

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局

(43) 国際公開日  
2023年4月27日(27.04.2023)



(10) 国際公開番号

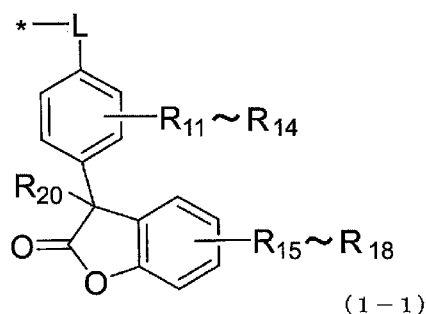
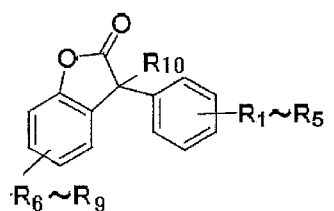
WO 2023/068290 A1

- (51) 国際特許分類:  
C08L 101/00 (2006.01) C08L 33/06 (2006.01)  
C08K 5/00 (2006.01) C08L 45/00 (2006.01)  
C08K 5/13 (2006.01) C08L 67/00 (2006.01)  
C08K 5/1535 (2006.01) C08L 69/00 (2006.01)  
C08K 5/51 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2022/038889
- (22) 国際出願日: 2022年10月19日(19.10.2022)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願 2021-173347 2021年10月22日(22.10.2021) JP
- (71) 出願人: 三菱瓦斯化学株式会社(MITSUBISHI GAS CHEMICAL COMPANY, INC.) [JP/JP]; 〒1008324 東京都千代田区丸の内二丁目5番2号 Tokyo (JP).

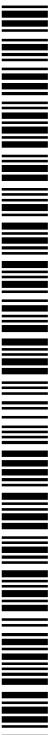
- (72) 発明者: 加藤 宣之(KATO Noriyuki); 〒1008324 東京都千代田区丸の内二丁目5番2号 三菱瓦斯化学株式会社内 Tokyo (JP). 西森 克吏(NISHIMORI Katsushi); 〒1258601 東京都葛飾区新宿6丁目1番1号 三菱瓦斯化学株式会社 東京研究所内 Tokyo (JP). 池田 慎也(IKEDA Shinya); 〒9503121 新潟県新潟市北区松浜町3500番地 三菱瓦斯化学株式会社 新潟工場内 Niigata (JP). 茂木 篤志(MOTEGI Atsushi); 〒1258601 東京都葛飾区新宿6丁目1番1号 三菱瓦斯化学株式会社 東京研究所内 Tokyo (JP). 村田 鈴木 章子(MURATA SUZUKI Shoko); 〒1258601 東京都葛飾区新宿6丁目1番1号 三菱瓦斯化学株式会社 東京研究所内 Tokyo (JP). 越智 紀明(OCHI Noriaki); 〒1258601 東京都葛飾区新宿6丁目1番1号 三菱瓦斯化学株式会社 東京研究所内 Tokyo (JP). 神田 正大(KANDA Masahiro); 〒1008324 東京都千代田区丸の内二丁目5番2号 三菱瓦斯化学株式会社内 Tokyo (JP). 永井 雅之(NAGAI

(54) Title: THERMOPLASTIC RESIN COMPOSITION, MOLDED ARTICLE, AND METHOD FOR PRODUCING AND METHOD FOR IMPROVING TRANSMITTANCE OF THERMOPLASTIC RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称: 熱可塑性樹脂組成物、成形体、熱可塑性樹脂組成物の製造方法及び透過率向上方法



(57) Abstract: Provided are a thermoplastic resin composition and the like that enable suppression of a change in transmittance such as when an additive is added, in particular, a change in transmittance in the short wavelength range. This thermoplastic resin composition contains a compound agent represented by general formula (1). (In general formula (1), R<sub>1</sub>-R<sub>5</sub> each independently represent a hydrogen atom, an alkyl group or an alkoxy group having a total of 1-20 carbon atoms and optionally having a substituent group, or a structural formula of general formula (1-1). However, at least one of R<sub>1</sub>-R<sub>5</sub> represents the structural formula of general formula (1-1), R<sub>6</sub>-R<sub>9</sub> each independently represent a hydrogen atom, or an alkyl group or an alkoxy group having a total of 1-20 carbon atoms and optionally having a substituent group, and R<sub>10</sub> represents a hydrogen atom or an alkyl group having a total of 1-5 carbon atoms.) (In general formula (1-1), R<sub>11</sub>-R<sub>18</sub>, R<sub>20</sub>, L, \*, and \*\* are each described in the description of the present application.)



WO 2023/068290 A1

**Masayuki**); 〒2540016 神奈川県平塚市東八幡5丁目6番2号 三菱瓦斯化学株式会社 平塚研究所内 Kanagawa (JP). 森下 隆実(**MORISHITA Takami**); 〒2540016 神奈川県平塚市東八幡5丁目6番2号 三菱瓦斯化学株式会社 平塚研究所内 Kanagawa (JP). 池田 真一(**IKEDA Shinichi**); 〒2540016 神奈川県平塚市東八幡5丁目6番2号 三菱瓦斯化学株式会社 平塚研究所内 Kanagawa (JP). 小村 和史(**OMURA Kazufumi**); 〒2588577 神奈川県足柄上郡開成町牛島577番地 富士フイルム株式会社内 Kanagawa (JP).

(74) 代理人: 小林 浩, 外 (**KOBAYASHI Hiroshi et al.**); 〒1040028 東京都中央区八重洲二丁目8番7号 福岡ビル9階 阿部・井窪・片山法律事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告(条約第21条(3))

(57) 要約: 添加剤の添加等によっても透過率の変化、特に、短波長域の透過率の変化を抑制できる、熱可塑性樹脂組成物等を提供する。下記一般式(1)で表される配合剤を含む、熱可塑性樹脂組成物により上記課題は解決された。(一般式(1)中、 $R_1 \sim R_5$ は、それぞれ独立に、水素原子、又は、置換基を有してもよい合計炭素数1~20のアルキル基あるいはアルコキシ基、又は、下記一般式(1-1)の構造式を表し、但し、 $R_1 \sim R_5$ の少なくともいずれかは、下記一般式(1-1)の構造式であり、 $R_6 \sim R_9$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1~20のアルキル基あるいはアルコキシ基を表し、 $R_{10}$ は、水素原子、又は、合計炭素数1~5のアルキル基を表す。)(一般式(1-1)中、 $R_{11} \sim R_{18}$ 、 $R_{20}$ 、L、\*及び\*\*は、本願明細書に記載の通りである。

## 明 細 書

発明の名称：

熱可塑性樹脂組成物、成形体、熱可塑性樹脂組成物の製造方法及び透過率向上方法

### 技術分野

[0001] 本発明は、熱可塑性樹脂組成物等に関する。本発明は、特に、光学材料に適した熱可塑性樹脂組成物、熱可塑性樹脂組成物を含む成形体、熱可塑性樹脂組成物の製造方法、透過率向上方法等に関する。

### 背景技術

[0002] 従来、熱可塑性樹脂においては、酸化防止剤や離型剤などの添加剤を添加することによって加工時の安定性や離型性を確保することが行われている。例えば、樹脂に対して酸化防止剤を添加し、加工時の安定性を向上させることが知られている（例えば、特許文献1及び2）。

しかしながら、これらの添加剤の添加によって、本来の樹脂の性能を損なう場合があった。例えば、光学材料としての熱可塑性樹脂においては、極めて重要である短波長域の透過率が添加剤の添加によって低下してしまう問題があった。

[0003] 光学材料としての熱可塑性樹脂における短波長域の透過率のわずかな変化が、実用化された製品に大きな影響を与えることがある。このため、光学材料としての熱可塑性樹脂の本来の透過率を製品化後も維持できる樹脂組成物が求められていたものの、透過率の変化を確実に抑制できるものは実現されていなかった。

### 先行技術文献

#### 特許文献

[0004] 特許文献1：特開平7-233160号公報

特許文献2：WO99/67232

### 発明の開示

## 発明が解決しようとする課題

[0005] 本発明の主な課題として、製品化のための添加剤の添加等によっても透過率の変化、特に、短波長域の透過率の変化を抑えられる熱可塑性樹脂組成物、例えば、光学材料として好適に用いられる熱可塑性樹脂組成物等を提供することが挙げられる。

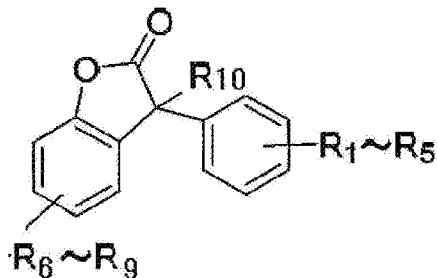
## 課題を解決するための手段

[0006] 本発明者らは、特定のラクトン系化合物を配合した熱可塑性樹脂組成物が、添加剤の共存下においても、特に短波長域における透過率が良好なまま維持されることを見出した。

[0007] 本発明は、以下のものを含む。

<1>下記一般式(1)で表される配合剤を含む、熱可塑性樹脂組成物。

[化1]



(1)

(一般式(1)中、

$R_1 \sim R_5$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1~20のアルキル基あるいはアルコキシ基、又は、下記一般式(1-1)の構造式を表し、但し、 $R_1 \sim R_5$ の少なくともいずれかは、下記一般式(1-1)の構造式であり、

$R_6 \sim R_9$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1~20のアルキル基あるいはアルコキシ基を表し、

$R_{10}$ は、水素原子、又は、合計炭素数1~5のアルキル基を表す。)



$R_{19c}$ 、 $R_{19d}$ 、 $R_{19e}$ および $R_{19f}$ は、それぞれ独立に、水素原子、合計炭素数1～20のアルキル基またはアルコキシ基を表し、

式(L1)及び(L2)において、

\*は、それぞれ、前記式(1)における $R_1$ ～ $R_5$ を含むベンゼン環との結合位置を表し、

\*\*は、それぞれ、前記式(1-1)における $R_{11}$ ～ $R_{14}$ を含むベンゼン環との結合位置を表す。) )

$R_{20}$ は、水素原子、又は、置換基を有してもよい合計炭素数1～5のアルキル基を表し、

\*は、前記式(1)における $R_1$ ～ $R_5$ を含むベンゼン環との結合位置を表す。) )

<2>酸化防止剤をさらに含む、上記<1>に記載の熱可塑性樹脂組成物。

<3>前記酸化防止剤が、フェノール系酸化防止剤及び/又はホスファイト系酸化防止剤である、上記<2>に記載の熱可塑性樹脂組成物。

<4>前記酸化防止剤が、前記樹脂組成物の全重量を基準として1重量ppm～3000重量ppm含まれる、上記<2>又は<3>に記載の熱可塑性樹脂組成物。

<5>前記配合剤が、前記樹脂組成物の全重量を基準として1重量ppm～2000重量ppm含まれる、上記<1>～<4>のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。

<6>前記配合剤を含まない以外は同じ組成を有する対象用樹脂組成物に比べて、JIS K7105に準拠した波長370nm～400nmにおける透過率(%)の値が2.0(%)以上大きい、上記<1>～<5>のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。

<7>前記配合剤を含まない以外は同じ組成を有する対象用樹脂組成物に比べて、JIS K7105に準拠した波長370nm～400nmにおける透過率(%)の値が1.1倍以上である、上記<1>～<6>のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。

<8>前記配合剤を含まない以外は同じ組成を有する対象用樹脂組成物に比べて、250℃で5分間加熱したときに生じる揮発成分の量が少なく、

前記揮発成分が、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、アセトン、2,3-ブタンジオン、酢酸及び蟻酸のいずれかである、上記<1>~<7>のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。

<9>前記配合剤を含まない以外は同じ組成を有する対象用樹脂組成物に比べて、JIS K7105に準拠したYI値が0.20以上小さい、上記<1>~<8>のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。

<10>前記一般式(1)において、

$R_1 \sim R_5$ のうち4つが水素原子であり、1つが前記一般式(1-1)の構造式で表される部位であり、

$R_6 \sim R_9$ のうち2つが水素原子であり、2つがアルキル基であり、

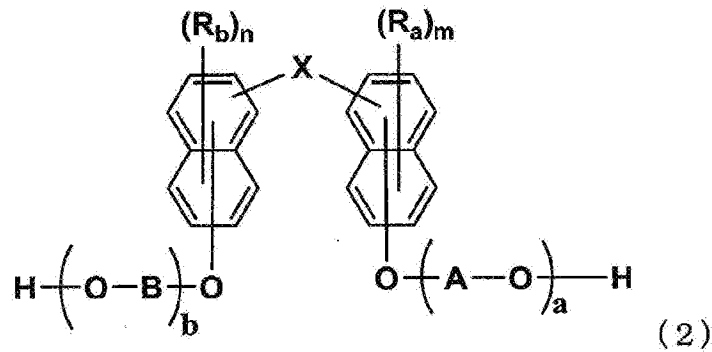
$R_{10}$ が水素原子である、上記<1>~<9>のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。

<11>前記一般式(1)及び一般式(1-1)において、前記置換基が、ハロゲン、シアノ基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基のいずれかである、上記<1>~<10>のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。

<12>熱可塑性樹脂をさらに有し、前記熱可塑性樹脂が、ポリカーボネート樹脂、ポリエステル樹脂、ポリエステルカーボネート樹脂、シクロオレフィン系樹脂、ならびにアクリル樹脂からなる群より選択される、上記<1>~<11>のいずれか一項に記載の熱可塑性樹脂組成物。

<13>前記熱可塑性樹脂が、下記一般式(2)で表されるモノマー由来の構成単位(B)及び/又は下記一般式(3)で表されるモノマー由来の構成単位(C)を含むポリカーボネート樹脂、ポリエステル樹脂、又は、ポリエステルカーボネート樹脂である、上記<12>に記載の熱可塑性樹脂組成物。

[化4]



(一般式(2)中、

$R_a$ 及び $R_b$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換基を有してもよい炭素数1～20のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1～20のアルコキシル基、置換基を有してもよい炭素数5～20のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数5～20のシクロアルコキシル基、置換基を有してもよい炭素数6～20のアリール基、O、N及びSから選択される1つ以上のヘテロ環原子を含む、置換基を有してもよい炭素数6～20のヘテロアリール基、置換基を有してもよい炭素数6～20のアリールオキシ基、及び、 $-\text{C}\equiv\text{C}-R_n$ からなる群より選択され、

$R_n$ は置換基を有してもよい炭素数6～20のアリール基、又は、O、N及びSから選択される1つ以上のヘテロ環原子を含む、置換基を有してもよい炭素数6～20のヘテロアリール基を表し、

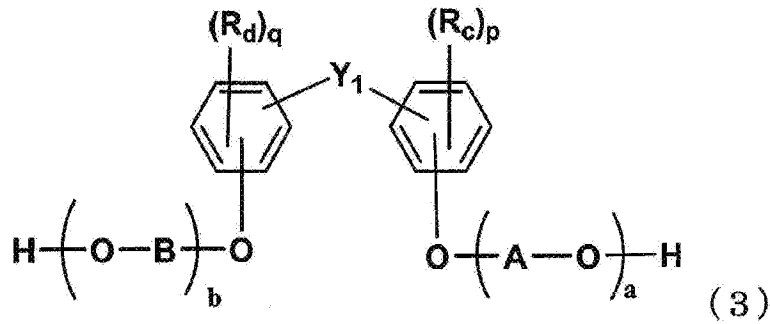
Xは、単結合であるか、又は置換基を有してもよいフルオレン基を表し、

A及びBは、それぞれ独立に、置換基を有してもよい炭素数1～5のアルキレン基を表し、

m及びnは、それぞれ独立に、0～6の整数を表し、

a及びbは、それぞれ独立に、0～10の整数を表す。) )

[化5]

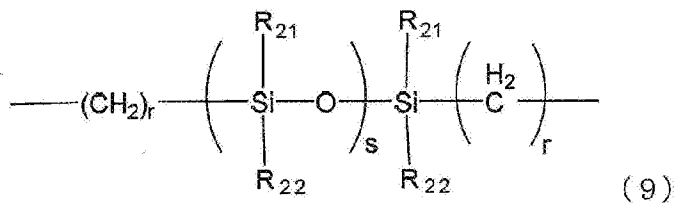
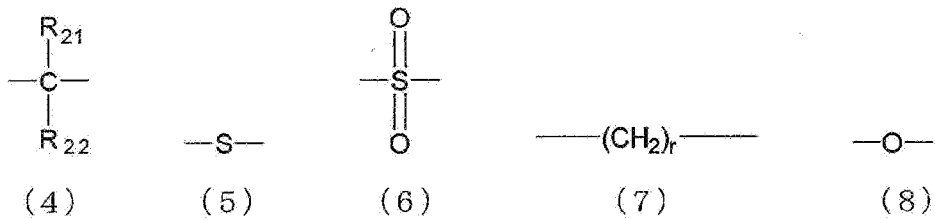


(一般式 (3) 中、

R<sub>c</sub>及びR<sub>d</sub>は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換基を有してもよい炭素数1～20のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1～20のアルコキシル基、置換基を有してもよい炭素数5～20のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数5～20のシクロアルコキシル基、及び、置換基を有してもよい炭素数6～20のアリール基からなる群より選択され、

Y<sub>1</sub>は、単結合、置換基を有してもよいフルオレン基、又は下記一般式(4)～(9)で表される構造式のうちいずれかであり、

[化6]



(一般式 (4) ～ (9) 中、

R<sub>21</sub>及びR<sub>22</sub>は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、置換基を有してもよい炭素数1～20のアルキル基、又は、置換基を有してもよい炭

素数6～30のアリール基を表すか、あるいは、 $R_{21}$ 及び $R_{22}$ が互いに結合して形成する、置換基を有してもよい炭素数1～20の炭素環または複素環を表し、

$r$ 及び $s$ は、それぞれ独立して、0～5000の整数を表し

$A$ 及び $B$ は、それぞれ独立に、置換基を有してもよい炭素数1～5のアルキレン基を表し、

$p$ 及び $q$ は、それぞれ独立に、0～4の整数を表し、

$a$ 及び $b$ は、それぞれ独立に、0～10の整数を表す。）

<14>前記熱可塑性樹脂のポリスチレン換算の重量平均分子量(Mw)が、10,000～300,000である、上記<12>及び<13>のいずれか一項に記載の熱可塑性樹脂組成物。

<15>前記一般式(2)及び一般式(3)において、前記 $A$ 及び $B$ が、それぞれ独立に、炭素数2又は3のアルキレン基を表す、上記<13>及び<14>のいずれか一項に記載の熱可塑性樹脂組成物。

<16>前記熱可塑性樹脂が、少なくとも、BPEF、BNE、BNEF及びDPBHNAのいずれかに由来する構成単位を含む、上記<12>～<15>のいずれか一項に記載の熱可塑性樹脂組成物。

<17>触媒失活剤をさらに含む、上記<1>～<16>のいずれか一項に記載の熱可塑性樹脂組成物。

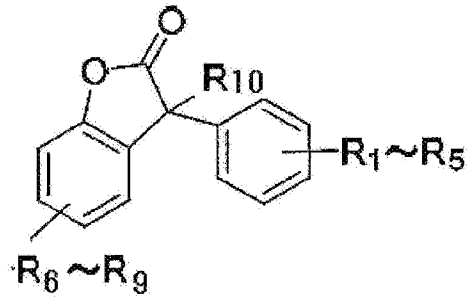
<18>前記触媒失活剤が、ドデシルベンゼンスルホン酸塩を含む、上記<17>に記載の熱可塑性樹脂組成物。

<19>離型剤をさらに含む、上記<1>～<18>のいずれか一項に記載の熱可塑性樹脂組成物。

<20>前記離型剤が、前記樹脂組成物の全重量を基準として1重量ppm～5000重量ppm含まれる、上記<19>に記載の熱可塑性樹脂組成物。

<21>波長370nm～400nmにおける透過率(%)の値を向上させるための下記一般式(1)で表される配合剤を含む、熱可塑性樹脂組成物。

[化7]



(1)

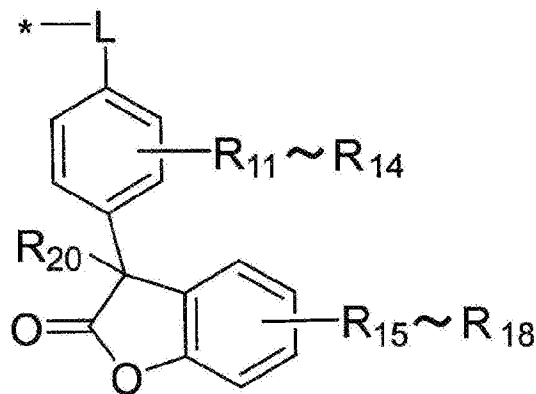
(一般式 (1) 中、

$R_1 \sim R_5$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1～20のアルキル基あるいはアルコキシ基、又は、下記一般式(1-1)の構造式を表し、但し、 $R_1 \sim R_5$ の少なくともいずれかは、下記一般式(1-1)の構造式であり、

$R_6 \sim R_9$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1～20のアルキル基あるいはアルコキシ基を表し、

$R_{10}$ は、水素原子、又は、合計炭素数1～5のアルキル基を表す。) )

[化8]



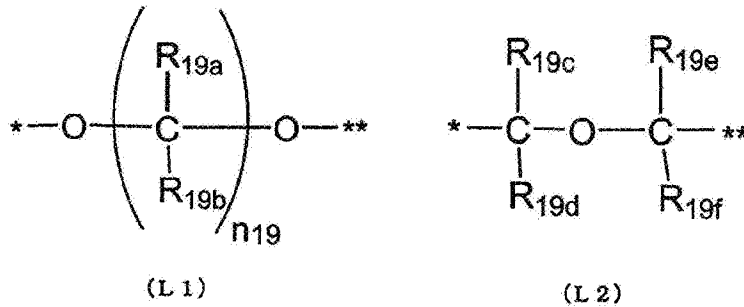
(1-1)

(一般式 (1-1) 中、

$R_{11} \sim R_{18}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1～20のアルキル基あるいはアルコキシ基を表し、

Lは、下記一般式(L1)または(L2)で表される部位であり、

[化9]



(式 (L 1) 中、

$R_{19a}$  および  $R_{19b}$  は、それぞれ独立に、水素原子、合計炭素数 1 ~ 20 のアルキル基またはアルコキシ基を表し、

$n_{19}$  は、1 ~ 12 の整数を表し、 $n_{19}$  が 2 ~ 12 の整数である場合、複数の  $R_{19a}$  は、それぞれ同一の置換基であっても異なる置換基であってもよく、複数の  $R_{19b}$  は、それぞれ同一の置換基であっても異なる置換基であってもよく、

式 (L 2) 中、

$R_{19c}$ 、 $R_{19d}$ 、 $R_{19e}$  および  $R_{19f}$  は、それぞれ独立に、水素原子、合計炭素数 1 ~ 20 のアルキル基またはアルコキシ基を表し、

式 (L 1) 及び (L 2) において、

\* は、それぞれ、前記式 (1) における  $R_1 \sim R_5$  を含むベンゼン環との結合位置を表し、

\*\* は、それぞれ、前記式 (1-1) における  $R_{11} \sim R_{14}$  を含むベンゼン環との結合位置を表す。) )

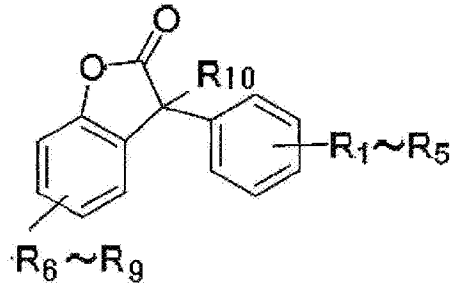
$R_{20}$  は、水素原子、又は、置換基を有してもよい合計炭素数 1 ~ 5 のアルキル基を表し、

\* は、前記式 (1) における  $R_1 \sim R_5$  を含むベンゼン環との結合位置を表す。) )

[0008] < 2 2 > 上記 < 1 > ~ < 2 1 > のいずれか一項に記載の熱可塑性樹脂組成物を含む、成形体。

<23> 下記一般式(1)で表される配合剤を熱可塑性樹脂に添加する工程を含む、熱可塑性樹脂組成物の製造方法。

[化10]



(1)

