)에 따라 용액 점도측정법에 의해 측정하고 (예를 들어, 문헌 [Hitchcock, Hammons & Yau in *American Laboratory* (August 1994) "The dual-capillary method for modern-day viscometry"] 참조), 빌마이어(Billmeyer) 단일점 방법을 사용하여 고유 점도를 계산하였다.

[0103]
$$\eta = 0.25\eta_{red} + 0.75(\ln \eta_{rel})/c$$

[0104] 상기 식에서,

[0105] η = 고유 점도 (dL/g),

[0106] η_{rel} = 상대 점도,

[0107] c = 농도 (g/dL), 및

[0108] $\eta_{red} = (\eta_{rel}-1)/c$ 에 해당하는 환원 점도 (dL/g) (η_{sp}/c 로도 표시됨, 여기서 η_{sp} 는 비점도임).

[0109] (7) 각 필름의 두께

[0110] 라미네이트 필름을 삼각형 형상으로 절단하고, 매립 캡슐에 고정시킨 다음, 에폭시 수지로 매립시켰다. 이것을 마이크로톰(microtome; 울트라컷-에스(ULTRACUT-S))에 의해 필름 성형 방향 및 두께 방향과 평행한 방향으로 두께 50 nm의 박편으로 절단하였다. 그 후에, 투과형 전자 현미경을 사용하여 1000 kV의 가속 전압에서 관찰하고, 10000 내지 100000X 배율로 사진을 촬영하여, 각 층의 두께를 기록된 현미경사진으로부터 측정하였다.

[0111] (8) 박리 저항성

[0112] 이는 3가지의 별도의 방식으로 평가되었다.

[0113] i) 박리시키고, 층간박리를 일으키기 위해 필요한 힘의 등급을 경험적으로 정하는 수동식. 등급은 차례대로 박리 강도 0을 의미하는 "매우 불량함", 불량함, 중간, 우수함 및 매우 우수함을 따른다. "매우 우수함"은 층간박리 또는 박리보다 우선적으로 발생하는 개별 중합체 층의 균열을 의미한다. 등급 범위는 주로 본원의 실시예 1 내지 27에 대하여 사용되고, 후속적으로 약 0 (매우 불량함) 내지 약 2 N/mm 또는 그 초과 값 (매우 우수함)의 범위에 있는 접착 강도와 상관성이 있는 것으로 밝혀졌다.

[0114] ii) 라미네이트를 박리시키거나 분리하기 위한 에너지를 ASTM D903에 따라 측정하는 정량식. 이 경우에, 폭이 25 mm인 다층 필름의 스트립(strip)을 절단하여, 초기에 한쪽 단부에서 층간박리하고, 그의 각 레그(leg) 또는 요소를 인장 신장계에 클램핑하였다. 신장계의 클램프를 연장시킴으로써 180℃의 기하학으로 박리를 수행하고, 층간박리 동안에 기록된 부하가 접착 강도 (단위: mN/25 mm)로서 표시된다. 본 발명에 따라 그 사이에 접착 중간층 (C)을 갖는 층 (A) 및 층 (B)의 접착 강도는 바람직하게는 약 500 mN/25 mm 이상, 바람직하게는 약 1000 mN/25 mm 이상, 바람직하게는 약 2000 mN/25 mm 이상, 바람직하게는 약 2500 mN/25 mm 이상이다. 본 발명의 명세서에서, 상기 접착 강도는 본원에서 정의된 바와 같이 하나 이상의 (A) 층 및 하나 이상의 (B) 층을, 그 사이에 있는 층 (C)와 함께 포함하는 필름의 층간박리 저항성에 해당하므로, 층간박리 저항성은 바람직하게는 약 500 mN/25 mm 이상, 바람직하게는 약 1000 mN/25 mm 이상, 바람직하게는 약 2000 mN/25 mm 이상, 바람직

하계는 약 2500 mN/25 mm 이상이다.

[0115] iii) 단순 박리 시험을 사용하여, 접착력의 수준을 세 그룹으로 나누어 등급을 정하는 반정량식. 샘플 필름의 한 표면에, 커터칼로 각각 세로 방향 및 횡방향으로 2 mm의 간격을 두면서 6회 절단하여 6개의 절개부를 형성함으로써 25개의 격자를 만들었다. 그 후에, 폭이 24 mm인 감압성 접착 테이프 (제품의 상표명: 셀로테이프 (CELLOTAPE; 등록 상표), 니치반 컴파니(Nichiban Co.) 제조)를 샘플 필름의 양 표면에 붙이고, 180°의 박리 각도로 재빨리 격자면에 붙은 접착 테이프를 박리시킨 후에, 박리된 표면을 관찰하고 하기 기준에 따라 평가하였다:

