(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
2012 年 4 月 26 日(26.04.2012)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2012/053218 A1

(51) 国際特許分類:
B29C 55/04 (2006.01)　*G02F 1/13363* (2006.01)
B29C 65/08 (2006.01)　*B29L 7/00* (2006.01)
G02B 5/30 (2006.01)　*B29L 11/00* (2006.01)
G02F 1/1335 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2011/005887

(22) 国際出願日: 2011 年 10 月 20 日(20.10.2011)

(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 2010-236251 2010 年 10 月 21 日(21.10.2010) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): コニカミノルタオプト株式会社(KONICA MINOLTA OPTO, INC.) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町２９７０番地 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 木暮　翠 (KOGURE, Midori). 田中　武志 (TANAKA, Takeshi).

(74) 代理人: 鷲田　公一 (WASHIDA, Kimihito); 〒1600023 東京都新宿区西新宿１－２３－７　新宿ファーストウェスト８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, 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, IS, JP, KE, KG, KM, 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, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, 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.

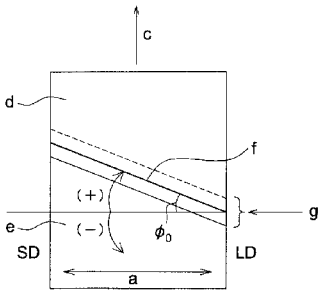
(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK,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

[続葉有]

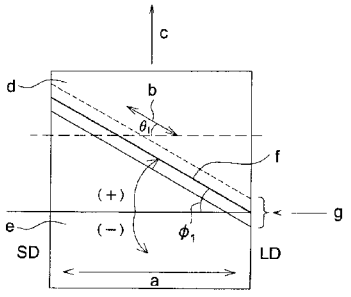
(54) **Title**: CONTINUOUS POLYMER FILM PRODUCTION METHOD, POLYMER FILM, λ/4 PLATE, POLARIZING PLATE, AND LIQUID CRYSTAL DISPLAY DEVICE

(54) 発明の名称 : 長尺状ポリマーフィルムの製造方法とポリマーフィルム、λ／４板、偏光板および液晶表示装置

[図3A]



[図3B]



(57) **Abstract**: Provided is a method for producing a continuous polymer film that involves: a step (1) for overlapping and bonding the rear end section of a preceding raw film and the front end section of a following raw film, along a bonding line; and a step (2) for supporting both end sections by means of a plurality of gripping tools and obliquely stretching the bonded raw film while conveying the bonded raw film in order to produce a polymer film. The oblique stretching is performed such that the angle formed between the in-plane slow axis of the polymer film obtained after oblique stretching and the width direction of the polymer film obtained after oblique stretching is within the range of 40-50°. In the bond between the rear end section of the preceding raw film and the front end section of the following raw film, the angle (φ1) between the bonding line for the polymer film and the width direction of the polymer film and the angle (θ１) between the in-plane slow axis of the polymer film and the width direction of the polymer film fulfill formula (I). Formula (I): $|\varphi 1-\theta 1| \leq 10°$.

(57) 要約: １）先行する原反フィルムの後端部と後行する原反フィルムの先端部とを接合ラインに沿って重ね合わせて接合する工程と、２）接合された前記原反フィルムを連続して搬送しながら、両端部を複数の把持具により担持して斜め延伸してポリマーフィルムとする工程と、を含む長尺状ポリマーフィルムの製造方法であって、斜め延伸は、斜め延伸後に得られるポリマーフィルムの面内遅相軸と斜め延伸後に得られるポリマーフィルムの幅手方向とのなす角度が４０～５０°の範囲内となるように行い、かつ先行する原反フィルムの後端部と後行する原反フィルムの先端部との接合は、ポリマーフィルムの接合ラインとポリマーフィルムの幅手方向とのなす角度φ１と、ポリマーフィルムの面内遅相軸と前記ポリマーフィルムの幅手方向とのなす角度θ１とが、下記式（Ｉ）を満たすように行う。 式（Ｉ）：｜φ１－θ１｜≦１０°

WO 2012/053218 A1

添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

明　細　書

発明の名称 ：

長尺状ポリマーフィルムの製造方法とポリマーフィルム、λ／４板、偏光板および液晶表示装置

技術分野

[0001] 本発明は、ツレ又は破断の発生を抑制し、連続的な斜め延伸を可能とする長尺状ポリマーフィルムの製造方法、及び当該製造方法で製造された長尺状ポリマーフィルムに関する。

背景技術

[0002] 光学用途に用いられる各種のポリマーフィルムは、従来、溶液又は溶融流延製膜法によって製造することが多い。溶液流延製膜法においては、基本的には、流延ダイを用いてドープを支持体上に流延させ、流延膜を形成した後、これを支持体から剥ぎ取った後、乾燥工程を経て、フィルムとする。そして、得られたフィルムは巻芯に巻き取ってフィルムロールとする。

[0003] また、当該製造方法において、フィルムの厚さ、平面性、機械的強度、光学特性等を改良するなどのために、一般には、フィルムを縦延伸又は横延伸する工程を設けている。

[0004] しかし、λ／４板として機能するポリマーフィルムを溶液流延製膜法によって製造する場合、後の偏光板化工程において、長尺方向に延伸した偏光子とλ／４板をロールｔｏロールで貼り合わせる場合には、λ／４板を斜め方向に延伸（以下、「斜め延伸」と称する。）することが必要となる。この斜め延伸を行う際、機械的強度や平面性がより優れたフィルムを作製するために、延伸速度を製膜速度と同じ速度にすることが適切でない場合がある。このため、溶液流延製膜ラインとは別の延伸ラインにより延伸する（以下、「オフライン延伸」と称する）ことが望ましい（例えば、特許文献１参照）。

[0005] 特許文献１に記載のように、オフライン延伸を効率よく行うためには、フィルムを連続して延伸することが好ましい。したがって、一つのフィルムロ

ールについてオフライン延伸を行う場合には、当該一つのフィルムロールから送り出された先行するフィルムの後端に、当該フィルムロールから送り出された後行のフィルムの先端を接合する必要がある。

[0006] このような場合の接合方法としては、従来、接合テープ、熱溶着、超音波溶着、レーザー溶着などを用いる方法が知られている（例えば、特許文献２～５参照）。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特開２００２－３１１２４０号公報

特許文献2：特開２００９－９０６５１号公報

特許文献3：特開２００９－９０６５０号公報

特許文献4：特開２００８－２３８６８２号公報

特許文献5：特開２００８－２３８６７８号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] しかしながら、従来の接合方法は、幅手（ＴＤ）方向への延伸には適応するが、斜め延伸には適応しないことが分かった。例えば、従来の接合テープを用いて接合し、斜め延伸すると、ツレが発生し、これが原因となって破断し易くなるという問題がある。これは、接合テープの粘着剤の延びやすさや機械的強度と、フィルムの延びやすさや機械強度とが異なるためにツレが発生するためと考えられる。

[0009] そこで、本発明者らは、接合テープ以外の接合方法を試みた。しかし、熱溶着により接合した場合にも、ツレの発生を十分には抑制できず、また、条件出しに時間かかって生産性も悪いことがわかった。また、熱溶着の場合、溶着部（接合ライン）が幅広になりやすく、また、溶着部の厚さがフィルム平均膜厚の２倍近く厚くなってしまい、これがツレの原因となり破断がおきてしまうことがわかった。

[0010] 本発明は、上記問題・状況にかんがみてなされたものであり、その解決課題は、ツレ又は破断の発生を抑制し、連続的な斜め延伸を可能とする長尺状ポリマーフィルムの製造方法を提供することである。また、ツレ又は破断の発生のない長尺状ポリマーフィルムを提供することである。なお、本発明における「ツレ」とは、ポリマーフィルムが、接合部の周辺において波型のトタン形状にうねる故障のことをいう。

課題を解決するための手段

[0011] 本発明に係る上記課題は、以下の手段により解決される。

［１］ （１）先行する原反フィルムの後端部と、後行する原反フィルムの先端部とを接合ラインに沿って重ね合わせて接合する工程と、（２）接合された前記原反フィルムを連続して搬送しながら、前記原反フィルムを加熱し、かつ両端部を複数の把持具により担持して斜め延伸してポリマーフィルムとする工程と、（３）前記ポリマーフィルムを連続して搬送しながら応力緩和のための熱処理を行う工程と、を有する長尺状ポリマーフィルムの製造方法であって、前記斜め延伸は、前記斜め延伸後に得られるポリマーフィルムの面内遅相軸と前記斜め延伸後に得られるポリマーフィルムの幅手方向とのなす角度が４０～５０°の範囲内であり、前記先行する原反フィルムの後端部と前記後行する原反フィルムの先端部との接合は、前記ポリマーフィルムの接合ラインと前記ポリマーフィルムの幅手方向とのなす角度ϕ_1と、前記ポリマーフィルムの面内遅相軸と前記ポリマーフィルムの幅手方向とのなす角度θ_1とが、下記式（Ｉ）を満たすように行う、長尺状ポリマーフィルムの製造方法。

式（Ｉ）：$|\phi_1-\theta_1| \leqq 10°$

［２］ 前記原反フィルムの接合ラインと前記原反フィルムの幅手方向とのなす角度ϕ_0を－１０°超２５°以下の範囲とする、［１］に記載の長尺状ポリマーフィルムの製造方法。

［３］ 前記先行する原反フィルムの後端部と前記後行する原反フィルムの先端部との接合部の接合ラインの幅が、５ｍｍ以下である、［１］または

［２］に記載の長尺状ポリマーフィルムの製造方法。

［４］　前記先行する原反フィルムの後端部と前記後行する原反フィルムの先端部との接合部の総厚が、前記原反フィルムの平均膜厚に対して１．１～１．５倍以内である、［１］～［３］のいずれかに記載の長尺状ポリマーフィルムの製造方法。

［５］　前記先行する原反フィルムの後端部と前記後行する原反フィルムの先端部とを、超音波振動を使った溶着により接合する、［１］～［４］のいずれかに記載の長尺状ポリマーフィルムの製造方法。

[0012] ［６］　［１］～［５］のいずれかに記載の長尺状ポリマーフィルムの製造方法で製造されたポリマーフィルムであって、２３℃、５５％ＲＨの環境下、波長５５０ｎｍで測定した面内位相差値Ｒｏ（５５０）が、１１０～１７０ｎｍの範囲内である、ポリマーフィルム。

［７］　［６］に記載のポリマーフィルムからなる、λ／４板。

［８］　偏光子と、前記偏光子の少なくとも一方の面に配置された［６］に記載のポリマーフィルムと、を含む、偏光板。

［９］　液晶セルと、前記液晶セルを挟持する一対の偏光板とを含む液晶表示装置であって、前記一対の偏光板のうち少なくとも一方は、偏光子と、前記偏光子の少なくとも一方の面に配置される［６］に記載のポリマーフィルムとを含む、液晶表示装置。

発明の効果

[0013] 本発明の上記手段により、ツレ又は破断の発生を抑制し、連続的な斜め延伸を可能とする長尺状ポリマーフィルムの製造方法を提供することができる。また、ツレ又は破断の発生のない長尺状ポリマーフィルムを提供することができる。

図面の簡単な説明

[0014] [図1]オフライン延伸装置の一例の概念図

[図2]テンター部における斜め延伸機の一例を示す概念図

[図3A]延伸前のフィルムの接合部の形状を示す概念図

[図3B]延伸後のフィルムの接合部の形状を示す概念図

発明を実施するための形態

[0015] 以下、本発明とその構成要素、及び本発明を実施するための形態・態様について詳細な説明をする。なお、本願において、「～」は、その前後に記載される数値を下限値及び上限値として含む意味で使用する。

[0016] （長尺状ポリマーフィルムの製造方法の概要）

本発明の長尺状ポリマーフィルムの製造方法は、（１）先行する原反フィルムの後端部と、後行する原反フィルムの先端部とを接合ラインに沿って重ね合わせて接合する工程（接合工程）と、（２）接合された前記原反フィルムを連続して搬送しながら、前記原反フィルムを加熱し、かつ両端部を複数の把持具により担持して斜め延伸してポリマーフィルムとする工程（延伸工程）と、（３）前記ポリマーフィルムを連続して搬送しながら応力緩和のための熱処理を行う工程（熱緩和工程）と、を有する長尺状ポリマーフィルムの製造方法であって、斜め延伸は、当該斜め延伸後に得られるポリマーフィルムの面内遅相軸と、斜め延伸後に得られるポリマーフィルムの幅手方向とのなす角度が４０～５０°の範囲内となるように行い、前記先行する原反フィルムの後端部と前記後行する原反フィルムの先端部との接合は、前記ポリマーフィルムの接合ラインと前記ポリマーフィルムの幅手方向とのなす角度ϕ_1と、前記ポリマーフィルムの面内遅相軸と前記ポリマーフィルムの幅手方向とのなす角度θ_1とが、下記式（Ｉ）を満たすように行うことを特徴とする。本発明において、ポリマーフィルムとは、原反フィルムを斜め延伸した後に得られるフィルムをいう。

[0017] 本発明において「接合ライン」とは、先行するフィルムの後端部の端を形成するライン（線）と後行するフィルムの先端部の端を形成するライン（線）との間に位置し、実際にテープや溶着により両者のフィルムが接合されているライン（線）をいう。

[0018] 本発明においては、ツレの発生防止、接合強度等の観点から、先行する原反フィルムの後端部と後行する原反フィルムの先端部との接合部の接合ライ

ンの幅が、５ｍｍ以内、好ましくは２ｍｍ以内であることが好ましい。

[0019] また、延伸時に発生する応力、ツレの発生防止等の観点から、先行する原反フィルムの後端部と後行する原反フィルムの先端部との接合部の総厚が、ポリマーフィルムの平均膜厚に対して１．１～１．５倍以内であることが好ましい。

[0020] さらに、先行する原反フィルムの後端部と後行する原反フィルムの先端部が、超音波振動を使った溶着により接合されていることが好ましい。

[0021] 本発明の長尺状ポリマーフィルムの製造方法においては、製膜ラインとは別の延伸ラインにより延伸する（以下、「オフライン延伸」と称する）ことを特徴とする。

[0022] 以下において、このオフライン延伸に用いるオフライン延伸装置の一例の全体図（図１）を参照して、当該長尺状ポリマーフィルムの製造方法の概要を説明する。

[0023] （オフライン延伸装置）

図１に示したオフライン延伸装置１は、ポリマーフィルムを延伸するものであり、フィルム供給部２とアキューム部（「アキュームレータ部」の略称とする。）４、テンター部５と、耳切装置６と、熱緩和部７と、冷却部８と、巻取部９とを備え、これらがフィルム搬送方向ｃに沿って順に配置されている。

[0024] フィルム供給部２には製膜設備で製造されたフィルムロール１１が備えられている。フィルムロール１１は原反フィルムを巻芯に巻き取ってロール状にしたものである。フィルム供給部２に備えられたフィルムロール１１から原反フィルムが送り出され、この原反フィルムがテンター部５で加熱されながら斜め方向に延伸されてポリマーフィルムとなる。得られたポリマーフィルムが熱緩和部７及び冷却部８を経て温度が下げられて巻取部９で巻き取られる。フィルム供給部２、テンター部５、熱緩和部７、冷却部８及び巻取部９には、フィルムの蛇行を抑制して正確に搬送させるための制御を行うＥＰＣ（エッジポジションコントローラ）が設けられている。ＥＰＣは図示して

いない。

[0025] 〈フィルム供給部〉

フィルム供給部２は、ターレット型のフィルム送出装置１３と、接合部３とを有する。フィルム送出装置１３は、両端部に取付軸１０が設けられたターレットアーム１２を有する。各取付軸１０にはフィルムロール１１が装着される。ターレットアーム１２は、１８０度回転し、一方の取付軸１０を送出位置（接合エリア３の側）に位置させ、他方の取付軸１０を巻芯交換位置に位置させる。送出位置にある取付軸１０に装着されたフィルムロール１１から原反フィルムが接合エリア３に送り出される。全ての原反フィルムが送り出されると、ターレットアーム１２が回転し、巻芯交換位置に位置した取付軸１０から空の巻芯が取り外されて新たなフィルムロールが装着される。

[0026] 〈接合エリア〉

接合エリア３では、テンター部５に連続した原反フィルムを供給するために、先行して送り出された原反フィルムの後端部と、後行して送り出された原反フィルムの先端部とを重ね合わせて、接合する。

[0027] 〈アキューム部〉

フィルム供給部２とテンター部５との間にはアキューム部（「アキュームレータ部」の略称とする。）４が配置されており、このアキューム部４は、原反フィルムの接合処理に必要な長さ分以上の原反フィルムのループを形成する。このため、原反フィルムの接合時には、テンター部５にはアキューム部４に収納されていた原反フィルムが送り出されるから、テンター部５を停止させることなく原反フィルムの接合処理を行うことができる。

[0028] 〈テンター部〉

テンター部５のテンターは、長尺状の原反フィルムを、オーブンによる加熱環境下で、その進行方向（フィルム幅方向の中点の移動方向）に対して斜め方向に拡幅する装置である。このテンターは、オーブンと、フィルムを搬送するための把持具が走行する左右で一対のレールと、当該レール上を走行する多数の把持具とを備えている。

[0029] 図２は、テンター部５における斜め延伸機の一例を示す概念図である。図２に示されるように、フィルムロールから繰り出された原反フィルムは、テンターの入口側ガイドロール１９－１で搬送され、テンター１４の入口部に順次供給される。供給された原反フィルムの両端を把持具で把持し、オーブン内にフィルムを導き、テンター１４の出口部で把持具からフィルムを開放する。把持具から開放されたフィルムは、テンターの出口側ガイドロール１９－２にて搬出され、巻芯に巻き取られる。一対のレールは、それぞれ無端状の連続軌道を有し、テンター１４の入口部の、ＬＤ側フィルム把持開始点１５－１とＳＤ側フィルム把持開始点１５－２とで原反フィルムを把持した後、テンター１４の出口部の、ＬＤ側フィルム把持終了点１６－１とＳＤ側フィルム把持終了点１６－２とで原反フィルムを開放する。原反フィルムの把持を解放した把持具は、ＬＤ側フィルム把持手段の軌跡１７－１、ＳＤ側フィルム把持手段の軌跡１７－２をそれぞれ描くように外側を走行して、順次テンター１４の入口部に戻されるようになっている。同図において、符号１８はフィルムの送り方向を示す。

[0030] なお、テンターのレール形状は、製造すべきポリマーフィルムに与える面内配向角、延伸倍率等に応じて、左右で非対称な形状となっており、手動で又は自動で微調整できるようになっている。

[0031] 本発明においては、原反フィルムを斜め延伸する際の延伸方向は、斜め延伸後に得られるポリマーフィルムの面内配向角θ_1が、斜め延伸後に得られるポリマーフィルムの幅手方向に対して好ましくは１０～８０°の範囲内、より好ましくは４０～５０°の範囲となるように設定できるようになっている。本発明において、テンターの把持具は、前後の把持具と一定間隔を保って、一定速度で走行するようになっている。

[0032] 原反フィルムの斜め方向の延伸倍率は、０．５～３倍とすることが好ましく、１．５～２．５倍とすることがより好ましい。延伸温度は、１４０～２１０℃程度としうる。

[0033] 把持具の走行速度は適宜選択できるが、通常、１０～１００ｍ／分である

。左右一対の把持具の走行速度の差は、走行速度の通常１％以下、好ましくは０．５％以下、より好ましくは０．１％以下である。これは、延伸工程出口でフィルムの左右に進行速度差があると、延伸工程出口におけるシワ、寄りが発生するため、左右の把持具の速度差は、実質的に同速度であることが求められるためである。一般的なテンター装置等では、チェーンを駆動するスプロケットの歯の周期、駆動モータの周波数等に応じ、秒以下のオーダーで発生する速度ムラがあり、しばしば数%のムラを生ずるが、これらは本発明で述べる速度差には該当しない。

[0034] また、本発明に用いられる斜め延伸テンターでは、各レール部及びレール連結部の位置を自由に設定できることが好ましく、したがって、任意の入り口幅及び出口幅を設定すると、これに応じた延伸倍率にすることができる。

[0035] 本発明に用いられる斜め延伸テンターにおいて、把持具の軌跡を規制するレールには、しばしば大きい屈曲率が求められる。急激な屈曲による把持具同士の干渉、あるいは局所的な応力集中を避ける目的から、屈曲部では把持具の軌跡が円弧を描くようにすることが望ましい。

[0036] 〈耳切装置〉

テンター部５で延伸されて得られるポリマーフィルムは、耳切装置６に送り出される。ポリマーフィルムは、耳切装置６によりその両側縁部が切り離され、切り離されたスリット状の側縁部である耳屑は、カットブロアで細かく小片にカットされる。カットされた耳屑小片は、風送装置によりクラッシャーに送られ、粉砕されてチップとなる。このチップはドープ調製用に再利用される。

[0037] 先行する原反フィルムと後行する原反フィルムとを接合テープにより接合した場合には、再利用するために耳屑からテープを除去する必要があるので手間がかかり好ましくない。熱溶着や超音波溶着により接合した場合には、接合した状態のまま、再利用することができる。耳切装置６によりその両側縁部が切り離されたポリマーフィルムは、熱緩和部７に送られる。

[0038] 〈熱緩和部〉

熱緩和部７には多数のローラが備えられており、ポリマーフィルムはローラにより熱緩和部７内を搬送される。熱緩和部７には、送風機から所望の温度の風が送り込まれてポリマーフィルムが熱処理される。このときの風の温度は、２０～２５０℃であることが好ましい。

[0039] 〈冷却部、巻取部〉

熱緩和後のポリマーフィルムは冷却部８に送られて３０℃以下に冷却された後、巻取部９に送られる。巻取部９の内部には、巻取ローラ、プレスローラが設けられている。巻取部９に送られたフィルムは、巻取ローラで巻き取られる。この際にプレスローラで押圧されて巻き取られる。