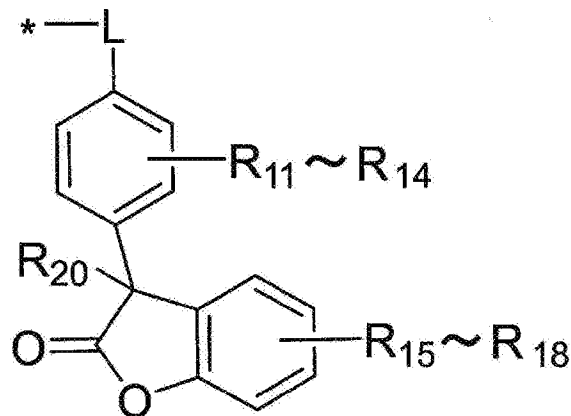
(一般式(1)中、

$R_1 \sim R_5$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1～20のアルキル基あるいはアルコキシ基、又は、下記一般式(1-1)の構造式を表し、但し、 $R_1 \sim R_5$ の少なくともいずれかは、下記一般式(1-1)の構造式であり、

$R_6 \sim R_9$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1～20のアルキル基あるいはアルコキシ基を表し、

$R_{10}$ は、水素原子、又は、合計炭素数1～5のアルキル基を表す。)

[化11]



(1-1)

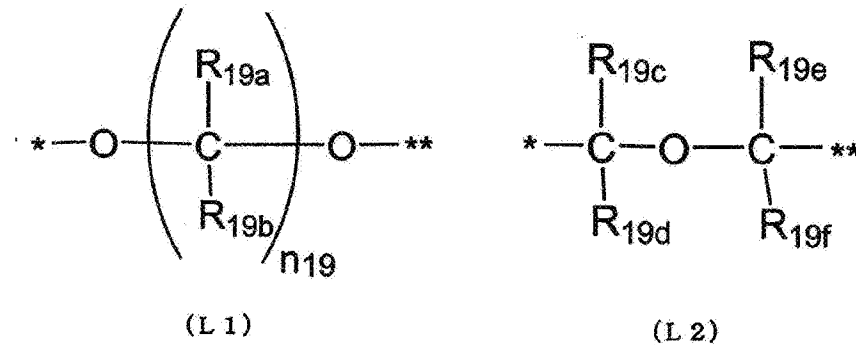
(一般式(1-1)中、

$R_{11} \sim R_{18}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭

素数 1 ~ 20 のアルキル基あるいはアルコキシ基を表し、

L は、下記一般式 (L 1) または (L 2) で表される部位であり、

[化12]



(式 (L 1) 中、

$\text{R}_{19\text{a}}$  および  $\text{R}_{19\text{b}}$  は、それぞれ独立に、水素原子、合計炭素数 1 ~ 20 のアルキル基またはアルコキシ基を表し、

$n_{19}$  は、1 ~ 12 の整数を表し、 $n_{19}$  が 2 ~ 12 の整数である場合、複数の  $\text{R}_{19\text{a}}$  は、それぞれ同一の置換基であっても異なる置換基であってもよく、複数の  $\text{R}_{19\text{b}}$  は、それぞれ同一の置換基であっても異なる置換基であってもよく、

式 (L 2) 中、

$\text{R}_{19\text{c}}$ 、 $\text{R}_{19\text{d}}$ 、 $\text{R}_{19\text{e}}$  および  $\text{R}_{19\text{f}}$  は、それぞれ独立に、水素原子、合計炭素数 1 ~ 20 のアルキル基またはアルコキシ基を表し、

式 (L 1) 及び (L 2) において、

\* は、それぞれ、前記式 (1) における  $\text{R}_1 \sim \text{R}_5$  を含むベンゼン環との結合位置を表し、

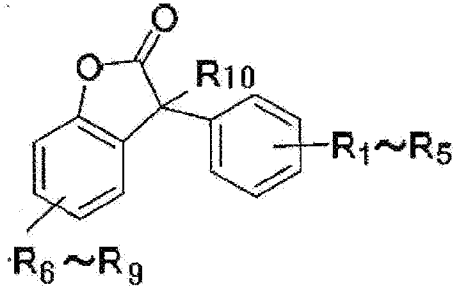
\*\* は、それぞれ、前記式 (1-1) における  $\text{R}_{11} \sim \text{R}_{14}$  を含むベンゼン環との結合位置を表す。) )

$\text{R}_{20}$  は、水素原子、又は、置換基を有してもよい合計炭素数 1 ~ 5 のアルキル基を表し、

\* は、前記式 (1) における  $\text{R}_1 \sim \text{R}_5$  を含むベンゼン環との結合位置を表す。) )

<24> 下記一般式(1)で表される配合剤を熱可塑性樹脂に添加する工程を含む、熱可塑性樹脂組成物の透過率向上方法。

[化13]



(1)

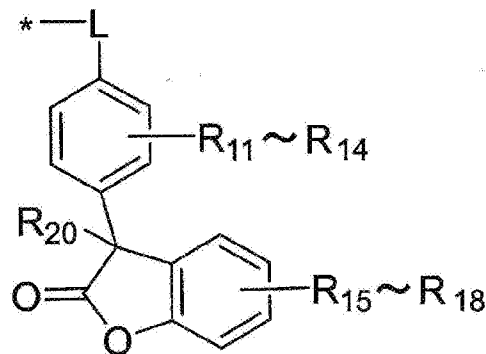
(一般式(1)中、

$R_1 \sim R_5$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1~20のアルキル基あるいはアルコキシ基、又は、下記一般式(1-1)の構造式を表し、但し、 $R_1 \sim R_5$ の少なくともいずれかは、下記一般式(1-1)の構造式であり、

$R_6 \sim R_9$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1~20のアルキル基あるいはアルコキシ基を表し、

$R_{10}$ は、水素原子、又は、合計炭素数1~5のアルキル基を表す。)

[化14]



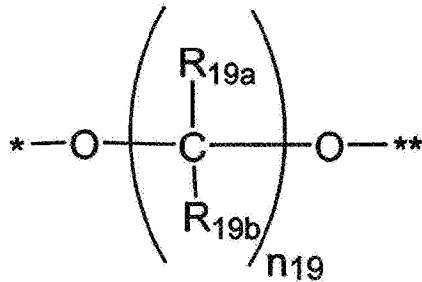
(1-1)

(一般式(1-1)中、

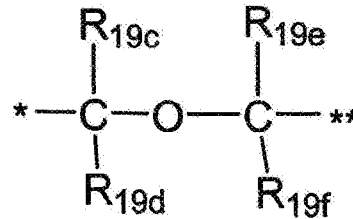
$R_{11} \sim R_{18}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1~20のアルキル基あるいはアルコキシ基を表し、

Lは、下記一般式（L1）または（L2）で表される部位であり、

[化15]



(L1)



(L2)

（式（L1）中、

$R_{19a}$ および $R_{19b}$ は、それぞれ独立に、水素原子、合計炭素数1～20のアルキル基またはアルコキシ基を表し、

$n_{19}$ は、1～12の整数を表し、 $n_{19}$ が2～12の整数である場合、複数の $R_{19a}$ は、それぞれ同一の置換基であっても異なる置換基であってもよく、複数の $R_{19b}$ は、それぞれ同一の置換基であっても異なる置換基であってもよく、

式（L2）中、

$R_{19c}$ 、 $R_{19d}$ 、 $R_{19e}$ および $R_{19f}$ は、それぞれ独立に、水素原子、合計炭素数1～20のアルキル基またはアルコキシ基を表し、

式（L1）及び（L2）において、

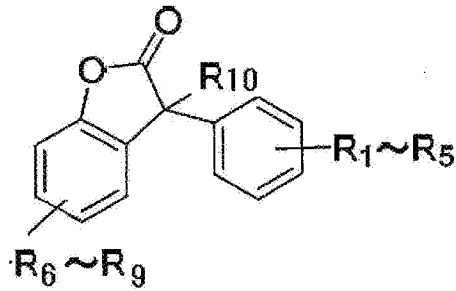
\*は、それぞれ、前記式（1）における $R_1 \sim R_5$ を含むベンゼン環との結合位置を表し、

\*\*は、それぞれ、前記式（1-1）における $R_{11} \sim R_{14}$ を含むベンゼン環との結合位置を表す。） $R_{20}$ は、水素原子、又は、置換基を有してもよい合計炭素数1～5のアルキル基を表し、

\*は、前記式（1）における $R_1 \sim R_5$ を含むベンゼン環との結合位置を表す。）

<25>下記一般式（1）で表される配合剤を熱可塑性樹脂に添加する工程を含む、熱可塑性樹脂組成物の色相の向上方法。

[化16]



(1)

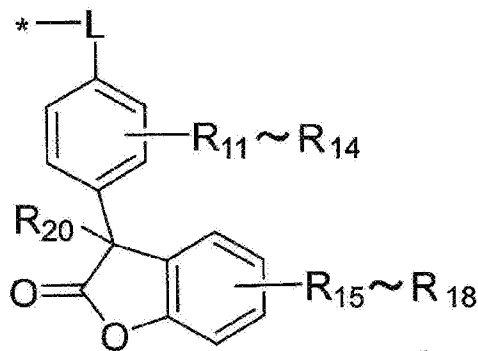
(一般式 (1) 中、

$R_1 \sim R_5$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1～20のアルキル基あるいはアルコキシ基、又は、下記一般式(1-1)の構造式を表し、但し、 $R_1 \sim R_5$ の少なくともいずれかは、下記一般式(1-1)の構造式であり、

$R_6 \sim R_9$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1～20のアルキル基あるいはアルコキシ基を表し、

$R_{10}$ は、水素原子、又は、合計炭素数1～5のアルキル基を表す。) )

[化17]



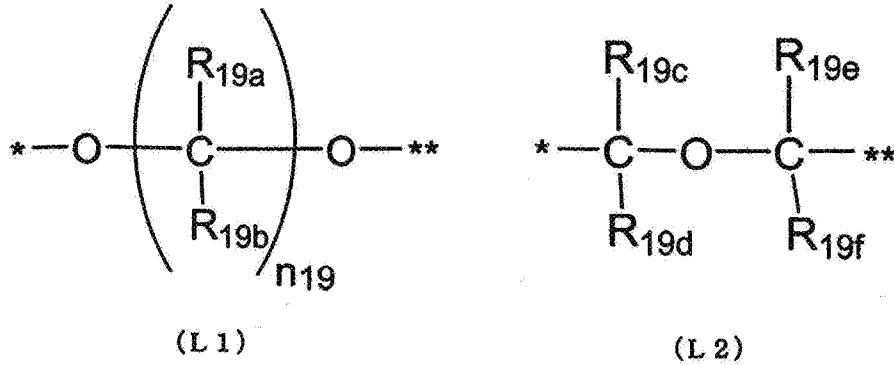
(1-1)

(一般式 (1-1) 中、

$R_{11} \sim R_{18}$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1～20のアルキル基あるいはアルコキシ基を表し、

Lは、下記一般式(L1)または(L2)で表される部位であり、

[化18]



(式 (L1) 中、

$R_{19a}$  および  $R_{19b}$  は、それぞれ独立に、水素原子、合計炭素数 1 ~ 20 のアルキル基またはアルコキシ基を表し、

$n_{19}$  は、1 ~ 12 の整数を表し、 $n_{19}$  が 2 ~ 12 の整数である場合、複数の  $R_{19a}$  は、それぞれ同一の置換基であっても異なる置換基であってもよく、複数の  $R_{19b}$  は、それぞれ同一の置換基であっても異なる置換基であってもよく、

式 (L2) 中、

$R_{19c}$ 、 $R_{19d}$ 、 $R_{19e}$  および  $R_{19f}$  は、それぞれ独立に、水素原子、合計炭素数 1 ~ 20 のアルキル基またはアルコキシ基を表し、

式 (L1) 及び (L2) において、

\* は、それぞれ、前記式 (1) における  $R_1 \sim R_5$  を含むベンゼン環との結合位置を表し、

\*\* は、それぞれ、前記式 (1-1) における  $R_{11} \sim R_{14}$  を含むベンゼン環との結合位置を表す。) )

$R_{20}$  は、水素原子、又は、置換基を有してもよい合計炭素数 1 ~ 5 のアルキル基を表し、

\* は、前記式 (1) における  $R_1 \sim R_5$  を含むベンゼン環との結合位置を表す。) )

**発明の効果**

[0009] 本発明の熱可塑性樹脂組成物は、上述のように、所定の配合剤を含み、特に低波長域の透過率を良好なレベルに維持することができる。例えば、酸化防止剤や離型剤を添加すると、従来の熱可塑性樹脂組成物においては透過率の低下が認められる傾向にあることが明らかになったが、本発明の熱可塑性樹脂組成物においては、添加剤などを添加しても、特に低波長域の透過率の低下を防止できる。このような熱可塑性樹脂組成物は、特に、光学材料等として適している。

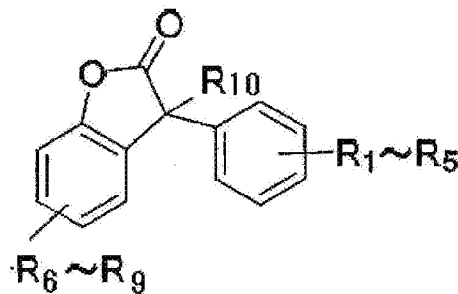
[0010] [1. 熱可塑性樹脂組成物の成分]

以下、熱可塑性樹脂組成物の成分について説明する。

[0011] [1-1. 配合剤]

熱可塑性樹脂組成物は、一般式(1)で表される配合剤を含む。一般式(1)で表される配合剤は、熱可塑性樹脂組成物の透過率、特に、低波長における透過率の値を向上させるために用いられる。

[化19]



(1)

一般式(1)において、R<sub>1</sub>~R<sub>5</sub>は、それぞれ独立に、水素原子、又は、置換基を有してもよい合計炭素数1~20のアルキル基、あるいは置換基を有してもよい合計炭素数1~20のアルコキシ基を表す。R<sub>1</sub>~R<sub>5</sub>は、好ましくは、水素原子、又は、置換基を有してもよい合計炭素数1~10のアルキル基、あるいは置換基を有してもよい合計炭素数1~10のアルコキシ基であり、置換基を有してもよいアルキル基及びアルコキシ基の合計炭素数は、それぞれ、より好ましくは1~5であり、さらに好ましくは1~3であり、アルキル基は例えばメチル基である。

また、一般式(1)の $R_1 \sim R_5$ のうち、2~4つが水素原子、1~3つがアルキル基であることが好ましく、3つが水素原子、2つがアルキル基であることがより好ましい。

[0012] 一般式(1)において、 $R_6 \sim R_9$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1~20のアルキル基、あるいは置換基を有してもよい合計炭素数1~20のアルコキシ基を表す。 $R_6 \sim R_9$ は、好ましくは、水素原子、又は置換基を有してもよい合計炭素数1~10のアルキル基、あるいは置換基を有してもよい合計炭素数1~10のアルコキシ基であり、置換基を有してもよいアルキル基及びアルコキシ基の合計炭素数は、それぞれ、より好ましくは1~8であり、さらに好ましくは1~5であり、アルキル基は例えば $t$ -ブチル基である。

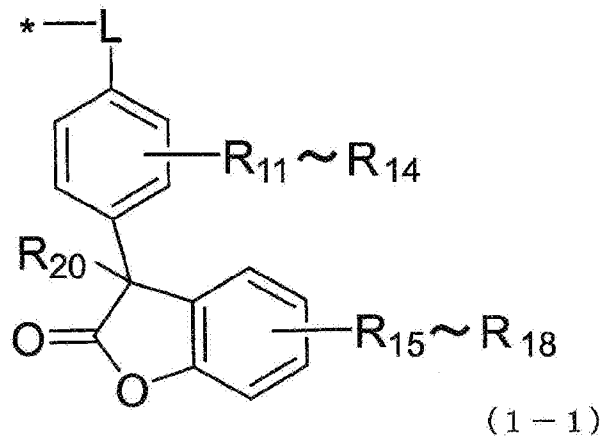
また、一般式(1)の $R_6 \sim R_9$ のうち、1~3つが水素原子、1~3つがアルキル基であることが好ましく、2つが水素原子、2つがアルキル基であることがより好ましい。

[0013] 一般式(1)において、 $R_{10}$ は、水素原子、又は、合計炭素数1~5のアルキル基を表す。 $R_{10}$ は、好ましくは、水素原子、又は置換基を有してもよい合計炭素数1~3のアルキル基であり、置換基を有してもよいアルキル基の合計炭素数は、より好ましくは1又は2である。 $R_{10}$ は、より好ましくは、水素原子である。

一般式(1)において、 $R_{10}$ に結合する炭素原子は不斉炭素であるが、一般式(1)の配合剤は、ラセミ体であっても光学活性体であってよい。

[0014] 上述のように、一般式(1)における $R_1 \sim R_5$ のうち、少なくともいずれか一つは、下記一般式(1-1)で表される構造式である。

[化20]



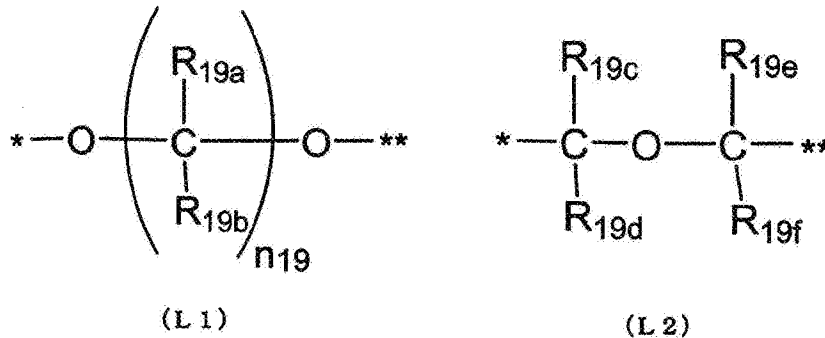
[0015] 一般式(1-1)中、 $R_{11} \sim R_{14}$ は、それぞれ独立に、水素原子、又は、置換基を有してもよい合計炭素数1~20のアルキル基、あるいは置換基を有してもよい合計炭素数1~20のアルコキシ基を表す。これらの置換基のうち、 $R_{11} \sim R_{14}$ は、好ましくは、水素原子、又は置換基を有してもよい合計炭素数1~10のアルキル基、あるいは置換基を有してもよい合計炭素数1~10のアルコキシ基であり、置換基を有してもよいアルキル基及びアルコキシ基の合計炭素数は、それぞれ、より好ましくは1~5であり、さらに好ましくは1~3である。 $R_{11} \sim R_{14}$ は、より好ましくは、水素原子である。

[0016] 一般式(1-1)の $R_{11} \sim R_{18}$ のうち、 $R_{15} \sim R_{18}$ は、好ましくは、水素原子、又は置換基を有してもよい合計炭素数1~10のアルキル基、あるいは置換基を有してもよい合計炭素数1~10のアルコキシ基であり、置換基を有してもよいアルキル基及びアルコキシ基の合計炭素数は、それぞれ、より好ましくは1~8であり、さらに好ましくは1~5であり、 $R_{15} \sim R_{18}$ の表すアルキル基は、例えば $t$ -ブチル基である。

また、一般式(1)の $R_{15} \sim R_{18}$ のうち、1~3つが水素原子、1~3つがアルキル基であることが好ましく、2つが水素原子、2つがアルキル基であることがより好ましい。

[0017] 一般式(1-1)において、Lは、下記一般式(L1)または(L2)で表される部位である。

[化21]



式 (L1) において、 $R_{19a}$  および  $R_{19b}$  は、それぞれ独立に、水素原子、合計炭素数 1～20 のアルキル基またはアルコキシ基を表す。 $R_{19a}$  および  $R_{19b}$  は、好ましくは、水素原子、又は置換基を有してもよい合計炭素数 1～5 のアルキル基、あるいは置換基を有してもよい合計炭素数 1～5 のアルコキシ基である。置換基を有してもよいアルキル基及びアルコキシ基の合計炭素数は、それぞれ、より好ましくは 1～3 であり、さらに好ましくは 1 または 2 である。 $R_{19a}$  および  $R_{19b}$  は、より好ましくは、水素原子である。

$n_{19}$  は、1～12 の整数を表し、 $n_{19}$  が 2～12 の整数である場合、複数の  $R_{19a}$  は、それぞれ同一の置換基であっても異なる置換基であってもよく、複数の  $R_{19b}$  についても同様に、それぞれ同一の置換基であっても異なる置換基であってもよい。 $n_{19}$  は、好ましくは 1～6 であり、より好ましくは 1～4、例えば 2 又は 3 である。

式 (L2) において、 $R_{19c}$ 、 $R_{19d}$ 、 $R_{19e}$  および  $R_{19f}$  は、それぞれ独立に、水素原子、合計炭素数 1～20 のアルキル基またはアルコキシ基を表す。 $R_{19c}$ 、 $R_{19d}$ 、 $R_{19e}$  および  $R_{19f}$  は、それぞれ独立に、好ましくは、水素原子、又は置換基を有してもよい合計炭素数 1～5 のアルキル基、あるいは置換基を有してもよい合計炭素数 1～5 のアルコキシ基である。置換基を有してもよいアルキル基及びアルコキシ基の合計炭素数は、それぞれ、より好ましくは 1～3 であり、さらに好ましくは 1 または 2 である。 $R_{19c}$ 、 $R_{19d}$ 、 $R_{19e}$  および  $R_{19f}$  は、より好ましくは、水素原子である。

式 (L1) 及び (L2) において、\* は、それぞれ独立に、式 (1) にお

ける  $R_1 \sim R_5$  を含むベンゼン環に対する  $L$  の結合位置を表す。すなわち、式 (L 1) 及び (L 2) における  $*$  は、式 (1-1) における  $*$  と同じ結合位置を表すものであり、式 (1-1) の端部の結合位置を示す。

式 (L 1) 及び (L 2) において、 $**$  は、それぞれ独立に、式 (1-1) における  $R_{11} \sim R_{14}$  を含むベンゼン環に対する  $L$  の結合位置を表す。

[0018] 一般式 (1-1) において、 $R_{20}$  は、水素原子、又は、合計炭素数 1~5 のアルキル基を表す。 $R_{20}$  は、好ましくは、水素原子、又は置換基を有してもよい合計炭素数 1~3 のアルキル基であり、置換基を有してもよいアルキル基の合計炭素数は、より好ましくは 1 又は 2 である。 $R_{20}$  は、より好ましくは、水素原子である。

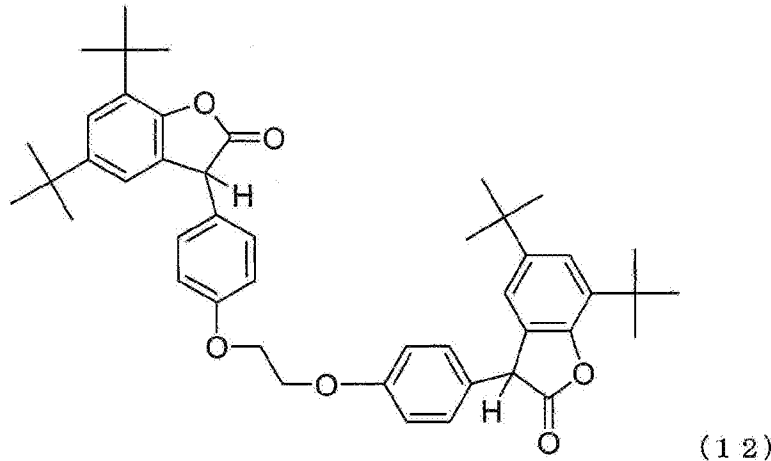
一般式 (1) において、 $R_{20}$  に結合する炭素原子は不斉炭素であるが、一般式 (1-1) の部位を含む配合剤は、ラセミ体であっても光学活性体であってよい。

[0019] 一般式 (1) における  $R_1 \sim R_5$  のうち、好ましくは、1 つまたは 2 つが上記一般式 (1-1) で表される構造式であり、より好ましくは、 $R_1 \sim R_5$  のうち 1 つのみが上記一般式 (1-1) で表される構造式である。

[0020] 一般式 (1) 及び (1-1) における上述の置換基は、例えば、ハロゲン、シアノ基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基のいずれかである。

一般式 (1) の配合剤の具体例として、以下の式 (1 2) の化合物、及び、そのいずれかの光学活性体、それらの混合物、例えばラセミ体等が挙げられる。

[化22]



[0021] 熱可塑性樹脂組成物において、配合剤は、熱可塑性樹脂組成物の全重量を基準として1重量ppm～2000重量ppm含まれることが好ましい。熱可塑性樹脂組成物における配合剤の含有量は、より好ましくは10重量ppm～1000重量ppmであり、さらに好ましくは50重量ppm～800重量ppmであり、特に好ましくは50重量ppm～500重量ppmであり、より一段と好ましくは100重量ppm～300重量ppmである。

