(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
2022年8月18日(18.08.2022)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2022/172953 A1

(51) 国際特許分類:
C08F 214/26 (2006.01) *H01B 7/02* (2006.01)
C08L 27/18 (2006.01) *C08K 3/105* (2018.01)
H01B 3/44 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2022/005103

(22) 国際出願日： 2022年2月9日(09.02.2022)

(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 2021-020979 2021年2月12日(12.02.2021) JP

(71) 出願人: ＡＧＣ株式会社 (**AGC INC.**) [JP/JP]; 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目５番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 柴崎 浩輔 (**SHIBASAKI Kosuke**); 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目５番１号 ＡＧＣ株式会社内 Tokyo (JP). 川浪 充眞 (**KAWANAMI Shuma**); 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目５番１号 ＡＧＣ株式会社内 Tokyo (JP). 田口 大輔 (**TAGUCHI Daisuke**); 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目５番１号 ＡＧＣ株式会社内 Tokyo (JP). 福永 晋太郎 (**FUKUNAGA Shintaro**); 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目５番１号 ＡＧＣ株式会社内 Tokyo (JP). ▲高▼山 美恵 (**TAKAYAMA Mie**); 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目５番１号 ＡＧＣ株式会社内 Tokyo (JP). 中林 千浩 (**NAKABAYASHI Kazuhiro**); 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目５番１号 ＡＧＣ株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人Ｔ．Ｓ．パートナーズ，外 (**T.S. PARTNERS** et al.); 〒1010048 東京都千代田区神田司町二丁目８番地１ ＰＭＯ神田司町３階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, 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, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(54) **Title:** COPOLYMER, COMPOSITION, MOLDED BODY, AND COATED WIRE

(54) 発明の名称： 共重合体、組成物、成形体および被覆電線

(57) **Abstract:** Provided are: a copolymer that makes it possible to form a coated wire having excellent resistance to engine oil; a composition; a molded body; and a coated wire. The copolymer includes a unit based on ethylene, a unit based on tetrafluoroethylene, and a unit based on a compound A represented by $CH_2=CX(CF_2)_nY$ (in the formula, X and Y each independently represent a hydrogen atom or a fluorine atom, and n is an integer of 2-6) or a compound B represented by $CF_2=CF-O-C_3F_7$. The copolymer has a crystal lamella thickness of 4.0 nm or less as determined by small angle X-ray scattering, and the melting point is at least 245°C.

(57) 要約：エンジンオイル耐性に優れた被覆電線を形成できる共重合体、組成物、成形体および被覆電線の提供。 本発明の共重合体は、エチレンに基づく単位と、テトラフルオロエチレンに基づく単位と、$CH_2=CX(CF_2)_nY$で表される化合物Ａ（式中、ＸおよびＹはそれぞれ独立に水素原子またはフッ素原子であり、ｎは２～６の整数である。）または$CF_2=CF-O-C_3F_7$で表される化合物Ｂに基づく単位と、を含む共重合体であって、Ｘ線小角散乱法により求められる結晶ラメラ厚みが４．０ｎｍ以下であり、融点が２４５℃以上である。

WO 2022/172953 A1

［続葉有］

添付公開書類：

一　国際調査報告（条約第21条(3)）

明　細　書

発明の名称 ： 共重合体、組成物、成形体および被覆電線

技術分野

[0001] 本発明は、共重合体、組成物、成形体および被覆電線に関する。

背景技術

[0002] エチレン／テトラフルオロエチレン共重合体（以下、「ＥＴＦＥ」ともいう。）は、耐熱性、耐候性、電気絶縁性、非粘着性、撥水撥油性等に優れているとともに、フッ素樹脂の中では成形性および機械的強度が高いという特徴を有する。そのため、押出成形、ブロー成形、射出成形、回転成形などの溶融成形方法により、電線の被覆、チューブ、シート、フィルム、フィラメント、ポンプケーシング、継ぎ手類、パッキング、ライニング、コーティング等の多様な成形体が製造されている。

例えば、特許文献１には、エチレンに基づく単位、テトラフルロエチレンに基づく単位、および、その他の単量体に基づく単位を有する共重合体と、酸化銅と、を有する組成物が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開２０１８－１４５２０９号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 自動車用被覆電線は、導体と、導体の表面に配置された被覆層とを有し、被覆層を形成するためにテトラフルオロエチレン／ヘキサフルオロプロピレン共重合体（以下、「ＦＥＰ」ともいう。）が広く用いられている。このような中、近年、自動車の軽量化等の点から、ＦＥＰの代わりにＥＴＦＥを用いることが検討されている。

本発明者らが、特許文献１に記載されているようなＥＴＦＥを用いて形成された被覆層を有する被覆電線を評価したところ、エンジンオイル耐性につ

いて改善の余地があることを知見した。

[0005] そこで、本発明は、エンジンオイル耐性に優れた被覆電線を形成できる共重合体、組成物、成形体および被覆電線の提供を課題とする。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明者らは、上記課題について鋭意検討した結果、エチレンに基づく単位と、テトラフルオロエチレンに基づく単位と、後述の式（Ａ）または式（Ｂ）に基づく単位と、を含み、結晶ラメラ厚みが４．０ｎｍ以下であり、融点が２４５℃以上である共重合体を用いれば、エンジンオイル耐性に優れた被覆電線が得られることを見出し、本発明に至った。

[0007] すなわち、発明者らは、以下の構成により上記課題が解決できることを見出した。

［１］ エチレンに基づく単位と、テトラフルオロエチレンに基づく単位と、式（Ａ）で表される化合物または式（Ｂ）で表される化合物に基づく単位と、を含む共重合体であって、

Ｘ線小角散乱法により求められる結晶ラメラ厚みが４．０ｎｍ以下であり、融点が２４５℃以上であることを特徴とする、共重合体。

$CH_2=CX(CF_2)_nY$ 式（Ａ）

$CF_2=CF-O-C_3F_7$ 式（Ｂ）

式（Ａ）中、ＸおよびＹはそれぞれ独立に水素原子またはフッ素原子であり、ｎは２～６の整数である。

[0008] ［２］ 以下の算出方法で求められる前記共重合体のＭ値が０．２０以下である、請求項１に記載の共重合体。

算出方法：Ｍ値は、前記共重合体の溶融物を用いて、４００ＭＨｚの^{19}Ｆ－ＮＭＲ測定によって得られるチャートに基づいて、下記式（１）により算出される値である。

Ｍ値＝Ｃ１／Ｂ１ 式（１）

Ｂ１：化学シフト－１００～－１１５ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値

Ｃ１：化学シフト－１１８．５～－１２２ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値

前記Ｂ１および前記Ｃ１における化学シフトは、前記共重合体の前記テトラフルオロエチレンに基づく単位が２つ連続する箇所において、一方のテトラフルオロエチレンに基づく単位と、他方のテトラフルオロエチレンに基づく単位と、が直接結合する位置におけるCF_2のピークの化学シフトを－１２０ｐｐｍとした際に、観測される化学シフトである。

ただし、前記Ｂ１には、前記式（Ａ）で表される化合物および式（Ｂ）で表される化合物に由来する化学シフト－１００～－１１５ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値は含まれない。また、前記Ｃ１には、前記式（Ａ）で表される化合物および式（Ｂ）で表される化合物に由来する化学シフト－１１８．５～－１２２ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値は含まれない。

[0009] ［３］　前記テトラフルオロエチレンに基づく単位の含有量が、前記共重合体が含む全単位に対して、４０～６５モル％である、［１］または［２］に記載の共重合体。

［４］　前記エチレンに基づく単位の含有量が、前記共重合体が含む全単位に対して、３５～６０モル％である、［１］～［３］のいずれかに記載の共重合体。

［５］　前記共重合体が前記エチレンに基づく単位と、前記テトラフルオロエチレンに基づく単位と、前記式（Ａ）で表される化合物に基づく単位と、を含む共重合体である、［１］～［４］のいずれかに記載の共重合体。

［６］　前記共重合体が前記式（Ａ）で表される化合物に基づく単位を含み、前記式（Ａ）で表される化合物に基づく単位の含有量が、前記共重合体が含む全単位に対して、１～５モル％である、［１］～［５］のいずれかに記載の共重合体。

［７］　前記共重合体が前記式（Ｂ）で表される化合物に基づく単位を含み、前記式（Ｂ）で表される化合物に基づく単位の含有量が、前記共重合体が

含む全単位に対して、１～５モル％である、［１］～［４］のいずれかに記載の共重合体。

［８］　ＡＳＴＭ　Ｄ３１５９に準拠して、温度２９７℃、荷重４９Ｎの条件下で測定される前記共重合体のメルトフローレートが、１５～６０ｇ／１０分である、［１］～［７］のいずれかに記載の共重合体。

[0010] ［９］　［１］～［８］のいずれかに記載の共重合体と添加剤を含むことを特徴とする、組成物。

［１０］　前記添加剤として熱安定剤を含む、［９］に記載の組成物。

［１１］　前記熱安定剤が銅化合物である、［１０］に記載の組成物。

［１２］　前記添加剤として酸化防止剤を含む、［９］～［１１］のいずれかに記載の組成物。

［１３］　［１］～［８］のいずれかに記載の共重合体、または、［９］～［１２］のいずれかに記載の組成物を成形して得られることを特徴とする、成形体。

［１４］　導体と、前記導体の表面に配置され、［１］～［８］のいずれかに記載の共重合体、または、［９］～［１２］のいずれかに記載の組成物から形成される被覆層と、を有することを特徴とする、被覆電線。

発明の効果

[0011] 本発明によれば、エンジンオイル耐性に優れた被覆電線を形成できる共重合体、組成物、成形体および被覆電線を提供できる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]本発明の一実施形態に係る共重合体を用いて^{19}Ｆ－ＮＭＲ測定した際に得られたチャートである。

[図2]本発明の一実施形態に係る共重合体を用いて^{19}Ｆ－ＮＭＲ測定した際に得られたチャートである。

[図3]本発明の一実施形態に係る共重合体を用いて^{19}Ｆ－ＮＭＲ測定した際に得られたチャートである。

[図4]本発明の一実施形態に係る共重合体を用いて^{19}Ｆ－ＮＭＲ測定した際に

得られたチャートである。

[図5]本発明の一実施形態に係る共重合体を用いて^{19}Ｆ－ＮＭＲ測定した際に得られたチャートである。

発明を実施するための形態

[0013] 本発明における用語の意味は以下の通りである。

重合体中の「単位」とは、単量体が重合して直接形成された、上記単量体１分子に由来する原子団を意味し、さらに上記原子団の一部を重合後に化学変換して得られる原子団をも意味する。なお、以下において、場合により、個々の単量体に由来する単位をその単量体名に「単位」を付した名称で記す。

「ＴＦＥ単位」とは、重合体中のテトラフルオロエチレンに基づく単位をいい、「Ｅ単位」とは、重合体中のエチレンに基づく単位をいう。

[0014] 「ＴＦＥ２連鎖構造」とは、共重合体中のＴＦＥ単位とＥ単位の並び方の中で、Ｅ単位間にＴＦＥ単位が２つ連続している箇所の構造をいい、「－Ｅ－ＴＦＥ－ＴＦＥ－Ｅ－」で表される構造の下線部分をいう。化学式で記載すると「－CH_2－CH_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CH_2－CH_2－」で表される構造の下線部分をいう。

[0015] 「ＴＦＥ２連鎖構造中のCF_2側CF_2」とは、「－CH_2－CH_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CH_2－CH_2－」で表される構造の中の、下記（ｂ）を付記したCF_2をいう。

「－CH_2－CH_2－CF_2－$CF_2{}^{(b)}$－$CF_2{}^{(b)}$－CF_2－CH_2－CH_2－」

[0016] 「ＴＦＥ２連鎖構造中のCH_2側CF_2」とは、「－CH_2－CH_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CH_2－CH_2－」で表される構造の中の、下記（ｃ）を付記したCF_2をいう。

