

(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
2018年11月22日(22.11.2018)



(10) 国際公開番号
WO 2018/212228 A1

(51) 国際特許分類:
C08G 77/14 (2006.01) *C08J 7/04* (2006.01)
B29C 45/14 (2006.01) *C09D 7/40* (2018.01)
B32B 27/00 (2006.01) *C09D 7/63* (2018.01)
C08G 59/20 (2006.01) *C09D 183/04* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2018/018896

(22) 国際出願日: 2018年5月16日(16.05.2018)

(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 2017-098511 2017年5月17日(17.05.2017) JP

(71) 出願人: 株式会社ダイセル (DAICEL CORPORATION) [JP/JP]; 〒5300011 大阪府大阪市北区大深町3番1号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 芝本明弘 (SHIBAMOTO, Akihiro); 〒6711283 兵庫県姫路市網干区新在家1239株式会社ダイセル内 Hyogo (JP). 前谷臣治 (MAETANI, Shinji); 〒6711283 兵庫県姫路

市網干区新在家1239株式会社ダイセル内 Hyogo (JP). 西田一博 (NISHIDA, Kazuhiro); 〒6711283 兵庫県姫路市網干区新在家1239株式会社ダイセル内 Hyogo (JP). 宇佐大輔 (USA, Daisuke); 〒6610964 兵庫県尼崎市神崎町12-1株式会社ダイセル内 Hyogo (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人後藤特許事務所 (GOTO & CO.); 〒5300038 大阪府大阪市北区紅梅町2番18号 Osaka (JP).

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

(54) Title: POLYORGANOSILSESQUIOXANE, TRANSFER FILM, IN-MOLD MOLDED ARTICLE, AND HARD COAT FILM

(54) 発明の名称: ポリオルガノシルセスキオキサン、転写用フィルム、インモールド成型品、及びハードコートフィルム



(57) Abstract: The purpose of the present invention is to provide a polyorganosilsesquioxane which is capable of forming a hard coat layer having a high surface hardness by in-mold injection molding, and which forms a tack-free coating film, thereby being suitable as a material for hard coat layers of transfer films that are able to be wound into rolls. The present invention relates to a polyorganosilsesquioxane which is characterized by having a constituent unit represented by formula (1), and which is also characterized in that: the molar ratio of a constituent unit represented by formula (I) to a constituent unit represented by formula (II), namely (constituent unit represented by formula (I))/(constituent unit represented by formula (II)) is from 20 to 500 (inclusive); the proportion of the constituent unit represented by formula (1) and the constituent unit represented by formula (4) relative to the total amount of siloxane constituent units (100 mol%) is 55-100 mol%; the number average molecular weight is from 2,500 to 50,000; and the degree of molecular weight dispersity ((weight average molecular weight)/(number average molecular weight)) is from 1.0 to 4.0. The present invention also relates to a curable composition which contains this polyorganosilsesquioxane.



WO 2018/212228 A1

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, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 一 国際調査報告(条約第21条(3))

(57) 要約: 本発明は、インモールド射出成型によって、高い表面硬度を有するハードコート層を形成でき、かつタックフリーの塗膜を形成してロールとして巻き取り可能な転写用フィルムのハードコート層の材料として好適なポリオルガノシルセスキオキサンを提供することを目的とする。本発明は、下記式(1)で表される構成単位を有し、下記式(1)で表される構成単位と、下記式(11)で表される構成単位のモル比[式(1)で表される構成単位/式(11)で表される構成単位]が20以上500以下であり、シロキサン構成単位の全量(100モル%)に対する下記式(1)で表される構成単位及び下記式(4)で表される構成単位の割合が55~100モル%であり、数平均分子量が2500~50000、分子量分散度(重量平均分子量/数平均分子量)が1.0~4.0であることを特徴とするポリオルガノシルセスキオキサン、及び該ポリオルガノシルセスキオキサンを含む硬化性組成物に関する。

明 細 書

発明の名称：

ポリオルガノシルセスキオキサン、転写用フィルム、インモールド成型品、及びハードコートフィルム

技術分野

[0001] 本発明は、ポリオルガノシルセスキオキサン、並びに該ポリオルガノシルセスキオキサンを含む硬化性組成物及びその硬化物に関する。また、本発明は、上記ポリオルガノシルセスキオキサンを含むハードコート液（ハードコート剤）より形成されたハードコート層を有する転写用フィルム（特に、インモールド射出成型転写用フィルム）、ハードコートフィルムに関する。また、本発明は、該転写用フィルムの転写層が転写されたインモールド成型品に関する。本願は、2017年5月17日に日本に出願した、特願2017-098511の優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] プラスチック製品の表面に、木目などの装飾やハードコート性を施す製造工法として、インモールド射出成型法が用いられている。インモールド射出成型法は、基材フィルムの片面に離型層を形成し、離型層上に転写層（ハードコート層、アンカーコート層、着色層、接着層等を積層した層）を積層した転写用フィルムを金型内に挿入し、基材フィルム側を金型内面に密着するように設置し、金型を閉じた後に溶融した熱可塑性樹脂を金型内に転写層側から射出充填させた後、金型を開き成形物を取り出す際に、離型層とハードコート層が剥離することで、最表面に転写層を転写して成型品を得るものである。このようなインモールド射出成型転写用フィルムにおけるハードコート層を形成するための材料としては、主に、UVアクリルモノマーが使用されている（例えば、特許文献1参照）。上記ハードコート層表面の鉛筆硬度をさらに向上させるために、ハードコート層にナノ粒子が添加される例もある。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2014-231221号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] しかしながら、上述のUVアクリルモノマーを使用したハードコート層を有する転写用フィルムの鉛筆硬度は2H程度であり、未だ十分な表面硬度を有するものとは言えなかった。一般に、より硬度を高くするにはUVアクリルモノマーを多官能としたり、ハードコート層を厚膜化する方法が考えられるが、このような方法を採用した場合には、ハードコート層の硬化収縮が大きくなり、その結果、ハードコート層にクラックが発生してしまうという問題があった。また、ハードコート層にナノ粒子を添加する場合には、該ナノ粒子とUVアクリルモノマーとの相溶性が悪いとナノ粒子が凝集し、ハードコート層が白化するという問題があった。

[0005] また、基材フィルムの離型層にハードコート液等を塗工、乾燥後の未硬化又は半硬化のハードコート層の表面はタックフリーである必要がある。表面にタック性があると耐ブロッキング性が低下し、ロールに巻き取ることが困難になるからである。

[0006] 従って、本発明の目的は、インモールド射出成型法によって、高い表面硬度を有するハードコート層を形成でき、かつ未硬化又は半硬化の段階ではタックフリーの塗膜を形成してロールとして巻き取り可能な転写用フィルムのハードコート層の材料として好適なポリオルガノシルセスキオキサンを提供することにある。

また、本発明の他の目的は、インモールド射出成型法によって、高い表面硬度を有するハードコート層を形成でき、かつ未硬化又は半硬化の段階ではタックフリーの塗膜を形成してロールとして巻き取り可能な転写用フィルムを提供することにある。

また、本発明の他の目的は、上記転写用フィルムの転写層が転写され、高い表面硬度を有するインモールド成型品を提供することである。

[0007] さらに、ハードコート層を有する転写用フィルムが使用される用途は近年ますます拡大しており、転写用フィルムが有するハードコート層には、上述のように高い表面硬度を有することに加えて、特に、優れた耐熱性を有することも要求されている。上述のUVアクリルモノマーを使用した転写用フィルムにおけるハードコート層は、このような耐熱性の観点でも十分なものとは言えなかった。

また、ハードコート層を有するハードコートフィルムには、一般に、高い表面硬度に加えて、可とう性や加工性も高いことも求められる。可とう性や加工性に乏しいと、ロールトゥロール方式での製造や加工をすることができず、高い生産コストがかかるからである。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明者らは、重合性官能基を含むシルセスキオキサン構成単位（単位構造）を有し、特定の構造の割合（T3体とT2体の割合、重合性官能基を含むシルセスキオキサン構成単位の割合）が特定範囲に制御され、高い数平均分子量を有し、かつ分子量分散度が特定範囲に制御されたポリオルガノシルセスキオキサンによると、該ポリオルガノシルセスキオキサンを含む未硬化又は半硬化のハードコート層の表面がタックフリーとなってロール状に巻き取って取り扱うことが可能であり、さらに、該ハードコート層を有する転写用フィルムを用いてインモールド射出成型を行うと、高い表面硬度を有するハードコート層で被覆された成型品を製造できることを見出した。本発明は、これらの知見に基づいて完成されたものである。

[0009] すなわち、本発明は、下記式（1）

[化1]



[式（1）中、R¹は、重合性官能基を含有する基を示す。]

で表される構成単位を有し、下記式 (1)

[化2]



[式 (1) 中、 R^a は、重合性官能基を含有する基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、又は水素原子を示す。]

で表される構成単位と、下記式 (11)

[化3]



[式 (11) 中、 R^b は、重合性官能基を含有する基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、又は水素原子を示す。 R^c は、水素原子又は炭素数 1～4 のアルキル基を示す。]

で表される構成単位のマール比 [式 (1) で表される構成単位 / 式 (11) で表される構成単位] が 20 以上 500 以下であり、シロキサン構成単位的全量 (100 マール%) に対する上記式 (1) で表される構成単位及び下記式 (4)

[化4]



[式 (4) 中、 R^1 は、式 (1) におけるものと同じ。 R^c は、式 (11) におけるものと同じ。]

で表される構成単位割合が 55～100 マール%であり、数平均分子量が 2500～50000、分子量分散度 (重量平均分子量 / 数平均分子量) が 1

． 0～4． 0であることを特徴とするポリオルガノシルセスキオキサンを提供する。

[0010] 前記ポリオルガノシルセスキオキサンは、さらに、下記式（2）

[化5]



[式（2）中、 R^2 は、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルキル基、又は、置換若しくは無置換のアルケニル基を示す。]

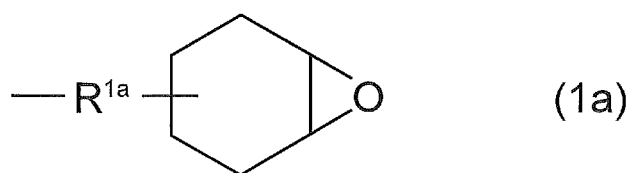
で表される構成単位を有していてもよい。

[0011] 前記ポリオルガノシルセスキオキサンにおいて、前記 R^2 は、置換若しくは無置換のアリール基であってもよい。

[0012] 前記ポリオルガノシルセスキオキサンにおいて、前記重合性官能基は、エポキシ基であってもよい。

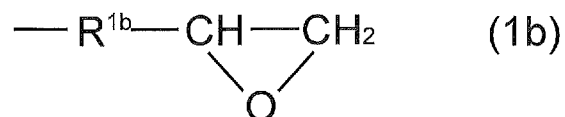
前記ポリオルガノシルセスキオキサンにおいて、前記 R^1 は、下記式（1 a）

[化6]



[式（1 a）中、 R^{1a} は、直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基を示す。]
で表される基、下記式（1 b）

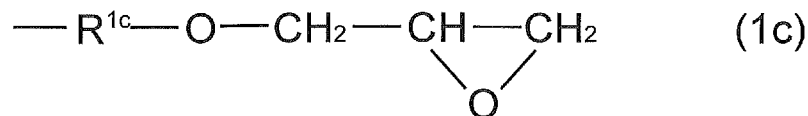
[化7]



[式（1 b）中、 R^{1b} は、直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基を示す。]

で表される基、下記式（1c）

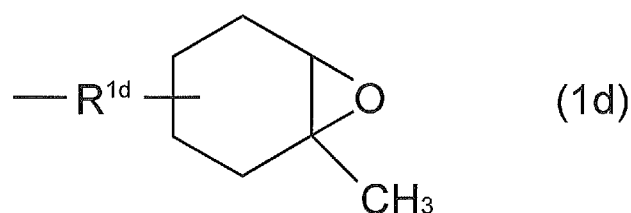
[化8]



[式（1c）中、R^{1c}は、直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基を示す。]

で表される基、又は、下記式（1d）

[化9]



[式（1d）中、R^{1d}は、直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基を示す。]

で表される基であってもよい。

[0013] また、本発明は、ポリオルガノシルセスキオキサンを含む硬化性組成物を提供する。

前記硬化性組成物は、さらに、硬化触媒を含んでもよい。

前記硬化性組成物において、前記硬化触媒は光カチオン重合開始剤であってもよい。

前記硬化性組成物において、前記硬化触媒は熱カチオン重合開始剤であってもよい。

前記硬化性組成物において、前記硬化触媒は光ラジカル重合開始剤であってもよい。

前記硬化性組成物において、前記硬化触媒は熱ラジカル重合開始剤であってもよい。

前記硬化性組成物は、さらに、ビニルエーテル化合物を含んでもよい。

前記硬化性組成物は、さらに、分子内に水酸基を有するビニルエーテル化合物を含んでいてもよい。

前記硬化性組成物は、ハードコート層形成用硬化性組成物であってもよい。

[0014] また、本発明は、前記硬化性組成物の硬化物を提供する。

[0015] また、本発明は、基材と、該基材の少なくとも一方の表面に形成された離型層上に、ハードコート層が積層された転写用フィルムであって、該ハードコート層が、前記ハードコート層形成用硬化性組成物を含むことを特徴とする転写用フィルムを提供する。

前記転写用フィルムにおいて、前記ハードコート層上に、アンカーコート層及び接着剤層が、この順でさらに積層されていてもよい。

前記転写用フィルムは、さらに、少なくとも1層の着色層を含んでいてもよい。

前記転写用フィルムにおいて、前記ハードコート層の厚さが3～150 μ mであってもよい。

前記転写用フィルムは、インモールド射出成型に使用される転写用フィルムであってもよい。

また、本発明は、前記の転写用フィルムから前記離型層が形成された基材を除いた層（転写層）が転写されたインモールド成型品を提供する。

[0016] また、本発明は、基材と、該基材の少なくとも一方の表面に形成されたハードコート層とを有するハードコートフィルムであって、該ハードコート層が、前記ハードコート層形成用硬化性組成物の硬化物層であることを特徴とするハードコートフィルムを提供する。

前記ハードコートフィルムにおいて、前記ハードコート層の厚さは1～200 μ mであってもよい。

前記ハードコートフィルムは、ロールトゥロール方式での製造が可能であってもよい。

前記ハードコートフィルムは、前記ハードコート層表面に表面保護フィル

ムを有していてもよい。

[0017] また、本発明は、ロール状に巻いた基材を繰り出す工程Aと、繰り出した基材の少なくとも一方の表面に前記ハードコート層形成用硬化性組成物を塗布し、次いで、該硬化性組成物を硬化させることによりハードコート層を形成する工程Bと、その後、得られたハードコートフィルムを再びロールに巻き取る工程Cとを含み、工程A～Cを連続的に実施することを特徴とするハードコートフィルムの製造方法を提供する。

発明の効果

[0018] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンは上記構成を有するため、該ポリオルガノシルセスキオキサンを必須成分として含むハードコート層を有する転写用フィルムを用いてインモールド射出成型を行うことにより、高い表面硬度を有するハードコート層で被覆された成型品を製造することができる。また、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンを含む未硬化又は半硬化のハードコート層がタックフリーとなってロール状に巻き取って取り扱うことができ、該ハードコート層を含む転写用フィルムをロールトゥロールで取り扱うことが可能であるため、インモールド射出成型に好適に使用することができる。このため、本発明の転写用フィルムは、品質面とコスト面の両方において優れる。

図面の簡単な説明

[0019] [図1]製造例1で得られた中間体エポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの ^1H -NMRチャートである。

[図2]製造例1で得られた中間体エポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの ^{29}Si -NMRチャートである。

[図3]実施例1で得られた本発明のエポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの ^1H -NMRチャートである。

[図4]実施例1で得られた本発明のエポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの ^{29}Si -NMRチャートである。

[図5]実施例3で得られた本発明のエポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオ

キサンの¹H-NMRチャートである。

[図6]実施例3で得られた本発明のエポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの²⁹Si-NMRチャートである。

[図7]製造例2で得られた中間体アクリル基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの¹H-NMRチャートである。

[図8]製造例2で得られた中間体アクリル基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの²⁹Si-NMRチャートである。

[図9]実施例4で得られた本発明のアクリル基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの¹H-NMRチャートである。

[図10]実施例4で得られた本発明のアクリル基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの²⁹Si-NMRチャートである。

発明を実施するための形態

[0020] [ポリオルガノシルセスキオキサン]

本発明のポリオルガノシルセスキオキサン（シルセスキオキサン）は、下記式（1）で表される構成単位を有し；下記式（1）で表される構成単位（「T3体」と称する場合がある）と、下記式（11）で表される構成単位（「T2体」と称する場合がある）のモル比〔式（1）で表される構成単位／式（11）で表される構成単位；「T3体／T2体」と記載する場合がある〕が20以上500以下であり；シロキサン構成単位の全量（100モル％）に対する下記式（1）で表される構成単位及び後述の式（4）で表される構成単位の割合（総量）が55～100モル％であり；数平均分子量が2500～50000、分子量分散度〔重量平均分子量／数平均分子量〕が1.0～4.0であることを特徴とする。

[化10]



[化11]



[化12]



[0021] 上記式(1)で表される構成単位は、一般に $[RSiO_{3/2}]$ で表されるシルセスキオキサン構成単位(いわゆるT単位)である。なお、上記式中のRは、水素原子又は一価の有機基を示し、以下においても同じである。上記式(1)で表される構成単位は、対応する加水分解性三官能シラン化合物(具体的には、例えば、後述の式(a)で表される化合物)の加水分解及び縮合反応により形成される。

[0022] 式(1)中のR¹は、重合性官能基を含有する基(一価の基)を示す。即ち、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンは、分子内に重合性官能基を少なくとも有する、カチオン硬化性化合物(カチオン重合性官能基を有する化合物)又はラジカル硬化性化合物(ラジカル重合性官能基を有する化合物)である。

[0023] 上記重合性官能基を含有する基における「カチオン重合性官能基」としては、カチオン重合性を有するものである限り特に限定されず、例えば、エポキシ基、オキシタン基、ビニルエーテル基、ビニルフェニル基等が挙げられる。

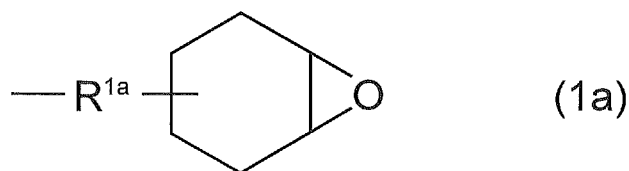
上記重合性官能基を含有する基における「ラジカル重合性官能基」としては、ラジカル重合性を有するものである限り特に限定されず、例えば、(メタ)アクリルオキシ基、(メタ)アクリルアミド基、ビニル基、ビニルチオ基等が挙げられる。

重合性官能基としては、硬化物の表面硬度(例えば、4H以上)の観点から、エポキシ基、(メタ)アクリルオキシ基等が好ましく、エポキシ基が特に好ましい。

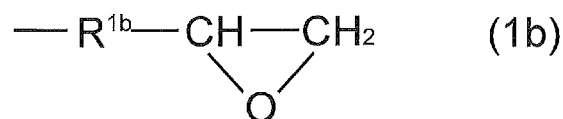
[0024] 上記重合性官能基を含有する基としては、重合性官能基を有する公知乃至慣用の基が挙げられ、特に限定されないが、硬化性組成物の硬化性、硬化物の表面硬度や耐熱性の観点で、下記式(1a)で表される基、下記式(1b