[0022] 熱可塑性樹脂組成物は、上述の配合剤に加え、さらに、以下の添加剤を含んでいてもよい。

#### [1-2. 酸化防止剤]

熱可塑性樹脂組成物は、酸化防止剤を含むことが好ましい。

酸化防止剤として、フェノール系酸化防止剤及びホスファイト系酸化防止剤の少なくともいずれかが好ましい。

フェノール系酸化防止剤として、1, 3, 5-トリス(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニルメチル)-2, 4, 6-トリメチルベンゼン、1, 3, 5-トリス(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-1, 3, 5-トリアジネ-2, 4, 6(1H, 3H, 5H)-トリオン、4, 4', 4''-(1-メチルプロパニル-3-イリデン)トリス(6-tert-ブチル-m-クレゾール)、6, 6'-ジ-tert-ブチル-4, 4'-ブチリデンジ-m-クレゾール、オクラデシ

ル3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、ペンタエリスリトール-テトラキス[3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、3,9-ビス{2-[3-(3-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)プロピオニルオキシ]-1,1-ジメチルエチル}-2,4,8,10-テトラオキソスピロ[5.5]ウンデカン、ペンタエリスリトール-テトラキス[3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]等が挙げられ、好ましくは、ペンタエリスリトール-テトラキス[3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]である。

ホスファイト系酸化防止剤として、2-エチルヘキシルジフェニルフォスファイト、イソデシルジフェニルフォスファイト、トリイソデシルフォスファイト、トリフェニルフォスファイト、3,9-ビス(オクタデシルオキシ)-2,4,8,10-テトラオキシ-3,9-ジフォスファスピロ[5.5]ウンデカン、3,9-ビス(2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノキシ)-2,4,8,10-テトラオキサ-3,9-ジフォスファスピロ[5.5]ウンデカン、2,2'-メチルエンビス(4,6-ジ-tert-ブチルフェニル)2-エチルヘキシルフォスファイト、トリス(2,4-ジ-tert-ブチルフェニル)フォスファイト、トリス(ノニルフェニル)フォスファイト、テトラ-C<sub>12-15</sub>-アルキル(プロパン-2,2-ジイルビス(4,1-フェニルエン))ビス(フォスファイト)、3,9-ビス(2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノキシ)-2,4,8,10-テトラオキサ-3,9-ジフォスファスピロ[5.5]ウンデカン等が挙げられ、好ましくは、3,9-ビス(2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノキシ)-2,4,8,10-テトラオキサ-3,9-ジフォスファスピロ[5.5]ウンデカンである。

酸化防止剤として、上述のいずれか1種類のみを用いても、2種類以上の混合物を用いてもよい。

[0023] 熱可塑性樹脂組成物において、酸化防止剤は、樹脂組成物の全重量を基準として1重量ppm～3000重量ppm含まれることが好ましい。熱可塑性樹脂組成物における酸化防止剤の含有量は、より好ましくは50重量ppm～2500重量ppmであり、さらに好ましくは100重量ppm～2000重量ppmであり、特に好ましくは150重量ppm～1500重量ppmであり、より一段と好ましくは200重量ppm～1200重量ppmである。

[0024] [1-3. 離型剤]

熱可塑性樹脂組成物は、離型剤を含むことが好ましい。

離型剤として、エステル化合物、例えば、グリセリン脂肪酸のモノ・ジグリセリド等のグリセリン脂肪酸エステル、プロピレングリコール脂肪酸エステル、ソルビタン脂肪酸エステル等のグリコール脂肪酸エステル、高級アルコール脂肪酸エステル、脂肪族多価アルコールと脂肪族カルボン酸とのフルエステルあるいはモノ脂肪酸エステル等が挙げられる。離型剤として、脂肪族多価アルコールと脂肪族カルボン酸とのエステルを用いる場合、モノエステル、フルエステル等、いずれも採用できるが、例えばモノエステル等のフルエステル以外であってもよい。

離型剤の具体例として、以下のものが挙げえられる。

すなわち、ソルビタン ステアレート、ソルビタン ラウレート、ソルビタン オレート、ソルビタン トリオレート、ソルビタン トリベヘネート、ソルビタン ステアレート、ソルビタン トリステアレート、ソルビタン カプリレート等のソルビタン脂肪酸エステル；

プロピレングリコール モノステアレート、プロピレングリコール モノオレート、プロピレングリコール モノベヘネート、プロピレングリコール モノラウレート、プロピレングリコール モノパルミテート等のプロピレングリコール脂肪酸エステル；

ステアリル ステアレート等の高級アルコール脂肪酸エステル；

グリセリン モノステアレート、グリセリン モノ12-ヒドロキシステア

レート等のグリセリン モノヒドロキシステアレート、グリセリン モノオレート、グリセリン モノベヘネート、グリセリン モノカプリレート、グリセリン モノカプレート、グリセリン モノラウレート等のモノグリセライド：グリセリンモノ・ジステアレート、グリセリンモノ・ジステアレート、グリセリンモノ・ジベヘネート、グリセリンモノ・ジオレート等のモノ・ジグリセライド：を含む、グリセリン脂肪酸エステルモノグリセライド；

グリセリン ジアセトモノ ラウレート等のグリセリン脂肪酸エステルアセチル化モノグリセライド；

クエン酸脂肪酸 モノグリセライド、コハク酸脂肪酸 モノグリセライド、ジアセチル酒石酸脂肪酸 モノグリセライド等のグリセリン脂肪酸エステル有機酸モノグリセライド；

ジグリセリン ステアレート、ジグリセリン ラウレート、ジグリセリン オレート、ジグリセリン モノステアレート、ジグリセリン モノラウレート、ジグリセリン モノミリステート、ジグリセリン モノオレート、テトラグリセリン ステアレート、デカグリセリン ラウレート、デカグリセリン オレート、ポリグリセリン ポリリシノレート等のポリグリセリン脂肪酸エステル等が挙げられる。

[0025] 熱可塑性樹脂組成物において、離型剤は、樹脂組成物の全重量を基準として1重量ppm～5000重量ppm含まれることが好ましい。熱可塑性樹脂組成物における離型剤の含有量は、より好ましくは50重量ppm～4000重量ppmであり、さらに好ましくは100重量ppm～3500重量ppmであり、特に好ましくは500重量ppm～13000重量ppmであり、より一段と好ましくは1000重量ppm～2500重量ppmである。

[0026] [1-4. 触媒失活剤]

熱可塑性樹脂組成物は、添加剤として、触媒失活剤をさらに含むことが好ましい。触媒失活剤は、硬化性の樹脂組成物の重合のための触媒の活性を失わせて重合反応を停止させる。

触媒失活剤として、安息香酸ブチル等のエステル類；*p*-トルエンスルホン酸等の芳香族スルホン酸類；*p*-トルエンスルホン酸ブチル、*p*-トルエンスルホン酸ヘキシル等の芳香族スルホン酸エステル類；亜リン酸、リン酸、ホスホン酸等のリン酸類；亜リン酸トリフェニル、亜リン酸モノフェニル、亜リン酸ジフェニル、亜リン酸ジエチル、亜リン酸ジ*n*-プロピル、亜リン酸ジ*n*-ブチル、亜リン酸ジ*n*-ヘキシル、亜リン酸ジオクチル、亜リン酸モノオクチル等の亜リン酸エステル類；リン酸トリフェニル、リン酸ジフェニル、リン酸モノフェニル、リン酸ジブチル、リン酸ジオクチル、リン酸モノオクチル等のリン酸エステル類；ジフェニルホスホン酸、ジオクチルホスホン酸、ジブチルホスホン酸等のホスホン酸類；フェニルホスホン酸ジエチル等のホスホン酸エステル類；トリフェニルホスフィン、ビス（ジフェニルホスフィノ）エタン等のホスフィン類；ハウ酸、フェニルハウ酸等のハウ酸類；ドデシルベンゼンスルホン酸テトラブチルホスホニウム塩等の芳香族スルホン酸塩類；ステアリン酸クロライド、塩化ベンゾイル、*p*-トルエンスルホン酸クロライド等の有機ハロゲン化物；ジメチル硫酸等のアルキル硫酸；塩化ベンジル等の有機ハロゲン化物等が好適に用いられる。失活剤の効果、樹脂に対する安定性等の観点から、ドデシルベンゼンスルホン酸テトラブチルホスホニウム塩、*p*-トルエンまたはスルホン酸ブチルが特に好ましい。これらの失活剤は、触媒量に対して0.01～50倍モル、好ましくは0.3～20倍モル使用される。触媒量に対して0.01倍モルより少ないと、失活効果が不十分となり好ましくない。また、触媒量に対して50倍モルより多いと、樹脂の耐熱性が低下し、成形体が着色しやすくなるため好ましくない。

[0027] 熱可塑性樹脂組成物において、触媒失活剤は、樹脂組成物の全重量を基準として1重量ppm～1000重量ppm含まれることが好ましい。熱可塑性樹脂組成物における触媒失活剤の含有量は、より好ましくは3重量ppm～500重量ppmであり、さらに好ましくは5重量ppm～100重量ppmであり、特に好ましくは10重量ppm～50重量ppmである。

触媒失活剤は、好ましくは溶液として、例えば、水溶液として熱可塑性樹脂組成物に添加されてもよい。また、触媒失活剤は、例えば、メタノールやエタノール等のアルコール溶液として、あるいは、フェノール溶液等の有機溶媒の溶液として、熱可塑性樹脂組成物に添加されてもよい。

[0028] [1-5. その他の添加剤]

熱可塑性樹脂組成物には、上述の配合剤、酸化防止剤、離型剤及び触媒失活剤の他にも、添加剤を加えてもよい。例えば、熱可塑性樹脂組成物が含む得る添加剤として、熱安定剤、可塑剤、充填剤、紫外線吸収剤、防錆剤、分散剤、消泡剤、レベリング剤、難燃剤、滑剤、染料、顔料、ブルーイング剤、核剤、透明化剤等が挙げられる。

熱可塑性樹脂組成物における配合剤、酸化防止剤、離型剤及び触媒失活剤以外の添加剤（以下、付加添加剤ともいう）の含有量は、好ましくは10重量ppm～5.0重量%であり、より好ましくは100重量ppm～2.0重量%であり、さらに好ましくは1000重量ppm～1.0重量%であるが、これには限定されない。

上述の添加剤は、透過率に悪影響を与える可能性があり、過剰に添加しないことが好ましく、例えば、合計の添加量は上述の範囲内である。

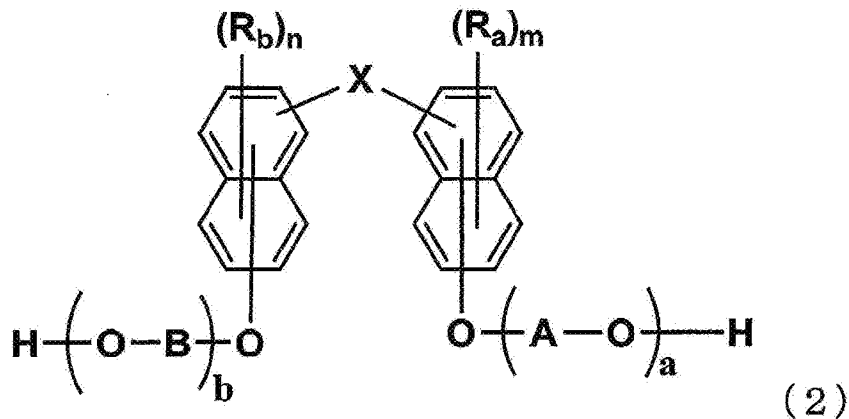
[0029] [1-6. 熱可塑性樹脂]

熱可塑性樹脂組成物は、熱可塑性樹脂を含む。

熱可塑性樹脂は、ポリカーボネート樹脂、ポリエステル樹脂、ポリエステルカーボネート樹脂、シクロオレフィン系樹脂、ならびにアクリル樹脂のいずれか一種以上であることが好ましい。

熱可塑性樹脂は、下記一般式(2)で表されるモノマー由来の構成単位(B)を有するポリカーボネート樹脂、ポリエステル樹脂、又は、ポリエステルカーボネート樹脂を含むことが好ましい。

[化23]



一般式(2)において、 $R_a$ 及び $R_b$ は、それぞれ独立に、ハロゲン原子、置換基を有してもよい炭素数1~20のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1~20のアルコキシル基、置換基を有してもよい炭素数5~20のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数5~20のシクロアルコキシル基、置換基を有してもよい炭素数6~20のアリール基、O、N及びSから選択される1つ以上のヘテロ環原子を含む、置換基を有してもよい炭素数6~20のヘテロアリール基、置換基を有してもよい炭素数6~20のアリールオキシ基、及び、 $-\text{C}\equiv\text{C}-R_n$ からなる群より選択される。 $R_n$ は置換基を有してもよい炭素数6~20のアリール基、又は、O、N及びSから選択される1つ以上のヘテロ環原子を含む、置換基を有してもよい炭素数6~20のヘテロアリール基を表す。

$R_a$ 及び $R_b$ は、好ましくは、水素原子、置換基を有してもよい炭素数6~20のアリール基、O、N及びSから選択される1つ以上のヘテロ環原子を含む、置換基を有してもよい炭素数6~20のヘテロアリール基であり、より好ましくは、水素原子、置換基を有してもよい炭素数6~20のアリール基であり、さらに好ましくは、水素原子、置換基を有してもよい炭素数6~12のアリール基である。

[0030] 一般式(2)において、Xは、単結合であるか、又は置換基を有してもよいフルオレン基を表す。Xは、好ましくは、単結合、又は、合計炭素数が1

2～20の置換基を有してもよいフルオレン基である。

一般式(2)において、A及びBは、それぞれ独立に、置換基を有してもよい炭素数1～5のアルキレン基であり、好ましくは、炭素数2又は3のアルキレン基である。

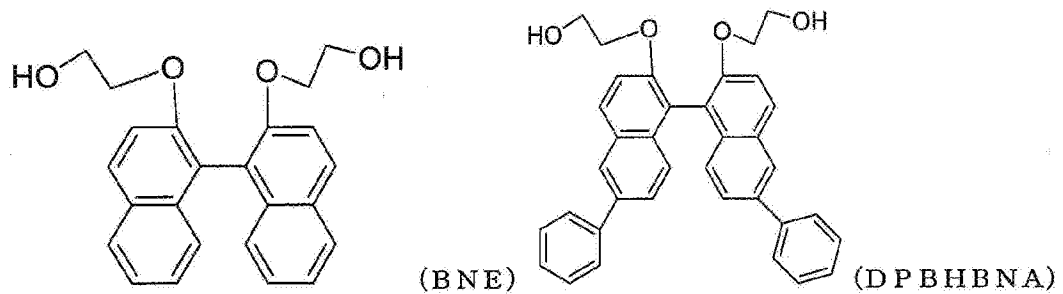
一般式(2)において、m及びnは、それぞれ独立に、0～6の整数であり、好ましくは、0～3の整数であり、より好ましくは、0又は1である。

一般式(2)において、a及びbは、それぞれ独立に、0～10の整数であり、好ましくは、1～3の整数であり、より好ましくは、1又は2である。

。

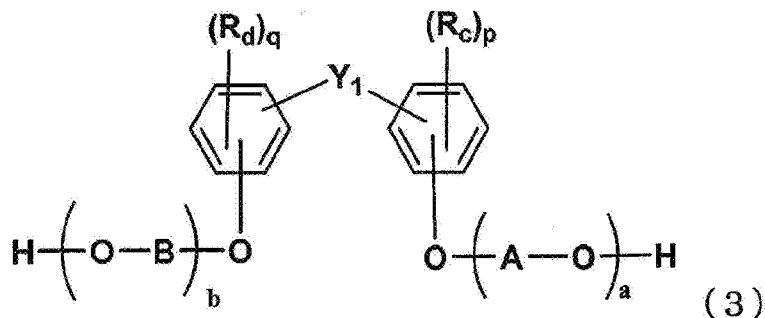
[0031] 構成単位(B)の具体例として、BNE、DPBHBNA等に由来するものが挙げられる。

[化24]



[0032] 熱可塑性樹脂は、下記一般式(3)で表されるモノマー由来の構成単位(C)を有するポリカーボネート樹脂、ポリエステル樹脂、又は、ポリエステルカーボネート樹脂を含むことが好ましい。

[化25]



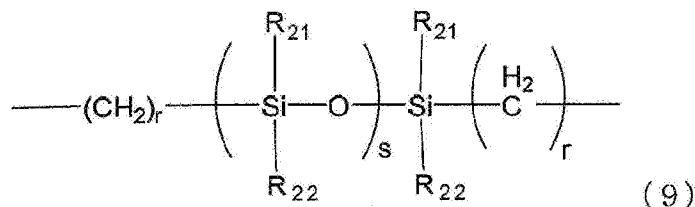
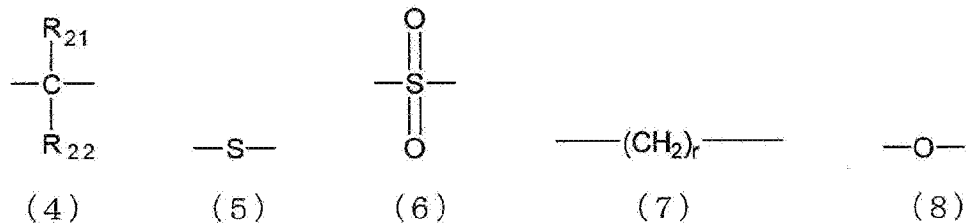
一般式(3)において、R<sub>c</sub>及びR<sub>d</sub>は、それぞれ独立に、ハロゲン原子、

置換基を有してもよい炭素数 1～20 のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数 1～20 のアルコキシル基、置換基を有してもよい炭素数 5～20 のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数 5～20 のシクロアルコキシル基、及び、置換基を有してもよい炭素数 6～20 のアリアル基からなる群より選択される。

R<sub>c</sub>及びR<sub>d</sub>は、好ましくは、水素原子、置換基を有してもよい炭素数 6～20 のアリアル基、O、N及びSから選択される 1つ以上のヘテロ環原子を含む、置換基を有してもよい炭素数 6～20 のヘテロアリアル基であり、より好ましくは、水素原子、置換基を有してもよい炭素数 6～20 のアリアル基であり、さらに好ましくは、水素原子、置換基を有してもよい炭素数 6～12 のアリアル基である。

[0033] 一般式 (3) において、Y<sub>1</sub>は、単結合、置換基を有してもよいフルオレン基、又は下記一般式 (4)～(9) で表される構造式のうちいずれかであり、好ましくは、単結合、又は、下記の一般式 (4) の構造式で表される。

[化26]



一般式 (4) 及び (9) において、R<sub>21</sub>及びR<sub>22</sub>は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、置換基を有してもよい炭素数 1～20 のアルキル基、又は、置換基を有してもよい炭素数 6～30 のアリアル基を表すか、あるいは、R<sub>21</sub>及びR<sub>22</sub>が互いに結合して形成する、置換基を有してもよい炭素数 1～20 の炭素環または複素環を表す。

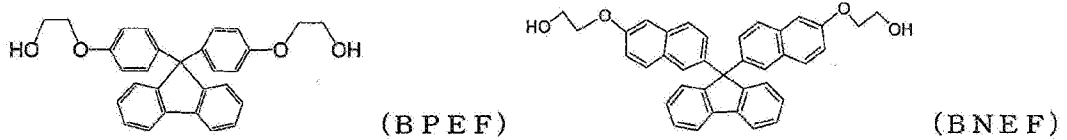
一般式 (7) 及び (9) において、 $r$  及び  $s$  は、それぞれ独立して、 $0 \sim 5000$  の整数である。

[0034] 上記一般式 (3) において、 $A$  及び  $B$  は、それぞれ独立に、置換基を有してもよい炭素数  $1 \sim 5$  のアルキレン基であり、好ましくは、炭素数  $2$  又は  $3$  のアルキレン基である。上記一般式 (3) において、 $p$  及び  $q$  は、それぞれ独立に、 $0 \sim 4$  の整数であり、好ましくは、 $0$  又は  $1$  である。また、上記一般式 (3) において、 $a$  及び  $b$  は、それぞれ独立に、 $0 \sim 10$  の整数であり、好ましくは  $0 \sim 5$  の整数であり、より好ましくは  $0 \sim 2$  の整数であり、例えば、 $0$  又は  $1$  である。

[0035] 構成単位 (C) の具体例として、BPEF (9, 9-ビス (4- (2-ヒドロキシエトキシ) フェニル) フルオレン)、BPPEF (9, 9-ビス (4- (2-ヒドロキシエトキシ) -3-フェニルフェニル) フルオレン)、ビスフェノールA、ビスフェノールAP、ビスフェノールAF、ビスフェノールB、ビスフェノールBP、ビスフェノールC、ビス (4-ヒドロキシフェニル) -2, 2-ジクロロエチレン、ビスフェノールE、ビスフェノールF、ビスフェノールG、ビスフェノールM、ビスフェノールS、ビスフェノールP、ビスフェノールPH、ビスフェノールTMC、ビスフェノールP-A (4, 4' - (1-フェニルエチリデン) ビスフェノール)、ビスフェノールP-CDE (4, 4' - シクロドデシリデンビスフェノール)、ビスフェノールP-HTG (4, 4' - (3, 3, 5-トリメチルシクロヘキシルリデン) ビスフェノール)、ビスフェノールP-MIBK (4, 4' - (1, 3-ジメチルブチリデン) ビスフェノール)、ビスフェノールPEO-FL (ビスフェノキシエタノールフルオレン)、ビスフェノールP-3MZ (4- [1- (4-ヒドロキシフェニル) -3-メチルシクロヘキシル] フェノール)、ビスフェノールOC-FL (4, 4' - [1- [4- [1- (4-ヒドロキシフェニル) -1-メチルエチル] フェニル] エチリデン] ビスフェノール)、ビスフェノールZ、BP-2EO (2, 2' - [[1, 1'-ビフェニル] -4, 4' -ジイルビス (オキシ) ビスエタノール)、S-

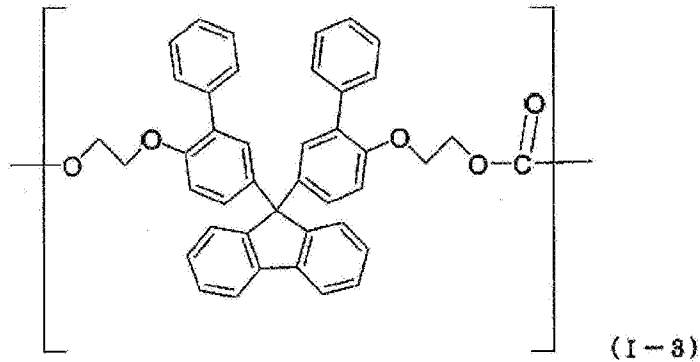
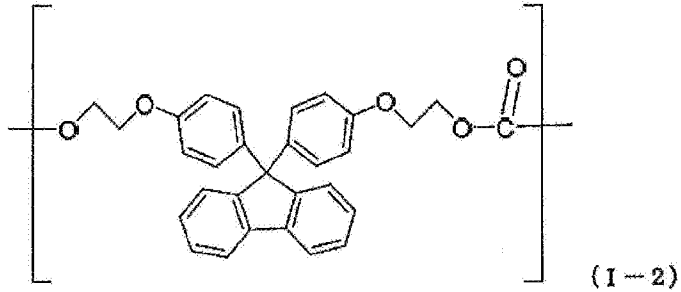
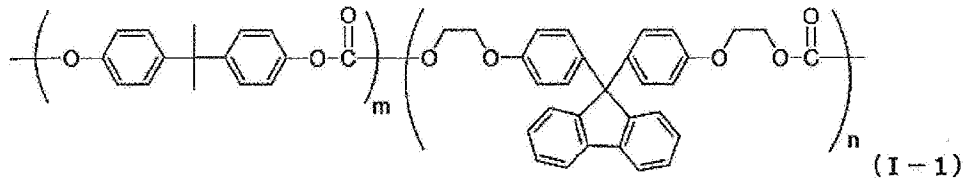
BOC (4, 4' - (1-メチルエチリデン) ビス (2-メチルフェノール) )、) Tri s P-HAP (4, 4', 4'' -エチリデントリスフェノール) 等に由来するものが挙げられる。

[化27]



[0036] 熱可塑性樹脂は、構成単位 (B) を含み構成単位 (C) を含まないポリマー、構成単位 (C) を含み構成単位 (B) を含まないポリマーの他にも、構成単位 (B) と構成単位 (C) とを有する共重合体、構成単位 (B) のみを有するポリマーと構成単位 (C) のみを有するポリマーとの混合物、これらの組み合わせであってもよい。構成単位 (C) を含み構成単位 (B) を含まないポリマーとして、例えば、下記の式 (I-1) ~ (I-3) の少なくともいずれかの構成単位を有するものが挙げられ、構成単位 (B) と構成単位 (C) とを有する共重合体として、例えば、下記の式 (II-1) ~ (II-4) の少なくともいずれかの構成単位を有するものが挙げられる。

[化28]