「－CH_2－CH_2－$CF_2{}^{(c)}$－CF_2－CF_2－$CF_2{}^{(c)}$－CH_2－CH_2－」

[0017] 「ＴＦＥ－Ｅ交互構造」とは、共重合体中のＴＦＥ単位とＥ単位の並び方

の中で、ＴＦＥ単位とＥ単位が交互に連続している箇所の構造をいい、「－ＴＦＥ－Ｅ－」で表される構造をいう。化学式で記載すると「－CF_2－CF_2－CH_2－CH_2－」で表される構造をいう。

[0018] 「ＴＦＥ－Ｅ交互構造中のCF_2」とは、「－CF_2－CF_2－CH_2－CH_2－」の中の、下記（ａ）を付記したCF_2をいう。

「－$CF_2{}^{(a)}$－$CF_2{}^{(a)}$－CH_2－CH_2－」

[0019] ［共重合体］

本発明の共重合体（以下、「本共重合体」ともいう。）は、Ｅ単位と、ＴＦＥ単位と、後述の式（Ａ）または式（Ｂ）に基づく単位と、を含む。また、本共重合体は、Ｘ線小角散乱法により求められる結晶ラメラ厚みが４．０ｎｍ以下であり、融点が２４５℃以上である。

[0020] 本共重合体は、エンジンオイル耐性に優れた被覆電線を形成できる。この理由の詳細は未だ明らかになっていないが、以下の理由によるものと推測される。

本発明においてエンジンオイル耐性は、共重合体を用いて得られた被覆層を有する被覆電線をエンジンオイルに浸漬後、高温下で被覆電線を長時間静置した後における被覆層のクラック発生の有無によって評価する。

本共重合体がエンジンオイル耐性に優れた被覆電線を形成できる理由の一つとしては、結晶ラメラ厚みが４．０ｎｍ以下であり、かつ、融点が２４５℃以上である共重合体を用いたためと考えられる。

すなわち、共重合体の結晶ラメラ厚みが小さいと、共重合体を用いて形成された被覆電線の被覆層の剛性が低下すると考えられる。これにより、被覆層のクラック発生を抑制できたと推測される。

また、共重合体の融点が高いことによって、高温下で行われるエンジンオイル耐性の評価の際において、被覆層の熱ダメージが低減すると考えられる。これにより、被覆層のクラック発生を抑制できたと推測される。

このように、共重合体の結晶ラメラ厚みおよび融点を特定したことによって、各物性の効果が相乗的に作用して、エンジンオイル耐性に優れた被覆電

線が得られたと推測される。

[0021] 本共重合体は、Ｅ単位と、ＴＦＥ単位と、式（Ａ）で表される化合物（以下、「化合物Ａ」ともいう。）に基づく単位（以下、「Ａ単位」ともいう。）または式（Ｂ）で表される化合物（以下、「化合物Ｂ」ともいう。）に基づく単位（以下、「Ｂ単位」ともいう。）と、を含む共重合体である。

[0022] $CH_2=CX(CF_2)_nY$ 式（Ａ）

$CF_2=CF-O-C_3F_7$ 式（Ｂ）

[0023] 式（Ａ）中、ＸおよびＹはそれぞれ独立に、水素原子またはフッ素原子である。Ｘは、重合性の点から、水素原子が好ましい。Ｙは、耐熱性の点から、フッ素原子が好ましい。

ｎは、２～６の整数である。

化合物Ａとしては、エンジンオイル耐性により優れる点から、$CH_2=CH(CF_2)_2F$、$CH_2=CH(CF_2)_4F$、$CH_2=CH(CF_2)_6F$、$CH_2=CF(CF_2)_4F$、および$CH_2=CF(CF_2)_3H$が好ましく、$CH_2=CH(CF_2)_4F$（以下、「ＰＦＢＥ」ともいう。）が特に好ましい。

[0024] 本共重合体は、耐摩耗性および耐ストレスクラック性に優れる点から、Ｅ単位とＴＦＥ単位とＡ単位とを有する共重合体であるのが好ましい。

[0025] Ｅ単位の含有量は、本共重合体が含む全単位に対して、３５～６０モル％が好ましく、４０～５５モル％がより好ましく、４４～５２モル％が更に好ましく、４５～５０モル％が特に好ましい。３５モル％以上であれば、機械特性およびエンジンオイル耐性がより優れ、６０モル％以下であれば、耐熱性がより優れる。

[0026] ＴＦＥ単位の含有量は、本共重合体が含む全単位に対して、４０～６５モル％が好ましく、４５～６０モル％がより好ましく、４８～５６モル％が更に好ましく、５０～５４モル％が特に好ましい。４０モル％以上であれば、耐熱性がより優れ、６５モル％以下であれば、機械特性および耐エンジンオイル性がより優れる。

[0027] 本共重合体がＡ単位を含む場合、Ａ単位の含有量は、本共重合体が含む全

単位に対して、１～５モル％が好ましく、２～４モル％がより好ましく、２．５～３．５モル％が特に好ましい。１モル％以上であれば、本共重合体の結晶ラメラ厚みを小さくでき、５モル％以下であれば、本共重合体の融点を高くできる。

[0028] 本共重合体がＢ単位を含む場合、Ｂ単位の含有量は、本共重合体が含む全単位に対して、１～５モル％が好ましく、２～４モル％がより好ましく、２．５～３．５モル％が特に好ましい。１モル％以上であれば、本共重合体の結晶ラメラ厚みを小さくでき、５モル％以下であれば、本共重合体の融点を高くできる。

[0029] 本共重合体は、４０～６４モル％のＴＦＥ単位と、３５～５９モル％のＥ単位と、１～５モル％のＡ単位を含むことが好ましく、４５～５８モル％のＴＦＥ単位と、４０～５３モル％のＥ単位と、２～４モル％のＡ単位を含むことがより好ましく、４８～５３．５モル％のＴＦＥ単位と、４４～４９．５モル％のＥ単位と、２．５～３．５モル％のＡ単位を含むことが更に好ましい。

[0030] ＜結晶ラメラ厚み＞

本共重合体の結晶ラメラ厚みは、４．０ｎｍ以下であり、エンジンオイル耐性がより優れる点から、３．９５ｎｍ以下が好ましく、３．９ｎｍ以下がより好ましく、３．８５ｎｍ以下が特に好ましい。

また、本共重合体の結晶ラメラ厚みは、本共重合体の優れた機械強度と融点を保つ点から、２．０ｎｍ以上が好ましく、２．５ｎｍ以上がより好ましく、３．０ｎｍ以上が特に好ましい。

本共重合体の結晶ラメラ厚みを上記範囲内にする方法の具体例としては、本共重合体中のＡ単位およびＢ単位の含有量を調節する方法が挙げられる。

本共重合体の結晶ラメラ厚みは、Ｘ線小角散乱法（ＳＡＸＳ法）によって測定され、具体的には後述の実施例欄に記載の測定条件によって求められる。

[0031] ＜融点＞

本共重合体の融点は、２４５℃以上であり、エンジンオイル耐性がより優れる点から、２４６℃以上が好ましく、２４８℃以上がより好ましく、２４９℃以上が特に好ましい。

また、本共重合体の融点は、本共重合体の成形性が優れる点から、２９０℃以下が好ましく、２８０℃以下がより好ましく、２７０℃以下が特に好ましい。

本共重合体の融点を上記範囲内にする方法の具体例としては、本共重合体の製造時の重合温度を低くする方法や、本共重合体中のＡ単位およびＢ単位の含有量を調節する方法が挙げられる。

本共重合体の融点は、走査型示差熱分析器を用いて、空気雰囲気下、１０℃／分で昇温し、本共重合体を加熱した際の吸熱ピークに対応する温度である。

[0032] ＜メルトフローレート＞

本共重合体のメルトフローレート（以下、「ＭＦＲ」ともいう。）は、１５～６０ｇ／１０分が好ましく、２５～５５ｇ／１０分がより好ましく、３０～５０ｇ／１０分が特に好ましい。本共重合体のＭＦＲが１５ｇ／１０分以上であれば、本共重合体の溶融成形性に優れる。本共重合体のＭＦＲが６０ｇ／１０分以下であれば、本共重合体を用いて得られる成形体が高温で優れた機械強度を有する。

一方で、本共重合体を用いて得られる成形体が耐摩耗性に優れる点では、本共重合体のＭＦＲは、２５ｇ／１０分以下がより好ましく、２０ｇ／１０分以下がより好ましい。したがって、本共重合体の溶融成形性、および、本共重合体を用いて得られる成形体の耐摩耗性を両立する点からは、本共重合体のＭＦＲは、１５～２５ｇ／分が好ましく、１５～２０ｇ／分がより好ましい。

本共重合体のＭＦＲを上記範囲内にする方法の具体例としては、本共重合体の分子量を調節する方法が挙げられる。本共重合体の分子量が大きいほど、ＭＦＲは小さくなる。

本共重合体のＭＦＲは、ＡＳＴＭ　Ｄ３１５９に準拠して、温度２９７℃、荷重４９Ｎの条件下で測定した、直径２ｍｍ、長さ８ｍｍのオリフィスから１０分間に流れ出す本共重合体の質量を意味する。

[0033] ＜M値＞

本共重合体のM値は、本共重合体の融点がより高くなる点、および、エンジンオイル耐性がより優れる点から、０．２０以下が好ましく、０．１９以下がより好ましく、０．１８以下が特に好ましい。

また、本共重合体のM値は、耐ストレスクラック性および耐熱性により優れる点から、０．１０以上が好ましく、０．１１以上がより好ましく、０．１２以上が特に好ましい。

ここで、本共重合体のM値は、本共重合体中においてＴＦＥ単位とＥ単位とが交互に配置されている程度を示す値であり、以下の算出方法によって求められる。M値が小さいほど、本共重合体中においてＴＦＥ単位とＥ単位とが交互に結合している割合が高いといえる。

本共重合体のM値を上記範囲内にする方法の具体例としては、本共重合体の製造時の重合温度を低くする方法が挙げられる。

[0034] M値は、本共重合体の溶融物を用いて、４００ＭＨｚの^{19}Ｆ－ＮＭＲ測定によって得られるチャートに基づいて、下記式（１）により算出される。

M値＝Ｃ１／Ｂ１　　式（１）

Ｂ１：化学シフト－１００～－１１５ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値の合計

Ｃ１：化学シフト－１１８．５～－１２２ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値の合計

[0035] Ｂ１およびＣ１における化学シフトは、本共重合体のＴＦＥ単位が２つ連続する箇所において、一方のＴＦＥ単位と、他方のＴＦＥ単位と、が直接結合する位置におけるCF_2（すなわち、ＴＦＥ２連鎖構造中のCF_2側CF_2）のピークの化学シフトを－１２０ｐｐｍとした際に、観測される化学シフトである。

[0036] Ｂ１は、ＴＦＥ－Ｅ交互構造中のＣＦ$_2$のピークの積分値と、ＴＦＥ２連鎖構造中のＣＨ$_2$側ＣＦ$_2$のピークの積分値と、の合計を意味する。つまり、Ｂ１は、主にＴＦＥ単位とＥ単位とが交互に結合していることを表す数値であり、Ｂ１が大きい場合、本共重合体中においてＴＦＥ単位とＥ単位とが交互に結合している部分の割合が高いことを意味する。

ここで、Ｂ１には、化合物Ａおよび化合物Ｂに由来する化学シフト－１００～－１１５ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値を含まない。この理由は、以下の通りである。

すなわち、化学シフト－１００～－１１５ｐｐｍの範囲において、化合物Ａおよび化合物Ｂに由来するピークが観察される場合がある。化合物Ａに基づく単位（すなわち、Ａ単位）および化合物Ｂに基づく単位（すなわち、Ｂ単位）は、ＴＦＥ単位とＥ単位とが交互に結合している部分を構成しない単位である。そのため、化学シフト－１００～－１１５ｐｐｍの範囲に観測される各ピークの積分値の合計（以下、「Ｂ」ともいう。）から、化合物Ａおよび化合物Ｂに由来する化学シフト－１００～－１１５ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値を除く必要がある。つまり、Ｂ１は、化合物Ａおよび化合物Ｂに由来する化学シフト－１００～－１１５ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値を、Ｂから差し引いた値である。