[0116] a: 층 사이의 접착력이 만족스러우며, 박리 영역이 없음

[0117] b: 층 사이의 접착력이 불량하며, 20% 미만의 박리 영역이 있음

[0118] c: 층 사이의 접착력이 매우 불량하며, 20% 초과 박리 영역이 있음

[0119] (9) 필름 성형 및 품질

[0120] 중합체 물질이 성공적으로 가공되고 고급 품질의 필름을 제조하는 능력을 주로 주조 필름의 타이층 물질의 표면 품질을 검사함으로써 평가하였다. 예시적인 2층 공압출 필름을 제조하고, 여기서 공압출 층은 접착 물질을 포함하고 주요 층은 방향족 폴리에스테르 (a) 또는 폴리올레핀 (b)을 포함하였다. 검사할 때, 공압출 층이 필름의 폭 전체에 걸쳐서 균등한 두께 프로파일, 균일한 점조도 및 활면 표면 품질을 나타낼 경우에 "우수함"으로 등급을 정하였다. "중간"은 덜 완전한 특징을 나타내지만, 필름의 폭 전체에 걸쳐서 전반적으로 확산되고, 물질의 벌크에서 약간의 불균질성을 나타내고, 활면이지만 불규칙적인 표면 품질을 나타내는 동일한 공압출 층에 적용되었다. 마지막으로, "불량함"이라는 표현은 타이층 물질이 공압출 필름의 전체 폭에 걸쳐서 침착되지 않았고, 물질이 명백하게 불균질하고, 표면이, 예를 들어 용융 또는 다른 부반응으로부터의 탈기로 인해 심각하게 붕괴되었을 경우의 필름 품질을 기술하기 위해 사용되었다.

[0121] (10) 트랙 편차

[0122] 구동 유닛 (휴렛-팩커드 컴파니(Hewlett-Packard Co.) 제조의 LT01)을 사용하여 10°C 및 10% RH의 온도 및 습도에서 기록한 후에, 본 발명의 필름으로부터의 자기 코팅 테이프를 30°C 및 80% RH의 온도 및 습도하에 재전개하여, 온도 및 습도의 변화로 인한 자기 테이프의 자기 헤드로의 트랙 편차 폭을 측정하였다. 편차 폭의 절대 값이 작을수록 우수한 특성을 의미한다.

[0123] (11) 중앙 표면 평균 조도 (WRa)

[0124] 중앙 표면 평균 조도 (WRa)는 25의 측정 지수, 246.6 μm x 187.5 μm (0.0462 mm²)의 측정 면적 조건 하에, 와이코 컴파니(WYKO Co.) 제조의 비접촉 3차원 조도 측정기 (NT-2000)를 사용하여, 조도 측정기에 도입된 표면 분석 소프트웨어에 의해, 하기에 기재된 관계식 (3)에 따라 결정되었다. 측정을 10회 반복하여 그의 평균 값을 사용하였다.

[0125]
$$WRa = \sum_{i=1}^M \sum_{j=1}^N |Z_{ijk} - \bar{Z}| / (M \cdot N) \quad (3)$$

[0126] 상기 식에서,

[0127]
$$\bar{Z} = \sum_{i=1}^M \sum_{j=1}^N Z_{ijk} / (M \cdot N)$$

[0128] Zjk는 측정 방향 (246.6 μm) 및 그에 대한 수직 방향 (187.5 μm)을 각각 M번 및 N번 나누었을 때, j번째 및 k번째 위치에서의 3차원 조도 차트에서의 높이이다.

[0129] (12) 비활성 입자의 평균 입자 직경

[0130] 시마즈 세이사쿠쇼 컴파니(Shimazu Seisakusho Co.) 제조의 CP-50형 원심성 입자 크기 분석기를 사용하여 측정을 수행하였다. 얻어진 원심성 침강 곡선에 기초하여 계산한 각 입자의 입자 직경 및 그의 존재량에 대한 가적 곡선으로부터, 50 질량%에 상응하는 입자 직경을 판독하고, 그 값을 평균 입자 직경으로서 정의하였다.