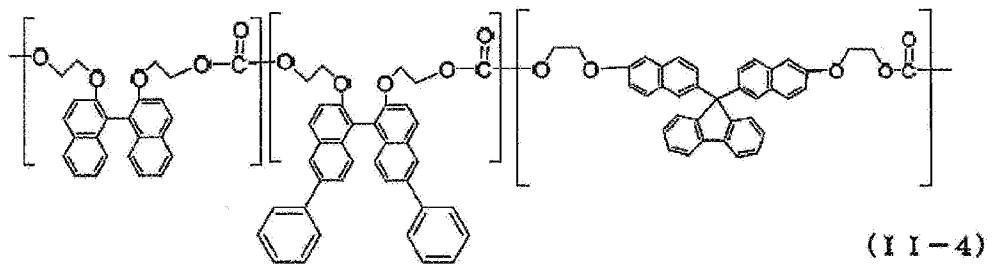
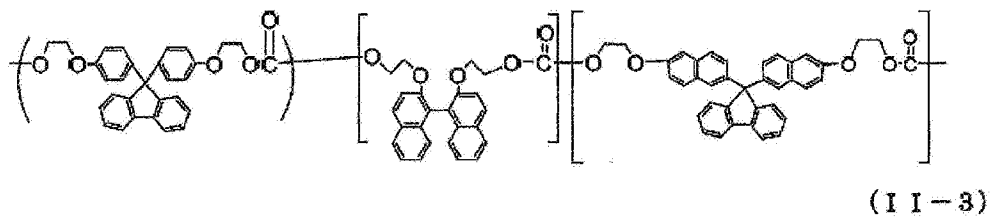
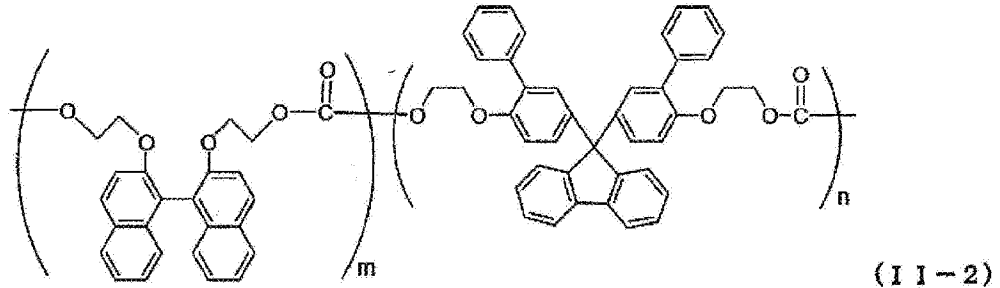
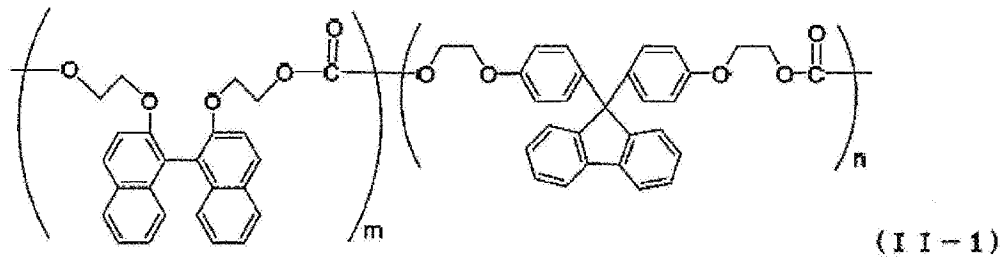


(式 (I-1) 中、 $m$  及び  $n$  は、それぞれ、1~10 の整数であり、好ましくは 1~5 の整数であり、より好ましくは 1 であり、

式 (I-3) 中、 $n$  は、1~10 の整数であり、好ましくは 1~5 の整数であり、より好ましくは 1 である。)

また、複数の種類の構成単位を有するポリマーとして、 $m$  及び  $n$  の値が例えば 100 以上と大きいブロック共重合体、及び、ランダム共重合体のいずれもが採用できるものの、ランダム共重合体が好ましく、より好ましくは、 $m$  及び  $n$  の値が 1 であるランダム共重合体がいられる。

[化29]



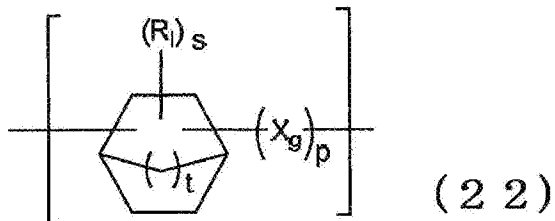
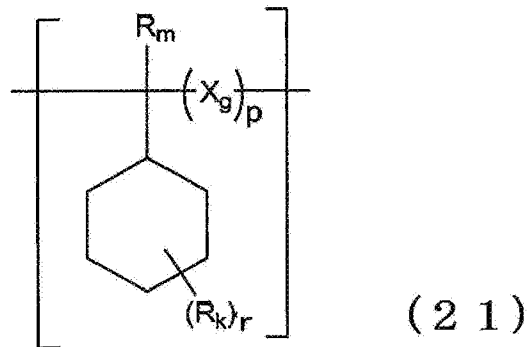
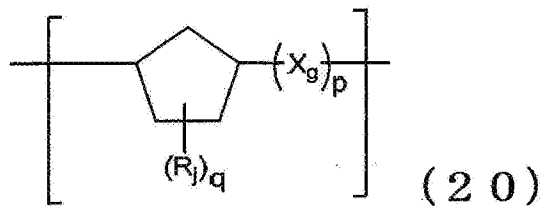
(式(II-1)～(II-4)中、 $m$ 及び $n$ は、それぞれ独立して、1～10の整数であり、好ましくは1～5の整数であり、より好ましくは1である。)

また、複数の種類の構成単位を有するポリマーとして、 $m$ 及び $n$ の値が例えば100以上と大きいブロック共重合体、及び、ランダム共重合体のいずれもが採用できるものの、ランダム共重合体が好ましく、より好ましくは、 $m$ 及び $n$ の値が1であるランダム共重合体がいられる。共重合体において、構成単位(B)と構成単位(C)とのモル比は、1:99～99:1であることが好ましく、10:90～90:10であることがより好ましく、

15 : 85 ~ 85 : 15 であることがさらに好ましく、30 : 70 ~ 70 : 30 であることが特に好ましい。また、混合物においては、構成単位 (B) のみを有するポリマーと構成単位 (C) のみを有するポリマーとの重量比が、1 : 99 ~ 99 : 1 であることが好ましく、10 : 90 ~ 90 : 10 であることがより好ましく、15 : 85 ~ 85 : 15 であることがさらに好ましく、30 : 70 ~ 70 : 30 であることが特に好ましい。

[0037] 熱可塑性樹脂は、シクロオレフィン系樹脂であってもよく、シクロオレフィン系樹脂を含んでいてもよい。シクロオレフィン系樹脂として、以下の構成単位を有するものが挙げられる。

[0038] [化30]



[0039] 上記式中、X<sub>g</sub>は、各々独立に、炭素数1~10のアルキレン基を表す。前記炭素数1~10のアルキレン基としては、メチレン、エチレン、プロピレン、イソプロピレン、ブチレン、イソブチレン、sec-ブチレン、tert-ブチレン、ペンチレン等が挙げられる。これらのうち、メチレン、エチ

レン、プロピレン、ブチレン、イソブチレン、*sec*-ブチレンであることが好ましく、メチレン、エチレン、プロピレンであることがより好ましい。

[0040]  $R_j$ 、 $R_k$ 、 $R_l$ および $R_m$ は、各々独立に、ハロゲン原子、置換または非置換の炭素数1~20のアルキル基、置換または非置換の炭素数1~20のアルコキシ基、置換または非置換の炭素数5~20のシクロアルキル基、置換または非置換の炭素数5~20のシクロアルコキシ基、置換または非置換の炭素数6~20のアリール基、置換または非置換のO、NおよびSから選択される1つ以上のヘテロ環原子を含む炭素数3~20のヘテロアリール基、置換または非置換の炭素数6~20のアリールオキシ基、並びに $-C\equiv C-R_l$ から選択される。前記 $R_j$ 、 $R_k$ 、 $R_l$ および $R_m$ としては、上述の $X_a$ 、 $X_b$ 、 $X_c$ 、 $X_d$ 、 $X_e$ 、および $X_f$ と同様のものが挙げられる。

[0041] ただし、 $R_j$ 、 $R_k$ 、 $R_l$ および $R_m$ は置換基を有していてもよい。当該置換基としては、特に制限されないが、ハロゲン原子、炭素数1~10のアルキル基、炭素数5~10のシクロアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基、炭素数5~10のシクロアルキルオキシ基、炭素数2~10のアルキルオキシカルボニル基、炭素数5~10のシクロアルキルオキシカルボニル基、炭素数7~15のアリールオキシカルボニル基、炭素数2~10のアルキルカルボニルオキシ基、炭素数5~10のシクロアルキルカルボニルオキシ基、炭素数7~15のアリールカルボニルオキシ基、炭素数2~10のヒドロキシアルキルカルボニル基、グリシジルオキシカルボニル基、ヒドロキシ基、カルボキシ基、シアノ基、炭素数1~10のアミド基等が挙げられる。

[0042] 前記炭素数1~10のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、ペンチル基等が挙げられる。

[0043] 前記炭素数5~10のシクロアルキル基としては、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、ビスクロ[2.2.1]ヘプチル基、ビスクロ[2.2.2]オクチル基等が挙げられる。

[0044] 前記炭素数1~10のアルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、

プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、*sec*-ブトキシ基、*tert*-ブトキシ基、ペンチルオキシ基等が挙げられる。

[0045] 前記炭素数5～10のシクロアルキルオキシ基としては、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、ビスクロ[2, 2, 1]ヘプチルオキシ基、ビスクロ[2, 2, 2]オクチルオキシ基等が挙げられる。

[0046] 前記炭素数2～10のアルキルオキシカルボニル基としては、メチルオキシカルボニル基、エチルオキシカルボニル基、プロピルオキシカルボニル基、イソプロピルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、イソブチルオキシカルボニル基、*sec*-ブチルオキシカルボニル基、*tert*-ブチルオキシカルボニル基等が挙げられる。

[0047] 前記炭素数5～10のシクロアルキルオキシカルボニル基としては、シクロペンチルオキシカルボニル基、シクロヘキシルオキシカルボニル、ビスクロ[2, 2, 1]ヘプチルオキシカルボニル基、ビスクロ[2, 2, 2]オクチルオキシカルボニル基等が挙げられる。

[0048] 前記炭素数7～15のアリールオキシカルボニル基としては、フェニルオキシカルボニル基、トリルオキシカルボニル基、キシリルオキシカルボニル基、トリメチルフェニルオキシカルボニル基、テトラメチルフェニルオキシカルボニル基、エチルフェニルオキシカルボニル基、エチルメチルフェニルオキシカルボニル基、ジエチルフェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等が挙げられる。

[0049] 前記炭素数2～10のアルキルカルボニルオキシ基としては、メチルカルボニルオキシ基、エチルカルボニルオキシ基、プロピルカルボニルオキシ基、イソプロピルカルボニルオキシ基、ブチルカルボニルオキシ基等が挙げられる。

[0050] 前記炭素数5～10のシクロアルキルカルボニルオキシ基としては、シクロペンチルカルボニルオキシ基、シクロヘキシルカルボニルオキシ基、ビスクロ[2, 2, 1]ヘプチルカルボニルオキシ基、ビスクロ[2, 2, 2]

オクチルカルボニルオキシ基等が挙げられる。

[0051] 前記炭素数 7 ~ 15 のアリールカルボニルオキシ基としては、フェニルカルボニルオキシ基、トリルカルボニルオキシ基、キシリルカルボニルオキシ基、トリメチルフェニルカルボニルオキシ基、テトラメチルフェニルカルボニルオキシ基、エチルフェニルカルボニルオキシ基、エチルメチルフェニルカルボニルオキシ基、ジエチルフェニルカルボニルオキシ基、ナフチルカルボニルオキシ基等が挙げられる。

[0052] 前記炭素数 2 ~ 10 のヒドロキシアルキルカルボニル基としては、ヒドロキシメチルカルボニル基、ヒドロキシエチルカルボニル基、ヒドロキシプロピルカルボニル基等が挙げられる。

[0053] 前記炭素数 1 ~ 10 のアミド基としては、メチルアミノカルボニル基、エチルアミノカルボニル基、ジメチルアミノカルボニル基、アセチルアミノ基等が挙げられる。

[0054] 上述の置換基は単独で有していても、2種以上を組み合わせ有していてもよい。

[0055]  $R_i$  は炭素数 6 ~ 20 のアリール基または O、N および S から選択される 1 つ以上のヘテロ環原子を含む炭素数 3 ~ 20 のヘテロアリール基を表す。前記  $R_i$  は、上述と同様である。

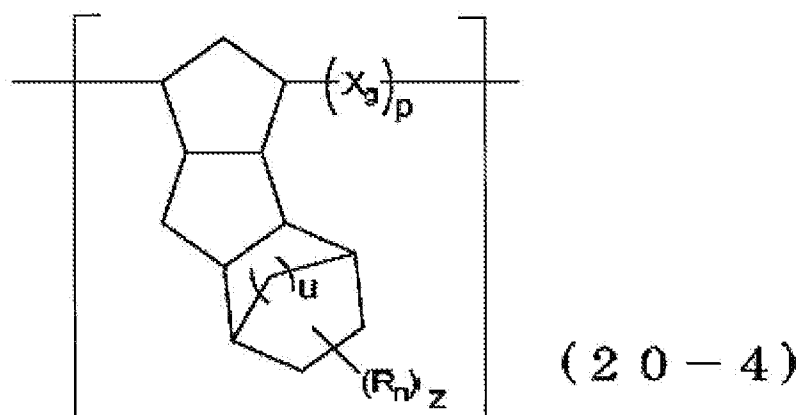
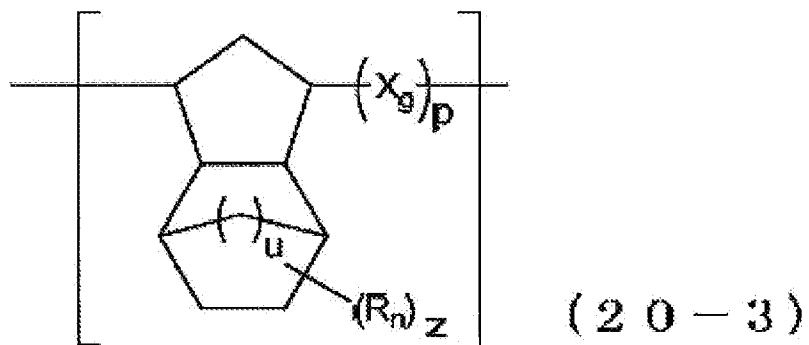
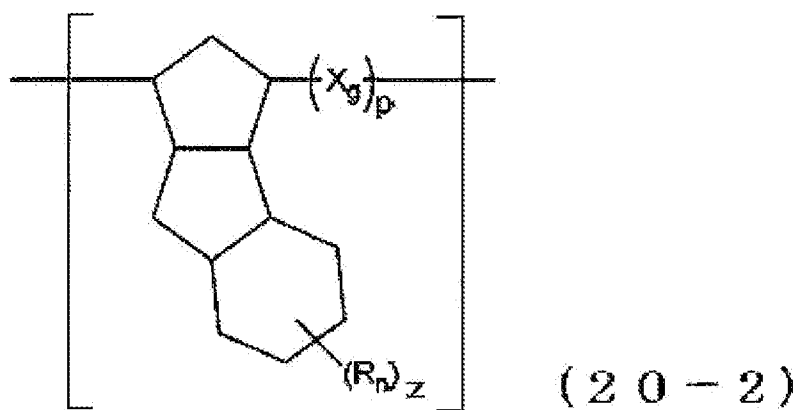
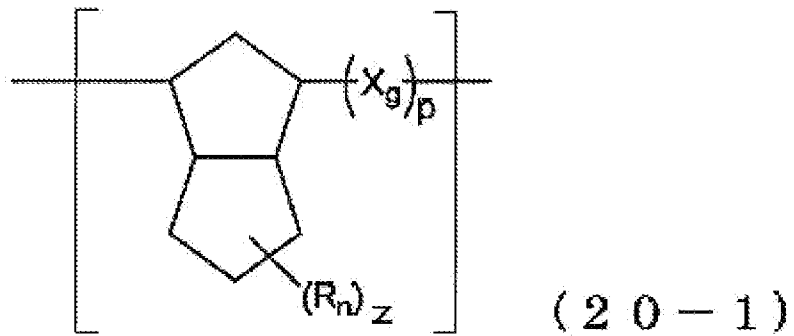
[0056]  $p$  は、各々独立に、0 または 1 の整数を表す。

[0057]  $q$ 、 $r$ 、および  $s$  は、各々独立に、0 ~ 10 の整数を表し、好ましくは 0 ~ 5 であり、より好ましくは 0 ~ 3 である。

[0058]  $t$  は、1 ~ 3 の整数を表し、好ましくは 1 または 2 である。

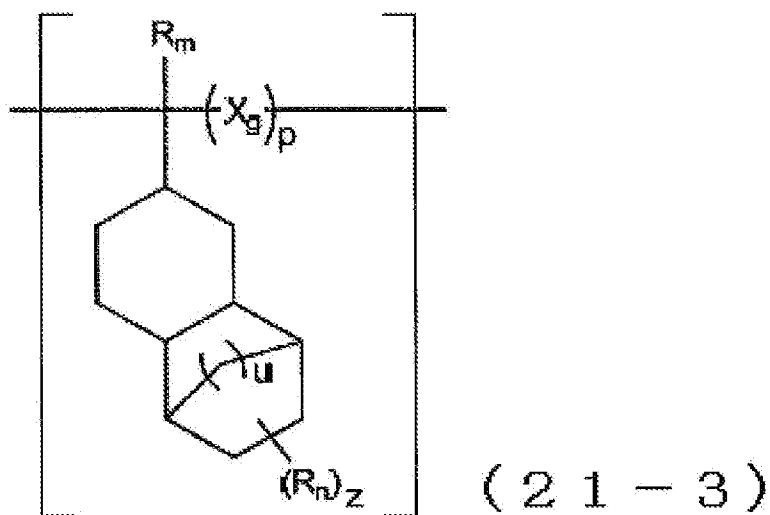
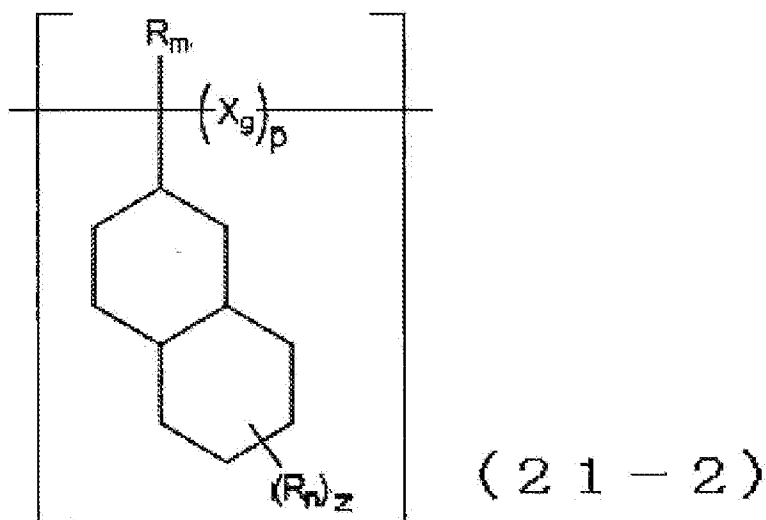
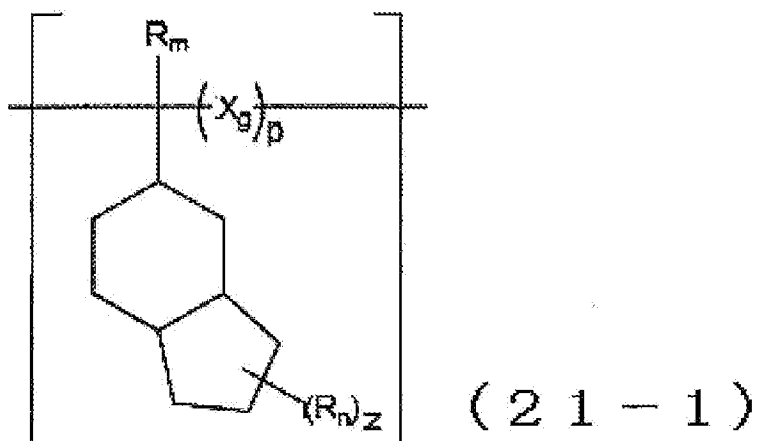
[0059] ここで、 $q$  が 2 以上であり、2 つの  $R_j$  が隣接する炭素原子に存在する場合、2 つの  $R_j$  が一緒になって環構造を形成してもよい。例えば、 $q$  が 2 であり 2 つの  $R_j$  がともに置換または非置換アルキル基である場合、一般式 (20) は下記式 (20-1) となり、 $q$  が 2 であり 2 つの  $R_j$  が置換または非置換アルキルおよび置換または非置換シクロアルキルである場合、一般式 (20) は下記式 (20-2)、(20-3)、または (20-4) となりうる。

[0060] [化31]



- [0061] 上記式中、 $X_p$ および $p$ は上述の通りである。
- [0062]  $R_n$ は上述の置換基であり、具体的には、ハロゲン原子、炭素数1～10のアルキル基、炭素数5～10のシクロアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数5～10のシクロアルキルオキシ基、炭素数2～10のアルキルオキシカルボニル基、炭素数5～10のシクロアルキルオキシカルボニル基、炭素数7～15のアリールオキシカルボニル基、炭素数2～10のアルキルカルボニルオキシ基、炭素数5～10のシクロアルキルカルボニルオキシ基、炭素数7～15のアリールカルボニルオキシ基、炭素数2～10のヒドロキシアルキルカルボニル基、グリシジルオキシカルボニル基、ヒドロキシ基、カルボキシ基、シアノ基、炭素数1～10のアミド基等が挙げられる。
- [0063]  $z$ は特に制限されないが、0～6であることが好ましく、0～3であることがより好ましく、0または1であることがさらに好ましい。
- [0064]  $u$ は1～3の整数を表し、好ましくは1または2である。
- [0065] また、 $r$ が2以上であり、2つの $R_k$ が隣接する炭素原子に存在する場合、2つの $R_k$ が一緒になって環構造を形成してもよい。例えば、 $r$ が2であり2つの $R_k$ がともに置換または非置換アルキル基である場合、一般式(21)は下記式(21-1)または(21-2)となり、 $r$ が2であり2つの $R_k$ が置換または非置換アルキルおよび置換または非置換シクロアルキルである場合、一般式(221)は下記式(21-3)となりうる。
- [0066]

[化32]

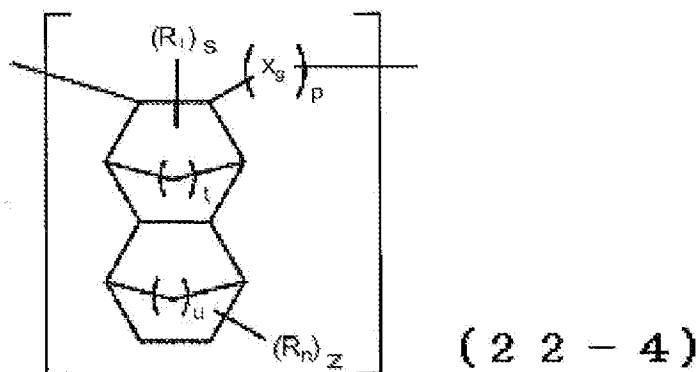
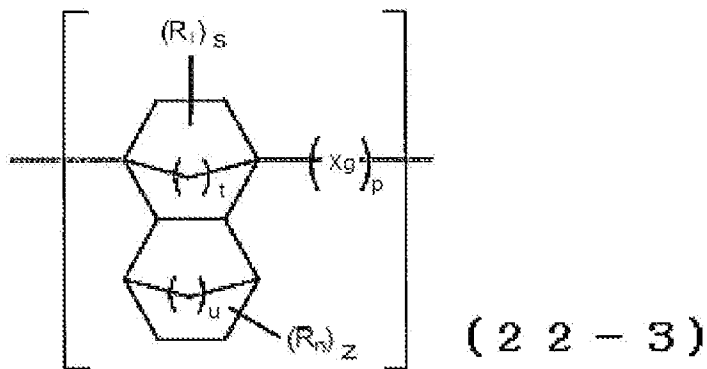
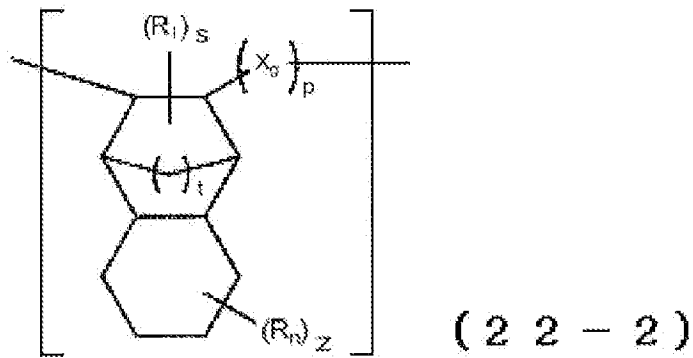
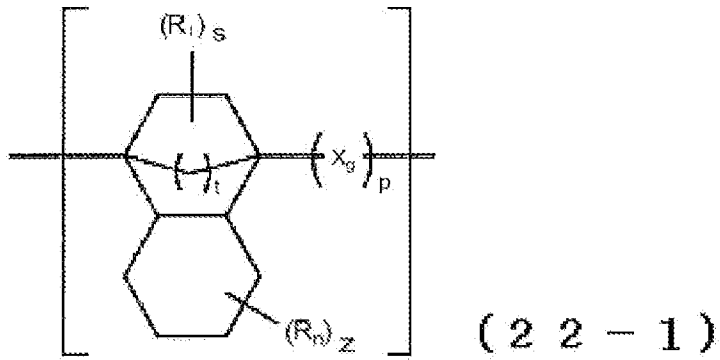


