

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6819082号
(P6819082)

(45) 発行日 令和3年1月27日 (2021.1.27)

(24) 登録日 令和3年1月6日 (2021.1.6)

(51) Int. Cl.	F I
C 0 8 J 5/18 (2006.01)	C 0 8 J 5/18 C F D
G 1 1 B 5/73 (2006.01)	G 1 1 B 5/73
B 3 2 B 27/36 (2006.01)	B 3 2 B 27/36

請求項の数 5 (全 28 頁)

(21) 出願番号	特願2016-115889 (P2016-115889)	(73) 特許権者	000003159
(22) 出願日	平成28年6月10日 (2016.6.10)		東レ株式会社
(65) 公開番号	特開2017-2303 (P2017-2303A)		東京都中央区日本橋室町2丁目1番1号
(43) 公開日	平成29年1月5日 (2017.1.5)	(72) 発明者	中森 ゆかり
審査請求日	令和1年6月6日 (2019.6.6)		滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株
(31) 優先権主張番号	特願2015-120198 (P2015-120198)		式会社滋賀事業場内
(32) 優先日	平成27年6月15日 (2015.6.15)	(72) 発明者	東大路 卓司
(33) 優先権主張国・地域又は機関	日本国 (JP)		滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株
			式会社滋賀事業場内
		(72) 発明者	堀江 将人
			岐阜県安八郡神戸町大字安次900番地の
			1 東レ株式会社岐阜工場内
		審査官	大▲わき▼ 弘子

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 二軸配向ポリエステルフィルムおよび磁気記録媒体

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

コロイダルシリカを含有する A 層と、2 種類以上の平均粒子径の異なる粒子 (L 、 M) を含有する B 層とを有し、粒子 (L) は平均粒子径が $0.3 \sim 0.5 \mu\text{m}$ でありかつ含有量が $0.005 \sim 0.25$ 質量% であり、粒子 (M) は平均粒子径が $0.15 \sim 0.3 \mu\text{m}$ でありかつ含有量が $0.1 \sim 0.3$ 質量% であり、粒子 (L) は粒子 (M) よりも平均粒子径が大きく、B 層の積層厚み (t) と、該層の積層部に含まれる粒子の平均粒子径 (d) とが $0.5 \leq t/d \leq 10$ の関係を有し、A 層の厚みが B 層の最大粒子径の 5 倍以上であり、B 層表面の三次元表面粗さ計により測定した粗さ曲線において、基準面から 10 nm 間隔にスライスレベルを設定したときの突起密度が以下の関係を満足し、かつ、反対側の表面において波長 $9.65 \mu\text{m}$ におけるスペクトル密度が $1,000 \sim 50,000 \text{ nm}^{-3}$ の範囲である二軸配向ポリエステルフィルム。

$$0.4 \leq (M60/M10) \times 100 \leq 5$$

(但し、M10 (個 / mm^2) : 高さ 10 nm のスライスレベルにおける突起密度、M60 (個 / mm^2) : 高さ 60 nm のスライスレベルにおける突起密度、である。)

【請求項 2】

B 層表面の三次元表面粗さ計により測定した粗さ曲線において、高さ 10 nm のスライスレベルにおける突起密度 (M10) が 0.5 万 ~ 3 万個 / mm^2 である、請求項 1 に記載の二軸配向ポリエステルフィルム。

【請求項 3】

B層表面の三次元表面粗さ計により測定した粗さ曲線において、高さ0 nmのスライスレベル（基準面）における突起密度（M0）が0.1万～1万個/mm²である、請求項1または2に記載の二軸配向ポリエステルフィルム。

【請求項4】

B層表面の三次元表面粗さ計により測定した粗さ曲線において、基準面から10 nm間隔にスライスレベルを設定したときの突起密度が以下の関係を満足する、請求項1～3のいずれかに記載の二軸配向ポリエステルフィルム。

M100 5

（但し、M100（個/mm²）：高さ100 nmのスライスレベルにおける突起密度、である）

10

【請求項5】

塗布型デジタル記録方式の磁気記録媒体用ベースフィルムに用いられる、請求項1～4のいずれかに記載の二軸配向ポリエステルフィルム。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、走行性やスリット性、寸法安定性および表面性に優れた二軸配向ポリエステルフィルムに関するものであり、高精細な表面性が必要な光学用や各種離型フィルム、次世代熱転写リボン用フィルム、データストレージなどの塗布型磁気記録媒体のベースフィルムに好適に用いることができる二軸配向ポリエステルフィルムに関するものである。

20

【背景技術】

【0002】

二軸配向ポリエステルフィルムはその優れた熱特性、寸法安定性、機械特性および表面形態の制御のし易さから各種用途に使用されており、特に磁気記録媒体などの支持体としての有用性がよく知られている。磁気記録媒体には常に高密度記録化が要求され、更なる高密度記録を達成するためには、磁性層の薄膜化や微粒子磁性体を使用し磁性層表面の平滑性をさらに向上させることは有効である。

【0003】

近年の強磁性六方晶フェライト粉末を用いてなる磁気記録媒体用支持体においては、磁性層や非磁性層、バックコート層、さらには支持体自体の薄膜化に伴い平滑面のみならず走行面の粗面化が制約されている。製造過程で磁気記録媒体としてロール状態で保存する場合、走行面に形成されている突起が磁性面に転写し、平滑な磁性層表面に窪みを形成させたり、支持体の薄膜化に伴い支持体に含有している大きな粒子が平滑面に突き上げられ磁性層表面になだらかな凸状のウネリを発生させ磁性層表面の平滑性が悪化し電磁変換特性が低下するといった問題がある。磁性層表面の平滑性を高めるために支持体に含有する粒子の小径化や低濃度化を図り、超高精細な表面として平滑性を向上させると、走行性や巻き取り、スリット性、さらには表面の耐久性が不十分となる。

30

【0004】

したがって、走行性や巻き取り性、さらにはスリット性等と表面の平滑性の両立といった特性の改善に対する要求は高密度記録化のためには常に発生する課題といえる。

40

【0005】

上記課題を解決するために、例えば、特許文献1では、磁性層およびバックコート層表面のうねりを制御した磁気記録媒体が提案されている。また、微細な粒子とコーティング層によりフィルム両表面のうねり制御により電磁変換特性と走行性の両立を試みたポリエステルフィルム（例えば特許文献2）も提案されている。しかしながら、強磁性六方晶フェライト粉末を用いてなる磁気記録媒体用支持体としては、磁性層や非磁性層、バックコート層がより薄膜化するため、波長5 μmの空間周波数密度の低減はもちろんのこと磁性層表面への転写痕の原因となる波長10 μmの空間周波数密度がより重要になっており、この点については走行面側の平滑性が依然として不十分である。さらに、磁気記録媒体の製造工程で薄膜のコート層の耐久性が乏しくフィルム表面の傷つき性やコート層の削れ

50

粉による工程内ロールの汚染も問題となっている。また、微細な粒子により、フィルム表面の粗さや突起高さと個数を制御し磁性層表面への転写を抑制したポリエステルフィルム（例えば特許文献3，4）が検討されている。しかしながら、バックコート層側のベースフィルム表面に形成された特定の高さや大きさの突起を規定しても磁性層やバックコート層が薄く高精細な表面を有する強磁性六方晶フェライト粉末を用いてなる磁気記録媒体用支持体に用いる場合には、依然として粗大突起の低減には至らず、転写による磁性面の平滑性の低下を解消できないのが実情である。また、磁性層を形成しない側の積層厚みが厚いため、表面突起による反対面（磁性層側）への突き上げにより磁性層側の平滑性の欠陥は依然として解消できない。さらには、含有粒子の小径化に伴い突起が低くなったことにより走行性に寄与する高さを有する突起が減少し走行性や巻き取り性、表面の耐摩耗性に問題が残る。また、ポリエステルフィルム表面に存在する波長100 μm のうねりを特定の範囲内に制御することで優れた巻き取り性と電磁変換特性を両立したポリエステルフィルム（例えば特許文献5）が提案されている。しかし、高精細な表面が要求される強磁性六方晶フェライト粉末を用いてなる磁気記録媒体用支持体に用いる場合には、このような波長100 μm のうねりのみならず、支持体中の粒子による突き上げやバックコート層表面の突起による磁性層表面への転写痕が原因となる波長10 μm 前後のうねりの低減が極めて重要となり、上記フィルムの磁性層表面の平滑性は未だ不十分であるのが現状である。

10

【先行技術文献】

【特許文献】

20

【0006】

【特許文献1】特開2007-294087号公報

【特許文献2】特開2001-341265号公報

【特許文献3】特開2012-153100号公報

【特許文献4】特開2012-153099号公報

【特許文献5】特開2004-299057号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

本発明者らは上記目的を解決するために鋭意検討を重ねた結果、磁性面への転写や突起の突き上げによる磁性層表面の平滑性の低下を抑制するために走行面の粗さや表面突起の高さと個数を制御し、粒子の小径化や低濃度化によって走行面の平滑性を極めても必ずしも磁性層表面の欠陥を低減できず、走行性を高いレベルで両立するには限界があると判断した。さらに検討を重ねた結果、高さ10nm以上の全突起数に対する高さ60nm以上の突起の割合と電磁変換特性の低下および巻き取り性との間に相関性が見られることを見出した。さらに、走行面の突起数制御に加えて平滑層に添加する微細粒子の粒径と含有量の調節が波長9.65 μm のうねり低減において必要であることを見出し本発明に到達した。

30

【0008】

本発明の目的は、上記の問題を解決した、走行性やスリット性、寸法安定性に優れた二軸配向ポリエステルフィルムであって、磁気記録媒体とした際に平滑な磁性層を有すると共に温度や湿度の環境変化や保存による寸法変化が小さく、ドロップアウトが少ない電磁変換特性に優れた高密度磁気記録媒体となる二軸配向ポリエステルフィルムを安定に提供することにある。

40

【課題を解決するための手段】

【0009】

上記課題を解決するための本発明は、次の各構成を特徴とするものである。

【0010】

（1）コロイダルシリカを含有するA層と、2種類以上の平均粒子径の異なる粒子（L、M）を含有するB層とを有し、粒子（L）は平均粒子径が0.3～0.5 μm でありか

50

つ含有量が $0.005 \sim 0.25$ 質量%であり、粒子 (M) は平均粒子径が $0.15 \sim 0.3 \mu\text{m}$ でありかつ含有量が $0.1 \sim 0.3$ 質量%であり、粒子 (L) は粒子 (M) よりも平均粒子径が大きく、B 層の積層厚み (t) と、該層の積層部に含まれる粒子の平均粒子径 (d) とが $0.5 \leq t/d \leq 10$ の関係を有し、A 層の厚みが B 層の最大粒子径の 5 倍以上であり、B 層表面の三次元表面粗さ計により測定した粗さ曲線において、基準面から 10 nm 間隔にスライスレベルを設定したときの突起密度が以下の関係を満足し、かつ、反対側の表面において波長 $9.65 \mu\text{m}$ におけるスペクトル密度が $1,000 \sim 50,000 \text{ nm}^{-3}$ の範囲である二軸配向ポリエステルフィルム。

【0011】

$0.4 \leq (M60/M10) \times 100 \leq 5$

10

(但し、M10 (個/mm²) : 高さ 10 nm のスライスレベルにおける突起密度、M60 (個/mm²) : 高さ 60 nm のスライスレベルにおける突起密度、である。)

(2) B 層表面の三次元表面粗さ計により測定した粗さ曲線において、高さ 10 nm のスライスレベルにおける突起密度 (M10) が $0.5 \text{ 万} \sim 3 \text{ 万個/mm}^2$ である、上記 (1) に記載の二軸配向ポリエステルフィルム。

【0012】

(3) B 層表面の三次元表面粗さ計により測定した粗さ曲線において、高さ 0 nm のスライスレベル (基準面) における突起密度 (M0) が $0.1 \text{ 万} \sim 1 \text{ 万個/mm}^2$ である、上記 (1) または (2) に記載の二軸配向ポリエステルフィルム。

【0013】

20

(4) B 層表面の三次元表面粗さ計により測定した粗さ曲線において、基準面から 10 nm 間隔にスライスレベルを設定したときの突起密度が以下の関係を満足する、上記 (1) ~ (3) のいずれかに記載の二軸配向ポリエステルフィルム。

