

(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
2014 年 9 月 25 日(25.09.2014)



(10) 国際公開番号

WO 2014/148261 A1

- (51) 国際特許分類:
G02B 5/30 (2006.01) *G02F 1/1335* (2006.01)
B32B 27/00 (2006.01) *G02F 1/13363* (2006.01)
B32B 27/30 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2014/055643
- (22) 国際出願日: 2014 年 3 月 5 日(05.03.2014)
- (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 2013-055426 2013 年 3 月 18 日(18.03.2013) JP
- (71) 出願人: 日本ゼオン株式会社(ZEON CORPORATION) [JP/JP]; 〒1008246 東京都千代田区丸の内一丁目 6 番 2 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 波多野 拓(HATANO, Taku); 〒1008246 東京都千代田区丸の内一丁目 6 番 2 号 日本ゼオン株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 酒井 宏明(SAKAI, Hiroaki); 〒1006020 東京都千代田区霞が関三丁目 2 番 5 号 霞が関ビルディング 酒井国際特許事務所 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, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, 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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, 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, 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).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: OPTICAL LAMINATED BODY, POLARIZING PLATE COMPLEX, LIQUID CRYSTAL DISPLAY DEVICE, AND PRODUCTION METHOD

(54) 発明の名称: 光学積層体、偏光板複合体、液晶表示装置、及び製造方法

(57) Abstract: An optical laminated body provided with a retardation layer (P1) that comprises a resin (p1) containing a polyphenylene ether and a polystyrene polymer which has a syndiotactic structure, and a retardation layer (P2) that comprises a resin (p2) containing a polymer which has an alicyclic structure, a production method for the optical laminated body, and a polarizing plate complex containing the same. In the optical laminated body: the weight ratio of the polyphenylene ether content and the polystyrene polymer content in the resin (p1) is larger than 25/75, and smaller than 35/65; the NZ coefficient (NZ_{P1}) of the retardation layer (P1) is $NZ_{P1} < 0$; and the retardation (Re) at an incidence angle of 0° and the retardation (R_{40}) at an incidence angle of 40° satisfy $0.92 \leq R_{40} / Re \leq 1.08$.

(57) 要約: ポリフェニレンエーテル及びシンジオタクチック構造を有するポリスチレン系重合体を含む樹脂 p 1 からなる位相差層 P 1 と、脂環式構造含有重合体を含む樹脂 p 2 からなる位相差層 P 2 とを備える光学積層体であって、前記樹脂 p 1 において、前記ポリフェニレンエーテルの含有量/前記ポリスチレン系重合体の含有量の重量比が、25/75 より大きく、且つ 35/65 より小さく、前記位相差層 P 1 の NZ 係数 NZ_{P1} が、 $NZ_{P1} < 0$ であり、前記光学積層体の入射角 0° におけるレターデーション R_e と入射角 40° におけるレターデーション R_{40} とが $0.92 \leq R_{40} / R_e \leq 1.08$ の関係を満たす、光学積層体; 並びにその製造方法、及びそれを含む偏光板複合体。

WO 2014/148261 A1

明 細 書

発明の名称：

光学積層体、偏光板複合体、液晶表示装置、及び製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、光学積層体、偏光板複合体、液晶表示装置、光学積層体の製造方法、及び偏光板複合体の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 液晶表示装置等の表示装置において、例えば視野角の補償のために、複数枚の位相差層を組み合わせた光学積層体が、偏光板などの他の部材と組み合わせて用いられることがある。位相差層としては、樹脂によって形成された長尺の延伸前フィルムを延伸し、当該フィルムに含まれる分子を配向させて得られる延伸フィルムが、簡便に製造でき、好ましい。

[0003] 位相差層として用いるための延伸フィルムについては、従来から多くの検討がなされている。例えば、特許文献1～4のような技術が知られている。このうち、特許文献1～3では、延伸フィルムとして、逆波長分散性を有する位相差フィルムを製造する技術が記載されている。ここで、逆波長分散性とは、位相差フィルムを透過する光の波長が長くなるにつれて、その光に与えられる面内方向のレターデーションが大きくなる性質のことを意味する。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：国際公開第2010/074166号

特許文献2：特開2011-113004号公報

特許文献3：特開2010-78905号公報

特許文献4：特開平7-266414号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 近年、液晶表示装置等の表示装置において、装置の厚みを薄型化する要求

が更に高くなっている。このため、位相差層も、従来よりも更に薄くすることが求められている。

ところが、薄いフィルムにおいて高い位相差を発現させようとする、延伸倍率を高める必要が生じる。延伸倍率を高めると、配向方向のバラツキが大きくなり、その結果、視野角補償等の性能が不十分となりうる。また、面内方向のレターデーション R_e を所望の値にするために単に延伸倍率を高めると、厚み方向のレターデーション R_{th} が所望の値とならず視野角補償性能が不十分となることが多い。さらに、従来の延伸フィルムでは、高温で長時間使用するとレターデーションが大きく変化する場合があります、そのような変化は、延伸倍率を大きくした場合特に顕著に現れうる。

[0006] 従って、本発明の目的は、薄く、視野角補償性能が高く、且つ高温での使用における耐久性に優れた光学積層体、それを含む偏光板複合体及び液晶表示装置、並びにそれらの製造方法を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明者らは前記の課題を解決するべく検討した結果、ポリフェニレンエーテルと、所定の構造を有するポリスチレン系重合体とを所定の重量比で組み合わせた樹脂 p 1 からなる位相差層 P 1 と、脂環式構造含有重合体を含む樹脂 p 2 からなる位相差層 P 2 との組み合わせにより、そのような光学積層体を得ることができることを見出した。本発明者はさらに、そのような光学積層体は、樹脂 p 1 を含む複数の樹脂の共押し出しの工程を含む所定の方法により容易に製造しうることを見出した。本発明は、かかる知見に基づき完成したものである。

すなわち、本発明は以下の通りである。

[0008] [1] ポリフェニレンエーテル及びシンジオタクチック構造を有するポリスチレン系重合体を含む樹脂 p 1 からなる位相差層 P 1 と、

脂環式構造含有重合体を含む樹脂 p 2 からなる位相差層 P 2 とを備える光学積層体であって、

前記樹脂 p 1 において、前記ポリフェニレンエーテルの含有量／前記ポリ

スチレン系重合体の含有量の重量比が、 $25/75$ より大きく、且つ $35/65$ より小さく、

前記位相差層P1のNZ係数 NZ_{P1} が、 $NZ_{P1} < 0$ であり、

前記光学積層体の入射角 0° におけるレターデーション R_e と入射角 40° におけるレターデーション R_{40} とが $0.92 \leq R_{40}/R_e \leq 1.08$ の関係を満たす、光学積層体。

〔2〕 前記位相差層P1の面内レターデーション $R_e(P1)$ 及び厚み方向レターデーション $R_{th}(P1)$ 、並びに前記位相差層P2の面内レターデーション $R_e(P2)$ 及び厚み方向レターデーション $R_{th}(P2)$ が、下記式(1)及び式(2)：

$$R_e(P1) + R_e(P2) \geq 100 \text{ nm} \quad \text{式(1)}$$

$$-50 \text{ nm} \leq R_{th}(P1) + R_{th}(P2) \leq 50 \text{ nm} \quad \text{式(2)}$$

を満たす、〔1〕に記載の光学積層体。

〔3〕 前記位相差層P1の厚さが $15 \mu\text{m}$ 以下であり、厚み方向のレターデーション $R_{th}(P1)$ が -50 nm 以下である、〔1〕又は〔2〕に記載の光学積層体。

〔4〕 前記ポリフェニレンエーテルの重量平均分子量が $15,000 \sim 100,000$ であり、

前記ポリスチレン系重合体の重量平均分子量が $130,000 \sim 300,000$ である、〔1〕～〔3〕のいずれか1項に記載の光学積層体。

〔5〕 前記位相差層P1の遅相軸と、前記位相差層P2の遅相軸との交差角が、 $0^\circ \pm 10^\circ$ である、〔1〕～〔4〕のいずれか1項に記載の光学積層体。

〔6〕 〔1〕～〔5〕のいずれか1項に記載の光学積層体と、偏光子とを備える、偏光板複合体。

〔7〕 前記光学積層体の遅相軸と、前記偏光子の吸収軸とが直交する、〔6〕に記載の偏光板複合体。

〔8〕 〔6〕又は〔7〕に記載の偏光板複合体と、液晶セルとを備える、

液晶表示装置。

〔 9 〕 入射側偏光子、液晶セル、出射側偏光子をこの順に備えるインプレーンスイッチングモードの液晶表示装置であって、

前記液晶表示装置はさらに、前記入射側偏光子と前記液晶セルとの間の位置、前記出射側偏光子と前記液晶セルとの間の位置、またはこれらの両方の位置において、〔 5 〕に記載の光学積層体を備え、

前記光学積層体は、前記位相差層 P 1 が前記液晶セル側に配置されている、インプレーンスイッチングモードの液晶表示装置。

〔 1 0 〕 〔 1 〕 ～ 〔 5 〕 のいずれか 1 項に記載の光学積層体の製造方法であって、

ポリフェニレンエーテル及びシンジオタクチック構造を有するポリスチレン系重合体を含み、前記ポリフェニレンエーテルの含有量／前記ポリスチレン系重合体の含有量の重量比が 2 5 ／ 7 5 より大きく、且つ 3 5 ／ 6 5 より小さい樹脂 p 1 と、（メタ）アクリル重合体を含む樹脂 p 3 とを共押し出しして、延伸前フィルム P F （ 1 ）を得る工程と、

前記延伸前フィルム P F （ 1 ）を延伸し、前記樹脂 p 1 からなる位相差層 P 1 及び前記樹脂 p 3 からなる保護層 P 3 を含む延伸複層フィルム F （ 1 ）を得る工程と、

脂環式構造含有重合体を含む樹脂 p 2 を押し出して、延伸前フィルム P F （ 1 1 ）を得る工程と、

前記延伸前フィルム P F （ 1 1 ）を延伸し、位相差層 P 2 のフィルム F （ 1 1 ）を得る工程と、

前記位相差層 P 1 と前記位相差層 P 2 とを貼合する工程と
を有する製造方法。

〔 1 1 〕 前記位相差層 P 1 から前記保護層 P 3 を剥離する工程をさらに含む、〔 1 0 〕に記載の製造方法。

〔 1 2 〕 得られる前記光学積層体が、長尺の形状を有する前記位相差層 P 1 及び長尺の形状を有する前記位相差層 P 2 を含む、長尺の形状を有し、

前記位相差層 P 1 は、その幅方向に遅相軸を有し、

前記位相差層 P 2 は、その幅方向に遅相軸を有する、〔1 0〕又は〔1 1〕に記載の製造方法。

〔1 3〕 〔1 2〕に記載の製造方法で得られる長尺の光学積層体と、長尺の偏光子とをロールトゥーロールで貼合する工程を有する、長尺の偏光板複合体の製造方法。

発明の効果

[0009] 本発明の光学積層体並びにそれを含む本発明の偏光板複合体及び本発明の液晶表示装置は、薄く、視野角補償性能が高く、且つ高温での使用における耐久性に優れる。また、本発明の製造方法では、そのような本発明の光学積層体及び偏光板複合体を容易に製造しうる。

発明を実施するための形態

[0010] 以下、本発明について実施形態及び例示物等を示して詳細に説明するが、本発明は以下に示す実施形態及び例示物等に限定されるものではなく、本発明の特許請求の範囲及びその均等の範囲を逸脱しない範囲において任意に変更して実施してもよい。

以下の説明において、(メタ)アクリルといった表現は、アクリル、メタクリル又はこれらの組み合わせを意味する。例えば、(メタ)アクリル酸とは、アクリル酸、メタクリル酸又はこれらの組み合わせを意味する。また、(メタ)アクリレートとは、アクリレート、メタクリレート又はこれらの組み合わせを意味する。