[0067] 上記式中、 $X_g$ 、 $p$ 、 $R_n$ 、 $z$ 、および $u$ は上述の通りである。

[0068] さらに、 $s$ が2以上であり、2つの $R_1$ が隣接する炭素原子に存在する場合、2つの $R_1$ が一緒になって環構造を形成してもよい。例えば、 $s$ が2であり2つの $R_1$ がともに置換または非置換アルキル基である場合、一般式(22)は下記式(22-1)または(22-2)となり、 $s$ が2であり2つの $R_1$ が置換または非置換アルキルおよび置換または非置換シクロアルキルである場合、一般式(22)は下記式(22-3)または(22-4)となりうる。

[0069]

[化33]

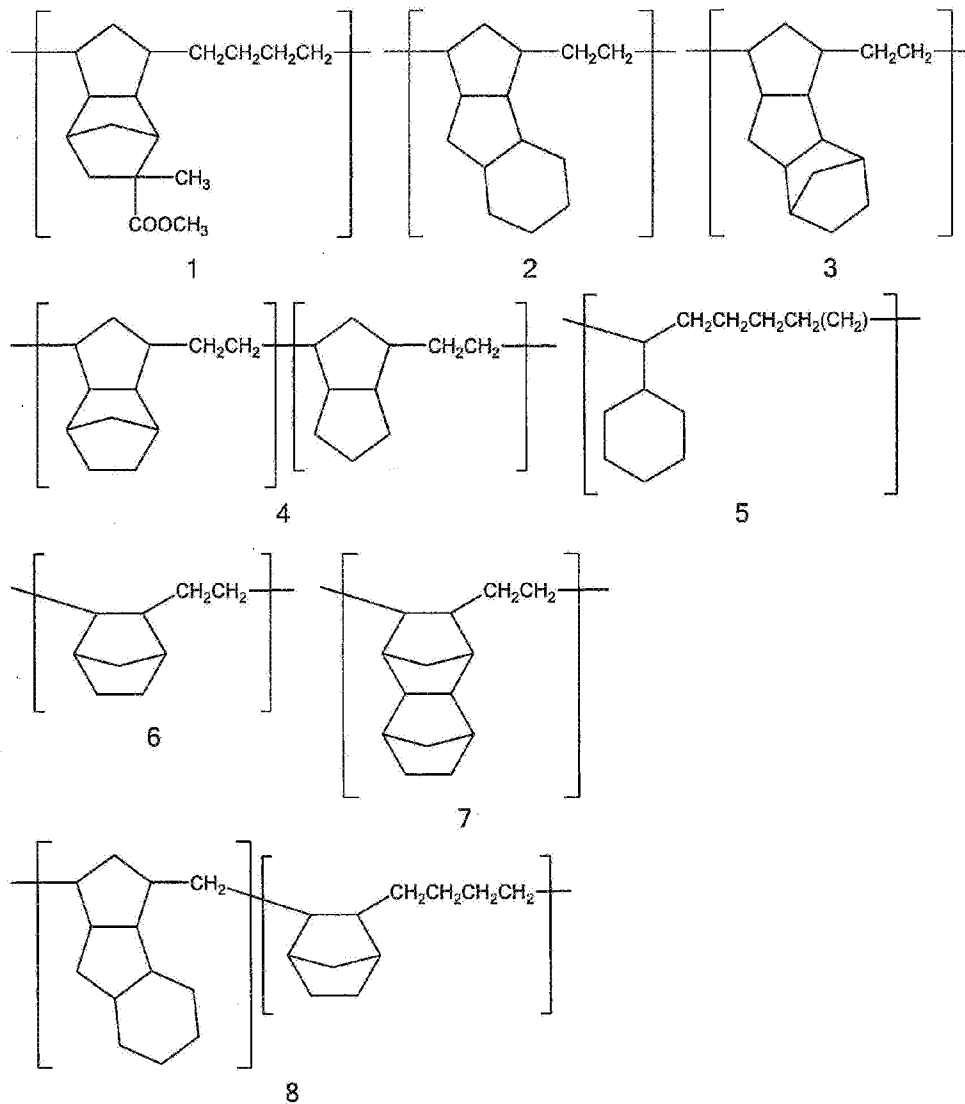


[0070] 上記式中、 $X_g$ 、 $p$ 、 $R_n$ 、 $z$ 、および $u$ は上述の通りである。

[0071] 式(21-1)～(21-3)において、 $R_m$ は、水素原子または炭素数1～3のアルキル基を表す。前記炭素数1～3のアルキル基としては、特に制限されないが、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基が挙げられる。

[0072] シクロオレフィン系樹脂の具体例としては、以下の式1～8で表される構成単位からなる群から選択される少なくとも1つを含むものが挙げられる。

[0073] [化34]



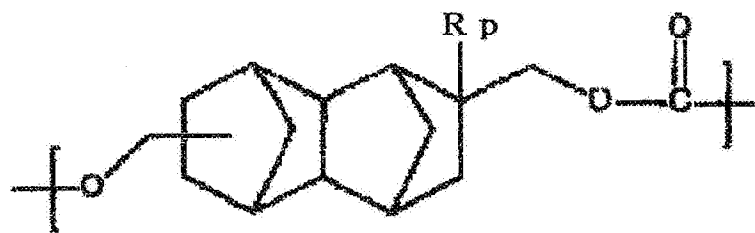
[0074] 上述の構成単位は、シクロオレフィン系樹脂にて単独で含まれていても、2種以上が組み合わせられて含まれていてもよい。また、上述の構成単位とと

もに、他の環状ポリオレフィンの構成単位と組み合わせられてもよいし、他の樹脂（ポリオレフィン樹脂、ポリエステル樹脂）等の構成単位と組み合わせられてもよい。

[0075] シクロオレフィン系樹脂の重量（質量）平均分子量（Mw）としては、特に制限されないが、1,000～3,000,000であることが好ましく、10,000～3,000,000であることがより好ましく、20,000～1,000,000であることがさらに好ましく、30,000～500,000であることが特に好ましい。

[0076] 熱可塑性樹脂として、上記シクロオレフィン系樹脂の他にも、脂肪族環を含む構成単位を有する樹脂（ポリマー）を用いてもよい。例えば、下記式（23）で表される構成単位、モノマーとして、イソソルビド由来の構成単位、ペンタシクロペンタデカンジメタノール（PCPMD）由来の構成単位、シクロヘキサンジメタノール由来の構成単位、スピログリコール由来の構成単位のうち少なくともいずれかの構成単位を有する熱可塑性樹脂を用いてもよい。

[化35]



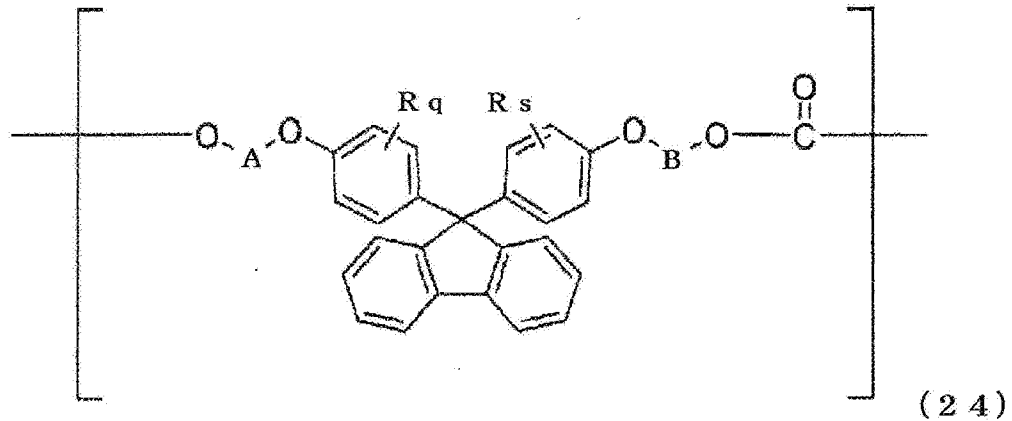
(23)

（一般式（23）中、R<sub>p</sub>は、水素原子、又は炭素数1～4のアルキル基を表す。）

[0077] また、上述のシクロオレフィン系樹脂あるいは脂肪族環を含む構成単位を有する樹脂のいずれかと、下記一般式（24）で表される構成単位を有する共重合体、あるいはブレンド体を熱可塑性樹脂として用いてもよく、そのような熱可塑性樹脂の具体例として、上記一般式（23）の構成単位と、下記一般式（24）の構成単位を有する共重合体、あるいはブレンド体が挙げら

れる。

[化36]



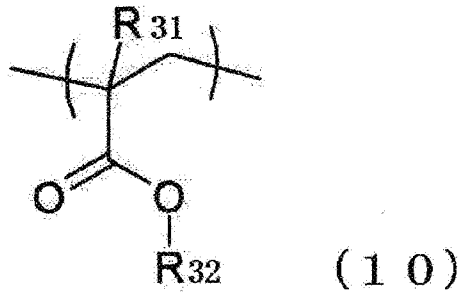
(一般式 (24) 中、R<sub>q</sub>およびR<sub>s</sub>は、それぞれ独立に、水素原子、炭素数1～20のアルキル基、炭素数1～20のアルコキシル基、炭素数5～20のシクロアルキル基、炭素数5～20のシクロアルコキシル基、炭素数6～20のアリール基または炭素数6～20のアリールオキシ基を表し、A及びBは、それぞれ独立して、炭素数1～4のアルキレン基を表す。)

[0078] 熱可塑性樹脂は、アクリル樹脂を含んでいてもよい。アクリル樹脂としては、特に限定されないが、例えば、ポリメチルメタクリレート (PMMA)、メチルメタクリレート (MMA) に代表される各種 (メタ) アクリル酸エステル単独重合体、またはPMMAやMMAと他の1種以上の単量体との共重合体であり、さらにそれらの樹脂の複数種が混合されたものが挙げられる。

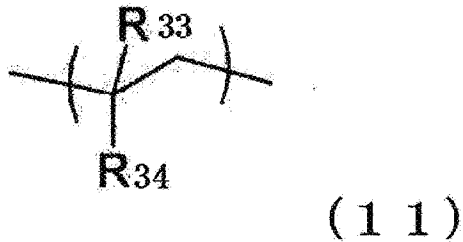
[0079] 熱可塑性樹脂として用いられるアクリル樹脂の好ましい具体例として、下記一般式 (10) で表される (メタ) アクリル酸エステル構成単位 (a) (以下、「構成単位 (a)」ともいう) と、下記一般式 (11) で表される脂肪族ビニル構成単位 (b) (以下、「構成単位 (b)」ともいう) とを含むものが挙げられる。

なお、本明細書において「(メタ) アクリル酸」とは、メタクリル酸及びアクリル酸のいずれをも包含するものとする。

[化37]



[化38]



構成単位 (a) は、(メタ) アクリル酸エステルに由来する構成単位である。

上記一般式 (10) において、 $R_{31}$  は水素またはメチル基である。

$R_{32}$  は炭素数 1 ~ 18 の炭化水素基であり、ヒドロキシル基およびアルコキシ基から選ばれる置換基を有してもよい。 $R_{32}$  としては、具体的にはメチル基、エチル基、ブチル基、ラウリル基、ステアリル基、シクロヘキシル基、イソボルニル基などのアルキル基類；2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシプロピル基、2-ヒドロキシ-2-メチルプロピル基などのヒドロキシアルキル基類；2-メトキシエチル基、2-エトキシエチル基、2-フェノキシエチル基などのアルコキシアルキル基類；ベンジル基、フェニル基などのアリール基類などが挙げられる。また、これらの基の 1 種類または 2 種類以上を組み合わせた有機基であってもよい。

置換基であるアルコキシ基の炭素数は 1 ~ 10 が好ましく、1 ~ 6 がより好ましい。アルコキシ基としては、具体的には、メトキシ基、エトキシ基、フェノキシ基が挙げられる。

アクリル樹脂において、(メタ)アクリル酸エステル構成単位(構成単位(a))が複数存在する場合、複数ある $R_{31}$ および $R_{32}$ はそれぞれ同一であっても異なってもよい。これらのうち好ましいのは、 $R_{31}$ がメチル基であり、 $R_{32}$ がメチル基および/またはエチル基である(メタ)アクリル酸エステル構成単位であり、さらに好ましいのは $R_{31}$ がメチル基であり、 $R_{32}$ がメチル基であるメタクリル酸エステル構成単位である。

[0080] 構成単位(b)は、脂肪族ビニル化合物に由来する構成単位である。

上記一般式(11)において、 $R_{33}$ は水素またはメチル基である。また、 $R_{34}$ は、シクロヘキシル基または炭素数1~4の炭化水素基、ヒドロキシル基、アルコキシ基およびハロゲン原子から選ばれる置換基を有するシクロヘキシル基である。

置換基である炭化水素基の具体例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基などのアルキル基類が挙げられる。

置換基であるアルコキシ基の炭素数は1~10が好ましく、1~6がより好ましい。アルコキシ基としては、具体的には、メトキシ基、エトキシ基、フェノキシ基が挙げられる。

置換基であるハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子が挙げられ、特に塩素原子、臭素原子が好ましい。

アクリル樹脂において、構成単位(b)が複数存在する場合、複数ある $R_{33}$ および $R_{34}$ はそれぞれ同一であっても異なってもよい。これらのうち好ましいのは、 $R_{33}$ が水素またはメチル基であり、 $R_{34}$ がシクロヘキシル基である脂肪族ビニル構成単位であり、さらに好ましいのは、 $R_{33}$ が水素であり、 $R_{34}$ がシクロヘキシル基である脂肪族ビニル構成単位である。

[0081] 熱可塑性樹脂において用いられ得る、上述のアクリル樹脂は、主として構成単位(a)と、構成単位(b)とを含むことが好ましい。アクリル樹脂の全構成単位の合計に対する前記構成単位(a)と前記構成単位(b)との合計割合は、例えば85~100モル%であり、好ましくは90~100モル%、より好ましくは95~100モル%、さらに好ましくは98~100モ

ル%である。

また、アクリル樹脂の全構成単位の合計に対する構成単位（a）の割合は、例えば55～80モル%であり、好ましくは56～79モル%、より好ましくは57～78モル%、さらに好ましくは58～77モル%である。

また、アクリル樹脂の全構成単位の合計に対する構成単位（b）の割合は、例えば10～45モル%であり、好ましくは11～44モル%、より好ましくは12～43モル%、さらに好ましくは13～42モル%である。アクリル樹脂の全構成単位の合計に対する構成単位（b）の割合が10%未満であると、アクリル樹脂の耐熱性が低下する場合や、高温環境での寸法安定性が低下する場合があるため、好ましくない。

[0082] アクリル樹脂には、光学物性を損なわない範囲で、構成単位（a）および構成単位（b）以外の構成単位を含むことができる。このような構成単位としては、特に限定されるものではないが、例えば、アクリロニトリル、アクリル酸、メタクリル酸、無水マレイン酸、フェニルマレイミド、シクロヘキシルマレイミドなどに由来する構成単位が挙げられる。

[0083] アクリル樹脂の製造方法は、特に限定されないが、例えば、（メタ）アクリル酸エステルモノマーと少なくとも一種のベンゼン環骨格を有する芳香族ビニルモノマーとを共重合した後、ベンゼン環を水素化する方法や、（メタ）アクリル酸エステルモノマーと少なくとも一種のシクロヘキシル環骨格を有する脂肪族ビニルモノマーとを共重合する方法が好適であり、前者が特に好適である。

[0084] （メタ）アクリル酸エステルモノマーとしては、特に限定されないが（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸エチル、（メタ）アクリル酸ブチル、（メタ）アクリル酸ラウリル、（メタ）アクリル酸ステアリル、（メタ）アクリル酸シクロヘキシル、（メタ）アクリル酸イソボルニル、（メタ）アクリル酸（2-ヒドロキシエチル）、（メタ）アクリル酸（2-ヒドロキシプロピル）、（メタ）アクリル酸（2-ヒドロキシ-2-メチルプロピル）、（メタ）アクリル酸（2-メトキシエチル）、（メタ）アクリル酸（

2-エトキシエチル)、(メタ)アクリル酸(2-フェノキシエチル)、(メタ)アクリル酸ベンジル、(メタ)アクリル酸フェニルなどが挙げられる。中でもメタクリル酸メチルが好ましい。

[0085] 芳香族ビニルモノマーとしては、具体的にスチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、*p*-ヒドロキシスチレン、アルコキシスチレン、クロロスチレン、ブロモスチレンなど、およびそれらの誘導体が挙げられる。これらの中で好ましいのはスチレン、 $\alpha$ -メチルスチレンである。

[0086] 脂肪族ビニルモノマーとしては、ビニルシクロヘキサン、イソプロペニルシクロヘキサン、1-プロペニル-2-メチルシクロヘキサンなどが挙げられる。これらの中で好ましいのはビニルシクロヘキサン、イソプロペニルシクロヘキサンである。

[0087] (メタ)アクリル酸エステルモノマーと、芳香族ビニルモノマーとの重合には、公知の方法を用いることができるが、例えば、塊状重合法、溶液重合法、懸濁重合法、乳化重合法により製造することができる。溶液重合法では、溶媒、モノマー、連鎖移動剤、および重合開始剤を含むモノマー組成物を完全混合槽に連続的に供給し、100~180℃で連続重合する方法などにより行われる。

[0088] 溶液重合の際に用いられる溶媒としては、例えば、トルエン、キシレン、シクロヘキサン、メチルシクロヘキサンなどの炭化水素系溶媒；酢酸エチル、イソ酪酸メチルなどのエステル系溶媒；アセトン、メチルエチルケトンなどのケトン系溶媒；テトラヒドロフラン、ジオキサンなどのエーテル系溶媒；メタノール、イソプロパノールなどのアルコール系溶媒などが挙げられる。

[0089] (メタ)アクリル酸エステルモノマーと芳香族ビニルモノマーとを重合した後の水素化反応は適当な溶媒中で行われる。この水素化反応に用いられる溶媒は前記の重合溶媒と同じであっても異なっても良い。例えば、シクロヘキサン、メチルシクロヘキサンなどの炭化水素系溶媒；酢酸エチル、イソ酪酸メチルなどのエステル系溶媒；アセトン、メチルエチルケトンなどの

ケトン系溶媒；テトラヒドロフラン、ジオキサンなどのエーテル系溶媒；メタノール、イソプロパノールなどのアルコール系溶媒などが挙げられる。

- [0090] 水素化の方法は特に限定されず、公知の方法を用いることができる。例えば、水素圧力3～30MPa、反応温度60～250℃でバッチ式あるいは連続流通式で行うことができる。温度を60℃以上とすることにより、反応時間がかかり過ぎることがなく、また250℃以下とすることにより分子鎖の切断やエステル部位の水素化を起こすことが少ない。
- [0091] 水素化反応に用いられる触媒としては、例えば、ニッケル、パラジウム、白金、コバルト、ルテニウム、ロジウム等の金属、またはそれら金属の酸化物、塩もしくは錯体化合物を、カーボン、アルミナ、シリカ、シリカ・アルミナ、珪藻土等の多孔性担体に担持した固体触媒等が挙げられる。
- [0092] 水素化反応において、芳香族ビニルモノマー中の芳香環の70%以上が水素化されることが好ましい。すなわち、芳香族ビニル構成単位中の芳香環の未水素化部位の割合が30%未満であることが好ましい。芳香環の未水素化部位の割合が30%を越えると、アクリル樹脂として用いた場合に透明性が低下する場合がある。芳香環の未水素化部位の割合は、より好ましくは10%未満、さらに好ましくは5%未満、特に好ましくは1%未満である。生産性を考慮すると、必ずしも0%にする必要はない。
- [0093] (メタ)アクリル酸エステルモノマーと脂肪族ビニルモノマーとの重合は、公知の方法、例えば、特開昭63-3011号公報および特開昭63-170475号公報に記載の方法により実施できる。
- [0094] アクリル樹脂のガラス転移温度は110～160℃の範囲であることが好ましく、より好ましくは115～150℃である。
- [0095] また、アクリル樹脂は、1種類単独または2種類以上を組み合わせることができる。
- [0096] 熱可塑性樹脂のポリスチレン換算の重量（質量）平均分子量（Mw）は、例えば10,000～500,000であり、10,000～300,000であることが好ましく、15,000～100,000であることがより

好ましく、20,000～50,000であることがさらに好ましい。

また、上述のポリスチレン換算の重量平均分子量（Mw）の範囲は、主として、ポリカーボネート樹脂、ポリエステル樹脂、及びポリエステルカーボネート樹脂に関するものである。

一方、熱可塑性樹脂に含まれるアクリル樹脂は、上述の範囲のポリスチレン換算の重量平均分子量（Mw）を有していてもよいものの、好ましくは、100,000～200,000であり、より好ましくは、110,000～170,000である。

[0097] [2. 熱可塑性樹脂組成物の性状]

配合剤を有する本発明の熱可塑性樹脂組成物は、配合剤を含まない熱可塑性樹脂組成物に比べて、透過率（%）を高いレベルに維持することができる。

[0098] 例えば、熱可塑性樹脂組成物は、配合剤を含まない以外は同じ組成を有する対象用樹脂組成物に比べて、JIS K7105に準拠した波長370nm～400nmにおける透過率（%）の値が、1.0（%）以上、大きく、好ましくは2.0（%）以上大きい。すなわち、配合剤を含まない対象用樹脂組成物におけるJIS K7105に準拠した波長370nm～400nmの透過率（%）の値と、本発明の熱可塑性樹脂組成物におけるJIS K7105に準拠した波長370nm～400nmの透過率（%）の値のうち、同じ波長における値（%）同士を比較すると、熱可塑性樹脂組成物の透過率の値が高く、これらの数値の差として、1.0（%）以上、好ましくは2.0（%）以上が実現される。より好ましくは、熱可塑性樹脂組成物の透過率の値が、対象用樹脂組成物の透過率の値よりも3.0（%）以上、大きく、より好ましくは、4.0（%）以上、大きい。

また、上述の透過率（%）の値の差は、例えば、JIS K7105に準拠した波長380nm～400nmにおいても認められる。

[0099] また、例えば、熱可塑性樹脂組成物は、配合剤を含まない以外は同じ組成を有する対象用樹脂組成物に比べて、JIS K7105に準拠した波長3

70 nm～400 nmにおける透過率 (%) の値が1.1倍以上である。すなわち、配合剤を含まない対象用樹脂組成物におけるJIS K 7105に準拠した波長370 nm～400 nmの透過率 (%) の値と、本発明の熱可塑性樹脂組成物におけるJIS K 7105に準拠した波長370 nm～400 nmの透過率 (%) の値のうち、同じ波長における値 (%) 同士を比較すると、熱可塑性樹脂組成物の透過率 (%) の値が対象用樹脂組成物よりも高く、かつ、1.1倍以上である。好ましくは、熱可塑性樹脂組成物の透過率の値は、対象用樹脂組成物の透過率の値の1.3倍以上であり、より好ましくは、1.5倍以上である。

[0100] 本発明の熱可塑性樹脂組成物に添加剤、例えば、離型剤、酸化防止剤等の添加剤を加えると、得られる熱可塑性樹脂組成物の透過率の値が低下する傾向にある。しかしながら、上述の配合剤が添加されている熱可塑性樹脂組成物によれば、透過率の値の低下を防止、抑制できる。