[0040] （延伸前後の接合部分フィルム形状）

本発明においては、先行する原反フィルムの後端部と後行する原反フィルムの先端部とを重ね合わせて接合し、接合された原反フィルムを連続して搬送しながら、原反フィルムを加熱し、かつ両端部を複数の把持具により担持して斜め延伸する。原反フィルムの斜め方向の延伸は、前述の通り、斜め延伸後に得られるポリマーフィルムの面内遅相軸（ｂ）と、斜め延伸後に得られるポリマーフィルムの幅手方向（ａ）とのなす角度が４０～５０°の範囲内となるように行うことが好ましい。そして、先行する原反フィルムの後端部と後行する原反フィルムの先端部との接合は、得られるポリマーフィルムの接合ラインとポリマーフィルムの幅手方向とのなす角度ϕ_1と、ポリマーフィルムの面内遅相軸と幅手方向とのなす角度θ_1とが、式（Ｉ）：$|\phi_1-\theta_1|\leqq 10°$を満たすように行うことを特徴とする。この特徴について、図３を参照して説明する。

[0041] 図３Ａは、延伸前のフィルムの接合部の形状を示す概念図であり；図３Ｂは、延伸後のフィルムの接合部の形状を示す概念図である。図３Ｂに示される、ポリマーフィルムの接合ライン（ｆ）とポリマーフィルムの幅手方向（ａ）とのなす角度ϕ_1と、ポリマーフィルムの面内遅相軸（ｂ）と幅手方向（ａ）とのなす角度θ_1とが上記式（Ｉ）を満たすように、先行する原反フィルムの後端部と後行する原反フィルムの先端部とを接合する。

[0042] 接合部（ｇ）の接合ライン（ｆ）とは、先行するフィルム（ｄ）の後端部の端を形成するライン（線）と、後行するフィルム（ｅ）の先端部の端を形成するライン（線）との間に位置し、実際にテープや溶着により両者のフィルムが接合されているライン（線）をいう。

[0043] 面内遅相軸（ｂ）は、ポリマーフィルムの面内における屈折率のうち最大となる方向に沿った軸をいう。面内遅相軸（ｂ）は、市販の自動複屈折率計（例えば、Ａｘｏｍｅｔｒｉｃｓ社製のＡｘｏＳｃａｎやＫＯＢＲＡ－２１ＡＤＨなど）によって、ポリマーフィルムの面内位相差値Ｒｏと同時に測定することができる。

[0044] 原反フィルムの接合ライン（ｆ）と原反フィルムの幅手方向（ａ）とのなす角度ϕ_0及びポリマーフィルムの接合ライン（ｆ）とポリマーフィルムの幅手方向（ａ）とのなす角度ϕ_1の符号は、幅手方向（ａ）を０°とし、図２に示される斜め延伸装置の小回り側（ＳＤ）が左、大回り側（ＬＤ）が右、フィルムの搬送方向が上になるようにフィルムを見た場合に、接合ライン（ｆ）が左上から右下に向いている場合をプラス、右上から左下に向いている場合をマイナスと定義する（以下、特に符号を記載しない場合はプラスを意味する）。

[0045] ポリマーフィルムの接合ライン（ｆ）とポリマーフィルムの幅手方向（ａ）とのなす角度（ϕ_1）は、ポリマーフィルムの面内遅相軸（ｂ）とポリマーフィルムの幅手方向（ａ）とのなす角度（θ_1）にもよるが、３０～６０°の範囲内であることが好ましく、３５～５５°の範囲内であることがより好ましく、θ_1と等しいことがさらに好ましい。

[0046] ϕ_1とθ_1が大きく異なっていると、延伸時にフィルムに加わる応力が、接合ラインと交差する方向に生じる。そのため、接合部でのフィルムの変形量と接合部周辺でのフィルムの変形量との差が大きくなり、接合部周辺でのフィルムの破断やツレを生じやすい。一方、ϕ_1がθ_1に近ければ、延伸時にフィルムに加わる応力が接合ラインと平行な方向に生じやすい。そのため、接合部でのフィルムの変形量と接合部周辺でのフィルムの変形量との差が小さ

くなり、接合部の周辺でフィルムの破断やフィルムのツレを抑制することができる。

[0047] ϕ_1がこのような角度になるように、延伸前の原反フィルムの接合ライン（ｆ）と原反フィルムの幅手方向（ａ）とのなす角度ϕ_0を調整して接合する。具体的には、原反フィルムの接合ライン（ｆ）と原反フィルムの幅手方向（ａ）とのなす角度ϕ_0は、$-10° < \phi_0 \leqq 25°$の範囲とすることが好ましい。

[0048] 本発明において、得られるポリマーフィルムの面内遅相軸（ｂ）とポリマーフィルムの幅手方向（ａ）とのなす角θ_1は、$40° \leqq \theta_1 \leqq 50°$を満たすことが好ましく、$44° \leqq \theta_1 \leqq 46°$を満たすことがより好ましい。

[0049] ポリマーフィルムの面内遅相軸（ｂ）とポリマーフィルムの幅手方向（ａ）とのなす角度θ_1は、自動複屈折率計ＫＯＢＲＡ－２１ＡＤＨ（王子計測機器（株）製）を用い、ポリマーフィルムの幅手方向（ａ）を０°に設定することで測定することができる。θ_1の符号は、図２に示す斜め延伸装置の小回り側（ＳＤ）が左、大回り側（ＬＤ）が右、フィルムの搬送方向が上になるようにフィルムを見た場合に、ポリマーフィルムの面内遅相軸（ｂ）が左上ー右下方向に存在している場合をプラス、右上ー左下方向に存在している場合をマイナスと定義する（以下、特に符号を記載しない場合はプラスを意味する）。

[0050] （接合方法）

本発明における接合方法としては、両面テープ、溶媒溶着、熱溶着、超音波溶着、レーザー溶着など、既存の手段を用いることができるが、本発明においては、超音波溶着によって接合することが好ましい。超音波振動を使った接合の場合、接合に要する時間も短時間ですむし、原反フィルムの接合ラインの幅を５ｍｍ以内にすることができ、原反フィルムの接合部の総厚を１．５倍以内にコントロールしやすい。

[0051] ＜超音波溶着＞

超音波溶着は、電気エネルギーを機械的振動エネルギーに変換し、また同

時に加圧をかけることによりフィルムの接合面に強力な摩擦熱を発生させ、樹脂を溶融し結合させる方法である。例えば、フィルムを振幅０．０５ｍｍ、毎秒２万～２万８千回で機械的に振動させて発熱させ、瞬時に溶着することができる。

[0052] 原反フィルムの接合部の接合ラインは、ツレの発生防止、接合強度等の観点から、幅が５ｍｍ以内、好ましくは２ｍｍ以内であることが好ましい。

[0053] 原反フィルムの接合部の総厚みは、接合する原反フィルムの平均膜厚に対して１．１～１．５倍以内となるように、加圧下で溶着することが、延伸時に発生する応力、ツレの発生防止等の観点から、好ましい。

[0054] 原反フィルムの接合ラインの幅手方向の端部は、その膜厚が原反フィルムの平均膜厚に対して１．３倍以下となるようにさらに加熱することが好ましい。このようにすることで、後のテンター部５において把持具（例えばクリップ）で把持して原反フィルムを延伸する際に、把持具にかかる力やフィルムの歪みを、接合ラインとその他の部分とでほぼ同一にでき、破断を避けることができる。

[0055] また、溶着時に溶融した樹脂が幅手端部からはみ出す場合があり、この部分は、後の工程においてひっかかりの原因になったり、テンター部５において端部を把持具で把持して延伸する際に把持具に接触し汚染してしまったりするため、除去することが好ましい。除去する方法としては、レーザーカッターを用いる方法、ロータリーダイカッタを用いる方法が挙げられるが、レーザーカッターで切断することが好ましい。

[0056] ＜熱溶着＞

熱溶着は、例えば（特開２００９－９０６５１号公報の図２に示すような）ヒートシーラ装置を用いて接合する。ヒートシーラ装置は、フィルムの搬送路を上下から挟むようにしてヒータで加熱して溶着させる。ヒータはフィルムを溶解はするが分解はしない所定の温度の範囲に温度制御される。上下のヒータがフィルムを重ね合わせた領域内に所定時間接触することによりフィルムの一部が溶けて接着し、先行する原反フィルムと後行する原反フィル

ムとを接合することができる。

[0057] ＜レーザー溶着＞

レーザー溶着装置は、原反フィルムの上方から接合ラインに沿って溶着レーザービームを照射する。溶着レーザービームは、先行する原反フィルムと後行する原反フィルムとを相互に溶かして接合させる。このとき、レーザー溶着装置は、先行する原反フィルムの上面（後行する原反フィルムの下面）を焦点位置として溶着レーザービームを照射する。溶着レーザービームが照射されると先行する原反フィルムの上面で発熱して溶融し、その熱が後行する原反フィルムの下面に伝わって溶融する。これにより、先行する原反フィルムと後行する原反フィルムとが接合ラインの部分で溶着（接合）される。

[0058] ＜テープ接合＞

テープで接合する場合は、延伸温度域でフィルムと略同じ延伸挙動を示す基材の両面に、粘着層が設けられている両面テープを用いるのが好ましい方法である。

[0059] （原反フィルム）

本発明に用いられる原反フィルムは、主として熱可塑性樹脂が用いられ、一般的な光学フィルム用樹脂としてのポリカーボネート、ポリエステル、ポリエーテルスルホン、ポリアリレート、ポリイミド、ポリオレフィン等を用いることができる。また、ポリエチレンテレフタレート、ポリイミド、ポリメチルメタクリレート、ポリスルホン、ポリエチレン、ポリ塩化ビエル、脂環式オレフィンポリマー、アクリル系樹脂、セルロースジアセテート、セルローストリアセテート、セルロースアセテートプロピオネート等を用いてもよい。特にセルロースジアセテート、セルローストリアセテート、セルロースアセテートプロピオネート、ラクトン環構造を有するアクリル系樹脂等がより好ましい。これらの原料は単独で用いても良いし、異なる熱可塑性樹脂を混合して用いてもよい。混合して使用する場合は、セルロースアセテートとアクリル系樹脂の混合がより好ましい。

[0060] 原反フィルムは、顔料や染料のごとき着色剤、蛍光増白剤、分散剤、熱安

定剤、光安定剤、紫外線吸収剤、帯電防止剤、酸化防止剤、滑剤、溶剤などの配合剤を適宜含んでもよい。

[0061] なお、原反フィルムは、単層フィルムであっても、多層フィルムであってもよい。

[0062] 原反フィルムとしては、主として未延伸ポリマーフィルムが用いられるが、既に縦延伸、横延伸、斜め延伸のいずれかを単独で、あるいは複数回実施したフィルムであっても構わない。

[0063] ＜セルロースエステル＞

本発明に用いられる原反フィルムは、種々の樹脂基材を用いて作製することができるが、セルロースエステルを含有する態様であることが好ましい。

[0064] 本発明に用いることができるセルロースエステルは、セルロース（ジ、トリ）アセテート、セルロースプロピオネート、セルロースブチレート、セルロースアセテートプロピオネート、セルロースアセテートブチレート、セルロースアセテートフタレート、及びセルロースフタレートから選ばれる少なくとも一種であることが好ましい。

[0065] これらの中で特に好ましいセルロースエステルは、セルローストリアセート、セルロースジアセテート、セルロースプロピオネート、セルロースブチレート、セルロースアセテートプロピオネートやセルロースアセテートブチレートが挙げられる。

[0066] 混合脂肪酸エステルの置換度として、炭素原子数２～４のアシル基を置換基として有している場合、アセチル基の置換度をＺとし、プロピオニル基又はブチリル基の置換度をＹとした時、下記式（ａ）及び（ｂ）を同時に満たすセルロースエステルであることが好ましい。

式（ａ）　２．０≦Ｚ＋Ｙ≦３．０

式（ｂ）　０≦Ｚ≦２．５

[0067] さらに、本発明で用いられるセルロースエステルは、重量平均分子量Ｍｗ／数平均分子量Ｍｎ比が１．５～５．５のものが好ましく用いられ、特に好ましくは２．０～５．０であり、さらに好ましくは２．５～５．０であり、

さらに好ましくは３．０～５．０のセルロースエステルが好ましく用いられる。

[0068] 本発明で用いられるセルロースエステルの原料セルロースは、木材パルプでも綿花リンターでもよく、木材パルプは針葉樹でも広葉樹でもよいが、針葉樹の方がより好ましい。製膜の際の剥離性の点からは綿花リンターが好ましく用いられる。これらから作られたセルロースエステルは適宜混合して、或いは単独で使用することができる。

[0069] 例えば、綿花リンター由来セルロースエステル：木材パルプ（針葉樹）由来セルロースエステル：木材パルプ（広葉樹）由来セルロースエステルの比率が１００：０：０、９０：１０：０、８５：１５：０、５０：５０：０、２０：８０：０、１０：９０：０、０：１００：０、０：０：１００、８０：１０：１０、８５：０：１５、４０：３０：３０で用いることができる。

[0070] 本発明において、セルロースエステルは、２０ｍｌの純水（電気伝導度０．１μＳ／ｃｍ以下、ｐＨ６．８）に１ｇ投入し、２５℃、１ｈｒ、窒素雰囲気下にて攪拌した時のｐＨが６～７、電気伝導度が１～１００μＳ／ｃｍであることが好ましい。

[0071] なお、本発明に用いられる原反フィルムは、本発明の効果を害しない限りにおいて、上記セルロースアセテートと、それ以外の熱可塑性樹脂とを含んでもよい。混合される熱可塑性樹脂成分は、セルロースエステルと相溶性に優れるものが好ましく、ポリマーフィルムにした時の透過率が８０％以上、更に好ましくは９０％以上、更に好ましくは９２％以上であることが好ましい。

[0072] 熱可塑性樹脂としては、一般的汎用樹脂としては、ポリエチレン（ＰＥ）、高密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、ポリプロピレン（ＰＰ）、ポリ塩化ビニル（ＰＶＣ）、ポリ塩化ビニリデン、ポリスチレン（ＰＳ）、ポリ酢酸ビニル（ＰＶＡｃ）、テフロン（登録商標）（ポリテトラフルオロエチレン、ＰＴＦＥ）、ＡＢＳ樹脂（アクリロニトリルブタジエンスチレン樹脂）、ＡＳ樹脂、アクリル樹脂（ＰＭＭＡ）等を用い

ることができる。

[0073] また、強度や壊れにくさを特に要求される場合、ポリアミド（ＰＡ）、ナイロン、ポリアセタール（ＰＯＭ）、ポリカーボネート（ＰＣ）、変性ポリフェニレンエーテル（ｍ－ＰＰＥ、変性ＰＰＥ、ＰＰＯ）、ポリブチレンテレフタレート（ＰＢＴ）、ポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）、グラスファイバー強化ポリエチレンテレフタレート（ＧＦ－ＰＥＴ）、環状ポリオレフィン（ＣＯＰ）等を用いることができる。

[0074] さらに、高い熱変形温度と長期使用できる特性を要求される場合は、ポリフェニレンスルファイド（ＰＰＳ）、ポリテトラフロロエチレン（ＰＴＦＥ）、ポリスルホン、ポリエーテルサルフォン、非晶ポリアリレート、液晶ポリマー、ポリエーテルエーテルケトン、熱可塑性ポリイミド（ＰＩ）、ポリアミドイミド（ＰＡＩ）等を用いることができる。

[0075] なお、本発明の用途にそって樹脂の種類、分子量の組み合わせを行うことが可能である。

[0076] また、工業的にはセルロースエステルは硫酸を触媒として合成されているが、この硫酸は完全には除去されておらず、残留する硫酸が溶融製膜時に各種の分解反応を引き起こし、得られるセルロースエステルフィルムの品質に影響を与えるため、本発明に用いられるセルロースエステル中の残留硫酸含有量は、硫黄元素換算で０．１～４０ｐｐｍの範囲であることが好ましい。これらは塩の形で含有していると考えられる。残留硫酸含有量が４０ｐｐｍを超えると熱溶融時のダイリップ部の付着物が増加するため好ましくない。また、熱延伸時や熱延伸後でのスリッティングの際に破断しやすくなるため好ましくない。残留硫酸含有量は、少ない方が好ましいが、０．１未満とするにはセルロースエステルの洗浄工程の負担が大きくなり過ぎるため好ましくないだけでなく、逆に破断しやすくなることがあり好ましくない。これは洗浄回数が増えることが樹脂に影響を与えているのかもしれないがよく分かっていない。残留硫酸含有量は、更に０．１～３０ｐｐｍの範囲が好ましい。残留硫酸含有量は、同様にＡＳＴＭ－Ｄ８１７－９６により測定すること

ができる。

[0077] また、その他（酢酸等）の残留酸を含めたトータル残留酸量は１０００ｐｐｍ以下が好ましく、５００ｐｐｍ以下が更に好ましく、１００ｐｐｍ以下がより好ましい。

[0078] セルロースエステルの洗浄は、水に加えて、メタノール、エタノールのような貧溶媒、或いは結果として貧溶媒であれば貧溶媒と良溶媒の混合溶媒を用いることができ、残留酸以外の無機物、低分子の有機不純物を除去することができる。

[0079] また、セルロースエステルの耐熱性、機械物性、光学物性等を向上させるため、セルロースエステルの良溶媒に溶解後、貧溶媒中に再沈殿させ、セルロースエステルの低分子量成分、その他不純物を除去することができる。更に、セルロースエステルの再沈殿処理の後、別のポリマー或いは低分子化合物を添加してもよい。

[0080] また、本発明で用いられるセルロースエステルはフィルムにした時の輝点異物が少ないものであることが好ましい。輝点異物とは、二枚の偏光板を直交に配置し（クロスニコル）、この間にセルロースエステルフィルムを配置して、一方の面から光源の光を当てて、もう一方の面からセルロースエステルフィルムを観察した時に、光源の光が漏れて見える点のことである。このとき評価に用いる偏光板は輝点異物がない保護フィルムで構成されたものであることが望ましく、偏光子の保護にガラス板を使用したものが好ましく用いられる。輝点異物はセルロースエステルに含まれる未酢化もしくは低酢化度のセルロースがその原因の１つと考えられ、輝点異物の少ないセルロースエステルを用いることと、溶融したセルロースエステルもしくはセルロースエステル溶液を濾過すること、或いはセルロースエステルの合成後期の過程や沈殿物を得る過程の少なくともいずれかにおいて、一度溶液状態として同様に濾過工程を経由して輝点異物を除去することもできる。溶融樹脂は粘度が高いため、後者の方法のほうが効率がよい。

[0081] 本発明に用いられる原反フィルムは、後述するセルロースエステル以外の

高分子成分をさらに含んでいてもよい。

[0082] ＜ポリマー又はオリゴマー＞

本発明に用いられる原反フィルムは、セルロースエステルと、カルボキシル基、ヒドロキシル基、アミノ基、アミド基、及びスルホン酸基から選ばれる置換基を有し、かつ重量平均分子量が５００～２００，０００の範囲内であるビニル系化合物のポリマー又はオリゴマーとを含有することも好ましい。当該セルロースエステルと、当該ポリマー又はオリゴマーとの含有量の質量比が、９５：５～５０：５０の範囲内であることが好ましい。

[0083] 以下において、本発明に用いられるポリマー又はオリゴマーについて説明する。

[0084] 前記カルボキシル基はｰＣＯＯｰの構造を有する基である。アミノ基はｰＮＲ１（Ｒ２）の構造を有する基であり、Ｒ１及びＲ２は、各々水素原子、アルキル基、フェニル基等の置換基を表す。アミド基はｰＮＨＣＯｰの構造を有する基であり、アルキル基、フェニル基等の置換基が連結していても良い。

[0085] 本発明に用いられる前記ポリマー及びオリゴマーとしては、例えば、下記のアクリル系ポリマー及びオリゴマー等が挙げられる。

[0086] これらの化合物は、セルロースエステルに対し５～５０質量%の範囲内で使用し、また相溶性に優れるものが好ましく、フィルムにしたときの全可視域（４００ｎｍ～８００ｎｍ）に渡り透過率が８０%以上、好ましくは９０%以上、さらに好ましくは９２%以上が得られるようにする。

[0087] ＜アクリル系ポリマー及びオリゴマー＞

本発明に用いられるアクリル系ポリマー及びオリゴマーとしては、特に構造が限定されるものではないが、エチレン性不飽和モノマーを重合して得られた重量平均分子量が５００以上２００，０００以下である重合体であることが好ましい。

[0088] 本発明に用いられるアクリル系ポリマー及びオリゴマーは、単一のモノマーから構成されていても複数種のモノマーから構成されていてもかまわない

。モノマーはアクリル酸エステルもしくはメタクリル酸エステルから選択されることが好ましいが、作製するフィルムの位相差（リターデーション）特性、波長分散特性、耐熱性に応じて適宜他のモノマー、例えば無水マレイン酸、スチレン等を含んでいてもかまわない。

[0089] 以下、本発明に用いられるアクリル系ポリマー及びオリゴマーをポリマーＸとして説明する。

[0090] ＜ポリマーＸ＞

本発明に用いられるポリマーＸは分子内に芳香環と極性基を有しないエチレン性不飽和モノマーＸａと分子内に芳香環を有せず、極性基を有するエチレン性不飽和モノマーＸｂとを共重合して得られた重量平均分子量５００～２００，０００の下記一般式（１）で表されるポリマーであることが好ましい。更に３０℃下にて固体であるか、又はガラス転移温度が３５℃以上であることが好ましい。