【0014】

$M100 \leq 5$

(但し、M100 (個/mm²) : 高さ 100 nm のスライスレベルにおける突起密度、である。)

【0015】

(5) 塗布型デジタル記録方式の磁気記録媒体用ベースフィルムに用いられる、上記 (1) ~ (4) のいずれかに記載の二軸配向ポリエステルフィルム。

30

【発明の効果】

【0016】

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、走行性やスリット性、寸法安定性に優れた二軸配向ポリエステルフィルムであって、磁気記録媒体とした際に平滑な磁性層を有すると共に温度や湿度の環境変化や保存による寸法変化が小さい、ドロップアウトが少なく電磁変換特性に優れた高密度磁気記録媒体となる二軸配向ポリエステルフィルムを得ることができるほか、光学用や各種離型フィルムとして好適に用いることができる。

【発明を実施するための形態】

【0017】

本発明において用いるポリエステルとしては、例えば、芳香族ジカルボン酸、脂環族ジカルボン酸または脂肪族ジカルボン酸などの酸成分やジオール成分を構成単位 (重合単位) とするポリマーで構成されたものを用いることができる。

40

【0018】

芳香族ジカルボン酸成分としては、例えば、テレフタル酸、イソフタル酸、フタル酸、1,4-ナフタレンジカルボン酸、1,5-ナフタレンジカルボン酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、4,4'-ジフェニルジカルボン酸、4,4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸、4,4'-ジフェニルスルホンジカルボン酸等を用いることができ、なかでも好ましくは、テレフタル酸、フタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸を用いることができる。脂環族ジカルボン酸成分としては、例えば、シクロヘキサンジカルボン酸等を用いることができる。脂肪族ジカルボン酸成分としては、例えば、アジピン酸、スベリン

50

酸、セバシン酸、ドデカンジオン酸等を用いることができる。これらの酸成分は一種のみを用いてもよく、二種以上を併用してもよい。

【0019】

ジオール成分としては、例えば、エチレングリコール、1,2-プロパングリコール、1,3-プロパングリコール、ネオペンチルグリコール、1,3-ブタングリコール、1,4-ブタングリコール、1,5-ペンタングリコール、1,6-ヘキサングリコール、1,2-シクロヘキサンジメタノール、1,3-シクロヘキサンジメタノール、1,4-シクロヘキサンジメタノール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ポリアルキレングリコール、2,2'-ビス(4'-ヒドロキシエトキシフェニル)プロパン等を用いることができ、なかでも、エチレングリコール、1,4-ブタングリコール、1,4-シクロヘキサンジメタノール、ジエチレングリコール等を好ましく用いることができ、特に好ましくは、エチレングリコール等を用いることができる。これらのジオール成分は一種のみを用いてもよく、二種以上を併用してもよい。

10

【0020】

ポリエステルには、ラウリルアルコール、イソシアン酸フェニル等の単官能化合物が共重合されていてもよいし、トリメリット酸、ピロメリット酸、グリセロール、ペンタエリスリトール、2,4-ジオキシアニソ酸、等の3官能化合物などが、過度に分枝や架橋をせずポリマーが実質的に線状である範囲内で共重合されていてもよい。さらに酸成分、ジオール成分以外に、p-ヒドロキシアニソ酸、m-ヒドロキシアニソ酸、2,6-ヒドロキシナフトエ酸などの芳香族ヒドロキシカルボン酸およびp-アミノフェノール、p-アミノ安息香酸などを本発明の効果が損なわれない程度の少量であればさらに共重合せしめることができる。

20

【0021】

ポリマーの共重合割合はNMR法(核磁気共鳴法)や顕微FT-IR法(フーリエ変換顕微赤外分光法)を用いて調べることができる。

【0022】

ポリエステルは、二軸延伸を施せること、および、寸法安定性などの本発明の効果を発現するために、ガラス転移温度が150未満のものを好適に使用できる。本発明において用いるポリエステルとしては、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート(ポリエチレン-2,6-ナフタレート)が好ましく、また、これらの共重合体や変性体でもよく、他の熱可塑性樹脂とのポリマーアロイでもよい。ここでいうポリマーアロイとは高分子多成分系のことであり、共重合によるブロックコポリマーであってもよいし、混合などによるポリマーブレンドでもよい。本発明で用いるポリエステルとしては特に、結晶子サイズや結晶配向度を高めるプロセスが適用しやすいことから主成分がポリエチレンテレフタレートであることがより好ましい。ここで、主成分とはフィルム組成中80質量%以上であることをいう。

30

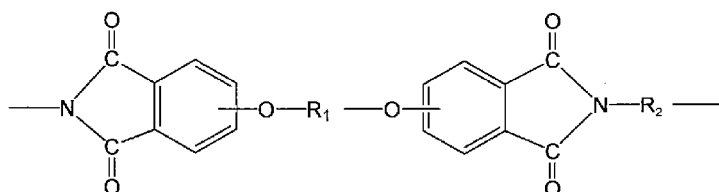
【0023】

本発明で用いるポリエチレンテレフタレートをポリマーアロイとする場合、他の熱可塑性樹脂は、ポリエステルと相溶するポリマーが好ましく、ポリエーテルイミド樹脂などがより好ましい。ポリエーテルイミド樹脂としては、例えば以下で示すものを用いることができる。

40

【0024】

【化1】



【0025】

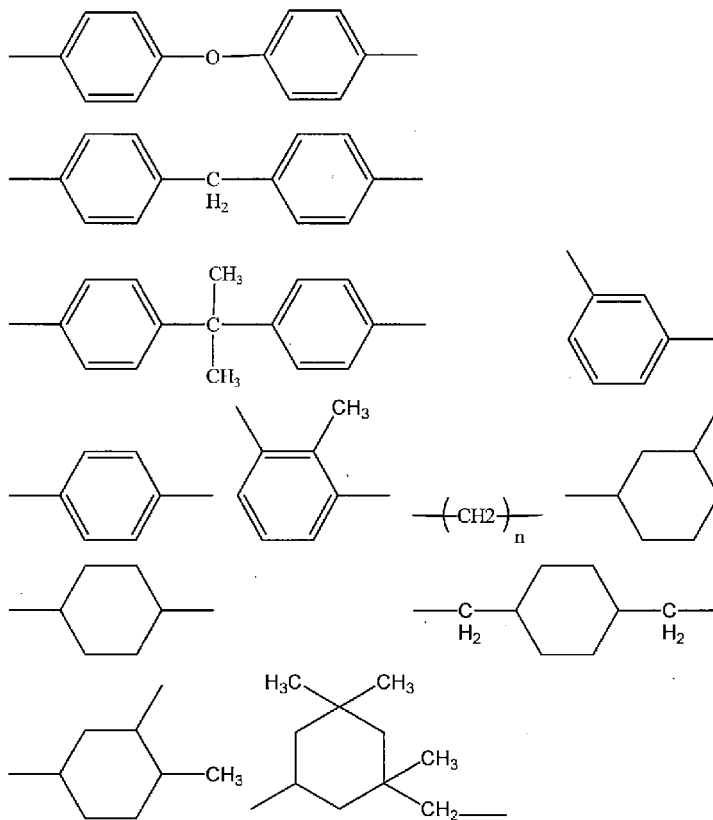
50

(ただし、上記式中 R_1 は、6 ~ 30 個の炭素原子を有する 2 価の芳香族または脂肪族残基、 R_2 は 6 ~ 30 個の炭素原子を有する 2 価の芳香族残基、2 ~ 20 個の炭素原子を有するアルキレン基、2 ~ 20 個の炭素原子を有するシクロアルキレン基、および 2 ~ 8 個の炭素原子を有するアルキレン基で連鎖停止されたポリジオルガノシロキサン基からなる群より選択された 2 価の有機基である。)

上記 R_1 、 R_2 としては、例えば、下記式群に示される芳香族残基を挙げることができる。

【0026】

【化2】



10

20

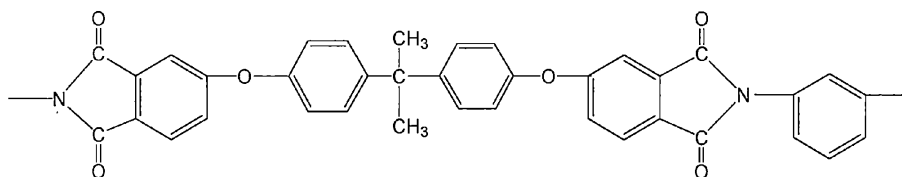
30

【0027】

本発明では、ポリエステルとの親和性、コスト、熔融成形性等の観点から、2,2-ビス[4-(2,3-ジカルボキシフェノキシ)フェニル]プロパン二無水物と m-フェニレンジアミン、または p-フェニレンジアミンとの縮合物である、下記式で示される繰り返し単位を有するポリマーが好ましい。

【0028】

【化3】



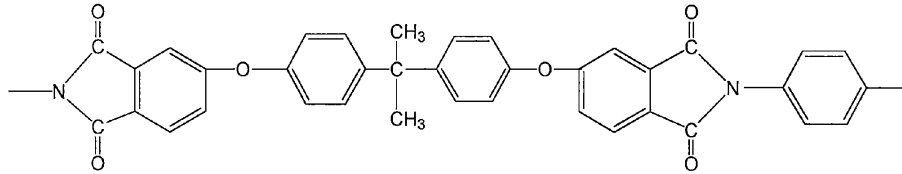
40

【0029】

または

【0030】

【化 4】



【 0 0 3 1】

(n は 2 以上の整数、好ましくは 2 0 ～ 5 0 の整数である。)

このポリエーテルイミドは、“ウルテム”の商品名で、SABICイノベティブプラスチック社より入手可能であり、「U l t e m (登録商標) 1 0 0 0」、「U l t e m (登録商標) 1 0 1 0」、「U l t e m (登録商標) 1 0 4 0」、「U l t e m (登録商標) 5 0 0 0」、「U l t e m (登録商標) 6 0 0 0」および「U l t e m (登録商標) X H 6 0 5 0」シリーズや「E x t e m (登録商標) X H」および「E x t e m (登録商標) U H」の登録商標名等で知られているものである。

10

【 0 0 3 2】

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、平均粒径が 0 . 0 5 0 ～ 0 . 5 0 μm の不活性粒子を含有する層 (B 層) を少なくとも 1 層有する 2 層以上の積層構成を有することが好ましい。この場合、B 層は走行性を担う層として機能し、フィルム的一方の最外層として設けられる。もう一方の最外層には、平均粒径が 0 . 0 5 ～ 0 . 1 0 μm の不活性粒子を含有した平滑性を担う層 (A 層) が設けられた少なくとも 2 層以上の積層構成が本発明の効果を得るためには好ましい。

20

【 0 0 3 3】

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、いずれか片面の三次元表面粗さ計により測定した粗さ曲線において、基準面から 1 0 n m 間隔にスライスレベルを設定したときの突起密度について、高さ 6 0 n m のスライスレベルにおける突起密度 (M 6 0 (個 / mm^2)) と高さ 1 0 n m のスライスレベルにおける突起密度 (M 1 0 (個 / mm^2)) の関係が 0 . 4 (M 6 0 / M 1 0) \times 1 0 0 ～ 5 である。好ましくは (M 6 0 / M 1 0) \times 1 0 0 の値は 0 . 4 ～ 3 ある。下限値は小さければ小さい方が転写の抑制につながり好ましいが、小さくなりすぎると走行性が低下するためスリット性が低下する。上限値が 5 を超えると全突起に対する高さ 6 0 n m 以上の突起割合が高くなり、転写が発生しやすく、磁性層表面の欠陥抑制が不十分となり後述する P S D を範囲内とすることが困難となる。突起密度比 (M 6 0 / M 1 0) \times 1 0 0 の値を本発明の範囲内とすることによって、走行性やスリット性と磁性層表面の欠陥抑止の両立が高いレベルで可能となる。接触