以下の説明において、MD方向 (machine direction) は、製造ラインにおけるフィルムの流れ方向であり、通常は長尺のフィルムの長手方向に一致する方向を表す。さらに、TD方向 (transverse direction) は、フィルム面に平行な方向であって、MD方向に垂直な方向であり、通常は長尺のフィルムの幅方向に一致する方向を表す。

以下の説明において、別に断らない限り、屈折率及びレターデーションの測定波長は 550 nm である。また、フィルム又は層の遅相軸とは、別に断

らない限り、面内の遅相軸を表す。

以下の説明において、NZ係数は、 $(n_x - n_z) / (n_x - n_y)$ を表す。ここで n_x は厚み方向に垂直な方向（面内方向）であって最大の屈折率を与える方向の屈折率を表し、 n_y は厚み方向に垂直な方向（面内方向）であって n_x の方向に垂直な方向の屈折率を表し、 n_z は厚み方向の屈折率を表す。

[0011] [1. 光学積層体]

本発明の光学積層体は、樹脂p1からなる位相差層P1と、樹脂p2からなる位相差層P2とを備える。

[0012] [1-1. 樹脂p1]

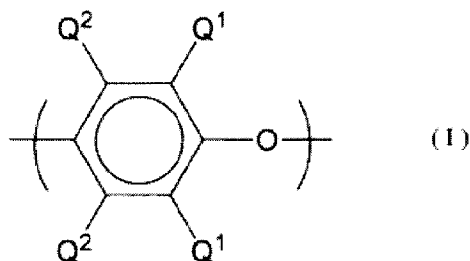
樹脂p1は、ポリフェニレンエーテル及びシンジオタクチック構造を有するポリスチレン系重合体を含む。ポリフェニレンエーテルは通常正の固有複屈折値を有し、シンジオタクチック構造を有するポリスチレン系重合体は通常負の固有複屈折値を有する。ここで、固有複屈折値が正であるとは、延伸方向の屈折率が延伸方向に垂直な方向の屈折率よりも大きくなることを意味する。また、固有複屈折値が負であるとは、延伸方向の屈折率が延伸方向に垂直な方向の屈折率よりも小さくなることを意味する。固有複屈折値は、誘電率分布から計算することもできる。

[0013] ポリフェニレンエーテルは、フェニレンエーテル又はフェニレンエーテル誘導体を重合して形成される構造単位を有する重合体である。通常は、フェニレンエーテル骨格を有する構造単位（以下、適宜「フェニレンエーテル単位」という。）を主鎖に有する重合体を、ポリフェニレンエーテルとして用いる。ただし、フェニレンエーテル単位におけるベンゼン環には、本発明の効果を著しく損なわない限り、置換基を有していてもよい。

[0014] 中でも、ポリフェニレンエーテルとしては、下記式(1)で表されるフェニレンエーテル単位を含む重合体が好ましい。

[0015]

[化1]



[0016] 式 (I) において、 Q^1 は、それぞれ独立に、ハロゲン原子、低級アルキル基（例えば炭素数 7 個以下のアルキル基）、フェニル基、ハロアルキル基、アミノアルキル基、炭化水素オキシ基、または、ハロ炭化水素オキシ基（ただし、そのハロゲン原子と酸素原子とを少なくとも 2 つの炭素原子が分離している基）を表す。中でも、 Q^1 としてはアルキル基及びフェニル基が好ましく、特に炭素数 1 以上 4 以下のアルキル基がより好ましい。

[0017] 式 (I) において、 Q^2 は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基（例えば炭素数 7 個以下のアルキル基）、フェニル基、ハロアルキル基、炭化水素オキシ基、または、ハロ炭化水素オキシ基（ただし、そのハロゲン原子と酸素原子とを少なくとも 2 つの炭素原子が分離している基）を表す。中でも、 Q^2 としては水素原子が好ましい。

[0018] ポリフェニレンエーテルは、1 種類の構造単位を有する単独重合体（ホモポリマー）であってもよく、2 種類以上の構造単位を有する共重合体（コポリマー）であってもよい。

式 (I) で表される構造単位を含む重合体が単独重合体である場合、当該単独重合体の好ましい例を挙げると、2, 6-ジメチル-1, 4-フェニレンエーテル単位（「 $-(C_6H_2(CH_3)_2-O)-$ 」で表される構造単位）を有する単独重合体が挙げられる。

式 (I) で表される構造単位を含む重合体が共重合体である場合、当該共重合体の好ましい例を挙げると、2, 6-ジメチル-1, 4-フェニレンエーテル単位と 2, 3, 6-トリメチル-1, 4-フェニレンエーテル単位（「 $-(C_6H(CH_3)_3-O)-$ 」で表される構造単位）と組み合わせて有

するランダム共重合体が挙げられる。

[0019] また、ポリフェニレンエーテルは、フェニレンエーテル単位以外の構造単位を含んでいてもよい。この場合、ポリフェニレンエーテルは、フェニレンエーテル単位とそれ以外の構造単位とを有する共重合体となる。ただし、ポリフェニレンエーテルにおけるフェニレンエーテル単位以外の構造単位の含有量は、本発明の効果を著しく損なわない程度に少なくすることが好ましい。具体的には、ポリフェニレンエーテルにおけるフェニレンエーテル単位の含有量は、通常50重量%以上、好ましくは70重量%以上、より好ましくは80重量%以上である。

[0020] ポリフェニレンエーテルは、1種類を単独で用いてもよく、2種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

[0021] ポリフェニレンエーテルの重量平均分子量は、通常15,000以上、好ましくは25,000以上、より好ましくは35,000以上であり、通常100,000以下、好ましくは85,000以下、より好ましくは70,000以下である。重量平均分子量を、前記範囲の下限值以上にするにより位相差層P1の強度を高めることができる。また、上限値以下にすることにより、ポリフェニレンエーテルの分散性を高めてポリフェニレンエーテルとスチレン系重合体とを高いレベルで均一に混合することが可能となる。

ここで、重量平均分子量は、1,2,4-トリクロロベンゼンを溶媒として温度135℃でゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）で測定した、標準ポリスチレン換算の値を採用する。

[0022] ポリフェニレンエーテルの製造方法に制限は無く、例えば、特開平11-302529号公報に記載の方法により製造しうる。

[0023] ポリスチレン系重合体は、スチレン類化合物を重合して形成される構造単位（以下、適宜「スチレン類単位」という。）を含む重合体である。スチレン類化合物の例としては、スチレン及びスチレン誘導体が挙げられる。スチレン誘導体の例としては、スチレンのベンゼン環または α 位に置換基が置換したものが挙げられる。

スチレン類化合物の例を挙げると、スチレン；メチルスチレン、2，4－ジメチルスチレン等のアルキルスチレン；クロロスチレン等のハロゲン化スチレン；クロロメチルスチレン等のハロゲン置換アルキルスチレン；メトキシスチレン等のアルコキシスチレン；などが挙げられる。中でもスチレン類化合物としては、置換基を有しないスチレンが好ましい。また、スチレン類化合物は、1種類を単独で用いてもよく、2種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

[0024] 樹脂 p 1 が含むポリスチレン系重合体としては、シンジオタクチック構造を有するものを用いる。ここで、ポリスチレン系重合体がシンジオタクチック構造を有する、とは、ポリスチレン系重合体の立体化学構造がシンジオタクチック構造となっていることをいう。また、シンジオタクチック構造とは、炭素－炭素結合で形成される主鎖に対して、側鎖であるフェニル基が、フィッシャー投影式において、交互に反対方向に位置する立体構造のことをいう。

[0025] ポリスチレン重合体のタクティシティー（*t a c t i c i t y*：立体規則性）は、同位体炭素による核磁気共鳴法（ ^{13}C －NMR法）により定量される。 ^{13}C －NMR法により測定されるタクティシティーは、連続する複数の構成単位の存在割合により示すことができる。一般に、例えば、連続する構成単位が2個の場合はダイアッド、3個の場合はトリアッド、5個の場合はペンタッドとなる。この場合、前記シンジオタクチック構造を有するポリスチレン系重合体とは、ラセミダイアッドで通常75%以上、好ましくは85%以上のシンジオタクティシティーを有するか、若しくは、ラセミペンタッドで通常30%以上、好ましくは50%以上のシンジオタクティシティーを有することをいう。どの場合も、シンジオタクティシティーの上限は、理想的には100%としうる。

[0026] ポリスチレン系重合体の例としては、ポリスチレン、ポリ（アルキルスチレン）、ポリ（ハロゲン化スチレン）、ポリ（ハロゲン化アルキルスチレン）、ポリ（アルコキシスチレン）、ポリ（ビニル安息香酸エステル）、及び

これらの水素化重合体、並びにこれらの共重合体が挙げられる。

ポリ（アルキルスチレン）としては、例えばポリ（メチルスチレン）、ポリ（エチルスチレン）、ポリ（イソピルスチレン）、ポリ（*t*-ブチルスチレン）、ポリ（フェニルスチレン）、ポリ（ビニルナフタレン）、ポリ（ビニルスチレン）などが挙げられる。

ポリ（ハロゲン化スチレン）としては、例えば、ポリ（クロロスチレン）、ポリ（ブロモスチレン）、ポリ（フルオロスチレン）などが挙げられる。

ポリ（ハロゲン化アルキルスチレン）としては、例えば、ポリ（クロロメチルスチレン）などが挙げられる。

ポリ（アルコキシスチレン）としては、例えば、ポリ（メトキシスチレン）、ポリ（エトキシスチレン）などが挙げられる。

[0027] これらのうち特に好ましいポリスチレン系重合体としては、ポリスチレン、ポリ（*p*-メチルスチレン）、ポリ（*m*-メチルスチレン）、ポリ（*p*-*t*-ブチルスチレン）、ポリ（*p*-クロロスチレン）、ポリ（*m*-クロロスチレン）、ポリ（*p*-フルオロスチレン）、水素化ポリスチレン、及びこれらの構造単位を含む共重合体が挙げられる。

[0028] また、ポリスチレン系重合体は、1種類の構造単位のみを有する単独重合体であってもよく、2種類以上の構造単位を有する共重合体であってもよい。また、ポリスチレン系重合体が共重合体である場合、2種類以上のスチレン類単位を含む共重合体であってもよく、スチレン類単位とスチレン類単位以外の構造単位とを含む共重合体であってもよい。ただし、ポリスチレン系重合体がスチレン類単位とスチレン類単位以外の構造単位とを含む共重合体である場合、ポリスチレン系重合体中のスチレン類単位以外の構造単位の含有量は、本発明の効果を著しく損なわない程度に少なくすることが好ましい。具体的には、ポリスチレン系重合体におけるスチレン類単位の含有量は、通常80重量%以上、好ましくは83重量%以上、より好ましくは85重量%以上である。通常は、スチレン類単位の量をこのような範囲にすることで、製造される位相差層に所望のレターデーションを発現させることができる。

。

[0029] ポリスチレン系重合体は、1種類を単独で用いてもよく、2種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

[0030] ポリスチレン系重合体の重量平均分子量は、通常130,000以上、好ましくは140,000以上、より好ましくは150,000以上であり、通常300,000以下、好ましくは270,000以下、より好ましくは250,000以下である。このような重量平均分子量とすると、ポリスチレン系重合体のガラス転移温度を高めて、位相差層の耐熱性を安定して改善することができる。

[0031] ポリスチレン系重合体のガラス転移温度は、通常85℃以上、好ましくは90℃以上、より好ましくは95℃以上である。このようにポリスチレン系重合体のガラス転移温度を高めることにより、樹脂p1のガラス転移温度を効果的に高め、ひいては位相差層の耐熱性を安定して改善することができる。また、光学積層体の製造を安定して容易に行う観点から、ポリスチレン系重合体のガラス転移温度は、通常160℃以下、好ましくは155℃以下、より好ましくは150℃以下である。

[0032] シンジオタクチック構造を有するポリスチレン系重合体は、例えば、不活性炭化水素溶媒中又は溶媒の不存在下において、チタン化合物及び水とトリアルキルアルミニウムの縮合生成物を触媒として、スチレン類化合物を重合することにより製造しうる（特開昭62-187708号公報参照）。また、ポリ（ハロゲン化アルキルスチレン）については、例えば、特開平1-46912号公報に記載の方法により製造しうる。さらに、これらの水素化重合体は、例えば特開平1-178505号公報記載の方法により製造しうる。