[0131] (13) 열안정성

- [0132] 스탠톤(Stanton) 열중량 분석기 (모델 STA 1500A)를 사용하여, 질량이 20 mg인 시편을 백금 팬에서 20℃에서 300℃까지는 10℃/분의 속도로, 이어서 310℃까지는 3.5℃/분의 속도로 가열한 다음, 건조 질소 분위기 하에 10분의 기간 동안 310℃에서 유지하였다.
- [0133] 하기 중합체를 실시예에서 사용하였다:
- [0134] **폴리에스테르 1**
- [0135] 방향족 폴리에스테르로서, 폴리에틸렌 테레프탈레이트 (PET)를 하기와 같이 제조하였다. 망간 아세테이트의 존재하에 통상의 방법에 의해 디메틸 테레프탈레이트 및 에틸렌 글리콜에 대하여 에스테르 교환 반응을 수행한 후에, 트리에틸 포스포노 아세테이트를 첨가하였다. 그 후에, 삼산화안티몬을 첨가하고 중축합을 수행하여, 고유 점도가 0.62인 PET 수지를 수득하였다.
- [0136] **폴리에스테르 2**
- [0137] 또 다른 방향족 폴리에스테르로서, 폴리에틸렌-2,6-나프탈렌 (PEN)을 하기와 같이 제조하였다. 망간 아세테이트의 존재하에 통상의 방법에 의해 디메틸 나프탈렌-2,6-디카르복실레이트 및 에틸렌 글리콜에 대하여 에스테르 교환 반응을 수행한 후에, 트리에틸 포스포노 아세테이트를 첨가하였다. 그 후에, 삼산화안티몬을 첨가하고 중축합을 수행하여, 고유 점도가 0.67인 PEN 수지를 수득하였다.
- [0138] **폴리에스테르 3**
- [0139] 또 다른 방향족 폴리에스테르로서, 폴리에틸렌-2,6-나프탈렌 (PEN)을 하기와 같이 제조하였다. 망간 아세테이트의 존재하에 통상의 방법에 의해 디메틸 나프탈렌-2,6-디카르복실레이트 및 에틸렌 글리콜에 대하여 에스테르 교환 반응을 수행한 후에, 트리에틸 포스포노 아세테이트를 첨가하였다. 그 후에, 삼산화안티몬을 첨가하고 중축합을 수행하여, 고유 점도가 0.58인 PEN 수지를 수득하였다.
- [0140] 실시예 1 내지 27은 청구된 본 발명에 따른 다층 필름의 예가 아니다.
- [0141] **실시예 1**
- [0142] 2개 층을 포함하는 필름을 표준 용융 공압출 시스템을 사용하여 압출하고 구조하였다. 공압출 시스템은 중합체 용융물의 별도의 공급물을 이들 스트림이 합쳐지는 표준 공압출 블록 또는 접합부로 공급하는 2개의 독립적으로 작동하는 압출기를 사용하여 조립되었다. 그 후에, 용융물을 용융물 커튼을 구조시키는 단순 편평 필름 압출 다이로 이송하고 회전하는 냉각 금속 드럼에서의 온도에서 철회시켰다. 한 층은 PET 폴리에스테르 1을 포함하며, 이는 275℃의 설정 공정 온도에서 공동 다이로부터 압출되고 구조되었다. 제2 공압출 층은 바이넬(Byne1) 21E533 (유사한 등급이 바이넬 21 E830으로서 이용가능함) 물질을 포함하였다. 바이넬 물질을 260℃의 압출기 온도에서 가공하고, 최종적으로 275℃에서 공압출 다이로부터 구조하였다. 구조 필름을 약 1.8 m/분의 공정 속도로 수집하였고, 이는 대략 150 mm의 폭을 가졌다. 필름의 총 두께는 약 550 μm 였고, 그 중 PET 층은 대략 400 μm 이고 바이넬 접착제 층은 대략 150 μm 였다.
- [0143] **실시예 2 내지 10**
- [0144] 이들 실시예 각각에서, 바이넬 21E533 물질을 각각 바이넬 41E865; 바이넬 3861; 로타데르(Lotader) AX 8900; 로타데르 3210; 로타데르 4210; 크라톤(Kraton) FG1901X; 크라톤 1924X; 누크렐(Nucrel) 0908HS; 및 애드머(Admer) SE810으로 대체하는 것을 제외하고는, 실시예 1에 기재된 바와 같이 필름을 제조하였다. 로타데르 등급은 아르케마 케미컬 컴파니(Arkema Chemical Company)에 의해 제공되었다. 크라톤 등급은 크라톤 폴리머즈 컴파니(Kraton Polymers Company)로부터 제공되었다. 바이넬 및 누크렐 등급은 이. 아이. 듀폰 드 네무어(E. I. DuPont de Nemours)에 의해 제공되었다. 애드머 등급은 미쓰비시 케미컬 컴파니(Mitsubishi Chemical Company)에 의해 제공되었다.
- [0145] **실시예 11**
- [0146] 방향족 폴리에스테르가 PEN 폴리에스테르 2라는 것을 제외하고는, 실시예 1에 기재된 바와 같이 필름을 제조하였다. PEN 물질을 285℃의 설정 공정 온도에서 공동 다이로부터 압출하고 구조하였다. 바이넬 21 E533의 제2 공압출 층은 260℃의 압출기 온도에서 가공하였고, 최종적으로 285℃에서 공압출 다이로부터 구조하였다. 구조 필름을 실시예 1의 조건과 유사한 조건 하에서 수집하였고, 이는 유사한 치수, 즉 550 μm 의 총 두께 (그 중, PEN 층은 대략 400 μm 이고, 바이넬 접착제 층은 대략 150 μm 임)를 가졌다.