[0091] 重量平均分子量は、５００～２００，０００であるとセルロースエステルとの相溶性と透明性に優れる。

[0092] 一般式（１）：－［Ｘａ］ｍ－［Ｘｂ］ｎ－

（ｍ及びｎは、モル組成比を表し、ｍ＋ｎ＝１００である）

本発明に用いられるポリマーＸを構成するモノマー単位としてのモノマーを下記に挙げるがこれに限定されない。

[0093] 分子内に芳香環と極性基を有しないエチレン性不飽和モノマーＸａは、例えば、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸プロピル（ｉ－、ｎ－）、アクリル酸ブチル（ｎ－、ｉ－、ｓ－、ｔ－）、アクリル酸ペンチル（ｎ－、ｉ－、ｓ－）、アクリル酸ヘキシル（ｎ－、ｉ－）、アクリル酸ヘプチル（ｎ－、ｉ－）、アクリル酸オクチル（ｎ－、ｉ－）、アクリル酸ノニル（ｎ－、ｉ－）、アクリル酸ミリスチル（ｎ－、ｉ－）、アクリル酸（２－エチルヘキシル）、アクリル酸（ε－カプロラクトン）、アクリル酸（２－ヒドロキシエチル）、アクリル酸（２－エトキシエチル）等、又は上記アクリル酸エステルをメタクリル酸エステルに変えたものを挙げることが

できる。中でも、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸プロピル（ｉ－、ｎ－）であることが好ましい。

[0094] 分子内に芳香環を有せず、極性基を有するエチレン性不飽和モノマーＸｂは、ヒドロキシル基（水酸基）を有するモノマー単位として、アクリル酸又はメタクリル酸エステルが好ましく、例えば、（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４－ヒドロキシブチル、（メタ）アクリル酸６－ヒドロキシヘキシル、（メタ）アクリル酸８－ヒドロキシオクチル、（メタ）アクリル酸１０－ヒドロキシデシル、（メタ）アクリル酸１２－ヒドロキシラウリルや（４－ヒドロキシメチルシクロヘキシル）－メチルアクリレートなどのヒドロキシル基含有モノマー；（メタ）アクリル酸、カルボキシエチル（メタ）アクリレート、カルボキシペンチル（メタ）アクリレート、イタコン酸、マレイン酸、フマル酸、クロトン酸などのカルボキシル基含有モノマー；無水マレイン酸、無水イタコン酸などの酸無水物基含有モノマー；アクリル酸のカプロラクトン付加物；スチレンスルホン酸やアリルスルホン酸、２－（メタ）アクリルアミド－２－メチルプロパンスルホン酸、（メタ）アクリルアミドプロパンスルホン酸、スルホプロピル（メタ）アクリレート、（メタ）アクリロイルオキシナフタレンスルホン酸などのスルホン酸基含有モノマー；２－ヒドロキシエチルアクリロイルホスフェートなどの燐酸基含有モノマーなどがあげられる。

[0095] また、（メタ）アクリルアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチル（メタ）アクリルアミド、Ｎ－ブチル（メタ）アクリルアミドやＮ－メチロール（メタ）アクリルアミド、Ｎ－メチロールプロパン（メタ）アクリルアミドなどの（Ｎ－置換）アミド系モノマー；（メタ）アクリル酸アミノエチル、（メタ）アクリル酸Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノエチル、（メタ）アクリル酸ｔ－ブチルアミノエチルなどの（メタ）アクリル酸アルキルアミノアルキル系モノマー；（メタ）アクリル酸メトキシエチル、（メタ）アクリル酸エトキシエチルなどの（

メタ）アクリル酸アルコキシアルキル系モノマー；Ｎ－（メタ）アクリロイルオキシメチレンスクシンイミドやＮ－（メタ）アクリロイル－６－オキシヘキサメチレンスクシンイミド、Ｎ－（メタ）アクリロイル－８－オキシオクタメチレンスクシンイミド、Ｎ－アクリロイルモルホリンなどのスクシンイミド系モノマーなども改質目的のモノマー例としてあげられる。

[0096] さらに、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、Ｎ－ビニルピロリドン、メチルビニルピロリドン、ビニルピリジン、ビニルピペリドン、ビニルピリミジン、ビニルピペラジン、ビニルピラジン、ビニルピロール、ビニルイミダゾール、ビニルオキサゾール、ビニルモルホリン、Ｎ－ビニルカルボン酸アミド類、スチレン、α－メチルスチレン、Ｎ－ビニルカプロラクタムなどのビニル系モノマー；アクリロニトリル、メタクリロニトリルなどのシアノアクリレート系モノマー；（メタ）アクリル酸グリシジルなどのエポキシ基含有アクリル系モノマー；（メタ）アクリル酸ポリエチレングリコール、（メタ）アクリル酸ポリプロピレングリコール、（メタ）アクリル酸メトキシエチレングリコール、（メタ）アクリル酸メトキシポリプロピレングリコールなどのグリコール系アクリルエステルモノマー；（メタ）アクリル酸テトラヒドロフルフリル、フッ素（メタ）アクリレート、シリコーン（メタ）アクリレートや２－メトキシエチルアクリレートなどのアクリル酸エステル系モノマーなども使用することができる。

[0097] 本発明では、上記疎水性モノマーＸａと極性モノマーＸｂを用いて共重合によりポリマーＸを合成する。また上記に記載した疎水性モノマー、又は極性モノマーをモノマーＸｃとして三元共重合体とすることもできる。

[0098] 疎水性モノマーＸａと極性モノマーＸｂの合成時の使用比率は９９：１～５０：５０の範囲が好ましく、更に好ましくは９５：５～６０：４０の範囲である。疎水性モノマーＸａの使用比率が多いとセルロースエステルとの相溶性が低下するが、位相差値の環境湿度に対する変動を低減させる効果が高い。極性モノマーＸｂの使用比率が多いとセルロースエステルとの相溶性が良化するが位相差値の環境湿度に対する変動が大きくなる。また、極性モノ

マーＸｂの使用比率が上記範囲を超えると製膜時にヘイズが出る為好ましくない。

[0099] このようなポリマーを合成するには、通常の重合では分子量のコントロールが難しく、分子量をあまり大きくしない方法でできるだけ分子量を揃えることのできる方法を用いることが望ましい。かかる重合方法としては、クメンペルオキシドやｔ－ブチルヒドロペルオキシドのような過酸化物重合開始剤を使用する方法、重合開始剤を通常の重合より多量に使用する方法、重合開始剤の他にメルカプト化合物や四塩化炭素等の連鎖移動剤を使用する方法、重合開始剤の他にベンゾキノンやジニトロベンゼンのような重合停止剤を使用する方法、更に特開２０００－１２８９１１号又は同２０００－３４４８２３号公報にあるような一つのチオール基と２級のヒドロキシル基（水酸基）とを有する化合物、或いは、該化合物と有機金属化合物を併用した重合触媒を用いて塊状重合する方法等を挙げることが出来、何れも本発明において好ましく用いられる。

[0100] 本発明に用いられるポリマーＸの重量平均分子量は、公知の分子量調節方法で調整することができる。そのような分子量調節方法としては、例えば四塩化炭素、ラウリルメルカプタン、チオグリコール酸オクチル等の連鎖移動剤を添加する方法等が挙げられる。また、重合温度は通常室温から１３０℃、好ましくは５０℃から１００℃で行われるが、この温度又は重合反応時間を調整することで可能である。

[0101] 重量平均分子量の測定方法は前記分子量測定方法によることができる。

[0102] ポリマーＸの添加量は、フィルムに所望の性能を持たせるために適宜調製される。光弾性係数、位相差値の環境湿度に対する変動を低減させるためには添加し、位相差性能を大きくするためには少量添加すればよいが、少な過ぎると位相差フィルムとして液晶テレビに用いた場合、画面のコーナー部の色が変わるコーナームラや、さらには位相差値が製造当初設定した値から変化してしまうことによる視野角の変動、色味の変化が生じてしまい、多過ぎると必要な位相差性能が得られないため、５質量％以上５０質量％以下が好

ましい。

[0103] ＜その他：添加剤＞

本発明に用いられる原反フィルムには、目的に応じて、種々の添加剤を含有させることができる。以下、主な添加剤について説明する。

[0104] （糖エステル化合物）

本発明に用いられる原反フィルムに含有させることができるポリエステル系樹脂として、糖エステル化合物が挙げられる。

[0105] 糖エステル化合物としては、例えば、ピラノース構造又はフラノース構造の少なくとも一種を１個以上１２個以下有しその構造のＯＨ基のすべてもしくは一部をエステル化したエステル化合物が挙げられる。

[0106] エステル化の割合としては、ピラノース構造又はフラノース構造内に存在するＯＨ基の７０％以上であることが好ましい。

[0107] 前記糖エステル化合物の合成原料の糖の例としては、例えば以下のようなものを挙げることができるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0108] グルコース、ガラクトース、マンノース、フルクトース、キシロース、あるいはアラビノース、ラクトース、スクロース、ニストース、１Ｆ－フラクトシルニストース、スタキオース、マルチトール、ラクチトール、ラクチュロース、セロビオース、マルトース、セロトリオース、マルトトリオース、ラフィノースあるいはケストース挙げられる。

[0109] この他、ゲンチオビオース、ゲンチオトリオース、ゲンチオテトラオース、キシロトリオース、ガラクトシルスクロースなども挙げられる。

[0110] これらの化合物の中で、特にピラノース構造とフラノース構造を両方有する化合物が好ましい。ピラノース構造とフラノース構造を両方有する化合物の例としてはスクロース、ケストース、ニストース、１Ｆ－フラクトシルニストース、スタキオースなどが好ましく、更に好ましくは、スクロースである。

[0111] 前記ピラノース構造又はフラノース構造中のＯＨ基のすべてもしくは一部をエステル化するのに用いられるモノカルボン酸としては、特に制限はなく

、公知の脂肪族モノカルボン酸、脂環族モノカルボン酸、芳香族モノカルボン酸等を用いることができる。用いられるカルボン酸は一種類でもよいし、二種以上の混合であってもよい。

[0112] 好ましい脂肪族モノカルボン酸としては、酢酸、プロピオン酸、酪酸、イソ酪酸、吉草酸、カプロン酸、エナント酸、カプリル酸、ペラルゴン酸、カプリン酸、２－エチル－ヘキサンカルボン酸、ウンデシル酸、ラウリン酸、トリデシル酸、ミリスチン酸、ペンタデシル酸、パルミチン酸、ヘプタデシル酸、ステアリン酸、ノナデカン酸、アラキン酸、ベヘン酸、リグノセリン酸、セロチン酸、ヘプタコサン酸、モンタン酸、メリシン酸、ラクセル酸等の飽和脂肪酸、ウンデシレン酸、オレイン酸、ソルビン酸、リノール酸、リノレン酸、アラキドン酸、オクテン酸等の不飽和脂肪酸等を挙げることができる。

[0113] 好ましい脂環族モノカルボン酸の例としては、酢酸、シクロペンタンカルボン酸、シクロヘキサンカルボン酸、シクロオクタンカルボン酸、又はそれらの誘導体を挙げることができる。

[0114] 好ましい芳香族モノカルボン酸の例としては、安息香酸、トルイル酸等の安息香酸のベンゼン環にアルキル基、アルコキシ基を導入した芳香族モノカルボン酸、ケイ皮酸、ベンジル酸、ビフェニルカルボン酸、ナフタリンカルボン酸、テトラリンカルボン酸等のベンゼン環を２個以上有する芳香族モノカルボン酸、又はそれらの誘導体を挙げることができ、より、具体的には、キシリル酸、ヘメリト酸、メシチレン酸、プレーニチル酸、γ－イソジュリル酸、ジュリル酸、メシト酸、α－イソジュリル酸、クミン酸、α－トルイル酸、ヒドロアトロパ酸、アトロパ酸、ヒドロケイ皮酸、サリチル酸、ｏ－アニス酸、ｍ－アニス酸、ｐ－アニス酸、クレオソート酸、ｏ－ホモサリチル酸、ｍ－ホモサリチル酸、ｐ－ホモサリチル酸、ｏ－ピロカテク酸、β－レソルシル酸、バニリン酸、イソバニリン酸、ベラトルム酸、ｏ－ベラトルム酸、没食子酸、アサロン酸、マンデル酸、ホモアニス酸、ホモバニリン酸、ホモベラトルム酸、ｏ－ホモベラトルム酸、フタロン酸、ｐ－クマル酸を

挙げることができるが、特に安息香酸が好ましい。

[0115] ピラノース構造単位又はフラノース構造単位の少なくとも一種を１～１２個を有する化合物として、オリゴ糖のエステル化合物を適用することができる。

[0116] オリゴ糖は、澱粉、ショ糖等にアミラーゼ等の酵素を作用させて製造されるもので、該オリゴ糖としては、例えば、マルトオリゴ糖、イソマルトオリゴ糖、フラクトオリゴ糖、ガラクトオリゴ糖、キシロオリゴ糖が挙げられる。

[0117] 以下に、糖エステル化合物の一例を下記に挙げるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

モノペットＳＢ：第一工業製薬社製、モノペットＳＯＡ：第一工業製薬社製

[0118] これらの糖エステル化合物の添加量としては、前記ポリマー（Ｘ）とセルロースエステルの総質量に対して、０．５～３０質量％含むことが好ましく、特には、５～２０質量％含むことが好ましい。

[0119] （可塑剤）

本発明に用いられる原反フィルムには、可塑剤を含有させることができる。可塑剤としては特に限定されないが、好ましくは、多価カルボン酸エステル系可塑剤、グリコレート系可塑剤、フタル酸エステル系可塑剤、脂肪酸エステル系可塑剤及び多価アルコールエステル系可塑剤、ポリエステル系可塑剤、アクリル系可塑剤等から選択される。そのうち、可塑剤を二種以上用いる場合は、少なくとも一種は多価アルコールエステル系可塑剤であることが好ましい。

[0120] 多価アルコールエステル系可塑剤は２価以上の脂肪族多価アルコールとモノカルボン酸のエステルよりなる可塑剤であり、分子内に芳香環又はシクロアルキル環を有することが好ましい。好ましくは２～２０価の脂肪族多価アルコールエステルである。

[0121] 本発明に好ましく用いられる多価アルコールは次の一般式（２）で表され

る。

一般式（２）：　Ｒａ－（ＯＨ）ｎ（但し、Ｒａはｎ価の有機基、ｎは２以上の正の整数、ＯＨ基はアルコール性、及び／又はフェノール性ヒドロキシル基（水酸基）を表す。）

[0122] 好ましい多価アルコールの例としては、例えば以下のようなものを挙げることができるが、本発明はこれらに限定されるものではない。アドニトール、アラビトール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、１，２－プロパンジオール、１，３－プロパンジオール、ジプロピレングリコール、トリプロピレングリコール、１，２－ブタンジオール、１，３－ブタンジオール、１，４－ブタンジオール、ジブチレングリコール、１，２，４－ブタントリオール、１，５－ペンタンジオール、１，６－ヘキサンジオール、ヘキサントリオール、ガラクチトール、マンニトール、３－メチルペンタン－１，３，５－トリオール、ピナコール、ソルビトール、トリメチロールプロパン、トリメチロールエタン、キシリトール等を挙げることができる。特に、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、ジプロピレングリコール、トリプロピレングリコール、ソルビトール、トリメチロールプロパン、キシリトールが好ましい。

[0123] 多価アルコールエステルに用いられるモノカルボン酸としては、特に制限はなく、公知の脂肪族モノカルボン酸、脂環族モノカルボン酸、芳香族モノカルボン酸等を用いることができる。脂環族モノカルボン酸、芳香族モノカルボン酸を用いると透湿性、保留性を向上させる点で好ましい。

[0124] 好ましいモノカルボン酸の例としては以下のようなものを挙げることができるが、本発明はこれに限定されるものではない。

[0125] 脂肪族モノカルボン酸としては、炭素数１～３２の直鎖又は側鎖を有する脂肪酸を好ましく用いることができる。炭素数は１～２０であることが更に好ましく、１～１０であることが特に好ましい。酢酸を含有させるとセルロースエステルとの相溶性が増すため好ましく、酢酸と他のモノカルボン酸を

混合して用いることも好ましい。

[0126] 好ましい脂肪族モノカルボン酸としては、酢酸、プロピオン酸、酪酸、吉草酸、カプロン酸、エナント酸、カプリル酸、ペラルゴン酸、カプリン酸、２－エチル－ヘキサン酸、ウンデシル酸、ラウリン酸、トリデシル酸、ミリスチン酸、ペンタデシル酸、パルミチン酸、ヘプタデシル酸、ステアリン酸、ノナデカン酸、アラキン酸、ベヘン酸、リグノセリン酸、セロチン酸、ヘプタコサン酸、モンタン酸、メリシン酸、ラクセル酸等の飽和脂肪酸、ウンデシレン酸、オレイン酸、ソルビン酸、リノール酸、リノレン酸、アラキドン酸等の不飽和脂肪酸等を挙げることができる。

[0127] 好ましい脂環族モノカルボン酸の例としては、シクロペンタンカルボン酸、シクロヘキサンカルボン酸、シクロオクタンカルボン酸、又はそれらの誘導体を挙げることができる。

[0128] 好ましい芳香族モノカルボン酸の例としては、安息香酸、トルイル酸等の安息香酸のベンゼン環にアルキル基、メトキシ基或いはエトキシ基などのアルコキシ基を１～３個を導入したもの、ビフェニルカルボン酸、ナフタリンカルボン酸、テトラリンカルボン酸等のベンゼン環を２個以上有する芳香族モノカルボン酸、又はそれらの誘導体を挙げることができる。特に安息香酸が好ましい。

[0129] 多価アルコールエステルの分子量は特に制限はないが、３００～１５００であることが好ましく、３５０～７５０であることが更に好ましい。分子量が大きい方が揮発し難くなるため好ましく、透湿性、セルロースエステルとの相溶性の点では小さい方が好ましい。

[0130] 多価アルコールエステルに用いられるカルボン酸は一種類でもよいし、二種以上の混合であってもよい。また、多価アルコール中のＯＨ基は、全てエステル化してもよいし、一部をＯＨ基のままで残してもよい。

[0131] グリコレート系可塑剤は特に限定されないが、アルキルフタリルアルキルグリコレート類が好ましく用いることができる。アルキルフタリルアルキルグリコレート類としては、例えばメチルフタリルメチルグリコレート、エチ

ルフタリルエチルグリコレート、プロピルフタリルプロピルグリコレート、ブチルフタリルブチルグリコレート、オクチルフタリルオクチルグリコレート、メチルフタリルエチルグリコレート、エチルフタリルメチルグリコレート、エチルフタリルプロピルグリコレート、メチルフタリルブチルグリコレート、エチルフタリルブチルグリコレート、ブチルフタリルメチルグリコレート、ブチルフタリルエチルグリコレート、プロピルフタリルブチルグリコレート、ブチルフタリルプロピルグリコレート、メチルフタリルオクチルグリコレート、エチルフタリルオクチルグリコレート、オクチルフタリルメチルグリコレート、オクチルフタリルエチルグリコレート等が挙げられる。

[0132] フタル酸エステル系可塑剤としては、ジエチルフタレート、ジメトキシエチルフタレート、ジメチルフタレート、ジオクチルフタレート、ジブチルフタレート、ジー２－エチルヘキシルフタレート、ジオクチルフタレート、ジシクロヘキシルフタレート、ジシクロヘキシルテレフタレート等が挙げられる。

[0133] クエン酸エステル系可塑剤としては、クエン酸アセチルトリメチル、クエン酸アセチルトリエチル、クエン酸アセチルトリブチル等が挙げられる。

[0134] 脂肪酸エステル系可塑剤として、オレイン酸ブチル、リシノール酸メチルアセチル、セバシン酸ジブチル等が挙げられる。

[0135] リン酸エステル系可塑剤としては、トリフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェート、クレジルジフェニルホスフェート、オクチルジフェニルホスフェート、ジフェニルビフェニルホスフェート、トリオクチルホスフェート、トリブチルホスフェート等が挙げられる。

[0136] 多価カルボン酸エステル化合物としては、２価以上、好ましくは２価～２０価の多価カルボン酸とアルコールのエステルよりなる。また、脂肪族多価カルボン酸は２～２０価であることが好ましく、芳香族多価カルボン酸、脂環式多価カルボン酸の場合は３価～２０価であることが好ましい。

[0137] 多価カルボン酸は次の一般式（３）で表される。

[0138] 一般式（３）： Ｒｂ（ＣＯＯＨ）ｍ（ＯＨ）ｎ

（但し、Ｒｂは（ｍ＋ｎ）価の有機基、ｍは２以上、６以下の正の整数、ｎは０以上、４以下の整数、ＣＯＯＨ基はカルボキシル基、ＯＨ基はアルコール性又はフェノール性ヒドロキシル基（水酸基）を表す。）

[0139] 好ましい多価カルボン酸の例としては、例えば以下のようなものを挙げることができるが、本発明はこれらに限定されるものではない。トリメリット酸、トリメシン酸、ピロメリット酸のような３価以上の芳香族多価カルボン酸又はその誘導体、コハク酸、アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、シュウ酸、フマル酸、マレイン酸、テトラヒドロフタル酸のような脂肪族多価カルボン酸、酒石酸、タルトロン酸、リンゴ酸、クエン酸のようなオキシ多価カルボン酸などを好ましく用いることができる。特にオキシ多価カルボン酸を用いることが、保留性向上などの点で好ましい。

[0140] 前記多価カルボン酸エステル化合物に用いられるアルコールとしては特に制限はなく公知のアルコール、フェノール類を用いることができる。例えば炭素数１～３２の直鎖又は側鎖を持った脂肪族飽和アルコール又は脂肪族不飽和アルコールを好ましく用いることができる。炭素数１～２０であることが更に好ましく、炭素数１～１０であることが特に好ましい。また、シクロペンタノール、シクロヘキサノールなどの脂環式アルコール又はその誘導体、ベンジルアルコール、シンナミルアルコールなどの芳香族アルコール又はその誘導体なども好ましく用いることができる。