)で表される基、下記式(1c)で表される基、下記式(1d)で表される基が好ましく、より好ましくは下記式(1a)で表される基、下記式(1c)で表される基、さらに好ましくは下記式(1a)で表される基である。

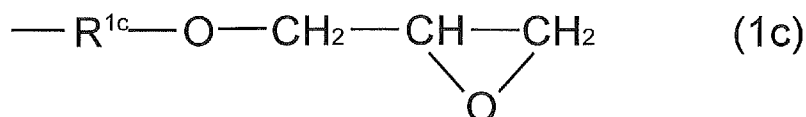
[化13]



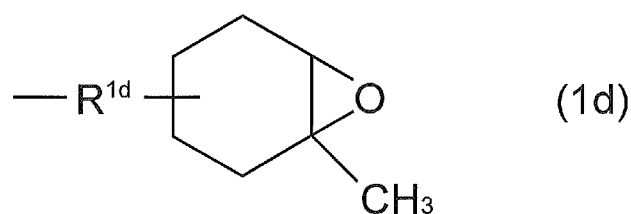
[化14]



[化15]



[化16]



[0025] 上記式(1a)中、R^{1a}は、直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基を示す。直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基としては、例えば、メチレン基、メチルメチレン基、ジメチルメチレン基、エチレン基、プロピレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、デカメチレン基等の炭素数1~10の直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基が挙げられる。中でも、R^{1a}としては、硬化物の表面硬度や硬化性の観点で、炭素数1~4の直鎖

状のアルキレン基、炭素数3又は4の分岐鎖状のアルキレン基が好ましく、より好ましくはエチレン基、トリメチレン基、プロピレン基、さらに好ましくはエチレン基、トリメチレン基である。

[0026] 上記式(1b)中、R^{1b}は、直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基を示し、R^{1a}と同様の基が例示される。中でも、R^{1b}としては、硬化物の表面硬度や硬化性の観点で、炭素数1~4の直鎖状のアルキレン基、炭素数3又は4の分岐鎖状のアルキレン基が好ましく、より好ましくはエチレン基、トリメチレン基、プロピレン基、さらに好ましくはエチレン基、トリメチレン基である。

[0027] 上記式(1c)中、R^{1c}は、直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基を示し、R^{1a}と同様の基が例示される。中でも、R^{1c}としては、硬化物の表面硬度や硬化性の観点で、炭素数1~4の直鎖状のアルキレン基、炭素数3又は4の分岐鎖状のアルキレン基が好ましく、より好ましくはエチレン基、トリメチレン基、プロピレン基、さらに好ましくはエチレン基、トリメチレン基である。

[0028] 上記式(1d)中、R^{1d}は、直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基を示し、R^{1a}と同様の基が例示される。中でも、R^{1d}としては、硬化物の表面硬度や硬化性の観点で、炭素数1~4の直鎖状のアルキレン基、炭素数3又は4の分岐鎖状のアルキレン基が好ましく、より好ましくはエチレン基、トリメチレン基、プロピレン基、さらに好ましくはエチレン基、トリメチレン基である。

[0029] 式(1)中のR¹としては、特に、上記式(1a)で表される基であって、R^{1a}がエチレン基である基[中でも、2-(3', 4'-エポキシシクロヘキシル)エチル基]が好ましい。

[0030] 上記オキセタン基を含有する基としては、オキセタン環を有する公知乃至慣用の基が挙げられ、特に限定されないが、例えば、オキセタン基そのもの、アルキル基(好ましくは炭素数1~10、より好ましくは炭素数1~5のアルキル基)の水素原子(通常1つ以上、好ましくは1つの水素原子)をオキセタン基で置換してなる基が挙げられる。硬化性組成物の硬化性、硬化物の耐熱性の観点で、3-オキセタニル基、オキセタン-3-イルメチル基、3-エチルオキセタン-3-イルメチル基、2-(オキセタン-3-イル)

エチル基、2-(3-エチルオキシタン-3-イル)エチル基、3-(オキシタン-3-イルメトキシ)プロピル基、3-(3-エチルオキシタン-3-イルメトキシ)プロピル基等が好ましい。

[0031] 上記ビニルエーテル基を含有する基としては、ビニルエーテル基を有する公知乃至慣用の基が挙げられ、特に限定されないが、例えば、ビニルエーテル基そのもの、アルキル基（好ましくは炭素数1~10、より好ましくは炭素数1~5のアルキル基）の水素原子（通常1つ以上、好ましくは1つの水素原子）をビニルエーテル基で置換してなる基が挙げられる。硬化性組成物の硬化性、硬化物の耐熱性の観点で、ビニルオキシメチル基、2-(ビニルオキシ)エチル基、3-(ビニルオキシ)プロピル基等が好ましい。

[0032] 上記ビニルフェニル基を含有する基としては、ビニルフェニル基を有する公知乃至慣用の基が挙げられ、特に限定されないが、例えば、ビニルフェニル基そのもの、アルキル基（好ましくは炭素数1~10、より好ましくは炭素数1~5のアルキル基）の水素原子（通常1つ以上、好ましくは1つの水素原子）をビニルフェニル基で置換してなる基が挙げられる。硬化性組成物の硬化性、硬化物の耐熱性の観点で、4-ビニルフェニル基、3-ビニルフェニル基、2-ビニルフェニル基等が好ましい。

[0033] 上記(メタ)アクリルオキシ基を含有する基としては、(メタ)アクリルオキシ基を有する公知乃至慣用の基が挙げられ、特に限定されないが、例えば、(メタ)アクリルオキシ基そのもの、アルキル基（好ましくは炭素数1~10、より好ましくは炭素数1~5のアルキル基）の水素原子（通常1つ以上、好ましくは1つの水素原子）を(メタ)アクリルオキシ基で置換してなる基が挙げられる。硬化性組成物の硬化性、硬化物の耐熱性の観点で、2-(メタ)アクリルオキシ)エチル基、3-(メタ)アクリルオキシ)プロピル基等が好ましい。

[0034] 上記(メタ)アクリルアミド基を含有する基としては、(メタ)アクリルアミド基を有する公知乃至慣用の基が挙げられ、特に限定されないが、例えば、(メタ)アクリルアミド基そのもの、アルキル基（好ましくは炭素数1

～10、より好ましくは炭素数1～5のアルキル基)の水素原子(通常1つ以上、好ましくは1つの水素原子)を(メタ)アクリルアミド基で置換してなる基が挙げられる。硬化性組成物の硬化性、硬化物の耐熱性の観点で、2-(メタ)アクリルアミド)エチル基、3-(メタ)アクリルアミド)プロピル基等が好ましい。

[0035] 上記ビニル基を含有する基としては、ビニル基を有する公知乃至慣用の基が挙げられ、特に限定されないが、例えば、ビニル基そのもの、アルキル基(好ましくは炭素数1～10、より好ましくは炭素数1～5のアルキル基)の水素原子(通常1つ以上、好ましくは1つの水素原子)をビニル基で置換してなる基が挙げられる。硬化性組成物の硬化性、硬化物の耐熱性の観点で、ビニル基、ビニルメチル基、2-ビニルエチル基、3-ビニルプロピル基等が好ましい。

[0036] 上記ビニルチオ基を含有する基としては、ビニルチオ基を有する公知乃至慣用の基が挙げられ、特に限定されないが、例えば、ビニルチオ基そのもの、アルキル基(好ましくは炭素数1～10、より好ましくは炭素数1～5のアルキル基)の水素原子(通常1つ以上、好ましくは1つの水素原子)をビニルチオ基で置換してなる基が挙げられる。硬化性組成物の硬化性、硬化物の耐熱性の観点で、ビニルチオメチル基、2-(ビニルチオ)エチル基、3-(ビニルチオ)プロピル基等が好ましい。

[0037] 式(1)中のR¹としては、エポキシ基を含有する基、(メタ)アクリルオキシ基を含有する基が好ましく、特に、上記式(1a)で表される基であって、R^{1a}がエチレン基である基[中でも、2-(3',4'-エポキシシクロヘキシル)エチル基]、3-(アクリルオキシ)プロピル基、3-(メタクリルオキシ)プロピル基が好ましい。

[0038] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンは、上記式(1)で表される構成単位を1種のみ有するものであってもよいし、上記式(1)で表される構成単位を2種以上有するものであってもよい。

[0039] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンは、シルセスキオキサン構成単

位 $[R Si O_{3/2}]$ として、上記式 (1) で表される構成単位以外にも、下記式 (2) で表される構成単位を有していてもよい。

[化17]



[0040] 上記式 (2) で表される構成単位は、一般に $[R Si O_{3/2}]$ で表されるシルセスキオキサン構成単位 (T 単位) である。即ち、上記式 (2) で表される構成単位は、対応する加水分解性三官能シラン化合物 (具体的には、例えば、後述の式 (b) で表される化合物) の加水分解及び縮合反応により形成される。

[0041] 上記式 (2) 中の R^2 は、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルキル基、又は、置換若しくは無置換のアルケニル基を示す。上記アリール基としては、例えば、フェニル基、トリル基、ナフチル基等が挙げられる。上記アラルキル基としては、例えば、ベンジル基、フェネチル基等が挙げられる。上記シクロアルキル基としては、例えば、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。上記アルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、*n*-ブチル基、イソプロピル基、イソブチル基、*s*-ブチル基、*t*-ブチル基、イソペンチル基等の直鎖又は分岐鎖状のアルキル基が挙げられる。上記アルケニル基としては、例えば、ビニル基、アリル基、イソプロペニル基等の直鎖又は分岐鎖状のアルケニル基が挙げられる。

[0042] 上述の置換アリール基、置換アラルキル基、置換シクロアルキル基、置換アルキル基、置換アルケニル基としては、上述のアリール基、アラルキル基、シクロアルキル基、アルキル基、アルケニル基のそれぞれにおける水素原子又は主鎖骨格の一部若しくは全部が、エーテル基、エステル基、カルボニル基、シロキサン基、ハロゲン原子 (フッ素原子等)、アクリル基、メタクリル基、メルカプト基、アミノ基、及びヒドロキシ基 (水酸基) からなる群

より選択された少なくとも1種で置換された基が挙げられる。

[0043] 中でも、 R^2 としては、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基が好ましく、より好ましくは置換若しくは無置換のアリール基、さらに好ましくはフェニル基である。

[0044] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンにおける上述の各シルセスキオキサン構成単位（式（1）で表される構成単位、式（2）で表される構成単位）の割合は、これらの構成単位を形成するための原料（加水分解性三官能シラン）の組成により適宜調整することが可能である。

[0045] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンは、上記式（1）で表される構成単位及び式（2）で表される構成単位以外にも、さらに、上記式（1）で表される構成単位及び式（2）で表される構成単位以外のシルセスキオキサン構成単位 $[R_1SiO_{3/2}]$ 、 $[R_3SiO_{1/2}]$ で表される構成単位（いわゆるM単位）、 $[R_2SiO_{2/2}]$ で表される構成単位（いわゆるD単位）、及び $[SiO_{4/2}]$ で表される構成単位（いわゆるQ単位）からなる群より選択される少なくとも1種のシロキサン構成単位を有していてもよい。なお、上記式（1）で表される構成単位及び式（2）で表される構成単位以外のシルセスキオキサン構成単位としては、例えば、下記式（3）で表される構成単位等が挙げられる。

[化18]

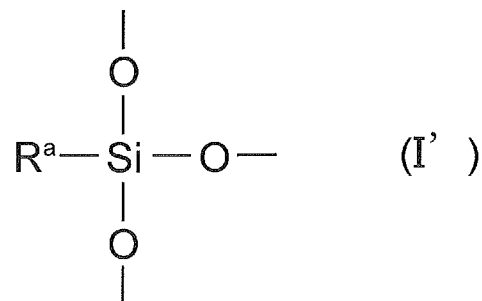


[0046] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンにおける上記式（1）で表される構成単位（T3体）と、上記式（11）で表される構成単位（T2体）の割合 $[T3体/T2体]$ は、上述のように20以上500以下である。上記割合 $[T3体/T2体]$ の下限値は、好ましくは21、より好ましくは23、さらに好ましくは25である。上記割合 $[T3体/T2体]$ を20以上とすることにより、未硬化又は半硬化のハードコート層としたときの表面がタ

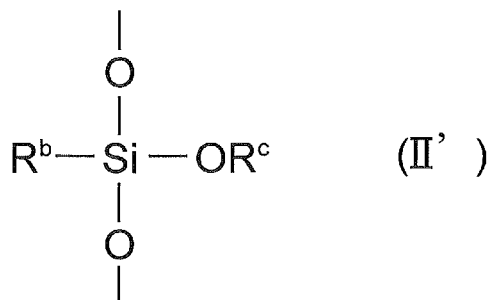
ックフリーになりやすく、耐ブロッキング性が向上して、ロールに巻き取り取りやすくなり、インモールド射出成型の転写用フィルムのハードコート層の成分として好ましく使用することができ、また、硬化物やハードコート層の表面硬度や接着性が著しく向上する。一方、上記割合 [T 3 体 / T 2 体] の上限値は、好ましくは 100、より好ましくは 50、さらに好ましくは 40 である。上記割合 [T 3 体 / T 2 体] を 500 以下とすることにより、硬化性組成物における他の成分との相溶性が向上し、粘度も抑制もされるため、取扱いが容易となり、ハードコート層として塗工しやすくなる。

[0047] なお、上記式 (I) で表される構成単位をより詳細に記載すると、下記式 (I') で表される。また、上記式 (II) で表される構成単位をより詳細に記載すると、下記式 (II') で表される。下記式 (I') で表される構造中に示されるケイ素原子に結合した 3 つの酸素原子はそれぞれ、他のケイ素原子 (式 (I') に示されていないケイ素原子) と結合している。一方、下記式 (II') で表される構造中に示されるケイ素原子の上と下に位置する 2 つの酸素原子はそれぞれ、他のケイ素原子 (式 (II') に示されていないケイ素原子) に結合している。即ち、上記 T 3 体及び T 2 体は、いずれも対応する加水分解性三官能シラン化合物の加水分解及び縮合反応により形成される構成単位 (T 単位) である。

[化19]



[化20]



[0048] 上記式(1)中の R^a (式(1')中の R^a も同じ)及び式(11)中の R^b (式(11')中の R^b も同じ)は、それぞれ、重合性官能基を含有する基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、又は水素原子を示す。 R^a 及び R^b の具体例としては、上記式(1)における R^1 、上記式(2)における R^2 と同様のものが例示される。なお、式(1)中の R^a 及び式(11)中の R^b は、それぞれ、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンの原料として使用した加水分解性三官能シラン化合物におけるケイ素原子に結合した基(アルコキシ基及びハロゲン原子以外の基;例えば、後述の式(a)~(c)における R^1 、 R^2 、水素原子等)に由来する。

[0049] 上記式(11)中の R^c (式(11')中の R^c も同じ)は、水素原子又は炭素数1~4のアルキル基を示す。炭素数1~4のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基等の炭素数1~4の直鎖又は分岐鎖状のアルキル基が挙げられる。式(11)中の R^c におけるアルキル基は、一般的には、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンの原料として使用した加水分解性シラン化合物におけるアルコキシ基(例えば、後述の X^1 ~ X^3 としてのアルコキシ基等)を形成するアルキル基に由来する。

[0050] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンにおける上記割合[T3体/T2体]は、例えば、 ^{29}Si -NMRスペクトル測定により求めることができる

。²⁹S i-NMRスペクトルにおいて、上記式(1)で表される構成単位(T3体)におけるケイ素原子と、上記式(11)で表される構成単位(T2体)におけるケイ素原子とは、異なる位置(化学シフト)にシグナル(ピーク)を示すため、これらそれぞれのピークの積分比を算出することにより、上記割合[T3体/T2体]が求められる。具体的には、例えば、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンが、上記式(1)で表され、R¹が2-(3', 4'-エポキシシクロヘキシル)エチル基である構成単位を有する場合には、上記式(1)で表される構造(T3体)におけるケイ素原子のシグナルは-64~-70 ppmに現れ、上記式(11)で表される構造(T2体)におけるケイ素原子のシグナルは-54~-60 ppmに現れる。従って、この場合、-64~-70 ppmのシグナル(T3体)と-54~-60 ppmのシグナル(T2体)の積分比を算出することによって、上記割合[T3体/T2体]を求めることができる。R¹が2-(3', 4'-エポキシシクロヘキシル)エチル基以外の重合性官能基を含む基である場合も、同様にして[T3体/T2体]を求めることができる。

[0051] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンの²⁹S i-NMRスペクトルは、例えば、下記の装置及び条件により測定することができる。

測定装置：商品名「JNM-ECA500NMR」(日本電子(株)製)

溶媒：重クロロホルム

積算回数：1800回

測定温度：25℃

[0052] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンの上記割合[T3体/T2体]が20以上、500以下であることは、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンにおいてT3体に対してT2体の存在量が相対的に少なく、シラノールの加水分解・縮合反応がより進行していることを意味する。このようなT2体としては、例えば、下記式(4)で表される構成単位、下記式(5)で表される構成単位、下記式(6)で表される構成単位等が挙げられる。下記式(4)におけるR¹及び下記式(5)におけるR²は、それぞれ上記式(1)

におけるR¹及び上記式(2)におけるR²と同じである。下記式(4)～(6)におけるR^cは、式(1)におけるR^cと同じく、水素原子又は炭素数1～4のアルキル基を示す。

[化21]



[化22]



[化23]



[0053] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンは、カゴ型、不完全カゴ型、ラダー型、ランダム型のいずれのシルセスキオキサン構造を有していてもよく、これらシルセスキオキサン構造の2以上を組み合わせ有していてもよい。

[0054] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンにおけるシロキサン構成単位の全量〔全シロキサン構成単位；M単位、D単位、T単位、及びQ単位の全量〕(100モル%)に対する、上記式(1)で表される構成単位及び上記式(4)で表される構成単位の割合(総量)は、上述のように、55～100モル%であり、好ましくは65～100モル%、さらに好ましくは80～99モル%である。上記割合を55モル%以上とすることにより、硬化性組成物の硬化性が向上し、また、硬化物の表面硬度や接着性が著しく高くなる。なお、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンにおける各シロキサン構成単位の割合は、例えば、原料の組成やNMRスペクトル測定等により算出できる。

[0055] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンにおけるシロキサン構成単位の

全量 [全シロキサン構成単位；M単位、D単位、T単位、及びQ単位的全量] (100モル%) に対する、上記式(2)で表される構成単位及び上記式(5)で表される構成単位の割合(総量)は、特に限定されないが、0~70モル%が好ましく、より好ましくは0~60モル%、さらに好ましくは0~40モル%、特に好ましくは1~15モル%である。上記割合を70モル%以下とすることにより、相対的に式(1)で表される構成単位及び式(4)で表される構成単位の割合を多くすることができるため、硬化性組成物の硬化性が向上し、硬化物の表面硬度や接着性がより高くなる傾向がある。一方、上記割合を1モル%以上とすることにより、硬化物のガスバリア性が向上する傾向がある。