。

[0033] 樹脂p1において、ポリフェニレンエーテルの含有量／ポリスチレン系重合体の含有量の重量比は、25／75より大きく、且つ35／65より小さい。ポリフェニレンエーテルの含有量／ポリスチレン系重合体の含有量の重量比は、好ましくは26／74以上、より好ましくは28／72以上であり

、好ましくは34／66以下、より好ましくは32／68以下である。

ポリフェニレンエーテルとポリスチレン系重合体との比率を前記範囲内とすることにより、薄く、且つ視野角補償性能が高い光学積層体を得ることができる。

[0034] 本発明の効果を著しく損なわない限り、樹脂p1は、ポリフェニレンエーテル及びポリスチレン系重合体以外の成分を含んでいてもよい。

例えば、樹脂p1は、上述したポリフェニレンエーテル及びポリスチレン系重合体以外にも重合体を含んでいてもよい。ポリフェニレンエーテル及びポリスチレン系重合体以外の重合体の量は、ポリフェニレンエーテル及びポリスチレン系重合体の合計量を100重量部として、15重量部以下が好ましく、10重量部以下がより好ましく、5重量部以下が特に好ましい。

[0035] また、例えば、樹脂p1は、配合剤を含んでいてもよい。配合剤の例を挙げると、層状結晶化合物；微粒子；酸化防止剤、熱安定剤、光安定剤、耐候安定剤、紫外線吸収剤、近赤外線吸収剤等の安定剤；可塑剤；染料及び顔料等の着色剤；帯電防止剤；などが挙げられる。また、配合剤は、1種類を用いてもよく、2種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

配合剤の量は、本発明の効果を著しく損なわない範囲で適宜定めうる。例えば位相差層の全光線透過率を85%以上に維持できる範囲である。

[0036] 上述した中でも、配合剤としては、可撓性及び耐候性を向上させることができる点で、微粒子及び紫外線吸収剤が好ましい。

微粒子としては、例えば、二酸化ケイ素、二酸化チタン、酸化マグネシウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、硫酸バリウム、硫酸ストロンチウムなどの無機粒子；ポリメチルアクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリロニトリル、セルロースアセテート、セルロースアセテートプロピオネートなどの有機粒子が挙げられる。中でも、有機粒子が好ましい。

[0037] 紫外線吸収剤としては、例えば、オキシベンゾフェノン系化合物、ベンゾトリアゾール系化合物、サリチル酸エステル系化合物、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤、ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤、アクリロニトリル系紫外

線吸収剤、トリアジン系化合物、ニッケル錯塩系化合物、無機粉体などが挙げられる。好適な紫外線吸収剤の例としては、2, 2'-メチレンビス(4-(1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル)-6-(2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)フェノール)、2-(2'-ヒドロキシ-3'-tert-ブチル-5'-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2, 4-ジ-tert-ブチル-6-(5-クロロベンゾトリアゾール-2-イル)フェノール、2, 2'-ジヒドロキシ-4, 4'-ジメトキシベンゾフェノン、2, 2', 4, 4'-テトラヒドロキシベンゾフェノンが挙げられ、特に好適なものとしては、2, 2'-メチレンビス(4-(1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル)-6-(2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)フェノールが挙げられる。

[0038] 樹脂 p 1 のガラス転移温度は、好ましくは 115℃以上、より好ましくは 118℃以上、さらにより好ましくは 120℃以上である。樹脂 p 1 はポリフェニレンエーテル及びポリスチレン系重合体を組み合わせて含むので、ポリスチレン系重合体のみを含む樹脂と比べて、ガラス転移温度を高めることができる。ガラス転移温度がこのように高いことにより、樹脂 p 1 の配向緩和を低減することができるので、耐熱性に優れた位相差層を実現できる。また、樹脂 p 1 のガラス転移温度の上限に特に制限は無いが、通常は 200℃以下である。

[0039] 樹脂 p 1 は、通常、ヘイズが小さい。これは、ポリフェニレンエーテル及びポリスチレン系重合体の分散性が優れるために、ポリフェニレンエーテルとポリスチレン系重合体とを容易に混練できるからである。具体的なヘイズの範囲は、位相差層に求められる透明性の程度に応じて設定してもよい。例えば厚み 1 mm での樹脂 p 1 のヘイズの値は、通常 10%以下、好ましくは 5%以下であり、理想的には 0%である。

[0040] [1-2. 樹脂 p 2]

樹脂 p 2 は、脂環式構造含有重合体を含む。

脂環式構造含有重合体は、重合体の繰り返し単位中に脂環式構造を有する

重合体であり、主鎖に脂環式構造を有する重合体、及び、側鎖に脂環式構造を有する重合体のいずれを用いてもよい。脂環式構造含有重合体は、1種類を単独で用いてもよく、2種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。中でも、機械的強度、耐熱性などの観点から、主鎖に脂環式構造を含有する重合体が好ましい。

[0041] 脂環式構造としては、例えば、飽和脂環式炭化水素（シクロアルカン）構造、不飽和脂環式炭化水素（シクロアルケン、シクロアルキン）構造などが挙げられる。中でも、機械強度、耐熱性などの観点から、シクロアルカン構造及びシクロアルケン構造が好ましく、中でもシクロアルカン構造が特に好ましい。

[0042] 脂環式構造を構成する炭素原子数は、一つの脂環式構造あたり、好ましくは4個以上、より好ましくは5個以上であり、好ましくは30個以下、より好ましくは20個以下、特に好ましくは15個以下の範囲であるときに、機械強度、耐熱性、及びフィルムの成形性が高度にバランスされ、好適である。

[0043] 脂環式構造含有重合体中の、脂環式構造を有する繰り返し単位の割合は、使用目的に応じて適宜選択してもよく、好ましくは30重量%以上、より好ましくは50重量%以上、さらに好ましくは70重量%以上、特に好ましくは90重量%以上である。脂環式構造含有重合体中の脂環式構造を有する繰り返し単位の割合がこの範囲にあると、位相差層P2の耐熱性の観点から好ましい。

[0044] 脂環式構造含有重合体の例としては、ノルボルネン系重合体、単環の環状オレフィン系重合体、環状共役ジエン系重合体、ビニル脂環式炭化水素系重合体、及び、これらの水素化物を挙げることができる。これらの中で、ノルボルネン系重合体は、透明性及び成形性が良好なため、好適である。

[0045] ノルボルネン系重合体の例としては、ノルボルネン構造を有する単量体の開環重合体、若しくはノルボルネン構造を有する単量体と他の単量体との開環共重合体、又はそれらの水素化物；ノルボルネン構造を有する単量体の付

加重合体、若しくはノルボルネン構造を有する単量体と他の単量体との付加共重合体、又はそれらの水素化物を挙げることができる。これらの中で、ノルボルネン構造を有する単量体の開環（共）重合体水素化物は、透明性、成形性、耐熱性、低吸湿性、寸法安定性、軽量性などの観点から、特に好適である。ここで「（共）重合体」とは、重合体及び共重合体のことをいう。

また、脂環式構造を有する重合体は、例えば特開 2002-321302 号公報に開示されている公知の重合体から選択しうる。

[0046] ノルボルネン系重合体の中でも、繰り返し単位として、X：ビスクロ[3, 3, 0]オクタン-2, 4-ジイル-エチレン構造と、Y：トリクロ[4, 3, 0, 1^{2, 5}]デカン-7, 9-ジイル-エチレン構造とを有し、これらの繰り返し単位の含有量が、ノルボルネン系重合体の繰り返し単位全体に対して90重量%以上であり、かつ、Xの含有割合とYの含有割合との比が、X：Yの重量比で100：0～40：60であるものが好ましい。このような樹脂を用いることにより、長期的に寸法変化がなく、光学特性の安定性に優れる光学積層体を得ることができる。

[0047] 繰り返し単位Xを与える単量体の例としては、ノルボルネン環に五員環が結合した構造を有するノルボルネン系単量体が挙げられる。そのような単量体のより具体的な例としては、トリクロ[4, 3, 0, 1^{2, 5}]デカー-3, 7-ジエン（慣用名：ジシクロペンタジエン）及びその誘導体（環に置換基を有するもの）、並びに7, 8-ベンゾトリシクロ[4, 3, 0, 1^{0, 5}]デカー-3-エン（慣用名：メタノテトラヒドロフルオレン）及びその誘導体が挙げられる。

繰り返し単位Yを与える単量体の例としては、テトラシクロ[4, 4, 0, 1^{2, 5}, 1^{7, 10}]デカー-3, 7-ジエン（慣用名：テトラシクロドデセン）及びその誘導体（環に置換基を有するもの）が挙げられる。

[0048] このようなノルボルネン系重合体を得る手段の例としては、具体的にはa) 繰り返し単位Xを与える単量体及び繰り返し単位Yを与える単量体との共重合において、単量体の仕込み比を適宜制御し、上記好ましいX：Yの重量

比の重合体を得、さらに必要に応じて重合体中の不飽和結合を水素化する方法、及びb) 繰り返し単位Xを有する重合体と、繰り返し単位Yを有する重合体とを、所望の割合で混合する方法が挙げられる。

[0049] 脂環式構造含有重合体のガラス転移温度は、好ましくは115℃以上、より好ましくは120℃以上である。また、脂環式構造含有重合体のガラス転移温度の上限に特に制限は無いが、好ましくは200℃以下である。このような範囲のガラス転移温度とすることにより、樹脂p2の配向緩和を低減することができるので、耐熱性に優れた位相差層を実現できる。

[0050] 脂環式構造含有重合体の分子量は、溶媒としてシクロヘキサン（重合体が溶解しない場合はトルエン）を用いたゲル・パーミエーション・クロマトグラフィー（以下、「GPC」と略す。）で測定したポリイソプレン又はポリスチレン換算の重量平均分子量（Mw）で、通常5,000～100,000、好ましくは8,000～80,000、より好ましくは10,000～50,000である。重量平均分子量がこのような範囲にあるときに、光学積層体の機械的強度及び成形加工性が高度にバランスされ好適である。

[0051] 脂環式構造含有重合体の分子量分布（重量平均分子量（Mw）／数平均分子量（Mn））は特に制限されないが、好ましくは1.0～10.0、より好ましくは1.0～4.0、さらにより好ましくは1.2～3.5の範囲である。

[0052] 脂環式構造含有重合体は、その分子量2,000以下の樹脂成分（すなわち、オリゴマー成分）の含有量が好ましくは5重量%以下、より好ましくは3重量%以下、さらにより好ましくは2重量%以下である。オリゴマー成分の量が多いと樹脂積層体を延伸する際に、表面に微細な凹凸が発生したり、厚さムラを生じたりして面精度が悪くなる。

[0053] オリゴマー成分の量を低減するためには、重合触媒や水素化触媒の選択、重合、水素化などの反応条件、樹脂を成形用材料としてペレット化する工程における温度条件、などを最適化すればよい。オリゴマーの成分量は、シクロヘキサン（重合体が溶解しない場合はトルエン）を用いたゲル・パーミエ

ーション・クロマトグラフィーによって測定することができる。

- [0054] 樹脂 p 2 は、本発明の効果を著しく損なわない限り、脂環式構造含有重合体以外にも任意成分を含んでいてもよい。任意成分の例としては、酸化防止剤、熱安定剤、光安定剤、紫外線吸収剤、帯電防止剤、分散剤、塩素捕捉剤、難燃剤、結晶化核剤、ブロッキング防止剤、防曇剤、離型剤、顔料、有機又は無機の充填材、中和剤、滑剤、分解剤、金属不活性化剤、汚染防止材、抗菌剤やその他の樹脂、及び熱可塑性エラストマーを挙げることができる。任意成分の添加量は、本発明の効果を損なわない範囲としうる。具体的には、任意成分の添加量は、脂環式構造含有重合体 100 重量部に対して、通常 0～5 重量部、好ましくは 0～3 重量部である。