[0141] 多価カルボン酸としてオキシ多価カルボン酸を用いる場合は、オキシ多価カルボン酸のアルコール性又はフェノール性のヒドロキシル基（水酸基）をモノカルボン酸を用いてエステル化しても良い。好ましいモノカルボン酸の例としては以下のようなものを挙げることができるが、本発明はこれに限定されるものではない。

[0142] 脂肪族モノカルボン酸としては炭素数１～３２の直鎖又は側鎖を持った脂肪酸を好ましく用いることができる。炭素数１～２０であることが更に好ましく、炭素数１～１０であることが特に好ましい。

[0143] 好ましい脂肪族モノカルボン酸としては酢酸、プロピオン酸、酪酸、吉草

酸、カプロン酸、エナント酸、カプリル酸、ペラルゴン酸、カプリン酸、２－エチル－ヘキサンカルボン酸、ウンデシル酸、ラウリン酸、トリデシル酸、ミリスチン酸、ペンタデシル酸、パルミチン酸、ヘプタデシル酸、ステアリン酸、ノナデカン酸、アラキン酸、ベヘン酸、リグノセリン酸、セロチン酸、ヘプタコサン酸、モンタン酸、メリシン酸、ラクセル酸などの飽和脂肪酸、ウンデシレン酸、オレイン酸、ソルビン酸、リノール酸、リノレン酸、アラキドン酸などの不飽和脂肪酸などを挙げることができる。

[0144] 好ましい脂環族モノカルボン酸の例としては、シクロペンタンカルボン酸、シクロヘキサンカルボン酸、シクロオクタンカルボン酸、又はそれらの誘導体を挙げることができる。

[0145] 好ましい芳香族モノカルボン酸の例としては、安息香酸、トルイル酸などの安息香酸のベンゼン環にアルキル基を導入したもの、ビフェニルカルボン酸、ナフタリンカルボン酸、テトラリンカルボン酸などの２個以上の環をもつ芳香族モノカルボン酸、又はそれらの誘導体を挙げることができる。

[0146] これらのモノカルボン酸のうち、特に酢酸、プロピオン酸、安息香酸であることが好ましい。

[0147] 多価カルボン酸エステル化合物の分子量は特に制限はないが、分子量３００～１０００の範囲であることが好ましく、３５０～７５０の範囲であることが更に好ましい。保留性向上の点では大きい方が好ましく、透湿性、セルロースエステルとの相溶性の点では小さい方が好ましい。

[0148] 前記多価カルボン酸エステルに用いられるアルコール類は一種類でも良いし、二種以上の混合であっても良い。

[0149] 前記多価カルボン酸エステル化合物の酸価は１ｍｇＫＯＨ／ｇ以下であることが好ましく、０．２ｍｇＫＯＨ／ｇ以下であることが更に好ましい。酸価を上記範囲にすることによって位相差（リターデーション）の環境変動も抑制されるため好ましい。

[0150] （酸価）

本発明における酸価とは、試料１ｇ中に含まれる酸（試料中に存在するカ

ルボキシル基）を中和するために必要な水酸化カリウムのミリグラム数をいう。酸価はＪＩＳ　Ｋ００７０に準拠して測定したものである。

[0151] 特に好ましい多価カルボン酸エステル化合物の例を以下に示すが、本発明はこれに限定されるものではない。例えば、トリエチルシトレート、トリブチルシトレート、アセチルトリエチルシトレート（ＡＴＥＣ）、アセチルトリブチルシトレート（ＡＴＢＣ）、ベンゾイルトリブチルシトレート、アセチルトリフェニルシトレート、アセチルトリベンジルシトレート、酒石酸ジブチル、酒石酸ジアセチルジブチル、トリメリット酸トリブチル、ピロメリット酸テトラブチル等が挙げられる。

[0152] ポリエステル系可塑剤は特に限定されないが、分子内に芳香環又はシクロアルキル環を有するポリエステル系可塑剤を用いることができる。ポリエステル系可塑剤としては、特に限定されないが、例えば、下記一般式（４）で表せる芳香族末端エステル系可塑剤を用いることができる。

一般式（４）：　Ｂ－ＣＯＯ－（（Ｇ－Ｏ－）ｍ－ＣＯ－Ａ－ＣＯＯ－）ｎＧ－Ｏ－ＣＯ－Ｂ（式中、Ｂはベンゼン環を表し他に置換基を有しても良い。Ｇは炭素数２～１２のアルキレン基又は炭素数６～１２のアリーレン基又は炭素数が４～１２のオキシアルキレン基、Ａは炭素数２～１０のアルキレン基又は炭素数４～１０のアリーレン基を表し、また、ｍ、ｎは繰り返し単位を表す。）

[0153] 一般式（４）の化合物は、ＢＣＯＯＨで表されるベンゼンモノカルボン酸基、ＨＯ－（Ｇ－Ｏ－）ＩＨで表されるアルキレングリコール基又はオキシアルキレングリコール基又はアリールグリコール基、ＨＯＣＯ－Ａ－ＣＯＯ－Ｈで表されるアルキレンジカルボン酸基又はアリールジカルボン酸基とから合成されるものであり、通常のポリエステル系可塑剤と同様の反応により得られる。

[0154] 前記ポリエステル系可塑剤の原料のベンゼンモノカルボン酸成分としては、例えば、安息香酸、パラターシャリブチル安息香酸、オルソトルイル酸、メタトルイル酸、パラトルイル酸、ジメチル安息香酸、エチル安息香酸、ノ

ルマルプロピル安息香酸、アミノ安息香酸、アセトキシ安息香酸等があり、これらはそれぞれ一種又は二種以上の混合物として使用することができる。

[0155] 前記ポリエステル系可塑剤の原料のアルキレングリコール成分としては、エチレングリコール、１，２－プロピレングリコール、１，３－プロピレングリコール、１，２－ブタンジオール、１，３－ブタンジオール、１，２－プロパンジオール、２－メチル１，３－プロパンジオール、１，４－ブタンジオール、１，５－ペンタンジオール、２，２－ジメチルー１，３－プロパンジオール（ネオペンチルグリコール）、２，２－ジエチルー１，３－プロパンジオール（３，３－ジメチロールペンタン）、２－ｎ－ブチルー２－エチルー１，３プロパンジオール（３，３－ジメチロールヘプタン）、３－メチルー１，５－ペンタンジオール１，６－ヘキサンジオール、２，２，４－トリメチル１，３－ペンタンジオール、２－エチル１，３－ヘキサンジオール、２－メチル１，８－オクタンジオール、１，９－ノナンジオール、１，１０－デカンジオール、１，１２－オクタデカンジオール等があり、これらのグリコールは、一種又は二種以上の混合物として使用される。特に炭素数２～１２のアルキレングリコールがセルロースエステルとの相溶性に優れているため、特に好ましい。

[0156] また、上記芳香族末端エステルの原料の炭素数４～１２のオキシアルキレングリコール成分としては、例えば、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、ジプロピレングリコール、トリプロピレングリコール等があり、これらのグリコールは、一種又は二種以上の混合物として使用できる。

[0157] 芳香族末端エステルの原料の炭素数４～１２のアルキレンジカルボン酸成分としては、例えば、コハク酸、マレイン酸、フマール酸、グルタール酸、アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカンジカルボン酸等があり、これらは、それぞれ一種又は二種以上の混合物として使用される。炭素数６～１２のアリーレンジカルボン酸成分としては、フタル酸、テレフタル酸、イソフタル酸、１，５－ナフタレンジカルボン酸、１，４－ナフタレンジカ

ルボン酸等がある。

[0158] 前記ポリエステル系可塑剤は、数平均分子量が、好ましくは３００～１５００、より好ましくは４００～１０００の範囲が好適である。また、その酸価は、０．５ｍｇＫＯＨ／ｇ以下、ヒドロキシル（水酸基）価は２５ｍｇＫＯＨ／ｇ以下より好ましくは酸価は０．３ｍｇＫＯＨ／ｇ以下、ヒドロキシル（水酸基）価は１５ｍｇＫＯＨ／ｇ以下のものである。

[0159] （紫外線吸収剤）

本発明に用いられる原反フィルムには、紫外線吸収剤を含有することもできる。紫外線吸収剤は４００ｎｍ以下の紫外線を吸収することで、耐久性を向上させることを目的としており、特に波長３７０ｎｍでの透過率が１０％以下であることが好ましく、より好ましくは５％以下、更に好ましくは２％以下である。

[0160] 前記紫外線吸収剤は特に限定されないが、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、ベンゾフェノン系化合物、シアノアクリレート系化合物、トリアジン系化合物、ニッケル錯塩系化合物、無機粉体等が挙げられる。

[0161] 例えば、５－クロロ－２－（３，５－ジ－ｓｅｃ－ブチル－２－ヒドロキシフェニル）－２Ｈ－ベンゾトリアゾール、（２－２Ｈ－ベンゾトリアゾール－２－イル）－６－（直鎖及び側鎖ドデシル）－４－メチルフェノール、２－ヒドロキシ－４－ベンジルオキシベンゾフェノン、２，４－ベンジルオキシベンゾフェノン等があり、また、チヌビン１０９、チヌビン１７１、チヌビン２３４、チヌビン３２６、チヌビン３２７、チヌビン３２８、チヌビン９２８等のチヌビン類があり、これらはいずれもＢＡＳＦジャパン社製の市販品であり好ましく使用できる。

[0162] 本発明で好ましく用いられる紫外線吸収剤は、ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤、トリアジン系紫外線吸収剤であり、特に好ましくはベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤、である。

[0163] この他、１，３，５－トリアジン環を有する化合物等の円盤状化合物も紫外線吸収剤として好ましく用いられる。

[0164] 紫外線吸収剤の添加方法は、メタノール、エタノール、ブタノール等のアルコールやメチレンクロライド、酢酸メチル、アセトン、ジオキソラン等の有機溶媒あるいはこれらの混合溶媒に紫外線吸収剤を溶解してからドープに添加するか、又は直接ドープ組成中に添加してもよい。

[0165] 無機粉体のように有機溶剤に溶解しないものは、有機溶剤とポリマー中にディゾルバーやサンドミルを使用し、分散してからドープに添加する。

[0166] 紫外線吸収剤の使用量は、紫外線吸収剤の種類、使用条件等により一様ではないが、光学フィルムの乾燥膜厚が３０～２００μｍの場合は、ポリマーに対して０．５～１０質量％が好ましく、０．６～４質量％が更に好ましい。

[0167] （酸化防止剤）

本発明に用いられる原反フィルムには、酸化防止剤を含有させることができる。酸化防止剤は劣化防止剤ともいわれる。高湿高温の状態に液晶画像表示装置などが置かれた場合には、光学フィルムの劣化が起こる場合がある。

[0168] 酸化防止剤は、例えば、光学フィルム中の残留溶媒量のハロゲンやリン酸系可塑剤のリン酸等により光学フィルムが分解するのを遅らせたり、防いだりする役割を有するので、前記光学フィルム中に含有させるのが好ましい。

[0169] このような酸化防止剤としては、ヒンダードフェノール系の化合物が好ましく用いられ、例えば、２，６－ジ－ｔ－ブチル－ｐ－クレゾール、ペンタエリスリチル－テトラキス〔３－（３，５－ジ－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート〕、トリエチレングリコール－ビス〔３－（３－ｔ－ブチル－５－メチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート〕、１，６－ヘキサンジオール－ビス〔３－（３，５－ジ－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート〕、２，４－ビス－（ｎ－オクチルチオ）－６－（４－ヒドロキシ－３，５－ジ－ｔ－ブチルアニリノ）－１，３，５－トリアジン、２，２－チオ－ジエチレンビス〔３－（３，５－ジ－ｔ－

ブチルー４ーヒドロキシフェニル）プロピオネート〕、オクタデシルー３ー（３，５ージーｔーブチルー４ーヒドロキシフェニル）プロピオネート、Ｎ，Ｎ′ーヘキサメチレンビス（３，５ージーｔーブチルー４ーヒドロキシーヒドロシンナマミド）、１，３，５ートリメチルー２，４，６ートリス（３，５ージーｔーブチルー４ーヒドロキシベンジル）ベンゼン、トリスー（３，５ージーｔーブチルー４ーヒドロキシベンジル）ーイソシアヌレイト等を挙げることができる。

[0170] 特に、２，６ージーｔーブチルーｐークレゾール、ペンタエリスリチルーテトラキス〔３ー（３，５ージーｔーブチルー４ーヒドロキシフェニル）プロピオネート〕、トリエチレングリコールービス〔３ー（３ーｔーブチルー５ーメチルー４ーヒドロキシフェニル）プロピオネート〕が好ましい。また、例えば、Ｎ，Ｎ′ービス〔３ー（３，５ージーｔーブチルー４ーヒドロキシフェニル）プロピオニル〕ヒドラジン等のヒドラジン系の金属不活性剤やトリス（２，４ージーｔーブチルフェニル）フォスファイト等のリン系加工安定剤を併用してもよい。

[0171] これらの化合物の添加量は、前記ポリマー（Ｘ）とセルロースエステルの総質量に対して質量割合で１ｐｐｍ～１．０％が好ましく、１０～１０００ｐｐｍが更に好ましい。

[0172] （微粒子）

本発明に用いられる原反フィルムには、微粒子を添加することができる。

[0173] 微粒子としては、無機化合物の例として、二酸化珪素、二酸化チタン、酸化アルミニウム、酸化ジルコニウム、炭酸カルシウム、炭酸カルシウム、タルク、クレイ、焼成カオリン、焼成ケイ酸カルシウム、水和ケイ酸カルシウム、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸マグネシウム及びリン酸カルシウムを挙げることができる。また、有機化合物の微粒子も好ましく使用することができる。有機化合物の例としてはポリテトラフルオロエチレン、セルロースアセテート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリプロピルメタクリレート、ポリメチルアクリレート、ポリエチレンカーボネート、アクリルス

チレン系樹脂、シリコーン系樹脂、ポリカーボネート樹脂、ベンゾグアナミン系樹脂、メラミン系樹脂、ポリオレフィン系粉末、ポリエステル系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリイミド系樹脂、あるいはポリ弗化エチレン系樹脂、澱粉等の有機高分子化合物の粉砕分級物もあげられる。あるいは又懸濁重合法で合成した高分子化合物、スプレードライ法あるいは分散法等により球型にした高分子化合物、又は無機化合物を用いることができる。

[0174] 微粒子は珪素を含むものが濁度が低くなる点で好ましく、特に二酸化珪素が好ましい。

[0175] 微粒子の一次粒子の平均粒径は５～４００ｎｍが好ましく、更に好ましいのは１０～３００ｎｍである。これらは主に粒径０．０５～０．３μｍの二次凝集体として含有されていてもよく、平均粒径１００～４００ｎｍの粒子であれば凝集せずに一次粒子として含まれていることも好ましい。

[0176] ポリマー中のこれらの微粒子の含有量は０．０１～１質量％であることが好ましく、特に０．０５～０．５質量％が好ましい。

[0177] 二酸化珪素の微粒子は、例えば、アエロジルＲ９７２、Ｒ９７２Ｖ、Ｒ９７４、Ｒ８１２、２００、２００Ｖ、３００、Ｒ２０２、ＯＸ５０、ＴＴ６００（以上日本アエロジル（株）製）の商品名で市販されており、使用することができる。

[0178] 酸化ジルコニウムの微粒子は、例えば、アエロジルＲ９７６及びＲ８１１（以上日本アエロジル（株）製）の商品名で市販されており、使用することができる。

[0179] 高分子微粒子の樹脂の例として、シリコーン樹脂、フッ素樹脂及びアクリル樹脂を挙げることができる。シリコーン樹脂が好ましく、特に三次元の網状構造を有するものが好ましく、例えば、トスパール１０３、同１０５、同１０８、同１２０、同１４５、同３１２０及び同２４０（以上東芝シリコーン（株）製）の商品名で市販されており、使用することができる。

[0180] これらの中でもアエロジル２００Ｖ、アエロジルＲ９７２Ｖが光学フィルムの濁度を低く保ちながら、摩擦係数を下げる効果が大きいため特に好まし

く用いられる。前記光学フィルムにおいては、少なくとも一方の面の動摩擦係数が０．２～１．０であることが好ましい。

[0181] 各種添加剤は製膜前の樹脂含有溶液であるドープにバッチ添加してもよいし、添加剤溶解液を別途用意してインライン添加してもよい。特に微粒子は濾過材への負荷を減らすために、一部又は全量をインライン添加することが好ましい。

[0182] 添加剤溶解液をインライン添加する場合は、ドープとの混合性をよくするため、少量の樹脂を溶解するのが好ましい。好ましい樹脂の量は、溶剤１００質量部に対して１～１０質量部で、より好ましくは、３～５質量部である。

[0183] 本発明においてインライン添加、混合を行うためには、例えば、スタチックミキサー（東レエンジニアリング製）、ＳＷＪ（東レ静止型管内混合器Ｈｉ－Ｍｉｘｅｒ）等のインラインミキサー等が好ましく用いられる。

[0184] ＜アクリル系重合体＞

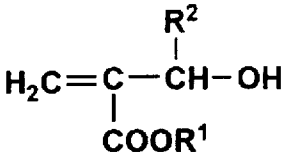
本発明に用いられる原反フィルムには、アクリル系重合体を含んでもよい。当該アクリル系重合体は、（メタ）アクリル酸エステルを構成成分として含有する単量体組成物を重合した樹脂であれば特には限定されない。また、二種類以上のアクリル系重合体を主成分とするものでもよい。

[0185] 本発明に用いられる原反フィルムには、アクリル系重合体として、後述するラクトン環構造を有する重合体を含有することも好ましい。

[0186] 上記（メタ）アクリル酸エステルとしては、例えば、一般式（５）で表される構造を有する化合物（単量体）を用いることができる。

[化1]

一般式(5)



（式中、Ｒ[1]及びＲ[2]は、それぞれ独立に、水素原子又は炭素数１～２０の有

機残基を示す）

[0187] また、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸ｎ－ブチル、アクリル酸イソブチル、アクリル酸ｔ－ブチル、アクリル酸シクロヘキシル、アクリル酸ベンジルなどのアクリル酸エステル；メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸プロピル、メタクリル酸ｎ－ブチル、メタクリル酸イソブチル、メタクリル酸ｔ－ブチル、メタクリル酸シクロヘキシル、メタクリル酸ベンジルなどのメタクリル酸エステルなどが挙げられる。これらは一種のみ用いてもよいし、二種以上を併用してもよい。これらの中でも特に、耐熱性、透明性が優れる点から、メタクリル酸メチルがより好ましい。また、正の複屈折性（正の位相差）を大きくする点で、（メタ）アクリル酸ベンジルが好ましい。

[0188] なお、（メタ）アクリル酸ベンジル単量体構造単位を導入する場合には、アクリル系重合体における（メタ）アクリル酸ベンジル単量体構造単位の好ましい含有量は、５～５０質量％であり、より好ましくは１０～４０質量％であり、更に好ましくは１５～３０質量％である。

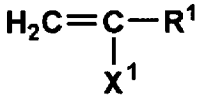
[0189] 一般式（５）で表される構造を有する化合物としては、例えば、２－（ヒドロキシメチル）アクリル酸メチル、２－（ヒドロキシメチル）アクリル酸エチル、２－（ヒドロキシメチル）アクリル酸イソプロピル、２－（ヒドロキシメチル）アクリル酸ノルマルブチル、２－（ヒドロキシメチル）アクリル酸ターシャリーブチルなどが挙げられる。これらの中でも、２－（ヒドロキシメチル）アクリル酸メチル、２－（ヒドロキシメチル）アクリル酸エチルが好ましく、耐熱性向上効果が高い点で、２－（ヒドロキシメチル）アクリル酸メチルが特に好ましい。一般式（５）で表される化合物は、一種のみ用いてもよいし、二種以上を併用してもよい。

[0190] 上記アクリル系重合体は、上述した（メタ）アクリル酸エステルを重合した構造以外の構造を有していてもよい。（メタ）アクリル酸エステルを重合した構造以外の構造としては、特には限定されないが、ヒドロキシル基（水酸基）含有単量体、不飽和カルボン酸、下記一般式（６）で表される単量体

から選ばれる少なくとも一種を重合して構築される重合体構造単位（繰り返し構造単位）が好ましい。

[0191] [化2]

一般式(6)



（式中、Ｒ[1]は水素原子又はメチル基を表し、Ｘ[1]は水素原子、炭素数１～２０のアルキル基、アリール基、－ＯＡｃ基、－ＣＮ基、－ＣＯ－Ｒ[2]基、又はＣ－Ｏ－Ｒ[3]基を表し、Ａｃ基はアセチル基を表し、Ｒ[2]及びＲ[3]は水素原子又は炭素数１～２０の有機残基を表す）

[0192] ヒドロキシル基（水酸基）含有単量体としては、一般式（５）で表される単量体以外のヒドロキシル基（水酸基）含有単量体であれば特に限定されないが、例えば、メタリルアルコール、アリルアルコール、２－ヒドロキシメチル－１－ブテンなどのアリルアルコール、α－ヒドロキシメチルスチレン、α－ヒドロキシエチルスチレン、２－（ヒドロキシエチル）アクリル酸メチルなどの２－（ヒドロキシアルキル）アクリル酸エステル；２－（ヒドロキシエチル）アクリル酸などの２－（ヒドロキシアルキル）アクリル酸；などが挙げられ、これらは一種のみ用いても良いし、二種以上を併用してもよい。

[0193] 不飽和カルボン酸としては、例えば、アクリル酸、メタクリル酸、クロトン酸、α－置換アクリル酸、α－置換メタクリル酸などが挙げられ、これらは一種のみ用いてもよいし、二種以上を併用してもよい。これらの中でも特に、本発明の効果を十分に発揮させる点で、アクリル酸、メタクリル酸が好ましい。