[0056] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンにおけるシロキサン構成単位的全量 [全シロキサン構成単位；M単位、D単位、T単位、及びQ単位的全量] (100モル%) に対する、上記式(1)で表される構成単位、上記式(2)で表される構成単位、上記式(4)で表される構成単位、及び上記式(5)で表される構成単位の割合(総量)は、特に限定されないが、60~100モル%が好ましく、より好ましくは70~100モル%、さらに好ましくは80~100モル%である。上記割合を60モル%以上とすることにより、硬化物の表面硬度や接着性がより高くなる傾向がある。

[0057] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンのゲルパーミエーションクロマトグラフィーによる標準ポリスチレン換算の数平均分子量(M_n)は、上述のように、2500~50000であり、好ましくは2800~10000、より好ましくは3000~8000である。数平均分子量を2500以上とすることにより、未硬化又は半硬化のハードコート層としたときの表面がタックフリーになりやすく、耐ブロッキング性が向上して、ロールに巻き取り取りやすくなり、インモールド射出成型の転写用フィルムのハードコート層の成分として好ましく使用することができ、また、硬化物の耐熱性、耐擦傷性、接着性がより向上する。一方、数平均分子量を50000以下とすることにより、硬化性組成物における他の成分との相溶性が向上し、硬化物の

耐熱性がより向上する。

[0058] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンのゲルパーミエーションクロマトグラフィーによる標準ポリスチレン換算の分子量分散度 (M_w/M_n) は、上述のように、1.0~4.0であり、好ましくは1.1~3.0、より好ましくは1.2~2.5である。分子量分散度を4.0以下とすることにより、硬化物の表面硬度や接着性がより高くなる。一方、分子量分散度を1.1以上とすることにより、液状となりやすく、取り扱い性が向上する傾向がある。

[0059] なお、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンの数平均分子量、分子量分散度は、下記の装置及び条件により測定することができる。

測定装置：商品名「LC-20AD」（（株）島津製作所製）

カラム：Shodex KF-801×2本、KF-802、及びKF-803（昭和電工（株）製）

測定温度：40℃

溶離液：THF、試料濃度0.1~0.2重量%

流量：1 mL/分

検出器：UV-VIS検出器（商品名「SPD-20A」、（株）島津製作所製）

分子量：標準ポリスチレン換算

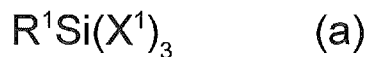
[0060] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンの空気雰囲気下における5%重量減少温度 (T_{d5}) は、特に限定されないが、330℃以上（例えば、330~450℃）が好ましく、より好ましくは340℃以上、さらに好ましくは350℃以上である。5%重量減少温度が330℃以上であることにより、硬化物の耐熱性がより向上する傾向がある。特に、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンの上記割合 [T3体/T2体] が20以上500以下であって、数平均分子量が2500~50000、分子量分散度が1.0~4.0であるものであることにより、その5%重量減少温度は330℃以上に制御される。なお、5%重量減少温度は、一定の昇温速度で加熱した時に加

熱前の重量の5%が減少した時点での温度であり、耐熱性の指標となる。上記5%重量減少温度は、TGA（熱重量分析）により、空気雰囲気下、昇温速度5℃/分の条件で測定することができる。

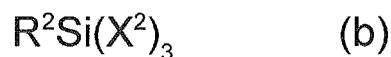
[0061] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンは、公知乃至慣用のポリシロキサンの製造方法により製造することができ、特に限定されないが、例えば、1種又は2種以上の加水分解性シラン化合物を加水分解及び縮合させる方法により製造できる。但し、上記加水分解性シラン化合物としては、上述の式（1）で表される構成単位を形成するための加水分解性三官能シラン化合物（下記式（a）で表される化合物）を必須の加水分解性シラン化合物として使用する必要がある。

[0062] より具体的には、例えば、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンにおけるシルセスキオキサン構成単位（T単位）を形成するための加水分解性シラン化合物である下記式（a）で表される化合物、必要に応じてさらに、下記式（b）で表される化合物、下記式（c）で表される化合物を、加水分解及び縮合させる方法により、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンを製造できる。

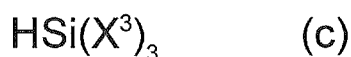
[化24]



[化25]



[化26]



[0063] 上記式（a）で表される化合物は、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンにおける式（1）で表される構成単位を形成する化合物である。式（a）中のR¹は、上記式（1）におけるR¹と同じく、重合性官能基を含有する基

を示す。即ち、式 (a) 中の R^1 としては、上記式 (1 a) で表される基、上記式 (1 b) で表される基、上記式 (1 c) で表される基、上記式 (1 d) で表される基が好ましく、より好ましくは上記式 (1 a) で表される基、上記式 (1 c) で表される基、さらに好ましくは上記式 (1 a) で表される基、特に好ましくは上記式 (1 a) で表される基であって、 R^{1a} がエチレン基である基 [中でも、2-(3', 4'-エポキシシクロヘキシル) エチル基] である。

[0064] 上記式 (a) 中の X^1 は、アルコキシ基又はハロゲン原子を示す。 X^1 におけるアルコキシ基としては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロピルオキシ基、ブトキシ基、イソブチルオキシ基等の炭素数 1~4 のアルコキシ基等が挙げられる。また、 X^1 におけるハロゲン原子としては、例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等が挙げられる。中でも X^1 としては、アルコキシ基が好ましく、より好ましくはメトキシ基、エトキシ基である。なお、3つの X^1 は、それぞれ同一であってもよいし、異なってもよい。

[0065] 上記式 (b) で表される化合物は、本発明のポリオルガノシルセスキオキササンにおける式 (2) で表される構成単位を形成する化合物である。式 (b) 中の R^2 は、上記式 (2) における R^2 と同じく、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルキル基、又は、置換若しくは無置換のアルケニル基を示す。即ち、式 (b) 中の R^2 としては、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基が好ましく、より好ましくは置換若しくは無置換のアリール基、さらに好ましくはフェニル基である。

[0066] 上記式 (b) 中の X^2 は、アルコキシ基又はハロゲン原子を示す。 X^2 の具体例としては、 X^1 として例示したものが挙げられる。中でも、 X^2 としては、アルコキシ基が好ましく、より好ましくはメトキシ基、エトキシ基である。なお、3つの X^2 は、それぞれ同一であってもよいし、異なってもよい。

- [0067] 上記式 (c) で表される化合物は、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンにおける式 (3) で表される構成単位を形成する化合物である。上記式 (c) 中の X^3 は、アルコキシ基又はハロゲン原子を示す。 X^3 の具体例としては、 X^1 として例示したものが挙げられる。中でも、 X^3 としては、アルコキシ基が好ましく、より好ましくはメトキシ基、エトキシ基である。なお、3つの X^3 は、それぞれ同一であってもよいし、異なってもよい。
- [0068] 上記加水分解性シラン化合物としては、上記式 (a) ~ (c) で表される化合物以外の加水分解性シラン化合物を併用してもよい。例えば、上記式 (a) ~ (c) で表される化合物以外の加水分解性三官能シラン化合物、M単位を形成する加水分解性単官能シラン化合物、D単位を形成する加水分解性二官能シラン化合物、Q単位を形成する加水分解性四官能シラン化合物等が挙げられる。
- [0069] 上記加水分解性シラン化合物の使用量や組成は、所望する本発明のポリオルガノシルセスキオキサンの構造に応じて適宜調整できる。例えば、上記式 (a) で表される化合物の使用量は、特に限定されないが、使用する加水分解性シラン化合物の全量 (100モル%) に対して、55~100モル%が好ましく、より好ましくは65~100モル%、さらに好ましくは80~99モル%である。
- [0070] また、上記式 (b) で表される化合物の使用量は、特に限定されないが、使用する加水分解性シラン化合物の全量 (100モル%) に対して、0~70モル%が好ましく、より好ましくは0~60モル%、さらに好ましくは0~40モル%、特に好ましくは1~15モル%である。
- [0071] さらに、使用する加水分解性シラン化合物の全量 (100モル%) に対する式 (a) で表される化合物と式 (b) で表される化合物の割合 (総量の割合) は、特に限定されないが、60~100モル%が好ましく、より好ましくは70~100モル%、さらに好ましくは80~100モル%である。
- [0072] また、上記加水分解性シラン化合物として2種以上を併用する場合、これらの加水分解性シラン化合物の加水分解及び縮合反応は、同時に行うことも

できるし、逐次行うこともできる。上記反応を逐次行う場合、反応を行う順序は特に限定されない。

[0073] 上記加水分解性シラン化合物の加水分解及び縮合反応は、1段階で行ってもよいし、2段階以上に分けて行ってもよいが、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンを効率よく製造するためには、2段階以上（好ましくは、2段階）で加水分解及び縮合反応を行うことが好ましい。以下に、加水分解性シラン化合物の加水分解及び縮合反応を2段階で行う態様について説明するが、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンの製造方法はこれに限定されない。

[0074] 本発明の加水分解及び縮合反応を2段階で行う場合、好ましくは、第1段目の加水分解及び縮合反応で、上記割合 [T 3体 / T 2体] が5以上20未満であり、数平均分子量が1000～3000であるポリオルガノシルセスキオキサン（以下、「中間体ポリオルガノシルセスキオキサン」と称する）を得、第2段目で、該中間体ポリオルガノシルセスキオキサンを、さらに加水分解及び縮合反応に付すことにより、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンを得ることができる。

[0075] 第1段目の加水分解及び縮合反応は、溶媒の存在下で行うこともできるし、非存在下で行うこともできる。中でも溶媒の存在下で行うことが好ましい。上記溶媒としては、例えば、ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン等の芳香族炭化水素；ジエチルエーテル、ジメトキシエタン、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル；アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン；酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸イソプロピル、酢酸ブチル等のエステル；N, N-ジメチルホルムアミド、N, N-ジメチルアセトアミド等のアミド；アセトニトリル、プロピオニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル；メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、ブタノール等のアルコール等が挙げられる。上記溶媒としては、中でも、ケトン、エーテルが好ましい。なお、溶媒は1種を単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせ使用することもできる。

[0076] 第1段目の加水分解及び縮合反応における溶媒の使用量は、特に限定されず、加水分解性シラン化合物の全量100重量部に対して、0~2000重量部の範囲内で、所望の反応時間等に応じて、適宜調整することができる。

[0077] 第1段目の加水分解及び縮合反応は、触媒及び水の存在下で進行させることが好ましい。上記触媒は、酸触媒であってもアルカリ触媒であってもよいが、エポキシ基等の重合性官能基の分解を抑制するためにはアルカリ触媒が好ましい。上記酸触媒としては、例えば、塩酸、硫酸、硝酸、リン酸、ホウ酸等の鉱酸；リン酸エステル；酢酸、蟻酸、トリフルオロ酢酸等のカルボン酸；メタンスルホン酸、トリフルオロメタンスルホン酸、p-トルエンスルホン酸等のスルホン酸；活性白土等の固体酸；塩化鉄等のルイス酸等が挙げられる。上記アルカリ触媒としては、例えば、水酸化リチウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化セシウム等のアルカリ金属の水酸化物；水酸化マグネシウム、水酸化カルシウム、水酸化バリウム等のアルカリ土類金属の水酸化物；炭酸リチウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸セシウム等のアルカリ金属の炭酸塩；炭酸マグネシウム等のアルカリ土類金属の炭酸塩；炭酸水素リチウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム、炭酸水素セシウム等のアルカリ金属の炭酸水素塩；酢酸リチウム、酢酸ナトリウム、酢酸カリウム、酢酸セシウム等のアルカリ金属の有機酸塩（例えば、酢酸塩）；酢酸マグネシウム等のアルカリ土類金属の有機酸塩（例えば、酢酸塩）；リチウムメトキシド、ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、ナトリウムイソプロポキシド、カリウムエトキシド、カリウムt-ブトキシド等のアルカリ金属のアルコキシド；ナトリウムフェノキシド等のアルカリ金属のフェノキシド；トリエチルアミン、N-メチルピペリジン、1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]ウンデカ-7-エン、1,5-ジアザビシクロ[4.3.0]ノナ-5-エン等のアミン類（第3級アミン等）；ピリジン、2,2'-ビピリジル、1,10-フェナントリン等の含窒素芳香族複素環化合物等が挙げられる。なお、触媒は1種を単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせることもでき

る。また、触媒は、水や溶媒等に溶解又は分散させた状態で使用することもできる。

[0078] 第1段目の加水分解及び縮合反応における上記触媒の使用量は、特に限定されず、加水分解性シラン化合物の全量1モルに対して、0.002~0.200モルの範囲内で、適宜調整することができる。

[0079] 第1段目の加水分解及び縮合反応に際しての水の使用量は、特に限定されず、加水分解性シラン化合物の全量1モルに対して、0.5~20モルの範囲内で、適宜調整することができる。

[0080] 第1段目の加水分解及び縮合反応における上記水の添加方法は、特に限定されず、使用する水の全量（全使用量）を一括で添加してもよいし、逐次的に添加してもよい。逐次的に添加する際には、連続的に添加してもよいし、間欠的に添加してもよい。

[0081] 第1段目の加水分解及び縮合反応の反応条件としては、特に、中間体ポリオルガノシルセスキオキサンにおける上記割合〔T3体/T2体〕が5以上20未満となるような反応条件を選択することが重要である。第1段目の加水分解及び縮合反応の反応温度は、特に限定されないが、40~100℃が好ましく、より好ましくは45~80℃である。反応温度を上記範囲に制御することにより、上記割合〔T3体/T2体〕をより効率的に5以上20未満に制御できる傾向がある。また、第1段目の加水分解及び縮合反応の反応時間は、特に限定されないが、0.1~10時間が好ましく、より好ましくは1.5~8時間である。また、第1段目の加水分解及び縮合反応は、常圧下で行うこともできるし、加圧下又は減圧下で行うこともできる。なお、第1段目の加水分解及び縮合反応を行う際の雰囲気は、特に限定されず、例えば、窒素雰囲気、アルゴン雰囲気等の不活性ガス雰囲気下、空気下等の酸素存在下等のいずれであってもよいが、不活性ガス雰囲気下が好ましい。

[0082] 上記第1段目の加水分解及び縮合反応により、中間体ポリオルガノシルセスキオキサンが得られる。上記第1段目の加水分解及び縮合反応の終了後には、エポキシ基の開環等の重合性官能基の分解を抑制するために触媒を中和

することが好ましい。また、中間体ポリオルガノシルセスキオキサンを、例えば、水洗、酸洗浄、アルカリ洗浄、濾過、濃縮、蒸留、抽出、晶析、再結晶、カラムクロマトグラフィー等の分離手段や、これらを組み合わせた分離手段等により分離精製してもよい。

[0083] 第1段目の加水分解及び縮合反応により得られた中間体ポリオルガノシルセスキオキサンを、第2段目の加水分解及び縮合反応に付すことにより、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンを製造することができる。

第2段目の加水分解及び縮合反応は、溶媒の存在下で行うこともできるし、非存在下で行うこともできる。第2段目の加水分解及び縮合反応を溶媒の存在下で行う場合、第1段目の加水分解及び縮合反応で挙げられた溶媒を用いることができる。第2段目の加水分解及び縮合反応の溶媒としては、第1段目の加水分解及び縮合反応の反応溶媒、抽出溶媒等を含む中間体ポリオルガノシルセスキオキサンをそのまま、又は一部留去したものをを用いてもよい。なお、溶媒は1種を単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせ使用することもできる。

[0084] 第2段目の加水分解及び縮合反応において溶媒を使用する場合、その使用量は、特に限定されず、中間体ポリオルガノシルセスキオキサン100重量部に対して、0～2000重量部の範囲内で、所望の反応時間等に応じて、適宜調整することができる。

[0085] 第2段目の加水分解及び縮合反応は、触媒及び水の存在下で進行させることが好ましい。上記触媒は、第1段目の加水分解及び縮合反応で挙げられた触媒を用いることができ、エポキシ基等の重合性官能基の分解を抑制するためには、好ましくはアルカリ触媒であり、さらに好ましくは水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化セシウム等のアルカリ金属の水酸化物；炭酸リチウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸セシウム等のアルカリ金属の炭酸塩である。なお、触媒は1種を単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせ使用することもできる。また、触媒は、水や溶媒等に溶解又は分散させた状態で使用することもできる。

- [0086] 第2段目の加水分解及び縮合反応における上記触媒の使用量は、特に限定されず、中間体ポリオルガノシルセスキオキサン（1000000ppm）に対して、好ましくは0.01～10000ppm、より好ましくは0.1～1000ppmの範囲内で、適宜調整することができる。
- [0087] 第2段目の加水分解及び縮合反応に際しての水の使用量は、特に限定されず、中間体ポリオルガノシルセスキオキサン（1000000ppm）に対して、好ましくは10～100000ppm、より好ましくは100～20000ppmの範囲内で、適宜調整することができる。水の使用量が100000ppmよりも大きいと、ポリオルガノシルセスキオキサンの割合〔T3体／T2体〕や数平均分子量が、所定の範囲に制御しにくくなる傾向がある。
- [0088] 第2段目の加水分解及び縮合反応における上記水の添加方法は、特に限定されず、使用する水の全量（全使用量）を一括で添加してもよいし、逐次的に添加してもよい。逐次的に添加する際には、連続的に添加してもよいし、間欠的に添加してもよい。
- [0089] 第2段目の加水分解及び縮合反応の反応条件としては、特に、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンにおける上記割合〔T3体／T2体〕が20以上500以下、数平均分子量が2500～50000となるような反応条件を選択することが重要である。第2段目の加水分解及び縮合反応の反応温度は、使用する触媒により変動し、特に限定されないが、5～200℃が好ましく、より好ましくは30～100℃である。反応温度を上記範囲に制御することにより、上記割合〔T3体／T2体〕、数平均分子量をより効率的に所望の範囲に制御できる傾向がある。また、第2段目の加水分解及び縮合反応の反応時間は、特に限定されないが、0.5～1000時間が好ましく、より好ましくは1～500時間である。

また、上記反応温度の範囲内にて加水分解及び縮合反応を行いながら適時サンプリングを行って、上記割合〔T3体／T2体〕、数平均分子量をモニターしながら反応を行うことによって、所望の割合〔T3体／T2体〕、数

平均分子量を有する本発明のポリオルガノシルセスキオキサンを得ることもできる。

[0090] 第2段目の加水分解及び縮合反応は、常圧下で行うこともできるし、加圧下又は減圧下で行うこともできる。なお、第2段目の加水分解及び縮合反応を行う際の雰囲気は、特に限定されず、例えば、窒素雰囲気、アルゴン雰囲気等の不活性ガス雰囲気下、空気下等の酸素存在下等のいずれであってもよいが、不活性ガス雰囲気下が好ましい。

[0091] 上記第2段目の加水分解及び縮合反応により、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンが得られる。上記第2段目の加水分解及び縮合反応の終了後には、エポキシ基の開環等の重合性官能基の分解を抑制するために触媒を中和することが好ましい。また、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンを、例えば、水洗、酸洗浄、アルカリ洗浄、濾過、濃縮、蒸留、抽出、晶析、再結晶、カラムクロマトグラフィー等の分離手段や、これらを組み合わせた分離手段等により分離精製してもよい。