- [0147] 실시예 12 내지 18
- [0148] 이들 실시예 각각에서, 바이넬 21E533 물질을 각각 바이넬 41E865; 바이넬 3861; 로타테르 AX 8900; 로타테르 3210; 로타테르 4210; 크라톤 FG1901X; 및 애드머 SE810으로 대체하는 것을 제외하고는, 실시예 11에 기재된 바와 같이 필름을 제조하였다.
- [0149] 실시예 19
- [0150] PET를 탄화수소 중합체 신디오택틱 폴리스티렌 (sPS)으로 대체하는 것을 제외하고는, 실시예 1에 기재된 바와 같이 필름을 제조하였다. 본 실시예에서는, sPS 물질을 300℃의 설정 공정 온도에서 공동 다이로부터 압출하고 주조하였다. 바이넬 21E533의 제2 공압출 층은 275℃의 압출기 온도에서 가공하고, 최종적으로 300℃에서 공압출 다이로부터 주조하였다. 주조 필름을 실시예 1의 조건과 유사한 조건 하에서 수집하였고, 이는 유사한 치수를 가졌다.
- [0151] 실시예 20 내지 27
- [0152] 이들 실시예 각각에서, 바이넬 21E533 물질을 각각 바이넬 41 E865; 바이넬 3861; 로타테르 AX 8900; 로타테르 3210; 로타테르 4210; 크라톤 FG1901X; 크라톤 1924X; 및 애드머 SE810으로 대체하는 것을 제외하고는, 실시예 19에 기재된 바와 같이 필름을 제조하였다.
- [0153] 표 1은 실시예 1 내지 27의 공압출 필름을, (i) 두 층에 의한 박리 저항성 수준, 및 (ii) 표준 필름 성형 조건 하에서 주조된 필름 층의 품질과 관련하여 특징화한다.
- [0154] 표 2는 실시예 1-27의 공압출 층 2의 조성을 기술한다.

표 1

2개 층의 공압출 필름

Ex.	공압출 층 1	공압출 층 2	박리 저항성	필름 품질
1	PET	바이넬 21E 533/830	매우 우수함	매우 우수함
2	PET	바이넬 41 E865	우수함	중간
3	PET	바이넬 3861	중간	우수함
4	PET	로타데르 AX 8900	매우 우수함	불량함
5	PET	로타데르 3210	매우 우수함	불량함
6	PET	로타데르 4210	매우 우수함	매우 불량함
7	PET	크라톤 FG1901X	우수함	불량함
8	PET	크라톤 1924X	중간	불량함
9	PET	누크렐 0908HS	매우 불량함	중간
10	PET	애드머 SE810	매우 우수함	우수함
11	PEN	바이넬 21E533/830	우수함	우수함
12	PEN	바이넬 41 E865	우수함	불량함
13	PEN	바이넬 3861	우수함	우수함
14	PEN	로타데르 AX 8900	중간	중간
15	PEN	로타데르 3210	매우 우수함	불량함
16	PEN	로타데르 4210	매우 우수함	매우 불량함
17	PEN	크라톤 FG1901X	중간	불량함
18	PEN	애드머 SE810	매우 우수함	중간
19	sPS	바이넬 21E533/830	중간	우수함
20	sPS	바이넬 41 E865	우수함	불량함
21	sPS	바이넬 3861	우수함	중간
22	sPS	로타데르 AX 8900	우수함	우수함
23	sPS	로타데르 3210	매우 불량함	불량함
24	sPS	로타데르 4210	매우 불량함	매우 불량함
25	sPS	크라톤 FG1901X	중간	불량함
26	sPS	크라톤 1924X	중간	불량함
27	sPS	애드머 SE810	중간	우수함

[0155]

표 2

조성 요약 표

중합체	비중 (°C)	MFJ (g/10min)	스티렌	에틸렌	프로필렌	조성 (%wt) 아크릴레이트 (Me 또는 Bu)	부틸	GMA	MANH	MAA	조성 구조	PETIPEN/PS 상대 결합성형성	PETIPEN/PS 에 대한 접착력
바이셀 21E833	50	7.7		92		8			1		그라프트 MANH	VG/G/G	VG/G/M
바이셀 21E830	50	7.5		92		8			1		그라프트 MANH	VG/G/G	VG/G/M
바이셀 41E865	82	4.7	17	67		16			1		그라프트 MANH	M/P/P	G/G/G
바이셀 3861**	56	2.0		75		25 *			1		그라프트 MANH	G/G/M	M/M/G
로타셀로 AX8900	<40	6		68		24		8			n/a	P/M/G	VG/M/-
코라론 1901		22***	30	68***					1.7		그라프트 MANH	P/-/P	G/M/M
코라론 1924		40***	13	86***					1		그라프트 MANH	P/P/P	M/-/M
누크렐	80	8		91						9	n/a	M/-/-	VP/-/-
에드거 SE810	40	7.20		65.75	20-30		1.5		0.5-1		그라프트 MANH	G/M/G	VG/VG/M
로타셀로 3210	76			91		6			3.1		공중합 MANH	P/P/P	G/G/VP
로타셀로 4210				90		6.5			3.6		공중합 MANH	VP/VP/VP	G/G/VP

GMA = 글리시딜 메타크릴레이트

MANH = 말레산 무수물

MAA = 메타크릴산

공중합 = 공중합에 의해 중합체 배분에 혼입

그라프트 = 공중합체의 후처리에 의해 중합체 배분 상에 혼입

* 25% 비닐 아세테이트 ** 260°C 조판에서 본래 *** 5 kg의 샘플 크기에 대하여 230°C에서 측정

**** 에틸렌 성분은 에틸렌 및 부틸렌 공단량체의 혼합물임

[0156]