[0037] Ｃ１は、ＴＦＥ２連鎖構造中のＣＦ$_2$側ＣＦ$_2$のピークの積分値を意味する。つまり、Ｃ１は、主にＴＦＥ単位とＴＦＥ単位とが連続で結合していることを表す数値であり、Ｃ１が大きい場合、本共重合体中においてＴＦＥ単位とＴＦＥ単位とが連続で結合している部分の割合が高いことを意味する。

ここで、Ｃ１には、化合物Ａおよび化合物Ｂに由来する化学シフト－１１８．５～－１２２ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値を含まない。この理由は、以下の通りである。

すなわち、化学シフト－１１８．５～－１２２ｐｐｍの範囲において、化合物Ａおよび化合物Ｂに由来するピークが観察される場合がある。化合物Ａに基づく単位（すなわち、Ａ単位）および化合物Ｂに基づく単位（すなわち

、Ｂ単位）は、ＴＦＥ単位とＴＦＥ単位とが連続で結合している部分を構成しない単位である。そのため、化学シフト－１１８．５～－１２２ｐｐｍの範囲に観測される各ピークの積分値の合計（以下、「Ｃ」ともいう。）から、化合物Ａおよび化合物Ｂに由来する化学シフト－１１８．５～－１２２ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値を除く必要がある。つまり、Ｃ１は、化合物Ａおよび化合物Ｂに由来する化学シフト－１１８．５～－１２２ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値を、Ｃから差し引いた値である。

[0038] 各ピークの積分値は、その範囲内の谷になる部分で積分を取ることで求められる。より具体的には、化学シフト－１００～－１３０ｐｐｍをベースラインとして、所定範囲内の化学シフトで垂直分割することによって求められる。具体的には、Ｂ１は、化学シフト－１００ｐｐｍから－１１５ｐｐｍまでの範囲をベースラインに向かって垂直分割して求める。また、Ｃ１は、化学シフト－１１８．５ｐｐｍから－１２２ｐｐｍまでの範囲をベースラインに向かって垂直分割して求める。

[0039] 以下において、化合物Ａおよび化合物Ｂの代表的な具体例毎にＭ値の算出方法を説明する。

[0040] （Ｍ値の算出方法：化合物Ａが$CH_2=CH(CF_2)_4F$である場合）

本共重合体が化合物Ａの一態様である$CH_2=CH(CF_2)_4F$に基づく単位を含む場合には、本共重合体のＭ値は、本共重合体の溶融物を用いて、４００ＭＨｚの^{19}F－ＮＭＲ測定によって得られるチャートに基づいて、下記式（２－１）により算出される。

Ｍ値＝｛Ｃ－（Ａ／３）×２｝／｛Ｂ－（Ａ／３）×２｝　　式（２－１）

Ａ：化学シフト－７５～－８５ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値の合計

Ｂ：化学シフト－１００～－１１５ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値の合計

Ｃ：化学シフト－１１８．５～－１２２ｐｐｍの範囲に観測されるピーク

の積分値の合計

[0041] Ａ、ＢおよびＣにおける化学シフトは、本共重合体のＴＦＥ単位が２つ連続する箇所において、一方のＴＦＥ単位と、他方のＴＦＥ単位と、が直接結合する位置におけるＣＦ$_2$（すなわち、ＴＦＥ２連鎖構造中のＣＦ$_2$側ＣＦ$_2$）のピークの化学シフトを－１２０ｐｐｍとした際に、観測される化学シフトである。

[0042] 式（２－１）について、図１を参照しながら詳細に説明する。図１は、Ｅ単位と、ＴＦＥ単位と、ＣＨ$_2$＝ＣＨ（ＣＦ$_2$）$_4$Ｆに基づく単位と、を含む共重合体の溶融物を用いて、４００ＭＨｚの^{19}Ｆ－ＮＭＲ測定によって得られたチャートである。

図１のＡ$_{area}$、Ｂ$_{area}$およびＣ$_{area}$はそれぞれ、化学シフト－７５～－８５ｐｐｍの範囲に観測されるピークの位置、化学シフト－１００～－１１５ｐｐｍの範囲に観測されるピークの位置、および、化学シフト－１１８．５～－１２２ｐｐｍの範囲に観測されるピークの位置を理解しやすくするために示した領域である。

[0043] 図１のＡ$_{area}$には、－ＣＨ$_2$－ＣＨ（ＣＦ$_2$－ＣＦ$_2$－ＣＦ$_2$－ＣＦ$_3$）－で表される単位におけるＣＦ$_3$に対応するピークが観測される。したがって、式（２－１）のＡは、ＣＦ$_3$に対応するピークの積分値を意味する。

[0044] 図１のＢ$_{area}$には、ＴＦＥ－Ｅ交互構造中のＣＦ$_2$に対応するピークａと、ＴＦＥ２連鎖構造中のＣＨ$_2$側ＣＦ$_2$に対応するピークｃと、が観測される。さらに、Ｂ$_{area}$では、ＣＨ$_2$＝ＣＨ（ＣＦ$_2$）$_4$Ｆに基づく単位、つまり－ＣＨ$_2$－ＣＨ（ＣＦ$_2$－ＣＦ$_2$－ＣＦ$_2$－ＣＦ$_3$）－で表される単位における、１つのＣＦ$_2$に対応するピークが検出される。したがって、式（２－１）のＢは、これらのピークの積分値の合計を意味する。

ここで、－ＣＨ$_2$－ＣＨ（ＣＦ$_2$－ＣＦ$_2$－ＣＦ$_2$－ＣＦ$_3$）－で表される単位は、ＴＦＥ単位とＥ単位とが交互に結合している部分を構成しない単位である。そのため、式（２－１）のＢから、Ｂ$_{area}$に検出される－ＣＨ$_2$－ＣＨ（ＣＦ$_2$－ＣＦ$_2$－ＣＦ$_2$－ＣＦ$_3$）－で表される単位の１つのＣＦ$_2$に対応するピ

ークの積分値を除く必要があるが、当該ピークの積分値は直接算出できない。そこで、A_{area}に観測される－CH_2－CH（CF_2－CF_2－CF_2－CF_3）－で表される単位のCF_3に対応するピークの積分値に２／３を乗じることで算出する。ここで２／３を乗じるのは、CF_3のフッ素原子数が３個であるのに対して、CF_2のフッ素原子数が２個であるので、CF_3に対応するピークの積分値を２／３倍した値が、CF_2に対応するピークの積分値に相当するためである。CF_3に対応するピークの積分値はＡであるので、式（２－１）では、Ｂから（Ａ／３）×２を差し引いている。

[0045] 図１のC_{area}には、ＴＦＥ２連鎖構造中のCF_2側CF_2に対応するピークｂが観測される。さらに、C_{area}では、CH_2＝CH（CF_2）$_4$Ｆに基づく単位、つまり－CH_2－CH（CF_2－CF_2－CF_2－CF_3）－で表される単位における、１つのCF_2のピークが検出される。したがって、式（２－１）のＣは、これらのピークの積分値の合計を意味する。

ここで、－CH_2－CH（CF_2－CF_2－CF_2－CF_3）－で表される単位は、ＴＦＥ単位とＴＦＥ単位とが連続で結合している部分を構成しない単位である。そのため、式（２－１）のＣから、C_{area}に検出される－CH_2－CH（CF_2－CF_2－CF_2－CF_3）－で表される単位の１つのCF_2に対応するピークの積分値を除く必要があるが、当該ピークの積分値は直接算出できない。そこで、A_{area}に観測される－CH_2－CH（CF_2－CF_2－CF_2－CF_3）－で表される単位のCF_3に対応するピークの積分値に２／３を乗じることで算出する。ここで２／３を乗じるのは、CF_3のフッ素原子数が３個であるのに対して、CF_2のフッ素原子数が２個であるので、CF_3に対応するピークの積分値を２／３倍した値が、CF_2に対応するピークの積分値に相当するためである。CF_3に対応するピークの積分値はＡであるので、式（２－１）では、Ｃから（Ａ／３）×２を差し引いている。

[0046] （Ｍ値の算出方法：化合物ＡがCH_2＝CH（CF_2）$_6$Ｆである場合）

本共重合体が化合物Ａの一態様であるCH_2＝CH（CF_2）$_6$Ｆに基づく単位を含む場合には、本共重合体のＭ値は、本共重合体の溶融物を用いて、４

００ＭＨｚの^{19}Ｆ－ＮＭＲ測定によって得られるチャートに基づいて、下記式（２－２）により算出される。

Ｍ値＝｛Ｃ－（Ａ／３）×４｝／｛Ｂ－（Ａ／３）×２｝　　式（２－２）

Ａ：化学シフト－７５～－８５ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値の合計

Ｂ：化学シフト－１００～－１１５ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値の合計

Ｃ：化学シフト－１１８．５～－１２２ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値の合計

[0047] Ａ、ＢおよびＣにおける化学シフトは、本共重合体のＴＦＥ単位が２つ連続する箇所において、一方のＴＦＥ単位と、他方のＴＦＥ単位と、が直接結合する位置におけるＣＦ$_2$（すなわち、ＴＦＥ２連鎖構造中のＣＦ$_2$側ＣＦ$_2$）のピークの化学シフトを－１２０ｐｐｍとした際に、観測される化学シフトである。

[0048] 式（２－２）について、図２を参照しながら詳細に説明する。図２は、Ｅ単位と、ＴＦＥ単位と、ＣＨ$_2$＝ＣＨ（ＣＦ$_2$）$_6$Ｆに基づく単位（すなわち、－ＣＨ$_2$－ＣＨ（ＣＦ$_2$－ＣＦ$_2$－ＣＦ$_2$－ＣＦ$_2$－ＣＦ$_2$－ＣＦ$_3$）－で表される単位）と、を含む共重合体の溶融物を用いて、４００ＭＨｚの^{19}Ｆ－ＮＭＲ測定によって得られたチャートである。

[0049] 図２のＡ$_{area}$、Ｂ$_{area}$およびＣ$_{area}$の意味はそれぞれ、図１のＡ$_{area}$、Ｂ$_{area}$およびＣ$_{area}$の意味と同様である。

また、図２の各領域のピークに付したアルファベットの意味についても、図１の各領域のピークに付したアルファベットの意味と同様である。

[0050] 図２のＡ$_{area}$には、－ＣＨ$_2$－ＣＨ（ＣＦ$_2$－ＣＦ$_2$－ＣＦ$_2$－ＣＦ$_2$－ＣＦ$_2$－ＣＦ$_3$）－で表される単位においてＣＦ$_3$に対応するピークが観測される。したがって、式（２－２）のＡは、ＣＦ$_3$に対応するピークの積分値を意味する。

[0051] 図２のB_{area}には、ＴＦＥ－Ｅ交互構造中のCF_2に対応するピークａと、ＴＦＥ２連鎖構造中のCH_2側CF_2に対応するピークｃと、が観測される。さらに、B_{area}では、CH_2＝ＣＨ（CF_2）$_6$Ｆに基づく単位、つまり－CH_2－ＣＨ（CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_3）－で表される単位における、１つのCF_2に対応するピークが検出される。したがって、式（２－２）のＢは、これらのピークの積分値の合計を意味する。

ここで、－CH_2－ＣＨ（CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_3）－で表される単位は、ＴＦＥ単位とＥ単位とが交互に結合している部分を構成しない単位である。そのため、式（２－２）のＢから、B_{area}に検出される－CH_2－ＣＨ（CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_3）－で表される単位の１つのCF_2に対応するピークの積分値を除く必要があるが、当該ピークの積分値は直接算出できない。そこで、A_{area}に観測される－CH_2－ＣＨ（CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_3）－で表される単位のCF_3に対応するピークの積分値に２／３を乗じることで算出する。ここで２／３を乗じるのは、CF_3のフッ素原子数が３個であるのに対して、CF_2のフッ素原子数が２個であるので、CF_3に対応するピークの積分値を２／３倍した値が、CF_2の積分値に相当するためである。CF_3に対応するピークの積分値はＡであるので、式（２－２）では、Ｃから（Ａ／３）×２を差し引いている。