[0101] また、ある態様の熱可塑性樹脂組成物は、配合剤を含まない以外は当該熱可塑性樹脂組成物と同じ組成を有する対象用樹脂組成物に比べて、YI値が低い。具体的には、上述の配合剤を含む熱可塑性樹脂組成物のYI値、例えば、JIS K 7105に準拠したYI値は、配合剤を含まない他は成分が同一である熱可塑性樹脂組成物のYI値よりも0.20以上、低くなり得る。これらのYI値の差は、例えば、0.50以上、0.80以上、0.90以上、1.0以上であり、また、1.1以上ともなり得る。

上述の配合剤を含む熱可塑性樹脂組成物における、例えばJIS K 7105に準拠したYI値は、配合剤を含まない他は成分が同一である熱可塑性樹脂組成物のYI値に比べて、好ましくは、1.2以上、小さい値である。そしてこれらのYI値の差は、より好ましくは、1.5以上、1.80以上あるいは2.0以上であり、さらに好ましくは、2.2以上、2.5以上、2.7以上、3.0以上ともなり得る。

また、上述の一般式(1)で表される配合剤を含む熱可塑性樹脂組成物における、例えばJIS K 7105に準拠したYI値は、上述の一般式(

1) で表される配合剤に対応する単量体（例えば、一般式（1）における $R_1 \sim R_5$ がいずれも一般式（1-1）の環状構造を含まない他、一般式（1）と共通する化合物）を配合剤として同じ量だけ含む熱可塑性樹脂組成物の $Y_1$ 値に比べて、好ましくは、0.2以上、小さい値である。そしてこれらの $Y_1$ 値の差は、より好ましくは、0.3以上、0.4以上あるいは0.5以上であり、さらに好ましくは、0.6以上、0.7以上、0.8以上、0.9以上あるいは1.0以上ともなり得る。

[0102] 以上のように、高い透過率の維持、低い $Y_1$ 値に示される色相の改善等を可能にする本発明の熱可塑性樹脂組成物は、光学材料用等の用途に適している。本発明の熱可塑性樹脂組成物は、特に、光学材料として好適に用いられる。

さらに、本発明の熱可塑性樹脂組成物は高い耐熱性、透明性を有しており、揮発成分量低減効果が期待できる。特に本発明の熱可塑性樹脂組成物のうちポリエステル樹脂組成物においては、詳細を後述するように高温下での揮発成分量低減効果が確認されており、加熱時に生じさせる臭気を抑制できる。このため、本発明の熱可塑性樹脂組成物、主としてポリエステル樹脂組成物は、例えば食品用容器包装用プラスチックとしても有用である。

例えば、ある態様の熱可塑性樹脂組成物は、配合剤を含まない以外は当該熱可塑性樹脂組成物と同じ組成を有する対象用樹脂組成物に比べて、詳細を後述する揮発成分の抑制効果が同等かそれ以上である。すなわち、熱可塑性樹脂組成物は、250℃で5分間の加熱といった所定の後述する条件下で生じる揮発成分の量を抑えることができる。

揮発成分の具体例としては、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、アセトン、2,3-ブタンジオン、酢酸、蟻酸などが挙げられる。

[0103] [3. 熱可塑性樹脂組成物の製造方法]

本発明の熱可塑性樹脂組成物の製造方法は、上述の配合剤を熱可塑性樹脂に添加する工程を含む。熱可塑性樹脂に配合剤を添加する工程によって、配合剤が未添加の熱可塑性樹脂に比べて、熱可塑性樹脂の透過率、特に、低波

長における透過率の値を良好に維持することができる。

[0104] [4. 熱可塑性樹脂組成物の透過率向上方法]

本発明の熱可塑性樹脂組成物の透過率向上方法は、上述の配合剤を熱可塑性樹脂に添加する工程を含む。熱可塑性樹脂に配合剤を添加する工程によって、熱可塑性樹脂の透過率、特に、低波長における透過率の値を向上させることができる。特に、配合剤と異なる添加剤が添加された熱可塑性樹脂に比べて、配合剤をさらに添加させた熱可塑性樹脂組成物においては、透過率の値の向上が可能である。

[0105] [5. 熱可塑性樹脂組成物の色相の向上方法]

本発明の熱可塑性樹脂組成物の色相の向上方法は、上述の配合剤を熱可塑性樹脂に添加する工程を含む。熱可塑性樹脂に配合剤を添加する工程によって、熱可塑性樹脂の色相を向上あるいは改善させ、熱可塑性樹脂の透明性を高めることができる。

上述のように、配合剤を含む熱可塑性樹脂組成物のYI値は、配合剤を含まない他は成分の共通する熱可塑性樹脂組成物のYI値よりも、例えば、JIS K 7105に準拠した値において0.2以上、低くなる。このため、配合剤を含む熱可塑性樹脂組成物は、通常は黄色味を帯びてしまう着色が少なく抑えられ、色相に優れる傾向が認められる。すなわち、熱可塑性樹脂組成物に配合剤を加えることで熱可塑性樹脂組成物のYI値を低下させることができ、配合剤の有無により生じるYI値の差は、例えば、上述のように、0.20以上、0.50以上、0.80以上、0.90以上、1.0以上であり、また、1.1以上ともなり得る。

熱可塑性樹脂組成物において上述の配合剤を添加すると、例えばJIS K 7105に準拠したYI値は、配合剤を含まない他は成分が同一である熱可塑性樹脂組成物のYI値に比べて、好ましくは、1.2以上、小さい値である。そしてこれらのYI値の差は、より好ましくは、1.5以上、1.80以上あるいは2.0以上であり、さらに好ましくは、2.2以上、2.5以上、2.7以上、3.0以上ともなり得る。

なお、熱可塑性樹脂組成物において上述の一般式（１）で表される配合剤を加えることにより、例えば J I S K 7 1 0 5 に準拠した Y I 値は、上述の一般式（１）で表される配合剤に対応する単量体（例えば、一般式（１）における R<sub>1</sub>～R<sub>5</sub>がいずれも一般式（１－１）の環状構造を含まない他、一般式（１）と共通する化合物）を配合剤として同じ量だけ加えた熱可塑性樹脂組成物の Y I 値に比べても、好ましくは、0.2 以上、低下させることができる。そしてこれらの Y I 値の差は、より好ましくは、0.3 以上、0.4 以上あるいは 0.5 以上、さらに好ましくは、0.6 以上、0.7 以上、0.8 以上、0.9 以上あるいは 1.0 以上ともなり得る。

[0106] [6. 熱可塑性樹脂組成物のヘーズ低減方法]

また、上述の配合剤を熱可塑性樹脂に添加する工程によって、熱可塑性樹脂のヘーズ値、例えば、J I S K-7 3 6 1、及び、J I S K-7 1 3 6 に準拠したヘーズ値を低下させることもできる。すなわち、熱可塑性樹脂組成物のヘーズ値は、配合剤を含まない以外はその熱可塑性樹脂組成物と同じ組成を有する対象用樹脂組成物のヘーズ値よりも小さい傾向にあって、これらのヘーズ値の差は、例えば、0.01 以上、0.02 以上、0.03 以上、0.04 以上、0.05 以上である。

[0107] [7. 成形体]

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、押出成形、ブロー成形、射出成形等に用いられ得る。得られる成形品としては、押出成形品、中空成形品、精密部品や薄物の射出成形品が挙げられる。

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、透過率の値を良好に維持することができる。このため、本発明の熱可塑性樹脂組成物は、光学材料等として特に適している。このような熱可塑性樹脂組成物を用いて製造される成形体として、光学レンズ、光学フィルム、液晶ディスプレイ、有機 E L ディスプレイ、太陽電池等に使用される透明導電性基板、光学ディスク、液晶パネル、光カード、シート、位相差フィルム等のフィルム、光ファイバー、コネクタ、蒸着プラスチック反射鏡、ディスプレイ、タッチパネル等が挙げられる。これ

らの光学用の成形体は、種々の用途で加えられる添加剤を含んでいても、高い透過率を有する。

光学材料として、およびその周辺分野の用途における本発明の熱可塑性樹脂を用いた成形品の具体例としては、コンパクトディスクやデジタルビデオディスク、ミニディスク、光磁気ディスクなどの光学メディア品、光ファイバーなどの光通信媒体、車などのヘッドランプレンズやカメラなどのレンズ体などの光学部品、サイレンライトカバー、照明ランプカバー、電車や自動車などの車両用窓ガラス代替品、家庭の窓ガラス代替品、サンルーフや温室の屋根などの採光部品、ゴーグルやサングラス、眼鏡のレンズや筐体、コピー機やファクシミリ、パソコンなどOA機器の筐体、テレビや電子レンジなど家電製品の筐体、コネクタやICトレイなどの電子部品用途などが挙げられ、その他にもさらに、ヘルメット、プロテクター、保護面などの保護具、哺乳瓶、食器、トレイなどの家庭用品、人工透析ケースや義歯などの医用品、包装用材料、筆記用具、文房具等の雑貨類などをあげる事ができるがこれらに限定されない。

本発明の熱可塑性樹脂組成物から得られる成形品として、特に好ましくは、高耐熱性、高透明性を必要とする以下のものが挙げられる。すなわち、自動車部材としてのヘッドランプレンズ、メータ盤、サンルーフなど、さらにガラス製ウインドウの代替品や外板部品；液晶ディスプレイなどの各種フィルム、導光板、光ディスク基板、スマートフォンなど電子機器の筐体；透明シートなどの建材等である。

なお、本発明の熱可塑性樹脂組成物が優れている透明性がさほど必要とはされない成形品であっても、原料の樹脂組成物が高透明であることにより、顔料・染料等の着色剤による着色度を制御しやすくなるメリットも認められる。

[0108] また、光学成形体の表面には、必要に応じ、反射防止層あるいはハードコート層といったコート層が設けられていてもよい。反射防止層は、単層であっても多層であってもよく、有機物であっても無機物であっても構わないが

、無機物であることが好ましい。具体的には、酸化ケイ素、酸化アルミニウム、酸化ジルコニウム、酸化チタニウム、酸化セリウム、酸化マグネシウム、フッ化マグネシウム等の酸化物あるいはフッ化物が例示される。

[0109] [7-1. 光学レンズ]

本発明の熱可塑性樹脂組成物を用いて製造される光学レンズは、透過率の特性に優れている他、本発明のポリカーボネート樹脂を用いて製造される光学レンズは、高屈折率であり、低アッベ数であり、高耐湿熱性であるため、望遠鏡、双眼鏡、テレビプロジェクター等、従来、高価な高屈折率ガラスレンズが用いられていた分野に用いることができ、極めて有用である。必要に応じて、非球面レンズの形で用いることが好ましい。非球面レンズは、1枚のレンズで球面収差を実質的にゼロとすることが可能であるため、複数の球面レンズの組み合わせによって球面収差を取り除く必要がなく、軽量化及び生産コストの低減化が可能になる。従って、非球面レンズは、光学レンズの中でも特にカメラレンズとして有用である。

光学レンズは、例えば射出成形法、圧縮成形法、射出圧縮成形法など任意の方法により成形される。本発明により、ガラスレンズでは技術的に加工の困難な高屈折率低複屈折非球面レンズをより簡便に得ることができる。

光学レンズへの異物の混入を極力避けるため、成形環境も当然低ダスト環境でなければならず、クラス6以下であることが好ましく、より好ましくはクラス5以下である。

[0110] 本発明の熱可塑性樹脂組成物を用いて製造される光学レンズは、上述した本発明のポリカーボネート共重合体を射出成形機あるいは射出圧縮成形機によりレンズ形状に射出成形することによって得ることができる。射出成形の成形条件は特に限定されないが、成形温度は好ましくは180~280℃である。また、射出圧力は好ましくは50~1700 kg/cm<sup>2</sup>である。

光学レンズへの異物の混入を極力避けるため、成形環境も当然低ダスト環境でなければならず、クラス1000以下であることが好ましく、より好ましくはクラス100以下である。

本発明の熱可塑性樹脂組成物を含む光学レンズは、必要に応じて非球面レンズの形で用いることが好適に実施される。非球面レンズは、1枚のレンズで球面収差を実質的にゼロとすることが可能であるため、複数の球面レンズの組み合わせで球面収差を取り除く必要がなく、軽量化および生産コストの低減化が可能になる。従って、非球面レンズは、光学レンズの中でも特にカメラレンズとして有用である。非球面レンズの非点収差は0～15 mλであることが好ましく、より好ましくは0～10 mλである。

本発明の熱可塑性樹脂組成物を用いて製造される光学レンズの厚みは、用途に応じて広範囲に設定可能であり特に制限はないが、好ましくは0.01～30 mm、より好ましくは0.1～15 mmである。本発明の光学レンズの表面には、必要に応じて、反射防止層あるいはハードコート層といったコート層が設けられていてもよい。反射防止層は、単層であっても多層であってもよく、有機物であっても無機物であっても構わないが、無機物であることが好ましい。具体的には、酸化ケイ素、酸化アルミニウム、酸化ジルコニウム、酸化チタニウム、酸化セリウム、酸化マグネシウム、フッ化マグネシウム等の酸化物あるいはフッ化物が例示される。これらのうちでより好ましいものは酸化ケイ素、酸化ジルコニウムであり、更に好ましいものは酸化ケイ素と酸化ジルコニウムの組み合わせである。また、反射防止層に関しては、単層／多層の組み合わせ、またそれらの成分、厚みの組み合わせ等について特に限定はされないが、好ましくは2層構成又は3層構成、特に好ましくは3層構成である。また、該反射防止層全体として、好ましくは光学レンズの厚みの0.00017～3.3%、具体的には0.05～3 μm、特に好ましくは1～2 μmとなる厚みで形成するのがよい。

[0111] [7-2. 光学フィルム]

本発明の熱可塑性樹脂組成物を用いて製造される光学フィルムは、透明性及び耐熱性に優れるため、液晶基板用フィルム、光メモリーカード等に好適に使用される。

光学フィルムへの異物の混入を極力避けるため、成形環境も当然低ダスト

環境でなければならず、クラス6以下であることが好ましく、より好ましくはクラス5以下である。

## 実施例

[0112] 以下、実施例を示して本発明について更に具体的に説明する。ただし、本発明は以下の実施例に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲において任意に変更して実施することができる。

[0113] [評価方法. 1]

詳細を後述する、ポリカーボネート樹脂を用いた実施例及び比較例における評価の方法は以下の通りである。

(1-1) 透過率 (分光透過率) [%]

詳細を後述する実施例1、比較例1、比較例2及び参考例1については、以下のように透過率を測定した。下記の方法で得られた熱可塑性樹脂組成物のペレットを、120℃で5時間、熱風循環式乾燥機により乾燥した後、射出成形機 (ファナック社製ROBOSHOT S-2000i30A) により、樹脂温度260℃、金型温度130℃、成形サイクル30秒の条件で、幅40mm×長さ40mmで厚みが3mmの平板状試験片を成形した。JIS K7105に準拠して、平板状試験片の3mm厚みの部分について、分光光度計 (日立ハイテクノロジーズ社製「U-4100」) を用い、波長370nm、380nm、400nmに於ける透過率 (%) を測定した。

また、実施例2~5、比較例3及び比較例4においては、樹脂温度を280℃とし、分光ヘーズメーター (日本電色工業株式会社製SH7000) を用いて、波長380nm、390nm、400nmを対象とした他、実施例1等と同様の条件で透過率 (%) を測定した。

[0114] (1-2) 質量平均分子量 (Mw)

樹脂及び樹脂組成物の質量 (重量) 平均分子量は、ゲル浸透クロマトグラフィ (GPC) 法によって測定し、標準ポリスチレン換算で算出した。使用装置、カラム、及び測定条件は以下の通りである。

・GPC装置: 東ソー (株) 製、HLC-8420GPC

- ・カラム：東ソー（株）製、TSK gel SuperHM-M ×3本  
東ソー（株）製、TSK gel guardcolumn SuperH-H  
×1本

- 東ソー（株）製、TSK gel SuperH-RC ×1本

- ・検出器：RI検出器

- ・標準ポリスチレン：東ソー（株）製、標準ポリスチレンキット PSt Quick C

- ・試料溶液：0.2質量%テトラヒドロフラン溶液

- ・溶離液：テトラヒドロフラン

- ・溶離液流速：0.6 mL/min

- ・カラム温度：40℃

[0115] (1-3) 全光線透過率およびヘーズ

3mm厚に成形した、下記実施例及び比較例の樹脂組成物のサンプルについて、JIS K-7361、JIS K-7136に準拠して測定した。

測定機器：日本電色工業株式会社製分光ヘーズメーター SH7000

[0116] (1-4) 樹脂組成物のYI値

3mm厚に成形したサンプルについて、分光ヘーズメーター用いて、JIS K-7105に準拠してYI値を測定した。

YI値の測定機器：日本電色工業株式会社製 分光ヘーズメーター SH7000

サンプルの成形：射出成形により成形した。成形条件を以下に示す。

成形装置：日精樹脂工業社製 NP-7

シリンダー温度：240℃

金型温度：40℃

金型：3mm厚円板

(1-4a) YI値及びYI上昇率(%)

YI上昇率(%)は、詳細を後述する耐候性試験の前後のYI値に基づき、下記式より算出した。

$YI$  上昇率 (%) = (耐候性試験後の  $YI$  値 - 耐候性試験前 (放射時間 0 時間) の  $YI$  値) / (耐候性試験前 (放射時間 0 時間) の  $YI$  値) × 100

(1-4b) 耐光性試験

上述の  $YI$  値の測定に用いた 3 mm 厚に成形したサンプルを用い、耐光性試験を行った。試験条件を以下に示す。

装置：株式会社東洋精機製作所製アトラス・ウエザオメータ Ci 4000

ランプ内側フィルター：Type S

ランプ外側フィルター：Type S

放射照度：60 W/m<sup>2</sup> (300-400 nm)

ブラックパネル温度：63℃

湿度：50%

運転条件：120 min 中 18 min 水噴霧する

放射時間：0 時間 (放射なし)、400 時間、800 時間

[0117] [評価方法 2]

詳細を後述するポリエステル樹脂及びポリエステル樹脂組成物の実施例中の評価方法は以下のとおりである。

[0118] (2-1) 環状アセタール骨格を有するジオール単位、脂環式ジオール単位の割合

ポリエステル樹脂中の環状アセタール骨格を有するジオールに由来する単位及び脂環式ジオールに由来する単位の割合は、<sup>1</sup>H-NMR 測定にて算出した。測定装置は Bruker BioSpin K. K. 製、Ascend TM 500 で測定した。溶媒には重クロロホルムを用いた。

[0119] (2-2) ガラス転移温度

ポリエステル樹脂のガラス転移温度 (T<sub>g</sub>) は、(株) 島津製作所製、示差走査型熱量計 (型式：DSC/TA-50WS) を使用し、試料約 10 mg をアルミニウム製非密封容器に入れ、窒素ガス (30 ml/min) 気流中昇温速度 20℃/min で測定し、DSC 曲線の転移前後における基線の

差の1/2だけ変化した温度をガラス転移温度とした。

[0120] (2-3) ペレットのYI値

JIS K-7105に準拠して、日本電色工業 株式会社製の「ZE2000」にて測定した。

[0121] (2-4) 揮発成分量

試料の単位重量あたりに換算した、GC-MS (ヘッドスペース) により得られた低分子量の化合物 (揮発成分) のピーク面積の相対値、すなわち、後述の比較例5又は比較例8における揮発成分のピーク面積の値を100%としたときのそれぞれ対応する他の実施例等の揮発成分のピーク面積の相対値を揮発成分量 (%) とした。

具体的には以下の通りである。

HSバイアル瓶に乾燥ペレット0.3gを入れ、空気下でセプタムシールした。ブロックヒーターにて250°C×5分加熱後、ただちにヘッドスペース-GC-MS装置による分析を開始した。分析にあたっては、各化合物について特徴的なイオンでマスクロマトグラムを抽出し、各サンプルの単位重量あたりのピーク面積値を求めた。使用装置、測定条件は次のとおりである。

[HS]

Agilent G1888

加熱温度および時間：250°C 5min (外部恒温器)

+ 230°C 1min

Loop 温度：240°C

TR LINE 温度：250°C

バイアル平衡化：1min、バイアル加圧：0.5min (15psi)

ループ充填：0.2min、ループ平衡化：0.2min、注入：0.1min

GCサイクル：分析35min+平衡化10min

キャリア圧力：16.5 psi

[GC]

Agilent 8890

Column: DB-WAX ( $\Phi 0.25\text{mm} \times 60 \times t 0.5\mu\text{m}$ )

Oven 温度：40°C 5min ~ 10°C/min ~ 240°C (10min)

Column flow: He 1.0 ml/min

Split ratio: 1/10

注入温度：240°C

MSD トランスファーライン：240°C

[MS]

Agilent 5977B MSD

ゲイン係数：1

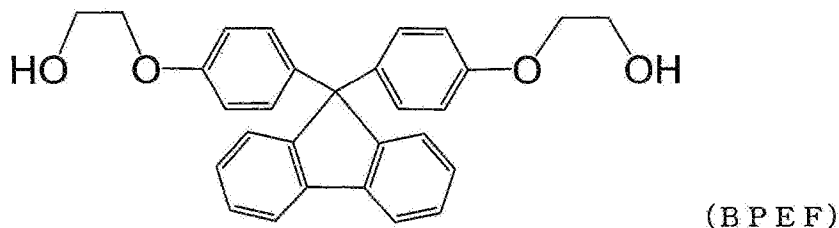
scan range: m/z = 29 ~ 700

[0122] <熱可塑性樹脂：PC1の合成>

原料として、9,9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]フルオレン(BPEF) 20.86 kg (47.56 mol)、ジフェニルカーボネート(DPC) 10.5 kg (49.02 mol)、及び $2.5 \times 10^{-2}$  mol/リットルの炭酸水素ナトリウム水溶液 16 ミリリットル ( $4.0 \times 10^{-4}$  mol、即ち、ジヒドロキシ化合物の合計 1 mol に対して、 $8.4 \times 10^{-6}$  mol) を攪拌機及び留出装装置付きの 50 L 反応器に入れ、窒素雰囲気 760 mmHg の下、180°C に加熱した。加熱開始 30 分後に原料の完全溶解を確認し、その後同条件で 120 分間攪拌を行った。その後、減圧度を 200 mmHg に調整すると同時に、60°C/hr の速度で 200°C まで昇温を行った。この際、副生したフェノールの留出開始を確認した。その後、20 分間 200°C に保持して反応を行った。さらに、75°C/hr の速度で 230°C まで昇温し、昇温終了 10 分後、その温度で保持しながら、2 時間かけて減圧度を 1 mmHg 以下とした。その後、60°C/hr の速度で 24

5℃まで昇温し、さらに40分間攪拌を行った。反応終了後、反応器内に窒素を導入して常圧に戻し、生成した樹脂をペレタイズしながら抜き出し、熱可塑性樹脂であるポリカーボネート樹脂（PC1：BPEFのホモポリマー樹脂）を得た。

[化39]



[0123] <熱可塑性樹脂：PC2の合成>

5質量%の水酸化ナトリウム水溶液40リットルに、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン3634g(15.92モル)と30gのヒドロサルファイトを溶解した。この溶液に、17リットルのジクロロメタンを加えて攪拌しつつ、15℃に保ちながら、ホスゲン2100g(21.23モル)を15分間かけて吹き込んだ。ホスゲン吹き込み終了後、反応液に、分子量調節剤としてp-tert-ブチルフェノール91.63g(0.61モル)を加え、更に、5質量%の水酸化ナトリウム水溶液10リットル、ジクロロメタン20リットルを追加し、激しく攪拌して、反応液を乳化させた。その後、20ミリリットルのトリエチルアミンを加え、20℃乃至25℃にて約1時間攪拌し、重合反応を進行させた。重合終了後、反応液を水相と有機相に分離し、有機相をリン酸で中和後、水洗した。得られた重合体溶液を、50℃に保った温水に滴下し、溶媒を蒸発除去させると同時に、固形化物を粉碎して、白色粉末状沈殿物を得た。得られた沈殿物を濾過し、120℃で24時間乾燥して、重合体粉末（熱可塑性樹脂であるポリカーボネート樹脂（PC2：ビスフェノールA系PC樹脂））を得た。

[0124] <配合剤（A）（二量体）の合成>

下記式で表される二量体の配合剤（A）を以下のように合成した。

2,4-ジ-tert-ブチルフェノール（東京化成社製）21.3質量

部、グリオキシル酸 1 水和物（富士フィルム和光純薬社製）10.4 質量部、p-トルエンスルホン酸 1 水和物（東京化成社製）0.051 質量部、および、1,2-ジクロロエタン（東京化成社製）40 質量部をフラスコに計量した。