[0194] 一般式（６）で表される化合物としては、例えば、スチレン、ビニルトルエン、α－メチルスチレン、アクリロニトリル、メチルビニルケトン、エチレン、プロピレン、酢酸ビニルなどが挙げられ、これらは一種のみ用いても

よいし、二種以上を併用してもよい。これらの中でも特に、本発明の効果を十分に発揮させる点で、スチレン、α－メチルスチレンが好ましい。

[0195] 重合方法は特に限定されず、公知の重合方法を用いることができる。使用する単量体（単量体組成物）の種類、使用比率等に応じて、適宜適した方法を採用すればよい。

[0196] 本発明に用いられるアクリル系重合体は、ガラス転移温度（Ｔｇ）が、好ましくは１１０℃～２００℃、より好ましくは１１５℃～２００℃、さらに好ましくは１２０℃～２００℃、特に好ましくは１２５℃～１９０℃、最も好ましくは１３０℃～１８０℃である。

[0197] 耐熱性を挙げる点で、フェニルマレイミド、シクロヘキシルマレイミド、メチルマレイミドなどのＮ－置換マレイミドを共重合してもよいし、分子鎖中（重合体の主骨格中、又は主鎖中ともいう。）にラクトン環構造、グルタル酸無水物構造、グルタルイミド構造などを導入してもよい。中でも、フィルムの着色（黄変）し難さの点で、窒素原子を含まない単量体が好ましく、また、正の複屈折性（正の位相差）を発現させやすい点で、主鎖にラクトン環構造を持つものが好ましい。

[0198] 主鎖中のラクトン環構造に関しては、４～８員環でもよいが、構造の安定性から５～６員環の方がより好ましく、６員環が更に好ましい。また、主鎖中のラクトン環構造が６員環である場合、一般式（７）や特開２００４－１６８８８２号公報で表される構造などが挙げられるが、主鎖にラクトン環構造を導入する前の重合体を合成する上において重合収率が高い点や、ラクトン環構造の含有割合の高い重合体を高い重合収率で得易い点や、メタクリル酸メチルなどの（メタ）アクリル酸エステルとの共重合性が良い点で、一般式（７）で表される構造であることが好ましい。

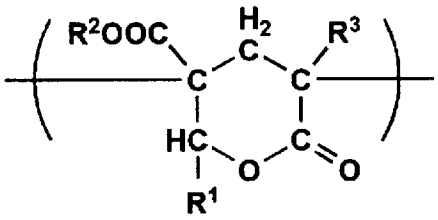
[0199] 上記アクリル系重合体が、上記一般式（５）で表される構造を有する化合物を含有する単量体を重合した樹脂である場合、上記アクリル系重合体はラクトン環構造を有していることがより好ましい（以下、ラクトン環構造を有するアクリル系重合体を「ラクトン環含有重合体」と記す）。以下、ラクト

ン環含有重合体について説明する。

[0200] ラクトン環構造としては、例えば、下記一般式（７）で表される構造が挙げられる。

[化3]

一般式(7)



（式中、Ｒ[1]、Ｒ[2]、Ｒ[3]は、それぞれ独立に、水素原子又は炭素数１～２０の有機残基を表す。なお、有機残基は酸素原子を含んでいてもよい。）

[0201] なお、上記一般式（７）における有機残基は、炭素数が１～２０の範囲内であれば特には限定されないが、例えば、直鎖若しくは分岐状のアルキル基、直鎖若しくは分岐状のアルキレン基、アリール基、－ＯＡｃ基、－ＣＮ基などが挙げられる。

[0202] 上記アクリル系重合体中の上記ラクトン環構造の含有割合は、好ましくは５～９０質量%の範囲内、より好ましくは２０～９０質量%の範囲内、さらに好ましくは３０～９０質量%の範囲内、さらに好ましくは３５～９０質量%の範囲内、特に好ましくは４０～８０質量%の範囲内、最も好ましくは４５～７５質量%の範囲内である。上記ラクトン環構造の含有割合が９０質量%よりも多いと、成形加工性に乏しくなる。また、得られたフィルムの可撓性が低下する傾向があり、好ましくない。上記ラクトン環構造の含有割合が５質量%よりも少ないと、フィルムに成形したときに必要な位相差を得ることが難しく、また耐熱性、耐溶剤性、表面硬度が不十分になることがあり、好ましくない。

[0203] ラクトン環含有重合体において、一般式（７）で表されるラクトン環構造以外の構造の含有割合は、（メタ）アクリル酸エステルを重合して構築される重合体構造単位（繰り返し構造単位）の場合、好ましくは１０～９５質量

％の範囲内、より好ましくは１０～８０質量％の範囲内、さらに好ましくは１０～６５質量％の範囲内、特に好ましくは２０～６０質量％の範囲内、最も好ましくは２５～５５質量％の範囲内である。ヒドロキシル基（水酸基）含有単量体を重合して構築される重合体構造単位（繰り返し構造単位）の場合、好ましくは０～３０質量％の範囲内、より好ましくは０～２０質量％の範囲内、さらに好ましくは０～１５質量％の範囲内、特に好ましくは０～１０質量％の範囲内である。不飽和カルボン酸を重合して構築される重合体構造単位（繰り返し構造単位）の場合、好ましくは０～３０質量％の範囲内、より好ましくは０～２０質量％の範囲内、さらに好ましくは０～１５質量％の範囲内、特に好ましくは０～１０質量％の範囲内である。

[0204] ラクトン環含有重合体の製造方法については、特に限定はされないが、好ましくは、重合工程によって分子鎖中にヒドロキシル基（水酸基）とエステル基とを有する重合体を得た後に、得られた重合体を加熱処理することによりラクトン環構造を重合体に導入するラクトン環化縮合工程を行うことによってラクトン環含有重合体を得ることができる。

[0205] ＜脂環式ポリオレフィン樹脂＞

本発明に用いられる原反フィルムは、脂環式ポリオレフィン樹脂を含んでもよい。

[0206] 脂環式ポリオレフィン樹脂は、主鎖及び／又は側鎖に脂環構造を有する非晶性の樹脂である。脂環式ポリオレフィン樹脂中の脂環構造としては、飽和脂環炭化水素（シクロアルカン）構造、不飽和脂環炭化水素（シクロアルケン）構造などが挙げられるが、機械強度、耐熱性などの観点から、シクロアルカン構造が好ましい。脂環構造を構成する炭素原子数には、格別な制限はないが、通常４～３０個、好ましくは５～２０個、より好ましくは５～１５個であるときに、機械強度、耐熱性、及びフィルムの成形性の特性が高度にバランスされ、好適である。脂環式ポリオレフィン樹脂を構成する脂環構造を有する繰り返し単位の割合は、好ましくは５５質量％以上、さらに好ましくは７０質量％以上、特に好ましくは９０質量％以上である。脂環式ポリオ

レフィン樹脂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透明性及び耐熱性の観点から好ましい。

[0207] 脂環式ポリオレフィン樹脂としては、ノルボルネン系樹脂、単環の環状オレフィン系樹脂、環状共役ジエン系樹脂、ビニル脂環式炭化水素系樹脂、及び、これらの水素化物等を挙げることができる。これらの中で、ノルボルネン系樹脂は、透明性と成形性が良好なため、好適に用いることができる。

[0208] ノルボルネン系樹脂としては、例えば、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等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、特に好適に用いることができる。

[0209] ノルボルネン構造を有する単量体としては、ビシクロ［２．２．１］ヘプト－２－エン（慣用名：ノルボルネン）、トリシクロ［４．３．０．１２，５］デカ－３，７－ジエン（慣用名：ジシクロペンタジエン）、７，８－ベンゾトリシクロ［４．３．０．１２，５］デカ－３－エン（慣用名：メタノテトラヒドロフルオレン）、テトラシクロ［４．４．０．１２，５．１７，１０］ドデカ－３－エン（慣用名：テトラシクロドデセン）、及びこれらの化合物の誘導体（例えば、環に置換基を有するもの）などを挙げることができる。ここで、置換基としては、例えばアルキル基、アルキレン基、極性基などを挙げることができる。また、これらの置換基は、同一又は相異なって複数個が環に結合していてもよい。ノルボルネン構造を有する単量体は一種単独で、あるいは二種以上を組み合わせて用いることができる。

[0210] 極性基の種類としては、ヘテロ原子、又はヘテロ原子を有する原子団などが挙げられる。ヘテロ原子としては、酸素原子、窒素原子、硫黄原子、ケイ素原子、ハロゲン原子などが挙げられる。極性基の具体例としては、カルボ

キシル基、カルボニルオキシカルボニル基、エポキシ基、ヒドロキシル基、オキシ基、エステル基、シラノール基、シリル基、アミノ基、ニトリル基、スルホン基などが挙げられる。飽和吸水率の小さいフィルムを得るためには極性基の量が少ない方が好ましく、極性基を持たない方がより好ましい。

[0211] ノルボルネン構造を有する単量体と開環共重合可能な他の単量体としては、シクロヘキセン、シクロヘプテン、シクロオクテンなどのモノ環状オレフィン類及びその誘導体；シクロヘキサジエン、シクロヘプタジエンなどの環状共役ジエン及びその誘導体；などが挙げられる。

[0212] ノルボルネン構造を有する単量体の開環重合体及びノルボルネン構造を有する単量体と共重合可能な他の単量体との開環共重合体は、単量体を公知の開環重合触媒の存在下に（共）重合することにより得ることができる。

[0213] ノルボルネン構造を有する単量体と付加共重合可能な他の単量体としては、例えば、エチレン、プロピレン、１－ブテンなどの炭素数２～２０のα－オレフィン及びこれらの誘導体；シクロブテン、シクロペンテン、シクロヘキセンなどのシクロオレフィン及びこれらの誘導体；１，４－ヘキサジエン、４－メチル－１，４－ヘキサジエン、５－メチル－１，４－ヘキサジエンなどの非共役ジエンなどが挙げられる。これらの単量体は一種単独で、あるいは二種以上を組み合わせて用いることができる。これらの中でも、α－オレフィンが好ましく、エチレンがより好ましい。

[0214] ノルボルネン構造を有する単量体の付加重合体及びノルボルネン構造を有する単量体と共重合可能な他の単量体との付加共重合体は、単量体を公知の付加重合触媒の存在下に重合することにより得ることができる。

[0215] ノルボルネン構造を有する単量体の開環重合体の水素化物、ノルボルネン構造を有する単量体とこれと開環共重合可能なその他の単量体との開環共重合体の水素化物、ノルボルネン構造を有する単量体の付加重合体の水素化物、及びノルボルネン構造を有する単量体とこれと付加共重合可能なその他の単量体との付加共重合体の水素化物は、これら開環（共）重合体又は付加（共）重合体の溶液に、ニッケル、パラジウムなどの遷移金属を含む公知の水

素化触媒を添加し、水素を接触させて、炭素－炭素不飽和結合を好ましくは９０％以上水素化することによって得ることができる。

[0216] ノルボルネン系樹脂の中でも、繰り返し単位として、Ａ：ビシクロ［３．３．０］オクタン－２，４－ジイル－エチレン構造と、Ｂ：トリシクロ［４．３．０．１２，５］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、ノルボルネン系樹脂の繰り返し単位全体に対して９０質量％以上であり、かつ、Ａの含有割合とＢの含有割合との比が、Ａ：Ｂの質量比で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フィルムを得ることができる。

[0217] 本発明に好適に用いる脂環式ポリオレフィン樹脂の分子量は使用目的に応じて適宜選定されるが、溶媒としてシクロヘキサン（樹脂が溶解しない場合はトルエン）を用いるゲル・パーミエーション・クロマトグラフィーで測定したポリイソプレン（溶媒がトルエンのときは、ポリスチレン換算）の重量平均分子量（Ｍｗ）で、通常１５，０００～５０，０００、好ましくは１８，０００～４５，０００、より好ましくは２０，０００～４０，０００である。重量平均分子量がこのような範囲にあるときに、フィルムの機械的強度及び成形性とが高度にバランスされ好適である。

[0218] 本発明に好適に用いる脂環式ポリオレフィン樹脂の分子量分布（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、通常１．０～１０．０、好ましくは１．１～４．０、より好ましくは１．２～３．５の範囲である。

[0219] ＜原反フィルムの製造例＞

本発明に用いられる原反フィルムは、溶液流延製膜法又は溶融流延製膜法のいずれの方法で製造されてもよい。以下、典型的例として、セルロースエステルフィルムを溶液流延製膜法について説明する。

[0220] セルロースエステルフィルムの製造は、セルロースエステル及び前記可塑剤などの添加剤を溶剤に溶解させてドープを調製する工程、ドープをベルト

状若しくはドラム状の金属支持体上に流延する工程、流延したドープをウェブとして乾燥する工程、金属支持体から剥離する工程、延伸する工程、更に乾燥する工程、必要であれば得られたフィルムを更に熱処理する工程、冷却後巻き取る工程により行われる。本発明に用いられるセルロースエステルフィルムは固形分中に好ましくはセルロースエステルを６０～９５質量％含有するものである。

[0221] ドープを調製する工程について述べる。ドープ中のセルロースエステルの濃度は、濃度が高い方が金属支持体に流延した後の乾燥負荷が低減出来て好ましいが、セルロースエステルの濃度が高過ぎると濾過時の負荷が増えて、濾過精度が悪くなる。これらを両立する濃度としては、１０～３５質量％が好ましく、更に好ましくは、１５～２５質量％である。

[0222] セルロースエステルを溶解しセルロースエステル溶液又はドープ形成に有用な有機溶媒としては、塩素系有機溶媒と非塩素系有機溶媒がある。塩素系の有機溶媒としてメチレンクロライド（塩化メチレン）を挙げることができ、セルロースエステル、特にセルローストリアセテートの溶解に適している。昨今の環境問題から非塩素系有機溶媒の使用が検討されている。非塩素系有機溶媒としては、例えば、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸アミル、アセトン、テトラヒドロフラン、１，３－ジオキソラン、１，４－ジオキサン、シクロヘキサノン、ギ酸エチル、２，２，２－トリフルオロエタノール、２，２，３，３－ヘキサフルオロ－１－プロパノール、１，３－ジフルオロ－２－プロパノール、１，１，１，３，３，３－ヘキサフルオロ－２－メチル－２－プロパノール、１，１，１，３，３，３－ヘキサフルオロ－２－プロパノール、２，２，３，３，３－ペンタフルオロ－１－プロパノール、ニトロエタン等を挙げることができる。これらの有機溶媒をセルローストリアセートに対して使用する場合には、常温での溶解方法も使用可能であるが、高温溶解方法、冷却溶解方法、高圧溶解方法等の溶解方法を用いることにより不溶解物を少なくすることができるので好ましい。セルローストリアセート以外のセルロースエステルに対しては、メチレンクロライドを用いること

はできるが、酢酸メチル、酢酸エチル、アセトンが好ましく使用される。特に酢酸メチルが好ましい。本発明において、上記セルロースエステルに対して良好な溶解性を有する有機溶媒を良溶媒といい、また溶解に主たる効果を示し、その中で大量に使用する有機溶媒を主（有機）溶媒又は主たる（有機）溶媒という。

[0223] 本発明に用いられるドープには、上記有機溶媒の他に、１～４０質量%の炭素原子数１～４のアルコールを含有させることが好ましい。これらはドープを金属支持体に流延後溶媒が蒸発をし始めアルコールの比率が多くなるとドープ膜（ウェブ）がゲル化し、ウェブを丈夫にし金属支持体から剥離することを容易にするゲル化溶媒として用いられたり、これらの割合が少ない時は非塩素系有機溶媒のセルロースエステルの溶解を促進する役割もある。炭素原子数１～４のアルコールとしては、メタノール、エタノール、ｎ－プロパノール、ｉｓｏ－プロパノール、ｎ－ブタノール、ｓｅｃ－ブタノール、ｔｅｒｔ－ブタノールを挙げることができる。これらのうちドープの安定性に優れ、沸点も比較的低く、乾燥性もよいこと等からエタノールが好ましい。これらの有機溶媒は単独ではセルロースエステルに対して溶解性を有していないので貧溶媒という。

[0224] ドープ中のセルロースエステルの濃度は１５～３０質量%、ドープ粘度は１００～５００Ｐａ・ｓの範囲に調製されることが良好なフィルム面品質を得る上で好ましい。

[0225] 上記記載のドープを調製する時の、セルロースエステルの溶解方法としては、一般的な方法を用いることができる。加熱と加圧を組み合わせると常圧における沸点以上に加熱できる。溶剤の常圧での沸点以上でかつ加圧下で溶剤が沸騰しない範囲の温度で加熱しながら攪拌溶解すると、ゲルやママコと呼ばれる塊状未溶解物の発生を防止するため好ましい。また、セルロースエステルを貧溶剤と混合して湿潤或いは膨潤させた後、更に良溶剤を添加して溶解する方法も好ましく用いられる。

[0226] 加圧は窒素ガス等の不活性気体を圧入する方法や、加熱によって溶剤の蒸

気圧を上昇させる方法によって行ってもよい。加熱は外部から行うことが好ましく、例えばジャケットタイプのものは温度コントロールが容易で好ましい。

[0227] 溶剤を添加しての加熱温度は、高い方がセルロースエステルの溶解性の観点から好ましいが、加熱温度が高過ぎると必要とされる圧力が大きくなり生産性が悪くなる。好ましい加熱温度は４５～１２０℃であり、６０～１１０℃がより好ましく、７０℃～１０５℃が更に好ましい。また、圧力は設定温度で溶剤が沸騰しないように調整される。

[0228] 若しくは冷却溶解法も好ましく用いられ、これによって酢酸メチルなどの溶媒にセルロースエステルを溶解させることができる。

[0229] 次に、このセルロースエステル溶液を濾紙等の適当な濾過材を用いて濾過する。濾過材としては、不溶物等を除去するために絶対濾過精度が小さい方が好ましいが、絶対濾過精度が小さ過ぎると濾過材の目詰まりが発生しやすいという問題がある。このため絶対濾過精度０．００８ｍｍ以下の濾材が好ましく、０．００１～０．００８ｍｍの濾材がより好ましく、０．００３～０．００６ｍｍの濾材が更に好ましい。

[0230] 濾材の材質は特に制限はなく、通常の濾材を使用することができるが、ポリプロピレン、テフロン（登録商標）等のプラスチック製の濾材や、ステンレススティール等の金属製の濾材が繊維の脱落等がなく好ましい。濾過により、原料のセルロースエステルに含まれていた不純物、特に輝点異物を除去、低減することが好ましい。

[0231] ドープの濾過は通常の方法で行うことができるが、溶剤の常圧での沸点以上で、かつ加圧下で溶剤が沸騰しない範囲の温度で加熱しながら濾過する方法が、濾過前後の濾圧の差（差圧という）の上昇が小さく、好ましい。好ましい温度は４５～１２０℃であり、４５～７０℃がより好ましく、４５～５５℃であることが更に好ましい。

[0232] 濾圧は小さい方が好ましい。濾圧は１．６ＭＰａ以下であることが好ましく、１．２ＭＰａ以下であることがより好ましく、１．０ＭＰａ以下である

ことが更に好ましい。

[0233] ここで、ドープの流延について説明する。

[0234] 流延（キャスト）工程における金属支持体は、表面を鏡面仕上げしたものが好ましく、金属支持体としては、ステンレススティールベルト若しくは鋳物で表面をメッキ仕上げしたドラムが好ましく用いられる。キャストの幅は１～４ｍとすることができる。流延工程の金属支持体の表面温度は－５０℃～溶剤が沸騰して発泡しない温度以下に設定される。温度が高い方がウェブの乾燥速度が速くできるので好ましいが、余り高過ぎるとウェブが発泡したり、平面性が劣化する場合がある。好ましい支持体温度としては０～１００℃で適宜決定され、５～３０℃が更に好ましい。或いは、冷却することによってウェブをゲル化させて残留溶媒を多く含んだ状態でドラムから剥離することも好ましい方法である。金属支持体の温度を制御する方法は特に制限されないが、温風又は冷風を吹きかける方法や、温水を金属支持体の裏側に接触させる方法がある。温水を用いる方が熱の伝達が効率的に行われるため、金属支持体の温度が一定になるまでの時間が短く好ましい。温風を用いる場合は溶媒の蒸発潜熱によるウェブの温度低下を考慮して、溶媒の沸点以上の温風を使用しつつ、発泡も防ぎながら目的の温度よりも高い温度の風を使う場合がある。特に、流延から剥離するまでの間で支持体の温度及び乾燥風の温度を変更し、効率的に乾燥を行うことが好ましい。

[0235] セルロースエステルフィルムが良好な平面性を示すためには、金属支持体からウェブを剥離する際の残留溶媒量は１０～１５０質量％が好ましく、更に好ましくは２０～４０質量％又は６０～１３０質量％であり、特に好ましくは、２０～３０質量％又は７０～１２０質量％である。また、該金属支持体上の剥離位置における温度を－５０～４０℃とするのが好ましく、１０～４０℃がより好ましく、１５～３０℃とするのが最も好ましい。

[0236] 本発明においては、残留溶媒量は下記式で定義される。

残留溶媒量（質量％）＝｛（Ｍ－Ｎ）／Ｎ｝×１００

なお、Ｍはウェブ又はフィルムを製造中又は製造後の任意の時点で採取し

た試料の質量で、ＮはＭを１１５℃で１時間の加熱後の質量である。

[0237] また、セルロースエステルフィルムの乾燥工程においては、ウェブを金属支持体より剥離し、更に乾燥し、残留溶媒量が０．５質量％以下となるまで乾燥される。

[0238] フィルム乾燥工程では一般にロール乾燥方式（上下に配置した多数のロールをウェブを交互に通し乾燥させる方式）やテンター方式でウェブを搬送させながら乾燥する方式が採られる。