[0052] 図２のC_{area}には、ＴＦＥ２連鎖構造中のCF_2側CF_2に対応するピークｂが観測される。さらに、C_{area}では、CH_2＝ＣＨ（CF_2）$_6$Ｆに基づく単位、つまり－CH_2－ＣＨ（CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_3）－で表される単位における、２つのCF_2に対応するピークが検出される。したがって、式（２－２）のＣは、これらのピークの積分値の合計を意味する。

ここで、－CH_2－ＣＨ（CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_3）－で表される単位は、ＴＦＥ単位とＴＦＥ単位とが連続で結合している部分を構成しない単位である。そのため、式（２－２）のＣから、C_{area}に検出

される－CH_2－CH（CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_3）－で表される単位の２つのCF_2のピークに対応する積分値を除く必要があるが、当該ピークの積分値は直接算出できない。そこで、A_{area}に観測される－CH_2－CH（CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_2－CF_3）－で表される単位のCF_3に対応するピークの積分値に４／３を乗じることで算出する。ここで４／３を乗じるのは、CF_3のフッ素原子数が３個であるのに対して、CF_2のフッ素原子数が２個で、当該ピークが２つあるので、CF_3に対応するピークの積分値を４／３倍した値が、２つのCF_2に対応するピークの積分値に相当するためである。CF_3に対応するピークの積分値はＡであるので、式（２－２）では、Ｃから（Ａ／３）×４を差し引いている。

[0053] （M値の算出方法：化合物ＡがCH_2＝CH（CF_2）$_2$Ｆである場合）

本共重合体が化合物Ａの一態様であるCH_2＝CH（CF_2）$_2$Ｆに基づく単位を含む場合には、本共重合体のM値は、本共重合体の溶融物を用いて、４００ＭＨｚの^{19}Ｆ－ＮＭＲ測定によって得られるチャートに基づいて、下記式（２－３）により算出される。

M値＝Ｃ／｛Ｂ－（Ａ／３）×２｝　　式（２－３）

Ａ：化学シフト－７５～－８５ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値の合計

Ｂ：化学シフト－１００～－１１５ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値の合計

Ｃ：化学シフト－１１８．５～－１２２ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値の合計

[0054] Ａ、ＢおよびＣにおける化学シフトは、本共重合体のＴＦＥ単位が２つ連続する箇所において、一方のＴＦＥ単位と、他方のＴＦＥ単位と、が直接結合する位置におけるCF_2（すなわち、ＴＦＥ２連鎖構造中のCF_2側CF_2）のピークの化学シフトを－１２０ｐｐｍとした際に、観測される化学シフトである。

[0055] 式（２－３）について、図３を参照しながら詳細に説明する。図３は、Ｅ

単位と、ＴＦＥ単位と、CH_2＝ＣＨ（CF_2）$_2$Ｆに基づく単位（すなわち、－CH_2－ＣＨ（CF_2－CF_3）－で表される単位）と、を含む共重合体の溶融物を用いて、４００ＭＨｚの^{19}Ｆ－ＮＭＲ測定によって得られたチャートである。

[0056] 図３のA_{area}、B_{area}およびC_{area}の意味はそれぞれ、図１のA_{area}、B_{area}およびC_{area}の意味と同様である。

また、図３の各領域のピークに付したアルファベットの意味についても、図１の各領域のピークに付したアルファベットの意味と同様である。

[0057] 図３のA_{area}には、－CH_2－ＣＨ（CF_2－CF_3）－で表される単位においてＣＦ$_3$に対応するピークが観測される。したがって、式（２－３）のＡは、ＣＦ$_3$に対応するピークの積分値を意味する。

[0058] 図３のB_{area}には、ＴＦＥ－Ｅ交互構造中のＣＦ$_2$に対応するピークａと、ＴＦＥ２連鎖構造中のCH_2側ＣＦ$_2$に対応するピークｃと、が観測される。さらに、B_{area}では、CH_2＝ＣＨ（CF_2）$_2$Ｆに基づく単位、つまり－CH_2－ＣＨ（CF_2－CF_3）－で表される単位における、１つのＣＦ$_2$に対応するピークが検出される。したがって、式（２－３）のＢは、これらのピークの積分値の合計を意味する。

ここで、－CH_2－ＣＨ（CF_2－CF_3）－で表される単位は、ＴＦＥ単位とＥ単位とが交互に結合している部分を構成しない単位である。そのため、式（２－３）のＢから、B_{area}に検出される－CH_2－ＣＨ（CF_2－CF_3）－で表される単位の１つのＣＦ$_2$に対応するピークの積分値を除く必要があるが、当該ピークの積分値は直接算出できない。そこで、A_{area}に観測される－CH_2－ＣＨ（CF_2－CF_3）－で表される単位のＣＦ$_3$に対応するピークの積分値に２／３を乗じることで算出する。ここで２／３を乗じるのは、ＣＦ$_3$のフッ素原子数が３個であるのに対して、ＣＦ$_2$のフッ素原子数が２個であるので、ＣＦ$_3$の積分値を２／３倍した値が、ＣＦ$_2$に対応するピークの積分値に相当するためである。ＣＦ$_3$に対応するピークの積分値はＡであるので、式（２－３）では、Ｂから（Ａ／３）×２を差し引いている。

[0059] 図３のC_{area}には、ＴＦＥ２連鎖構造中のCF_2側CF_2に対応するピークｂが観測される。したがって、式（２－３）のＣは、ピークｂの積分値を意味する。

[0060] （Ｍ値の算出方法：化合物Ａが$CH_2=CF(CF_2)_3H$である場合）

本共重合体が化合物Ａの一態様である$CH_2=CF(CF_2)_3H$に基づく単位を含む場合には、本共重合体のＭ値は、本共重合体の溶融物を用いて、４００ＭＨｚの^{19}F－ＮＭＲ測定によって得られるチャートに基づいて、下記式（３－１）により算出される。

Ｍ値＝Ｃ／Ｂ 式（３－１）

Ｂ：化学シフト－１００～－１１５ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値の合計

Ｃ：化学シフト－１１８．５～－１２２ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値の合計

[0061] ＢおよびＣにおける化学シフトは、本共重合体のＴＦＥ単位が２つ連続する箇所において、一方のＴＦＥ単位と、他方のＴＦＥ単位と、が直接結合する位置におけるCF_2（すなわち、ＴＦＥ２連鎖構造中のCF_2側CF_2）のピークの化学シフトを－１２０ｐｐｍとした際に、観測される化学シフトである。

[0062] 式（３－１）について、図４を参照しながら詳細に説明する。図４は、Ｅ単位と、ＴＦＥ単位と、$CH_2=CF(CF_2)_3H$に基づく単位（すなわち、$-CH_2-CF(CF_2-CF_2-CF_2H)-$で表される単位）と、を含む共重合体の溶融物を用いて、４００ＭＨｚの^{19}F－ＮＭＲ測定によって得られたチャートである。

[0063] 図４のB_{area}およびC_{area}の意味はそれぞれ、図１のB_{area}およびC_{area}の意味と同様である。

また、図４の各領域のピークに付したアルファベットの意味についても、図１の各領域のピークに付したアルファベットの意味と同様である。

[0064] 図４のB_{area}には、ＴＦＥ－Ｅ交互構造中のCF_2に対応するピークａと、

ＴＦＥ２連鎖構造中のＣＨ$_2$側ＣＦ$_2$に対応するピークｃと、が観測される。したがって、式（３－１）のＢは、ピークａおよびピークｃの各積分値の合計を意味する。

[0065] 図４のＣ$_{area}$には、ＴＦＥ２連鎖構造中のＣＦ$_2$側ＣＦ$_2$に対応するピークｂが観測される。したがって、式（３－１）のＣは、ピークｂの積分値を意味する。

[0066] （Ｍ値の算出方法：化合物Ｂの場合）

本共重合体が化合物Ｂ（すなわち、ＣＦ$_2$＝ＣＦ－Ｏ－Ｃ$_3$Ｆ$_7$）に基づく単位を含む場合には、本共重合体のＭ値は、本共重合体の溶融物を用いて、４００ＭＨｚの^{19}Ｆ－ＮＭＲ測定によって得られるチャートに基づいて、下記式（４－１）により算出される。

Ｍ値＝Ｃ／｛Ｂ－（Ａ／５）×２｝　　式（４－１）

Ａ：化学シフト－７５～－８５ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値の合計

Ｂ：化学シフト－１００～－１１５ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値の合計

Ｃ：化学シフト－１１８．５～－１２２ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値の合計

[0067] Ａ、ＢおよびＣにおける化学シフトは、本共重合体のＴＦＥ単位が２つ連続する箇所において、一方のＴＦＥ単位と、他方のＴＦＥ単位と、が直接結合する位置におけるＣＦ$_2$（すなわち、ＴＦＥ２連鎖構造中のＣＦ$_2$側ＣＦ$_2$）のピークの化学シフトを－１２０ｐｐｍとした際に、観測される化学シフトである。

[0068] 式（４－１）について、図５を参照しながら詳細に説明する。図５は、Ｅ単位と、ＴＦＥ単位と、ＣＦ$_2$＝ＣＦ－Ｏ－Ｃ$_3$Ｆ$_7$に基づく単位と、を含む共重合体の溶融物を用いて、４００ＭＨｚの^{19}Ｆ－ＮＭＲ測定によって得られたチャートである。

[0069] 図５のＡ$_{area}$、Ｂ$_{area}$およびＣ$_{area}$の意味はそれぞれ、図１のＡ$_{area}$、

B_{area}およびC_{area}の意味と同様である。

また、図５の各領域のピークに付したアルファベットの意味についても、図１の各領域のピークに付したアルファベットの意味と同様である。

[0070] 図５のA_{area}には、－CF_2－CF（$OCF_2CF_2CF_3$）－で表される単位においてCF_3に対応するピークと、－CF_2－CF（$OCF_2CF_2CF_3$）－で表される単位における１つのCF_2に対応するピークｅと、が観測される。したがって、式（４－１）のＡは、これらのピークの積分値の合計を意味する。

[0071] 図５のB_{area}には、ＴＦＥ－Ｅ交互構造中のCF_2に対応するピークａと、ＴＦＥ２連鎖構造中のCH_2側CF_2に対応するピークｃと、が観測される。さらに、B_{area}では、CF_2＝CF（OCF_2）$_3$Ｆに基づく単位、つまり－CF_2－CF（$OCF_2CF_2CF_3$）－で表される単位における、１つのCF_2に対応するピークが検出される。したがって、式（４－１）のＢは、これらのピークの積分値の合計を意味する。

ここで、－CF_2－CF（$OCF_2CF_2CF_3$）－で表される単位は、ＴＦＥ単位とＥ単位とが交互に結合している部分を構成しない単位である。そのため、式（４－１）のＢから、B_{area}に検出される－CF_2－CF（$OCF_2CF_2CF_3$）－で表される単位の１つのCF_2に対応するピークの積分値を除く必要があるが、当該ピークの積分値は直接算出できない。そこで、A_{area}に観測される－CF_2－CF（$OCF_2CF_2CF_3$）－で表される単位における、CF_3に対応するピークの積分値および１つのCF_2に対応するピークの積分値の合計に２／５を乗じることで算出する。ここで２／５を乗じるのは、CF_3のフッ素原子数が３個および１つのCF_2のフッ素原子数が２個であり合計が５個であるのに対して、CF_2のフッ素原子数が２個であるので、CF_3に対応するピークの積分値および１つのCF_2に対応するピークの積分値の合計を２／５倍した値が、CF_2の積分値に相当するためである。CF_3積分値はＡであるので、式（４－１）では、Ｂから（Ａ／５）×２を差し引いている。

[0072] 図５のC_{area}には、ＴＦＥ２連鎖構造中のCF_2側CF_2に対応するピークｂが観測される。したがって、式（４－１）のＣは、ピークｂの積分値を意味する。

[0073] ＜製造方法＞

本共重合体は、上述の単量体（エチレンと、テトラフルオロエチレンと、化合物Ａまたは化合物Ｂ）を用いて、塊状重合、溶液重合、懸濁重合、乳化重合等の公知の方法で製造でき、中でも、溶液重合で製造されるのが好ましい。