[0092] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンは上述の構成を有するため、該ポリオルガノシルセスキオキサンを必須成分として含む硬化性組成物を塗工した未硬化又は半硬化のハードコート層はタックフリーとなり、耐ブロッキング性が向上するため、ロールに巻き取って取り扱うことが可能になり、例えば、インモールド射出成転写用フィルムのハードコート層の成分として好適に使用することができる。また、当該硬化性組成物を硬化させることにより、高い表面硬度かつ耐熱性を有し、可とう性及び加工性に優れた硬化物を形成できる。また、接着性に優れた硬化物を形成できる。

[0093] [硬化性組成物]

本発明の硬化性組成物は、上述の本発明のポリオルガノシルセスキオキサンを必須成分として含む硬化性組成物（硬化性樹脂組成物）である。後述のように、本発明の硬化性組成物は、さらに、硬化触媒（特に光カチオン重合開始剤、ラジカル重合性開始剤）や表面調整剤あるいは表面改質剤等のその他の成分を含んでもよい。

- [0094] 本発明の硬化性組成物において本発明のポリオルガノシルセスキオキサンは、1種を単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせることもできる。
- [0095] 本発明の硬化性組成物における本発明のポリオルガノシルセスキオキサンの含有量（配合量）は、特に限定されないが、溶媒を除く硬化性組成物の全量（100重量%）に対して、70重量%以上、100重量%未満が好ましく、より好ましくは80～99.8重量%、さらに好ましくは90～99.5重量%である。本発明のポリオルガノシルセスキオキサンの含有量を70重量%以上とすることにより、硬化物の表面硬度や接着性がより向上する傾向がある。一方、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンの含有量を100重量%未満とすることにより、硬化触媒を含有させることができ、これにより硬化性組成物の硬化をより効率的に進行させることができる傾向がある。
- [0096] 本発明の硬化性組成物に含まれるカチオン硬化性化合物又はラジカル硬化性化合物の全量（100重量%）に対する本発明のポリオルガノシルセスキオキサンの割合は、特に限定されないが、70～100重量%が好ましく、より好ましくは75～98重量%、さらに好ましくは80～95重量%である。本発明のポリオルガノシルセスキオキサンの含有量を70重量%以上とすることにより、硬化物の表面硬度や接着性がより向上する傾向がある。
- [0097] 本発明の硬化性組成物は、さらに、硬化触媒を含むことが好ましい。中でも、よりタックフリーとなるまでの硬化時間が短縮できる点で、硬化触媒としてカチオン重合開始剤又はラジカル重合開始剤を含むことが特に好ましい。
- [0098] 上記カチオン重合開始剤は、本発明のポリオルガノシルセスキオキサン等のカチオン硬化性化合物のカチオン重合反応を開始乃至促進することができる化合物である。上記カチオン重合開始剤としては、特に限定されないが、例えば、光カチオン重合開始剤（光酸発生剤）、熱カチオン重合開始剤（熱酸発生剤）等が挙げられる。

[0099] 上記光カチオン重合開始剤としては、公知乃至慣用の光カチオン重合開始剤を使用することができ、例えば、スルホニウム塩（スルホニウムイオンとアニオンとの塩）、ヨードニウム塩（ヨードニウムイオンとアニオンとの塩）、セレニウム塩（セレニウムイオンとアニオンとの塩）、アンモニウム塩（アンモニウムイオンとアニオンとの塩）、ホスホニウム塩（ホスホニウムイオンとアニオンとの塩）、遷移金属錯体イオンとアニオンとの塩等が挙げられる。これらは1種を単独で又は2種以上を組み合わせ使用することができる。

[0100] 上記スルホニウム塩としては、例えば、[4-(4-ビフェニルチオ)フェニル]-4-ビフェニルフェニルスルホニウムトリス（ペンタフルオロエチル）トリフルオロホスフェート、トリフェニルスルホニウム塩、トリ-p-トリルスルホニウム塩、トリ-o-トリルスルホニウム塩、トリス（4-メトキシフェニル）スルホニウム塩、1-ナフチルジフェニルスルホニウム塩、2-ナフチルジフェニルスルホニウム塩、トリス（4-フルオロフェニル）スルホニウム塩、トリ-1-ナフチルスルホニウム塩、トリ-2-ナフチルスルホニウム塩、トリス（4-ヒドロキシフェニル）スルホニウム塩、ジフェニル[4-(フェニルチオ)フェニル]スルホニウム塩、4-(p-トリルチオ)フェニルジ-(p-フェニル)スルホニウム塩等のトリアリールスルホニウム塩；ジフェニルフェナシルスルホニウム塩、ジフェニル4-ニトロフェナシルスルホニウム塩、ジフェニルベンジルスルホニウム塩、ジフェニルメチルスルホニウム塩等のジアリールスルホニウム塩；フェニルメチルベンジルスルホニウム塩、4-ヒドロキシフェニルメチルベンジルスルホニウム塩、4-メトキシフェニルメチルベンジルスルホニウム塩等のモノアリールスルホニウム塩；ジメチルフェナシルスルホニウム塩、フェナシルテトラヒドロチオフェニウム塩、ジメチルベンジルスルホニウム塩等のトリアルキルスルホニウム塩等が挙げられる。

[0101] 上記ジフェニル[4-(フェニルチオ)フェニル]スルホニウム塩としては、例えば、ジフェニル[4-(フェニルチオ)フェニル]スルホニウムへ

キサフルオロアンチモネート、ジフェニル [4-(フェニルチオ)フェニル] スルホニウムヘキサフルオロホスファート等を使用できる。

[0102] 上記ヨードニウム塩としては、例えば、商品名「UV9380C」(モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン合同会社製、ビス(4-ードデシルフェニル)ヨードニウム=ヘキサフルオロアンチモネート45%アルキルグリシジルエーテル溶液)、商品名「RHODORSIL PHOTOINITIATOR 2074」(ローディア・ジャパン(株)製、テトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレート=[(1-メチルエチル)フェニル](メチルフェニル)ヨードニウム)、商品名「WP1-124」(和光純薬工業(株)製)、ジフェニルヨードニウム塩、ジ-*p*-トリルヨードニウム塩、ビス(4-ードデシルフェニル)ヨードニウム塩、ビス(4-メトキシフェニル)ヨードニウム塩等が挙げられる。

[0103] 上記セレンウム塩としては、例えば、トリフェニルセレンウム塩、トリ-*p*-トリルセレンウム塩、トリ-*o*-トリルセレンウム塩、トリス(4-メトキシフェニル)セレンウム塩、1-ナフチルジフェニルセレンウム塩等のトリアリールセレンウム塩；ジフェニルフェナシルセレンウム塩、ジフェニルベンジルセレンウム塩、ジフェニルメチルセレンウム塩等のジアリールセレンウム塩；フェニルメチルベンジルセレンウム塩等のモノアリールセレンウム塩；ジメチルフェナシルセレンウム塩等のトリアルキルセレンウム塩等が挙げられる。

[0104] 上記アンモニウム塩としては、例えば、テトラメチルアンモニウム塩、エチルトリメチルアンモニウム塩、ジエチルジメチルアンモニウム塩、トリエチルメチルアンモニウム塩、テトラエチルアンモニウム塩、トリメチル-*n*-プロピルアンモニウム塩、トリメチル-*n*-ブチルアンモニウム塩等のテトリアルキルアンモニウム塩；N,N-ジメチルピロリジウム塩、N-エチル-N-メチルピロリジウム塩等のピロリジウム塩；N,N'-ジメチルイミダゾリニウム塩、N,N'-ジエチルイミダゾリニウム塩等のイミダゾリニウム塩；N,N'-ジメチルテトラヒドロピリミジウム塩、N,N'-ジ

エチルテトラヒドロピリミジウム塩等のテトラヒドロピリミジウム塩；N，N-ジメチルモルホリニウム塩、N，N-ジエチルモルホリニウム塩等のモルホリニウム塩；N，N-ジメチルピペリジニウム塩、N，N-ジエチルピペリジニウム塩等のピペリジニウム塩；N-メチルピリジニウム塩、N-エチルピリジニウム塩等のピリジニウム塩；N，N'-ジメチルイミダゾリウム塩等のイミダゾリウム塩；N-メチルキノリウム塩等のキノリウム塩；N-メチルイソキノリウム塩等のイソキノリウム塩；ベンジルベンゾチアゾニウム塩等のチアゾニウム塩；ベンジルアクリジウム塩等のアクリジウム塩等が挙げられる。

[0105] 上記ホスホニウム塩としては、例えば、テトラフェニルホスホニウム塩、テトラ-p-トリルホスホニウム塩、テトラキス(2-メトキシフェニル)ホスホニウム塩等のテトラアリアルホスホニウム塩；トリフェニルベンジルホスホニウム塩等のトリアリアルホスホニウム塩；トリエチルベンジルホスホニウム塩、トリブチルベンジルホスホニウム塩、テトラエチルホスホニウム塩、テトラブチルホスホニウム塩、トリエチルフェナシルホスホニウム塩等のテトラアルキルホスホニウム塩等が挙げられる。

[0106] 上記遷移金属錯体イオンの塩としては、例えば、(η^5 -シクロペンタジエニル)(η^6 -トルエン)Cr⁺、(η^5 -シクロペンタジエニル)(η^6 -キシレン)Cr⁺等のクロム錯体カチオンの塩；(η^5 -シクロペンタジエニル)(η^6 -トルエン)Fe⁺、(η^5 -シクロペンタジエニル)(η^6 -キシレン)Fe⁺等の鉄錯体カチオンの塩等が挙げられる。

[0107] 上述の塩を構成するアニオンとしては、例えば、SbF₆⁻、PF₆⁻、BF₄⁻、(CF₃CF₂)₃PF₃⁻、(CF₃CF₂CF₂)₃PF₃⁻、(C₆F₅)₄B⁻、(C₆F₅)₄Ga⁻、スルホン酸アニオン(トリフルオロメタンスルホン酸アニオン、ペンタフルオロエタンスルホン酸アニオン、ノナフルオロブタンスルホン酸アニオン、メタンスルホン酸アニオン、ベンゼンスルホン酸アニオン、p-トルエンスルホン酸アニオン等)、(CF₃SO₂)₃C⁻、(CF₃SO₂)₂N⁻、過ハロゲン酸イオン、ハロゲン化スルホン酸イオン、硫酸イオン、炭酸イオン、

アルミン酸イオン、ヘキサフルオロビスマス酸イオン、カルボン酸イオン、アリアルホウ酸イオン、チオシアン酸イオン、硝酸イオン等が挙げられる。

[0108] 上記熱カチオン重合開始剤としては、例えば、アリアルスルホニウム塩、アリアルヨードニウム塩、アレンーイオン錯体、第4級アンモニウム塩、アルミニウムキレート、三フッ化ホウ素アミン錯体等が挙げられる。

[0109] 上記アリアルスルホニウム塩としては、例えば、ヘキサフルオロアンチモネート塩等が挙げられる。本発明の硬化性組成物においては、例えば、商品名「SP-66」、「SP-77」（以上、(株)ADEKA製）；商品名「サンエイドS1-60L」、「サンエイドS1-80L」、「サンエイドS1-100L」、「サンエイドS1-150L」（以上、三新化学工業（株）製）等の市販品を使用することができる。上記アルミニウムキレートとしては、例えば、エチルアセトアセテートアルミニウムジイソプロピレート、アルミニウムトリス（エチルアセトアセテート）等が挙げられる。また、上記三フッ化ホウ素アミン錯体としては、例えば、三フッ化ホウ素モノエチルアミン錯体、三フッ化ホウ素イミダゾール錯体、三フッ化ホウ素ピペリジン錯体等が挙げられる。

[0110] 上記ラジカル重合開始剤は、本発明のポリオルガノシルセスキオキサン等のラジカル硬化性化合物のラジカル重合反応を開始乃至促進することができる化合物である。上記ラジカル重合開始剤としては、特に限定されないが、例えば、光ラジカル重合開始剤、熱ラジカル重合開始剤等が挙げられる。

[0111] 前記光ラジカル重合開始剤としては、例えば、ベンゾフェノン、アセトフェノンベンジル、ベンジルジメチルケトン、ベンゾイン、ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインイソプロピルエーテル、ジメトキシアセトフェノン、ジメトキシフェニルアセトフェノン、ジエトキシアセトフェノン、ジフェニルジサルファイト、オルトベンゾイル安息香酸メチル、4-ジメチルアミノ安息香酸エチル（日本化薬（株）製、商品名「カヤキュアEPA」等）、2,4-ジエチルチオキサンソン（日本化薬（株）製、商品名「カヤキュアDETX」等）、2-メチル-1-[4-(メチ

ル) フェニル] - 2 - モルホリノプロパノン - 1 (チバガイギー (株) 製、商品名「イルガキュア 907」等)、1 - ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン (チバガイギー (株) 製、商品名「イルガキュア 184」等)、2 - ジメチルアミノ - 2 - (4 - モルホリノ) ベンゾイル - 1 - フェニルプロパン等の 2 - アミノ - 2 - ベンゾイル - 1 - フェニルアルカン化合物、テトラ (t - ブチルパーオキシカルボニル) ベンゾフェノン、ベンジル、2 - ヒドロキシ - 2 - メチル - 1 - フェニルプロパン - 1 - オン、4, 4 - ビスジエチルアミノベンゾフェノン等のアミノベンゼン誘導体、2, 2' - ビス (2 - クロロフェニル) - 4, 5, 4', 5' - テトラフェニル - 1, 2' - ビイミダゾール (保土谷化学 (株) 製、商品名「B-CIM」等) 等のイミダゾール化合物、2, 6 - ビス (トリクロロメチル) - 4 - (4 - メトキシナフタレン - 1 - イル) - 1, 3, 5 - トリアジン等のハロメチル化トリアジン化合物、2 - トリクロロメチル - 5 - (2 - ベンゾフラン 2 - イル - エテニル) - 1, 3, 4 - オキサジアゾール等のハロメチルオキサジアゾール化合物等を挙げることができる。また、必要に応じて、光増感剤を加えることができる。

[0112] 前記熱ラジカル重合開始剤としては、例えば、ハイドロパーオキサイド、ジアルキルパーオキサイド、パーオキシエステル、ジアシルパーオキサイド、パーオキシジカーボネート、パーオキシケタール、ケトンパーオキサイド等 (具体的には、ベンゾイルパーオキサイド、t - ブチルパーオキシ - 2 - エチルヘキサノエート、2, 5 - ジメチル - 2, 5 - ジ (2 - エチルヘキサノイル) パーオキシヘキサン、t - ブチルパーオキシベンゾエート、t - ブチルパーオキサイド、クメンハイドロパーオキサイド、ジクミルパーオキサイド、ジ - t - ブチルパーオキサイド、2, 5 - ジメチル - 2, 5 - ジブチルパーオキシヘキサン、2, 4 - ジクロロベンゾイルパーオキサイド、1, 4 - ジ (2 - t - ブチルパーオキシイソプロピル) ベンゼン、1, 1 - ビス (t - ブチルパーオキシ) - 3, 3, 5 - トリメチルシクロヘキサン、メチルエチルケトンパーオキサイド、1, 1, 3, 3 - テトラメチルブチルパー

オキシ-2-エチルヘキサノエート等)等の有機過酸化物類を挙げることができる。

[0113] なお、本発明の硬化性組成物において硬化触媒は、1種を単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせることもできる。

[0114] 本発明の硬化性組成物における上記硬化触媒の含有量(配合量)は、特に限定されないが、本発明のポリオルガノシルセスキオキサン100重量部に対して、0.01~3.0重量部が好ましく、より好ましくは0.05~3.0重量部、さらに好ましくは0.1~1.0重量部(例えば、0.3~1.0重量部)である。硬化触媒の含有量を0.01重量部以上とすることにより、硬化反応を効率的に十分に進行させることができ、硬化物の表面硬度や接着性がより向上する傾向がある。一方、硬化触媒の含有量を3.0重量部以下とすることにより、硬化性組成物の保存性がいっそう向上したり、硬化物の着色が抑制される傾向がある。

[0115] 本発明の硬化性組成物は、さらに、本発明のポリオルガノシルセスキオキサン以外のカチオン硬化性化合物(「その他のカチオン硬化性化合物」と称する場合がある)及び/又は本発明のポリオルガノシルセスキオキサン以外のラジカル硬化性化合物(「その他のラジカル硬化性化合物」と称する場合がある)を含んでいてもよい。その他のカチオン硬化性化合物としては、公知乃至慣用のカチオン硬化性化合物を使用することができ、特に限定されないが、例えば、本発明のポリオルガノシルセスキオキサン以外のエポキシ化合物、オキセタン化合物、ビニルエーテル化合物等が挙げられる。なお、本発明の硬化性組成物においてその他のカチオン硬化性化合物は、1種を単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせることもできる。

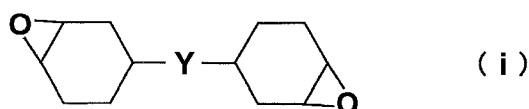
[0116] 上記エポキシ化合物としては、分子内に1以上のエポキシ基(オキシラン環)を有する公知乃至慣用の化合物を使用することができ、特に限定されないが、例えば、脂環式エポキシ化合物(脂環式エポキシ樹脂)、芳香族エポキシ化合物(芳香族エポキシ樹脂)、脂肪族エポキシ化合物(脂肪族エポキ

シ樹脂)等が挙げられる。

[0117] 上記脂環式エポキシ化合物としては、分子内に1個以上の脂環と1個以上のエポキシ基とを有する公知乃至慣用の化合物が挙げられ、特に限定されないが、例えば、(1)分子内に脂環を構成する隣接する2つの炭素原子と酸素原子とで構成されるエポキシ基(「脂環エポキシ基」と称する)を有する化合物;(2)脂環にエポキシ基が直接単結合で結合している化合物;(3)分子内に脂環及びグリシジルエーテル基を有する化合物(グリシジルエーテル型エポキシ化合物)等が挙げられる。

[0118] 上記(1)分子内に脂環エポキシ基を有する化合物としては、下記式(i)で表される化合物が挙げられる。

[化27]



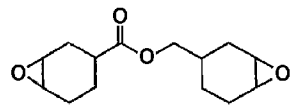
[0119] 上記式(i)中、Yは単結合又は連結基(1以上の原子を有する二価の基)を示す。上記連結基としては、例えば、二価の炭化水素基、炭素-炭素二重結合の一部又は全部がエポキシ化されたアルケニレン基、カルボニル基、エーテル結合、エステル結合、カーボネート基、アミド基、これらが複数個連結した基等が挙げられる。

[0120] 上記二価の炭化水素基としては、炭素数が1~18の直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基、二価の脂環式炭化水素基等が挙げられる。炭素数が1~18の直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基としては、例えば、メチレン基、メチルメチレン基、ジメチルメチレン基、エチレン基、プロピレン基、トリメチレン基等が挙げられる。上記二価の脂環式炭化水素基としては、例えば、1,2-シクロペンチレン基、1,3-シクロペンチレン基、シクロペンチリデン基、1,2-シクロヘキシレン基、1,3-シクロヘキシレン基、1,4-シクロヘキシレン基、シクロヘキシリデン基等の二価のシクロアルキレン基(シクロアルキリデン基を含む)等が挙げられる。