30

本願において、上記の (M 6 0 / M 1 0) \times 1 0 0 の値を満足する層は B 層表面であることが好ましい形態である。

【 0 0 3 4】

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、上記突起密度を満足する面とは反対側の表面の波長 9 . 6 5 μm におけるスペクトル密度が 1 , 0 0 0 ～ 5 0 , 0 0 0 nm^3 を満足している。スペクトル密度は、好ましくは 2 , 0 0 0 ～ 4 0 , 0 0 0 nm^3 であり、さらに好ましくは 3 , 0 0 0 ～ 3 5 , 0 0 0 nm^3 の範囲である。スペクトル密度 (P o w e r S p e c t r a l D e n s i t y 以下 P S D と言う) とは、表面粗さのプロファイルデータをフーリエ変換処理し周波数分析を行い、各波長での強度を算出するものである。本願では原子間力顕微鏡 (A F M) を用いて、測定視野 1 2 5 μm \times 1 2 5 μm で P S D 計測を行い、波長 9 . 6 5 μm にあたる強度を求めた。本願においては、上記、P S D を満足する表面が A 層であることが磁性層表面の欠陥抑止の上で好ましく、P S D が本願の範囲内であると走行性と電磁変換特性が高いレベルで両立でき好ましい。

40

【 0 0 3 5】

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、突起密度が 0 . 4 (M 6 0 / M 1 0) \times 1 0 0 ～ 5 の関係を満足する表面の三次元表面粗さ計により測定した粗さ曲線において、基準面か

50

ら高さ10nmのスライスレベルにおける突起密度(M10)が0.5万~3万個/mm²であることが好ましい。より好ましくは、0.6万~2.5万個/mm²である。突起密度(M10)が0.5万個/mm²未満であると走行性が不十分となりスリット性が低下したり、B面突起の応力分散ができなくなり転写が発生しやすくなる場合がある。上限の3万個/mm²を超えると突起間距離が狭まることになり突起が密集し粗大突起を形成しやすくなるためフィルムロールとして巻き取ったときに平滑面への転写が増加することがある。また、上記で規定した突起密度の比(M60/M10)×100の値を得ることが困難となるため、反対側表面のPSDを本発明の範囲に制御できない場合がある。M10を特定の範囲内に制御することで粗さ曲線の基準面が上昇し突起の高さが見かけ上低くなるため、平滑面への転写が軽減される効果と、フィルムロールの巻き締めによる応力を高い突起に集中させずに分散させる効果の相乗効果で平滑面への転写が軽減され则认为る。

10

【0036】

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、突起密度が0.4 (M60/M10)×1005の関係を満足する表面の三次元表面粗さ計により測定した粗さ曲線において、高さ0nmのスライスレベル(基準面)における突起密度(M0)は0.1万~1万個/mm²であることが好ましい。より好ましくは0.2~0.9万個/mm²である。突起密度(M0)が0.1万個/mm²未満であると突起密度(M10)が低くなり走行性やスリット性が低下する場合がある。また、反対側表面のPSDを本発明の範囲内に制御することが困難になる場合がある。突起密度(M0)が1万個/mm²を超えると突起が密集し過ぎ、粗大突起を形成しやすくなるため、上記で規定した突起密度比(M60/M10)×100の値を得ることが困難となる場合がある。

20

【0037】

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、突起密度が0.4 (M60/M10)×1005の関係を満足する表面の三次元表面粗さ計により測定した粗さ曲線において、基準面から10nm間隔にスライスレベルを設定したときの突起密度について、高さ100nmのスライスレベルにおける突起密度(M100(個/mm²))は5以下であることが好ましい。突起密度(M100)がこの範囲外であると磁気記録媒体としたとき、磁性面への転写が発生し、磁性層表面の欠陥を招くため電磁変換特性が低下しやすい。上記で規定した突起密度比(M60/M10)×100および突起密度(M100)の各特性(値)を有する特徴面がB層表面であると走行性やスリット性の向上と磁性層表面の平滑性欠陥抑制効果が十分に発揮されるので好ましい。

30

【0038】

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、突起密度(M60(個/mm²))と高さ10nmのスライスレベルにおける突起密度(M10(個/mm²))の関係が0.4 (M60/M10)×1005を満足する表面を有する層(積層部)において、該層の積層厚み(t)と該層の積層部の平均粒子径(d)の比(t/d)が0.5~10である。好ましくは1~5である。(t/d)が本発明の範囲外であると突起密度比(M60/M10)×100を上記の範囲内に設定することが困難となる場合がある。

【0039】

上記した突起密度(M60、M100)の制御方法としては、(たとえばB層に適用する場合)B層における含有粒子の粒子径、添加量、積層厚みで制御が可能である。特にB層に含有する粒子の粒子径が0.5μmを超えないことは重要であり、含有できる最大の粒子(L)の粒子径としては、0.3~0.5μmであり、該粒子の含有量は0.005~0.25質量%で含有することが好ましく、粒子(L)の粒子径が0.4μmを超える場合の含有量は0.005~0.02質量%とすることが好ましい。また、積層厚み(t)と該層に含有される最大粒子径(D)の比(t/D)を1~3に設定することが好ましい。

40

【0040】

上記した突起密度(M10、M0)の制御方法としては、B層に含有する粒子の粒径や含有量、積層厚みを制御することで達成できる。詳しくは、粒子径が0.05~0.5μmの粒子を0.1~0.5質量%含有し、積層厚み(t)と該層に含有される平均粒子径(

50

d) の比 (t/d) を $0.5 \sim 10$ 、好ましくは $1 \sim 5$ に設定することで制御が可能である。特に、粒子径が $0.05 \sim 0.1 \mu\text{m}$ の粒子 (S) を $0.15 \sim 0.3$ 質量% 添加することに加えて粒子径が $0.15 \sim 0.3 \mu\text{m}$ の粒子 (M) を $0.1 \sim 0.3$ 質量% で含有させると表面粗さ Ra や本発明の突起密度 (M60) を増加させずに効率よく所望の突起密度 (M10) を得ることができる。その結果、製造工程における工程内ロールや巻き取り時のフィルムとの接触面積が低下し走行性が向上する。さらに、M10 を特定の範囲内に制御することは、B 層表面の地肌部分に微細な凹凸が形成されるので B 層の表面積が増加するためフィルムロールに巻き取る際に噛み込んだ空気の抜け道を確保しやすくなると考えられ、巻ズレが生じにくくなり、スリット性が向上する。

【0041】

10

上記した密度比 ($M60/M10$) $\times 100$ の値の制御方法としては、B 層中に少なくとも 2 種類以上の粒子径の異なる粒子 (L および M、S) を併用することが好ましく、粒子 (L) と粒子 (M) の含有量と t/d の調節で制御が可能である。粒子 (L) は粒子径が $0.3 \sim 0.5 \mu\text{m}$ であり、粒子 (M) の粒子径は $0.15 \sim 0.3 \mu\text{m}$ である。この時、粒子 (L) は粒子 (M) よりも粒子径が大きい粒子である。さらに、粒子径が $0.05 \sim 0.1 \mu\text{m}$ の粒子 (S) を $0.15 \sim 0.3$ 質量% 添加することによって、本発明の突起密度 (M60) を増加させずに突起密度 (M10) が効率よく増加することができるため好ましい。

【0042】

20

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムの B 層に好ましく含有される粒子としては特に限定されないが、無機粒子、有機粒子、いずれも用いることができる。2 種類以上の粒子を併用することが本発明の特徴面を得るためには好ましい。具体的な種類としては、例えば、クレー、マイカ、酸化チタン、炭酸カルシウム、湿式シリカ、乾式シリカ、コロイダルシリカ、リン酸カルシウム、硫酸バリウム、アルミナ珪酸塩、カオリン、タルク、モンモリロナイト、アルミナ、ジルコニア等の無機粒子、アクリル酸類、スチレン系樹脂、シリコーン、イミド等を構成成分とする有機粒子、コアシェル型有機粒子などが例示できるが、本発明の突起密度と PSD を制御するには、単一分散する球形の粒子である有機粒子やコロイダルシリカが特に好ましい。

【0043】

30

また、本発明の二軸配向ポリエステルフィルムの A 層に好ましく含有される粒子としては、単一分散する球形の粒子が好ましい。

【0044】

上記の粒子を含有する B 層表面の中心線表面粗さ Ra は $3 \sim 15 \text{ nm}$ であることが好ましく、10 点平均粗さ Rz は $60 \sim 200 \text{ nm}$ 、好ましくは $70 \sim 180 \text{ nm}$ であり、さらに好ましくは $80 \sim 160 \text{ nm}$ である。より好ましくは Ra が $5 \sim 12 \text{ nm}$ 、Rz が $70 \sim 150 \text{ nm}$ である。表面粗さ Ra および Rz が下限値未満であると走行性やスリット性が不良となりやすく、Ra および Rz が上限値を超えると該表面にバックコート層を設け磁気記録媒体とした場合に転写痕による電磁変換特性が低下しやすい。

【0045】

40

本発明の PSD の制御方法としては、A、B 各層に含有する粒子の粒子径および含有量、さらには A 層の積層厚みによって制御することができる。A 層に含有する粒子として粒子径が $0.05 \sim 0.15 \mu\text{m}$ の粒子を $0.02 \sim 0.15$ 質量% とし、かつ、A 層の厚みが B 層の最大粒子径の 5 倍以上、好ましくは $7 \sim 15$ 倍にすることが好ましい。さらに、B 層に含有する粒子 (L) の粒子径を $0.3 \sim 0.5 \mu\text{m}$ 、好ましくは $0.3 \sim 0.4 \mu\text{m}$ に調節すると共に、B 層の厚み (t) と該層中の粒子の平均粒子径 (d) との比 (t/d) を $0.5 \sim 10$ とすることも有効である。A 層の粒子含有量が 0.02 質量% 未満であると走行性が悪化するため好ましくない。また、上限値の 0.15 質量% を超えて含有すると所望の PSD を得ることが出来なくなる。A 層の積層厚みについては、上記本願の範囲外であると、B 層に含有されている粒子 (L) が A 層表面にうねりを形成する場合があります。A 層の PSD を本願の範囲内に納めることが困難となる場合がある。

50

【0046】

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、幅方向の湿度膨張係数が $0 \sim 8 \text{ ppm} / \% \text{ RH}$ であることが好ましい。湿度膨張係数が $8 \text{ ppm} / \% \text{ RH}$ 以下であると、磁気記録媒体用に用いた場合、湿度変化による変形が大きくなり、寸法安定性が低下しにくくなる。より好ましい上限は $6.5 \text{ ppm} / \% \text{ RH}$ であり、さらに好ましくは $6 \text{ ppm} / \% \text{ RH}$ である。湿度膨張係数は分子鎖の緊張度合いが影響する物性であり、後述するようにTD延伸1とTD延伸2の倍率比によって制御することができ、また、TD延伸トータルの倍率やMD延伸倍率との比によっても制御が可能である。TD延伸1とTD延伸2の倍率比が $(\text{TD}1 / \text{TD}2)$ が大きいほど湿度膨張係数は小さくなる。また、TD延伸トータルの倍率が高いほど湿度膨張係数は小さくなる。

10

【0047】

なお、本発明において、MDとは二軸配向ポリエステルフィルムの長手方向（縦方向）を示し、TDとは二軸配向ポリエステルフィルムの幅方向（横方向）を示す。

【0048】

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、幅方向のヤング率が 7 GPa 以上であることが好ましく、 $7 \sim 10 \text{ GPa}$ であることが幅方向の湿度膨張係数の制御の観点からより好ましい。幅方向のヤング率が上記範囲内であると、磁気記録媒体用に用いた場合に磁気記録媒体の記録再生時の環境変化による寸法安定性が良好となる傾向にある。幅方向のヤング率は後述するTD延伸1、2の温度や倍率によって制御することができる。特にトータルのTD倍率が影響し、トータルのTD倍率が高いほどTDヤング率が高くなる。

20

【0049】

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、長手方向のヤング率が $3.5 \sim 8 \text{ GPa}$ であることが好ましい。長手方向のヤング率が上記範囲内であると、磁気記録媒体用に用いた場合に磁気記録媒体の保管時の張力による保存安定性がより良好となる。長手方向のヤング率のさらに好ましい範囲は $3.8 \sim 7.5 \text{ GPa}$ 、さらにより好ましい範囲は $4 \sim 7 \text{ GPa}$ である。長手方向のヤング率はMD延伸倍率で制御することができる。MD倍率が高いほどMDヤング率が高くなる。