本共重合体の製造では、上述の単量体の他に、重合開始剤、重合媒体、連鎖移動剤等を使用できる。

[0074] 重合開始剤は、半減期が１０時間である温度が０～１００℃であるラジカル重合開始剤が好ましく、該温度が２０～９０℃であるラジカル重合開始剤が特に好ましい。重合開始剤の具体例としては、国際公開第２０１３／０１５２０２号に例示されている各種重合開始剤が挙げられる。

重合開始剤は、１種単独で用いても２種以上を併用してもよい。

重合開始剤の使用量は、単量体の使用量１００質量部に対して、０．０１～０．９質量部が好ましく、０．０５～０．５質量部が特に好ましい。

[0075] 重合媒体としては、ペルフルオロカーボン、ハイドロフルオロカーボン、ハイドロフルオロエーテル等を使用できる。重合媒体の具体例としては、国際公開第２０１３／０１５２０２号に例示されている重合媒体が挙げられる。

重合媒体は、２種以上を併用してもよい。

重合媒体の使用量は、単量体の使用量に対して、質量比で５倍以上が好ましく、７倍以上がより好ましい。また、２０倍以下が好ましく、１７倍以下がより好ましい。

[0076] 連鎖移動剤としては、連鎖移動定数が大きく、添加量が少なくてすむ点から、メタノール、エタノール、２，２，２－トリフルオロエタノール、２，２，３，３－テトラフルオロプロパノール、１，１，１，３，３，３－ヘキ

サフルオロイソプロパノール、２，２，３，３，３－ペンタフルオロプロパノール等のアルコール類、ｎ－ペンタン、ｎ－ヘキサン、シクロヘキサン等のハイドロカーボン類、CF_2H_2等のハイドロフルオロカーボン類、アセトン等のケトン類、メチルメルカプタン等のメルカプタン類、酢酸メチル、酢酸エチル等のエステル類、ジエチルエーテル、メチルエチルエーテル等のエーテル類、等が好ましい。

中でも、連鎖移動定数がより高く、本共重合体の末端基の安定性が高い点から、アルコール類、ハイドロカーボン類、およびハイドロフルオロカーボン類が好ましく、アルコール類およびハイドロカーボン類がより好ましく、アルコール類が特に好ましい。アルコール類の中では、メタノールおよびエタノールが特に好ましい。中でも、反応性および入手容易性から、メタノールが特に好ましい。連鎖移動剤は、２種以上を用いてもよい。

連鎖移動剤の使用量は、単量体の使用量に対して、質量比で０．００１倍以上が好ましく、０．００５倍以上がより好ましい。また、５倍以下が好ましく、４倍以下がより好ましい。

[0077] 重合温度は、１５～６０℃が好ましく、２０～５８℃がより好ましく、２５～５５℃が特に好ましい。重合温度が２５℃以上であれば、重合性が優れる。重合温度が６０℃以下であれば、本共重合体の融点を向上でき、また、Ｍ値が上記範囲内である本共重合体が容易に得られる。

重合圧力は、０．５～３．０ＭＰａが好ましく、０．９～２．５ＭＰａが特に好ましい。

重合時間は、１～１２時間が好ましい。

[0078] ［組成物］

本発明の組成物（以下、「本組成物」ともいう。）は、上述の本共重合体と添加剤を含む。本組成物は、本共重合体を含むので、本組成物を用いれば、エンジンオイル耐性に優れた成形体が得られる。また、本共重合体の融点が高いので、本組成物を用いれば、耐熱性に優れた成形体が得られる。

添加剤としては、熱安定剤および酸化防止剤が好ましい。また、本組成物

は２種以上の添加剤を含んでもよい。

本共重合体の含有量は、本組成物の全質量に対して、５０質量％以上１００質量％未満が好ましく、７０質量％以上１００質量％未満がより好ましく、９０質量％以上１００質量％未満が特に好ましい。

[0079] ＜熱安定剤＞

本組成物は、本組成物を用いて得られる成形体の高温下での強度が優れる点から、熱安定剤を含むことが好ましい。熱安定剤としては、銅化合物が好ましい。

熱安定剤である銅化合物の具体例としては、酸化第一銅（酸化銅（Ｉ））、酸化第二銅（酸化銅（ＩＩ）、ヨウ化第一銅、ヨウ化第二銅が挙げられ、湿度の高い空気中での安定性に優れる点から、酸化第二銅が特に好ましい。

本組成物が熱安定剤を含む場合、熱安定剤の含有量は、本組成物中の本共重合体の１００質量部に対して、０．０００１５～０．０２質量部が好ましく、０．０００２～０．００５質量部がより好ましく、０．０００３～０．００２質量部が特に好ましい。熱安定剤の含有量が上記範囲内であれば、本組成物を用いて得られる成形体を高温下で使用したときにも、強度が良好であり、着色も抑制される。

[0080] ＜酸化防止剤＞

本組成物は、本組成物を用いて得られる成形体の耐熱性を向上できる点から、酸化防止剤を含むことが好ましい。

酸化防止剤の具体例としては、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤、硫黄系酸化防止剤、ヒンダードフェノール系酸化防止剤、アミン系酸化防止剤、重合体型であるアクリレート型ラジカル捕捉剤が挙げられ、成形体の耐熱性をより向上できる点から、フェノール系酸化防止剤が好ましい。

本組成物が酸化防止剤を含む場合、酸化防止剤の含有量は、本組成物中の本共重合体の１００質量部に対して、０．００００２～０．０２質量部が好ましく、０．００００５～０．００１５質量部がより好ましく、０．０００１～０．００１質量部が特に好ましい。酸化防止剤の含有量が上記範囲内で

あれば、成形体の耐熱性をより向上できる。

[0081] ＜他の添加剤＞

本組成物は、上記以外の添加剤を含んでいてもよい。このような他の添加剤の具体例としては、本共重合体以外の樹脂、着色剤、紫外線吸収剤、充填剤、架橋剤、架橋助剤、有機過酸化物が挙げられる。

本組成物が他の添加剤を含む場合、他の添加剤の含有量は、本組成物中の本共重合体の１００質量部に対して、０．００００００１～７０質量部が好ましく、０．０００００００５～６０質量部がより好ましく、０．０００００１～５０質量部が特に好ましい。

[0082] 本組成物の製造方法としては、本共重合体と、必要に応じて使用する上記成分とを公知の方法で溶融混錬する方法が挙げられる。

[0083] ［成形体］

本発明の成形体は、上述の本共重合体、または、上述の本組成物を成形して得られる。本形成体は、本共重合体を含むので、エンジンオイル耐性に優れる。また、本共重合体の融点が高いので、本成形体は耐熱性にも優れる。

成型方法の具体例としては、射出成形、押出成形、ブロー成形、プレス成形、回転成形および静電塗装が挙げられる。

本成形体は、各種機器の電線被覆材として好適に用いられる。具体的には、ロボット、電動機、発電機および変圧器等の電気機器の電線被覆材、家庭用電気機器の電線被覆材、電話および無線機等の通信用伝送機器の電線被覆材、コンピュータ、データ通信機器および端末機器等の電子機器の電線被覆材、鉄道車両用電線被覆材、自動車用電線被覆材、航空機用電線被覆材、船舶用電線被覆材、ビル、工場幹線、発電所、石油化学プラントおよび製鉄プラント等のシステム構成用電線被覆材等が挙げられる。中でも、本成形体はエンジンオイル耐性に優れる点から、エンジンオイルを使用する自動車等の電線被覆材に特に好適である。

また、本成形体は、電線被覆材の他にも、チューブ、シート、フィルム、フィラメント、ポンプケーシング、継ぎ手類、パッキング、ライニング、コ

ーティング等にも使用できる。

[0084] ［被覆電線］

本発明の被覆電線（以下、「本被覆電線」ともいう。）は、導体と、上記導体の表面に配置され、上述の本共重合体または上述の本組成物から形成される被覆層と、を有する。

本被覆電線は、本共重合体を含むので、エンジンオイル耐性に優れる。また、本共重合体の融点が高いので、本被覆電線は耐熱性にも優れる。

[0085] 導体を構成する材料としては、銅、アルミニウムおよびこれらの合金が挙げられ、銅が好ましい。導体は、錫、銀等のメッキが施されていてもよい。導体は、芯線であることが好ましい。

[0086] 導体の断面直径は、２００μｍ～１８．０ｍｍが好ましい。

被覆層の厚みは、１００μｍ～２．０ｍｍが好ましい。

被覆電線の断面直径は、４００μｍ～２２．０ｍｍが好ましい。

[0087] 本被覆電線の製造方法の具体例としては、溶融させた本共重合体または本組成物を導体の表面に付着させて、本共重合体または本組成物から形成される被覆層を導体の表面に形成する方法が挙げられる。

[0088] 被覆電線の用途の具体例は、上述の本成形体の項で述べた通りであるので、その説明を省略する。

実施例

[0089] 以下、例を挙げて本発明を詳細に説明する。例１～例３および例６は実施例であり、例４～例５および例７、例８は比較例である。ただし本発明はこれらの例に限定されない。

[0090] ［各単位の割合］

共重合体中の各単位の含有量（モル％）は、^{19}Ｆ－ＮＭＲ測定により算出した。ただし、共重合体中のＥ単位の含有量については、^{1}Ｈおよび^{13}Ｃ－ＮＭＲ測定により算出した。

[0091] ［結晶ラメラ厚み］

共重合体の結晶ラメラ厚み（ｎｍ）は、Ｘ線小角散乱法（ＳＡＸＳ法）に

よって求められたプロファイルから算出した。

具体的には、ＳＡＸＳ法による測定は、あいちシンクロトロン光センターのビームラインＢＬ８Ｓ３で実施した。Ｘ線波長１．５Å、カメラ長１１３１．０７ｍｍ、露光時間６０秒を測定条件として、検出器にＲ－ＡＸＩＳを用いた。二次元検出器により得られたデータは、円環平均により一次元化した。得られた一次元ＳＡＸＳプロファイルに空セル散乱補正を実施し、共重合体のＳＡＸＳプロファイルを得た。０．１５ｎｍ$^{-1}$＜ｑ（散乱ベクトル）＜１．５ｎｍ$^{-1}$の領域の共重合体のＳＡＸＳプロファイルを一次元電子密度相関関数に変換し、その一次元電子密度相関関数プロファイルから結晶ラメラ厚みを求めた。

なお、一次元電子密度相関関数への変換は、Fujimori, A. et al. J. Polym. Sci. Part B: Polym. Phys. 2015, 53, 1674-1690に記載の手法に準じた。

[0092] ［融点］

共重合体の融点（℃）は、走査型示差熱分析装置（商品名「ＤＳＣ７０２０」、日立ハイテクサイエンス社製）を用いて、空気雰囲気下、１０℃／分で３００℃まで昇温し、共重合体を加熱した際の吸熱ピークから求めた。

[0093] ［M値］

各共重合体の溶融物を用いて、４００ＭＨｚの^{19}Ｆ－ＮＭＲ測定によって得られるチャートに基づいて、上述の式（２－１）により各共重合体のM値を算出した。

^{19}Ｆ－ＮＭＲ測定は、以下の測定条件で実施した。

測定装置：Ｂｒｕｋｅｒ社製「ＡＶＡＮＣＥ　ＩＩＩ　４００」

[0094] ［ＭＦＲ（メルトフローレート）］

メルトインデクサー（テクノセブン社製）を用い、ＡＳＴＭ　Ｄ３１５９に準拠し、温度２９７℃、荷重４９Ｎの条件下で、直径２ｍｍ、長さ８ｍｍのオリフィスから１０分間に流れ出す共重合体の質量（ｇ）を測定し、ＭＦＲ（ｇ／１０分）とした。

[0095] ［評価試験］

芯線を繰り出すための繰出機と、共重合体を含む組成物を溶融混錬するスクリュー（ＩＫＧ社製、フルフライト、Ｌ／Ｄ＝２４、直径３０ｍｍ）を備えた押出機（ＩＫＧ社製、ＭＳ３０－２５）と、被覆電線を引き取るための引取機（聖製作所製）と、被覆電線を巻き取るための巻取機（聖製作所製）と、を有する被覆電線製造装置を準備した。