[0239] 前記金属支持体から剥離する際に、剥離張力及びその後の搬送張力によってウェブは縦方向に延伸する為、本発明においては流延支持体からウェブを剥離する際は剥離及び搬送張力をできるだけ下げた状態で行うことが好ましい。具体的には、例えば５０～１７０Ｎ／ｍ以下にすることが効果的である。その際、２０℃以下の冷風を当て、ウェブを急速に固定化することが好ましい。

[0240] 次いで、上記乾燥したフィルムを未延伸の原反フィルムとして、前述の本発明に係る斜め延伸テンターにより所望の角度に延伸を行い、ポリマーフィルムとすることができる。

[0241] ＜ポリマーフィルム＞

本発明のポリマーフィルムは、後述するように偏光板保護フィルム、位相差フィルム（λ／４板を含む）、反射防止フィルムなどの光学フィルムとして好ましく用いられる。

[0242] 本発明のポリマーフィルムは、２３℃、５５％ＲＨの環境下、波長５５０ｎｍで測定される面内位相差値Ｒｏ（５５０）が、１１０～１７０ｎｍの範囲内であることが好ましい。面内位相差値Ｒｏは、自動複屈折率計を用いて測定することができる。測定は、２３℃、５５％ＲＨの環境下で行うことができる。

[0243] 本発明のポリマーフィルムの面内遅相軸（ｂ）とポリマーフィルムの幅手方向（ａ）とのなす角θ_1は、４０°≦θ_1≦５０°を満たすことが好ましく、４４°≦θ_1≦４６°を満たすことがより好ましい。

[0244] ポリマーフィルムの厚みは、特に制限されないが、温度や湿度などの条件による位相差の変動を抑制するためには、１００μｍ以下であることが好ましく、８０μｍ以下であることがより好ましく、６０μｍ以下であることがさらに好ましい。一方、フィルムの機械的強度を確保するためには、ポリマーフィルムの厚みは、２０μｍ以上であることが好ましく、３０μｍ以上であることがより好ましい。

[0245] ＜機能性層＞

本発明のポリマーフィルムには、ハードコート層、帯電防止層、バックコート層、反射防止層、易滑性層、接着層、防眩層、バリアー層等の機能性層を設けることができる。

[0246] 〈ハードコート層〉

本発明のポリマーフィルムは、ハードコート層を設けてもよい。ハードコート層は活性線硬化性樹脂の硬化物を含有し、紫外線や電子線のような活性線（活性エネルギー線ともいう）照射により、架橋反応を経た硬化した樹脂を主たる成分とすることが好ましい。

[0247] ハードコート層は、活性線硬化性樹脂、光重合開始剤、必要に応じて微粒子を含むハードコート層用塗布液を、塗布および乾燥した後、ＵＶ硬化処理することで形成されうる。

[0248] 活性線硬化性樹脂としては、エチレン性不飽和二重結合を有するモノマーを含む成分が好ましく用いられ、紫外線や電子線のような活性線を照射することによって硬化する樹脂である。

[0249] 活性線硬化性樹脂としては、紫外線硬化性樹脂や電子線硬化性樹脂等が代表的なものとして挙げられるが、紫外線照射によって硬化する樹脂が機械的膜強度（耐擦傷性、鉛筆硬度）に優れる点から好ましい。

[0250] 紫外線硬化性樹脂としては、例えば、紫外線硬化型ウレタンアクリレート系樹脂、紫外線硬化型ポリエステルアクリレート系樹脂、紫外線硬化型エポキシアクリレート系樹脂、紫外線硬化型ポリオールアクリレート系樹脂、又は紫外線硬化型エポキシ樹脂等が好ましく用いられる。中でも紫外線硬化型

アクリレート系樹脂が好ましい。

[0251] また、ハードコート層用塗布液は、活性線硬化性樹脂の硬化促進のため、光重合開始剤を含有することが好ましい。光重合開始剤量としては、質量比で、光重合開始剤：活性線硬化性樹脂＝２０：１００～０．０１：１００で含有することが好ましい。

[0252] 光重合開始剤としては、具体的には、アセトフェノン、ベンゾフェノン、ヒドロキシベンゾフェノン、ミヒラーケトン、αーアミロキシムエステル、チオキサントン等及びこれらの誘導体を挙げることができるが、特にこれらに限定されるものではない。

[0253] また、ハードコート層用塗布液は、無機化合物又は有機化合物の微粒子を含むことが好ましい。

[0254] 無機微粒子としては、酸化珪素、酸化チタン、酸化アルミニウム、酸化スズ、酸化インジウム、ＩＴＯ、酸化亜鉛、酸化ジルコニウム、酸化マグネシウム、炭酸カルシウム、タルク、クレイ、焼成カオリン、焼成ケイ酸カルシウム、水和ケイ酸カルシウム、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸マグネシウム及びリン酸カルシウムを挙げることができる。特に、酸化珪素、酸化チタン、酸化アルミニウム、酸化ジルコニウム、酸化マグネシウム等が好ましく用いられる。

[0255] 有機粒子としては、ポリメタアクリル酸メチルアクリレート樹脂粉末、アクリルスチレン系樹脂粉末、ポリメチルメタクリレート樹脂粉末、シリコン系樹脂粉末、ポリスチレン系樹脂粉末、ポリカーボネート樹脂粉末、ベンゾグアナミン系樹脂粉末、メラミン系樹脂粉末、ポリオレフィン系樹脂粉末、ポリエステル系樹脂粉末、ポリアミド系樹脂粉末、ポリイミド系樹脂粉末、又はポリ弗化エチレン系樹脂粉末等を添加することができる。

[0256] これらの微粒子粉末の平均粒子径は特に制限されないが、０．０１～５μｍが好ましく、更には、０．０１～１．０μｍであることが特に好ましい。また、粒径の異なる二種以上の微粒子を含有しても良い。微粒子の平均粒子径は、例えばレーザー回折式粒度分布測定装置により測定することができる

。

[0257] 紫外線硬化樹脂組成物と微粒子の割合は、樹脂組成物１００質量部に対して、１０～４００質量部となるように配合することが望ましく、更に望ましくは、５０～２００質量部である。

[0258] ハードコート層のドライ膜厚としては平均膜厚０．１～３０μｍ、好ましくは１～２０μｍ、特に好ましくは６～１５μｍである。

[0259] ＵＶ硬化処理の光源としては、紫外線を発生する光源であれば制限なく使用できる。例えば、低圧水銀灯、中圧水銀灯、高圧水銀灯、超高圧水銀灯、カーボンアーク灯、メタルハライドランプ、キセノンランプ等を用いることができる。

[0260] 照射条件はそれぞれのランプによって異なるが、活性線の照射量は、通常５～５００ｍＪ／ｃｍ^2、好ましくは５～２００ｍＪ／ｃｍ^{2}である。

[0261] 〈バックコート層〉

本発明のポリマーフィルムには、フィルムのハードコート層を設けた側と反対側の面に、カールやくっつき防止のためにバックコート層を設けてもよい。

[0262] バックコート層に添加される粒子としては無機化合物の例として、二酸化珪素、二酸化チタン、酸化アルミニウム、酸化ジルコニウム、炭酸カルシウム、炭酸カルシウム、タルク、クレイ、焼成カオリン、焼成ケイ酸カルシウム、酸化錫、酸化インジウム、酸化亜鉛、ＩＴＯ、水和ケイ酸カルシウム、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸マグネシウム及びリン酸カルシウムを挙げることができる。

[0263] バックコート層に含まれる粒子は、バインダーに対して０．１～５０質量％が好ましい。バックコート層を設けた場合のヘイズの増加は１．５％以下であることが好ましく、０．５％以下であることが更に好ましく、特に０．１％以下であることが好ましい。

[0264] 〈反射防止層〉

本発明のポリマーフィルムには、ハードコート層の上層に反射防止層を塗

設して、外光反射防止機能を有する反射防止フィルムとして用いることができる。

[0265] 反射防止層は、光学干渉によって反射率が減少するように屈折率、膜厚、層の数、層順等を考慮して積層されていることが好ましい。反射防止層は、支持体よりも屈折率の低い低屈折率層、もしくは支持体よりも屈折率の高い高屈折率層と低屈折率層を組み合わせて構成されていることが好ましい。特に好ましくは、三層以上の屈折率層から構成される反射防止層であり、支持体側から屈折率の異なる三層を、中屈折率層（支持体よりも屈折率が高く、高屈折率層よりも屈折率の低い層）／高屈折率層／低屈折率層の順に積層されているものが好ましく用いられる。又は、二層以上の高屈折率層と二層以上の低屈折率層とを交互に積層した四層以上の層構成の反射防止層も好ましく用いられる。

[0266] 反射防止フィルムの層構成としては下記のような構成が考えられるが、これに限定されるものではない。ここで／は積層配置されていることを示している。

ポリマーフィルム／クリアハードコート層／低屈折率層

ポリマーフィルム／クリアハードコート層／高屈折率層／低屈折率層

ポリマーフィルム／クリアハードコート層／中屈折率層／高屈折率層／低屈折率層

ポリマーフィルム／防眩性ハードコート層／低屈折率層

ポリマーフィルム／防眩性ハードコート層／高屈折率層／低屈折率層

ポリマーフィルム／防眩性ハードコート層／中屈折率層／高屈折率層／低屈折率層

[0267] 反射防止フィルムには必須である低屈折率層は、シリカ系微粒子を含有することが好ましく、その屈折率は、支持体の屈折率より低く、例えば、セルロースフィルムの屈折率より低く、２３℃、波長５５０ｎｍ測定で、１．３０～１．４５の範囲であることが好ましい。

[0268] 低屈折率層の膜厚は、５ｎｍ～０．５μｍであることが好ましく、１０ｎ

ｍ～０．３μｍであることが更に好ましく、３０ｎｍ～０．２μｍであることが最も好ましい。

[0269] 低屈折率層形成用組成物については、シリカ系微粒子として、特に外殻層を有し内部が多孔質又は空洞の粒子を少なくとも一種類以上含むことが好ましい。特に該外殻層を有し内部が多孔質又は空洞である粒子が、中空シリカ系微粒子であることが好ましい。

[0270] なお、低屈折率層形成用組成物には、下記式で表される有機珪素化合物もしくはその加水分解物、或いは、その重縮合物を併せて含有させても良い。

$$Si(OR)_4$$

[0271] 上記式中、Ｒは炭素数１～４のアルキル基を表す。上記式で表される有機珪素化合物の具体例には、テトラメトキシシラン、テトラエトキシシラン、テトライソプロポキシシラン等が好ましく用いられる。

[0272] 他に溶剤、必要に応じて、シランカップリング剤、硬化剤、界面活性剤等を添加してもよい。

[0273] ＜偏光板＞

本発明のポリマーフィルムは、目的に応じて種々の態様で偏光板に用いることができる。即ち、本発明の偏光板は、偏光子と、その少なくとも一方の面に直接または他の層を介して配置された本発明のポリマーフィルムとを含む。そして、本発明のポリマーフィルムは、下記特徴を有するλ／４板として用いることが好ましい。

[0274] 本発明において、「λ／４板」とは、ある特定の波長の直線偏光を円偏光に（又は、円偏光を直線偏光に）変換する機能を有するものをいう。λ／４板は、所定の光の波長（通常、可視光領域）に対して、層の面内の位相差値Ｒｏが約１／４となるように設計されている。

[0275] すなわち、λ／４板は、可視光の波長の範囲において、ほぼ完全な円偏光を得るため、可視光の波長の範囲において概ね波長の１／４の位相差（リターデーション）を有する位相差板であることが好ましい。

[0276] 「可視光の波長の範囲において概ね１／４の位相差」とは、波長４００か

ら７００ｎｍにおいて長波長ほど位相差が大きく、波長４５０ｎｍで測定した下記式（ｉ）で表される面内位相差値であるＲｏ（４５０）と波長５９０ｎｍで測定した面内位相差値であるＲｏ（５９０）が、１＜Ｒｏ（５９０）／Ｒｏ（４５０）≦１．６を満たすことが好ましい。さらにλ／４板として有効に機能するためには、Ｒｏ（４５０）が１００～１２５ｎｍの範囲内であり、波長５５０ｎｍで測定した位相差値Ｒｏ（５５０）が１１０～１７０ｎｍの範囲内であり、Ｒｏ（５９０）が１３０～１５２ｎｍの範囲内の位相差フィルムであることがより好ましい。

[0277] 式（ｉ）：Ｒｏ＝（ｎｘ－ｎｙ）×ｄ

式（ii）：Ｒｔ＝｛（ｎｘ＋ｎｙ）／２－ｎｚ｝×ｄ

式中、ｎｘ、ｎｙは、２３℃・５５％ＲＨ、４５０ｎｍ、５５０ｎｍ、５９０ｎｍの各々における屈折率ｎｘ（フィルムの面内の最大の屈折率、遅相軸方向の屈折率ともいう。）、ｎｙ（フィルム面内で遅相軸に直交する方向の屈折率）であり、ｄはフィルムの厚さ（ｎｍ）である。

[0278] 面内位相差値Ｒｏ、及び厚さ方向の位相差値Ｒｔは自動複屈折率計を用いて測定することができる。自動複屈折率計ＫＯＢＲＡ－２１ＡＤＨ（王子計測機器（株）製）を用いて、２３℃、５５％ＲＨの環境下で、各波長での位相差値を測定する。

[0279] なお、位相差値の調整は、ポリマーフィルムの構成成分、組成、延伸条件等の調整、制御によって行うことができる。また、位相差（リターデーション）調整剤の添加によってもできる。

[0280] λ／４板の遅相軸と後述する偏光子の透過軸との角度が実質的に４５°になるように積層すると円偏光板が得られる。「実質的に４５°」とは、４０～５０°であることを意味する。λ／４板の面内の遅相軸と偏光子の透過軸との角度は、４１～４９°であることが好ましく、４２～４８°であることがより好ましく、４３～４７°であることが更に好ましく、４４～４６°であることが最も好ましい。

[0281] 偏光子は、ヨウ素、又は二色性染料をドープしたポリビニルアルコールフ

ィルムを延伸して得られるフィルムでありうる。ヨウ素などのドープは、例えばポリビニルアルコール系フィルムをヨウ素溶液など中に浸漬して行うことができる。

[0282] 偏光子の膜厚は５～４０μｍ、好ましくは５～３０μｍであり、特に好ましくは５～２０μｍである。

[0283] 偏光子の、λ／４板が配置された面とは反対側の面には、光学フィルム（Ｙ）が配置されてもよい。光学フィルム（Ｙ）は、ポリマーフィルムであることが好ましく、製造が容易であること、光学的に均一性であること、光学的に透明性であることが好ましい。これらの性質を有していれば何れでもよく、例えば、セルロースエステル系フィルム、ポリエステル系フィルム、ポリカーボネート系フィルム、ポリアリレート系フィルム、ポリスルホン（ポリエーテルスルホンも含む）系フィルム、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート等のポリエステルフィルム、ポリエチレンフィルム、ポリプロピレンフィルム、セロファン、セルロースジアセテートフィルム、セルロースアセテートブチレートフィルム、ポリ塩化ビニリデンフィルム、ポリビニルアルコールフィルム、エチレンビニルアルコールフィルム、シンジオタクティックポリスチレン系フィルム，ポリカーボネートフィルム、ノルボルネン樹脂系フィルム、ポリメチルペンテンフィルム、ポリエーテルケトンフィルム、ポリエーテルケトンイミドフィルム、ポリアミドフィルム、フッ素ポリマーフィルム、ナイロンフィルム、シクロオレフィンポリマーフィルム、ポリビニルアセタール系ポリマーフィルム、ポリメチルメタクリレートフィルム又はアクリルフィルム等を挙げることができるが、これらに限定されるわけではない。

[0284] セルロースエステル系フィルムの場合は、前述のポリマーフィルムで用いられるセルロースアセテート、可塑剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤、位相差調整剤、マット剤、劣化防止剤、剥離助剤、界面活性剤等を好ましく用いることができる。

[0285] 偏光子の、λ／４板が配置された面とは反対側の面に配置される光学フィ

ルム（Ｙ）の、上記式で定義される位相差値Ｒｏ、Ｒｔは、各々２０～１５０ｎｍ、７０～４００ｎｍである光学フィルム、又は０ｎｍ≦Ｒｏ≦２ｎｍ、かつ－１５ｎｍ≦Ｒｔ≦１５ｎｍであることが好ましい。

[0286] 上記光学フィルム（Ｙ）として、例えば、負の一軸性を有する化合物であるディスコティック液晶性化合物を支持体上に担持させる方法（例えば、特開平７－３２５２２１号公報参照。）、正の光学異方性を有するネマティック型高分子液晶性化合物を深さ方向に液晶分子のプレチルト角が変化するハイブリッド配向をさせたものを支持体上に担持させる方法（例えば、特開平１０－１８６３５６号公報参照。）、正の光学異方性を有するネマティック型液晶性化合物を支持体上に２層構成にして各々の層の配向方向を略９０°とすることにより擬似的に負の一軸性類似の光学特性を付与させる方法（例えば、特開平８－１５６８１号公報参照。）等による光学異方性層を支持体上に設けた光学フィルム、又は、従来のＴＡＣフィルムの代わりにセルロース誘導体フィルムを延伸により位相差を発現させ、これをケン化処理してＰＶＡ偏光子をラミネートすることにより位相差フィルムの機能を併せ持つ光学フィルム（例えば、特開２００３－２７０４４２号公報参照。）、セルロースエステルフィルムに位相差調整剤を添加し、位相差フィルムを得る方法（例えば、特開２０００－２７５４３４号公報、２００３－３４４６５５号公報参照）等による光学補償フィルムが挙げられるが、これらに限定されるものではない。

[0287] 例えば、市販のセルロースエステルフィルムとして、コニカミノルタタック　ＫＣ８ＵＸ、ＫＣ４ＵＸ、ＫＣ５ＵＸ、ＫＣ８ＵＣＲ３、ＫＣ８ＵＣＲ４、ＫＣ８ＵＣＲ５、ＫＣ８ＵＹ、ＫＣ４ＵＹ、ＫＣ１２ＵＲ、ＫＣ１６ＵＲ、ＫＣ４ＵＥ、ＫＣ８ＵＥ、ＫＣ４ＦＲ－１、ＫＣ４ＦＲ－２（以上コニカミノルタオプト（株）製）なども好ましく用いられる。

[0288] 偏光板は、本発明のポリマーフィルムであるλ／４板、偏光子および光学フィルム（Ｙ）を貼り合わせて製造することができる。具体的には、本発明に係るポリマーフィルムであるλ／４板をアルカリ鹸化処理した後、偏光子

の少なくとも一方の面に、完全鹸化型ポリビニルアルコール水溶液を用いて貼り合わせることが好ましい。偏光子のもう一方の面には、前記光学フィルム（Ｙ）を貼り合わせることが好ましい。

[0289] 偏光板は、更に当該偏光板の一方の面にプロテクトフィルムを、反対面にセパレートフィルムを貼合して構成することができる。プロテクトフィルム及びセパレートフィルムは偏光板出荷時、製品検査時等において偏光板を保護する目的で用いられる。

[0290] ＜液晶表示装置＞

液晶表示装置は、液晶セルと、それを挟持する一対の偏光板とを含む。一対の偏光板のうち少なくとも一方は、前述の本発明の偏光板としうる。本発明の偏光板は、前述の通り、偏光子と、その少なくとも一方の面に配置された本発明のポリマーフィルムとを含む。

[0291] 本発明のポリマーフィルムは、前述の通り、λ／４板として好ましく用いられる。その場合、本発明のλ／４板を含む偏光板は、液晶セルの視認側の面に配置されることが好ましい。さらに、本発明のλ／４板は、偏光子の視認側の面（液晶セル側とは反対側の面）に配置されることが好ましい。

[0292] 液晶セルは、反射型、透過型、半透過型ＬＣＤ或いは、スーパーツイステッドネマティック（ＳＴＮ）モード、ツイステッドネマティック（ＴＮ）モード、インプレーンスイッチング（ＩＰＳ）モード、垂直配向（ＶＡ）モード、ベンドネマチック（ＯＣＢ：Ｏｐｔｉｃａｌｌｙ Ａｌｉｇｎｅｄ Ｂｉｒｅｆｒｉｎｇｅｎｃｅ）モード及びハイブリッド配向（ＨＡＮ：Ｈｙｂｒｉｄ Ａｌｉｇｎｅｄ Ｎｅｍａｔｉｃ）モードのものが好ましく用いられる。

実施例

[0293] 以下に実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0294] ＜製造例１＞

＜ロール状の原反フィルム１の作製＞

（ポリエステルＡの作製）

窒素雰囲気下、テレフタル酸ジメチル４．８５ｇ、１，２－プロピレングリコール４．４ｇ、ｐ－トルイル酸６．８ｇ、テトライソプロピルチタネート１０ｍｇを混合し、１４０℃で２時間攪拌を行った後、更に２１０℃で１６時間攪拌を行った。次に、１７０℃まで降温し、未反応物の１，２－プロピレングリコールを減圧留去することにより、ポリエステルＡを得た。ポリエステルＡはジカルボン酸に対してモノカルボン酸が２倍モル使用されているので末端がトルイル酸エステルになっている。

[0295] 酸価　　：０．１

数平均分子量：４９０

分散度　　：１．４

分子量３００～１８００の成分含有率：９０％

ヒドロキシル（水酸基）価：０．１

ヒドロキシル基（水酸基）含有量：０．０４％

[0296] 〈微粒子分散液１〉

微粒子（アエロジル　Ｒ８１２　日本アエロジル（株）製）：１１質量部

エタノール：８９質量部

以上をディゾルバーで５０分間攪拌混合した後、マントンゴーリンで分散を行った。

[0297] 〈微粒子添加液１〉

メチレンクロライドを入れた溶解タンクに十分攪拌しながら、微粒子分散液１をゆっくりと添加した。更に、二次粒子の粒径が所定の大きさとなるようにアトライターにて分散を行った。これを日本精線（株）製のファインメットＮＦで濾過し、微粒子添加液１を調製した。