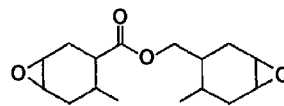
[0121] 上記炭素-炭素二重結合の一部又は全部がエポキシ化されたアルケニレン基（「エポキシ化アルケニレン基」と称する場合がある）におけるアルケニレン基としては、例えば、ビニレン基、プロペニレン基、1-ブテニレン基、2-ブテニレン基、ブタジエニレン基、ペンテニレン基、ヘキセニレン基、ヘプテニレン基、オクテニレン基等の炭素数2~8の直鎖又は分岐鎖状のアルケニレン基等が挙げられる。特に、上記エポキシ化アルケニレン基としては、炭素-炭素二重結合の全部がエポキシ化されたアルケニレン基が好ましく、より好ましくは炭素-炭素二重結合の全部がエポキシ化された炭素数2~4のアルケニレン基である。

[0122] 上記式(i)で表される脂環式エポキシ化合物の代表的な例としては、(3, 4, 3', 4'-ジエポキシ)ビスクロヘキシル、下記式(i-1)~(i-10)で表される化合物等が挙げられる。なお、下記式(i-5)、(i-7)中のl、mは、それぞれ1~30の整数を表す。下記式(i-5)中のR'は炭素数1~8のアルキレン基であり、中でも、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、イソプロピレン基等の炭素数1~3の直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基が好ましい。下記式(i-9)、(i-10)中のn₁~n₆は、それぞれ1~30の整数を示す。また、上記式(i)で表される脂環式エポキシ化合物としては、その他、例えば、2, 2-ビス(3, 4-エポキシシクロヘキシル)プロパン、1, 2-ビス(3, 4-エポキシシクロヘキシル)エタン、2, 3-ビス(3, 4-エポキシシクロヘキシル)オキシラン、ビス(3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル)エーテル等が挙げられる。

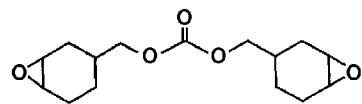
[化28]



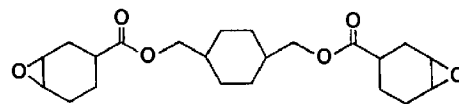
(i-1)



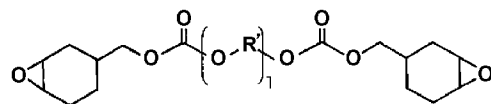
(i-2)



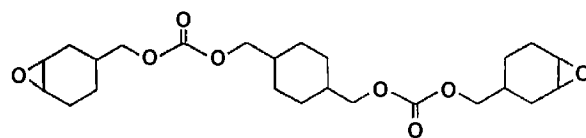
(i-3)



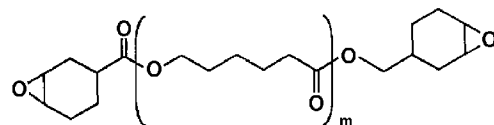
(i-4)



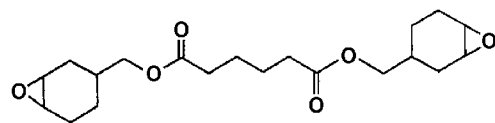
(i-5)



(i-6)

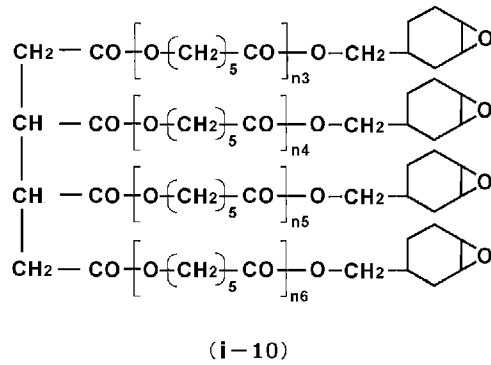
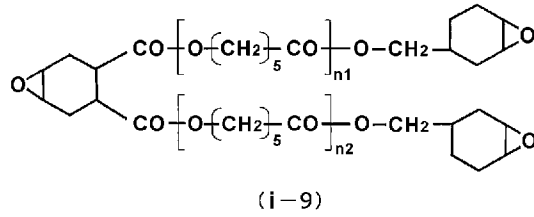


(i-7)



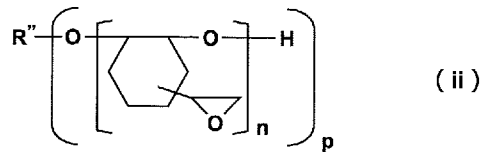
(i-8)

[化29]



[0123] 上述の(2)脂環にエポキシ基が直接単結合で結合している化合物としては、例えば、下記式(i i)で表される化合物等が挙げられる。

[化30]



[0124] 式(i i)中、R''は、p価のアルコールの構造式からp個の水酸基(-OH)を除いた基(p価の有機基)であり、p、nはそれぞれ自然数を表す。p価のアルコール[R''(OH)_p]としては、2,2-ビス(ヒドロキシメチル)-1-ブタノール等の多価アルコール(炭素数1~15のアルコール等)等が挙げられる。pは1~6が好ましく、nは1~30が好ましい。pが2以上の場合、それぞれの()内(外側の括弧内)の基におけるnは同一でもよく異なってもよい。上記式(i i)で表される化合物としては、具体的には、2,2-ビス(ヒドロキシメチル)-1-ブタノールの1,2-エポキシ-4-(2-オキシラニル)シクロヘキサン付加物[例えば、商

品名「EHPE3150」（（株）ダイセル製）等」等が挙げられる。

[0125] 上述の（３）分子内に脂環及びグリシジルエーテル基を有する化合物としては、例えば、脂環式アルコール（特に、脂環式多価アルコール）のグリシジルエーテルが挙げられる。より詳しくは、例えば、２，２－ビス〔４－（２，３－エポキシプロポキシ）シクロヘキシル〕プロパン、２，２－ビス〔３，５－ジメチル－４－（２，３－エポキシプロポキシ）シクロヘキシル〕プロパンなどのビスフェノールＡ型エポキシ化合物を水素化した化合物（水素化ビスフェノールＡ型エポキシ化合物）；ビス〔*o*，*o*－（２，３－エポキシプロポキシ）シクロヘキシル〕メタン、ビス〔*o*，*p*－（２，３－エポキシプロポキシ）シクロヘキシル〕メタン、ビス〔*p*，*p*－（２，３－エポキシプロポキシ）シクロヘキシル〕メタン、ビス〔３，５－ジメチル－４－（２，３－エポキシプロポキシ）シクロヘキシル〕メタンなどのビスフェノールＦ型エポキシ化合物を水素化した化合物（水素化ビスフェノールＦ型エポキシ化合物）；水素化ビスフェノール型エポキシ化合物；水素化フェノールノボラック型エポキシ化合物；水素化クレゾールノボラック型エポキシ化合物；ビスフェノールＡの水素化クレゾールノボラック型エポキシ化合物；水素化ナフタレン型エポキシ化合物；トリスフェノールメタンから得られるエポキシ化合物の水素化エポキシ化合物；下記芳香族エポキシ化合物の水素化エポキシ化合物等が挙げられる。

[0126] 上記芳香族エポキシ化合物としては、例えば、ビスフェノール類〔例えば、ビスフェノールＡ、ビスフェノールＦ、ビスフェノールＳ、フルオレンビスフェノール等〕と、エピハロヒドリンとの縮合反応により得られるエピビスタイプグリシジルエーテル型エポキシ樹脂；これらのエピビスタイプグリシジルエーテル型エポキシ樹脂を上記ビスフェノール類とさらに付加反応させることにより得られる高分子量エピビスタイプグリシジルエーテル型エポキシ樹脂；フェノール類〔例えば、フェノール、クレゾール、キシレノール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールＡ、ビスフェノールＦ、ビスフェノールＳ等〕とアルデヒド〔例えば、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド〕

ド、ベンズアルデヒド、ヒドロキシベンズアルデヒド、サリチルアルデヒド等]とを縮合反応させて得られる多価アルコール類を、さらにエピハロヒドリンと縮合反応させることにより得られるノボラック・アルキルタイプグリシジルエーテル型エポキシ樹脂；フルオレン環の9位に2つのフェノール骨格が結合し、かつこれらフェノール骨格のヒドロキシ基から水素原子を除いた酸素原子に、それぞれ、直接又はアルキレンオキシ基を介してグリシジル基が結合しているエポキシ化合物等が挙げられる。

[0127] 上記脂肪族エポキシ化合物としては、例えば、 q 価の環状構造を有しないアルコール (q は自然数である) のグリシジルエーテル；一価又は多価カルボン酸 [例えば、酢酸、プロピオン酸、酪酸、ステアリン酸、アジピン酸、セバシン酸、マレイン酸、イタコン酸等] のグリシジルエステル；エポキシ化亜麻仁油、エポキシ化大豆油、エポキシ化ひまし油等の二重結合を有する油脂のエポキシ化物；エポキシ化ポリブタジエン等のポリオレフィン (ポリアルカジエンを含む) のエポキシ化物等が挙げられる。なお、上記 q 価の環状構造を有しないアルコールとしては、例えば、メタノール、エタノール、1-プロピルアルコール、イソプロピルアルコール、1-ブタノール等の一価のアルコール；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、1, 4-ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、1, 6-ヘキサジオール、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、ジプロピレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール等の二価のアルコール；グリセリン、ジグリセリン、エリスリトール、トリメチロールエタン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール、ジペンタエリスリトール、ソルビトール等の三価以上の多価アルコール等が挙げられる。また、 q 価のアルコールは、ポリエーテルポリオール、ポリエステルポリオール、ポリカーボネートポリオール、ポリオレフィンポリオール等であってもよい。

[0128] 上記オキセタン化合物としては、分子内に1以上のオキセタン環を有する公知乃至慣用の化合物が挙げられ、特に限定されないが、例えば、3, 3-

ビス（ビニルオキシメチル）オキセタン、3-エチル-3-（ヒドロキシメチル）オキセタン、3-エチル-3-（2-エチルヘキシルオキシメチル）オキセタン、3-エチル-3-〔（フェノキシ）メチル〕オキセタン、3-エチル-3-（ヘキシルオキシメチル）オキセタン、3-エチル-3-（クロロメチル）オキセタン、3,3-ビス（クロロメチル）オキセタン、1,4-ビス〔（3-エチル-3-オキセタニルメトキシ）メチル〕ベンゼン、ビス〔〔1-エチル（3-オキセタニル）〕メチル〕エーテル、4,4'-ビス〔（3-エチル-3-オキセタニル）メトキシメチル〕ビスクロヘキシル、1,4-ビス〔（3-エチル-3-オキセタニル）メトキシメチル〕シクロヘキサン、1,4-ビス〔〔（3-エチル-3-オキセタニル）メトキシ〕メチル〕ベンゼン、3-エチル-3-〔〔（3-エチルオキセタン-3-イル）メトキシ〕メチル〕オキセタン、キシリレンビスオキセタン、3-エチル-3-〔〔3-（トリエトキシシリル）プロポキシ〕メチル〕オキセタン、オキセタニルシルセスキオキサソール、フェノールノボラックオキセタン等が挙げられる。

[0129] 上記ビニルエーテル化合物としては、分子内に1以上のビニルエーテル基を有する公知乃至慣用の化合物を使用することができ、特に限定されないが、例えば、2-ヒドロキシエチルビニルエーテル（エチレングリコールモノビニルエーテル）、3-ヒドロキシプロピルビニルエーテル、2-ヒドロキシプロピルビニルエーテル、2-ヒドロキシイソプロピルビニルエーテル、4-ヒドロキシブチルビニルエーテル、3-ヒドロキシブチルビニルエーテル、2-ヒドロキシブチルビニルエーテル、3-ヒドロキシイソブチルビニルエーテル、2-ヒドロキシイソブチルビニルエーテル、1-メチル-3-ヒドロキシプロピルビニルエーテル、1-メチル-2-ヒドロキシプロピルビニルエーテル、1-ヒドロキシメチルプロピルビニルエーテル、4-ヒドロキシシクロヘキシルビニルエーテル、1,6-ヘキサジオールモノビニルエーテル、1,6-ヘキサジオールジビニルエーテル、1,8-オクタジオールジビニルエーテル、1,4-シクロヘキサジメタノールモノビ

ニルエーテル、1, 4-シクロヘキサジメタノールジビニルエーテル、1, 3-シクロヘキサジメタノールモノビニルエーテル、1, 3-シクロヘキサジメタノールジビニルエーテル、1, 2-シクロヘキサジメタノールモノビニルエーテル、1, 2-シクロヘキサジメタノールジビニルエーテル、p-キシレングリコールモノビニルエーテル、p-キシレングリコールジビニルエーテル、m-キシレングリコールモノビニルエーテル、m-キシレングリコールジビニルエーテル、o-キシレングリコールモノビニルエーテル、o-キシレングリコールジビニルエーテル、エチレングリコールジビニルエーテル、ジエチレングリコールモノビニルエーテル、ジエチレングリコールジビニルエーテル、トリエチレングリコールモノビニルエーテル、トリエチレングリコールジビニルエーテル、テトラエチレングリコールモノビニルエーテル、テトラエチレングリコールジビニルエーテル、ペンタエチレングリコールモノビニルエーテル、ペンタエチレングリコールジビニルエーテル、オリゴエチレングリコールモノビニルエーテル、オリゴエチレングリコールジビニルエーテル、ポリエチレングリコールモノビニルエーテル、ポリエチレングリコールジビニルエーテル、ジプロピレングリコールモノビニルエーテル、ジプロピレングリコールジビニルエーテル、トリプロピレングリコールモノビニルエーテル、トリプロピレングリコールジビニルエーテル、テトラプロピレングリコールモノビニルエーテル、テトラプロピレングリコールジビニルエーテル、ペンタプロピレングリコールモノビニルエーテル、ペンタプロピレングリコールジビニルエーテル、オリゴプロピレングリコールモノビニルエーテル、オリゴプロピレングリコールジビニルエーテル、ポリプロピレングリコールモノビニルエーテル、ポリプロピレングリコールジビニルエーテル、イソソルバイドジビニルエーテル、オキサノルボルネンジビニルエーテル、フェニルビニルエーテル、n-ブチルビニルエーテル、イソブチルビニルエーテル、オクチルビニルエーテル、シクロヘキシルビニルエーテル、ハイドロキノンジビニルエーテル、1, 4-ブタンジオールジビニルエーテル、シクロヘキサジメタノールジビニルエーテル、トリメ

チロールプロパンジビニルエーテル、トリメチロールプロパントリビニルエーテル、ビスフェノールAジビニルエーテル、ビスフェノールFジビニルエーテル、ヒドロキシオキサノルボルナンメタノールジビニルエーテル、1,4-シクロヘキサンジオールジビニルエーテル、ペンタエリスリトールトリビニルエーテル、ペンタエリスリトールテトラビニルエーテル、ジペンタエリスリトールペンタビニルエーテル、ジペンタエリスリトールヘキサビニルエーテル等が挙げられる。

[0130] 本発明の硬化性組成物においては、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンとともにその他のカチオン硬化性化合物としてビニルエーテル化合物を併用することが好ましい。これにより、硬化物の表面硬度がより高くなる傾向がある。特に、本発明の硬化性組成物を活性エネルギー線（特に紫外線）の照射により硬化させる場合には、活性エネルギー線の照射量を低くした場合であっても表面硬度が非常に高い硬化物が優れた生産性で（例えば、エージングのための熱処理を施す必要がない等）得られるという利点がある。このため、硬化物、本発明の転写用フィルムを用いたインモールド射出成型品やハードコートフィルムの製造ライン速度をより高くすることが可能となり、これらの生産性がいっそう向上する。

[0131] また、その他のカチオン硬化性化合物として、特に、分子内に1個以上の水酸基を有するビニルエーテル化合物を使用した場合には、表面硬度がより高く、さらに、耐熱黄変性（加熱による黄変が生じにくい特性）に優れた硬化物が得られるという利点がある。このため、いっそう高品質かつ高耐久性の硬化物、本発明の転写用フィルムを用いたインモールド射出成型品やハードコートフィルムが得られる。分子内に1個以上の水酸基を有するビニルエーテル化合物が分子内に有する水酸基の数は、特に限定されないが、1～4個が好ましく、より好ましくは1又は2個である。具体的には、分子内に1個以上の水酸基を有するビニルエーテル化合物としては、例えば、2-ヒドロキシエチルビニルエーテル（エチレングリコールモノビニルエーテル）、3-ヒドロキシプロピルビニルエーテル、2-ヒドロキシプロピルビニルエ

ーテル、2-ヒドロキシイソプロピルビニルエーテル、4-ヒドロキシブチルビニルエーテル、3-ヒドロキシブチルビニルエーテル、2-ヒドロキシブチルビニルエーテル、3-ヒドロキシイソブチルビニルエーテル、2-ヒドロキシイソブチルビニルエーテル、1-メチル-3-ヒドロキシプロピルビニルエーテル、1-メチル-2-ヒドロキシプロピルビニルエーテル、1-ヒドロキシメチルプロピルビニルエーテル、4-ヒドロキシシクロヘキシルビニルエーテル、1,6-ヘキサジオールモノビニルエーテル、1,8-オクタジオールジビニルエーテル、1,4-シクロヘキサジメタノールモノビニルエーテル、1,3-シクロヘキサジメタノールモノビニルエーテル、1,2-シクロヘキサジメタノールモノビニルエーテル、p-キシレングリコールモノビニルエーテル、m-キシレングリコールモノビニルエーテル、o-キシレングリコールモノビニルエーテル、ジエチレングリコールモノビニルエーテル、トリエチレングリコールモノビニルエーテル、テトラエチレングリコールモノビニルエーテル、ペンタエチレングリコールモノビニルエーテル、オリゴエチレングリコールモノビニルエーテル、ポリエチレングリコールモノビニルエーテル、トリプロピレングリコールモノビニルエーテル、テトラプロピレングリコールモノビニルエーテル、ペンタプロピレングリコールモノビニルエーテル、オリゴプロピレングリコールモノビニルエーテル、ポリプロピレングリコールモノビニルエーテル、ペンタエリスリトールトリビニルエーテル、ジペンタエリスリトールペンタビニルエーテル等が挙げられる。

[0132] その他のラジカル硬化性化合物としては、公知乃至慣用のラジカル硬化性化合物を使用することができ、特に限定されないが、例えば、本発明のポリオルガノシルセスキオキサン以外の（メタ）アクリル化合物が挙げられる。なお、本発明の硬化性組成物においてその他のラジカル硬化性化合物は、1種を単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせで使用することもできる。

[0133] 上記（メタ）アクリル化合物としては、分子内に1以上の（メタ）アクリ

ル基を有する公知乃至慣用の化合物を使用することができ、特に限定されないが、例えば、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、トリメチロールエタントリ（メタ）アクリレート、テトラメチロールメタントリ（メタ）アクリレート、テトラメチロールメタンテトラ（メタ）アクリレート、ペンタグリセロールトリ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールジ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、グリセリントリ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、トリス（（メタ）アクリロイルオキシエチル）イソシアヌレート等の多官能アクリル酸エステルを挙げることができる。