押出機に供給した組成物を２８０～３２０℃の温度条件で溶融混錬して、溶融した組成物を押出機のノズルから押し出して、繰出機から繰り出した芯線（商品名「ＴＡ　銅芯　３７／０．２６」、安田工業社製）の表面に付着させた。芯線の表面に付着した組成物を冷却固化して、芯線の表面に被覆層が形成された被覆電線（被覆電線の断面直径：２．８ｍｍ±０．０２ｍｍ）を得た。なお、被覆電線の引き取り速度が１０ｍ／分となるように調節した。

得られた被覆電線を用いて、以下の評価試験を実施した。

[0096] ＜エンジンオイル耐性＞

被覆電線を６００ｍｍの長さに切断した後、被覆電線の両端２５ｍｍの長さの被覆層を剥がした。剥がした部分の芯線同士を巻き付けて、涙滴状の被覆電線（評価用サンプル）を得た。

その後、日本サン石油社製のオイル（ＩＲＭ９０２）に評価用サンプルを１０秒間浸した後に取り出し、オイルを切った上で、２００℃に昇温したオーブンの中にぶら下げ静置した。２４０時間経過後、評価用サンプルを一旦取り出し、目視で評価用サンプルの被覆層のクラックの有無を確認した。クラックが無かったものは、再度オイル（ＩＲＭ９０２）に１０秒間浸した後に取り出し、オイルを切った上で、２００℃に加熱したオーブンの中にぶら下げ静置した。同様の操作をさらに２回繰り返し、最初に評価用サンプルをオーブンに静置してから計１０００時間経過後、オーブンより評価用サンプルを取り出した。これに５ｋｇｆの荷重をかけた状態で３０ｍｍ径のマンドレルに５回以上巻き付け、目視で評価用サンプルの被覆層のクラックの有無

を判断した。

[0097] ＜耐摩耗性＞

エンジンオイル耐性の評価と同様にして得られた被覆電線を２ｍの長さに切断した後、安田精機社製「マグネットワイヤー摩耗試験機（往復式）」を用い、ＩＳＯ６７２２－１に準拠した試験方法によってスクレープ摩耗試験を実施した。

具体的には、ニードル直径：０．４５±０．０１ｍｍ、ニードル材質：ＳＵＳ３１６（ＪＩＳ　Ｋ－Ｇ７６０２準拠）、摩耗距離：１．５５±１ｍｍ、摩耗速度：５５±５回／ｍｉｎ、荷重：７Ｎ、試験環境：２３±１℃の条件下で実施した。

摩耗抵抗は、ニードルの往復運動によって芯線が被覆層から露出するまでに要したニードルの往復回数で表される。摩耗抵抗（ニードルの往復回数）が多いほど、被覆層の耐摩耗性は優れる。

[0098] ［例１］

＜共重合体１の製造＞

２１．３Ｌのステンレス鋼製の重合槽を窒素置換した後、－０．１ＭＰａＧまで減圧し、Ｃ６Ｈ（２１０５０ｇ）、CH_3OH（２０６．８ｇ）、$CH_2=CH(CF_2)_4F$（２９０ｇ）、テトラフルオロエチレン（ＴＦＥ）（３３９３ｇ）、エチレン（Ｅ）（１５５ｇ）を仕込んだ。

次に、重合槽内の溶液を攪拌しながら５０℃（重合温度）に昇温し、ＩＰＰをＣ６Ｈに溶解させた溶液（２質量％、２００ｍＬ）を重合槽内に注入した。重合槽内の圧力が降下し始めたら重合槽内の内圧を１．５ＭＰａＧに保つようにＴＦＥ／Ｅ＝５４／４６（モル比）の混合単量体を添加し、重合を進行させた。混合単量体を５０ｇ圧入するたびに、$CH_2=CH(CF_2)_4F$溶液（７６質量％、５ｍＬ）を重合槽に添加した。混合単量体の連続仕込みが１７１８ｇになった時点で重合槽を室温に冷却し、重合槽内のガスを放出・回収した。重合時間は２２０分であった。溶媒を除去し、１５０℃で乾燥することで共重合体１の粉末を得た。

なお、Ｃ６Ｈは、１，１，１，２，２，３，３，４，４，５，５，６，６－トリデカフルオロヘキサンを意味し、ＩＰＰは、ジイソプロピルパーオキシジカーボネートを意味する。

[0099] ＜組成物１の製造＞

共重合体１（１００質量部）と、酸化銅（ＩＩ）（０．０００６５質量部）と、スミライザーＧＰ（０．０２質量部）を混合し、口径が３０ｍｍの押出機（ＩＫＧ社製、ＭＳ３０－２５）にて、シリンダー温度２６０～３００℃、ダイス温度３００℃、スクリュー回転数６０ｒｐｍの条件で溶融押出しを行い、ストランド状の成型物を得た上で、ペレタイザーで切断し、ペレット状の組成物１を得た。

[0100] ［例２］

共重合体の組成比が表１の記載の値になるように各成分の仕込み量を調節した以外は、例１と同様にして、例２の共重合体２を得た。化合物ＡとしてはＣＨ$_2$＝ＣＨ（ＣＦ$_2$）$_6$Ｆを用いた。

得られた共重合体を用いた以外は、例１と同様にして、例２のペレット状の組成物２を得た。

[0101] ［例３］

共重合体の組成比が表１の記載の値になるように各成分の仕込み量を調節した以外は、例１と同様にして、例３の共重合体３を得た。化合物ＡとしてはＣＨ$_2$＝ＣＨ（ＣＦ$_2$）$_2$Ｆを用いた。

得られた共重合体を用い、スミライザーＧＰを用いなかった以外は、例１と同様にして、例３のペレット状の組成物３を得た。

[0102] ［例４］

共重合体の組成比が表１の記載の値になるように各成分の仕込み量を調節し、重合温度を５０℃から６６℃に変更した以外は、例１と同様にして、例４の共重合体４を得た。化合物ＡとしてはＣＨ$_2$＝ＣＦ（ＣＦ$_2$）$_3$Ｈを用いた。

共重合体４を用いた以外は、例１と同様にして、例４のペレット状の組成

物４を得た。

[0103] ［例５］

共重合体の組成比が表１の記載の値になるように各成分の仕込み量を調節した以外は、例１と同様にして、例５の共重合体５を得た。化合物Ｂとしては$CF_2=CF(OCF_2)_3F$を用いた。

共重合体５を用いた以外は、例１と同様にして、例５のペレット状の組成物５を得た。

[0104] 例１～例５の組成物を使用した評価結果を表１に示す。

[表1]

			例1	例2	例3	例4	例5
組成物の種類			1	2	3	4	5
共重合体	共重合体の種類		1	2	3	4	5
	組成	TFE単位(mol%)	51.4	51.2	51.6	52.8	53.0
		E単位(mol%)	45.6	46.0	45.6	45.0	45.0
		A単位または B単位(mol%)	3.0	2.8	2.8	2.2	2.0
	物性	結晶ラメラ厚み(nm)	3.8	3.8	3.8	4.7	5
		融点(℃)	249	251	250	250	257
		M値	0.15	0.15	0.16	0.18	0.16
		MFR(g/分)	41	27	17	21	20
評価結果	エンジンオイル耐性 (クラック発生の有無)	240時間	無	無	無	無	無
		480時間	無	無	無	無	有
		720時間	無	無	無	有	-
		1000時間	無	無	無	-	-
	耐摩耗性	ニードルの 往復回数(回)	4638	4638	8012	6156	6689

[0105] 表１に示す通り、Ｅ単位と、ＴＦＥ単位と、Ａ単位を含み、結晶ラメラ厚みが４．０ｎｍ以下であり、融点が２４５℃以上である共重合体を用いれば、エンジンオイル耐性に優れた被覆電線が得られることが確認できた（例１～３）。

[0106] ［例６］

共重合体の組成比が表２の記載の値になるように各成分の仕込み量を調節した以外は、例１と同様にして、例６の共重合体６を得た。化合物Ｂとしては$CF_2=CF(OCF_2)_3F$を用いた。

得られた共重合体を用いた以外は、例１と同様にして、例６のペレット状の組成物６を得た。

[0107] ［例７］

共重合体の組成比が表２の記載の値になるように各成分の仕込み量を調節した以外は、例１と同様にして、例７の共重合体７を得た。化合物Ａとしては例１と同様に$CH_2=CH(CF_2)_4F$を用いた。

得られた共重合体を用いた以外は、例１と同様にして、例７のペレット状の組成物７を得た。

[0108] ［例８］

共重合体の組成比が表２の記載の値になるように各成分の仕込み量を調節した以外は、例１と同様にして、例８の共重合体８を得た。化合物Ａとしては例１と同様に$CH_2=CH(CF_2)_4F$を用いた。

得られた共重合体を用いた以外は、例１と同様にして、例８のペレット状の組成物８を得た。

[0109] 例６～例８の組成物を使用した評価結果を表２に示す。

[表2]

			例6	例7	例8
組成物の種類			6	7	8
共重合体	共重合体の種類		6	7	8
	組成	TFE単位(mol%)	52.0	48.2	52.4
		E単位(mol%)	45.0	49.1	45.5
		A単位または B単位(mol%)	3.0	2.7	2.1
	物性	結晶ラメラ厚み(nm)	3.8	4.5	5
		融点(℃)	250	254	251
		M値	0.15	0.1	0.19
		MFR(g/分)	40	7.9	28.5
評価結果	エンジンオイル耐性(クラック発生の有無)	240時間	無	無	無
		480時間	無	有	有
		720時間	無	－	－
		1000時間	有	－	－

[0110] なお、２０２１年０２月１２日に出願された日本特許出願２０２１－０２０９７９号の明細書、特許請求の範囲、要約書および図面の全内容をここに引用し、本発明の明細書の開示として、取り入れるものである。

請求の範囲

[請求項1] エチレンに基づく単位と、テトラフルオロエチレンに基づく単位と、式（Ａ）で表される化合物または式（Ｂ）で表される化合物に基づく単位と、を含む共重合体であって、

Ｘ線小角散乱法により求められる結晶ラメラ厚みが４．０ｎｍ以下であり、融点が２４５℃以上であることを特徴とする、共重合体。

$CH_2=CX(CF_2)_nY$ 式（Ａ）

$CF_2=CF-O-C_3F_7$ 式（Ｂ）

式（Ａ）中、ＸおよびＹはそれぞれ独立に水素原子またはフッ素原子であり、ｎは２～６の整数である。

[請求項2] 以下の算出方法で求められる前記共重合体のＭ値が０．２０以下である、請求項１に記載の共重合体。

算出方法：Ｍ値は、前記共重合体の溶融物を用いて、４００ＭＨｚの^{19}Ｆ－ＮＭＲ測定によって得られるチャートに基づいて、下記式（１）により算出される値である。

Ｍ値＝Ｃ１／Ｂ１ 式（１）

Ｂ１：化学シフト－１００～－１１５ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値

Ｃ１：化学シフト－１１８．５～－１２２ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値

前記Ｂ１および前記Ｃ１における化学シフトは、前記共重合体の前記テトラフルオロエチレンに基づく単位が２つ連続する箇所において、一方のテトラフルオロエチレンに基づく単位と、他方のテトラフルオロエチレンに基づく単位と、が直接結合する位置におけるCF_2のピークの化学シフトを－１２０ｐｐｍとした際に、観測される化学シフトである。

ただし、前記Ｂ１には、前記式（Ａ）で表される化合物および式（Ｂ）で表される化合物に由来する化学シフト－１００～－１１５ｐｐ

ｍの範囲に観測されるピークの積分値は含まれない。また、前記Ｃ１には、前記式（Ａ）で表される化合物および式（Ｂ）で表される化合物に由来する化学シフト－１１８．５～－１２２ｐｐｍの範囲に観測されるピークの積分値は含まれない。