[0157]

본 발명자들이 이해하는 바에 따르면, 접착제 층 물질 중의 그라프트된 말레산 무수물 (MANH) 기는 폴리에스테르와 화학 반응한다 (고온의 조건 하에 용융 상태로). 글리시딜 메타크릴레이트 (GMA) 단위를 포함하는 공중합체도 폴리에스테르 물질과 용융-블렌딩되었을 때 유사한 방식으로 작용하여, 중합체 성분 사이에 화학 결합을 형성한다는 사실이 공지되어 있다. 실시예 1 내지 18에 의해 입증되는 바와 같이, 이러한 화학 반응의 결과, 상기 반응성 모이어티는 비극성 탄화수소 중합체 및 축합 중합체, 예컨대 폴리에스테르 사이의 상 경계에서 접착력을 보일 것이다. 따라서, 실시예 1 내지 8 및 10 내지 18은 상기 물질이 폴리에스테르와 함께 공압출될 경우에 유리한 접착력 결과를 나타내나, MANH 또는 GMA가 유사한 공압출 공중합체에 존재하지 않을 경우에는 (실시예 9) 매우 불량한 접착력이 관찰된다.

[0158]

당업계의 관행에 따라, 탄화수소 중합체 물질과 말레산 무수물-함유 기 사이의 상호작용이 바람직할 경우에는, 용융 공정 동안에 자유 라디칼 개시제를 포함시킬 필요가 있고 (문헌 [Krumpa *et al.*, Polym. Test., **24**, 129 (2005)]), 표 1에서 MANH 또는 GMA-개질된 물질은, 이들 물질과 폴리에스테르 사이에 화학 반응이 존재하는 것

처럼, 탄화수소 기재 중합체 물질과는 그러한 화학 반응이 존재하지 않는다고 보고되었다 (문헌 [M Lia et al., Polymer, **43**, 5455 (2002)]; 및 [Y Po et al., Polymer **37**, 5653 (1996)]). 따라서, 실시예 19 내지 27에서 sPS와 접착성 중합체 물질 사이의 접착력은 매우 불량할 것으로 예상될 것이고, 실제로도 상기 시판 물질 중 어느 것도 방향족 탄화수소, 예컨대 폴리스티렌 (PS) 또는 신디오택틱 폴리스티렌 (sPS)과 함께 사용하는 것이 제안되지 않았다. 그러므로, 적어도 실시예 19, 21 내지 24 및 27에서 관찰된 박리 저항성이 예상밖으로 높았고, 이는 관련 물질 사이의 상호작용에 관하여 현재 이해되고 있는 바와 상반된다. 그에 반해, 실시예 20, 25 및 26에서 관찰된 박리 저항성은 놀랍지 않다. 바이넬 41E865 및 크라톤 등급은 부분적으로 폴리스티렌을 포함하고, 용융물의 부분 혼합으로부터 발생하는 층 경계에서의 상호작용이 물질 사이에 육안으로 관찰되는 접착력을 제공할 것이라고 예상될 것이다.

[0159] 따라서, 실험에 의해 그의 화학 조성에 따라 탄화수소 중합체 (즉, 폴리올레핀) 및 폴리에스테르에 대하여 예상밖의 접착력을 나타내는, 타이층을 형성하는 접착 물질의 신규하고 놀라운 세트가 확인된다.

[0160] 그러나, 타이층은 다층 필름의 인접한 층 사이에 적절한 접착력 수준을 부여할 뿐만 아니라, 또한 필름의 제조에서 사용되는 공정 조건에 적합성을 보여야 하므로, 압출 및 공정 온도에서 적절한 열안정성 및 레올로지를 가져야 한다.

[0161] 본 발명의 범주 내에 포함되는 표 1의 접착제 층 물질은 바이넬 21E533, 바이넬 21E830, 바이넬 3861 및 애드머 SE810이다. 이들 접착 물질이 폴리에스테르 및 탄화수소 기재에 대하여, 박리 저항성 및 필름 품질과 관련하여 중간 또는 우수한 수준으로 작용한다는 사실은 예상밖이다.

[0162] 상기 물질을 본원에 기재된 시험 방법에 따라 열안정성에 대하여 시험하였고, 그 결과가 하기 표 3에 나타나 있다.

표 3

샘플 ID	310°C에서 10분 후의 중량 손실 (%)
바이넬 3861	6.0
바이넬 21E533	2.2
애드머 SE810	1.0

[0163]

[0164] 열 처리는 또한 바이넬 3861 샘플로부터 약간의 발포를 초래하였고, 이는 다른 샘플에 대해서는 관찰되지 않았다. 상기 시험은 본 발명에서 바이넬 21E533, 바이넬 21E830 및 애드머 SE810 물질의 특별한 장점을 입증해준다.

[0165] 하기의 추가의 실험을 수행하였다.