[0134] 本発明の硬化性組成物におけるその他のカチオン硬化性化合物及び／又はその他のラジカル硬化性化合物の含有量（配合量）は、特に限定されないが、本発明のポリオルガノシルセスキオキサン、その他のカチオン硬化性化合物とその他のラジカル硬化性化合物の総量（100重量%；カチオン硬化性化合物とラジカル硬化性化合物の全量）に対して、50重量%以下（例えば、0～50重量%）が好ましく、より好ましくは30重量%以下（例えば、0～30重量%）、さらに好ましくは10重量%以下である。その他のカチオン硬化性化合物及び／又はその他のラジカル硬化性化合物の含有量を50重量%以下（特に10重量%以下）とすることにより、硬化物の耐擦傷性がより向上する傾向がある。一方、その他のカチオン硬化性化合物及び／又はその他のラジカル硬化性化合物の含有量を10重量%以上とすることにより、硬化性組成物や硬化物に対して所望の性能（例えば、硬化性組成物に対する速硬化性や粘度調整等）を付与することができる場合がある。

[0135] 本発明の硬化性組成物におけるビニルエーテル化合物（特に、分子内に1個以上の水酸基を有するビニルエーテル化合物）の含有量（配合量）は、特に限定されないが、本発明のポリオルガノシルセスキオキサン、その他のカ

チオン硬化性化合物とその他のラジカル硬化性化合物の総量（100重量%；カチオン硬化性化合物とラジカル硬化性化合物の全量）に対して、0.01～10重量%が好ましく、より好ましくは0.05～9重量%、さらに好ましくは1～8重量%である。ビニルエーテル化合物の含有量を上記範囲に制御することにより、硬化物の表面硬度がより高くなり、活性エネルギー線（例えば、紫外線）の照射量を低くした場合であっても表面硬度が非常に高い硬化物が得られる傾向がある。特に、分子内に1個以上の水酸基を有するビニルエーテル化合物の含有量を上記範囲に制御することにより、硬化物の表面硬度が特に高くなることに加えて、その耐熱黄変性もいっそう向上する傾向がある。

[0136] 本発明の硬化性組成物は、さらに、その他任意の成分として、沈降シリカ、湿式シリカ、ヒュームドシリカ、焼成シリカ、酸化チタン、アルミナ、ガラス、石英、アルミノケイ酸、酸化鉄、酸化亜鉛、炭酸カルシウム、カーボンブラック、炭化ケイ素、窒化ケイ素、窒化ホウ素等の無機質充填剤、これらの充填剤をオルガノハロシラン、オルガノアルコキシシラン、オルガノシラザン等の有機ケイ素化合物により処理した無機質充填剤；シリコーン樹脂、エポキシ樹脂、フッ素樹脂等の有機樹脂微粉末；銀、銅等の導電性金属粉末等の充填剤、硬化助剤、溶剤（有機溶剤等）、安定化剤（酸化防止剤、紫外線吸収剤、耐光安定剤、熱安定化剤、重金属不活性化剤など）、難燃剤（リン系難燃剤、ハロゲン系難燃剤、無機系難燃剤など）、難燃助剤、補強材（他の充填剤など）、核剤、カップリング剤（シランカップリング剤等）、滑剤、ワックス、可塑剤、離型剤、耐衝撃改良剤、色相改良剤、透明化剤、レオロジー調整剤（流動性改良剤など）、加工性改良剤、着色剤（染料、顔料など）、帯電防止剤、分散剤、表面調整剤（消泡剤、レベリング剤、ワキ防止剤など）、表面改質剤（スリップ剤など）、艶消し剤、消泡剤、抑泡剤、脱泡剤、抗菌剤、防腐剤、粘度調整剤、増粘剤、光増感剤、発泡剤などの慣用の添加剤を含んでもよい。これらの添加剤は1種を単独で、又は2種以上を組み合わせて使用できる。

[0137] 本発明の硬化性組成物は、特に限定されないが、上記の各成分を室温で又は必要に応じて加熱しながら攪拌・混合することにより調製することができる。なお、本発明の硬化性組成物は、各成分があらかじめ混合されたものをそのまま使用する1液系の組成物として使用することもできるし、例えば、別々に保管しておいた2以上の成分を使用前に所定の割合で混合して使用する多液系（例えば、2液系）の組成物として使用することもできる。

[0138] 本発明の硬化性組成物は、特に限定されないが、常温（約25℃）で液体であることが好ましい。より具体的には、本発明の硬化性組成物は、溶媒20%に希釈した液〔特に、メチルイソブチルケトンの割合が20重量%である硬化性組成物（溶液）〕の25℃における粘度として、300~20000 mPa・sが好ましく、より好ましくは500~10000 mPa・s、さらに好ましくは1000~8000 mPa・sである。上記粘度を300 mPa・s以上とすることにより、硬化物の耐熱性がより向上する傾向がある。一方、上記粘度を20000 mPa・s以下とすることにより、硬化性組成物の調製や取り扱いが容易となり、また、硬化物中に気泡が残存しにくくなる傾向がある。なお、本発明の硬化性組成物の粘度は、粘度計（商品名「MCR301」、アントンパール社製）を用いて、振り角5%、周波数0.1~100（1/s）、温度：25℃の条件で測定される。

[0139] [硬化物]

本発明の硬化性組成物におけるカチオン硬化性化合物又はラジカル硬化性化合物（本発明のポリオルガノシルセスキオキサン等）の重合反応を進行させることにより、該硬化性組成物を硬化させることができ、硬化物（「本発明の硬化物」と称する場合がある）を得ることができる。硬化の方法は、周知の方法より適宜選択でき、特に限定されないが、例えば、活性エネルギー線の照射、及び／又は、加熱する方法が挙げられる。上記活性エネルギー線としては、例えば、赤外線、可視光線、紫外線、X線、電子線、 α 線、 β 線、 γ 線等のいずれを使用することもできる。中でも、取り扱い性に優れる点で、紫外線が好ましい。

- [0140] 本発明の硬化性組成物を活性エネルギー線の照射により硬化させる際の条件（活性エネルギー線の照射条件等）は、照射する活性エネルギー線の種類やエネルギー、硬化物の形状やサイズ等に応じて適宜調整することができ、特に限定されないが、紫外線を照射する場合には、例えば1～1000 mJ / cm²程度とすることが好ましい。なお、活性エネルギー線の照射には、例えば、高圧水銀ランプ、超高圧水銀ランプ、キセノンランプ、カーボンアーク、メタルハライドランプ、太陽光、LEDランプ、レーザー等を使用することができる。活性エネルギー線の照射後には、さらに加熱処理（アニール、エージング）を施してさらに硬化反応を進行させることができる。
- [0141] 一方、本発明の硬化性組成物を加熱により硬化させる際の条件は、特に限定されないが、例えば、30～200℃が好ましく、より好ましくは50～190℃である。硬化時間は適宜設定可能である。
- [0142] 本発明の硬化性組成物は上述のように、硬化させることによって、高い表面硬度かつ耐熱性を有し、可とう性及び加工性に優れた硬化物を形成できる。従って、本発明の硬化性組成物は、特に、ハードコートフィルムにおけるハードコート層を形成するための「ハードコート層形成用硬化性組成物」（「ハードコート液」や「ハードコート剤」等と称される場合がある）として特に好ましく使用できる。本発明の硬化性組成物をハードコート層形成用硬化性組成物として用い、該組成物より形成されたハードコート層を有するハードコートフィルムは、高硬度及び高耐熱性を維持しながら、可とう性を有し、ロールトゥロールでの製造や加工が可能である。
- [0143] また、本発明の硬化性組成物は、基材上に設けた離型層上に塗工・乾燥させた未硬化又は半硬化のハードコート層の表面がタックフリーとなって、耐ブロッキング性が向上することから、ロール状に巻き取って取り扱うことが可能であり、さらに、該ハードコート層を成型品表面に転写・硬化させることにより、高い表面硬度を有するハードコート層を形成することができる。従って、本発明の硬化性組成物は、特に、インモールド射出成型に使用される転写用フィルムのハードコート層を形成するためのハードコート層形成用

硬化性組成物としても好ましく使用することができる。

[0144] [転写用フィルム]

本発明の転写用フィルムは、基材と、該基材の少なくとも一方の表面に形成された離型層上に、未硬化又は半硬化のハードコート層とを有するフィルムであって、上記未硬化又は半硬化のハードコート層が、本発明の硬化性組成物（ハードコート層形成用硬化性組成物。以下、「本発明のハードコート剤」と称する場合がある。）により形成されることを特徴としている。ここで、未硬化とは、本発明のハードコート層形成用硬化性組成物（ハードコート剤）に含まれる本発明のポリオルガノシルセスキオキサンの重合性官能基が重合反応していない状態を意味する。また、半硬化とは、該重合性官能基の一部が重合反応し、未反応の重合性官能基が残存している状態を意味する。なお、本明細書においては、本発明の硬化性組成物（ハードコート剤）により形成された未硬化又は半硬化のハードコート層を、単に「ハードコート層」、成型品に転写・硬化されたハードコート層を、「硬化ハードコート層」と称する場合がある。

[0145] 本発明の転写用フィルムにおける基材は、転写用フィルムの基材であって、本発明のハードコート層を含む転写層以外を構成する部分をいう。ここで、転写層とは、本発明の転写用フィルムにおいて、離形層が形成された基材を除いた層であり、成型品の表面に転写される部分をいう。上記基材としては、プラスチック基材、金属基材、セラミックス基材、半導体基材、ガラス基材、紙基材、木材（木製基材）、表面が塗装表面である基材等の公知乃至慣用の基材を用いることができ、特に限定されない。中でも、プラスチック基材（プラスチック材料により構成された基材）が好ましい。

[0146] 上記プラスチック基材を構成するプラスチック材料は、特に限定されないが、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレンナフタレート（PEN）等のポリエステル；ポリイミド；ポリカーボネート；ポリアミド；ポリアセタール；ポリフェニレンオキサイド；ポリフェニレンサルファイド；ポリエーテルスルホン；ポリエーテルエーテルケトン；ノルボル

ネン系モノマーの単独重合体（付加重合体や開環重合体等）、ノルボルネンとエチレンの共重合体等のノルボルネン系モノマーとオレフィン系モノマーの共重合体（付加重合体や開環重合体等の環状オレフィンコポリマー等）、これらの誘導体等の環状ポリオレフィン；ビニル系重合体（例えば、ポリメチルメタクリレート（PMMA）等のアクリル樹脂、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル、アクリロニトリルースチレンーブタジエン樹脂（ABS樹脂）等）；ビニリデン系重合体（例えば、ポリ塩化ビニリデン等）；トリアセチルセルロース（TAC）等のセルロース系樹脂；エポキシ樹脂；フェノール樹脂；メラミン樹脂；ユリア樹脂；マレイミド樹脂；シリコーン等の各種プラスチック材料が挙げられる。なお、上記プラスチック基材は、1種だけのプラスチック材料により構成されたものであってもよいし、2種以上のプラスチック材料により構成されたものであってもよい。

[0147] 中でも、上記プラスチック基材としては、耐熱性、成形性、機械強度に優れた基材を用いることが好ましく、より好ましくはポリエステルフィルム（特に、PET、PEN）、環状ポリオレフィンフィルム、ポリカーボネートフィルム、TACフィルム、PMMAフィルムである。

[0148] 上記プラスチック基材は、必要に応じて、酸化防止剤、紫外線吸収剤、耐光安定剤、熱安定剤、結晶核剤、難燃剤、難燃助剤、充填剤、可塑剤、耐衝撃性改良剤、補強剤、分散剤、帯電防止剤、発泡剤、抗菌剤等のその他の添加剤を含んでもよい。なお、添加剤は1種を単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせ使用することもできる。

[0149] 上記プラスチック基材は、単層の構成を有していてもよいし、多層（積層）の構成を有していてもよく、その構成（構造）は特に限定されない。例えば、上記プラスチック基材は、プラスチックフィルムの少なくとも一方の表面に本発明の転写層以外の層（「その他の層」と称する場合がある）が形成された、「プラスチックフィルム／その他の層」又は「その他の層／プラスチックフィルム／その他の層」等の積層構成を有するプラスチック基材であってもよい。上記その他の層としては、例えば、本発明の転写用フィルムを

構成するハードコート層以外のハードコート層等が挙げられる。なお、上記その他の層を構成する材料としては、例えば、上述のプラスチック材料等が挙げられる。

[0150] 上記プラスチック基材の表面の一部又は全部には、粗化处理、易接着処理、静電気防止処理、サンドブラスト処理（サンドマット処理）、コロナ放電処理、プラズマ処理、ケミカルエッチング処理、ウォーターマット処理、火炎処理、酸処理、アルカリ処理、酸化処理、紫外線照射処理、シランカップリング剤処理等の公知乃至慣用の表面処理が施されていてもよい。なお、上記プラスチック基材は、未延伸フィルムであってもよいし、延伸フィルム（一軸延伸フィルム、二軸延伸フィルム等）であってもよい。

[0151] 上記プラスチック基材は、例えば、上述のプラスチック材料をフィルム状に成形してプラスチック基材（プラスチックフィルム）とする方法、必要に応じてさらに上記プラスチックフィルムに対して適宜な層（例えば、上記その他の層等）を形成したり、適宜な表面処理を施す方法等の、公知乃至慣用の方法により製造することができる。なお、上記プラスチック基材としては、市販品を使用することもできる。

[0152] 上記基材の厚みは、特に限定されず、例えば、 $0.01 \sim 10000 \mu\text{m}$ の範囲から適宜選択することができるが、成型性や形状追従性、取り扱い性等の観点から、 $2 \sim 250 \mu\text{m}$ が好ましく、 $5 \sim 100 \mu\text{m}$ がより好ましく、 $20 \sim 100 \mu\text{m}$ がさらに好ましい。

[0153] 本発明の転写用フィルムにおける離型層は、本発明の転写用フィルムにおける基材の少なくとも一方の表面層を構成する層であり、転写層の基材からの剥離を容易に行うために設けられる層である。離型層を設けることで、転写用フィルムから転写層を確実にかつ容易に被転写体（成型品）へ転写させ、基材シートを確実に剥離することができる。

[0154] 本発明の転写用フィルムにおいて、離形層とハードコート層の剥離強度は、特に限定されるものではないが、 $30 \sim 500 \text{ mN} / 24 \text{ mm}$ が好ましく、より好ましくは $40 \sim 300 \text{ mN} / 24 \text{ mm}$ 、さらに好ましくは $50 \sim 2$

0.0 mN / 24 mmである。剥離強度がこの範囲にあることにより、通常
の取扱い時にはハードコート層が剥離することなく、成型品への転写と同時
にハードコートを容易に剥離できる傾向がある。本発明のハードコート層と離
型層の剥離強度は、JIS Z0237に準拠して測定することができる。

[0155] なお、本発明の転写フィルムにおける離型層は、上記基材の一方の表面（
片面）のみに形成されていてもよいし、両方の表面（両面）に形成されてい
てもよい。

また、本発明の転写用フィルムにおける離型層は、上記基材のそれぞれの
表面において、一部のみに形成されていてもよいし、全面に形成されてい
てもよい。

[0156] 前記離型層を形成する成分としては、公知公用の離型剤を特に制限なく使
用することができ、例えば、不飽和エステル系樹脂、エポキシ系樹脂、エポ
キシメラミン系樹脂、アミノアルキド系樹脂、アクリル系樹脂、メラミン
系樹脂、シリコン系樹脂、フッ素系樹脂、セルロース系樹脂、尿素樹脂系樹
脂、ポリオレフィン系樹脂、パラフィン系樹脂、シクロオレフィン系樹脂か
ら選ばれる少なくとも一種を使用することができる。転写層において上記離
型層と接する本発明のハードコート層との剥離性の観点から、前記離型層と
しては、メラミン系樹脂、シクロオレフィン系樹脂が好ましく、特に、2-
ノルボルネン・エチレン共重合体等のシクロオレフィン共重合体樹脂（CO
C樹脂）が好ましい。

[0157] 前記離型層を基材表面に形成する方法も、公知公用の離型処理法を特に制
限なく使用することができる。例えば、上記樹脂を溶媒（例、メタノール、
ブタノール等のアルコール類、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素、テ
トラヒドロフラン等）に分散又は溶解して、バーコート、メイヤーバーコー
ト、グラビアコート、ロールコート等の公知のコーティング方法で塗工、乾
燥し、80～200℃で加熱することにより、離型層を形成することができ
る。離型層の厚さも特に限定されず、通常、0.01～5 μm、好ましくは
0.1～3.0 μmの範囲から選択できる。

[0158] 本発明の転写用フィルムにおける本発明のハードコート層は、上記離型層における少なくとも一方の表面層を構成する層であり、本発明の硬化性組成物（ハードコート剤）を乾燥させた未硬化の層、又は一部硬化させた半硬化の層である。半硬化のハードコート層は、未硬化のハードコート層を上述の活性エネルギー線照射又は加熱により硬化を一部進行させることにより形成することができる。

本発明の未硬化又は半硬化のハードコート層は、指を表面に接触させた際に樹脂が付着しない低タック性と優れた耐ブロッキング性を有し、ロール状に巻回して取り扱うことが可能である。

[0159] なお、本発明の転写用フィルムにおける本発明のハードコート層は、上記基材の一方の離型層（片面）のみに形成されていてもよいし、両方の離型層（両面）に形成されていてもよい。

また、本発明の転写用フィルムにおける本発明のハードコート層は、上記離型層のそれぞれの表面において、一部のみ形成されていてもよいし、全面に形成されていてもよい。

[0160] 本発明の転写用フィルムの離型層上に本発明のハードコート層を積層させる方法としては、特に限定されないが、公知の方法で離型層上に本発明の硬化性組成物（ハードコート剤）を塗工・乾燥させて未硬化のハードコート層を形成させるか、さらに未硬化のハードコート層に活性化エネルギー線照射又は加熱を行い半硬化のハードコート層を形成させる方法が挙げられる。本発明の硬化性組成物（ハードコート剤）の塗工方法としては、公知のコーティング方法を制限なく使用することができ、例えば、バーコーター塗工、メイヤーバー塗工、エアナイフ塗工、グラビア塗工、オフセット印刷、フレキソ印刷、スクリーン印刷等が挙げられる。

ハードコート層を形成する際の加熱温度は、特に限定されないが、好ましくは50～200℃から適宜選択することができる。加熱時間も特に限定されないが、好ましくは1～60分から適宜選択することができる。

ハードコート層に活性化エネルギー線を照射する条件は、特に限定されず

、例えば、上述の硬化物を形成する際の条件から適宜選択可能である。

[0161] 本発明の転写用フィルムにおけるハードコート層の厚み（基材の両面に本発明のハードコート層を有する場合は、それぞれのハードコート層の厚み）は、特に限定されないが、1～200 μm が好ましく、より好ましくは3～150 μm である。特に、本発明のハードコート層は、薄い場合（例えば、厚み5 μm 以下の場合）であっても、表面の高硬度を維持すること（例えば、鉛筆硬度を5H以上とすること）が可能である。また、厚い場合（例えば、厚み50 μm 以上の場合）であっても、硬化収縮等に起因するクラック発生等の不具合が生じにくいため、厚膜化によって鉛筆硬度を著しく高めること（例えば、鉛筆硬度を9H以上とすること）が可能である。