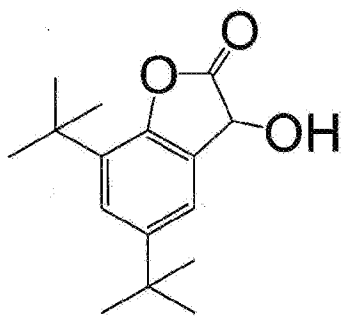
次いで、計量したフラスコを 105℃のオイルバスに入れ、ディーンシュターク管を用いて留去物を留去しながら、留去量と同じ量の 1,2-ジクロロエタンを添加する方法により内温が 86℃になるまで加熱を続けた。

次いで、オイルバスを 120℃に加熱し、1,2-ジクロロエタンの残存量が 10 質量部未満になるように濃縮を行った。その後、反応液を室温（23℃）に冷却し、ヘキサン 100 質量部および水 100 質量部を反応液に添加し攪拌した。その後、ヘキサン層を回収し、飽和食塩水 100 質量部を反応液に添加し攪拌した。

その後、ヘキサン層を回収し、硫酸マグネシウム（富士フィルム和光純薬社製）1 質量部を反応液に添加して 1 時間、乾燥させた。

次いで、硫酸マグネシウムをろ過し、ヘキサン層を、エバポレーターを用いて濃縮乾固させ、下記式（1a）で表される化合物を含有する褐色の粘体（1）を 27.0 質量部得た。

[化40]



(1a)

次いで、褐色の粘体（1）にエチレングリコールジフェニルエーテル（東京化成社製）4.41 質量部、塩化スズ（IV）5 水和物（東京化成社製）15.88 質量部、1,2-ジクロロエタン（東京化成社製）81 質量部を

秤量し、105℃のオイルバスを用いて4時間還流させた。

次いで、1,2-ジクロロエタン40質量部を留去した後、反応液を室温(23℃)に冷却し、酢酸エチル200質量部および水200質量部を反応液に添加した。

その後、酢酸エチル層を回収し、飽和食塩水200質量部を反応液に添加し、攪拌した。その後、酢酸エチル層を回収し、飽和食塩水200質量部を用いて、飽和食塩水層のpHが6になるまで分液精製を繰り返した。

その後、酢酸エチル層を回収し、硫酸マグネシウム1質量部を反応液に添加して1時間、乾燥させた。

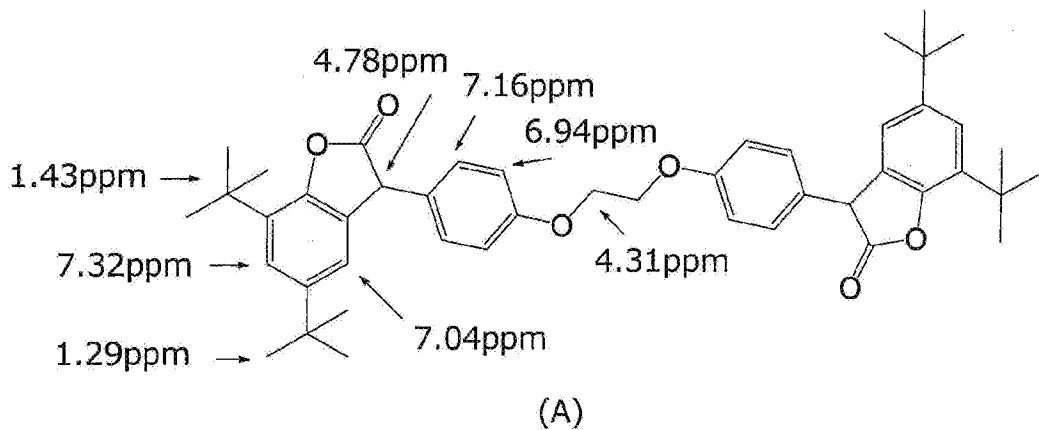
次いで、硫酸マグネシウムをセライトろ過し、酢酸エチル層を、エバポレーターを用いて濃縮乾固させ、褐色粘体(2)を21質量部得た。

得られた褐色粘体(2)をカラムクロマトグラフィで精製し、下記式(A)で表される二量体の配合剤(A)を得た。

得られた二量体の配合剤(A)の<sup>1</sup>H-NMR (Nuclear Magnetic Resonance) データおよびその帰属を以下に示す。

<sup>1</sup>HNMR (CDCl<sub>3</sub>) δ (ppm) = 1.29 (18 H, s), 1.43 (18 H, s), 4.31 (4 H, s), 4.78 (2 H, s), 6.94 (4 H, d), 7.04 (2 H, s), 7.16 (4 H, d), 7.32 (2 H, s)

[化41]



[0125] <実施例 1 等>

下記表 1 に示す質量比で、合成例 1 で得られた PC 1 と、添加剤（離型剤、酸化防止剤）と、配合剤とを、タンブラーを用いて乾式混合し、二軸押出機（（株）アイペック製、IPT 型 35 mm 同方向二軸押出機、L/D = 38）を用いて、シリンダー温度 250℃、ベント圧力 25 Torr、吐出量 20 kg/時にて熔融混練し、ストランドとして押し出し、ペレット状の熱可塑性樹脂であるポリカーボネート樹脂組成物を得た。得られた樹脂組成物について、YI 値、透過率等を測定し、結果を表 1 に示した。

[表1]

			実施例 1	比較例 1	比較例 2	参考例 1
樹脂			PC1	PC1	PC1	PC1
離型剤		S-100A	1000	1000	1000	1000
酸化防止剤	ホスファイト系 [ppm]	PEP-36	200	200	0	0
	フェノール系 [ppm]	AO-60	1000	1000	0	0
配合剤 [ppm]		(A)二量体	200	0	0	200
		(B)単量体	0	0	200	0
物性	YI		1.06	2.19	3.06	3.00
	ヘーズ		0.45	0.51	0.33	0.33
	全光線透過率 [%]		87.78	88.49	88.05	87.87
	分光透過率 [%]	400nm	84.52	82.32	78.79	77.58
		380nm	80.64	79.50	69.90	66.59
370nm		76.81	76.92	64.56	60.10	

酸化防止剤 AO-60 :

ペンタエリスリトール-テトラキス [3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート] (ADEKA社製AO-60)

酸化防止剤 PEP-36 :

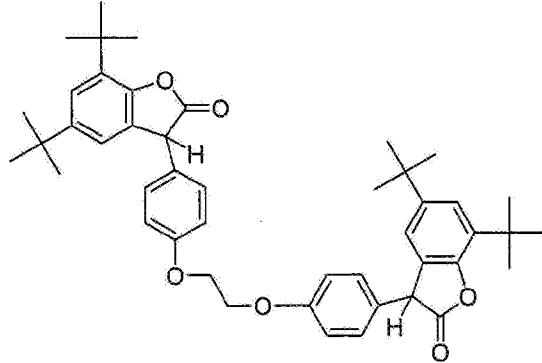
3,9-ビス(2,6-di-tert-ブチル-4-メチルフェノキシ)-2,4,8,10-テトラオキサ-3,9-ジフォスファスピロ[5.5]ウンデカン (ADEKA社製PEP-36)

離型剤 S-100A :

ステアリン酸モノグリセリド（理研ビタミン株式会社製S-100A）

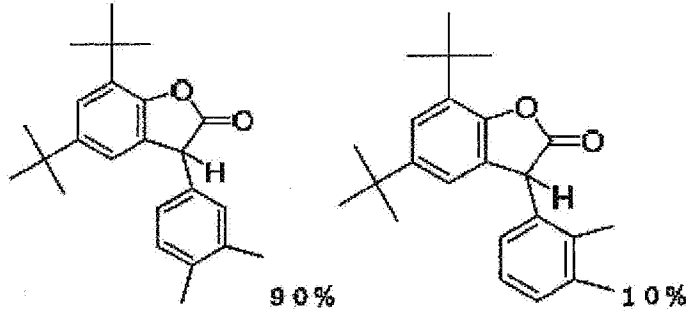
配合剤（A）（表中の（A）二量体）：下記化合物

[化42]



配合剤（B）（表中の（B）単量体）：下記式化合物の混合物（3，4－ジメチル体、2，4－ジメチル体の混合物）であり、東京化成工業株式会社製の市販品を用いた。

[化43]



[0126] <実施例2～5等>

表2に示す質量比で、合成例2で得られたPC2、及び、実施例1と共通する原料を用いて、実施例1とほぼ同様の操作を行い、ペレット状の熱可塑性樹脂であるポリカーボネート樹脂組成物を得た。得られた樹脂組成物について、YI値、透過率等を測定し、結果を表2に示した。

なお、実施例2～5、比較例3及び比較例4においては、添加剤として離型剤を用いずに酸化防止剤を用い、二軸押出機として芝浦機械（株）製のTEM-18SSを採用し、溶融混練におけるシリンダー温度を280℃、吐出量を6kg/時とした他、上述の実施例1等と同じ操作を行った。

[表2]

		実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	比較例3	比較例4	
樹脂		PC2	PC2	PC2	PC2	PC2	PC2	
離型剤		S-100A	0	0	0	0	0	
酸化防止剤	ホスファイト系 [ppm]	PEP-36	500	500	500	500	0	500
	フェノール系 [ppm]	AO-60	1000	0	0	0	0	1000
配合剤 [ppm]	(A)二量体	200	200	1000	50	0	0	
	(B)単量体	0	0	0	0	0	0	
物性	YI		0.01	-0.21	-2.49	0.56	1.76	1.20
	ヘーズ		0.15	0.22	0.13	0.14	0.28	0.17
	全光線透過率 [%]		88.88	88.68	86.39	89.59	89.78	90.06
	分光透過率 [%]	400nm	86.39	86.20	82.84	87.91	87.10	88.42
		390nm	84.28	83.84	78.21	86.79	86.20	87.96
		380nm	86.39	81.14	72.75	85.54	84.99	87.30

[0127] <製造例>

[ポリエステル樹脂 (PEs-1 及び PEs-2) の合成]

充填塔式精留塔、分縮器、全縮器、コールドトラップ、攪拌機、加熱装置及び窒素導入管を備えた、容量30Lのポリエステル製造装置に対して、下記表3に記載の原料モノマーを仕込み、ジカルボン酸成分に対しテトラ-*n*-ブトキシチタン0.005モル%、酢酸カリウム0.02モル%を加え、窒素雰囲気下で225℃迄昇温してエステル交換反応を行った。ジカルボン酸成分の反応転化率を90%以上とした後、ジカルボン酸成分に対して、二酸化ゲルマニウム0.025モル%、トリエチルホスフェート0.05モル%を加え、昇温と減圧を徐々に行い、最終的に280℃、0.1kPa以下で重縮合を行った。適度な溶融粘度になった時点で反応を終了し、ポリエステル樹脂PEs-1及びPEs-2を各々合成した。

[0128]

[表3]

	製造例1 (PEs-1)	製造例2 (PEs-2)
モノマー仕込み量		
ジカルボン酸成分 (モル)		
DMT	0	49.8
NDCM	31.2	0
ジオール成分 (モル)		
EG	35.9	89.6
SPG	13.0	23.3
CHDM	20.3	0
ポリエステル樹脂の評価結果		
環状アセタール骨格を有する ジオールに由来する単位の割合 (モル%)	38.9	44.3
脂環式ジオールに由来する単位の割合 (モル%)	53.3	0
ガラス転移温度 (°C)	135	110

[0129] なお、表3中の略記の意味は下記のとおりである。

DMT : ジメチルテレフタレート

NDCM : 2, 6-ナフタレンジカルボン酸ジメチル

EG : エチレングリコール

SPG : 3, 9-ビス(1, 1-ジメチル-2-ヒドロキシエチル)-  
2, 4, 8, 10-テトラオキサスピロ〔5. 5〕ウンデカン

CHDM : 1, 4-シクロヘキサンジメタノール

[0130] (混練ペレットの作製)

二軸混練押出機((株)テクノベル製、型式:KZW15TW-30MG-NH(-700)、スクリー径:15mmφ、L/D:30)を用い、上述の製造例で合成したポリエステル樹脂PEs-1及びPEs-2のそれぞれと、酸化防止剤とを所定の比率でドライブレンドしてホッパーから投入した。シリンダー温度210~280°C、ダイス温度280°C、スクリー回転数60rpm、吐出量1.4kg/hの条件でストランドを押し出し、空冷後にペレタイズしてポリエステル樹脂素押しペレットならびに添加物混練ペレットを得た。添加剤の種類ならびにその量について、表4ならびに表5にそれぞれ示す。

[0131] なお、使用添加剤については次のとおりである。

酸化防止剤 Irganox1330 :

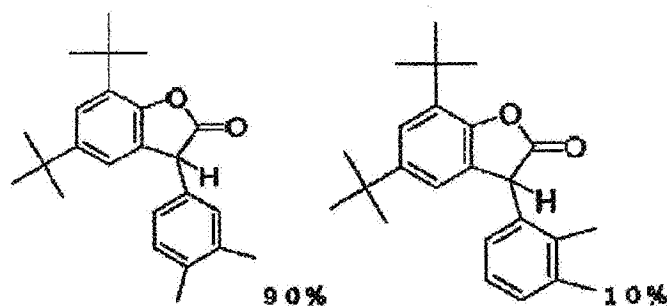
3, 3', 3'', 5, 5', 5'' -Hexa-tert-butyl-, alpha, . alpha', . alpha'' - (mesitylene-2, 4, 6-triyl) tri-p-cresol (BASFジャパン社製 Irganox1330)

酸化防止剤 PEP-36 :

3, 9-ビス(2, 6-Di-tert-ブチル-4-メチルフェノキシ)-2, 4, 8, 10-テトラオキサ-3, 9-ジフォスファスピロ[5, 5]ウンデカン (ADEKA社製PEP-36)

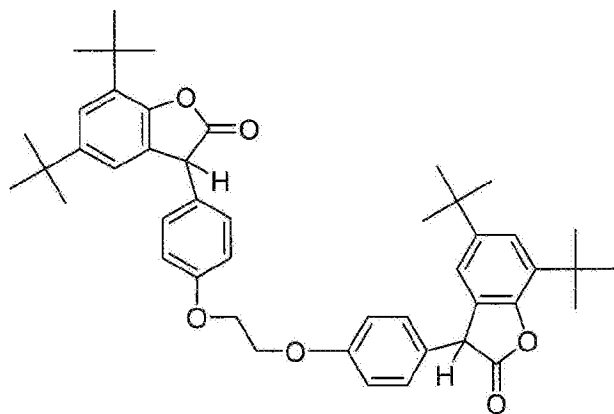
配合剤 (B) (単量体) : 下記式混合物 (3, 4-ジメチル体、2, 4-ジメチル体の90 : 10の混合物 ; 東京化成工業株式会社製の市販品)

[化44]



配合剤 (A) (二量体) : 下記式混合物

[化45]



[0132]

[表4]

			実施例6	実施例7	比較例5	比較例6	比較例7
樹脂			PEs-1	PEs-1	PEs-1	PEs-1	PEs-1
酸化防止剤	ホスファイト系 [ppm]	PEP-36	5000	5000	5000	5000	0
	フェノール系 [ppm]	Irganox1330	0	3000	0	3000	0
配合剤 [ppm]		配合剤1 (A) 二量体	500	500	0	0	0
		配合剤2 (B) 単量体	0	0	500	500	0
物性	YI		11.5	16.0	13.6	16.2	17.8
揮発成分量 (単位重量あたり換算のピーク面積値； 比較例5を100%としたときの相対値(%))	ホルムアルデヒド		99	125	100	125	1509
	アセトアルデヒド		92	119	100	122	198
	アセトン		98	99	100	108	3849
	2,3-ブタンジオン		103	194	100	165	1450
	酢酸		83	104	100	106	267
	蟻酸		158	169	100	171	1745

[0133] [表5]

			実施例8	実施例9	比較例8	比較例9	比較例10
樹脂			PEs-2	PEs-2	PEs-2	PEs-2	PEs-2
酸化防止剤	ホスファイト系 [ppm]	PEP-36	5000	5000	5000	5000	0
	フェノール系 [ppm]	Irganox1330	0	3000	0	3000	0
配合剤 [ppm]		配合剤1 (A) 二量体	500	500	0	0	0
		配合剤2 (B) 単量体	0	0	500	500	0
物性	YI		7.6	7.3	10.2	9.2	16.2
揮発成分量 (単位重量あたり換算のピーク面積値； 比較例8を100%としたときの相対値(%))	ホルムアルデヒド		101	110	100	108	9160
	アセトアルデヒド		111	105	100	106	615
	アセトン		100	95	100	100	17112
	2,3-ブタンジオン		93	97	100	91	1387
	酢酸		99	100	100	101	1770
	蟻酸		87	106	100	116	38486

[0134] 実施例6～9に係る二量体の配合剤1を添加したポリエステル樹脂組成物においては、比較例5～10に係る単量体の配合剤2を添加したポリエステル樹脂組成物と比較して、混練後のペレットのYI低減効果及び揮発成分量低減効果の発現が認められた。

また、これらの実施例にて、揮発成分量低減効果については比較例と概ね同等であったが、配合剤の添加による低減効果が確認された。

[0135] (実施例10)

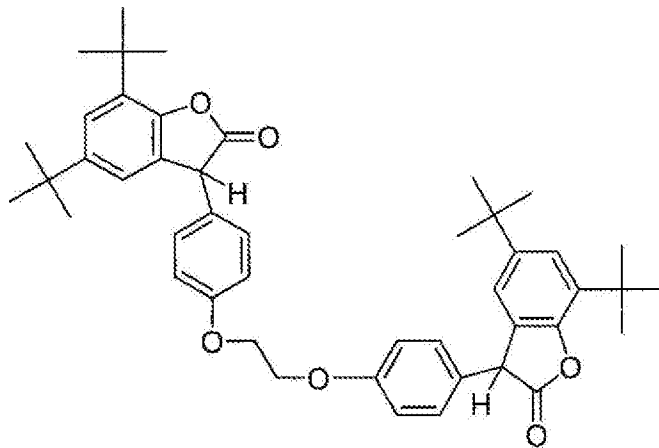
二軸混練押出機（芝浦機械株式会社製、型式：TEM-18SS）を用い

、ポリプロピレン（PP、日本ポリプロ株式会社製、MA3）、核剤（烟台只楚新材料股フン（人偏に分）有限公司（Yantai Zhichu New Materials Co., Ltd.）製1,3:2,4-ビス（3,4-ジメチルベンジリデン）-D-ソルビトール（略称：DMDBS））、及び配合剤1を、下記表6に示す比率でドライブレンドしてホッパーから投入した。シリンダー温度230℃、スクリー回転数300rpm、吐出量6.0kg/hの条件でストランドを押し出し、ペレタイズして熱可塑性樹脂組成物（ポリプロピレン樹脂組成物）を得た。得られた樹脂組成物の物性を表6に示した。

配合剤1としては、上述の実施例における配合剤（A）に相当する下記の化合物を用いた。

配合剤1（A）（二量体）：下記式化合物

[化46]



[0136]（比較例11）

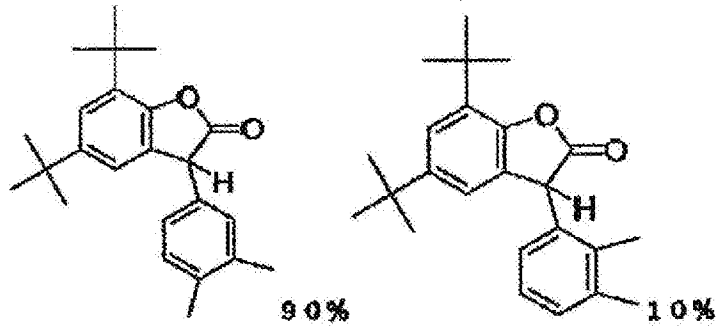
配合剤1を後述の配合剤2に替える以外は、実施例10と同様にして樹脂組成物を得た。得られた樹脂組成物の物性を表6に示した。

（比較例12）

配合剤1を添加しない以外は、実施例10と同様にして樹脂組成物を得た。得られた樹脂組成物の物性を表6に示した。

配合剤2としては、上述の実施例における配合剤（B）に相当する下記の化合物を用いた。

配合剤 2 (B) (単量体) : 下記式混合物 (3, 4-ジメチル体、2, 4-ジメチル体の 90 : 10 の混合物 ; 東京化成工業株式会社製の市販品)  
 [化47]



(実施例 1 1)

配合剤 1 を 500 ppm に替える以外は、実施例 10 と同様にして樹脂組成物を得た。得られた樹脂組成物の物性を表 7 に示した。

(比較例 1 3)

配合剤 1 を配合剤 2 に替える以外は、実施例 11 と同様にして樹脂組成物を得た。得られた樹脂組成物の物性を表 7 に示した。

(比較例 1 4)

配合剤 1 を添加しない以外は、実施例 11 と同様にして樹脂組成物を得た。得られた樹脂組成物の物性を表 7 に示した。

[0137] [表6]

		実施例10	比較例11	比較例12
樹脂		PP	PP	PP
配合剤 [ppm]	配合剤1(A) 二量体	100	0	0
	配合剤2(B) 単量体	0	100	0
核剤 [ppm]	DMDBS	2000	2000	2000
物性	YI値	70.8	71.8	73.5

[表7]

		実施例11	比較例13	比較例14	
樹脂		PP	PP	PP	
配合剤 [ppm]	配合剤1(A)二量体	500	0	0	
	配合剤2(B)単量体	0	500	0	
核剤 [ppm]	DMDBS	2000	2000	2000	
物性	YI値	耐候性試験時間 0時間	70.9	70.9	73.5
		耐候性試験時間 400時間	75.1	75.5	78.1
		耐候性試験時間 800時間	76.1	76.8	79.8
	YI上昇率 [%]	耐候性試験時間 0時間	0.0	0.0	0.0
		耐候性試験時間 400時間	5.7	6.5	6.3
		耐候性試験時間 800時間	8.2	8.3	8.6

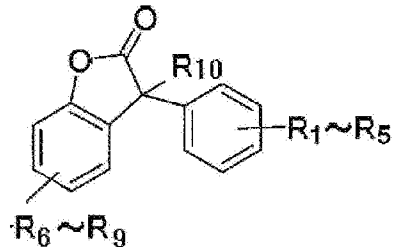
[0138] 実施例10に係る二量体の配合剤1を添加したポリプロピレン樹脂組成物においては、配合剤を含まない比較例12のみならず、比較例11に係る単量体の配合剤2を添加したポリプロピレン樹脂組成物と比較しても、当該樹脂組成物から得られた射出成形体のYI低減効果の発現が認められた。

さらに、実施例11に係る二量体の配合剤1を添加したポリプロピレン樹脂組成物においては、配合剤を含まない比較例14のみならず、比較例13に係る単量体の配合剤2を添加したポリプロピレン樹脂組成物と比較しても、当該樹脂組成物から得られた射出成形体のYI低減効果の発現が、耐候性試験後にも認められた。

## 請求の範囲

[請求項1] 下記一般式（1）で表される配合剤を含む、熱可塑性樹脂組成物。

[化1]



(1)

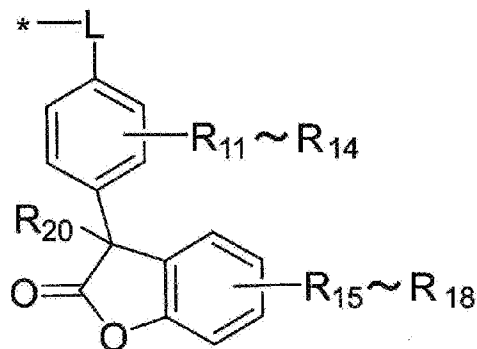
(一般式（1）中、

R<sub>1</sub>～R<sub>5</sub>は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1～20のアルキル基あるいはアルコキシ基、又は、下記一般式（1-1）の構造式を表し、但し、R<sub>1</sub>～R<sub>5</sub>の少なくともいずれかは、下記一般式（1-1）の構造式であり、

R<sub>6</sub>～R<sub>9</sub>は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1～20のアルキル基あるいはアルコキシ基を表し、

R<sub>10</sub>は、水素原子、又は、合計炭素数1～5のアルキル基を表す。）

[化2]

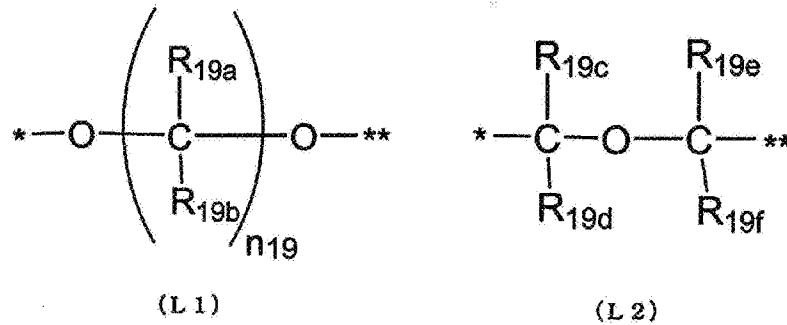


(1-1)