- [0055] [1-3. 光学積層体の性質等]

本発明の光学積層体は、樹脂 p 1 からなる位相差層 P 1 と、樹脂 p 2 からなる位相差層 P 2 とを備える。このような、樹脂 p 1 及び p 2 からなる層であって位相差層としての性質を有する層は、樹脂 p 1 の層及び樹脂 p 2 の層のそれぞれを延伸してから貼合することにより得ることができる。具体的な製造方法は後述する。

- [0056] 位相差層 P 1 の N Z 係数 NZ_{p1} は、 $NZ_{p1} < 0$ である。樹脂 p 1 として上に述べた所定のものを用いることにより、 NZ_{p1} が当該範囲内である位相差層 P 1 を容易に得ることができる。 NZ_{p1} を当該範囲内とすることにより、所望の光学的性質を有する光学積層体を得ることができる。

一方位相差層 P 2 の N Z 係数 NZ_{p2} は、 $NZ_{p2} > 0.5$ としうる。

- [0057] 本発明の光学積層体は、その入射角 0° におけるレターデーション R_e と入射角 40° におけるレターデーション R_{40} とが $0.92 \leq R_{40}/R_e \leq 1.08$ の関係を満たす。当該関係を満たすことにより、良好な視野角補償性能を達成することができる。本発明の光学積層体は、樹脂 p 1 として上記所定のものを用いることにより、このような関係を満たしながら、且つ薄い光学積層体としうる。

- [0058] 位相差層 P 1 は、厚さが薄く、且つ厚み方向のレターデーション R_{th} (

P 1) が小さいものであることが、薄く且つ視野角補償性能が高い光学積層体を得る上で好ましい。具体的には、位相差層 P 1 の厚さは、好ましくは $15\ \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $12\ \mu\text{m}$ 以下である。厚さの下限は、特に限定されないが、例えば $5\ \mu\text{m}$ 以上とすることができる。

位相差層 P 1 の厚み方向のレターデーション $R_{th}(P1)$ は、好ましくは -50nm 以下、より好ましくは -60nm 以下である。 $R_{th}(P1)$ の下限は、特に限定されないが、例えば -200nm 以上とすることができる。

このような薄さ、及び小さい $R_{th}(P1)$ を有する位相差層 P 1 は、樹脂 p 1 として上に述べた所定のものを用いることにより容易に得ることができる。

一方位相差層 P 2 の厚みは、 $30\ \mu\text{m}$ 以下としうる。位相差層 P 2 の厚みの下限は、特に限定されないが、例えば $10\ \mu\text{m}$ 以上としうる。

[0059] 本発明の光学積層体においては、前記位相差層 P 1 の面内レターデーション $R_e(P1)$ 及び厚み方向レターデーション $R_{th}(P1)$ 、並びに前記位相差層 P 2 の面内レターデーション $R_e(P2)$ 及び厚み方向レターデーション $R_{th}(P2)$ が、下記式 (1) 及び式 (2) を満たすことが好ましい。

$$R_e(P1) + R_e(P2) \geq 100\text{nm} \quad \text{式 (1)}$$

$$-50\text{nm} \leq R_{th}(P1) + R_{th}(P2) \leq 50\text{nm} \quad \text{式 (2)}$$

位相差層 P 1 及び P 2 のレターデーションが式 (1) 及び式 (2) を満たすことにより、良好な視野角補償性能を達成することができる。本願においては、樹脂 p 1 及び樹脂 p 2 として上に述べた所定のものを用い、さらにこれらを別々に延伸してから貼合することにより、式 (1) 及び式 (2) を満たす光学積層体を容易に製造しうる。

[0060] 本発明の光学積層体全体の面内レターデーション R_e のバラツキは、好ましくは 10nm 以内、より好ましくは 5nm 以内、さらにより好ましくは 2nm 以内である。面内レターデーション R_e のバラツキを、前記範囲にする

ことにより、液晶表示装置用の位相差フィルムとして用いた場合に表示品質を良好なものにすることが可能になる。ここで、面内リターデーション R_e のバラツキは、光入射角 0° （入射光線と本発明の積層体表面が直交する状態）の時の正面リターデーションを光学積層体の幅方向に測定したとき（即ち、光学積層体の幅方向に平行な1本の線上の複数の点において測定を行ったとき）の、その正面リターデーション測定値の最大値と最小値との差である。

- [0061] 本発明の光学積層体は、面内方向の遅相軸のバラツキが $\pm 5^\circ$ 以内であることが好ましく、 $\pm 3^\circ$ 以内であることがより好ましく、 $\pm 1^\circ$ 以内であることがさらに好ましい。

面内方向の遅相軸のばらつきを上記範囲にすることにより、本発明の光学積層体を位相差フィルムとして、偏光板と貼り合わせて液晶表示装置に用いた際に、色むらや色ぬけのない良好な液晶表示を提供することができる。

遅相軸のバラツキは、遅相軸を数点測定したときの測定値の算術平均値に対する各測定値のばらつきとする。

- [0062] 本発明の光学積層体においては、位相差層 P 1 の遅相軸と、位相差層 P 2 の遅相軸との交差角が、好ましくは $0^\circ \pm 10^\circ$ 、より好ましくは $0^\circ \pm 5^\circ$ であることが好ましい。

遅相軸の交差角を上記範囲になるように積層することにより、光学積層体を液晶表示装置に組み込んだ際、光漏れを低減すると共に、視野角補償性能を良好なものにすることが可能になる。

- [0063] 本発明の光学積層体において、JIS K 7128-1 に準拠して測定される引裂き強度が好ましくは 2 N/mm 以上、さらに好ましくは 2.5 N/mm 以上である。こうすることにより、光学積層体が偏光板と貼りあわせる際に裂けないようにすることができ、歩留まりを向上できる。引裂き強度の上限は、特に限定されないが、例えば 50 N/mm 以下とする。

- [0064] 本発明の光学積層体は、容易に製造が可能で、複屈折の高度な補償が可能なので、視野角依存性に優れる位相差板として、またはこの光学積層体に偏

光分離層を積層して輝度向上フィルムとして、液晶表示装置、有機ＥＬ表示装置などの表示装置に広く応用可能である。

[0065] [１－４．光学積層体の製造方法]

本発明の光学積層体は、下記工程（ｉ）～（ｖ）を含む製造方法（以下、単に「本発明の製造方法」という）によって製造しうる。

工程（ｉ）：樹脂ｐ１と、（メタ）アクリル重合体を含む樹脂ｐ３とを共押し出しして、延伸前フィルムＰＦ（１）を得る工程。

工程（ｉｉ）：延伸前フィルムＰＦ（１）を延伸し、樹脂ｐ１からなる位相差層Ｐ１及び樹脂ｐ３からなる保護層Ｐ３を含む延伸複層フィルムＦ（１）を得る工程。

工程（ｉｉｉ）：脂環式構造含有重合体を含む樹脂ｐ２を押し出して、延伸前フィルムＰＦ（１１）を得る工程。

工程（ｉｖ）：延伸前フィルムＰＦ（１１）を延伸し、位相差層Ｐ２のフィルムＦ（１１）を得る工程。

工程（ｖ）：位相差層Ｐ１と位相差層Ｐ２とを貼合する工程。

[0066] 本発明の製造方法は、さらに、

工程（ｖｉ）：位相差層Ｐ１から保護層Ｐ３を剥離する工程。
を含みうる。

[0067] [１－５．樹脂ｐ３]

樹脂ｐ３は、（メタ）アクリル重合体を含む樹脂である。（メタ）アクリル重合体とは、（メタ）アクリル酸又は（メタ）アクリル酸誘導体の重合体を意味する。（メタ）アクリル重合体としては、例えば、アクリル酸、アクリル酸エステル、アクリルアミド、アクリロニトリル、メタクリル酸およびメタクリル酸エステルなどの単独重合体及び共重合体が挙げられる。（メタ）アクリル重合体は強度が高く硬いため、保護層Ｐ３によって位相差層Ｐ１を適切に保護できるので、延伸前フィルムＰＦ（１）を延伸する際の破断を防止できる。

[0068] （メタ）アクリル重合体としては、（メタ）アクリル酸エステルを重合し

て形成される構造単位を含む重合体が好ましい。(メタ)アクリル酸エステルとしては、例えば(メタ)アクリル酸のアルキルエステルが挙げられる。なかでも、(メタ)アクリル酸と炭素数1～15のアルカノール又はシクロアルカノールから誘導される構造のものが好ましく、炭素数1～8のアルカノールから誘導される構造のものがより好ましい。炭素数を前記のように小さくすることにより、光学積層体の破断時の伸びを大きくすることができる。

[0069] アクリル酸エステルの具体例としては、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸*n*-プロピル、アクリル酸*i*-プロピル、アクリル酸*n*-ブチル、アクリル酸*i*-ブチル、アクリル酸*sec*-ブチル、アクリル酸*tert*-ブチル、アクリル酸*n*-ヘキシル、アクリル酸シクロヘキシル、アクリル酸*n*-オクチル、アクリル酸2-エチルヘキシル、アクリル酸*n*-デシル、アクリル酸*n*-ドデシルなどが挙げられる。

[0070] また、メタクリル酸エステルの具体例としては、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸*n*-プロピル、メタクリル酸*i*-プロピル、メタクリル酸*n*-ブチル、メタクリル酸*i*-ブチル、メタクリル酸*sec*-ブチル、メタクリル酸*tert*-ブチル、メタクリル酸*n*-ヘキシル、メタクリル酸*n*-オクチル、メタクリル酸2-エチルヘキシル、メタクリル酸*n*-デシル、メタクリル酸*n*-ドデシルなどが挙げられる。

[0071] さらに、前記の(メタ)アクリル酸エステルは、本発明の効果を著しく損なわない範囲であれば、例えば水酸基、ハロゲン原子などの置換基を有していてもよい。そのような置換基を有する(メタ)アクリル酸エステルの例としては、アクリル酸2-ヒドロキシエチル、アクリル酸2-ヒドロキシプロピル、アクリル酸4-ヒドロキシブチル、メタクリル酸2-ヒドロキシエチル、メタクリル酸2-ヒドロキシプロピル、メタクリル酸4-ヒドロキシブチル、メタクリル酸3-クロロ-2-ヒドロキシプロピル、メタクリル酸グリシジルなどが挙げられる。これらは、1種類を単独で用いてもよく、2種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

[0072] また、(メタ)アクリル重合体は、(メタ)アクリル酸又は(メタ)アクリル酸誘導体のみの重合体であってもよく、(メタ)アクリル酸又は(メタ)アクリル酸誘導体とこれに共重合可能な単量体との共重合体でもよい。共重合可能な単量体としては、例えば、(メタ)アクリル酸エステル以外の α ， β -エチレン性不飽和カルボン酸エステル単量体、並びに、 α ， β -エチレン性不飽和カルボン酸単量体、アルケニル芳香族単量体、共役ジエン単量体、非共役ジエン単量体、カルボン酸不飽和アルコールエステル、およびオレフィン単量体などが挙げられる。これらは、1種類を単独で用いてもよく、2種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

[0073] (メタ)アクリル酸エステル以外の α ， β -エチレン性不飽和カルボン酸エステル単量体の具体例としては、フマル酸ジメチル、フマル酸ジエチル、マレイン酸ジメチル、マレイン酸ジエチル、イタコン酸ジメチルなどが挙げられる。

[0074] α ， β -エチレン性不飽和カルボン酸単量体は、モノカルボン酸、多価カルボン酸、多価カルボン酸の部分エステル及び多価カルボン酸無水物のいずれでもよい。その具体例としては、クロトン酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、マレイン酸モノエチル、フマル酸モノn-ブチル、無水マレイン酸、無水イタコン酸などが挙げられる。

[0075] アルケニル芳香族単量体の具体例としては、スチレン、 α -メチルスチレン、メチル α -メチルスチレン、ビニルトルエンおよびジビニルベンゼンなどが挙げられる。