[0162] 本発明の転写用フィルムにおけるハードコート層のヘイズは、特に限定されないが、50 μm の厚みの場合で、1.5%以下が好ましく、より好ましくは1.0%以下である。なお、ヘイズの下限は、特に限定されないが、例えば、0.1%である。ヘイズを特に1.0%以下とすることにより、例えば、本発明の転写用フィルムを加飾フィルムとして使用する場合に、模様、絵柄等を鮮明に転写できるため好ましい。本発明のハードコート層のヘイズは、JIS K7136に準拠して測定することができる。

[0163] 本発明の転写用フィルムにおけるハードコート層の全光線透過率は、特に限定されないが、50 μm の厚みの場合で、85%以上が好ましく、より好ましくは90%以上である。なお、全光線透過率の上限は、特に限定されないが、例えば、99%である。全光線透過率を85%以上とすることにより、例えば、本発明の転写用フィルムを加飾フィルムとして使用する場合に、模様、絵柄等を鮮明に転写できるため好ましい。本発明のハードコート層の全光線透過率は、JIS K7361-1に準拠して測定することができる。

[0164] 本発明の転写用フィルムは、好ましくは、ハードコート層上に、アンカーコート層及び接着剤層が、この順でさらに積層される。さらに、本発明の転写用フィルムを加飾フィルムとして使用する場合には、少なくとも1層の着

色層が積層される。着色層の積層位置は特に限定されないが、好ましくは、アンカーコート層と接着剤層との間に1層又は2層以上積層される態様が好ましい。

[0165] 本発明の転写用フィルムにおけるアンカーコート層は、ハードコート層と、接着剤層又は着色層等との密着性を向上させるために設けられるものである。アンカーコート層は、着色層の模様、絵柄等を鮮明に転写するためには、透明又は半透明な層であることが好ましく、フェノール樹脂、アルキド樹脂、メラミン系樹脂（例えば、メチル化メラミン樹脂、ブチル化メラミン樹脂、メチルエーテル化メラミン樹脂、ブチルエーテル化メラミン樹脂、メチルブチル混合エーテル化メラミン樹脂等）、エポキシ系樹脂（例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、多官能エポキシ樹脂、可撓性エポキシ樹脂、臭素化エポキシ樹脂、グリシジルエステル型エポキシ樹脂、高分子型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂等）、尿素樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ウレタン系樹脂〔例えば、イソシアネート基を2個以上持ったポリイソシアネート化合物（ $O=C=N-R-N=C=O$ ）と、水酸基を2個以上持ったポリオール化合物（ $HO-R'-OH$ ）、ポリアミン（ $H_2N-R''-NH_2$ ）、または水などの活性水素（ $-NH_2$ 、 $-NH$ 、 $-CONH-$ など）を持った化合物などとの反応により得ることができるウレタン樹脂〕、熱硬化性ポリイミド、シリコーン樹脂等の熱硬化性樹脂や、塩化ビニル-酢酸ビニル共重合体樹脂、アクリル樹脂（例えば、アクリルポリオール系樹脂等）、塩化ゴム、ポリアミド樹脂、硝化綿樹脂、環状ポリオレフィン系樹脂等の熱可塑性樹脂等の1種単独又は2種以上の混合物が用いられるが、特にエポキシ系樹脂が好ましい。

本発明のアンカーコート用樹脂は、さらに、その他任意の成分として、ワックス、シリカ、可塑剤、レベリング剤、界面活性剤、分散剤、消泡剤、紫外線吸収剤、紫外線安定剤、酸化防止剤などの慣用の添加剤を、本発明の効果を損なわない範囲で含んでいてもよい。これらの添加剤は1種を単独で、又は2種以上を組み合わせ使用できる。

アンカーコート層は、上記樹脂を溶媒に溶解した塗工液を、本発明のハードコート層上に、バーコート、メイヤーバーコート、グラビアコート、ロールコート等の公知のコーティング方法で塗布、乾燥して、必要により加熱して形成することができる。

アンカーコート層を形成する際に加熱する場合の温度は、特に限定されないが、好ましくは50～200℃から適宜選択することができる。加熱時間も特に限定されないが、好ましくは10秒～60分から適宜選択することができる。

アンカーコート層の厚みは、通常、0.1～20μm程度であり、好ましくは、0.5～5μmの範囲である。

[0166] 本発明のアンカーコート層は、市販のアンカーコート剤を用いて形成してもよい。市販のアンカーコート剤としては、例えば、K468HPアンカー（東洋インキ株式会社製エポキシ樹脂系アンカーコート剤）、TM-VMA C（大日精化工業株式会社製アクリルポリオール樹脂系アンカーコート剤）などが挙げられる。

[0167] 本発明の転写用フィルムにおける接着剤層は、転写層（ハードコート層、所望により積層されるアンカーコート層、及び着色層を含む）を、接着性良く成型品に転写するために設けられるものである。接着剤層としては、感熱接着剤や加圧接着剤などで構成されるものが挙げられるが、本発明においては、必要に応じて加熱及び加圧によって、成型品に対する密着性を発現するヒートシール層であることが好ましい。接着剤層に用いられる樹脂としては、例えば、アクリル系樹脂、塩化ビニル系樹脂、酢酸ビニル系樹脂、塩化ビニル-酢酸ビニル系共重合樹脂、スチレン-アクリル系共重合樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリアミド系樹脂などの樹脂の1種単独又は2種以上の混合物が用いられるが、特に、アクリル系樹脂、塩化ビニル-酢酸ビニル系共重合樹脂が好ましい。

本発明の接着剤層に用いられるアクリル系樹脂としては、特に限定されないが、例えば、ポリメチル（メタ）アクリレート、ポリエチル（メタ）アク

リレート、ポリブチル（メタ）アクリレート、メチル（メタ）アクリレートーブチル（メタ）アクリレート共重合体、メチル（メタ）アクリレートースチレン共重合体などのアクリル系樹脂、フッ素などによる変性アクリル樹脂が挙げられ、これらを1種又は2種以上の混合物として用いることができる。この他、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、ブチル（メタ）アクリレート、2-エチルヘキシル（メタ）アクリレート、オクチル（メタ）アクリレートなどの（メタ）アクリル酸アルキルエステルと、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピル（メタ）アクリレートなどの分子中に水酸基を有する（メタ）アクリル酸エステルと、を共重合させて得られるアクリルポリオールを用いることもできる。また、塩化ビニル-酢酸ビニル系共重合体樹脂としては、通常、酢酸ビニル含有量が5~20質量%程度、平均重合度350~900程度のものが用いられる。必要に応じ、塩化ビニル-酢酸ビニル系共重合体樹脂にさらにマレイン酸、フマル酸などのカルボン酸を共重合させても良い。この他、副成分の樹脂として、必要に応じて、適宜その他の樹脂、例えば、熱可塑性ポリエステル系樹脂、熱可塑性ウレタン系樹脂、塩素化ポリエチレン、塩素化ポリプロピレンなどの塩素化ポリオレフィン系樹脂などの樹脂を混合しても良い。

[0168] 接着剤層は、上記樹脂の1種又は2種以上の溶液又はエマルジョンなど塗布可能な形態にしたものを、バーコート、メイヤーバーコート、グラビアコート、ロールコート等の公知のコーティング方法で塗布、乾燥して、必要により加熱して形成することができる。

接着剤層を形成する際に加熱する場合の温度は、特に限定されないが、好ましくは50~200℃から適宜選択することができる。加熱時間も特に限定されないが、好ましくは10秒~60分から適宜選択することができる。

接着剤層の厚みとしては、転写用フィルムを接着性良く、かつ効率的に成型品に転写し得るという点から、0.1~10μm程度が好ましく、0.5~5μmがより好ましい。

[0169] 接着剤層には、ベンゾフェノン系化合物、ベンゾトリアゾール系化合物、シュウ酸アニリド系化合物、シアノアクリレート系化合物、サリシレート系化合物などの有機系の紫外線吸収剤や、また亜鉛、チタン、セリウム、スズ、鉄などの酸化物のような無機系の紫外線吸収能を有する微粒子の添加剤を配合してもよい。また、添加剤として、着色顔料、白色顔料、体質顔料、充填剤、帯電防止剤、酸化防止剤、蛍光増白剤なども適宜、必要に応じて使用することができる。

[0170] 本発明の接着剤としては、市販品を用いてもよい。市販の接着剤としては、例えば、K588HP接着グロスAワニス（東洋インキ株式会社製塩化ビニル-酢酸ビニル共重合樹脂系接着剤）、PSHP780（東洋インキ株式会社製アクリル樹脂系接着剤）などが挙げられる。

[0171] 本発明の転写フィルムにおける着色層は、絵柄層及び／又は隠蔽層を成型品に転写するための加飾フィルムとする場合に設けられるものである。ここで、絵柄層は、模様や文字などとパターン状の絵柄を表現するために設けられる層であり、隠蔽層は、通常全面ベタ層であり射出樹脂などの着色等を隠蔽するために設けられる層である。隠蔽層には、絵柄層の絵柄を引き立てるために絵柄層の内側に設けられる場合の外、それ単独で装飾層を形成する場合がある。

[0172] 本発明に係る絵柄層は、模様や文字などとパターン状の絵柄を表現するために設けられる層である。絵柄層の絵柄は任意であるが、例えば、木目、石目、布目、砂目、幾何学模様、文字などからなる絵柄を挙げることができる。

着色層は、通常は、上記のハードコート層又はアンカーコート層に印刷インキでグラビア印刷、オフセット印刷、シルクスクリーン印刷、転写シートからの転写印刷、昇華転写印刷、インキジェット印刷などの公知の印刷法により形成することで、ハードコート層と接着剤層との間、又はアンカーコート層と接着剤層との間に形成することができる。着色層の厚みは、意匠性の観点から3～40 μm が好ましく、10～30 μm がより好ましい。

[0173] 着色層の形成に用いられる印刷インキのバインダー樹脂としては、ポリエステル系樹脂、ポリウレタン系樹脂、アクリル系樹脂、酢酸ビニル系樹脂、塩化ビニル-酢酸ビニル系共重合体樹脂、セルロース系樹脂などを好ましく挙げることができるが、アクリル系樹脂単独又はアクリル系樹脂と塩化ビニル-酢酸ビニル系共重合体樹脂との混合物を主成分とするのが好ましい。これらの中では、アクリル系樹脂、塩化ビニル-酢酸ビニル系共重合体樹脂又は別のアクリル系樹脂を混合すると印刷適性、成形適性がより良好となり好ましい。ここで、アクリル系樹脂としては、ポリメチル（メタ）アクリレート、ポリエチル（メタ）アクリレート、ポリブチル（メタ）アクリレート、メチル（メタ）アクリレート-ブチル（メタ）アクリレート共重合体、メチル（メタ）アクリレート-スチレン共重合体などのアクリル系樹脂、フッ素などによる変性アクリル樹脂が挙げられ、これらを1種又は2種以上の混合物として用いることができる。この他、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、ブチル（メタ）アクリレート、2-エチルヘキシル（メタ）アクリレート、オクチル（メタ）アクリレートなどの（メタ）アクリル酸アルキルエステルと、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピル（メタ）アクリレートなどの分子中に水酸基を有する（メタ）アクリル酸エステルと、を共重合させて得られるアクリルポリオールを用いることもできる。また、塩化ビニル-酢酸ビニル系共重合体樹脂としては、通常、酢酸ビニル含有量が5～20質量%程度、平均重合度350～900程度のものが用いられる。必要に応じ、塩化ビニル-酢酸ビニル系共重合体樹脂にさらにマレイン酸、フマル酸などのカルボン酸を共重合させても良い。アクリル系樹脂と塩化ビニル-酢酸ビニル系共重合体樹脂との混合比は、アクリル系樹脂/塩化ビニル-酢酸ビニル系共重合体樹脂=1/9～9/1（質量比）程度である。この他、副成分の樹脂として、必要に応じて、適宜その他の樹脂、例えば、熱可塑性ポリエステル系樹脂、熱可塑性ウレタン系樹脂、塩素化ポリエチレン、塩素化ポリプロピレンなどの塩素化ポリオレ

フィン系樹脂などの樹脂を混合しても良い。

[0174] 本発明に係る着色層に用いられる着色剤としては、アルミニウム、クロム、ニッケル、錫、チタン、リン化鉄、銅、金、銀、真鍮などの金属、合金、又は金属化合物の鱗片状箔粉からなるメタリック顔料、マイカ状酸化鉄、二酸化チタン被覆雲母、二酸化チタン被覆オキシ塩化ビスマス、オキシ塩化ビスマス、二酸化チタン被覆タルク、魚鱗箔、着色二酸化チタン被覆雲母、塩基性炭酸鉛などの箔粉からなる真珠光沢（パール）顔料、アルミン酸ストロンチウム、アルミン酸カルシウム、アルミン酸バリウム、硫化亜鉛、硫化カルシウムなどの蛍光顔料、二酸化チタン、亜鉛華、三酸化アンチモンなどの白色無機顔料、亜鉛華、弁柄、朱、群青、コバルトブルー、チタン黄、黄鉛、カーボンブラックなどの無機顔料、イソインドリノイエロー、ハンザイエローA、キナクリドンレッド、パーマネントレッド4R、フタロシアニンブルー、インダスレンブルーRS、アニリンブラックなどの有機顔料（染料も含む）を1種又は2種以上混合して用いることができる。

[0175] このような着色層は、本発明の転写用フィルムに意匠性を付与するために設けられる層であるが、意匠性を向上させる目的で、さらに金属薄膜層などを形成しても良い。金属薄膜層の形成は、アルミニウム、クロム、金、銀、銅などの金属を用いて、真空蒸着、スパッタリングなどの方法で製膜することができる。この金属薄膜層は全面に設けても、部分的にパターン状に設けても良い。

着色層の形成に用いられる印刷インキは、上記成分の他に、沈降防止剤、硬化触媒、紫外線吸収剤、酸化防止剤、レベリング剤、増粘剤、消泡剤、滑剤などを適宜添加することができる。印刷インキは、上記成分を、通常溶剤に溶解又は分散した態様で提供される。溶剤としては、バインダー樹脂を溶解又は分散させるものであれば良く、有機溶剤及び／又は水を使用することができる。有機溶剤としては、トルエン、キシレンなどの炭化水素類、アセトン、メチルエチルケトンなどのケトン類、酢酸エチル、セロソルブアセテート、ブチルセロソルブアセテートなどのエステル類、アルコール類が挙げ

られる。

[0176] 本発明の転写用フィルムは、上記の基材、離形層、ハードコート層、アンカーコート層、接着剤層、着色層の他に、所望に応じて、低反射層、帯電防止層、紫外線吸収層、近赤外線遮断層、電磁波吸収層などを任意の順番で積層させてもよい。

[0177] 本発明の転写用フィルムの厚みは、特に限定されず、 $1\sim 10000\mu\text{m}$ の範囲から適宜選択することができ、成型性や形状追従性、取り扱い性等の観点から、 $2\sim 250\mu\text{m}$ が好ましく、 $5\sim 150\mu\text{m}$ がより好ましく、 $25\sim 150\mu\text{m}$ がさらに好ましい。

[0178] 本発明の転写用フィルムのハードコート層は、タックフリーで耐ブロッキング性に優れ、ロール状に巻き取って取り扱うことが可能であるため、インモールド射出成型の転写用フィルムとして、好適に用いることができる。例えば、固定金型と可動金型よりなる金型内に搬送ロールなどで本発明の転写用フィルムが連続的に搬送され、基材フィルム側が固定金型面と接し、適切な位置調整がなされた後に、可動金型が移動して型締めする。そして、あらかじめ熱により熔融させた熱可塑性樹脂を、高温高圧で金型内に転写用フィルムの転写層側より射出充填し、急冷した後で金型を開き、本発明のハードコート層が最表面に転写された成型品（インモールド成型品）を取り出すことができる。

[0179] 上記成型品の本発明のハードコート層が未硬化又は半硬化である場合は、該ハードコート層を活性エネルギー線の照射、及び／又は、加熱してハードコート層を硬化させてもよい。ハードコート層を活性エネルギー線の照射、及び／又は、加熱する際の条件は、特に限定されず、例えば、上述の硬化物を形成する際の条件から適宜選択可能である。

[0180] 本発明の転写用フィルムの転写層が成型品に転写された後に、成型品の最表面に本発明の硬化ハードコート層が形成されるため、成型品表面の鉛筆硬度を非常に高くすることができ、好ましくは5H以上、より好ましくは6H以上である。なお、鉛筆硬度は、JIS K5600-5-4に記載の方法

に準じて評価することができる。

[0181] 本発明の転写用フィルムを使用してインモールド射出成型法により製造された成形品（インモールド成型品）は、表面硬度が非常に高く、絵柄、模様が鮮明に転写されるため、このような特性が要求されるあらゆる成型品に好ましく使用することができる。本発明の転写用フィルムは、例えば、自動車のダッシュボード等の車内外装品、家電製品の筐体等の高い表面硬度と耐擦傷性、意匠性、耐久性が要求される各種の外装成型品に好適に使用することができる。

[0182] [ハードコートフィルム]

本発明のハードコートフィルムは、基材と、該基材の少なくとも一方の表面に形成されたハードコート層とを有するフィルムであって、上記ハードコート層が、本発明の硬化性組成物（ハードコート層形成用硬化性組成物）により形成されたハードコート層（本発明の硬化性組成物の硬化物層）であることを特徴としている。

[0183] なお、本発明のハードコートフィルムにおける本発明のハードコート層は、上記基材の一方の表面（片面）のみに形成されていてもよいし、両方の表面（両面）に形成されていてもよい。

[0184] また、本発明のハードコートフィルムにおける本発明のハードコート層は、上記基材のそれぞれの表面において、一部のみに形成されていてもよいし、全面に形成されていてもよい。

[0185] 本発明のハードコートフィルムにおける基材は、ハードコートフィルムの基材であって、本発明のハードコート層以外を構成する部分をいう。上記基材としては、プラスチック基材、金属基材、セラミックス基材、半導体基材、ガラス基材、紙基材、木基材（木製基材）、表面が塗装表面である基材等の公知乃至慣用の基材を用いることができ、特に限定されない。中でも、プラスチック基材（プラスチック材料により構成された基材）が好ましい。

[0186] 上記プラスチック基材を構成するプラスチック材料は、特に限定されないが、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレンナフタ

レート（PEN）等のポリエステル；ポリイミド；ポリカーボネート；ポリアミド；ポリアセタール；ポリフェニレンオキサイド；ポリフェニレンサルファイド；ポリエーテルスルホン；ポリエーテルエーテルケトン；ノルボルネン系モノマーの単独重合体（付加重合体や開環重合体等）、ノルボルネンとエチレンの共重合体等のノルボルネン系モノマーとオレフィン系モノマーの共重合体（付加重合体や開環重合体等の環状オレフィンコポリマー等）、これらの誘導体等の環状ポリオレフィン；ビニル系重合体（例えば、ポリメチルメタクリレート（PMMA）等のアクリル樹脂、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル、アクリロニトリルースチレンーブタジエン樹脂（ABS樹脂）等）；ビニリデン系重合体（例えば、ポリ塩化ビニリデン等）；トリアセチルセルロース（TAC）等のセルロース系樹脂；エポキシ樹脂；フェノール樹脂；メラミン樹脂；ユリア樹脂；マレイミド樹脂；シリコーン等の各種プラスチック材料が挙げられる。なお、上記プラスチック基材は、1種のみプラスチック材料により構成されたものであってもよいし、2種以上のプラスチック材料により構成されたものであってもよい。