【0050】

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムを磁気記録媒体用ベースフィルムとして用いる場合は、上記のB面側にバックコート層（以下BC層という）を設けることが高密度磁気記録媒体を得る上で好ましく、特に、磁性層に強磁性六方晶フェライト粉末を用いてなる磁気記録媒体は、磁性層および非磁性層やBC層自体の厚みも薄いために、BC層の表面に支持体（B層）の表面突起の影響が出にくくなり平滑なBC面が得られる。よって、磁性面に転写痕を形成することなく超平坦な磁性表面を得ることが可能となるため優れた電磁変換特性を発揮できる。

30

【0051】

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムの厚みは $3.5 \sim 4.5 \mu\text{m}$ の範囲が好ましい。厚みが $3.5 \mu\text{m}$ より小さくなると、剛性や寸法安定性が低下しテープの腰が不十分となり磁気記録媒体としたときに電磁変換特性が低下する傾向がある。また、B層表面突起による平滑面（A面）側への突き上げを抑制しにくくなる。また、 $4.5 \mu\text{m}$ より大きいとテープ1巻あたりのテープ長さが短くなるため、磁気テープの小型化、高容量に対応し難い。厚みの調整方法としては、二軸配向ポリエステルフィルムの製膜の際のポリマーの溶融押出時におけるスクリュウの吐出量を調整し、口金から未延伸フィルムの厚みを制御することによって二軸延伸後のフィルム厚みを調節することが可能となる。

40

【0052】

上記したような本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、たとえば次のように製造される。

【0053】

まず、ポリエステルのペレットを、押出機を用いて溶融し、口金から吐出した後、冷却固化してシート状に成形する。このとき、繊維焼結ステンレス金属フィルターによりポリ

50

マーを濾過することが、ポリマー中の未溶融物を除去するために好ましい。

【 0 0 5 4 】

本発明の特徴面を阻害しない範囲内であれば、各種添加剤、例えば、相溶化剤、可塑剤、耐候剤、酸化防止剤、熱安定剤、滑剤、帯電防止剤、増白剤、着色剤、導電剤、結晶核剤、紫外線吸収剤、難燃剤、難燃助剤、顔料、染料、などが添加されてもよい。

【 0 0 5 5 】

続いて、上記シートを長手方向と幅方向の二軸に延伸した後、熱処理する。上記の突起密度比 ($M10 / M0$)、幅方向の寸法安定性を向上させるために延伸工程は、縦方向の多段延伸および幅方向において2段階以上に分けることが好ましい。すなわち、縦多段延伸によって突起密度 ($M0$) が制御され、かつ、再横延伸により高寸法安定性の磁気テープ

10

【 0 0 5 6 】

延伸形式としては、長手方向に延伸した後に幅方向に2段階で延伸を行うなどの逐次二軸延伸法や同時二軸延伸した後にさらに幅方向に延伸する延伸方法が好ましい。

【 0 0 5 7 】

以下、本発明のフィルムの製造方法について、ポリエチレンテレフタレート (PET) をポリエステルとして用いた例を代表例として説明する。なお本願はPETフィルムに限定されるものではなく、他のポリマーを用いたものものでもよい。例えば、ガラス転移温度や融点の高いポリエチレン - 2, 6 - ナフタレンジカルボキシレートなどを用いてポリエステルフィルムを構成する場合は、以下に示す温度よりも高温で押出や延伸を行えばよい。

20

【 0 0 5 8 】

まず、PETのペレットを製造する。PETは、次のいずれかのプロセスで製造される。すなわち、(1) テレフタル酸とエチレングリコールを原料とし、直接エステル化反応によって低分子量のPETまたはオリゴマーを得、さらにその後の三酸化アンチモンやチタン化合物を触媒に用いた重縮合反応によってポリマーを得るプロセス、(2) ジメチルテレフタレートとエチレングリコールを原料とし、エステル交換反応によって低分子量体を得、さらにその後の三酸化アンチモンやチタン化合物を触媒に用いた重縮合反応によってポリマーを得るプロセスである。

【 0 0 5 9 】

30

フィルムを構成するPETに粒子を含有させるには、エチレングリコールに粒子を所定割合にてスラリーの形で分散させ、このエチレングリコールを重合時に添加する方法が好ましい。粒子を添加する際には、例えば、粒子の合成時に得られる水ゾルやアルコールゾル状態の粒子を一旦乾燥させることなく添加すると粒子の分散性がよい。また、粒子の水スラリーを直接PETペレットと混合し、ベント式二軸混練押出機を用いて、PETに練り込む方法も有効である。粒子の含有量を調節する方法としては、上記方法で高濃度の粒子のマスターペレットを作っておき、それを製膜時に粒子を実質的に含有しないPETで希釈して粒子の含有量を調節する方法が有効である。この際、粒子を含有しないPETの固有粘度を粒子含有ペレットの固有粘度よりも高く調整しておくことは上記した突起密度比 ($M60 / M10$) $\times 100$ の値やM100を制御する上で有効である。

40

【 0 0 6 0 】

次に、得られたPETのペレットを、180 で3時間以上減圧乾燥した後、固有粘度が低下しないように窒素気流下あるいは減圧下で、270 ~ 320 に加熱された押出機に供給し、スリット状のダイから押し出し、キャストイングロール上で冷却して未延伸フィルムを得る。この際、異物や変質ポリマーを除去するために各種のフィルター、例えば、焼結金属、多孔性セラミック、サンド、金網などの素材からなるフィルターを用いることが好ましい。また、定量供給性を向上させ、所望のt/dを得るためにギアポンプを設けることは上記した特徴面を形成する上で極めて好ましい。フィルムを積層するには、2台以上の押出機およびマニホールドまたは合流ブロックを用いて、複数の異なるポリマーを溶融積層するとよい。

50

【0061】

次に、このようにして得られた未延伸フィルムを、数本のロールの配置された縦延伸機を用いて、ロールの周速差を利用して縦方向に延伸し（MD延伸）、続いてステンターにより横延伸を二段階行う（TD延伸1、TD延伸2）二軸延伸方法について説明する。

【0062】

まず、未延伸フィルムをMD延伸する。MD延伸の延伸温度は、用いるポリマーの種類によって異なるが、未延伸フィルムのガラス転移温度（ T_g ）を目安として決めることができる。 $T_g - 10 \sim T_g + 15$ の範囲であることが好ましく、より好ましくは $T_g \sim T_g + 10$ である。上記範囲より延伸温度が低い場合には、フィルム破れが多発して生産性が低下し、MD延伸後の二段階TD延伸で安定して延伸することが困難となること
10

【0063】

次に、ステンターを用いて、TD延伸を行う。上記の突起密度（M0、M10）を有するフィルムを効率よく形成させるためには、温度の異なるゾーンで二段階にTD方向に延伸することが好ましい。まず、一段目の延伸（TD延伸1）の延伸倍率は、好ましくは $3.2 \sim 6.0$ 倍であり、より好ましくは $3.3 \sim 5.8$ 倍である。また、TD延伸1の延伸温度は好ましくは（MD延伸後のフィルムの冷結晶化温度（以下 T_{cc} ・BFという） - 5 ）
20 $\sim (T_{cc} \cdot BF + 5)$ の範囲であり、さらに好ましくは $(T_{cc} \cdot BF - 3) \sim (T_{cc} \cdot BF + 5)$ の範囲で行う。

【0064】

次にステンター内で二段目の延伸（TD延伸2）を行う。TD延伸2の延伸倍率は好ましくは $1.2 \sim 2$ 倍であり、より好ましくは $1.3 \sim 1.8$ 倍、さらに好ましくは $1.3 \sim 1.6$ 倍である。TD延伸倍率比（TD延伸1）/（TD延伸2）を $2 \sim 3$ の範囲に設定することは上記の突起径や密度比を上記範囲内に設定する有効な手段である。TD延伸2の延伸温度は好ましくは（TD延伸1温度 + 50 ） \sim （TD延伸1温度 + 100 ）の範囲であり、さらに好ましくは（TD延伸1温度 + 60 ） \sim （TD延伸1温度 + 90 ）の範囲で行う。前工程の延伸温度よりも十分高めることにより、上記の突起密度（M0、
30 M10）を特定の範囲内に制御することが可能となるため好ましい。

【0065】

続いて、この延伸フィルムを緊張下または幅方向に弛緩しながら熱固定処理する。熱固定処理条件として、熱固定温度は、 $180 \sim 220$ が好ましい。熱固定温度の上限は、より好ましくは 215 、さらに好ましくは 210 である。熱固定温度の下限は、より好ましくは 185 、さらに好ましくは 190 である。熱固定処理時間は $0.5 \sim 10$ 秒の範囲、弛緩率は $0.3 \sim 2\%$ で行うのが好ましい。熱固定処理後は把持しているクリップを開放することでフィルムにかかる張力を低減させながら室温へ急冷する。その後、フィルムエッジを除去しロールに巻き取り、本発明の二軸配向ポリエステルフィルムを得ることができる。また、TD延伸2の延伸温度と熱固定温度に差があり、熱固定温度が上述の範囲よりも高いとフィルムが緩和しやすく上記した湿度膨張係数を得ることが困難となり寸法安定性が低下しやすい。熱固定温度が低すぎると結晶性が低くなりやすく、磁気記録媒体の製造工程においてベースフィルムのへ平面性が低下し電磁変換特性が悪化する傾向がある。

【0066】

次に、磁気記録媒体は例えば次のように製造される。

【0067】

上記のようにして得られた磁気記録媒体用支持体（二軸配向ポリエステルフィルム）を、たとえば $0.1 \sim 3$ m幅にスリットし、速度 $20 \sim 300$ m/min、張力 $50 \sim 300$ N/mで搬送しながら、一方の面に非磁性塗料をエクストルージョンコーターにより厚
50

み $0.5 \sim 1.5 \mu\text{m}$ 塗布し乾燥後、さらに磁性塗料を厚み $0.1 \sim 0.3 \mu\text{m}$ で塗布する。その後、磁性塗料および非磁性塗料が塗布された支持体を磁気配向させ、温度 $80 \sim 130$ で乾燥させる。次いで、反対側の面にバックコート厚み $0.3 \sim 0.8 \mu\text{m}$ で塗布し、カレンダー処理した後、巻き取る。なお、カレンダー処理は、小型テストカレンダー装置（金属ロール、7段）を用い、温度 $70 \sim 120$ 、線圧 $0.5 \sim 5 \text{ kN/cm}$ で行う。その後、 $60 \sim 80$ にて $24 \sim 72$ 時間エージング処理し、 12.65 mm 幅にスリットし、パンケーキを作製する。次いで、このパンケーキから特定の長さ分をカセットに組み込んで、カセットテープ型磁気記録媒体とする。

【0068】

ここで、磁性塗料などの組成は例えば以下のような組成が挙げられる。

10

【0069】

以下、単に「部」と記載されている場合は、「質量部」を意味する。

【0070】

[磁性層形成塗液]

バリウムフェライト磁性粉末 100部

[板径： 20.5 nm 、板厚： 7.6 nm 、板状比： 2.7 、 H_c ： 191 kA/m (2400 Oe) 飽和磁化： $44 \text{ Am}^2/\text{kg}$ 、BET比表面積： $60 \text{ m}^2/\text{g}$]

ポリウレタン樹脂 12部

質量平均分子量 10,000

スルホン酸官能基 0.5 meq/g

20

- アルミナ HIT60 (住友化学社製) 8部

カーボンブラック #55 (旭カーボン社製) 粒子サイズ $0.015 \mu\text{m}$ 0.5部

ステアリン酸 0.5部

ブチルステアレート 2部

メチルエチルケトン 180部

シクロヘキサノン 100部

[非磁性層形成用塗布液]

非磁性粉体 酸化鉄 100部

平均長軸長 $0.09 \mu\text{m}$ 、BET法による比表面積 $50 \text{ m}^2/\text{g}$

pH 7

30

DBP吸油量 $27 \sim 38 \text{ ml}/100 \text{ g}$

表面処理層 Al_2O_3 8質量%

カーボンブラック 25部

コンダクテックスSC-U (コロンビアンカーボン社製)