[0166] 대조 실시예 1 및 2

[0167] 바이넬 21E533 물질을 PET 폴리에스테르 1과 애드머 SE810의 물리적 혼합물로 대체하는 것을 제외하고는, 실시예 19에 기재된 바와 같이 2층 공압출 필름을 제조하였다. 대조 실시예 1에서는 혼합물 중의 비율이 각각 9:1 (wt/wt)이었고, 대조 실시예 2에서는 비율이 각각 8:2 (wt/wt)였다.

[0168] 대조 실시예 3

[0169] 한 층이 PET 폴리에스테르 1과 애드머 SE810 (각각 8:2 (wt/wt))의 물리적 혼합물을 포함하고, 제2 공압출 층이 올레핀계 물질 (sPS)과 애드머 SE810 (각각 8:2 (wt/wt))의 물리적 혼합물을 포함하는 것을 제외하고는, 실시예 19에 기재된 바와 같이 2층 공압출 필름을 제조하였다.

[0170] 대조 실시예 4

[0171] 한 층이 PET 폴리에스테르 1과 바이넬 21E533 (각각 8:2 (wt/wt))의 물리적 혼합물을 포함하고, 제2 공압출 층이 올레핀계 물질 (sPS)과 바이넬 21E533 (각각 8:2 (wt/wt))의 물리적 혼합물을 포함하는 것을 제외하고는, 대조 실시예 3에 기재된 바와 같이 2층 공압출 필름을 제조하였다.

[0172] 표 4는 공압출 필름 대조 실시예 1 내지 4를, 필름의 박리 저항성 및 표준 필름 성형 조건 하에서 주조된 필름

층의 품질과 관련하여 특징화한다.

표 4

2개 층의 공압출 필름

CE	공압출 층 1	공압출 층 2	박리 저항성	필름 품질
1	PET + 애드머 (9:1)	sPS	불량함	우수함
2	PET + 애드머 (8:2)	sPS	불량함	우수함
3	PET + 애드머 (8:2)	sPS + 애드머 (8:2)	중간	우수함
4	PET + 바이넬 21E533 (8:2)	sPS + 바이넬 21E533 (8:2)	불량함	우수함

표 4의 데이터에 의해, 단지 중간 수준의 접착력을 달성하기 위해서는, 표 1에서 확인된 가장 효과적인 2종의 접착 물질이 폴리에스테르 및 폴리올레핀 층에서 20 중량%의 수준으로 블랜드로서 존재해야 함이 밝혀졌다. 추가로, 이러한 다층 필름은 필름 모듈러스의 손상과 같은 단점을 나타내고, 그 결과 열 팽창계수 및 습도 팽창계수를 저하시킨다. 또한, 본원에 기재된 적용 (특히, 자기층이 필름 표면 상에 배치되는 자기 기록 매체)을 위해 중요할 수 있는 필름 표면의 품질은 기본적으로 블랜드의 상 분리 형태에 의해 손상된다.

실시예 28

중합체 물질의 3개 층을 포함하는 필름을 표준 용융 공압출 시스템을 사용하여 압출하고 주조하였다. 공압출 시스템은 중합체 용융물의 별도의 공급물을 이틀 스트림이 합쳐지는 표준 공압출 블록 또는 접합부로 공급하는 3개의 독립적으로 작동하는 압출기를 사용하여 조립되었다. 그 후에, 용융물을 용융물 커튼을 주조시키는 단순 편평 필름 압출 다이로 이송하고 회전하는 냉각 금속 드럼에서의 온도에서 켄칭시켰다. 한 층은 PEN 폴리에스테르 2를 포함하였다. 제2 공압출 층은 바이넬 21E533 물질을 포함하였고, 제3 층은 신디오택틱 폴리스티렌 (sPS; 이데미츠 케미칼(Idemitsu Chemical))을 포함하였다. 공압출 구조는 중간 층이 바이넬 21E533을 포함하도록 설계하였다. 냉각 금속 주조 드럼으로부터 수집한 후에, 필름을 재가열하고, 순방향 또는 기계 방향 (연신율 x3) 및 측방향 또는 횡방향 (연신율 x4)으로 연신시킴으로써 추가로 처리하였다. 필름 두께는 20-25 μm 의 값에 이르렀고, 공정은 열경화에 의해, 즉 이층 배향 필름을 폴리에스테르 및 sPS 층의 추가의 결정화를 유도하는 승온으로 가열함으로써 완료하였다. 최종 열경화 단계는 220°C의 오븐 온도에서 수행하였다.

실시예 29

바이넬 21E533을 애드머 SE810으로 대체하고, 여기서 필름을 순방향으로 x3의 연신율로, 또한 측방향으로 x5.5의 연신율로 연신시키는 것을 제외하고는, 실시예 28에 기재된 바와 같이 필름을 제조하였다.

실시예 30 내지 35

3개의 압출 시스템의 상대 처리량을 조정함으로써 달성되는 층의 상대 두께를 달리하는 것을 제외하고는, 실시예 29에 기재된 바와 같이 필름을 제조하였다.