[0076] 共役ジエン単量体の具体例としては、1，3-ブタジエン、2-メチルー1，3-ブタジエン、1，3-ペンタジエン、2，3-ジメチルー1，3-ブタジエン、2-クロルー1，3-ブタジエン、シクロペンタジエンなどが挙げられる。

[0077] 非共役ジエン単量体の具体例としては、1，4-ヘキサジエン、ジシクロペンタジエン、エチリデンノルボルネンなどが挙げられる。

[0078] カルボン酸不飽和アルコールエステル単量体の具体例としては、酢酸ビニ

ルなどが挙げられる。

[0079] オレフィン単量体の具体例としては、エチレン、プロピレン、ブテン、ペンテンなどが挙げられる。

[0080] (メタ) アクリル重合体が共重合可能な単量体を含む場合、当該(メタ) アクリル重合体における(メタ) アクリル酸又は(メタ) アクリル酸誘導体を重合して形成される構造単位の含有量は、好ましくは50重量%以上、より好ましくは85重量%以上、特に好ましくは90重量%以上である。

[0081] また、(メタ) アクリル重合体は、1種類を単独で用いてもよく、2種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

これらの(メタ) アクリル重合体のうち、ポリメタクリレートが好ましく、中でもポリメチルメタクリレートがより好ましい。

[0082] 樹脂p3は、ゴム粒子を含んでいてもよい。ゴム粒子を含むことにより、樹脂p3の可撓性を高め、耐衝撃性を向上させることができる。また、ゴム粒子によって保護層P3の表面に凹凸が形成され、当該保護層P3の表面における接触面積が減少するので、通常は、保護層P3の表面の滑り性を高めることができる。

[0083] ゴム粒子を形成するゴムとしては、例えば、アクリル酸エステル重合体ゴム、ブタジエンを主成分とする重合体ゴム、エチレン-酢酸ビニル共重合体ゴム等が挙げられる。アクリル酸エステル重合体ゴムとしては、例えば、ブチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート等を単量体単位の主成分とするものが挙げられる。これらの中でも、ブチルアクリレートを主成分としたアクリル酸エステル重合体ゴム及びブタジエンを主成分とする重合体ゴムが好ましい。

[0084] また、ゴム粒子には、2種類以上のゴムが含まれていてもよい。また、それらのゴムは、均一に混ぜ合わせられていてもよいが、層状になったものであってもよい。ゴムが層状になったゴム粒子の例としては、ブチルアクリレート等のアルキルアクリレートとスチレンとをグラフト化したゴム弾性成分からなるコアと、ポリメチルメタクリレート及びメチルメタクリレートの一

方又は両方とアルキルアクリレートとの共重合体からなる硬質樹脂層（シェル）とが、コア－シェル構造で層を形成している粒子が挙げられる。

[0085] ゴム粒子は、数平均粒子径が、 $0.05\mu\text{m}$ 以上であることが好ましく、 $0.1\mu\text{m}$ 以上であることがより好ましく、また、 $0.3\mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $0.25\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましい。数平均粒子径を前記範囲内とすることにより、保護層P3の表面に適度な凹凸を形成して、積層体の滑り性を向上させることができる。

[0086] ゴム粒子の量は、（メタ）アクリル重合体100重量部に対して、好ましくは5重量部以上であり、好ましくは50重量部以下である。ゴム粒子の量を前記範囲内とすることにより積層体の耐衝撃性を高めてハンドリング性を向上させることができる。

[0087] また、樹脂p3は、本発明の効果を著しく損なわない限り、（メタ）アクリル重合体及びゴム粒子以外の成分を含んでいてもよい。例えば、（メタ）アクリル重合体以外に他の重合体を含んでいてもよい。ただし、本発明の利点を顕著に発揮させる観点からは、樹脂p3において（メタ）アクリル重合体以外の重合体の量は少ないことが好ましい。（メタ）アクリル重合体以外の重合体の具体的な量は、例えば（メタ）アクリル重合体100重量部に対して、10重量部以下が好ましく、5重量部以下がより好ましく、3重量部以下が更に好ましい。中でも、全く含まないことが特に好ましい。

[0088] また、樹脂p3は、例えば配合剤などを含んでいてもよい。配合剤の例としては、樹脂p1が含まれていてもよい配合剤と同様の例が挙げられる。なお、配合剤は1種類を単独で用いてもよく、2種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。また、配合剤の量は、本発明の効果を著しく損なわない範囲で適宜定めることができる。

[0089] 樹脂p3のガラス転移温度は、通常 90°C 以上、好ましくは 95°C 以上、より好ましくは 100°C 以上であり、通常 145°C 以下、好ましくは 140°C 以下、より好ましくは 135°C 以下である。樹脂p3のガラス転移温度を前記範囲の下限値以上とすることにより樹脂ペレットを高温で乾燥する時の

ブロッキングを抑制できるので、水分の混入を防止でき、また、上限値以下にすることにより溶融押出で成形する際の温度を低くでき、フィルムに異物が混入することを防止できる。

[0090] [1-6. 工程(i) : 延伸前フィルムPF(1)]

延伸前フィルムPF(1)は、樹脂p1と樹脂p3とを共押し出しして得られるフィルムであり、通常、これらの樹脂の層を有する複層構造のフィルムである。延伸前フィルムPF(1)は、樹脂p1の層を2層以上備えていてもよいが、通常は1層だけを備える。

延伸前フィルムPF(1)における樹脂p1の層の厚みは、延伸後に所望のレターデーションが発現するように適切な厚みに設定しうる。延伸前フィルムPF(1)における樹脂p1の層の具体的な厚みは、十分なレターデーション及び機械的強度を得る観点からは、好ましくは10 μ m以上、より好ましくは20 μ m以上であり、柔軟性及びハンドリング性を良好にする観点からは、好ましくは200 μ m以下、より好ましくは100 μ m以下である。

[0091] 延伸前フィルムPF(1)は、樹脂p3の層を1層のみ備えていてもよいが、2層以上備えていてもよい。

[0092] また通常、延伸前フィルムPF(1)は、長尺のフィルムとして用意される。延伸前フィルムを長尺のフィルムとすることにより、それを延伸したフィルムF(1)、及び製品たる光学積層体も長尺のフィルムとして製造することができる。ここで、フィルムが「長尺」とは、その幅に対して、少なくとも5倍以上の長さを有するものをいい、好ましくは10倍若しくはそれ以上の長さを有し、具体的にはロール状に巻き取られて保管又は運搬される程度の長さを有するものをいう。幅に対する長さの倍率の上限は、特に限定されないが、通常5000倍以下としうる。長尺のフィルムは製造ラインにおいて、長手方向に連続的に搬送しながら製造工程を行なうことができる。このため、位相差フィルムを製造する場合に、各工程の一部または全部をインラインで行うことが可能であるので、製造を簡便且つ効率的に行なうことが

できる。

[0093] 延伸前フィルムPF (1) において、樹脂p1の層の厚みのばらつきは全面で $1\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。これにより、位相差フィルムの色調のばらつきを小さくできる。また、位相差フィルムの長期使用後の色調変化を均一にできるようになる。

[0094] 樹脂p1の層の厚みのばらつきを全面で $1\mu\text{m}$ 以下とするためには、例えば共押出成形法を用いる場合には、(1) 押出機内に目開きが $20\mu\text{m}$ 以下のポリマーフィルターを設ける；(2) ギャポンプを 5rpm 以上で回転させる；(3) ダイス周りに囲い手段を配置する；(4) エアギャップを 200mm 以下とする；(5) フィルムを冷却ロール上にキャストする際にエッジピニングを行う；および(6) 押出機として二軸押出機又はスクリュ形式がダブルフライト型の単軸押出機を用いる；を行うようにしてもよい。

[0095] 樹脂p1の層の厚みは、市販の接触式厚み計を用いて、フィルムの総厚を測定し、次いで厚み測定部分を切断し断面を光学顕微鏡で観察して、各層の厚み比を求めて、その比率より計算できる。また以上の操作をフィルムの長手方向及び幅方向において一定間隔毎に行い、厚みの平均値 T_{ave} およびばらつきを求めることができる。

ここで、厚みのばらつき(μm)は、 $T_{ave} - T_{min}$ 、及び $T_{max} - T_{ave}$ のうちの大きい方をいう。また、 T_{ave} は上記で測定した測定値の算術平均値を表し、 T_{max} は測定した厚み T の内の最大値を表し、 T_{min} は最小値を表す。

[0096] また、延伸前フィルムPF (1) 中の残留溶剤の含有量は少なくすることが好ましい。そのための手段としては、(1) 原料となる樹脂の残留溶剤を少なくする；(2) 延伸前フィルムを成形する前に樹脂を予備乾燥する；などの手段が挙げられる。予備乾燥は、例えば樹脂をペレットなどの形態にして、熱風乾燥機などで行われる。乾燥温度は 100°C 以上が好ましく、乾燥時間は2時間以上が好ましい。予備乾燥を行うことにより、延伸前フィルムに含まれる残留溶剤を低減させることができ、さらに押し出されたシート状

の樹脂の発泡を防ぐことができる。

[0097] 樹脂 p 1 と樹脂 p 3 との共押し出しの具体的な方法の例としては、例えば、共押出 T ダイ法、共押出インフレーション法、共押出ラミネーション法等が挙げられるが、なかでも共押出 T ダイ法が好ましい。また、共押出 T ダイ法にはフィードブロック方式およびマルチマニホールド方式があるが、厚さのばらつきを少なくできる点でマルチマニホールド方式が特に好ましい。

[0098] 共押出 T ダイ法を採用する場合、T ダイを有する押出機における樹脂の溶融温度は、樹脂 p 1 及び樹脂 p 3 のガラス転移温度よりも、80℃高い温度以上にすることが好ましく、100℃高い温度以上にすることがより好ましく、また、180℃高い温度以下にすることが好ましく、150℃高い温度以下にすることがより好ましい。押出機での溶融温度を前記範囲の下限值以上にすることにより樹脂の流動性を十分に高くでき、上限値以下とすることにより樹脂が劣化を防止できる。

[0099] 押出成形法ではダイスの開口部から押出されたシート状の溶融樹脂を冷却ドラムに密着させる。溶融樹脂を冷却ドラムに密着させる方法は、特に制限されず、例えば、エアナイフ方式、バキュームボックス方式、静電密着方式などが挙げられる。

冷却ドラムの数は特に制限されないが、通常は2本以上である。また、冷却ドラムの配置方法としては、例えば、直線型、Z型、L型などが挙げられるが特に制限されない。またダイスの開口部から押出された溶融樹脂の冷却ドラムへの通し方も特に制限されない。

[0100] 冷却ドラムの温度により、押出されたシート状の樹脂の冷却ドラムへの密着具合が変化する。冷却ドラムの温度を上げると密着はよくなるが、温度を上げすぎるとシート状の樹脂が冷却ドラムから剥がれずに、ドラムに巻きつく不具合が発生するおそれがある。そのため、冷却ドラムの温度は、好ましくはダイスから押し出されてドラムに接触する層の樹脂のガラス転移温度を T_g とすると、 $(T_g + 30)^\circ\text{C}$ 以下、さらに好ましくは $(T_g - 5)^\circ\text{C}$ ~ $(T_g - 45)^\circ\text{C}$ の範囲にする。そうすることにより滑りやキズなどの不具

合を防止することができる。

[0101] [1-7. 工程 (i i) : 延伸複層フィルム F (I)]

延伸前フィルム P F (I) を延伸することにより、樹脂 p 1 からなる位相差層 P 1 及び樹脂 p 3 からなる保護層 P 3 を含む延伸複層フィルム F (I) が得られる。比較的強度が低い位相差層 P 1 に接して、強度が高い保護層 P 3 が設けられているので、延伸による破断を生じることなく延伸を実行できる。また、位相差層 P 1 が保護層 P 3 で保護されるため、位相差層 P 1 と保護層 P 3 との境界においては位相差層 P 1 の成分がブリードアウトを生じることはない。したがって、インラインで光学積層体を安定的に製造できるので、長尺の光学積層体の効率的な製造が可能になる。