塩化ビニル共重合体 MR104 (日本ゼオン社製) 13部

ポリウレタン樹脂 UR8200 (東洋紡社製) 5部

フェニルホスホン酸 3.5部

ブチルステアレート 1部

磁気記録媒体は、例えば、データ記録用途、具体的にはコンピュータデータのバックアップ用途（例えばリニアテープ式の記録媒体（LTO5、LTO6、次世代LTOテープ（LTO7））や映像などのデジタル画像の記録用途などに好適に用いることができる。

40

【0071】

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムが好適に用いられる塗布型デジタル記録方式の磁気記録媒体としては、例えば、磁性層がバリウムフェライト等の強磁性粉末をポリウレタン樹脂等のバインダーに均一に分散させて磁性塗液を作成し、その塗液を塗布して磁性層が形成された塗布型磁気記録媒体を例示することができる。

【0072】

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは、光学フィルム、及びそれを用いた偏光板、液晶表示装置用の光学補償フィルム等の光学用フィルムとして用いることができる。近年の薄型軽量ノートパソコンや薄型の電子モバイルの開発に伴い、液晶表示装置用光学補償

50

フィルムの薄膜化への要求が非常に厳しくなっており、特に透明性と走行性に優れた薄膜の光学フィルムとして好適に用いることができる。

【 0 0 7 3 】

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムはまた離型用フィルムとしても使用できる。離型用フィルムは、ポリエステルフィルムを基材として、離型性のある樹脂層、例えばシリコン樹脂やエポキシ樹脂などを塗布し形成される。特に、グリーンシート製造用、液晶偏光板用離型用、液晶保護フィルム用離型用、フォトレジスト用、多層基板用などの各種離型用途として使用されている。ポリエステルフィルム中には、加工適性、例えば滑り性、巻き特性などを良くするために粒子を適量配合しフィルム表面に微細な突起を形成することが一般的であるが、近年の各種用途の精密化などに伴い、使用される離型フィルムについて表面欠点の無い平滑な表面性と走行性が要求されている。本発明の二軸配向ポリエステルフィルムは高精細な表面平滑性と走行性を有するため各種用途の離型用フィルムとして好適に用いることができる。

10

【 0 0 7 4 】

(物性の測定方法ならびに効果の評価方法)

本発明における特性値の測定方法並びに効果の評価方法は次の通りである。

【 0 0 7 5 】

(1) 平均径および突起密度 (M100、M60、M10、M0)

小坂研究所製の `surf-corder ET-4000A` を用いて下記条件にて3次元表面粗さを測定し、その後、内蔵されている解析ソフトにて粒子解析 (複数レベル) を実施した。測定条件は下記のとおりであり、スライスレベルを 10 nm の等間隔に設定し、各スライスレベルの平均直径と密度を場所を変えて5回測定し平均値をもって値とした。サンプルセットは、視野測定 of X 方向が二軸配向ポリエステルフィルムの幅方向になるように試料台にセットした。

20

【 0 0 7 6 】

(但し、M100 : 100 nm のスライスレベルにおける突起密度

M60 : 60 nm のスライスレベルにおける突起密度、

M10 : 10 nm のスライスレベルにおける突起密度

M0 : 0 nm (基準面) のスライスレベルにおける突起密度、

30

装置 : 小坂研究所製 “ `surf-corder ET-4000A` ”

解析ソフト : `i-Face model TDA31 ver.2.2.0.4JSGIS`

触針先端半径 : $0.5\text{ }\mu\text{m}$

測定視野 : X 方向 : $380\text{ }\mu\text{m}$ ピッチ : $1\text{ }\mu\text{m}$

Y 方向 : $280\text{ }\mu\text{m}$ ピッチ : $5\text{ }\mu\text{m}$

針圧 : $50\text{ }\mu\text{N}$

測定速度 : 0.1 mm/s

カットオフ値 : 低域 - 0.8 mm 、高域 - なし

レベリング : 全域

フィルター : ガウシアンフィルタ (2D)

40

倍率 : 10 万倍

粒子解析 (複数レベル) 条件

出力内容設定 : 山粒子

ヒステリシス幅 : 5 nm

スライスレベル等間隔 : 10 nm

(2) B 面の表面性および中心線表面粗さ R_a 、10 点平均粗さ R_z

上記 (1) に記載の装置を用いて、上記に記載の測定条件で B 面側の 3 次元粗さを場所を変えて 10 回測定しその平均値をそれぞれ中心線表面粗さ R_a 、10 点平均粗さ R_z とした。

【 0 0 7 7 】

50

なお、表面性は下記基準にて判断し、Cを平滑性不良とした。

【0078】

- AA : Rzが100nm以下、
- A : Rzが100nmを超え150nm以下、
- B : Rzが150nmを超え200nm未満、
- C : Rzが200nm以上

(3) スペクトル密度 (PSD)

原子力顕微鏡 (AFM) を用いて、場所を変えて10視野測定を行った。サンプルセットは、カンチレバーの走査方向に対して垂直方向 (Y軸方向) がサンプルフィルムの長手方向 (長手方向とは、フィルムの製造工程においてフィルムが走行する方向) となるよう

10

能のPower Spectral Densityにて波長9.65μmにおけるY軸方向 (フィルムの長手方向) の1D PSDを求め、平均値をPSDとした。

【0079】

測定装置 : NanoScope (R) IIIIa version5.31R1
(Digital Instruments社製)

カンチレバー : シリコン単結晶
走査モード : タッピングモード
走査範囲 : 125μm
走査速度 : 0.5Hz
Samples line : 256
Flatten Auto : オーダー3

20

(4) A面の中心線表面粗さRa、10点平均粗さRz

上記(3)に記載の装置を用いて、A面の表面粗さを場所を変えて10視野測定した。サンプルセットは、カンチレバーの走査方向に対して垂直方向 (Y軸方向) がサンプルフィルムの長手方向 (長手方向とは、フィルムの製造工程においてフィルムが走行する方向) となるようにサンプルをピエゾにセットして測定する。得られた画像について、Off-Line機能のRoughness Analysisにて算出し、平均値をRa、Rzとした。条件は上記(3)と同条件で実施した。

30

【0080】

(5) 幅方向の湿度膨張係数、寸法安定性

フィルムの幅方向に対して、下記条件にて測定を行い、3回の測定結果の平均値を本発明における湿度膨張係数とした。

【0081】

測定装置 : 島津製作所製熱機械分析装置TMA-50 (湿度発生器 : アルバック理工製湿度雰囲気調節装置HC-1)

試料サイズ : フィルム長手方向10mm×フィルム幅方向12.6mm

荷重 : 0.5g

測定回数 : 3回

測定温度 : 30

40

測定湿度 : 40%RHで6時間保持し寸法を測定し時間40分で80%RHまで昇湿し、80%RHで6時間保持したあと支持体幅方向の寸法変化量L(mm)を測定する。次式から湿度膨張係数(ppm/%RH)を算出した。

【0082】

湿度膨張係数(ppm/%RH) = $106 \times \{ (L / 12.6) / (80 - 40) \}$

なお、寸法安定性は以下の判断基準とし、Cを寸法安定性不良と判断した。

【0083】

- AA : 湿度膨張係数が5.5ppm/%以下
 - A : 湿度膨張係数が5.5ppm/%を超え6.0ppm/%以下
- 50

B：湿度膨張係数が $6.0 \text{ ppm} / \%$ を超え $6.5 \text{ ppm} / \%$ 未満

C：湿度膨張係数が $6.5 \text{ ppm} / \%$ 以上

(6) 積層厚み

以下の条件にて断面観察を場所を変えて 10 視野行い、得られた厚み [nm] の平均値を算出し A 層の厚み [nm] とした。

【0084】

測定装置：透過型電子顕微鏡 (TEM) 日立製 H-7100FA 型

測定条件：加速電圧 100 kV

測定倍率：1 万倍

試料調整：超薄膜切片法

観察面：TD-ZD 断面 (TD：幅方向、ZD：厚み方向)

測定回数：1 視野につき 3 点、10 視野を測定する。

10

【0085】

(7) 屈折率

JIS-K7142 (2008 年) に従って、下記測定器を用いて測定した。

【0086】

装置：アッペ屈折計 4T (株式会社アタゴ社製)

光源：ナトリウム D 線

測定温度：25

測定湿度：65% RH

マウント液：ヨウ化メチレン

(但し、屈折率 1.74 以上の場合は硫黄ヨウ化メチレンを用いた。)

平均屈折率 $n_{\text{bar}} = (n_{\text{MD}} + n_{\text{TD}} + n_{\text{ZD}}) / 3$

複屈折 $n = (n_{\text{MD}} - n_{\text{TD}})$

n_{MD} ：フィルム長手方向の屈折率

n_{TD} ：フィルム幅方向の屈折率

n_{ZD} ：フィルム厚み方向の屈折率

(8) ヤング率

ASTM-D882 (1997 年) に準拠してフィルムのヤング率を測定した。なお、インストロンタイプの引張試験機を用い、条件は下記のとおりとした。5 回の測定結果の平均値を本発明におけるヤング率とした。

20

30

【0087】

測定装置：インストロン社製超精密材料試験機 MODEL 5848

試料サイズ：

フィルム幅方向のヤング率測定の場合

フィルム長手方向 2 mm × フィルム幅方向 12.6 mm

(つかみ間隔はフィルム幅方向に 8 mm)

フィルム長手方向のヤング率測定の場合

フィルム幅方向 2 mm × フィルム長手方向 12.6 mm

(つかみ間隔はフィルム長手方向に 8 mm)

引張り速度：1 mm / 分

測定環境：温度 23、湿度 65% RH

測定回数：5 回。

40

【0088】

(9) 全光線透過率、ヘイズ、透明性

JIS-K7361-1 (1997 年) および JIS-K7136 (2000 年) に準拠し、下記測定装置を用いて測定した。支持体中央部について長手方向に 5 箇所透過率を測定し測定結果の平均値を本発明における全光線透過率およびヘイズとする。

【0089】

測定装置：濁度計 (NDH-5000) 日本電色工業株式会社製

50

光源 : 白色 L E D (5 V 3 W)
測定環境 : 温度 2 3 湿度 6 5 % R H
測定回数 : 5 回。

【 0 0 9 0 】

なお、透明性については、下記の判断基準で判断し、C を透明性不良とした。

【 0 0 9 1 】

A : ヘイズが 1 % 以下。

【 0 0 9 2 】

B : ヘイズが 1 % を超え 2 % 未満。

【 0 0 9 3 】

C : ヘイズが 2 % 以上。

【 0 0 9 4 】

(1 0) 最大粒子径 (D)、積層部の平均粒子径 (d)、凝集粒子の平均 1 次粒子径
フィルム断面を透過型電子顕微鏡 (T E M) を用い、1 万倍で観察する。この時、写真
上で 1 c m 以下の粒子が確認できた場合は T E M 観察倍率を 5 万倍に変えて観察する。T
E M の切片厚さは約 1 0 0 n m とし、場所を変えて 1 0 0 視野測定し、写真に撮影された
分散した粒子全てについて等価円相当径をもとめ、横軸に等価円相当径を、縦軸に粒子の
個数として粒子の個数分布をプロットし、そのピーク値の等価円相当径を粒子の平均粒子
径とした。ここで、1 万倍で観察した写真上に凝集粒子が確認できた場合は上記プロット
に含めない。フィルム中に粒子径の異なる 2 種類以上の粒子が存在する場合、上記等価円
相当径の個数分布は 2 個以上のピークを有する分布となる。この場合は、それぞれのピー
ク値をそれぞれの粒子の平均粒径とする。最大粒子径は、1 万倍で観察した 1 0 0 視野の
写真において、最大の粒子径を持つ粒子の粒子径である。

【 0 0 9 5 】

積層部の平均粒子径は、上記で得られたそれぞれの等価球相当径とその体積分率から、
次式で体積平均径を求め、この値を積層部の平均粒子径 (d) とする。

【 0 0 9 6 】

$$d = (d_i \cdot N_{v_i})$$

ここで、 d_i は等価球相当径、 N_{v_i} はその体積分率である。

【 0 0 9 7 】

凝集粒子の平均 1 次粒子径は、上記の装置を用いて 2 0 万倍で観察する。凝集粒子 1 0
0 個について、凝集粒子を構成する個々の 1 次粒子の等価円相当径をもとめ、上記と同様
の方法でプロットし、ピーク値の等価円相当径を凝集粒子の平均 1 次粒子径とする。