실시예 36

중합체 물질의 5개 층을 포함하는 필름을 다중-매니폴드(multi-manifold) 다이 시스템과 커플링된 표준 용융 공압출 시스템을 사용하여 압출하고 주조하였다. 전체 압출 시스템은 중합체 용융물의 별도의 공급물을 이틀 스트림이 합쳐지는 표준 공압출 블록 또는 접합부로 공급하는 2개의 독립적으로 작동하는 압출기를 연결함으로써 조립되었다. 공압출 접합부 전에, 1종의 용융물 스트림이 분리되어 접합부의 2개의 포트(port)로 공급되고, 이는 3종의 별개의 스트림을 포함하는 공동 용융물 채널을 제공하였다. 그 후에, 용융물을 다중-매니폴드 다이-립(lip) 시스템이 설치된 단순 편평 필름 압출 다이로 이송하였다. 이는 또 다른 독립적으로 작동하는 압출기를 사용하여 전달된 제3 용융물 스트림이 다이 본체로부터의 복합 용융물 스트림의 양쪽에서 도입되도록 한다. 그에 따라 중합체 용융 물질의 5종의 별개의 층을 포함하는, 최종 용융물 커튼이 주조되었고, 회전하는 냉각 금속 드럼에서의 온도에서 켄칭시켰다. 주조 필름은 ACBCA 구조를 가지며, 여기서 A는 PEN이고; B는 sPS이고; C는 애드머 SE810이었다. 냉각 금속 주조 드럼으로부터 수집한 후에, 필름을 재가열하고, 순방향 또는 기계 방향 (연신율 x3) 및 측방향 또는 횡방향 (연신율 x5.25)으로 연신시킴으로써 추가로 처리하였다. 필름 두께는

20 μm 에 이르렀고, 공정은 이축 배향 필름을 220℃의 온도에서 열경화시킴으로써 완료하였다.

[0183] 실시예 37 내지 39

3개의 압출 시스템의 상대 처리량을 조정함으로써 달성되는 층의 상대 두께를 달리하는 것을 제외하고는, 실시예 36에 기재된 바와 같이 필름을 제조하였다.

[0185] 실시예 40

필름을 순방향으로 x3의 연신율로, 또한 측방향으로 x2.9의 연신율로 연신시키는 것을 제외하고는, 실시예 36에 기재된 바와 같이 필름을 제조하였다.

[0187] 실시예 41

애드머 SE810을 바이넬 21E533으로 대체하고, 여기서 필름을 순방향으로 x3의 연신율로, 또한 측방향으로 x3.2의 연신율로 연신시키는 것을 제외하고는, 실시예 36에 기재된 바와 같이 필름을 제조하였다.

[0189] 실시예 42 내지 48

3개의 압출 시스템의 상대 처리량을 조정함으로써 달성되는 층의 상대 두께를 달리하고, 여기서 필름을 대략 x3 및 x5의 비율로 이축 배향시키는 것을 제외하고는, 실시예 41에 기재된 바와 같이 필름을 제조하였다.

[0191] 실시예 49

애드머 SE810을 바이넬 21E830으로 대체하고, 여기서 필름을 순방향으로 x3의 연신율로, 또한 측방향으로 x5.5의 연신율로 연신시키는 것을 제외하고는, 실시예 36에 기재된 바와 같이 필름을 제조하였다.

[0193] 실시예 50 내지 54

3개의 압출 시스템의 상대 처리량을 조정함으로써 달성되는 층의 상대 두께를 달리하고, 여기서 연신율이 또한 표 5에 따라 조정되는 것을 제외하고는, 실시예 49에 기재된 바와 같이 필름을 제조하였다.

표 5의 데이터는 실시예 28 내지 54의 공압출 필름을 특징화한다.

층간박리/박리 시험 동안에, 타이층과 sPS 층 사이의 경계에서 파손이 발생하고, 접착 (박리) 강도가 타이층의 관찰된 두께의 함수로서 달라짐이 관찰되었다. 그에 따라, 표 5의 데이터는 하기를 입증해준다:

(i) 예상밖으로 폴리에스테르 및 폴리올레핀에 대하여 접착력을 제공하는 데에 효과적인 것으로 확인된 (실시예 1 내지 27) 타이층 물질은 이축 배향되고 열에 의해 결정화된 그러한 물질의 층 사이에서도 마찬가지로 효과적인 접착력을 제공하고,

(ii) 이축 배향된 그러한 물질의 층 사이의 접착 강도가 타이층의 두께와 관련이 있다.

또한, 표 5를 검토하면 직선형 열 팽창계수 (CTE)의 필름 층의 %PEN 함량 및 제조 중의 필름의 연신율에 대한 의존성이 확인된다. 유사한 상관성이 다층 필름의 CHE 값과 그의 공정 이력 사이에서도 존재한다. 보다 높은 연신율 (라미네이트의 모듈러스를 증가시킬 것임)은 또한 동일한 방향으로의 그의 CHE를 개선하는 작용을 한다. 게다가, 라미네이트의 CHE는 보다 고수준의 sPS가 그의 조성물에 존재할 경우에도 마찬가지로 개선된다.