[0102] 延伸の操作としては、例えば、ロール間の周速の差を利用して長手方向に一軸延伸する方法（縦一軸延伸）；テンターを用いて幅方向に一軸延伸する方法（横一軸延伸）；縦一軸延伸と横一軸延伸とを順に行う方法（逐次二軸延伸）；延伸前フィルムの長手方向に対して斜め方向に延伸する方法（斜め延伸）；等を採用してもよい。

[0103] 延伸する際のフィルム温度は、樹脂 p 1 のガラス転移温度を T_g (°C) とすると、 $T_g - 20 \sim T_g + 20$ °C であることが好ましく、 $T_g - 5 \sim T_g + 5$ °C であることがより好ましい。また、延伸倍率は、例えば 1.5 ~ 8.0 倍としうる。延伸の回数は、1 回でもよく、2 回以上であってもよい。

[0104] また、延伸前フィルム P F (I) から延伸複層フィルム F (I) を製造する際には、上述した以外の工程を行ってもよい。

例えば、延伸される前に延伸前フィルム P F (I) に対して予熱処理を施してもよい。延伸前フィルムを加熱する手段としては、例えば、オープン型加熱装置、ラジエーション加熱装置、又は液体中に浸すことなどが挙げられる。中でもオープン型加熱装置が好ましい。予熱工程における加熱温度は、通常は延伸温度 - 40 °C 以上、好ましくは延伸温度 - 30 °C 以上であり、通常は延伸温度 + 20 °C 以下、好ましくは延伸温度 + 15 °C 以下である。なお延伸温度とは、加熱装置の設定温度を意味する。

[0105] また、例えば、得られた光学積層体に対して固定化処理を施してもよい。固定処理における温度は、通常は室温以上、好ましくは「延伸温度−4 0℃」以上であり、通常「延伸温度+3 0℃」以下、好ましくは「延伸温度+2 0℃」以下である。

さらに、必要に応じて、光学積層体の保護及び取り扱い性の向上のため、例えばマット層、ハードコート層、反射防止層、防汚層等の他のフィルムを貼り合せてもよい。

[0106] [1-8. 工程 (i i i) 及び (i v) : 延伸前フィルム P F (11) 及びフィルム F (11)]

工程 (i i i) では、樹脂 p 2 を押し出して、延伸前フィルム P F (11) を得る。押し出し温度は、樹脂 p 2 のガラス転移温度に応じて適宜選択され得る。延伸前フィルム P F (11) の厚さは、延伸後の位相差層 P 2 の厚さが所望の厚さとなるよう適宜調整し得る。延伸前フィルム P F (1) 同様延伸前フィルム P F (11) も、通常、長尺のフィルムとして用意される。

[0107] 工程 (i v) では、延伸前フィルム P F (11) を延伸し、位相差層 P 2 のフィルム F (11) を得る。延伸は、通常、一軸延伸により行ないうる。延伸の具体的な方法は特に制限はなく、工程 (i i) で挙げた方法と同様の方法を採用し得る。

[0108] 工程 (i v) における延伸温度は、樹脂 p 2 のガラス転移温度を T_g とすると、好ましくは ($T_g - 30^\circ\text{C}$) から ($T_g + 60^\circ\text{C}$) の間、より好ましくは ($T_g - 10^\circ\text{C}$) から ($T_g + 50^\circ\text{C}$) の温度範囲である。また、延伸倍率は、通常 1.01~30 倍、好ましくは 1.01~10 倍、より好ましくは 1.01~5 倍である。工程 (i v) における延伸条件は、得られる光学積層体が所望の位相差を有するように適宜調整しうる。

[0109] [1-9. 工程 (v)]

工程 (v) では、位相差層 P 1 と位相差層 P 2 とを貼合する。即ち、延伸複層フィルム F (1) とフィルム F (11) とを、位相差層 P 1 と位相差層 P 2 とが貼合するような態様で貼合する。従って、例えば延伸複層フィルム

F (I) の両面に保護層 P 3 が存在する場合には、それらのうち少なくとも一方を剥離してから貼合を行う。

[0110] 工程 (v) における貼合は、接着剤や粘着剤等の適宜な接着手段を用いて行いうる。接着剤又は粘着剤としては、例えば、アクリル系、シリコーン系、ポリエステル系、ポリウレタン系、ポリエーテル系、ゴム系等が挙げられる。これらの中でも、耐熱性や透明性等の観点から、アクリル系のものが好ましい。

[0111] 工程 (v) における貼合は、ロールトゥーロールで行いうる。即ち、長尺の延伸複層フィルム F (I) と、長尺のフィルム F (I I) とを、それぞれ繰り出し、接着剤又は粘着剤の塗布、貼合の操作を連続的に行き、長尺の貼合物を得ることができる。かかる態様の貼合により、効率的な製造を行いうる。

[0112] 工程 (v) における貼合は、延伸複合フィルム (I) 中の位相差層 P 1 の遅相軸と、位相差層 P 2 の遅相軸との交差角が、好ましくは $0^{\circ} \pm 10^{\circ}$ 、より好ましくは $0^{\circ} \pm 5^{\circ}$ となるように行う。

このような角度の貼合は、工程 (i i) 及び工程 (i v) の延伸において、長尺のフィルムの長手方向に対するそれぞれの遅相軸が所定方向となるよう延伸を行い、工程 (v) でロールトゥーロールの貼合を行うことにより達成しうる。但しこれには限られず、延伸複合フィルム F (I) とフィルム F (I I) とを、長手方向を揃えない角度で貼合して、遅相軸を揃えるよう製造を行ってもよい。

[0113] [1 - 1 0 . 工程 (v i)]

工程 (v i) では、位相差層 P 1 から保護層 P 3 を剥離する。工程 (v i) は、実行可能な任意の段階において行ないうる。例えば、工程 (i i) の終了後から、工程 (v) の終了後までの任意の段階において行いうる。または、本発明の光学積層体を、他の部材（偏光板等）と貼合した後に行うこともできる。前述のとおり、保護層 P 3 を設けることにより、破断を生じること無く良好な延伸を実行できるが、光学積層体の使用においては、保護層 P

3が不要である場合がある。その場合、工程（v i）を行うことにより、良好な延伸を実現しながら、且つ薄い光学積層体を得ることができる。

[0114] 本発明の製造方法により得られる光学積層体は、長尺の形状を有するものとする。このような光学積層体は、位相差層P 1として長尺の形状を有する層を含み、且つ位相差層P 2として長尺の形状を有する層を含むものとする。このような光学積層体は、延伸前フィルムPF（I）及び延伸前フィルムPF（II）を長尺のフィルムとして用意し、これらを延伸して延伸複層フィルムF（I）及びフィルムF（II）を長尺のフィルムとして得て、これらを工程（v）においてロールトゥーロールの貼合に用いることにより製造しうる。

[0115] 長尺の形状を有する光学積層体を製造する場合、かかる長尺の光学積層体において、位相差層P 1がその幅方向に遅相軸を有し、位相差層P 2もその幅方向に遅相軸を有することが好ましい。このような態様の光学積層体は、偏光板の視野角補償層として好ましく用いうる。

[0116] [2. 偏光板複合体]

本発明の偏光板複合体は、前記本発明の光学積層体と、偏光子とを備える。

偏光子としては、例えばポリビニルアルコールや部分ホルマール化ポリビニルアルコール等の従来に準じた適宜なビニルアルコール系ポリマーよりなるフィルムに、ヨウ素や二色性染料等よりなる二色性物質による染色処理、延伸処理、架橋処理等の適宜な処理を適宜な順序や方式で施したもので、自然光を入射させると直線偏光を透過する適宜なものを用いることができる。特に、光透過率や偏光度に優れるものが好ましい。偏光子の厚さは、5～80 μm が一般的であるが、これに限定されない。

[0117] 偏光子は、前記本発明の光学積層体の位相差層P 1側および位相差層P 2側のいずれに設けられていてもよいが、位相差層P 2側に設けられることが好ましい。偏光子は位相差層P 1または位相差層P 2上に直接接して設けられていてもよいが、他の層を介して設けられていてもよい。例えば、通常の

偏光板は、偏光子と、その片面又は両面に設けられた保護層とからなる構造を有するので、偏光子は、かかる保護層を介して、位相差層 P 1 または位相差層 P 2 上に設けられていてもよい。

[0118] 保護層の素材としては、適宜な透明フィルムを用いることができる。中でも、透明性や機械的強度、熱安定性や水分遮蔽性等に優れるポリマーからなるフィルム等が好ましく用いられる。そのポリマーとしては、トリアセチルセルロースの如きアセテート系樹脂やポリエステル系樹脂、ポリエーテルスルホン系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリイミド系樹脂、ポリオレフィン系樹脂、脂環式構造を有する重合体樹脂、アクリル系樹脂等があげられるが、中でも複屈折が小さい点で、アセテート系樹脂又は脂環式構造を有する重合体樹脂が好ましく、透明性、低吸湿性、寸法安定性、軽量性などの観点から、脂環式構造を有する重合体樹脂が特に好ましい。

保護層の厚さは、任意であるが一般には偏光板の薄型化などを目的に 500 μm 以下、好ましくは 5 ~ 300 μm 、特に好ましくは 5 ~ 150 μm である。

[0119] 偏光子又は偏光板は、接着剤又は粘着剤の層を介して、位相差層 P 2 上に貼合することにより設けうる。接着剤又は粘着剤としては、例えば、アクリル系、シリコン系、ポリエステル系、ポリウレタン系、ポリエーテル系、ゴム系等が挙げられる。これらの中でも、耐熱性や透明性等の観点から、アクリル系のものが好ましい。

[0120] 偏光板複合体において、光学積層体の遅相軸と偏光子の透過軸とが、平行若しくは直交となることが好ましい。このような偏光板複合体は、長手方向に対する遅相軸及び透過軸の向きが所望の状態となった長尺の光学積層体及び偏光板を調製し、これらをロールトゥーロールで貼り合わせるにより、効率的に製造しうる。

[0121] 本発明の偏光板複合体の厚さは、通常 100 ~ 700 μm 、好ましくは 200 ~ 600 μm である。

[0122] [3. 用途：液晶表示装置]

本発明の光学積層体及び本発明の偏光板複合体は、液晶表示装置の構成要素として好ましく用いうる。例えば、本発明の光学積層体を、液晶表示装置の液晶セルの一方又は両方の面側に設けることができる。具体的には、偏光板と液晶セルとの間に光学積層体を配置する態様；又は偏光板の液晶セルと反対側の面上に光学積層体を配置する態様が挙げられる。本発明の光学積層体及び偏光板積層体は、長尺のものである場合、適当な大きさに裁断してから液晶表示装置に組み込みうる。

本発明の液晶表示装置は、偏光板を液晶セルの片側又は両側に配置してなる透過型や反射型、あるいは透過・反射両用型等の従来に準じた適宜な構造を有するものとして形成することができる。液晶セルに使用する液晶モードとしては、TN (Twisted Nematic) 型、STN (Super Twisted Nematic) 型、HAN (Hybrid Alignment Nematic) 型、VA (Vertical Alignment)、MVA (Multiple Vertical Alignment) 型、IPS (In Plane Switching) 型、OCB (Optical Compensated Bend) 型、などが挙げられる。

- [0123] 好ましい例において、本発明の液晶表示装置は、入射側偏光子、液晶セル、出射側偏光子をこの順に備えるIPSモードの液晶表示装置であって、入射側偏光子および出射側偏光子の少なくとも一方と液晶セルの間に、前記本発明の光学積層体を備える。この例において、光学積層体において位相差層P1の遅相軸と位相差層P2の遅相軸との交差角が $0^{\circ} \pm 10^{\circ}$ であり、且つ光学積層体の位相差層P1が液晶セル側に配置されていることが、特に好ましい。このような構成を有することにより、位相差層と偏光子との接着性を高いものとできる。