【 0 0 9 8 】

(1 1) 粒子の含有量

フィルム原料であるポリエステルへの粒子配合量から計算し、表に記載した。

【 0 0 9 9 】

なお、以下の手法に従いフィルムを分析することにより算出することもできる。

【 0 1 0 0 】

(1 1) - 1 粒子の元素分析

フィルムからポリエステルをプラズマ灰化処理法で除去し粒子を露出させる。処理条件
はポリマは灰化されるが粒子は極力ダメージを受けない条件を選択する。その粒子を走査
型電子顕微鏡 (S E M) で観察し、粒子画像をイメージアナライザーで処理する。上記 (1
0) で求めた粒度分布に従い、S E M の倍率を 3 0 , 0 0 0 倍にして、観察箇所を変え
て 2 0 視野観察し、観察した全粒子についてエネルギー分散型 X 線分光法 (E D X) を用
いて元素分析を実施し、粒子と元素の関係を明確にする。

【 0 1 0 1 】

(1 1) - 2 粒子の含有量

各積層部の表面を片刃で削り取り、削れ粉 1 0 0 g に o - クロロフェノールを加え、攪
拌しながら 1 0 0 で 1 時間を要してポリマを溶解する。次いで日立製作所製分離用超遠

10

20

30

40

50

心機 40P 型にローター RP30 を装備し、セル 1 個当りに上記溶解液 30 cc を注入した後徐々に 30,000 rpm にする。30,000 rpm 到達 60 分後に粒子の分離を終了する。次いで上澄液を除去し分離粒子を採取する。採取した該粒子に常温の o-クロロフェノールを加え、均一けん濁した後、超遠心分離操作を行う。この操作は後述の分離粒子を示差走査熱量測定装置 (DSC) を用いてポリマに相当する融解ピークが検出されなくなるまでくり返す。このようにして得た分離粒子を 120 で 16 時間真空乾燥した後、質量を測定した値を粒子の総含有量とし、これに対する比率 (質量%) をもって粒子の含有量とする。

【0102】

(12) 走行性

フィルムのア面側と B 面側を重ね合わせた 2 枚のフィルムをガラス板の上に設置し、フィルム上に 200 g の重り (接触面積 40 cm²) を置く。下側のフィルム的一端 (移動方向側) とガラスを固定し、上側のフィルム的一端 (移動方向とは逆端) は検出器に固定した。ガラス板を速度 2 mm/sec で 5 mm 移動した時の静摩擦係数 (μ_s) を以下の式より求めた。

【0103】

なお、走行性の判断は、下記の通りとした。

【0104】

$$\mu_s = (\text{スタート時の張力}) / (\text{荷重 } 200 \text{ g})$$

A: $\mu_s = 0.4$ 以下

B: $\mu_s = 0.4$ を超え、 0.5 以下

C: $\mu_s = 0.5$ を超える

(13) スリット性

フィルムを幅 1 m にスリットする際、スリット速度を変更しフィルム端部の切れ味を目視にて以下に示す方法により評価した。なお、C をスリット性不良と判断した。

【0105】

AA: 速度 120 m/分でも端部が歪になることなくスリット可能。

【0106】

A: 速度 100 m/分以上 120 m/分未満で初めて端部に歪が発生する。

【0107】

B: 速度 80 m/分以上 100 m/分未満で初めて端部に歪が発生する。

【0108】

C: 速度 80 m/分未満でフィルム表面にシワが発生し端部が歪になる。

【0109】

(14) 電磁変換特性

1 m 幅にスリットしたフィルムを、張力 200 N で搬送させ、支持体の一方の表面に下記に従って磁性塗料および非磁性塗料を塗布し 12.65 mm 幅にスリットし、パンケーキを作成する。次いで、このパンケーキから長さ 200 m 分をカセットに組み込んで、磁気テープとした。

【0110】

(以下、「部」とあるのは「質量部」を意味する。)

磁性層形成用塗布液

バリウムフェライト磁性粉末

100 部

(板径: 20.5 mm、板厚: 7.6 mm、

板状比: 2.7、Hc: 191 kA/m (2400 Oe)

飽和磁化: 44 Am²/kg、BET 比表面積: 60 m²/g)

ポリウレタン樹脂

12 部

質量平均分子量 10,000

スルホン酸官能基 0.5 meq/g

- アルミナ HIT60 (住友化学社製)

8 部

10

20

30

40

50

カーボンブラック # 5 5 (旭カーボン社製)	
粒子サイズ 0 . 0 1 5 μm	0 . 5 部
ステアリン酸	0 . 5 部
ブチルステアレート	2 部
メチルエチルケトン	1 8 0 部
シクロヘキサノン	1 0 0 部
非磁性層形成用塗布液	
非磁性粉体 酸化鉄	8 5 部
平均長軸長 0 . 0 9 μm 、B E T 法による比表面積 5 0 m^2 / g	
p H 7	
D B P 吸油量 2 7 ~ 3 8 $\text{ml} / 1 0 0 \text{g}$	
表面処理層 Al_2O_3 8 質量%	
カーボンブラック	1 5 部
“コンダクテックス” (登録商標) S C - U (コロソビアンカーボン社製)	
ポリウレタン樹脂 U R 8 2 0 0 (東洋紡社製)	2 2 部
フェニルホスホン酸	3 部
シクロヘキサノン	1 4 0 部
メチルエチルケトン	1 7 0 部
ブチルステアレート	1 部
ステアリン酸	2 部
メチルエチルケトン	2 0 5 部
シクロヘキサノン	1 3 5 部

上記の塗布液のそれぞれについて、各成分をニ - ダで混練した。1 . 0 mm のジルコニアビーズを分散部の容積に対し 6 5 % 充填する量を入れた横型サンドミルに、塗布液をポンプで通液し、2 , 0 0 0 rpm で 1 2 0 分間 (実質的に分散部に滞留した時間)、分散させた。得られた分散液にポリイソシアネート为非磁性層の塗料には 5 . 0 部、磁性層の塗料には 2 . 5 部を加え、さらにメチルエチルケトン 3 部を加え、1 μm の平均孔径を有するフィルターを用いて濾過し、非磁性層形成用および磁性層形成用の塗布液をそれぞれ調製した。

【 0 1 1 1 】

得られた非磁性層形成用塗布液を、P E T フィルム上に乾燥後の厚さが 0 . 8 μm になるように塗布乾燥させた後、磁性層形成用塗布液を乾燥後の磁性層の厚さが 0 . 0 7 μm になるように塗布を行い、磁性層がまだ湿潤状態にあるうちに 6 , 0 0 0 G (6 0 0 mT) の磁力を持つコバルト磁石と 6 , 0 0 0 G (6 0 0 mT) の磁力を持つソレノイドにより配向させ乾燥させた。その後、カレンダー後の厚みが 0 . 5 μm となるようにバックコート層 (カーボンブラック 平均粒子サイズ: 1 7 nm 1 0 0 部、炭酸カルシウム平均粒子サイズ: 4 0 nm 8 0 部、アルミナ 平均粒子サイズ: 2 0 0 nm 5 部をポリウレタン樹脂、ポリイソシアネートに分散) を塗布した。次いでカレンダーで温度 9 0 、線圧 3 0 0 kg / cm (2 9 4 kN / m) にてカレンダー処理を行った後、6 5 で、7 2 時間キュアリングした。さらに、スリット品の送り出し、巻き取り装置を持った装置に不織布とカミソリブレードが磁性面に押し当たるように取り付け、テープクリーニング装置で磁性層の表面のクリーニングを行い、磁気テープを得た。

【 0 1 1 2 】

記録ヘッド (M I G , ギャップ 0 . 1 5 μm 、1 . 8 T) と再生用 G M R ヘッドをドラムテスターに取り付けて上記により得られた磁気テープの出力を測定した。ヘッド / テープの相対速度は 1 5 m / sec とし、トラック密度 1 6 K T P I 、線記録密度 4 0 0 K b p i の信号を記録した後、出力とノイズの比を電磁変換特性とした。実施例 5 の結果を 0 dB として 2 . 0 dB 以上は A、2 . 0 未満 ~ 0 dB は B、0 dB 未満は C と判定した。A が望ましいが、B でも実用的には使用可能である。

【 0 1 1 3 】

(1 5) ドロップアウト

上記(1 4)と同様の記録をした磁気テープを5 0 、6 5 % R H 雰囲気中に1 週間保存した後、再生した。0 . 5 μ m以上の大きさを5 0 %以上出力低下したものをドロップアウトとして回数(個数)を測定し、磁気テープ2 0 0 m長1 巻について下記基準で判断した。ドロップアウトが4 5 0 個未満のものが高容量のデータバックアップ用テープとして望ましい。

【 0 1 1 4 】

A A : ドロップアウト 1 0 0 個未満
A : ドロップアウト 1 0 0 個以上2 5 0 個未満
B : ドロップアウト 2 5 0 個以上4 5 0 個未満
C : ドロップアウト 4 5 0 個以上

10

【実施例】

【 0 1 1 5 】

次の実施例に基づき、本発明の実施形態を説明する。なお、ここでポリエチレンテレフタレートをP E T、ポリエチレンナフタレートをP E N、ポリエーテルイミドをP E Iと表記する。

【 0 1 1 6 】

(1 - a) P E Tペレットの作製：テレフタル酸ジメチル1 9 4 質量部とエチレングリコール1 2 4 質量部とをエステル交換反応装置に仕込み、内容物を1 4 0 に加熱して溶解した。その後、内容物を攪拌しながら酢酸マグネシウム四水和物0 . 3 質量部および三酸化アンチモン0 . 0 5 質量部を加え、1 4 0 ~ 2 3 0 でメタノールを留出しつつエステル交換反応を行った。次いで、リン酸トリメチルの5 質量%エチレングリコール溶液を0 . 5 質量部(リン酸トリメチルとして0 . 0 2 5 質量部) とリン酸二水素ナトリウム2 水和物の5 質量%エチレングリコール溶液を0 . 3 質量部(リン酸二水素ナトリウム2 水和物として0 . 0 1 5 質量部) 添加した。

20

【 0 1 1 7 】

トリメチルリン酸のエチレングリコール溶液を添加すると反応内容物の温度が低下する。そこで余剰のエチレングリコールを留出させながら反応内容物の温度が2 3 0 に復帰するまで攪拌を継続した。このようにしてエステル交換反応装置内の反応内容物の温度が2 3 0 に達した後、反応内容物を重合装置へ移行した。

30

【 0 1 1 8 】

移行後、反応系を2 3 0 から2 7 5 まで徐々に昇温するとともに、圧力を0 . 1 k P aまで下げた。最終温度、最終圧力到達までの時間はともに6 0 分とした。最終温度、最終圧力に到達した後、2 時間(重合を始めて3 時間) 反応させたところ、重合装置の攪拌トルクが所定の値(重合装置の仕様によって具体的な値は異なるが、本重合装置にて固有粘度0 . 5 5 のポリエチレンテレフタレートが示す値を所定の値とした) を示した。そこで反応系を窒素パージし常圧に戻して重縮合反応を停止し、冷水にストランド状に吐出、直ちにカッティングして固有粘度0 . 5 5 のポリエチレンテレフタレートのP E Tペレットを得た(原料 - 1) 。

【 0 1 1 9 】

回転型真空重合装置を用いて、上記のP E Tペレット(原料 - 1) を0 . 1 k P aの減圧下2 3 0 の温度で長時間加熱処理し、固相重合を行った(原料 - 1 k) 。加熱処理時間が長いほど固有粘度は高くなる。処理時間が1 時間で固有粘度が0 . 6 0、5 時間で固有粘度が0 . 7 0である。

40

【 0 1 2 0 】

(1 - b) P E Nペレットの作成：2 , 6 - ナフタレンジカルボン酸ジメチル1 2 8 質量部とエチレングリコール6 0 質量部の混合物に、酢酸マンガンの4 水和物塩0 . 0 2 5 質量部と酢酸ナトリウムの3 水塩0 . 0 0 5 質量部を添加し、1 5 0 の温度から2 4 0 の温度に徐々に昇温しながらエステル交換反応を行った。途中、反応温度が1 7 0 に達した時点で三酸化アンチモン0 . 0 2 4 質量部を添加した。また、反応温度が2 2 0