(一般式（1-1）中、

R<sub>11</sub>～R<sub>18</sub>は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1～20のアルキル基あるいはアルコキシ基を表し、

Lは、下記一般式 (L 1) または (L 2) で表される部位であり、  
[化3]



(式 (L 1) 中、

$R_{19a}$  および  $R_{19b}$  は、それぞれ独立に、水素原子、合計炭素数 1 ~ 20 のアルキル基またはアルコキシ基を表し、

$n_{19}$  は、1 ~ 12 の整数を表し、 $n_{19}$  が 2 ~ 12 の整数である場合、複数の  $R_{19a}$  は、それぞれ同一の置換基であっても異なる置換基であってもよく、複数の  $R_{19b}$  は、それぞれ同一の置換基であっても異なる置換基であってもよく、

式 (L 2) 中、

$R_{19c}$ 、 $R_{19d}$ 、 $R_{19e}$  および  $R_{19f}$  は、それぞれ独立に、水素原子、合計炭素数 1 ~ 20 のアルキル基またはアルコキシ基を表し、

式 (L 1) 及び (L 2) において、

\* は、それぞれ、前記式 (1) における  $R_1 \sim R_5$  を含むベンゼン環との結合位置を表し、

\*\* は、それぞれ、前記式 (1-1) における  $R_{11} \sim R_{14}$  を含むベンゼン環との結合位置を表す。) )

$R_{20}$  は、水素原子、又は、置換基を有してもよい合計炭素数 1 ~ 5 のアルキル基を表し、

\* は、前記式 (1) における  $R_1 \sim R_5$  を含むベンゼン環との結合位置を表す。) )

[請求項2]

酸化防止剤をさらに含む、請求項 1 に記載の熱可塑性樹脂組成物。

- [請求項3] 前記酸化防止剤が、フェノール系酸化防止剤及び／又はホスファイト系酸化防止剤である、請求項2に記載の熱可塑性樹脂組成物。
- [請求項4] 前記酸化防止剤が、前記樹脂組成物の全重量を基準として1重量ppm～3000重量ppm含まれる、請求項2又は3に記載の熱可塑性樹脂組成物。
- [請求項5] 前記配合剤が、前記樹脂組成物の全重量を基準として1重量ppm～2000重量ppm含まれる、請求項1～4のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。
- [請求項6] 前記配合剤を含まない以外は同じ組成を有する対象用樹脂組成物に比べて、JIS K7105に準拠した波長370nm～400nmにおける透過率(%)の値が2.0(%)以上大きい、請求項1～5のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。
- [請求項7] 前記配合剤を含まない以外は同じ組成を有する対象用樹脂組成物に比べて、JIS K7105に準拠した波長370nm～400nmにおける透過率(%)の値が1.1倍以上である、請求項1～6のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。
- [請求項8] 前記配合剤を含まない以外は同じ組成を有する対象用樹脂組成物に比べて、250℃で5分間加熱したときに生じる揮発成分の量が少なく、  
前記揮発成分が、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、アセトン、2,3-ブタンジオン、酢酸及び蟻酸のいずれかである、請求項1～7のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。
- [請求項9] 前記配合剤を含まない以外は同じ組成を有する対象用樹脂組成物に比べて、JIS K7105に準拠したYI値が0.20以上小さい、請求項1～8のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。
- [請求項10] 前記一般式(1)において、  
R<sub>1</sub>～R<sub>5</sub>のうち4つが水素原子であり、1つが前記一般式(1-1)の構造式で表される部位であり、

$R_6 \sim R_9$ のうち2つが水素原子であり、2つがアルキル基であり

、

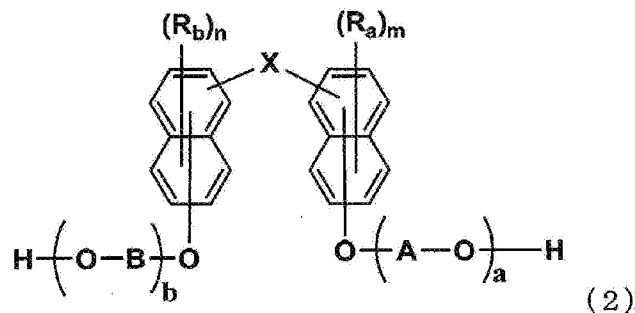
$R_{10}$ が水素原子である、請求項1～9のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。

[請求項11] 前記一般式(1)及び前記一般式(1-1)において、前記置換基が、ハロゲン、シアノ基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基のいずれかである、請求項1～10のいずれかに記載の熱可塑性樹脂組成物。

[請求項12] 熱可塑性樹脂をさらに有し、前記熱可塑性樹脂が、ポリカーボネート樹脂、ポリエステル樹脂、ポリエステルカーボネート樹脂、シクロオレフィン系樹脂、ならびにアクリル樹脂からなる群より選択される、請求項1～11のいずれか一項に記載の熱可塑性樹脂組成物。

[請求項13] 前記熱可塑性樹脂が、下記一般式(2)で表されるモノマー由来の構成単位(B)及び/又は下記一般式(3)で表されるモノマー由来の構成単位(C)を含むポリカーボネート樹脂、ポリエステル樹脂、又は、ポリエステルカーボネート樹脂である、請求項12に記載の熱可塑性樹脂組成物。

[化4]



(一般式(2)中、

$R_a$ 及び $R_b$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換基を有してもよい炭素数1～20のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1～20のアルコキシル基、置換基を有してもよい炭素数5～20のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数5～20の

シクロアルコキシル基、置換基を有してもよい炭素数6～20のアリール基、O、N及びSから選択される1つ以上のヘテロ環原子を含む、置換基を有してもよい炭素数6～20のヘテロアリール基、置換基を有してもよい炭素数6～20のアリールオキシ基、及び、 $-C\equiv C-R_h$ からなる群より選択され、

$R_h$ は置換基を有してもよい炭素数6～20のアリール基、又は、O、N及びSから選択される1つ以上のヘテロ環原子を含む、置換基を有してもよい炭素数6～20のヘテロアリール基を表し、

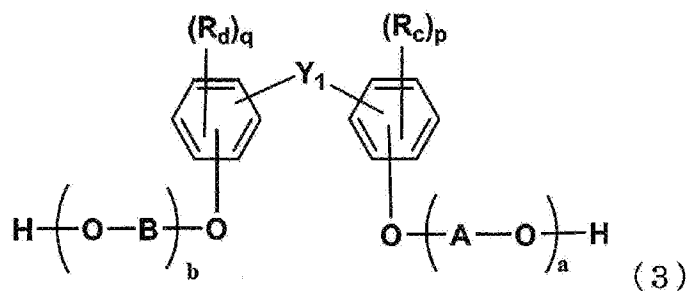
Xは、単結合であるか、又は置換基を有してもよいフルオレン基を表し、

A及びBは、それぞれ独立に、置換基を有してもよい炭素数1～5のアルキレン基を表し、

m及びnは、それぞれ独立に、0～6の整数を表し、

a及びbは、それぞれ独立に、0～10の整数を表す。）

[化5]

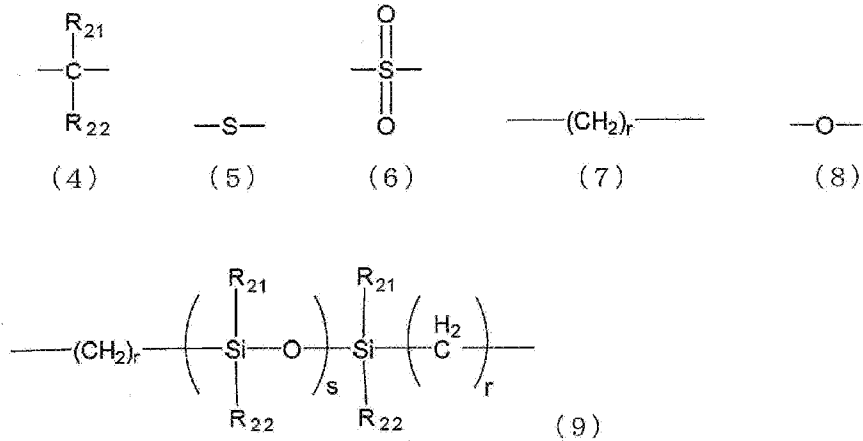


(一般式(3)中、

$R_c$ 及び $R_d$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、置換基を有してもよい炭素数1～20のアルキル基、置換基を有してもよい炭素数1～20のアルコキシル基、置換基を有してもよい炭素数5～20のシクロアルキル基、置換基を有してもよい炭素数5～20のシクロアルコキシル基、及び、置換基を有してもよい炭素数6～20のアリール基からなる群より選択され、

$Y_1$ は、単結合、置換基を有してもよいフルオレン基、又は下記一

一般式（４）～（９）で表される構造式のうちいずれかであり、  
 [化6]



（一般式（４）～（９）中、

R<sub>21</sub>及びR<sub>22</sub>は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、置換基を有してもよい炭素数１～２０のアルキル基、又は、置換基を有してもよい炭素数６～３０のアリール基を表すか、あるいは、R<sub>21</sub>及びR<sub>22</sub>が互いに結合して形成する、置換基を有してもよい炭素数１～２０の炭素環または複素環を表し、

r及びsは、それぞれ独立して、０～５０００の整数を表し

A及びBは、それぞれ独立に、置換基を有してもよい炭素数１～５のアルキレン基を表し、

p及びqは、それぞれ独立に、０～４の整数を表し、

a及びbは、それぞれ独立に、０～１０の整数を表す。）

[請求項14] 前記熱可塑性樹脂のポリスチレン換算の重量平均分子量（Mw）が、１０，０００～３００，０００である、請求項１２及び１３のいずれか一項に記載の熱可塑性樹脂組成物。

[請求項15] 前記一般式（２）及び一般式（３）において、前記A及びBが、それぞれ独立に、炭素数２又は３のアルキレン基を表す、請求項１３及び１４のいずれか一項に記載の熱可塑性樹脂組成物。

[請求項16] 前記熱可塑性樹脂が、少なくとも、BPEF、BNE、BNEF及びDPBHBAのいずれかに由来する構成単位を含む、請求項１２

～15のいずれか一項に記載の熱可塑性樹脂組成物。

[請求項17] 触媒失活剤をさらに含む、請求項1～16のいずれか一項に記載の熱可塑性樹脂組成物。

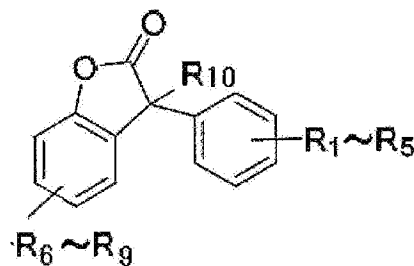
[請求項18] 前記触媒失活剤が、ドデシルベンゼンスルホン酸塩を含む、請求項17に記載の熱可塑性樹脂組成物。

[請求項19] 離型剤をさらに含む、請求項1～18のいずれか一項に記載の熱可塑性樹脂組成物。

[請求項20] 前記離型剤が、前記樹脂組成物の全重量を基準として1重量ppm～5000重量ppm含まれる、請求項19に記載の熱可塑性樹脂組成物。

[請求項21] 波長370nm～400nmにおける透過率(%)の値を向上させるための下記一般式(1)で表される配合剤を含む、熱可塑性樹脂組成物。

[化7]



(1)

(一般式(1)中、

$R_1 \sim R_5$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1～20のアルキル基あるいはアルコキシ基、又は、下記一般式(1-1)の構造式を表し、但し、 $R_1 \sim R_5$ の少なくともいずれかは、下記一般式(1-1)の構造式であり、

$R_6 \sim R_9$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1～20のアルキル基あるいはアルコキシ基を表し、

$R_{10}$ は、水素原子、又は、合計炭素数1～5のアルキル基を表す



原子、合計炭素数 1 ～ 20 のアルキル基またはアルコキシ基を表し、式 (L 1) 及び (L 2) において、

\*は、それぞれ、前記式 (1) における  $R_1 \sim R_5$  を含むベンゼン環との結合位置を表し、

\*\*は、それぞれ、前記式 (1-1) における  $R_{11} \sim R_{14}$  を含むベンゼン環との結合位置を表す。) )

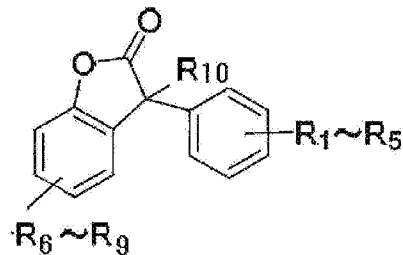
$R_{20}$  は、水素原子、又は、置換基を有してもよい合計炭素数 1 ～ 5 のアルキル基を表し、

\*は、前記式 (1) における  $R_1 \sim R_5$  を含むベンゼン環との結合位置を表す。) )

[請求項22] 請求項 1 ～ 21 のいずれか一項に記載の熱可塑性樹脂組成物を含む、成形体。

[請求項23] 下記一般式 (1) で表される配合剤を熱可塑性樹脂に添加する工程を含む、熱可塑性樹脂組成物の製造方法。

[化10]



(1)

(一般式 (1) 中、

$R_1 \sim R_5$  は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数 1 ～ 20 のアルキル基あるいはアルコキシ基、又は、下記一般式 (1-1) の構造式を表し、但し、 $R_1 \sim R_5$  の少なくともいずれかは、下記一般式 (1-1) の構造式であり、

$R_6 \sim R_9$  は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数 1 ～ 20 のアルキル基あるいはアルコキシ基を表し、



$R_{19c}$ 、 $R_{19d}$ 、 $R_{19e}$ および $R_{19f}$ は、それぞれ独立に、水素原子、合計炭素数1～20のアルキル基またはアルコキシ基を表し、式(L1)及び(L2)において、

\*は、それぞれ、前記式(1)における $R_1\sim R_5$ を含むベンゼン環との結合位置を表し、

\*\*は、それぞれ、前記式(1-1)における $R_{11}\sim R_{14}$ を含むベンゼン環との結合位置を表す。) )

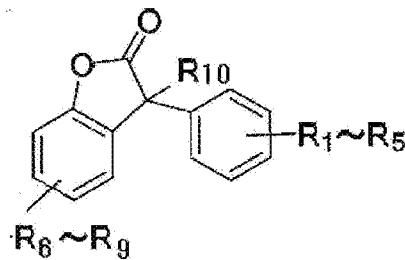
$R_{20}$ は、水素原子、又は、置換基を有してもよい合計炭素数1～5のアルキル基を表し、

\*は、前記式(1)における $R_1\sim R_5$ を含むベンゼン環との結合位置を表す。)

[請求項24]

下記一般式(1)で表される配合剤を熱可塑性樹脂に添加する工程を含む、熱可塑性樹脂組成物の透過率向上方法。

[化13]



(1)

(一般式(1)中、

$R_1\sim R_5$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1～20のアルキル基あるいはアルコキシ基、又は、下記一般式(1-1)の構造式を表し、但し、 $R_1\sim R_5$ の少なくともいずれかは、下記一般式(1-1)の構造式であり、

$R_6\sim R_9$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1～20のアルキル基あるいはアルコキシ基を表し、

$R_{10}$ は、水素原子、又は、合計炭素数1～5のアルキル基を表す。)



\*は、それぞれ、前記式(1)における $R_1 \sim R_5$ を含むベンゼン環との結合位置を表し、

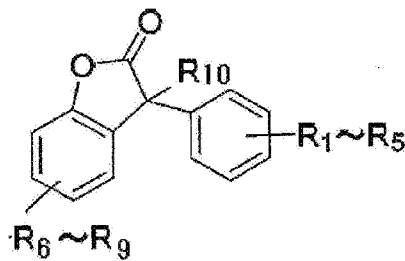
\*\*は、それぞれ、前記式(1-1)における $R_{11} \sim R_{14}$ を含むベンゼン環との結合位置を表す。)

$R_{20}$ は、水素原子、又は、置換基を有してもよい合計炭素数1~5のアルキル基を表し、

\*は、前記式(1)における $R_1 \sim R_5$ を含むベンゼン環との結合位置を表す。)

[請求項25] 下記一般式(1)で表される配合剤を熱可塑性樹脂に添加する工程を含む、熱可塑性樹脂組成物の色相の向上方法。

[化16]



(1)

(一般式(1)中、

$R_1 \sim R_5$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1~20のアルキル基あるいはアルコキシ基、又は、下記一般式(1-1)の構造式を表し、但し、 $R_1 \sim R_5$ の少なくともいずれかは、下記一般式(1-1)の構造式であり、

$R_6 \sim R_9$ は、それぞれ独立に、水素原子、置換基を有してもよい合計炭素数1~20のアルキル基あるいはアルコキシ基を表し、

$R_{10}$ は、水素原子、又は、合計炭素数1~5のアルキル基を表す。)



式 (L 1) 及び (L 2) において、

\*は、それぞれ、前記式 (1) における  $R_1 \sim R_5$  を含むベンゼン環との結合位置を表し、

\*\*は、それぞれ、前記式 (1-1) における  $R_{11} \sim R_{14}$  を含むベンゼン環との結合位置を表す。) )

$R_{20}$  は、水素原子、又は、置換基を有してもよい合計炭素数 1 ~ 5 のアルキル基を表し、

\*は、前記式 (1) における  $R_1 \sim R_5$  を含むベンゼン環との結合位置を表す。) )

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/038889

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
<p><i>C08L 101/00</i>(2006.01)i; <i>C08K 5/00</i>(2006.01)i; <i>C08K 5/13</i>(2006.01)i; <i>C08K 5/1535</i>(2006.01)i; <i>C08K 5/51</i>(2006.01)i; <i>C08L 33/06</i>(2006.01)i; <i>C08L 45/00</i>(2006.01)i; <i>C08L 67/00</i>(2006.01)i; <i>C08L 69/00</i>(2006.01)i  FI: C08L101/00; C08K5/13; C08K5/1535; C08K5/51; C08K5/00; C08L69/00; C08L67/00; C08L45/00; C08L33/06</p> <p>According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC</p>		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C08K3/00-13/08; C08L1/00-101/14		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2022 Registered utility model specifications of Japan 1996-2022 Published registered utility model applications of Japan 1994-2022		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAplus/REGISTRY (STN)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 55-501181 A (SANDOZ AG) 25 December 1980 (1980-12-25) entire text	1-25
A	JP 5-065371 A (CIBA GEIGY AG) 19 March 1993 (1993-03-19) entire text	1-25
A	JP 7-247278 A (CIBA GEIGY AG) 26 September 1995 (1995-09-26) entire text	1-25
A	JP 2007-304376 A (KONICA MINOLTA OPTO INC.) 22 November 2007 (2007-11-22) entire text	1-25
A	XIN, Hai-Long et al. Sequential Continuous-Flow Synthesis of 3-Aryl Benzofuranones. Chemistry An Asian Journal Communication. 17 June 2021, vol. 16, no. 24, pp. 1906-1910 entire text	1-25
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
<p>* Special categories of cited documents:</p> <p>“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> <p>“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art</p> <p>“&amp;” document member of the same patent family</p>		
Date of the actual completion of the international search <b>25 November 2022</b>		Date of mailing of the international search report <b>06 December 2022</b>
Name and mailing address of the ISA/JP <b>Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan</b>		Authorized officer  Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
**Information on patent family members**

International application No.

**PCT/JP2022/038889**

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)		
JP	55-501181	A	25 December 1980	US	4325863	A			
				entire text					
				US	4338244	A			
				US	4611016	A			
-----									
JP	5-065371	A	19 March 1993	DE	4202276	A			
				FR	2672292	A			
-----									
JP	7-247278	A	26 September 1995	US	5614572	A			
				entire text					
				US	5693829	A			
				US	5807505	A			
				EP	644190	A1			
-----									
JP	2007-304376	A	22 November 2007	(Family: none)					
-----									

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））</p> <p>C08L 101/00(2006.01)i; C08K 5/00(2006.01)i; C08K 5/13(2006.01)i; C08K 5/1535(2006.01)i;                  C08K 5/51(2006.01)i; C08L 33/06(2006.01)i; C08L 45/00(2006.01)i; C08L 67/00(2006.01)i;                  C08L 69/00(2006.01)i                  FI: C08L101/00; C08K5/13; C08K5/1535; C08K5/51; C08K5/00; C08L69/00; C08L67/00; C08L45/00; C08L33/06</p>																				
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））</p> <p>C08K3/00-13/08; C08L1/00-101/14</p> <p>最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922 - 1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971 - 2022年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2022年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2022年</td> </tr> </table> <p>国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）</p> <p>CAplus/REGISTRY (STN)</p>			日本国実用新案公報	1922 - 1996年	日本国公開実用新案公報	1971 - 2022年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2022年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2022年										
日本国実用新案公報	1922 - 1996年																			
日本国公開実用新案公報	1971 - 2022年																			
日本国実用新案登録公報	1996 - 2022年																			
日本国登録実用新案公報	1994 - 2022年																			
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>A</td> <td>JP 55-501181 A (サンド・アクチエン・ゲゼルシャフト) 25.12.1980 (1980 - 12 - 25) 全文</td> <td>1-25</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 5-065371 A (チバーガイギー アクチエンゲゼルシャフト) 19.03.1993 (1993 - 03 - 19) 全文</td> <td>1-25</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 7-247278 A (チバーガイギー アクチエンゲゼルシャフト) 26.09.1995 (1995 - 09 - 26) 全文</td> <td>1-25</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2007-304376 A (コニカミノルタオプト株式会社) 22.11.2007 (2007 - 11 - 22) 全文</td> <td>1-25</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>XIN, Hai-Long et al., Sequential Continuous-Flow Synthesis of 3-Aryl Benzofuranones, Chemistry An Asian Journal Communication, 2021.06.17, Vol.16, No.24, p.1906-1910 全文</td> <td>1-25</td> </tr> </tbody> </table> <p><input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p> <p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの</p> <p>“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの</p> <p>“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）</p> <p>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献</p> <p>“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</p> <p>“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの</p> <p>“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの</p> <p>“&amp;” 同一パテントファミリー文献</p>			引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号	A	JP 55-501181 A (サンド・アクチエン・ゲゼルシャフト) 25.12.1980 (1980 - 12 - 25) 全文	1-25	A	JP 5-065371 A (チバーガイギー アクチエンゲゼルシャフト) 19.03.1993 (1993 - 03 - 19) 全文	1-25	A	JP 7-247278 A (チバーガイギー アクチエンゲゼルシャフト) 26.09.1995 (1995 - 09 - 26) 全文	1-25	A	JP 2007-304376 A (コニカミノルタオプト株式会社) 22.11.2007 (2007 - 11 - 22) 全文	1-25	A	XIN, Hai-Long et al., Sequential Continuous-Flow Synthesis of 3-Aryl Benzofuranones, Chemistry An Asian Journal Communication, 2021.06.17, Vol.16, No.24, p.1906-1910 全文	1-25
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号																		
A	JP 55-501181 A (サンド・アクチエン・ゲゼルシャフト) 25.12.1980 (1980 - 12 - 25) 全文	1-25																		
A	JP 5-065371 A (チバーガイギー アクチエンゲゼルシャフト) 19.03.1993 (1993 - 03 - 19) 全文	1-25																		
A	JP 7-247278 A (チバーガイギー アクチエンゲゼルシャフト) 26.09.1995 (1995 - 09 - 26) 全文	1-25																		
A	JP 2007-304376 A (コニカミノルタオプト株式会社) 22.11.2007 (2007 - 11 - 22) 全文	1-25																		
A	XIN, Hai-Long et al., Sequential Continuous-Flow Synthesis of 3-Aryl Benzofuranones, Chemistry An Asian Journal Communication, 2021.06.17, Vol.16, No.24, p.1906-1910 全文	1-25																		
<p>国際調査を完了した日</p> <p>25.11.2022</p>	<p>国際調査報告の発送日</p> <p>06.12.2022</p>																			
<p>名称及びあて先</p> <p>日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号</p>	<p>権限のある職員（特許庁審査官）</p> <p>吉田 早希 4J 1589</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3457</p>																			

国際調査報告  
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号  
 PCT/JP2022/038889

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 55-501181 A	25.12.1980	US 4325863 A 全文	
		US 4338244 A	
		US 4611016 A	
JP 5-065371 A	19.03.1993	DE 4202276 A	
		FR 2672292 A	
JP 7-247278 A	26.09.1995	US 5614572 A 全文	
		US 5693829 A	
		US 5807505 A	
		EP 644190 A1	
JP 2007-304376 A	22.11.2007	(ファミリーなし)	