[請求項3] 前記テトラフルオロエチレンに基づく単位の含有量が、前記共重合体が含む全単位に対して、４０～６５モル％である、請求項１または２に記載の共重合体。

[請求項4] 前記エチレンに基づく単位の含有量が、前記共重合体が含む全単位に対して、３５～６０モル％である、請求項１～３のいずれか１項に記載の共重合体。

[請求項5] 前記共重合体が前記エチレンに基づく単位と、前記テトラフルオロエチレンに基づく単位と、前記式（Ａ）で表される化合物に基づく単位と、を含む共重合体である、請求項１～４のいずれか１項に記載の共重合体。

[請求項6] 前記共重合体が前記式（Ａ）で表される化合物に基づく単位を含み、前記式（Ａ）で表される化合物に基づく単位の含有量が、前記共重合体が含む全単位に対して、１～５モル％である、請求項１～５のいずれか１項に記載の共重合体。

[請求項7] 前記共重合体が前記式（Ｂ）で表される化合物に基づく単位を含み、前記式（Ｂ）で表される化合物に基づく単位の含有量が、前記共重合体が含む全単位に対して、１～５モル％である、請求項１～４のいずれか１項に記載の共重合体。

[請求項8] ＡＳＴＭ Ｄ３１５９に準拠して、温度２９７℃、荷重４９Ｎの条件下で測定される前記共重合体のメルトフローレートが、１５～６０ｇ／１０分である、請求項１～７いずれか１項に記載の共重合体。

[請求項9] 請求項１～８のいずれか１項に記載の共重合体と添加剤を含むことを特徴とする、組成物。

[請求項10] 前記添加剤として熱安定剤を含む、請求項９に記載の組成物。

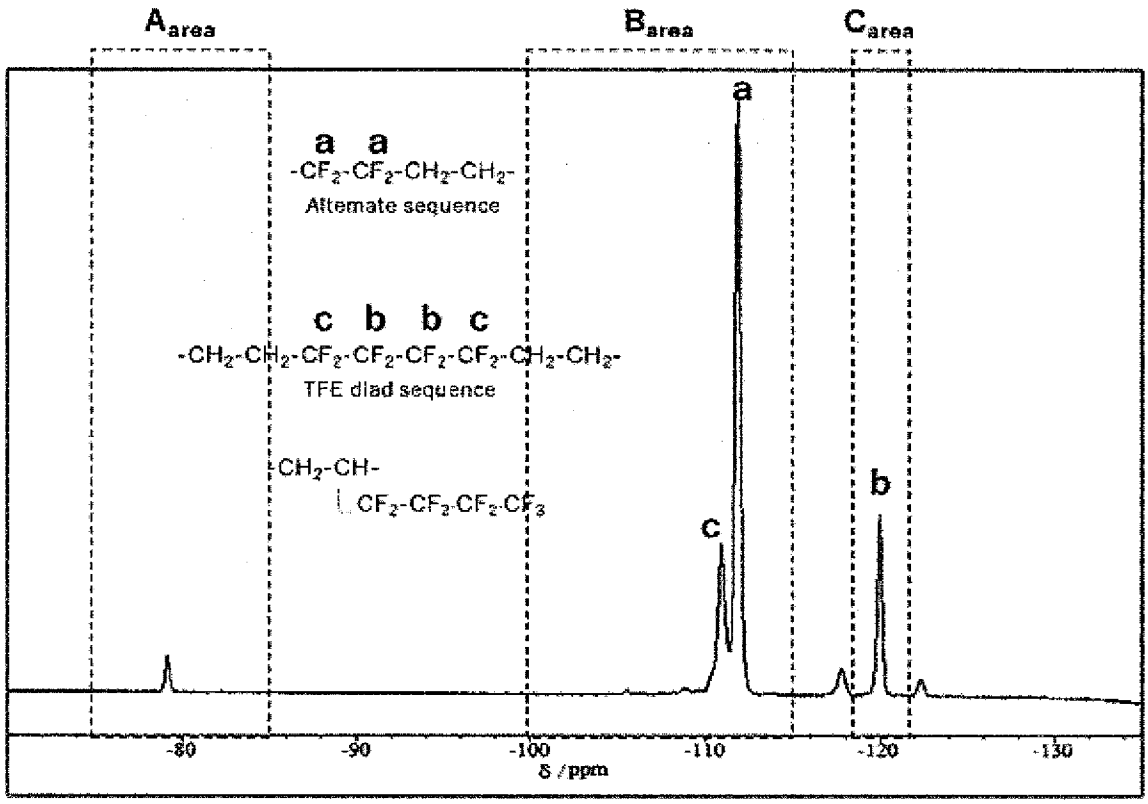
[請求項11] 前記熱安定剤が銅化合物である、請求項１０に記載の組成物。

[請求項12] 前記添加剤として酸化防止剤を含む、請求項９～１１のいずれか１項に記載の組成物。

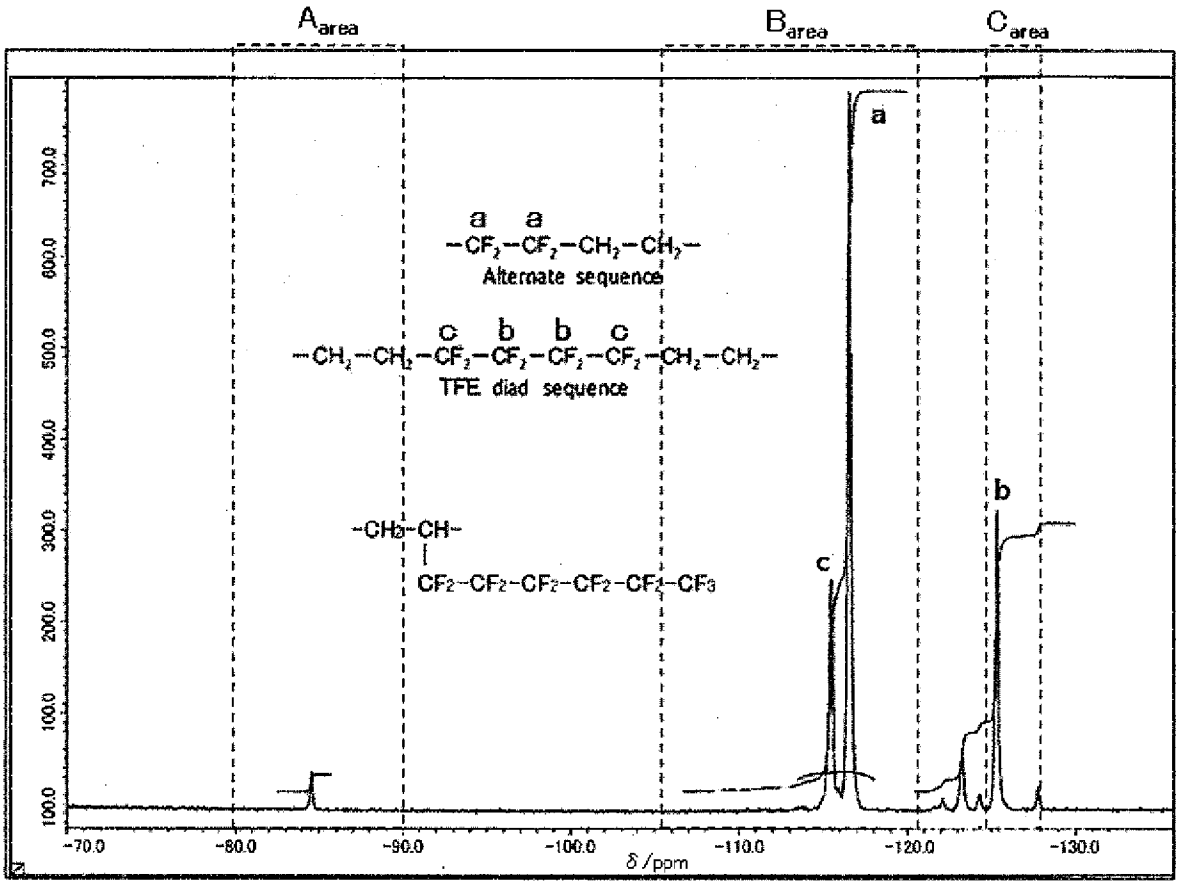
[請求項13] 請求項１～８のいずれか１項に記載の共重合体、または、請求項９～１２のいずれか１項に記載の組成物を成形して得られることを特徴とする、成形体。

[請求項14] 導体と、前記導体の表面に配置され、請求項１～８いずれか１項に記載の共重合体、または、請求項９～１２のいずれか１項に記載の組成物から形成される被覆層と、を有することを特徴とする、被覆電線。

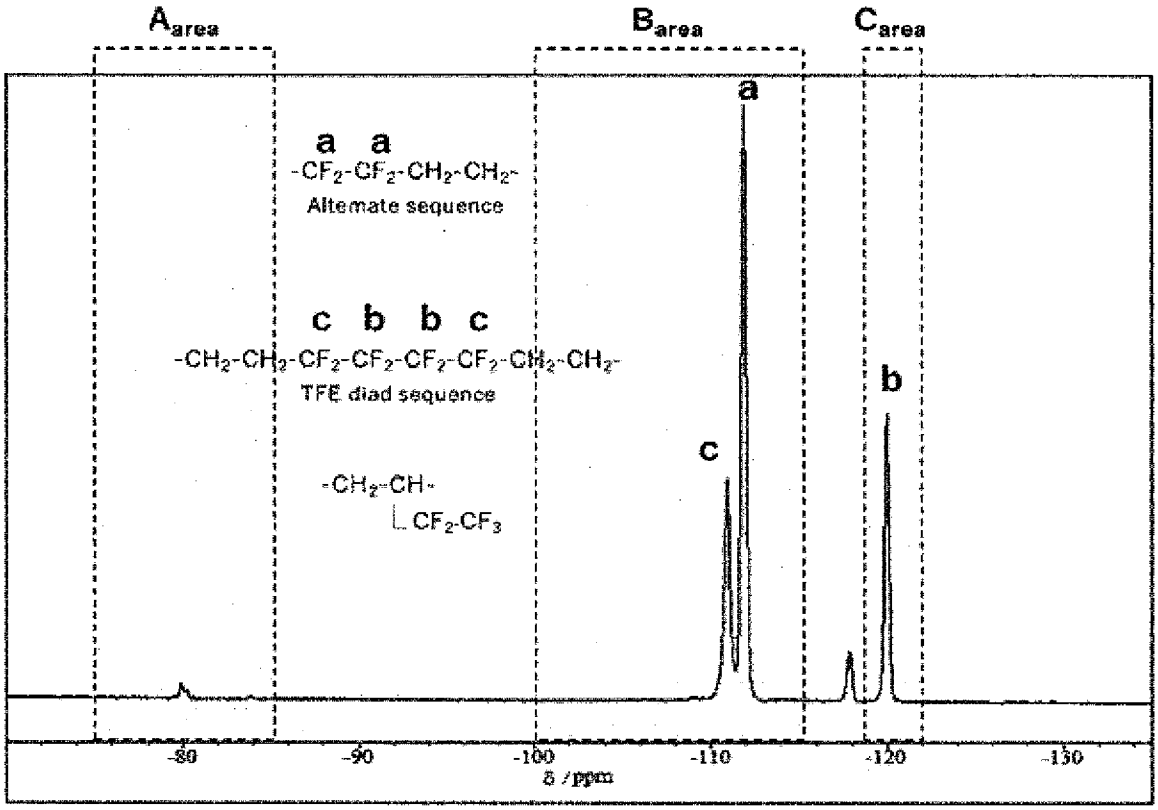
[図1]


A area
B area
C area
a a
-CF2-CF2-CH2-CH2-
Alternate sequence
c b b c
-CH2-CH2-CF2-CF2-CF2-CF2-CH2-CH2-
TFE diad sequence
CH2-CH-
CF2-CF2-CF2-CF3
a
b
c
-80
-90
-100
-110
-120
-130
δ /ppm