50

に達した時点で3, 5-ジカルボキシベンゼンスルホン酸テトラブチルホスホニウム塩0.042質量部(2mmol%に相当)を添加した。その後、引き続いてエステル交換反応を行い、トリメチルリン酸0.023質量部を添加した。次いで、反応生成物を重合装置に移し、290の温度まで昇温し、30Paの高減圧下にて重縮合反応を行い、重合装置の撹拌トルクが所定の値(重合装置の仕様によって具体的な値は異なるが、本重合装置にて固有粘度0.6のポリエチレン-2, 6-ナフタレートが示す値を所定の値とした)を示した。そこで反応系を窒素パージし常圧に戻して重縮合反応を停止し、冷水にストランド状に吐出、直ちにカッティングして固有粘度0.6のPENペレット(原料-1b)を得た。

【0121】

(2-a) 粒子含有PETペレットの作製: 280に加熱された同方向回転タイプのベント式2軸混練押出機に、上述の固相重合PETペレット(原料-1k: 処理時間2時間)を80質量部と平均粒径0.30 μ mの架橋ポリスチレン粒子の10質量%水スラリーを20質量部(架橋ポリスチレン粒子として2質量部)を供給し、ベント孔を1kPa以下の減圧度に保持し水分を除去し、架橋ポリスチレン粒子を2質量%含有する固有粘度0.62の粒子含有ペレット(原料-2a)を得た。

【0122】

(2-b) 粒子含有PETペレットの作製: 280に加熱された同方向回転タイプのベント式2軸混練押出機に、上述の固相重合PETペレット(原料-1k: 処理時間2時間)を80質量部と平均粒径0.45 μ mの架橋ポリスチレン粒子の10質量%水スラリーを20質量部(架橋ポリスチレン粒子として2質量部)を供給し、ベント孔を1kPa以下の減圧度に保持し水分を除去し、架橋ポリスチレン粒子を2質量%含有する固有粘度0.62の粒子含有ペレット(原料-2b)を得た。

【0123】

(2-c) 粒子含有PETペレットの作製: 280に加熱された同方向回転タイプのベント式2軸混練押出機に、上述の固相重合PETペレット(原料-1k: 処理時間2時間)を80質量部と平均粒径0.8 μ mの架橋ポリスチレン粒子の10質量%水スラリーを20質量部(架橋ポリスチレン粒子として2質量部)を供給し、ベント孔を1kPa以下の減圧度に保持し水分を除去し、架橋ポリスチレン粒子を2質量%含有する固有粘度0.62の粒子含有ペレット(原料-2c)を得た。

【0124】

(2-d) 粒子含有PETペレットの作製: 280に加熱された同方向回転タイプのベント式2軸混練押出機に、上述の固相重合PETペレット(原料-1k: 処理時間2時間)を90質量部と平均粒径0.060 μ mのコロイダルシリカ粒子の10質量%水スラリーを10質量部(コロイダルシリカ粒子として1質量部)を供給し、ベント孔を1kPa以下の減圧度に保持し水分を除去し、コロイダルシリカ粒子を1質量%含有する固有粘度0.62の粒子含有ペレット(原料-2d)を得た。

【0125】

(2-e) 粒子含有PETペレットの作製: 280に加熱された同方向回転タイプのベント式2軸混練押出機に、上述の固相重合PETペレット(原料-1k: 処理時間2時間)を80質量部と平均粒径0.10 μ mのコロイダルシリカ粒子の10質量%水スラリーを20質量部(コロイダルシリカ粒子として2質量部)を供給し、ベント孔を1kPa以下の減圧度に保持し水分を除去し、コロイダルシリカ粒子を2質量%含有する固有粘度0.62の粒子含有ペレット(原料-2e)を得た。

【0126】

また、平均粒径0.18 μ mのコロイダルシリカ粒子の10質量%水スラリーを20質量部(コロイダルシリカ粒子として2質量部)を供給し、ベント孔を1kPa以下の減圧度に保持し水分を除去し、コロイダルシリカ粒子を2質量%含有する固有粘度0.62の粒子含有ペレット(原料-2e')を得た。

【0127】

(2-f) 粒子含有PETペレットの作製：280 に加熱された同方向回転タイプのベント式2軸混練押出機に、上述の固相重合PETペレット(原料-1k：処理時間2時間)を80質量部と平均粒径0.20 μ mのコロイダルシリカ粒子の10質量%水スラリーを20質量部(コロイダルシリカ粒子として2質量部)を供給し、ベント孔を1kPa以下の減圧度に保持し水分を除去し、コロイダルシリカ粒子を2質量%含有する固有粘度0.62の粒子含有ペレット(原料-2f)を得た。

【0128】

(2-g) 粒子含有PENペレットの作製：280 に加熱された同方向回転タイプのベント式2軸混練押出機に、上述のPENペレット(原料-1b)を80質量部と平均粒径0.30 μ mの架橋ポリスチレン粒子の10質量%水スラリーを20質量部(架橋ポリスチレン粒子として2質量部)を供給し、ベント孔を1kPa以下の減圧度に保持し水分を除去し、架橋ポリスチレン粒子を2質量%含有する固有粘度0.6の粒子含有ペレット(原料-2g)を得た。

【0129】

(2-h) 粒子含有PENペレットの作製：280 に加熱された同方向回転タイプのベント式2軸混練押出機に、上述のPENペレット(原料-1b)を90質量部と平均粒径0.060 μ mのコロイダルシリカ粒子の10質量%水スラリーを10質量部(コロイダルシリカ粒子として1質量部)を供給し、ベント孔を1kPa以下の減圧度に保持し水分を除去し、コロイダルシリカ粒子を1質量%含有する固有粘度0.6の粒子含有ペレット(原料-2h)を得た。

【0130】

(2-i) 粒子含有PENペレットの作製：280 に加熱された同方向回転タイプのベント式2軸混練押出機に、上述のPENペレット(原料-1b)を80質量部と平均粒径0.10 μ mのコロイダルシリカ粒子の10質量%水スラリーを20質量部(コロイダルシリカ粒子として2質量部)を供給し、ベント孔を1kPa以下の減圧度に保持し水分を除去し、コロイダルシリカ粒子を2質量%含有する固有粘度0.6の粒子含有ペレット(原料-2i)を得た。

【0131】

(2-j) 粒子含有PENペレットの作製：280 に加熱された同方向回転タイプのベント式2軸混練押出機に、上述のPENペレット(原料-1b)を80質量部と平均粒径0.20 μ mのコロイダルシリカ粒子の10質量%水スラリーを20質量部(コロイダルシリカ粒子として2質量部)を供給し、ベント孔を1kPa以下の減圧度に保持し水分を除去し、コロイダルシリカ粒子を2質量%含有する固有粘度0.6の粒子含有ペレット(原料-2j)を得た。

【0132】

(3) 2成分組成物(PET/PEI)ペレットの作製：温度280 に加熱されたニーディングパドル混練部を3箇所設けた同方向回転タイプのベント式2軸混練押出機(日本製鋼所製、スクリュー直径30mm、スクリュー長さ/スクリュー直径=45.5)に、上記方法で得られた固相重合PETペレット(原料-1k：処理時間2時間)とSABICイノベティブプラスチック社製のPEI“Ultem”(登録商標)1010のペレットを供給して、剪断速度100 sec^{-1} 、滞留時間1分にて溶融押出し、PEIを50質量%含有した2成分組成物ペレットを得た。なお、作製した2成分組成物ペレットのガラス転移温度は150 であった(原料-3)。

【0133】

(実施例1)

押出機E1、E2の2台を用い、280 に加熱された押出機E1には、A層原料として、固相重合を4時間実施したPETペレット(原料-1k)を96質量部、平均粒径0.06 μ mのコロイダルシリカ粒子含有ペレット(原料-2d)4質量部を180 で3時間減圧乾燥した後供給した。同じく280 に加熱された押出機E2には、B層原料として、A層で用いたPETペレット(原料-1k)を65.5質量部、平均粒径0.0

10

20

30

40

50

6 μm のコロイダルシリカ粒子含有ペレット（原料 - 2 d）17質量部、平均粒径0.20 μm のコロイダルシリカ粒子含有ペレット（原料 - 2 f）10質量部、平均粒径0.30 μm の架橋ポリスチレン粒子含有ペレット（原料 - 2 a）7.5質量部を配合し、180 で3時間減圧乾燥した後に供給した。これらを2層積層するべくTダイ中で積層厚み比（A層 | B層）= 6 | 1とし、B層側がキャストドラム面側になるように合流させ、表面温度25 のキャストドラムに静電荷を印加させながら密着冷却固化し、積層未延伸フィルムを作製した。

【0134】

この積層未延伸フィルムをロール式延伸機にて88 で3段階で長手方向に3.3倍延伸した。この延伸は2組ずつのロールの周速差を利用し1段目に2.8倍、2段目1.12倍、3段目1.05倍で行った。

【0135】

得られた一軸延伸フィルムの両端をクリップで把持しながらテンター内の95 の温度の予熱ゾーンに導き、引き続き連続的に90 の温度の加熱ゾーンで長手方向に直角な幅方向（TD方向）に3.5倍延伸し（TD延伸1）、さらに続いて170 の温度の加熱ゾーンで幅方向に1.4倍延伸した（TD延伸2）。引き続き、テンター内の熱処理ゾーンで213 の温度で10秒間の熱処理を施し、さらに150 の温度で0.5%幅方向に弛緩処理を行った。次いで、25 に均一に冷却後、フィルムエッジを除去し、コア上に巻き取って厚さ4.2 μm の二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。得られた二軸配向ポリエステルの製膜安定性は良好であり、物性評価したところ、表に示すように、磁気テープとして使用した際に優れた特性を有していた。

【0136】

以下、表に各実施例、比較例の原料組成、製膜条件、二軸配向ポリエステルの物性、磁気テープの特性等を示す。

【0137】

（実施例2）

表に示すように各種粒子原料を所定の濃度になるよう配合量を変更した以外は全て実施例1と同様にして厚さ4.2 μm の二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。

【0138】

（実施例3）

押出機E1、E2の2台を用い、280 に加熱された押出機E1には、A層原料として、固相重合を4時間実施したPETペレット（原料 - 1 k）を90質量部、2成分組成物ペレット（原料 - 3）6質量部、平均粒径0.06 μm のコロイダルシリカ粒子含有ペレット（原料 - 2 d）4質量部を180 で3時間減圧乾燥した後に供給した。同じく280 に加熱された押出機E2には、B層原料として、A層で用いたPETペレット（原料 - 1 k）を75.25質量部、2成分組成物ペレット（原料 - 3）6質量部、平均粒径0.1 μm のコロイダルシリカ粒子含有ペレット（原料 - 2 e）12.5質量部、平均粒径0.30 μm のコロイダルシリカ粒子含有ペレット（原料 - 2 a）6質量部、平均粒径0.45 μm のコロイダルシリカ粒子含有ペレット（原料 - 2 b）0.25質量部を配合し、180 で3時間減圧乾燥した後に供給した。これらを2層積層するべくTダイ中で積層厚み比（A層 | B層）= 6 | 1とし、B層側がキャストドラム面側になるように合流させ、表面温度25 のキャストドラムに静電荷を印加させながら密着冷却固化し、積層未延伸フィルムを作製した。

【0139】

この積層未延伸フィルムをロール式延伸機にて90 で3段階で長手方向に3.3倍延伸した。この延伸は2組ずつのロールの周速差を利用し1段目に2.5倍、2段目1.26倍、3段目1.05倍で行った。

【0140】

得られた一軸延伸フィルムの両端をクリップで把持しながらテンター内の95 の温度の予熱ゾーンに導き、引き続き連続的に90 の温度の加熱ゾーンで長手方向に直角な幅

10

20

30

40

50

方向（TD方向）に3.5倍延伸し（TD延伸1）、さらに続いて195の温度の加熱ゾーンで幅方向に1.4倍延伸した（TD延伸2）。引き続き、テンター内の熱処理ゾーンで215の温度で10秒間の熱処理を施し、さらに150の温度で0.5%幅方向に弛緩処理を行った。次いで、25に均一に冷却後、フィルムエッジを除去し、コア上に巻き取って厚さ4.2μmの二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。得られた二軸配向ポリエステルの製膜安定性は良好であり、物性評価したところ、表に示すように、磁気テープとして使用した際に優れた特性を有していた。