メチレンクロライド：９９質量部

微粒子分散液１：５質量部

[0298] 下記組成の主ドープ液を調製した。まず加圧溶解タンクにメチレンクロライドとエタノールを添加した。溶剤の入った加圧溶解タンクにセルロースエ

ステルを攪拌しながら投入した。これを加熱し、攪拌しながら、完全に溶解させた。これを安積濾紙（株）製の安積濾紙Ｎｏ．２４４を使用して濾過し、主ドープ液を調製した。

〈主ドープ液の組成〉

メチレンクロライド：３４０質量部

エタノール：６４質量部

セルロースエステル（セルロースジアセテート：アセチル基置換度２．４、プロピオニル基０、総置換度２．４）：１００質量部

下記糖エステル化合物Ａ：７．０質量部

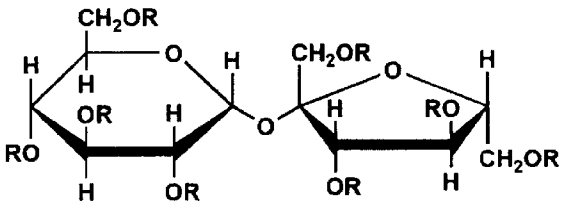
ポリエステルＡ：２．５質量部

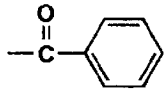
ＴＩＮＵＶＩＮ９２８（ＢＡＳＦジャパン社製）：１．５質量部

微粒子添加液１：１質量部

[化4]

糖エステル化合物A



R＝  又は H 平均置換度 5.5

[0299] 以上を密閉容器に投入し、攪拌しながら溶解してドープ液を調製した。

[0300] 次いで、無端ベルト流延装置を用い、ドープ液を温度３３℃、１５００ｍｍ幅でステンレスベルト支持体上に均一に流延した。ステンレスベルトの温度は３０℃に制御した。ステンレスベルト支持体上で、流延（キャスト）したフィルム中の残留溶媒量が７５％になるまで溶媒を蒸発させ、次いで剥離張力１１０Ｎ／ｍで、ステンレスベルト支持体上から剥離した。剥離したセルロースエステルフィルムを、１６０℃の熱をかけながらテンターを用いて幅方向に５％延伸した。延伸開始時の残留溶媒は１５％であった。そして、

乾燥ゾーンを多数のロールで搬送させながら乾燥を終了させた。乾燥温度は１３０℃で、搬送張力は１００Ｎ／ｍとした。以上のようにして、平均乾燥膜厚７５μｍのロール状の原反フィルム１を得た。

[0301] 得られた原反フィルム１の長手方向の厚さムラは０．１５μｍ、幅手方向の厚さムラは０．１５μｍであった。波長５５０ｎｍにおける面内位相差及び厚さ方向の位相差を前述の方法で測定したところ、Ｒｏ（５５０）は１０ｎｍ、Ｒｔ（５５０）は１２０ｎｍであった。

[0302] ＜製造例２＞

＜ロール状の原反フィルム２の作製＞

製造例１においてセルロースエステルをアセチル基置換度１．５、プロピオニル基０．９、総置換度２．４のセルロースアセテートプロピオネートに変更した以外は製造例１と同様にロール状の原反フィルム２を得た。

[0303] 得られた原反フィルム２は平均乾燥膜厚が７６μｍ、長手方向の厚さムラは０．１５μｍ、幅手方向の厚さムラは０．１５μｍであった。また、波長５５０ｎｍにおける面内位相差値Ｒｏ（５５０）は１０ｎｍ、厚さ方向の位相差値Ｒｔ（５５０）は１１８ｎｍであった。

[0304] ＜製造例３＞

（アクリル系ポリマーの合成）

攪拌機、２個の滴下ロート、ガス導入管及び温度計の付いたガラスフラスコに、メチルメタクリレート２８ｇ、Ｎ－ビニルピロリドン１２ｇ、連鎖移動剤のメルカプトプロピオン酸２ｇ及びトルエン３０ｇを仕込み、９０℃に昇温した。その後、一方の滴下ロートから、メチルメタクリレート４２ｇとＮ－ビニルピロリドン１８ｇの混合液６０ｇを３時間かけて滴下すると共に、同時にもう一方のロートからトルエン１４ｇに溶解したアゾビスイソブチロニトリル０．４ｇを３時間かけて滴下した。その後さらに、トルエン５６ｇに溶解したアゾビスイソブチロニトリル０．６ｇを２時間かけて滴下した後、さらに２時間反応を継続させ、ポリマーを得た。得られたポリマーは常温で固体であった。次いで連鎖移動剤のメルカプトプロピオン酸の添加量、

アゾビスイソブチロニトリルの添加速度を変更して分子量の異なるポリマーを作製した。当該ポリマーの重量平均分子量は下記測定法により１００００であった。

[0305] （重量平均分子量）

重合体の重量平均分子量は、前記説明したＧＰＣのポリスチレン換算により求めた。

[0306] ＜製造例４＞

＜ロール状の原反フィルム３の作製＞

（ドープ液の調製）

セルロースエステル（セルロースアセテートプロピオネート：アセチル基置換度０．０５、プロピオニル基１．８９、総置換度１．９４：温度６０℃で２４時間真空乾燥）：７０質量部

製造例３で作製したアクリル系ポリマー：３０質量部

ＴＩＮＵＶＩＮ９２８（ＢＡＳＦジャパン社製）：１．５質量部

酸化ケイ素微粒子（アエロジルＲ９７２Ｖ（日本アエロジル株式会社製））：０．１質量部

メチレンクロライド：３００質量部

エタノール：４０質量部

[0307] 上記組成のドープ液を作製し次いで日本精線（株）製のファインメットＮＦ濾過し、ベルト流延装置を用い、温度２２℃、２ｍ幅でステンレスバンド支持体に均一に流延した。

ステンレスバンド支持体で、残留溶剤量が１００％になるまで溶媒を蒸発させ、剥離張力１６２Ｎ／ｍでステンレスバンド支持体上から剥離した。剥離したセルロースエステルのウェブを３５℃で溶媒を蒸発させ、１．６ｍ幅にスリットし、その後、テンターで幅手方向に１．０５倍に延伸しながら、１３５℃の乾燥温度で乾燥させた。このときテンターで延伸を始めたときの残留溶剤量は１０％であった。テンターで延伸後、１３０℃で５分間緩和を行った後、１２０℃、１３０℃の乾燥ゾーンを多数のロールで搬送させなが

ら乾燥を終了させ、１．５ｍ幅にスリットし、フィルム両端に幅１０ｍｍ高さ５μｍのナーリング加工を施し、初期張力２２０Ｎ／ｍ、終張力１１０Ｎ／ｍで内径６インチコアに巻き取り、ロール状の原反フィルム３を得た。ステンレスバンド支持体の回転速度とテンターの運転速度から算出されるＭＤ方向の延伸倍率は１．０１倍であった。平均乾燥膜厚７６μｍ、巻数は４０００ｍの原反フィルム３を得た。

[0308] 得られた原反フィルム３の長手方向の厚さムラは０．１５μｍ、幅手方向の厚さムラは０．１５μｍであった。波長５５０ｎｍにおける面内位相差値Ｒｏ（５５０）は５ｎｍ、厚さ方向の位相差値Ｒｔ（５５０）は１１５ｎｍであった。

[0309] ＜製造例５＞

＜ロール状の原反フィルム４の作製＞

攪拌装置、温度センサー、冷却管、窒素導入管を付した３０Ｌ反応釜に、メタクリル酸メチル（ＭＭＡ）７０００ｇ、２－（ヒドロキシメチル）アクリル酸メチル（ＭＨＭＡ）３０００ｇ、トルエン１２０００ｇを仕込み、これに窒素を通じつつ、１０５℃まで昇温し、還流したところで、開始剤としてｔ－アミルパーオキシイソノナノエート（ルパゾール５７０、アトフィナ吉富（株）製）６．０ｇを添加すると同時に、ｔ－アミルパーオキシイソノナノエート１２．０ｇ及びトルエン１００ｇからなる溶液を２時間かけて滴下しながら、還流下（約１０５～１１０℃）で溶液重合を行い、さらに４時間かけて熟成を行った。重合の反応率は９２．９％、重合体中のＭＨＭＡの含有率（質量比）は３０．２％であった。

[0310] 得られた重合体溶液に、リン酸オクチル／リン酸ジオクチル混合物（堺化学製、商品名：Ｐｈｏｓｌｅｘ　Ａ－８）２０ｇを加え、還流下（約８０～１０５℃）で２時間、環化縮合反応を行い、メチルエチルケトン４０００ｇを添加し、希釈した。さらに、２４０℃の熱媒を用いてオートクレーブ中で加圧下（ゲージ圧が最高約２ＭＰａ）で１．５時間環化縮合反応を行った。

[0311] 次いで、上記環化縮合反応で得られた重合体溶液を、熱交換器に通して２

２０℃まで昇温させた後、リアベント数１個、フォアベント数４個を有するベントタイプスクリュー二軸押出機（φ＝４２ｍｍ、Ｌ／Ｄ＝４２）に、樹脂量換算で１５ｋｇ／時間の処理速度で導入し、押出機内で環化縮合反応と脱揮処理を行った。押出機のシリンダー温度を２５０℃とし、回転数を１７０ｒｐｍとし、減圧度を１３．３ｈＰａ～４００ｈＰａ（１０ｍｍＨｇ～３００ｍｍＨｇ）とした。また、第一フォアベントと第二フォアベントとの中間で、オクチル酸亜鉛（ニッカオクチックス亜鉛１８％、日本化学産業（株）製）２６．５ｇ、酸化防止剤としてＩＲＧＡＮＯＸ　１０１０（ＢＡＳＦジャパン（株）製）２．２ｇ、およびアデカスタブＡＯ－４１２Ｓ（（株）ＡＤＥＫＡ製）２．２ｇ、トルエン６１．６ｇからなる溶液を２０ｇ／時間の速度で注入した。押出機内で脱揮操作させた後の重合体溶液を押し出して、透明なペレットを得た。

[0312] 得られたペレットについて、ダイナミックＴＧの測定を行ったところ、０．２１質量%の質量減少を検知した。また、ペレットの重量平均分子量は１１００００であり、メルトフローレートは８．７ｇ／１０分、ガラス転移温度は１４２℃であった。

[0313] 続いて、ペレットを、シリンダー径が２０ｍｍの単軸押出し機を用いて、下記条件で押出し成形し、平均膜厚７４μｍの原反フィルム４を作製した。

シリンダー温度：２８０℃

ダイ：コートハンガータイプ、温度２９０℃

キャスティング：つや付き二本ロール、第１ロール及び第２ロール共に１３０℃

[0314] 得られた原反フィルム４の長手方向の厚さムラは０．１５μｍ、幅手方向の厚さムラは０．１５μｍであった。波長５５０ｎｍにおける面内位相差値Ｒｏ（５５０）は５ｎｍ、厚さ方向の位相差値Ｒｔ（５５０）は０ｎｍであった。

[0315] ＜製造例６＞

＜ロール状の原反フィルム５の作製＞

ノルボルネン系樹脂（ＺＥＯＮＯＲ１４２０：ガラス転移点＝１３７℃、日本ゼオン社製）のペレットを１００℃で５時間乾燥した。該ペレットをシリンダー径が２０ｍｍの押出機に供給し、押出機内で溶融させ、ポリマーパイプ及びポリマーフィルターを経て、Ｔダイからキャスティングドラム上にシート状に押出し、冷却し、厚さ７５μｍの原反フィルム５フィルムを得た。波長５５０ｎｍにおける面内位相差値Ｒｏ（５５０）＝５ｎｍ、厚さ方向の位相差値Ｒｔ（５５０）＝１ｎｍであった。

[0316] ＜実施例１＞

原反フィルム１を図１に記載のオフライン延伸装置１を用いて延伸した。

[0317] まず、原反フィルム１をフィルム送出装置１３のロール取付軸１０に取りつけ、送出位置にセットした後、アキューム部４、テンター部５、耳切装置６、熱緩和部７、冷却部８を経て巻取部９でロール状に巻き取られように搬送した。アキューム部４では十分にループを作成するようにした。テンター部では、延伸温度１７５℃、延伸倍率１．５倍で斜め延伸した。

[0318] 得られたポリマーフィルムの平均膜厚は５０μｍ、波長５５０ｎｍでの面内位相差値Ｒｏ（５５０）は１４０ｎｍであった。また、得られたポリマーフィルムの面内遅相軸（ｂ）とポリマーフィルムの幅手方向（ａ）とのなす角度θ_1は４５°であった。

[0319] 次いで、巻芯交換位置にある取付軸１０に新たな原反フィルム１のロールを取り付け、送出位置にあるロールのフィルムが無くなった後、ターレットアームを１８０°回転させて新たな原反フィルム１を送出位置にセットし、原反フィルムを接合エリア３へ搬送した。接合エリア３ではスポット式の超音波溶着機を用い、原反フィルム同士を接合ラインにそって超音波溶着機を走行させて接合した。

[0320] 原反フィルムの接合では、原反フィルムの接合ライン（ｆ）と原反フィルムの幅手方向（ａ）とのなす角ϕ_0を０°とした。超音波溶着機のスポット径は１．７ｍｍであった。原反フィルムの接合部（溶着部）の接合ラインの幅は１．７ｍｍであった。溶着機の加圧度を調整し、原反フィルムの接合部の

総厚が１０５μｍになるようにした。後のテンター部５で把持具（クリップ）にチャックされる原反フィルムの接合部の幅手方向の両端部は、同じ接合ラインに沿って超音波溶着機で２回処理し、原反フィルムの接合部の総厚を９４μｍにした。また、原反フィルムの溶着部の幅手方向両端部からはみ出した溶融樹脂は、レーザーカッターで切断した。

[0321] 接合作業中はアキューム部４に蓄えられていた原反フィルムをテンター部５へ送りこんだため、テンター部５は停止しなかった。接合された原反フィルム１は、アキューム部４を介してテンター部５へ搬送された。

[0322] テンター部５では、原反フィルムの接合部も、その周辺部と同様に斜め方向へ延伸され、破断等の故障は起きなかった。

[0323] 延伸後、得られたポリマーフィルムの接合ライン（ｆ）と幅手方向（ａ）とのなす角度ϕ_1は４５°であった。

[0324] ＜実施例２＞

原反フィルム２を用いて、実施例１と同様の方法で連続的に斜め延伸を行った。延伸後、得られたポリマーフィルムの平均膜厚は５０μｍ、面内位相差値Ｒｏ（５５０）は１３５ｎｍ、θ_1は４４°であった。原反フィルムの接合部の総厚は１０９μｍであった。延伸後、得られたポリマーフィルムの接合ライン（ｆ）と幅手方向（ａ）のなす角度ϕ_1は４５°であった。

[0325] ＜実施例３＞

原反フィルム３を用いて、延伸温度を１４５℃に変更した以外は実施例１と同様に連続的に斜め延伸を行った。延伸後、得られたポリマーフィルムの平均膜厚は５１μｍ、面内位相差値Ｒｏ（５５０）は１４０ｎｍ、θ_1は４５°であった。原反フィルムの接合部の総厚は１０９μｍであった。延伸後、得られたポリマーフィルムの接合ライン（ｆ）と幅手方向（ａ）のなす角度ϕ_1は４５°であった。

[0326] ＜実施例４＞

原反フィルム４を用いて、延伸温度を１５５℃に変更した以外は実施例１と同様に連続的に斜め延伸を行った。延伸後、得られたポリマーフィルムの

平均膜厚は５０μｍ、面内位相差値Ｒｏ（５５０）は１４０ｎｍ、θ_1は４５°であった。原反フィルムの接合部の総厚は１０５μｍであった。延伸後、得られたポリマーフィルムの接合ライン（ｆ）と幅手方向（ａ）のなす角度ϕ_1は４６°であった。

[0327] ＜実施例５＞

原反フィルム５を用いて、延伸温度を１４５℃に変更した以外は実施例１と同様に連続的に斜め延伸を行った。延伸後、得られたポリマーフィルムの平均膜厚は５１μｍ、面内位相差値Ｒｏ（５５０）は１４０ｎｍ、θ_1は４６°であった。原反フィルムの接合部の総厚は１０５μｍであった。延伸後、得られたポリマーフィルムの接合ライン（ｆ）と幅手方向（ａ）のなす角度ϕ_1は４７°であった。

[0328] ＜＜評価＞＞

実施例１～５で得られた、接合部を有する長尺状のポリマーフィルム（λ／４板）を、次のように評価した。

[0329] 得られたポリマーフィルムの接合ライン（ｆ）のフィルム幅手方向の中央部からフィルム搬送方向およびフィルム搬送方向とは逆方向にそれぞれ１．５ｍ離れた位置におけるポリマーフィルムのツレを、以下の基準で評価した。

◎：フィルムの幅手方向のどの位置においてもツレは全く観察されない

○：部分的に弱いツレが観察されるが問題ない範囲である

△：全体的に弱いツレが観察されるが破断等の故障原因にはならず、実用可能範囲である

×：はっきりとツレが観察され、破断の原因となる

[0330] また、上記ポリマーフィルムの接合部起因での破断のおこりやすさを、以下の基準で評価した。

○：破断は全く起こらなかった

△：接合部起因での破断がごく稀に起こる

×：接合部起因での破断が頻繁に起こる

[0331] 以上の評価結果を表１に示す。

[表1]

	実施例１	実施例２	実施例３	実施例４	実施例５
原反フィルムNo.	1	2	3	4	5
原反フィルム膜厚［μm］	75	76	76	74	75
面内位相差Ro(550)［nm］	140	135	140	140	140
遅相軸(ｂ)と幅手方向(ａ)のなす角度(延伸後)θ_1［°］	45	44	45	45	46
接合手段	超音波溶着	超音波溶着	超音波溶着	超音波溶着	超音波溶着
接合ラインの幅［mm］	1.7	1.7	1.7	1.7	1.7
溶着部の総厚［nm］	105	109	109	105	105
接合ライン(ｆ)と幅手方向(ａ)のなす角度(延伸後)ϕ_1［°］	45	45	45	46	47
$\lvert\phi_1-\theta_1\rvert$［°］	0	1	0	1	1
フィルムのツレ	◎	◎	◎	◎	◎
破断	○	○	○	○	○

[0332] ＜実施例６＞

原反フィルム１を用いて、延伸温度１７５℃にて実施例１と同様に連続的に斜め延伸を行った。得られたポリマーフィルムの面内位相差値Ｒｏ（５５０）は１４１ｎｍ、θ_1は４１°であった。原反フィルムの接合部の総厚は１０５μｍであった。延伸後、得られたポリマーフィルムの接合ライン（ｆ）と幅手方向（ａ）のなす角度ϕ_1は４５°であり、$\lvert\phi_1-\theta_1\rvert$は4°であった。

[0333] ＜実施例７＞

原反フィルム１を用いて実施例６と同様に連続的に斜め延伸を行った。得られたポリマーフィルムの面内位相差値Ｒｏ（５５０）は１４０ｎｍ、θ_1は４９°であった。原反フィルムの接合部の総厚は１０５μｍであった。延伸後、得られたポリマーフィルムの接合ライン（ｆ）と幅手方向（ａ）のなす角度ϕ_1は４４°であり、$\lvert\phi_1-\theta_1\rvert$は5°であった。

[0334] ＜実施例８＞

原反フィルム１を用いて、実施例６と同様にして連続的に斜め延伸を行っ

た。得られたポリマーフィルムの面内位相差値Ｒｏ（５５０）は１４３ｎｍであった。原反フィルムの接合部の総厚は１０５μｍであった。延伸後、得られたポリマーフィルムの接合ライン（ｆ）と幅手方向（ａ）のなす角度ϕ_1は５２°であり、ポリマーフィルムの面内遅相軸（ｂ）と幅手方向（ａ）とのなす角度θ_1は４４°であり、$|\phi_1-\theta_1|$は８°であった。

[0335] ＜比較例１＞

原反フィルム１を用いて、接合エリアにてϕ_0が－１０°になるように接合した以外は実施例６と同様にして連続的に斜め延伸を行った。得られたポリマーフィルムの面内位相差値Ｒｏ（５５０）は１３７ｎｍであった。原反フィルムの接合部の総厚は１０６μｍであった。延伸後、得られたポリマーフィルムの接合ライン（ｆ）と幅手方向（ａ）のなす角度ϕ_1は３３°、θ_1は４５°であり、$|\phi_1-\theta_1|$は１３°であった。

[0336] ＜＜評価＞＞

実施例６～８、比較例１で得られた、接合部を有する長尺状のポリマーフィルム（λ／４板）のツレ、及び破断の起こりやすさについて実施例１～５と同じように評価した。以上の評価結果を表２に示す。

[0337] [表2]

	実施例６	実施例７	実施例８	比較例１
原反フィルムNo.	1	1	1	1
原反フィルム膜厚［μm］	75	75	75	75
面内位相差Ro(550)［nm］	141	140	143	137
遅相軸(ｂ)と幅手方向(ａ)のなす角度(延伸後)θ_1［°］	41	49	44	46
接合手段	超音波溶着	超音波溶着	超音波溶着	超音波溶着
接合ラインの幅［mm］	1.7	1.7	1.7	1.7
溶着部の総厚［nm］	105	105	105	106
接合ライン(ｆ)と幅手方向(ａ)のなす角度(延伸後)ϕ_1［°］	45	44	52	33
$\|\phi_1-\theta_1\|$［°］	4	5	8	13
フィルムのツレ	◎	◎	○	×
破断	○	○	○	×