実施例

- [0124] 以下、実施例を示して本発明について具体的に説明するが、本発明は以下に示す実施例に限定されるものではなく、本発明の特許請求の範囲及びその

均等の範囲を逸脱しない範囲において任意に変更して実施しうる。

また、以下の説明において、量を表す「%」及び「部」は、別に断らない限り重量基準である。

さらに、以下に説明する操作は、別に断らない限り、常温及び常圧の条件において行った。

[0125] [評価方法の説明]

(1) ガラス転移温度

J I S K 7 1 2 1 に基づいて示差走査熱量分析法 (D S C) を用いて 2 0 ° C / 分で昇温して測定した。

[0126] (2) フィルム又は積層体の厚さ

フィルム又は積層体の断面を光学顕微鏡で観察して測定した。積層体については各層毎に測定した。

[0127] (3) レターデーション及び N Z 係数

A X O M E T R I C S 社製「A x o S c a n」を用いて、測定波長 5 5 0 n m において測定した。

[0128] (4) コントラスト

タブレットデバイス (商品名「i P a d」、第 2 世代、アップル社製) の L C D パネルから偏光板、位相差フィルムを除去し、その代わりに評価する偏光板複層体を、光学用透明粘着シート (日東電工社製「L U C I A C S C S 9 6 2 1 T」) を介して貼合した。

装置を起動し、明表示、暗表示での輝度を、方位角 0 ~ 3 6 0 ° 、極角 0 ~ 8 0 ° の範囲で、それぞれ 5 ° 刻みで走査し、測定した。

各視野角での測定値について、明表示の輝度を暗表示の輝度で除したものを、その視野角でのコントラストとし、上記視野角走査範囲内で最低のものを、コントラストの指標とした。

[0129] (実施例 1)

(1-1. 樹脂 p 1 のペレット)

シンジオタクチックポリスチレン (出光興産社製「1 3 0 - Z C」、ガラ

ス転移温度 98℃、結晶化温度 140℃) 70 重量%とポリ (2, 6-ジメチルー 1, 4-フェニレンオキサイド) (アルドリッチ社カタログ No. 18242-7) 30 重量%とを 2 軸押出機で混練し、透明な樹脂 p 1 のペレットを得た。得られた樹脂 p 1 のガラス転移温度は 125℃であった。

[0130] (1-2. 延伸前フィルム PF (1))

二種二層の共押出成形用のフィルム成形装置を準備し、樹脂 p 1 のペレットを、ダブルフライト型のスクリーを備えた一方の一軸押出機に投入して、溶融させた。

[0131] 耐衝撃性ポリメチルメタクリレート樹脂 p 3 (住友化学社製「スミベックス HT 55 X」) のペレットをダブルフライト型のスクリーを備えたもう一方の一軸押出機に投入して、溶融させた。

[0132] 溶融された 290℃の樹脂 p 1 を目開き 10 μ m のリーフディスク形状のポリマーフィルターを通してマルチマニホールドダイ (ダイスリップの表面粗さ Ra : 0.1 μ m) の一方のマニホールドに、溶融された 260℃の樹脂 p 3 を目開き 10 μ m のリーフディスク形状のポリマーフィルターを通してもう一方のマニホールドに、それぞれ供給した。

[0133] 樹脂 p 1 および樹脂 p 3 を該マルチマニホールドダイから 280℃で同時に押し出しフィルム状に成形した。成形されたフィルム状溶融樹脂を表面温度 110℃に調整された冷却ロールにキャストし、次いで表面温度 50℃に調整された 2 本の冷却ロール間に通して、樹脂 p 1 からなる層 (厚さ 26 μ m) と樹脂 p 3 からなる層 (厚さ 65 μ m) とからなる、厚さ 91 μ m の延伸前フィルム PF (1) を得た。

[0134] (1-3. 延伸複層フィルム F (1))

得られた延伸前フィルム PF (1) を、樹脂 p 1 のガラス転移温度と等しい 125℃で、同時二軸延伸機 (東洋精機社製) を用いて MD 方向に 2.0 倍、TD 方向に 1.3 倍、同時二軸延伸し、樹脂 p 1 からなる位相差層 P 1 及び前記樹脂 p 3 からなる保護層 P 3 を含み、Re 60 nm、Rth - 90 nm の延伸複層フィルム F (1) を得た。位相差層 P 1 と保護層 P 3 とは剥

離可能であり、位相差層 P 1 の厚みは $10\ \mu\text{m}$ 、P 3 層の厚みは $25\ \mu\text{m}$ であった。

[0135] 得られたフィルム F (I) の一部を切り出し、これから、保護層 P 3 を剥離して試料を得た。この試料の、位相差層 P 1 の N Z 係数 NZ_{P1} 、面内レターデーション $Re(P1)$ 、及び厚み方向レターデーション $Rth(P1)$ を測定した。その結果、 $NZ_{P1} = -1.0$ 、 $Re(P1) = 60\text{nm}$ 、 $Rth(P1) = -90\text{nm}$ であった。

[0136] (1 - 4 . フィルム F (I I))

単層のフィルム成形装置を用意した。ノルボルネン系重合体 p 3 (日本ゼオン社製「ZEONOR 1420」、ガラス転移温度 140°C) のペレットを、フィルム成形装置のダブルフライト型のスクリーを備えた一軸押出機に投入して 260°C で溶融し、目開き $10\ \mu\text{m}$ のリーフディスク形状のポリマーフィルターを通して 260°C に温調されたダイ (ダイスリップの表面粗さ $Ra : 0.1\ \mu\text{m}$) でフィルム状に成形した。

[0137] 成形されたフィルム状溶融樹脂を表面温度 120°C に調整された冷却ロールにキャストし、次いで表面温度 50°C に調整された 2 本の冷却ロール間に通して、厚み $60\ \mu\text{m}$ の延伸前フィルム P F (I I) を得た。

[0138] 得られた延伸前フィルム P F (I I) を、ノルボルネン系樹脂のガラス転移温度と等しい 140°C で、同時二軸延伸機 (東洋精機社製) を用いて T D 方向に 3.0 倍で一軸延伸 (M D 方向の倍率は 1.0 倍) し、 $Re\ 90\text{nm}$ 、 $Rth\ 80\text{nm}$ 、厚み $20\ \mu\text{m}$ の位相差層 P 2 のフィルム F (I I) を得た。

得られたフィルム F (I I) を試料とし、位相差層 P 2 の面内レターデーション $Re(P2)$ 、及び厚み方向レターデーション $Rth(P2)$ を測定した。その結果、 $Re(P2) = 90\text{nm}$ 、 $Rth(P2) = 80\text{nm}$ であった。

[0139] (1 - 5 . 保護層付き光学積層体)

(1 - 3) で得た延伸複層フィルム F (I) の位相差層 P 1 側の面と、 (

1-4) で得たフィルム F (11) の一方の面とを貼合した。貼合は、光学用透明粘着シート (日東電工社製「LUCIACS CS9621T」) を介して、位相差層 P1 及び P2 の遅相軸が同じ方向となるように行った。これにより、(保護層 P3) / (位相差層 P1) / (粘着シート層) / (位相差層 P2) の層構成を有する、保護層付き光学積層体 F (111) を得た。積層体 F (111) の保護層 P3 は、位相差層 P1 から剥離可能な状態であった。

[0140] 得られた積層体 F (111) の一部を切り出し、これから、保護層 P3 を剥離し、(位相差層 P1) / (粘着シート層) / (位相差層 P2) の層構成を有する、本発明の光学積層体の試料を得た。この試料の、入射角 0° におけるレターデーション R_e と入射角 40° におけるレターデーション R_{40} とを測定したところ、 $R_e = 150 \text{ nm}$ 、 $R_{40} = 145 \text{ nm}$ であった。

[0141] さらに、当該試料を、 80°C のオープン中で 500 時間加温し、その後再び R_e を測定したところ、 149 nm であった。

[0142] (1-6. 偏光板複合体)

(1-5) で得た保護層付き光学積層体 F (111) の位相差層 P2 側の面と、偏光板 (サンリッツ社製、LLC2-5618) とを、貼合した。貼合は、光学用透明粘着シート (日東電工社製「LUCIACS CS9621T」) を介して、積層体 F (111) の遅相軸と偏光板の吸収軸とが直交するように行った。その後に、積層体 F (111) の保護層 P3 を剥離して、偏光板複合体を得た。偏光板複合体は、(位相差層 P1) / (粘着シート層) / (位相差層 P2) / (粘着シート) / (偏光板) の層構成を有し、これらのうち、(位相差層 P1) / (粘着シート層) / (位相差層 P2) の部分が、本発明の光学積層体を構成していた。

[0143] 得られた偏光板複合体について、前記の方法でコントラストを評価した。

[0144] (実施例 2)

下記の通りの変更を行った他は、実施例 1 と同一の操作を行い、偏光板複合体及びその構成要素を得て、評価した。

・（１－１）の樹脂 p 1 のペレットの製造で、シンジオタクチックポリスチレン及びポリ（２，６－ジメチルー１，４－フェニレンオキサイド）の添加量を、それぞれ 7 4 重量％及び 2 6 重量％に変更した。得られた樹脂 p 1 のガラス転移温度は 1 2 0℃であった。

・（１－３）の延伸複層フィルム F（１）の製造で、延伸温度を、樹脂 p 1 のガラス転移温度と等しい 1 2 0℃に変更した。さらに、（１－２）の延伸前フィルム P F（１）の製造で、樹脂 p 1 および樹脂 p 3 の押し出しの際の、樹脂 p 1 の厚みを調整した。当該調整により、実施例 1 で行ったのと同じ延伸倍率による延伸で、R e（P 1）及び R t h（P 1）の値を、実施例 1 と同じ値（6 0 n m 及び－9 0 n m）とした。位相差層 P 1 の厚みは 8 μ m であった。

[0145] （実施例 3）

下記の通りの変更を行った他は、実施例 1 と同一の操作を行い、偏光板複合体及びその構成要素を得て、評価した。

・（１－１）の樹脂 p 1 のペレットの製造で、シンジオタクチックポリスチレン及びポリ（２，６－ジメチルー１，４－フェニレンオキサイド）の添加量を、それぞれ 6 6 重量％及び 3 4 重量％に変更した。得られた樹脂 p 1 のガラス転移温度は 1 3 2℃であった。

・（１－３）の延伸複層フィルム F（１）の製造で、延伸温度を、樹脂 p 1 のガラス転移温度と等しい 1 3 2℃に変更した。さらに、（１－２）の延伸前フィルム P F（１）の製造で、樹脂 p 1 および樹脂 p 3 の押し出しの際の、樹脂 p 1 の厚みを調整した。当該調整により、実施例 1 で行ったのと同じ延伸倍率による延伸で、R e（P 1）及び R t h（P 1）の値を、実施例 1 と同じ値（6 0 n m 及び－9 0 n m）とした。位相差層 P 1 の厚みは 1 5 μ m であった。

[0146] （比較例 1）

下記の通りの変更を行った他は、実施例 1 と同一の操作を行い、偏光板複合体及びその構成要素を得て、評価した。

・（１－１）の樹脂 p 1 のペレットの製造で、シンジオタクチックポリスチレン及びポリ（２，６－ジメチルー１，４－フェニレンオキサイド）の添加量を、それぞれ１００重量％及び０重量％に変更した。得られた樹脂 p 1 のガラス転移温度は９８℃であった。

・（１－３）の延伸複層フィルム F（１）の製造で、延伸温度を、樹脂 p 1 のガラス転移温度と等しい９８℃に変更した。さらに、（１－２）の延伸前フィルム P F（１）の製造で、樹脂 p 1 および樹脂 p 3 の押し出しの際の、樹脂 p 1 の厚みを調整した。当該調整により、実施例 1 で行ったのと同じ延伸倍率による延伸で、 $R_e(P1)$ 及び $R_{th}(P1)$ の値を、実施例 1 と同じ値（６０nm 及び－９０nm）とした。位相差層 P 1 の厚みは５μm であった。