【0141】

（実施例4）

表に示すように各種粒子原料を所定の濃度になるよう配合量を変更した以外は全て実施例3と同様にして厚さ4.2μmの二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。

【0142】

（実施例5）

表に示すように各種粒子原料を所定の濃度になるよう配合量を変更した以外は全て実施例3と同様にして厚さ4.2μmの二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。

【0143】

（実施例6）

A層原料として、PENペレット（原料-1b）96質量部、平均粒径0.06μmのコロイダルシリカ粒子含有ペレット（原料-2h）4質量部を180で3時間減圧乾燥した後に供給した。同じく280に加熱された押出機E2には、B層原料として、A層で用いたPENペレット（原料-1b）を60.5質量部、平均粒径0.06μmのコロイダルシリカ粒子含有ペレット（原料-2h）25質量部、平均粒径0.2μmのコロイダルシリカ粒子含有ペレット（原料-2j）5質量部、平均粒径0.30μmの架橋ポリスチレン粒子含有ペレット（原料-2g）9.5質量部、を配合し、180で3時間減圧乾燥した後に供給した。これらを2層積層するべくTDダイ中で積層厚み比（A層|B層）=6|1とし、B層側がキャストドラム面側になるように合流させ、表面温度25のキャストドラムに静電荷を印加させながら密着冷却固化し、積層未延伸フィルムを作製した。

【0144】

この積層未延伸フィルムをロール式延伸機にて125で3段階で長手方向に4.5倍延伸した。この延伸は2組ずつのロールの周速差を利用し1段目に3.6倍、2段目1.2倍、3段目1.05倍で行った。

【0145】

得られた一軸延伸フィルムの両端をクリップで把持しながらテンター内の135の温度の予熱ゾーンに導き、引き続き連続的に120の温度の加熱ゾーンで長手方向に直角な幅方向（TD方向）に4倍延伸し（TD延伸1）、さらに続いて170の温度の加熱ゾーンで幅方向に1.6倍延伸した（TD延伸2）。引き続き、テンター内の熱処理ゾーンで215の温度で10秒間の熱処理を施し、さらに150の温度で0.5%幅方向に弛緩処理を行った。次いで、25に均一に冷却後、フィルムエッジを除去し、コア上に巻き取って厚さ4.2μmの二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。

【0146】

（実施例7）

表に示すように各種粒子原料を所定の濃度になるよう配合量を変更した以外は全て実施例6と同様にして厚さ4μmの二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。

【0147】

（実施例8）

表に示すように各種粒子原料を所定の濃度になるよう配合量を変更した以外は全て実施例7と同様にして厚さ4.2μmの二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。

【0148】

（実施例9）

10

20

30

40

50

A層原料に原料-2dの粒子を平均粒径 $0.03\mu\text{m}$ のコロイダルシリカ粒子に変更した以外は原料-2dと同様にして作成した原料ペレットを表に示すように所定の濃度になるよう配合量を変更した以外は全て実施例1と同様にして厚さ $4.2\mu\text{m}$ の二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。

【0149】

(比較例1)

表に示すように各種粒子原料を所定の濃度になるよう配合量を変更した以外は全て実施例5と同様にして厚さ $4.2\mu\text{m}$ の二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。

【0150】

(比較例2)

表に示すように各種粒子原料を所定の濃度になるよう配合量を変更した以外は全て実施例3と同様にして厚さ $4.1\mu\text{m}$ の二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。

【0151】

(比較例3)

表に示すように各種粒子原料を所定の濃度になるよう配合量を変更した以外は全て実施例3と同様にして厚さ $4.2\mu\text{m}$ の二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。

【0152】

(比較例4)

A層原料として、PENペレット(原料-1b)のみ使用し、B層に用いる粒子原料および濃度を表の通りとし、A、B層の積層厚み比(A層|B層)=2|1に変更して、長手方向に125で4.0倍多段延伸することなく1段延伸し、さらに幅方向に145にて5.4倍、1段で延伸し210で熱処理して厚さ $4.5\mu\text{m}$ の二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。

【0153】

(比較例5)

表に示すように各種粒子原料を所定の濃度になるよう配合量を変更した以外は全て実施例3と同様にして厚さ $4.5\mu\text{m}$ の二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。

【0154】

(比較例6)

表に示すように各種粒子原料を所定の濃度になるよう配合量を変更した以外は全て実施例1と同様にして厚さ $4.1\mu\text{m}$ の二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。

【0155】

(比較例7)

表に示すように各種粒子原料を所定の濃度になるよう配合量を変更した以外は全て実施例3と同様にして厚さ $4.5\mu\text{m}$ の二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。

【0156】

10

20

30

【表 1】

【表1】

	層(A)					層(B)				
	ポリマ	厚み [μm]	粒子種	粒子径 [μm]	濃度 [wt%]	ポリマ	厚み [μm]	粒子種 粒子(S) 粒子(M) 粒子(L)	平均粒子 径 [μm]	濃度 [wt%]
実施例1	PET	3.6	コロイダルシリカ	0.06	0.04	PET	0.6	コロイダルシリカ	0.06	0.17
								コロイダルシリカ	0.2	0.2
								有機粒子	0.3	0.15
実施例2	PET	3.6	コロイダルシリカ	0.06	0.04	PET	0.6	コロイダルシリカ	0.06	0.3
								コロイダルシリカ	0.2	0.2
								有機粒子	0.3	0.15
実施例3	PET+PEI	3.6	コロイダルシリカ	0.06	0.04	PET+PEI	0.6	コロイダルシリカ	0.1	0.25
								有機粒子	0.3	0.12
								有機粒子	0.45	0.005
実施例4	PET+PEI	3.6	コロイダルシリカ	0.06	0.02	PET+PEI	0.6	コロイダルシリカ	0.06	0.3
								コロイダルシリカ	0.2	0.3
								有機粒子	0.3	0.1
実施例5	PET+PEI	3.6	コロイダルシリカ	0.06	0.1	PET+PEI	0.6	コロイダルシリカ	0.1	0.3
								コロイダルシリカ	0.2	0.2
								有機粒子	0.3	0.1
実施例6	PEN	3.6	コロイダルシリカ	0.06	0.04	PEN	0.6	コロイダルシリカ	0.06	0.25
								コロイダルシリカ	0.2	0.1
								有機粒子	0.3	0.19
実施例7	PEN	2.5	コロイダルシリカ	0.06	0.04	PEN	1.5	コロイダルシリカ	0.06	0.17
								コロイダルシリカ	0.2	0.2
								有機粒子	0.3	0.15
実施例8	PEN	3.6	コロイダルシリカ	0.1	0.04	PEN	0.6	コロイダルシリカ	0.06	0.17
								コロイダルシリカ	0.2	0.2
								有機粒子	0.3	0.15
実施例9	PET	3.6	コロイダルシリカ	0.03	0.5	PET	0.6	コロイダルシリカ	0.06	0.17
								コロイダルシリカ	0.2	0.2
								有機粒子	0.3	0.15
比較例1	PET+PEI	3.6	コロイダルシリカ	0.06	0.2	PET+PEI	0.6	コロイダルシリカ	0.1	0.3
								コロイダルシリカ	0.2	0.2
								有機粒子	0.3	0.1
比較例2	PET+PEI	2	コロイダルシリカ	0.06	0.04	PET+PEI	2.1	コロイダルシリカ	0.1	0.25
								有機粒子	0.3	0.12
								有機粒子	0.45	0.005
比較例3	PET+PEI	1.5	コロイダルシリカ	0.06	0.04	PET+PEI	2.7	コロイダルシリカ	0.18	0.1
								有機粒子	0.3	0.3
比較例4	PEN	3	-	-	-	PEN	1.5	コロイダルシリカ	0.1	0.2
								有機粒子	0.3	0.25
比較例5	PET+PEI	3.6	コロイダルシリカ	0.1	0.04	PET+PEI	0.9	有機粒子	0.3	0.2
								有機粒子	0.8	0.01
比較例6	PET	3.6	コロイダルシリカ	0.18	0.05	PET	0.5	コロイダルシリカ	0.06	0.17
								コロイダルシリカ	0.2	0.2
比較例7	PET+PEI	3.6	コロイダルシリカ	0.06	0.04	PET+PEI	0.9	有機粒子	0.3	0.15
								有機粒子	0.3	0.3

【 0 1 5 7 】

10

20

30

【表 2】

【表2】

	B層表面パラメータ(三次元粗さ計)						A層表面パラメータ(AFM)		
	(M60/M10) × 100 [%]	M100 [個/mm ²]	M10 [個/mm ²]	M0 [個/mm ²]	Ra [nm]	Rz [nm]	PSD [nm ³]	Ra [nm]	Rz [nm]
実施例1	2.2	4	13500	3100	9	131	10300	2.2	74
実施例2	2	4	13750	3100	9	143	10300	2.2	74
実施例3	2.7	5	9600	1400	7	155	37000	2.2	74
実施例4	1.8	0	12400	2700	8	123	5200	1.7	68
実施例5	2	0	11800	2500	9	131	39000	2.8	80
実施例6	2.8	5	15600	4300	10	148	26000	2.2	69
実施例7	4.6	5	18900	2600	11	150	42000	2.5	98
実施例8	2.3	3	12600	2600	9	130	38000	2.3	74
実施例9	2.2	4	13500	3100	9	131	3600	1.1	23
比較例1	2	0	11800	2500	9	131	50600	3.3	94
比較例2	5.2	8	9980	1400	12	202	64000	3.3	135
比較例3	6.8	12	10800	2500	13	189	55000	4.3	147
比較例4	5.5	39	12600	980	12	168	54000	1.7	37
比較例5	7.8	56	9800	700	12	198	70200	2.6	86
比較例6	2.2	4	13500	3000	9	135	102000	4.3	203
比較例7	3.8	28	8000	1600	9	183	51000	2.3	177

【 0 1 5 8 】

【表 3】

【表3】

	フィルム特性								磁気テープ特性	
	t/D (B層)	最大 粒子径D [μm]	平均 粒子径d [μm]	湿度膨張 係数 [ppm/%]	寸法安定 性	走行性	表面性	スリット性	電磁変換 特性	ドロップ アウト
実施例1	2	0.3	0.28	7.2	B	A	A	A	A	B
実施例2	2	0.3	0.26	7.2	B	A	A	AA	A	B
実施例3	1.43	0.42	0.31	6.7	A	A	A	B	B	B
実施例4	2	0.3	0.26	6.7	A	B	A	A	A	A
実施例5	2	0.3	0.26	6.7	A	B	A	A	B	A
実施例6	2	0.3	0.3	5.5	AA	A	A	A	B	B
実施例7	4.5	0.33	0.28	5.5	AA	A	A	A	B	B
実施例8	2	0.3	0.28	5.5	AA	B	A	B	B	B
実施例9	2	0.3	0.26	7.2	B	A	A	A	A	B
比較例1	2	0.3	0.26	6.7	A	B	A	B	C	A
比較例2	4.5	0.47	0.31	6.7	A	A	C	B	C	C
比較例3	9	0.3	0.29	6.7	A	A	B	A	C	C
比較例4	5	0.3	0.25	5.6	A	B	B	A	C	C
比較例5	1.1	0.82	0.31	6.8	A	A	B	B	C	C
比較例6	2	0.3	0.28	7.2	B	A	A	B	C	C
比較例7	2.7	0.33	0.3	5.8	A	A	B	B	C	C

フロントページの続き

(56)参考文献 特開 2 0 1 3 - 1 0 3 3 6 1 (J P , A)
特開 2 0 1 6 - 0 7 9 4 1 0 (J P , A)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)
C 0 8 J 5 / 0 0 - 5 / 0 2 ; 5 / 1 2 - 5 / 2 2、
G 1 1 B 5 / 6 2 - 5 / 8 2、
B 3 2 B 1 / 0 0 - 4 3 / 0 0