[0338] 接合部を有する比較例１のポリマーフィルムは、一面にはっきりとしたツレが観察され、延伸時に破断が起きやすかった。

[0339] ＜実施例９＞

原反フィルム１を用いて、超音波溶着機のスポット径を４．８ｍｍに変更した以外は実施例６と同様にして連続的に斜め延伸を行った。原反フィルムの接合ラインの幅は４．８ｍｍであり、原反フィルムの接合部の総厚は６８μｍであった。延伸後、得られたポリマーフィルムの面内位相差値Ｒｏ（５５０）は１４２ｎｍであり、θ_1は４６°であった。また、ポリマーフィルムの接合ライン（ｆ）と幅手方向（ａ）のなす角度ϕ_1は４７°であり、$|\phi_1-\theta_1|$は１°であった。

[0340] ＜実施例１０＞

原反フィルム１を用いて、超音波溶着機のスポット径４．８ｍｍのものを２つ隣接して使用した以外は実施例６と同様にして連続的に斜め延伸を行った。原反フィルムの接合ラインの幅は９．６ｍｍであり、接合ラインの幅は９．６ｍｍ、原反フィルムの接合部の総厚は６４μｍであった。延伸後、得られたポリマーフィルムの面内位相差値Ｒｏ（５５０）＝１３９ｎｍであり、θ_1は４５°であった。また、ポリマーフィルムの接合ライン（ｆ）と幅手方向（ａ）のなす角度ϕ_1は４５°であり、$|\phi_1-\theta_1|$は０°であった。

[0341] ＜実施例１１＞

原反フィルム１を用いて、スポット径１．７ｍｍの超音波溶着機を用いて実施例６と同様にして連続的に斜め延伸を行った。溶着機の加圧度を調整し、原反フィルムの接合部の総厚が７８μｍになるようにした。延伸後、得られたポリマーフィルムの面内位相差値Ｒｏ（５５０）は１３７ｎｍであり、θ_1は４４°であった。また、ポリマーフィルムの接合ライン（ｆ）と幅手方向（ａ）のなす角度ϕ_1は４６°であり、$|\phi_1-\theta_1|$は２°であった。

[0342] ＜実施例１２＞

原反フィルム１を用いて、接合にはポリエステル基材からなる両面テープを用いた以外は実施例６と同様にして連続的に斜め延伸を行った。原反フィ

ルムの接合ライン（テープで接合されている部分）の幅は１２ｍｍであり、原反フィルムの接合部（テープで接合されている部分）の総厚は１２５μｍであった。延伸後、得られたポリマーフィルムの面内位相差値Ｒｏ（５５０）は１４１ｎｍであり、θ_1は４５°であった。また、ポリマーフィルムの接合ライン（ｆ）と幅手方向（ａ）のなす角度ϕ_1は４８°であり、$|\phi_1-\theta_1|$は３°であった。

[0343] ＜実施例１３＞

原反フィルム１を用いて、接合にはヒートシーラを用いた以外は実施例６と同様にして連続的に斜め延伸を行った。原反フィルムの接合ラインの幅は７．０ｍｍであり、原反フィルムの接合部の総厚は８３μｍであった。延伸後、得られたポリマーフィルムの面内位相差値Ｒｏ（５５０）は１３７ｎｍであり、θ_1は４５°であった。ポリマーフィルムの接合ライン（ｆ）と幅手方向（ａ）のなす角度ϕ_1は４３°であり、$|\phi_1-\theta_1|$は２°であった。

[0344] ＜＜評価＞＞

実施例９～１３で得られた、接合部を有するポリマーフィルム（λ／４板）のツレ、及び破断の起こりやすさについて実施例１～５と同じように評価した。以上の評価結果を表３に示す。

[表3]

	実施例９	実施例10	実施例11	実施例12	実施例13
原反フィルムNo.	1	1	1	1	1
原反フィルム膜厚［μm］	75	75	75	75	75
面内位相差Ro(550)［nm］	142	139	137	141	137
遅相軸(ｂ)と幅手方向(ａ)のなす角度(延伸後)θ_1［°］	46	45	44	45	45
接合手段	超音波溶着	超音波溶着	超音波溶着	テープ接合	熱溶着
接合ラインの幅［mm］	4.8	9.6	1.7	12.0	7.0
溶着部の総厚［nm］	68	64	78	125	83
接合ライン(ｆ)と幅手方向(ａ)のなす角度(延伸後)ϕ_1［°］	47	45	46	48	43
$\|\phi_1-\theta_1\|$［°］	1	0	2	3	2
フィルムのツレ	○	△	○	△	△
破断	○	△	○	△	△

[0345] 原反フィルムの接合ラインの幅が広い場合や、原反フィルムの接合部の総厚が厚い場合には、ツレが発生しやすく、破断しやすいことがわかった。

[0346] 上記表１～３に示した結果から、本発明の手段により、ツレ又は破断の発生を抑制し、連続的な斜め延伸を可能とする長尺状ポリマーフィルムの製造方法を提供できることがわかる。また、ツレ又は破断の発生のない長尺状ポリマーフィルムを提供できることがわかる。

[0347] 本出願は、２０１０年１０月２１日出願の特願２０１０－２３６２５１に基づく優先権を主張する。当該出願明細書および図面に記載された内容は、すべて本願明細書に援用される。

産業上の利用可能性

[0348] 本発明によれば、ツレ又は破断の発生を抑制し、連続的な斜め延伸を可能とする長尺状ポリマーフィルムの製造方法を提供することができる。

符号の説明

[0349] １　オフライン延伸装置
２　供給部
３　接合エリア
４　アキューム部（アキュームレータ部）
５　テンター部
６　耳切装置
７　熱緩和部
８　冷却部
９　巻取部
１０　取付軸
１１　フィルムロール
１２　ターレットアーム
１３　フィルム送出装置
１４　テンター
１５－１　ＬＤ側フィルム把持開始点

１５－２　ＳＤ側フィルム把持開始点

１６－１　ＬＤ側フィルム把持終了点

１６－２　ＳＤ側フィルム把持終了点

１７－１　ＬＤ側フィルム把持手段の軌跡

１７－２　ＳＤ側フィルム把持手段の軌跡

１８　フィルム送り方向

１９－１　テンター入り口側ガイドロール

１９－２　テンター出口側ガイドロール

ａ　フィルム幅手方向

ｂ　面内遅相軸

ｃ　フィルム搬送方向

ｄ　先行する原反フィルム

ｅ　後行する原反フィルム

ｆ　接合ライン

ｇ　接合部

φ０　延伸前の接合ライン（ｆ）とフィルム幅手方向（ａ）のなす角度

φ１　延伸後の接合ライン（ｆ）とフィルム幅手方向（ａ）のなす角度

θ１　延伸後の面内遅相軸（ｂ）とフィルム幅手方向（ａ）のなす角度

ＳＤ　斜め延伸装置の小回り側

ＬＤ　斜め延伸装置の大回り側

請求の範囲

[請求項1] （１）先行する原反フィルムの後端部と、後行する原反フィルムの先端部とを接合ラインに沿って重ね合わせて接合する工程と、

（２）接合された前記原反フィルムを連続して搬送しながら、前記原反フィルムを加熱し、かつ両端部を複数の把持具により担持して斜め延伸してポリマーフィルムとする工程と、

（３）前記ポリマーフィルムを連続して搬送しながら応力緩和のための熱処理を行う工程と、を有する長尺状ポリマーフィルムの製造方法であって、

前記斜め延伸は、前記斜め延伸後に得られるポリマーフィルムの面内遅相軸と前記斜め延伸後に得られるポリマーフィルムの幅手方向とのなす角度が４０～５０°の範囲内となるように行い、

前記先行する原反フィルムの後端部と前記後行する原反フィルムの先端部との接合は、前記ポリマーフィルムの接合ラインと前記ポリマーフィルムの幅手方向とのなす角度ϕ_1と、前記ポリマーフィルムの面内遅相軸と前記ポリマーフィルムの幅手方向とのなす角度θ_1とが、下記式（Ｉ）を満たすように行う、長尺状ポリマーフィルムの製造方法。

式（Ｉ）：$|\phi_1-\theta_1| \leqq 10°$

[請求項2] 前記原反フィルムの接合ラインと前記原反フィルムの幅手方向とのなす角度ϕ_0を、－１０°超２５°以下の範囲とする、請求項１に記載の長尺状ポリマーフィルムの製造方法。

[請求項3] 前記先行する原反フィルムの後端部と前記後行する原反フィルムの先端部との接合部の接合ラインの幅が、５ｍｍ以下である、請求項１に記載の長尺状ポリマーフィルムの製造方法。

[請求項4] 前記先行する原反フィルムの後端部と前記後行する原反フィルムの先端部との接合部の総厚が、前記原反フィルムの平均膜厚に対して１．１～１．５倍以内である、請求項１に記載の長尺状ポリマーフィル

ムの製造方法。

[請求項5] 前記先行する原反フィルムの後端部と前記後行する原反フィルムの先端部とを、超音波振動を使った溶着により接合する、請求項１に記載の長尺状ポリマーフィルムの製造方法。

[請求項6] 請求項１に記載の長尺状ポリマーフィルムの製造方法で製造されたポリマーフィルムであって、２３℃、５５％ＲＨの環境下、波長５５０ｎｍで測定した面内位相差値Ｒｏ（５５０）が、１１０～１７０ｎｍの範囲内である、ポリマーフィルム。

[請求項7] 請求項６に記載のポリマーフィルムからなる、λ／４板。

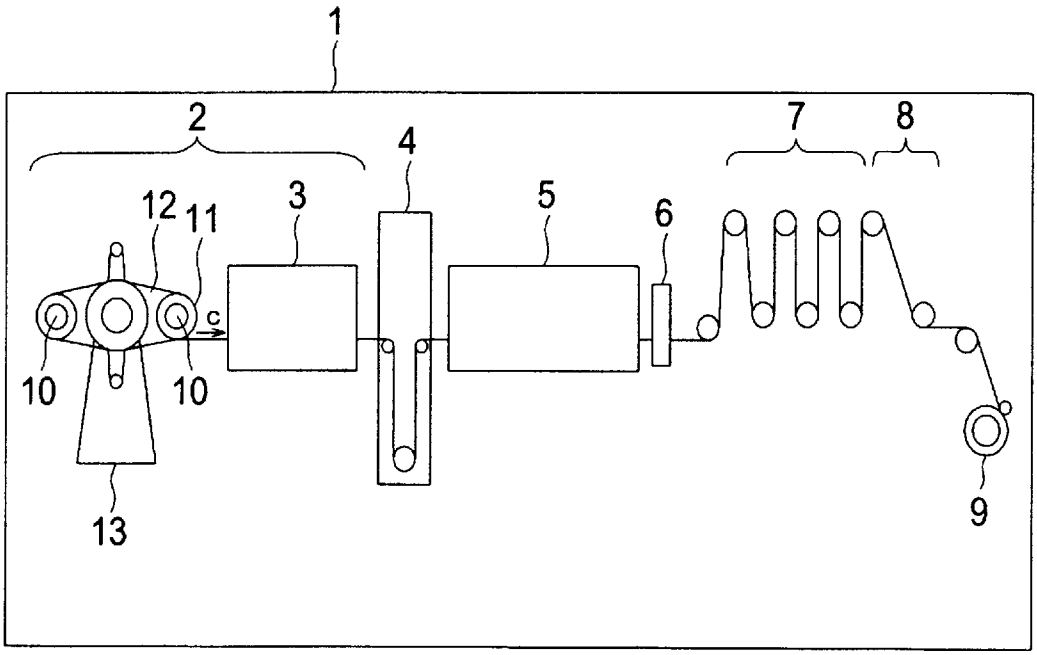
[請求項8] 偏光子と、

前記偏光子の少なくとも一方の面に配置された請求項６に記載のポリマーフィルムと、を含む、偏光板。

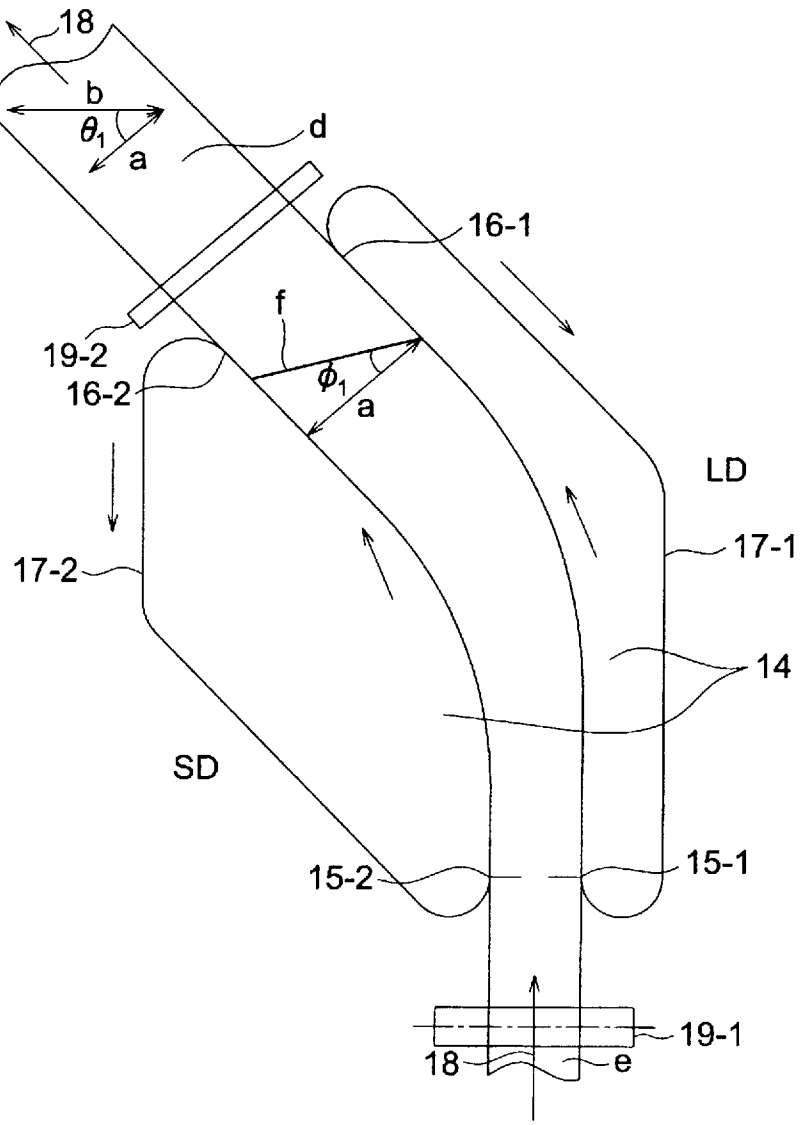
[請求項9] 液晶セルと、前記液晶セルを挟持する一対の偏光板とを含む液晶表示装置であって、

前記一対の偏光板のうち少なくとも一方は、偏光子と、前記偏光子の少なくとも一方の面に配置される請求項６に記載のポリマーフィルムとを含む、液晶表示装置。

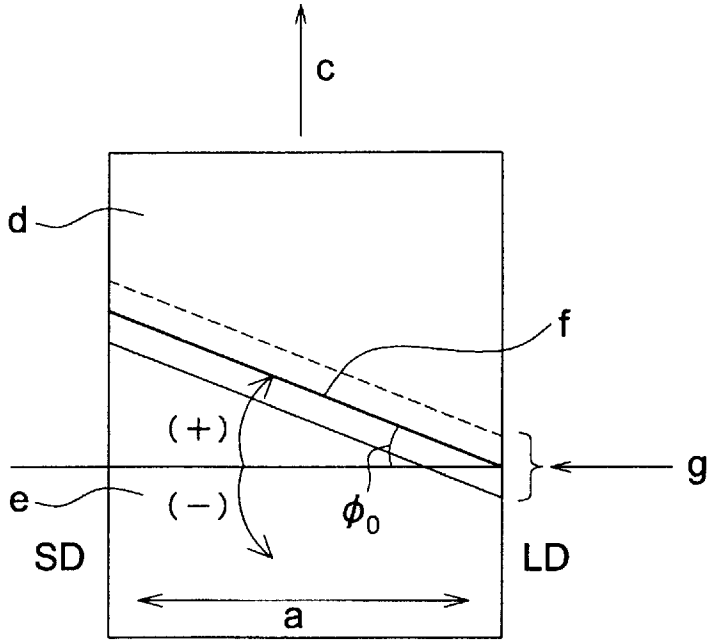
[図1]



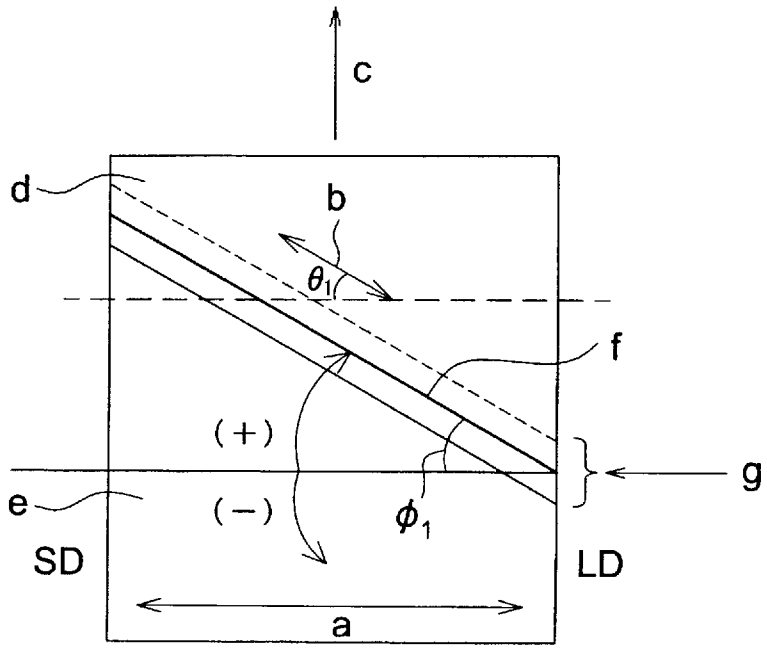
[図2]



[図3A]



[図3B]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2011/005887

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
B29C55/04(2006.01)i, *B29C65/08*(2006.01)i, *G02B5/30*(2006.01)i, *G02F1/1335*(2006.01)i, *G02F1/13363*(2006.01)i, *B29L7/00*(2006.01)n, *B29L11/00*(2006.01)n
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)
B29C55/04, B29C65/08, G02B5/30, G02F1/1335, G02F1/13363, B29L7/00, B29L11/00

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	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

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.
X	JP 2004-160665 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 10 June 2004 (10.06.2004), claims; paragraphs [0009], [0015] to [0033], [0044]; fig. 1 to 7 & US 2004/0100708 A1	1-5
X Y	JP 2002-022944 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 23 January 2002 (23.01.2002), claims; paragraphs [0005] to [0009], [0067] to [0069]; fig. 1, 2 (Family: none)	6-8 9
Y	WO 2010/074166 A1 (Nippon Zeon Co., Ltd.), 01 July 2010 (01.07.2010), paragraph [0073]; fig. 1 (Family: none)	9

☒ 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 12 January, 2012 (12.01.12)	Date of mailing of the international search report 24 January, 2012 (24.01.12)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 2009)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2011/005887

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2003-215337 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 30 July 2003 (30.07.2003), claims; paragraphs [0078] to [0080], [0094] to [0099]; fig. 1, 2 (Family: none)	1-9
A	JP 2008-238681 A (Fujifilm Corp.), 09 October 2008 (09.10.2008), claims; fig. 5 to 8 & US 2008/0236721 A1 & KR 10-2008-0088461 A & CN 101274484 A	1-5
A	JP 2008-238678 A (Fujifilm Corp.), 09 October 2008 (09.10.2008), paragraphs [0032] to [0034]; fig. 11 & US 2008/0237913 A1	1-5
P,A	JP 2010-284860 A (Fujifilm Corp.), 24 December 2010 (24.12.2010), a whole article (Family: none)	1-5

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１１／００５８８７

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　B29C55/04(2006.01)i, B29C65/08(2006.01)i, G02B5/30(2006.01)i, G02F1/1335(2006.01)i, G02F1/13363(2006.01)i, B29L7/00(2006.01)n, B29L11/00(2006.01)n

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））

Int.Cl.　B29C55/04, B29C65/08, G02B5/30, G02F1/1335, G02F1/13363, B29L7/00, B29L11/00

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	１９７１－２０１２年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１２年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１２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
Ｘ	JP 2004-160665 A（富士写真フイルム株式会社）2004.06.10, 特許請求の範囲、段落【０００９】、【００１５】－【００３３】、【００４４】、【図１】－【図７】 & US 2004/0100708 A1	１－５
Ｘ Ｙ	JP 2002-022944 A（富士写真フイルム株式会社）2002.01.23, 特許請求の範囲、段落【０００５】－【０００９】、【００６７】－【００６９】、【図１】、【図２】（ファミリーなし）	６－８ ９

☑　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	国際調査報告の発送日
１２．０１．２０１２	２４．０１．２０１２

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
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）　４Ｆ　３９７３
大村　博一
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４３０

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	WO 2010/074166 A1（日本ゼオン株式会社）2010.07.01，段落【００７３】、【図１】（ファミリーなし）	９
Ａ	JP 2003-215337 A（富士写真フイルム株式会社）2003.07.30，特許請求の範囲、段落【００７８】－【００８０】、【００９４】－【００９９】、【図１】、【図２】（ファミリーなし）	１－９
Ａ	JP 2008-238681 A（富士フイルム株式会社）2008.10.09，特許請求の範囲、【図５】－【図８】& US 2008/0236721 A1 & KR 10-2008-0088461 A & CN 101274484 A	１－５
Ａ	JP 2008-238678 A（富士フイルム株式会社）2008.10.09，段落【００３２】－【００３４】、【図１１】 & US 2008/0237913 A1	１－５
Ｐ，Ａ	JP 2010-284860 A（富士フイルム株式会社）2010.12.24，全体（ファミリーなし）	１－５