따라서, 본 발명은 온도 및 습도 또는 수분 함량이 변화하는 동안에도 치수 안정성 (CTE 및 CHE)을 나타냄과 동시에, 층간박리에 대한 기계적 무결성을 나타내는 다층 필름 구조체를 제공한다. 그러므로, 본 발명의 다층 필름은 자기 기록 매체용 베이스 필름; 데이터 저장용 자기 기록 매체; 가요성 전자기기 및 디스플레이 장치의 뒤판과 같은 적용; 및 치수 안정성의 까다로운 요건이 중요한 본원에 기재된 바와 같은 다른 적용에 적합하다.

표 5

Ex.	필름 구조	타이층 (C)	상대량 PEN:SPS:C			MD x TD	CTE, ppm/°C		CHE, ppm/%RH		영률 kg/mm ²		접착 강도 mN/25mm	타이층 두께 μm
			% PEN	% SPS	% C		MD	TD	MD	TD	MD	TD		
28	ACB	바이넬 21E533	45	9	45	3.0 x 4.0	27.9	13.7	11	6.8	199	265	충간바리테지 없음	20.6
29	ACB	에드머 SE810	35.8	60.1	2.5	3.0 x 5.5							1755.8	0.395
30	ACB	에드머 SE810	33.5	62	2.8	3.0 x 5.5							1102.5	0.295
31	ACB	에드머 SE810	29.7	65.2	5.1	3.0 x 5.5							>4000	0.8
32	ACB	에드머 SE810	37	60	3.1	3.0 x 5.5							1163.8	0.23
33	ACB	에드머 SE810	28.5	65	6.5	3.0 x 5.5							>4000	1.1
34	ACB	에드머 SE810	37.8	55.5	6.7	3.0 x 5.5							>4000	0.45
35	ACB	에드머 SE810	31.3	59.8	8.9	3.0 x 5.5							>4000	1.37
36	ACBCA	에드머 SE810	59	38	3	3.0 x 5.25	35	10	8.79	5.42	429	767	1020.8	0.16
37	ACBCA	에드머 SE810	54	43	3	3.0 x 5.25	34.7	10.1	7.99	4.9	439	721	980	0.16
38	ACBCA	에드머 SE810	57	42	1	3.0 x 5.25	36.6	7.8	8.53	4.98	436	786	661.5	0.08
39	ACBCA	에드머 SE810	51	43	6	3.0 x 5.25	41.6	6.92	7.97	4.81	514	746	1225	0.28
40	ACBCA	에드머 SE810	48	44	7	3.0 x 2.9	21.4	26	6.1	5.8	586	550	>4000	2.4
41	ACBCA	바이넬 21E533	30	53	16	3.0 x 3.2	42.8	23.7	5.1	3.6	289	381		
42	ACBCA	바이넬 21E533	41	39	20	5.0 x 3.0	17.9	39	3.9	5.9	442	276		
43	ACBCA	바이넬 21E533	30	53	16	5.0 x 3.0	24.5	53.3	2.2	4.5	415	299		
44	ACBCA	바이넬 21E533	26	55	19	5.0 x 3.0	26.1	57.5	1.9	2.7	350	240		

(계속)

Ex.	필름 구조	타이층 (C)	상대량			MD x TD	CTE, ppm/°C		CHE, ppm/%RH		영률 kg/mm ²		접착 강도 mN/25mm	타이층 두께 μm
			PEN:SPS:C				MD	TD	MD	TD	MD	TD		
			% PEN	% SPS	% C									
45	ACBCA	바이넬 21E533	47	43	10	3.0 x 5.5	41.2	7.75	7.46	4.3	376	711	1755.8	0.45
46	ACBCA	바이넬 21E533	59	33	8	3.0 x 5.5	37.4	7.83	8	4.4	404	713	857.5	0.45
47	ACBCA	바이넬 21E533	58	36	5	3.0 x 5.5	34.6	7.34	8.71	4.9	407	750	1584.3	0.24
48	ACBCA	바이넬 21E533	51	43	6	3.0 x 5.5	36.7	7.42	8.04	4	411	748	522.7	0.23
49	ACBCA	바이넬 21E830	42	48	10	3.0 x 5.5	40.4	8.4	6.24	3.5	393	670	1837.5	0.44
50	ACBCA	바이넬 21E830	55	42	3	3.0 x 3.6	40.8	12.5	9	5.4	421	650	2100	0.32
51	ACBCA	바이넬 21E830	55	42	3	3.0 x 4.1	41.4	8.9	8.9	3.7	409	704	1150	0.32
52	ACBCA	바이넬 21E830	39	52	9	3.0 x 5.5	41.9	11.2	5.9	3.5	395	669		
53	ACBCA	바이넬 21E830	58	36	7	3.0 x 5.5	33.9	8.5	9.2	6.1	466	717	>4000	1.25
54	ACBCA	바이넬 21E830	71	27	2	3.0 x 5.0	28.1	6.3	10.7	6.7	461	657		