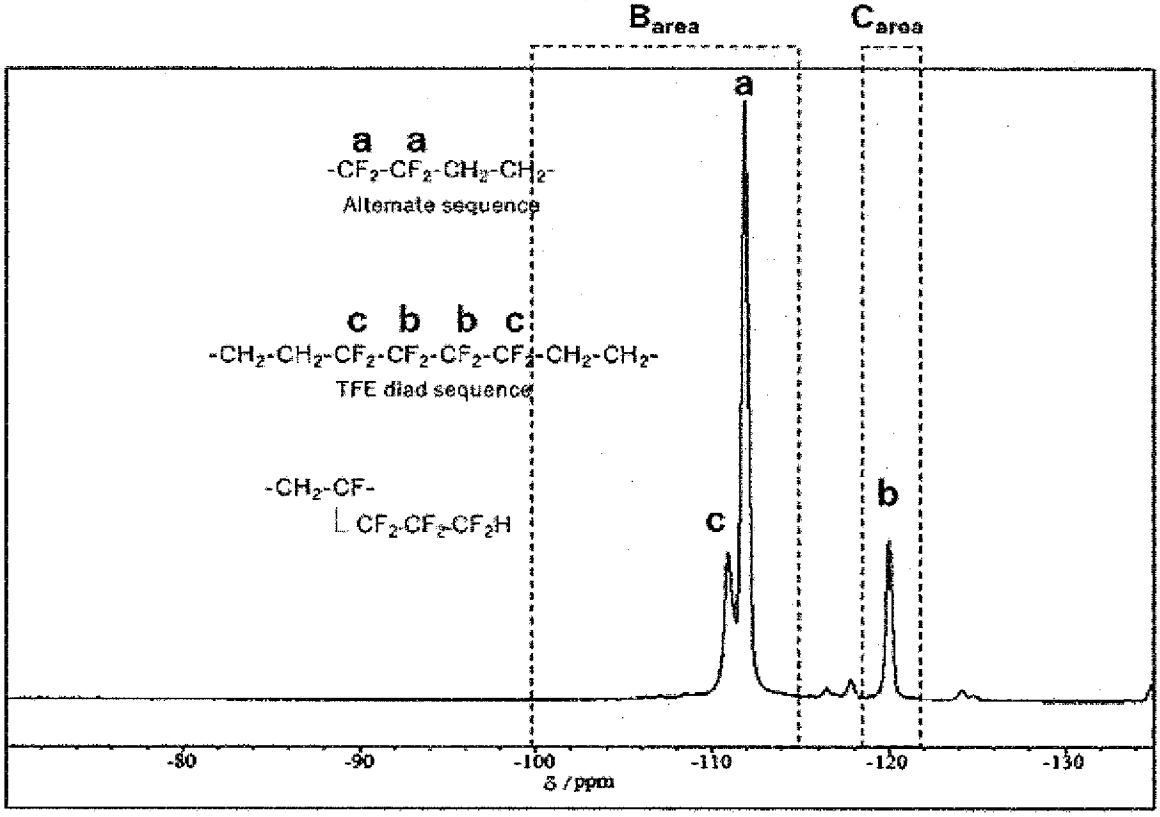
[図2]


A area
B area
C area
a a
−CF2−CF2−CH2−CH2−
Alternate sequence
c b b c
−CH2−CH2−CF2−CF2−CF2−CF2−CH2−CH2−
TFE diad sequence
-CH2-CH-
CF2-CF2-CF2-CF2-CF2-CF3
a
b
c
700.0
600.0
500.0
400.0
300.0
200.0
100.0
-70.0
-80.0
-90.0
-100.0
-110.0
-120.0
-130.0
δ /ppm

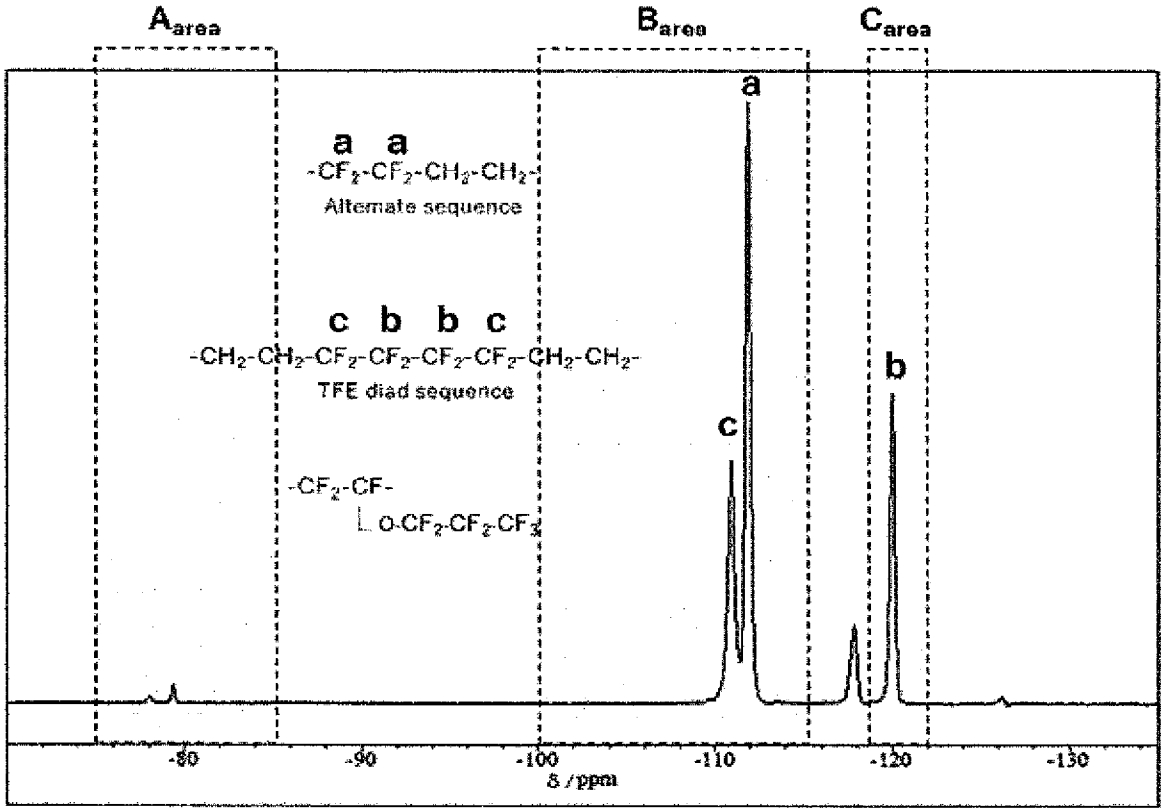
[図3]


A area
B area
C area
a a
-CF2-CF2-CH2-CH2-
Alternate sequence
c b b c
-CH2-CH2-CF2-CF2-CF2-CF2-CH2-CH2-
TFE diad sequence
-CH2-CH-
CF2-CF3
a
b
c
-80
-90
-100
-110
-120
-130
δ / ppm

[図4]


B area
C area
a a
-CF2-CF2-CH2-CH2-
Alternate sequence
c b b c
-CH2-CH2-CF2-CF2-CF2-CF2-CH2-CH2-
TFE diad sequence
-CH2-CF-
CF2-CF2-CF2H
a
b
c
-80
-90
-100
-110
-120
-130
δ / ppm

[図5]


A area
B area
C area
a a
-CF2-CF2-CH2-CH2-
Alternate sequence
c b b c
-CH2-CH2-CF2-CF2-CF2-CF2-CH2-CH2-
TFE diad sequence
-CF2-CF-
O-CF2-CF2-CF3
a
c
b
-80
-90
-100
-110
-120
-130
δ / ppm

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2022/005103

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08F 214/26(2006.01)i; ***C08L 27/18***(2006.01)i; ***H01B 3/44***(2006.01)i; ***H01B 7/02***(2006.01)i; ***C08K 3/105***(2018.01)i
FI: C08F214/26; C08L27/18; C08K3/105; H01B3/44 C; H01B3/44 P; H01B7/02 Z

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C08F214/26; C08L27/18; H01B3/44; H01B7/02; C08K3/105

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)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2017/082417 A1 (ASAHI GLASS CO., LTD.) 18 May 2017 (2017-05-18) claims 1, 2, 4, paragraph [0024], example (8-1), table 2	1-6, 8-14
X	JP 47-23671 B1 (E.I. DU PONT DE NEMOURS & CO.) 01 July 1972 (1972-07-01) claim 1, column 6, lines 41-44, example VI, table I	1-5, 7-14
X	US 4629756 A (E. I. DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY) 16 December 1986 (1986-12-16) claims 1, 7, column 1, lines 41-50, examples 1, 2	1-14
A	US 3528954 A (E. I. DU PONT DE NEMOURS AND CO.) 15 September 1970 (1970-09-15) examples	1-14
A	JP 11-343314 A (E. I. DU PONT DE NEMOURS AND CO.) 14 December 1999 (1999-12-14)	1-14
A	JP 60-248710 A (DAIKIN INDUSTRIES, LTD.) 09 December 1985 (1985-12-09)	1-14

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☑ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
11 April 2022	**19 April 2022**
Name and mailing address of the ISA/JP **Japan Patent Office (ISA/JP)** **3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915** **Japan**	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2022/005103

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO 2017/082417 A1	18 May 2017	EP 3375796 A1 claims 1, 2, 4, paragraph [0053], example (8-1), table 2 US 2018/0237566 A1 CN 108350123 A	
JP 47-23671 B1	01 July 1972	GB 1292643 A claim 1, p. 3, lines 68-73, example VI, table I DE 1957963 A FR 2030642 A NL 6917402 A	
US 4629756 A	16 December 1986	(Family: none)	
US 3528954 A	15 September 1970	GB 1196538 A DE 1806097 A FR 1590264 A NL 6815434 A	
JP 11-343314 A	14 December 1999	US 6197904 B1 EP 939088 A1	
JP 60-248710 A	09 December 1985	US 4614276 A US 4677175 A EP 162455 A2 EP 163251 A2 CA 1248693 A	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2022/005103

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08F 214/26(2006.01)i; C08L 27/18(2006.01)i; H01B 3/44(2006.01)i; H01B 7/02(2006.01)i; C08K 3/105(2018.01)i
FI: C08F214/26; C08L27/18; C08K3/105; H01B3/44 C; H01B3/44 P; H01B7/02 Z

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08F214/26; C08L27/18; H01B3/44; H01B7/02; C08K3/105

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０２２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

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）

CAplus/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	WO 2017/082417 A1 (旭硝子株式会社) 18.05.2017 (2017-05-18) 請求項1,2,4,[0024],例(8-1),表2	1-6,8-14
X	JP 47-23671 B1 (イー・アイ・デュポン・デ・ニモアス・アンド・カンパニー) 01.07.1972 (1972-07-01) 請求項1,第6カラム41-44,実施例VI,表I	1-5,7-14
X	US 4629756 A (E. I. DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY) 16.12.1986 (1986-12-16) 請求項1,7,第1カラム41-50行,実施例1,2	1-14
A	US 3528954 A (E. I. DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY) 15.09.1970 (1970-09-15) 実施例	1-14
A	JP 11-343314 A (イー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・アンド・カンパニー) 14.12.1999 (1999-12-14)	1-14
A	JP 60-248710 A (ダイキン工業株式会社) 09.12.1985 (1985-12-09)	1-14

☐ Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と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
“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
“&” 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
11.04.2022	19.04.2022

名称及びあて先
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

権限のある職員（特許庁審査官）
今井　督 4J 5812

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

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/JP2022/005103

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO 2017/082417 A1	18.05.2017	EP 3375796 A1 請求項1,2,4,[0053],例(8-1),表2 US 2018/0237566 A1 CN 108350123 A	
JP 47-23671 B1	01.07.1972	GB 1292643 A 請求項1,第3頁68-73行,実施例VI,表I DE 1957963 A FR 2030642 A NL 6917402 A	
US 4629756 A	16.12.1986	（ファミリーなし）	
US 3528954 A	15.09.1970	GB 1196538 A DE 1806097 A FR 1590264 A NL 6815434 A	
JP 11-343314 A	14.12.1999	US 6197904 B1 EP 939088 A1	
JP 60-248710 A	09.12.1985	US 4614276 A US 4677175 A EP 162455 A2 EP 163251 A2 CA 1248693 A	