[0147] （比較例 2）

下記の通りの変更を行った他は、実施例 1 と同一の操作を行い、偏光板複合体及びその構成要素を得て、評価した。

・（１－１）の樹脂 p 1 のペレットの製造で、シンジオタクチックポリスチレン及びポリ（２，６－ジメチルー１，４－フェニレンオキサイド）の添加量を、それぞれ８５重量％及び１５重量％に変更した。得られた樹脂 p 1 のガラス転移温度は１１２℃であった。

・（１－３）の延伸複層フィルム F（１）の製造で、延伸温度を、樹脂 p 1 のガラス転移温度と等しい１１２℃に変更した。さらに、（１－２）の延伸前フィルム P F（１）の製造で、樹脂 p 1 および樹脂 p 3 の押し出しの際の、樹脂 p 1 の厚みを調整した。当該調整により、実施例 1 で行ったのと同じ延伸倍率による延伸で、 $R_e(P1)$ 及び $R_{th}(P1)$ の値を、実施例 1 と同じ値（６０nm 及び－９０nm）とした。位相差層 P 1 の厚みは７μm であった。

[0148] （比較例 3）

下記の通りの変更を行った他は、実施例 1 と同一の操作を行い、偏光板複合体及びその構成要素を得て、評価した。

・（１－１）の樹脂 p 1 のペレットの製造で、シンジオタクチックポリスチレン及びポリ（２，６－ジメチル－１，４－フェニレンオキサイド）の添加量を、それぞれ 62 重量％及び 38 重量％に変更した。得られた樹脂 p 1 のガラス転移温度は 138℃であった。

・（１－３）の延伸複層フィルム F（１）の製造で、延伸温度を、樹脂 p 1 のガラス転移温度と等しい 138℃に変更した。さらに、（１－２）の延伸前フィルム P F（１）の製造で、樹脂 p 1 および樹脂 p 3 の押し出しの際の、樹脂 p 1 の厚みを調整した。当該調整により、実施例 1 で行ったのと同じ延伸倍率による延伸で、R e（P 1）及び R t h（P 1）の値を、実施例 1 と同じ値（60 nm 及び－90 nm）とした。位相差層 P 1 の厚みは 20 μm であった。

[0149] 実施例及び比較例の評価結果を表 1 に示す。

[0150] [表1]

表 1

	PPE:SPS	p1の T _g (℃)	P1層 厚み(μm)	光学積層体 R _e (nm) 初期	光学積層体 R _e (nm) 80℃× 500時間後	コントラスト
実施例1	30:70	125	10	150	149	400
実施例2	26:74	120	8	150	147	396
実施例3	34:66	132	15	150	149	402
比較例1	0:100	98	5	150	130	200
比較例2	15:85	112	7	150	142	380
比較例3	38:62	138	20	150	149	410

[0151] [検討]

表 1 に示される結果から明らかな通り、実施例 1～3 においては、ポリフェニレンエーテル：シンジオタクチックポリスチレン系重合体の比率が本願発明の要件を満たさない比較例 1～3 に比べて、優れた評価結果が得られた。具体的には、厚さが薄く、80℃×500時間の処理による R e の低下が少なく、且つコントラストの良好な表示装置を構成し得た。

請求の範囲

- [請求項1] ポリフェニレンエーテル及びシンジオタクチック構造を有するポリスチレン系重合体を含む樹脂 p 1 からなる位相差層 P 1 と、
 脂環式構造含有重合体を含む樹脂 p 2 からなる位相差層 P 2 とを備える光学積層体であって、
 前記樹脂 p 1 において、前記ポリフェニレンエーテルの含有量／前記ポリスチレン系重合体の含有量の重量比が、 $25/75$ より大きく、 $35/65$ より小さく、
 前記位相差層 P 1 の N Z 係数 NZ_{P1} が、 $NZ_{P1} < 0$ であり、
 前記光学積層体の入射角 0° におけるレターデーション R_e と入射角 40° におけるレターデーション R_{40} とが $0.92 \leq R_{40}/R_e \leq 1.08$ の関係を満たす、光学積層体。
- [請求項2] 前記位相差層 P 1 の面内レターデーション R_e (P 1) 及び厚み方向レターデーション R_{th} (P 1)、並びに前記位相差層 P 2 の面内レターデーション R_e (P 2) 及び厚み方向レターデーション R_{th} (P 2) が、下記式 (1) 及び式 (2) :
- $$R_e(P1) + R_e(P2) \geq 100 \text{ nm} \quad \text{式 (1)}$$
- $$-50 \text{ nm} \leq R_{th}(P1) + R_{th}(P2) \leq 50 \text{ nm} \quad \text{式 (2)}$$
- を満たす、請求項 1 に記載の光学積層体。
- [請求項3] 前記位相差層 P 1 の厚さが $15 \mu\text{m}$ 以下であり、厚み方向のレターデーション R_{th} (P 1) が -50 nm 以下である、請求項 1 又は 2 に記載の光学積層体。
- [請求項4] 前記ポリフェニレンエーテルの重量平均分子量が $15,000 \sim 100,000$ であり、
 前記ポリスチレン系重合体の重量平均分子量が $130,000 \sim 300,000$ である、請求項 1 ～ 3 のいずれか 1 項に記載の光学積層体。

- [請求項5] 前記位相差層 P 1 の遅相軸と、前記位相差層 P 2 の遅相軸との交差角が、 $0^{\circ} \pm 10^{\circ}$ である、請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載の光学積層体。
- [請求項6] 請求項 1 ～ 5 のいずれか 1 項に記載の光学積層体と、偏光子とを備える、偏光板複合体。
- [請求項7] 前記光学積層体の遅相軸と、前記偏光子の吸収軸とが直交する、請求項 6 に記載の偏光板複合体。
- [請求項8] 請求項 6 又は 7 に記載の偏光板複合体と、液晶セルとを備える、液晶表示装置。
- [請求項9] 入射側偏光子、液晶セル、出射側偏光子をこの順に備えるインプレーンスイッチングモードの液晶表示装置であって、
前記液晶表示装置はさらに、前記入射側偏光子と前記液晶セルとの間の位置、前記出射側偏光子と前記液晶セルとの間の位置、またはこれらの両方の位置において、請求項 5 に記載の光学積層体を備え、
前記光学積層体は、前記位相差層 P 1 が前記液晶セル側に配置されている、インプレーンスイッチングモードの液晶表示装置。
- [請求項10] 請求項 1 ～ 5 のいずれか 1 項に記載の光学積層体の製造方法であって、
ポリフェニレンエーテル及びシンジオタクチック構造を有するポリスチレン系重合体を含み、前記ポリフェニレンエーテルの含有量／前記ポリスチレン系重合体の含有量の重量比が $25 / 75$ より大きく、且つ $35 / 65$ より小さい樹脂 p 1 と、(メタ)アクリル重合体を含む樹脂 p 3 とを共押し出しして、延伸前フィルム P F (1) を得る工程と、
前記延伸前フィルム P F (1) を延伸し、前記樹脂 p 1 からなる位相差層 P 1 及び前記樹脂 p 3 からなる保護層 P 3 を含む延伸複層フィルム F (1) を得る工程と、
脂環式構造含有重合体を含む樹脂 p 2 を押し出して、延伸前フィル

ム P F (I I) を得る工程と、

前記延伸前フィルム P F (I I) を延伸し、位相差層 P 2 のフィルム F (I I) を得る工程と、

前記位相差層 P 1 と前記位相差層 P 2 とを貼合する工程と
を有する製造方法。

[請求項11] 前記位相差層 P 1 から前記保護層 P 3 を剥離する工程をさらに含む、請求項 1 0 に記載の製造方法。

[請求項12] 得られる前記光学積層体が、長尺の形状を有する前記位相差層 P 1 及び長尺の形状を有する前記位相差層 P 2 を含む、長尺の形状を有し、

前記位相差層 P 1 は、その幅方向に遅相軸を有し、

前記位相差層 P 2 は、その幅方向に遅相軸を有する、請求項 1 0 又は 1 1 に記載の製造方法。

[請求項13] 請求項 1 2 に記載の製造方法で得られる長尺の光学積層体と、長尺の偏光子とをロールトゥーロールで貼合する工程を有する、長尺の偏光板複合体の製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/055643

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

G02B5/30(2006.01)i, B32B27/00(2006.01)i, B32B27/30(2006.01)i, G02F1/1335(2006.01)i, G02F1/13363(2006.01)i

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)

G02B5/30

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	JP 2007-232873 A (Teijin Ltd.), 13 September 2007 (13.09.2007), paragraphs [0001] to [0002], [0011] to [0017], [0022] to [0027], [0036] to [0042], [0053] to [0054], [0066] to [0067], [0074] to [0097] & US 2009/0231520 A1 & EP 1998196 A1 & WO 2007/100117 A1 & KR 10-2009-0004888 A & CN 101395502 A & TW 200804880 A	1-10, 12-13 11
Y A	JP 2011-113004 A (Nippon Zeon Co., Ltd.), 09 June 2011 (09.06.2011), paragraph [0027] (Family: none)	1-10, 12-13 11

☒ 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
01 May, 2014 (01.05.14)

Date of mailing of the international search report
13 May, 2014 (13.05.14)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/055643

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	WO 2010/035720 A1 (Nippon Zeon Co., Ltd.), 01 April 2010 (01.04.2010), paragraphs [0017] to [0019] & JP 4525865 B & JP 2010-191445 A & US 2011/0176093 A1 & KR 10-2011-0063496 A & CN 102165341 A	1-10, 12-13 11
Y A	WO 2012/090791 A1 (Nippon Zeon Co., Ltd.), 05 July 2012 (05.07.2012), paragraph [0002] & TW 201242770 A	1-10, 12-13 11
Y	JP 2010-217870 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 30 September 2010 (30.09.2010), paragraphs [0153] to [0166], [0182] to [0188] & CN 101813798 A & KR 10-2010-0096011 A	10, 12-13
P, A	JP 2013-190757 A (Nippon Zeon Co., Ltd.), 26 September 2013 (26.09.2013), paragraphs [0015] to [0036], [0067] (Family: none)	1-13

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. G02B5/30(2006.01)i, B32B27/00(2006.01)i, B32B27/30(2006.01)i, G02F1/1335(2006.01)i, G02F1/13363(2006.01)i

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（I P C））

Int.Cl. G02B5/30

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 4 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 4 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 4 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）

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
Y A	JP 2007-232873 A（帝人株式会社）2007.09.13, 【0001】－【0002】, 【0011】－【0017】, 【0022】－【0027】, 【0036】－【0042】, 【0053】 －【0054】, 【0066】－【0067】, 【0074】－【0097】 & US 2009/0231520 A1 & EP 1998196 A1 & WO 2007/100117 A1 & KR 10-2009-0004888 A & CN 101395502 A & TW 200804880 A	1-10, 12-13 11
Y A	JP 2011-113004 A（日本ゼオン株式会社）2011.06.09, 【0027】（フ ァミリーなし）	1-10, 12-13 11

☒ 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矛盾するものではなく、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

0 1 . 0 5 . 2 0 1 4

国際調査報告の発送日

1 3 . 0 5 . 2 0 1 4

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

後藤 亮治

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 2 2 9

2 0

9 6 1 0

C (続き) . 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
Y A	WO 2010/035720 A1 (日本ゼオン株式会社) 2010. 04. 01, [0017] — [0019] & JP 4525865 B & JP 2010-191445 A & US 2011/0176093 A1 & KR 10-2011-0063496 A & CN 102165341 A	1-10, 12-13 11
Y A	WO 2012/090791 A1 (日本ゼオン株式会社) 2012. 07. 05, [0002] & TW 201242770 A	1-10, 12-13 11
Y	JP 2010-217870 A (住友化学株式会社) 2010. 09. 30, 【0153】 — 【0166】, 【0182】 — 【0188】 & CN 101813798 A & KR 10-2010-0096011 A	10, 12-13
P, A	JP 2013-190757 A (日本ゼオン株式会社) 2013. 09. 26, 【0015】 — 【0036】, 【0067】 (ファミリーなし)	1-13