[0187] 中でも、上記プラスチック基材としては、本発明のハードコートフィルムとして透明性に優れたハードコートフィルムを得ることを目的とする場合には、透明性に優れた基材（透明基材）を用いることが好ましく、より好ましくはポリエステルフィルム（特に、PET、PEN）、環状ポリオレフィンフィルム、ポリカーボネートフィルム、TACフィルム、PMMAフィルムである。

[0188] 上記プラスチック基材は、必要に応じて、酸化防止剤、紫外線吸収剤、耐光安定剤、熱安定剤、結晶核剤、難燃剤、難燃助剤、充填剤、可塑剤、耐衝撃性改良剤、補強剤、分散剤、帯電防止剤、発泡剤、抗菌剤等のその他の添加剤を含んでいてもよい。なお、添加剤は1種を単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせ使用することもできる。

[0189] 上記プラスチック基材は、単層の構成を有していてもよいし、多層（積層）の構成を有していてもよく、その構成（構造）は特に限定されない。例え

ば、上記プラスチック基材は、プラスチックフィルム of 少なくとも一方の表面に本発明のハードコート層以外の層（「その他の層」と称する場合がある）が形成された、「プラスチックフィルム／その他の層」又は「その他の層／プラスチックフィルム／その他の層」等の積層構成を有するプラスチック基材であってもよい。上記その他の層としては、例えば、本発明のハードコート層以外のハードコート層等が挙げられる。なお、上記その他の層を構成する材料としては、例えば、上述のプラスチック材料等が挙げられる。

[0190] 上記プラスチック基材の表面の一部又は全部には、粗化处理、易接着処理、静電気防止処理、サンドブラスト処理（サンドマット処理）、コロナ放電処理、プラズマ処理、ケミカルエッチング処理、ウォーターマット処理、火炎処理、酸処理、アルカリ処理、酸化処理、紫外線照射処理、シランカップリング剤処理等の公知乃至慣用の表面処理が施されていてもよい。なお、上記プラスチック基材は、未延伸フィルムであってもよいし、延伸フィルム（一軸延伸フィルム、二軸延伸フィルム等）であってもよい。

[0191] 上記プラスチック基材は、例えば、上述のプラスチック材料をフィルム状に成形してプラスチック基材（プラスチックフィルム）とする方法、必要に応じてさらに上記プラスチックフィルムに対して適宜な層（例えば、上記その他の層等）を形成したり、適宜な表面処理を施す方法等の、公知乃至慣用の方法により製造することができる。なお、上記プラスチック基材としては、市販品を使用することもできる。

[0192] 上記基材の厚みは、特に限定されないが、例えば、0.01～10000 μm の範囲から適宜選択することができる。

[0193] 本発明のハードコートフィルムにおける本発明のハードコート層は、本発明のハードコートフィルムにおける少なくとも一方の表面層を構成する層であり、本発明の硬化性組成物（ハードコート層形成用硬化性組成物）を硬化させることにより得られる硬化物（樹脂硬化物）により形成された層（硬化物層）である。

[0194] 本発明のハードコート層の厚み（基材の両面に本発明のハードコート層を

有する場合は、それぞれのハードコート層の厚み)は、特に限定されないが、1~200 μm が好ましく、より好ましくは3~150 μm である。特に、本発明のハードコート層は、薄い場合(例えば、厚み5 μm 以下の場合)であっても、表面の高硬度を維持すること(例えば、鉛筆硬度をH以上とすること)が可能である。また、厚い場合(例えば、厚み50 μm 以上の場合)であっても、硬化収縮等に起因するクラック発生等の不具合が生じにくいいため、厚膜化によって鉛筆硬度を著しく高めること(例えば、鉛筆硬度を9H以上とすること)が可能である。

[0195] 本発明のハードコート層のヘイズは、特に限定されないが、50 μm の厚みの場合で、1.5%以下が好ましく、より好ましくは1.0%以下である。なお、ヘイズの下限は、特に限定されないが、例えば、0.1%である。ヘイズを特に1.0%以下とすることにより、例えば、非常に高い透明性が要求される用途(例えば、タッチパネル等のディスプレイの表面保護シート等)への使用に適する傾向がある。本発明のハードコート層のヘイズは、JIS K7136に準拠して測定することができる。

[0196] 本発明のハードコート層の全光線透過率は、特に限定されないが、50 μm の厚みの場合で、85%以上が好ましく、より好ましくは90%以上である。なお、全光線透過率の上限は、特に限定されないが、例えば、99%である。全光線透過率を85%以上とすることにより、例えば、非常に高い透明性が要求される用途(例えば、タッチパネル等のディスプレイの表面保護シート等)への使用に適する傾向がある。本発明のハードコート層の全光線透過率は、JIS K7361-1に準拠して測定することができる。

[0197] 本発明のハードコートフィルムは、さらに、本発明のハードコート層表面に表面保護フィルムを有していてもよい。本発明のハードコートフィルムが表面保護フィルムを有することにより、ハードコートフィルムの打ち抜き加工性がいっそう向上する傾向がある。このように表面保護フィルムを有する場合には、例えば、ハードコート層の硬度が非常に高く、打ち抜き加工時に基材からの剥離やクラックが発生しやすいものであっても、このような問題

を生じさせることなくトムソン刃を使用した打ち抜き加工を行うことができる。

[0198] 上記表面保護フィルムとしては、公知乃至慣用の表面保護フィルムを使用することができ、特に限定されないが、例えば、プラスチックフィルムの表面に粘着剤層を有するものが使用できる。上記プラスチックフィルムとしては、例えば、ポリエステル（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）、ポリオレフィン（ポリエチレン、ポリプロピレン、環状ポリオレフィン等）、ポリスチレン、アクリル樹脂、ポリカーボネート、エポキシ樹脂、フッ素樹脂、シリコーン樹脂、ジアセテート樹脂、トリアセテート樹脂、ポリアリレート、ポリ塩化ビニル、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルエーテルイミド、ポリイミド、ポリアミド等のプラスチック材料より形成されたプラスチックフィルムが挙げられる。上記粘着剤層としては、例えば、アクリル系粘着剤、天然ゴム系粘着剤、合成ゴム系粘着剤、エチレン-酢酸ビニル共重合体系粘着剤、エチレン-（メタ）アクリル酸エステル共重合体系粘着剤、スチレン-イソプレンブロック共重合体系粘着剤、スチレン-ブタジエンブロック共重合体系粘着剤等の公知乃至慣用の粘着剤の1種以上より形成された粘着剤層が挙げられる。上記粘着剤層中には、各種の添加剤（例えば、帯電防止剤、スリップ剤等）が含まれていてもよい。なお、プラスチックフィルム、粘着剤層は、それぞれ単層構成を有していてもよいし、多層（複層）構成を有していてもよい。また、表面保護フィルムの厚みは、特に限定されず、適宜選択することができる。

[0199] 表面保護フィルムとしては、例えば、商品名「サニテクト」シリーズ（（株）サンエー化研製）、商品名「E-MASK」シリーズ（日東電工（株）製）、商品名「マスタック」シリーズ（藤森工業（株）製）、商品名「ヒタレックス」シリーズ（日立化成工業（株）製）、商品名「アルファン」シリーズ（王子エフテックス（株）製）等の市販品が市場より入手可能である。

[0200] 本発明のハードコートフィルムは、公知乃至慣用のハードコートフィルムの製造方法に準じて製造することができ、その製造方法は特に限定されない

が、例えば、上記基材の少なくとも一方の表面に本発明の硬化性組成物（ハードコート層形成用硬化性組成物）を塗布し、必要に応じて溶剤を乾燥によって除去した後、該硬化性組成物（硬化性組成物層）を硬化させることにより製造できる。硬化性組成物を硬化させる際の条件は、特に限定されず、例えば、上述の硬化物を形成する際の条件から適宜選択可能である。

[0201] 特に、本発明のハードコートフィルムにおける本発明のハードコート層は、可とう性及び加工性に優れた硬化物を形成できる本発明の硬化性組成物（ハードコート層形成用硬化性組成物）より形成されたハードコート層であるため、本発明のハードコートフィルムは、ロールトゥロール方式での製造が可能である。本発明のハードコートフィルムをロールトゥロール方式で製造することにより、その生産性を著しく高めることが可能である。本発明のハードコートフィルムをロールトゥロール方式で製造する方法としては、公知乃至慣用のロールトゥロール方式の製造方法を採用することができ、特に限定されないが、例えば、ロール状に巻いた基材を繰り出す工程（工程A）と、繰り出した基材の少なくとも一方の表面に本発明の硬化性組成物（ハードコート層形成用硬化性組成物）を塗布し、次いで、必要に応じて溶剤を乾燥によって除去した後、該硬化性組成物（硬化性組成物層）を硬化させることにより本発明のハードコート層を形成する工程（工程B）と、その後、得られたハードコートフィルムを再びロールに巻き取る工程（工程C）とを必須の工程として含み、これら工程（工程A～C）を連続的に実施する方法等が挙げられる。なお、当該方法は、工程A～C以外の工程を含んでいてもよい。

[0202] 本発明のハードコートフィルムの厚みは、特に限定されず、1～10000 μm の範囲から適宜選択することができる。

[0203] 本発明のハードコートフィルムの本発明のハードコート層表面の鉛筆硬度は、特に限定されないが、H以上が好ましく、より好ましくは2H以上、さらに好ましくは6H以上である。なお、鉛筆硬度は、JIS K5600-5-4に記載の方法に準じて評価することができる。

- [0204] 本発明のハードコートフィルムのヘイズは、特に限定されないが、1.5%以下が好ましく、より好ましくは1.0%以下である。なお、ヘイズの下限は、特に限定されないが、例えば、0.1%である。ヘイズを特に1.0%以下とすることにより、例えば、非常に高い透明性が要求される用途（例えば、タッチパネル等のディスプレイの表面保護シート等）への使用に適する傾向がある。本発明のハードコートフィルムのヘイズは、例えば、基材として上述の透明基材を使用することによって容易に上記範囲に制御することができる。なお、ヘイズは、JIS K 7136に準拠して測定することができる。
- [0205] 本発明のハードコートフィルムの全光線透過率は、特に限定されないが、85%以上が好ましく、より好ましくは90%以上である。なお、全光線透過率の上限は、特に限定されないが、例えば、99%である。全光線透過率を特に90%以上とすることにより、例えば、非常に高い透明性が要求される用途（例えば、タッチパネル等のディスプレイの表面保護シート等）への使用に適する傾向がある。本発明のハードコートフィルムの全光線透過率は、例えば、基材として上述の透明基材を使用することによって容易に上記範囲に制御することができる。なお、全光線透過率は、JIS K 7361-1に準拠して測定することができる。
- [0206] 本発明のハードコートフィルムは、高硬度及び高耐熱性を維持しながら、可とう性を有し、ロールトゥロール方式での製造や加工が可能であるため、高い品質を有し、生産性にも優れる。特に、本発明のハードコート層表面に表面保護フィルムを有する場合には、打ち抜き加工性にも優れる。このため、このような特性が要求されるあらゆる用途に好ましく使用することができる。本発明のハードコートフィルムは、例えば、各種製品における表面保護フィルム、各種製品の部材又は部品における表面保護フィルム等として使用することもできるし、また、各種製品やその部材又は部品の構成材として使用することもできる。上記製品としては、例えば、液晶ディスプレイ、有機ELディスプレイなどの表示装置；タッチパネルなどの入力装置；太陽電池

；各種家電製品；各種電気・電子製品；携帯電子端末（例えば、ゲーム機器、パソコン、タブレット、スマートフォン、携帯電話等）の各種電気・電子製品；各種光学機器等が挙げられる。また、本発明のハードコートフィルムが各種製品やその部材又は部品の構成材として使用される態様としては、例えば、タッチパネルにおけるハードコートフィルムと透明導電フィルムの積層体等に使用される態様等が挙げられる。

実施例

[0207] 以下に、実施例に基づいて本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例により限定されるものではない。なお、生成物の分子量の測定は、Alliance HPLCシステム 2695 (Waters製)、Refractive Index Detector 2414 (Waters製)、カラム：Tskgel GMH_{HR}-M×2 (東ソー(株)製)、ガードカラム：Tskgel guard column H_{HR}L (東ソー(株)製)、カラムオーブン：COLUMN HEATER U-620 (Sugai製)、溶媒：THF、測定条件：40℃により行った。また、生成物におけるT2体とT3体の割合 [T3体/T2体] の測定は、JEOL ECA500 (500MHz) による²⁹S i-NMRスペクトル測定により行った。

[0208] 製造例1：中間体エポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの製造

温度計、攪拌装置、還流冷却器、及び窒素導入管を取り付けた1000ミリリットルのフラスコ（反応容器）に、窒素気流下で2-（3，4-エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシラン277.2ミリモル（68.30g）、フェニルトリメトキシシラン3.0ミリモル（0.56g）、及びアセトン275.4gを仕込み、50℃に昇温した。このようにして得られた混合物に、5%炭酸カリウム水溶液7.74g（炭酸カリウムとして2.8ミリモル）を5分で添加した後、水2800.0ミリモル（50.40g）を20分かけて添加した。なお、添加の間、著しい温度上昇は起こらなかった。その後、50℃のまま、重縮合反応を窒素気流下で5時間行った。

その後、反応溶液を冷却すると同時に、メチルイソブチルケトン137.70gと5%食塩水100.60gとを投入した。この溶液を1Lの分液漏斗に移し、再度メチルイソブチルケトン137.70gを投入し、水洗を行った。分液後、水層を抜き取り、下層液が中性になるまで水洗を行い、上層液を分取した後、1mmHg、50°Cの条件で上層液から溶媒を留去し、メチルイソブチルケトンを25.04重量%含有する無色透明で液状の生成物（中間体エポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサン）を75.18g得た。

生成物を分析したところ、数平均分子量は2235であり、分子量分散度は1.54であった。上記生成物の²⁹S i-NMRスペクトルから算出されるT2体とT3体の割合 [T3体/T2体] は11.9であった。

得られた中間体エポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの¹H-NMRチャートを図1、²⁹S i-NMRチャートを図2にそれぞれ示す。

[0209] 実施例1：本発明のエポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの製造
(1)

温度計、攪拌装置、還流冷却器、及び窒素導入管を取り付けた1000ミリリットルのフラスコ（反応容器）に、窒素気流下に製造例1で得られた中間体エポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサンを含む混合物（75g）を仕込み、中間体エポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの正味含有量（56.2g）に対して水酸化カリウムを100ppm（5.6mg）、水を2000ppm（112mg）添加し、80°Cで18時間加熱した時点でサンプリングして分子量を測定したところ、数平均分子量Mnが6000まで上昇しており、その後室温まで冷却し、メチルイソブチルケトンを300mL添加し、水を300mL添加し、水洗を繰り返すことでアルカリ成分を除去して濃縮すると、メチルイソブチルケトンを25重量%含有する無色透明で液状の生成物（本発明のエポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサン1）を74.5g得た。

生成物を分析したところ、数平均分子量は6176であり、分子量分散度

は 2.31 であった。上記生成物の²⁹S i-NMR スペクトルから算出される T2 体と T3 体の割合 [T3 体/T2 体] は 50.2 であった。

得られたエポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサン 1 の¹H-NMR チャートを図 3、²⁹S i-NMR チャートを図 4 にそれぞれ示す。

[0210] 実施例 2：本発明のエポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの製造 (2)

温度計、攪拌装置、還流冷却器、及び窒素導入管を取り付けた 1000 ミリリットルのフラスコ（反応容器）に、窒素気流下に製造例 1 と同様の方法で得られた中間体エポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサンを含む混合物（75 g）を仕込み、中間体エポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの正味含有量（56.2 g）に対して炭酸カリウムを 100 ppm（5.6 mg）、水を 2000 ppm（112 mg）添加し、80℃で 18 時間加熱した時点でサンプリングして分子量を測定したところ、数平均分子量 Mn が 4800 まで上昇しており、その後室温まで冷却し、メチルイソブチルケトン を 300 mL 添加し、水を 300 mL 添加し、水洗を繰り返すことでアルカリ成分を除去して濃縮すると、メチルイソブチルケトン を 25 重量%含有する無色透明で液状の生成物（本発明のエポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサン 2）を 74.5 g 得た。

[0211] 実施例 3：本発明のエポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの製造 (3)

温度計、攪拌装置、還流冷却器、及び窒素導入管を取り付けた 1000 ミリリットルのフラスコ（反応容器）に、窒素気流下に製造例 1 と同様の方法で得られた中間体エポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサンを含む混合物（75 g）を仕込み、中間体エポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの正味含有量（56.2 g）に対して炭酸カリウムを 100 ppm（5.6 mg）、水を 2000 ppm（112 mg）添加し、80℃で 3 時間加熱した時点でサンプリングして分子量を測定したところ、数平均分子量 Mn が 3500 まで上昇しており、その後室温まで冷却し、メチルイソブチル

ケトンを300 mL添加し、水を300 mL添加し、水洗を繰り返すことでアルカリ成分を除去して濃縮すると、メチルイソブチルケトンに25重量%含有する無色透明で液状の生成物（本発明のエポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサン3）を74.5 g得た。

生成物を分析したところ、数平均分子量は3500であり、分子量分散度は2.14であった。上記生成物の ^{29}Si -NMRスペクトルから算出されるT2体とT3体の割合 [T3体/T2体] は2.1であった。

得られたエポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサン3の ^1H -NMRチャートを図5、 ^{29}Si -NMRチャートを図6にそれぞれ示す。

[0212] 製造例2：中間体アクリル基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの製造

温度計、攪拌装置、還流冷却器、及び窒素導入管を取り付けた1000ミリリットルのフラスコ（反応容器）に、窒素気流下で3-（アクリルオキシ）プロピルトリメトキシシラン370ミリモル（80 g）、及びアセトン320 gを仕込み、50°Cに昇温した。このようにして得られた混合物に、5%炭酸カリウム水溶液10.144 g（炭酸カリウムとして3.67ミリモル）を5分で添加した後、水3670.0ミリモル（66.08 g）を20分かけて添加した。なお、添加の間、著しい温度上昇は起こらなかった。その後、50°Cのまま、重縮合反応を窒素気流下で2時間行った。

その後、反応溶液を冷却すると同時に、メチルイソブチルケトン160 gと5%食塩水99.056 gとを投入した。この溶液を1 Lの分液ロートに移し、再度メチルイソブチルケトン160 gを投入し、水洗を行った。分液後、水層を抜き取り、下層液が中性になるまで水洗を行い、上層液を分取した後、1 mmHg、50°Cの条件で上層液から溶媒を留去し、メチルイソブチルケトンに22.5重量%含有する無色透明で液状の生成物（中間体アクリル基含有ポリオルガノシルセスキオキサン）を71 g得た。

生成物を分析したところ、数平均分子量は2051であり、分子量分散度は1.29であった。上記生成物の ^{29}Si -NMRスペクトルから算出されるT2体とT3体の割合 [T3体/T2体] は1.3.4であった。

得られた中間体アクリル基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの¹H-NMRチャートを図7、²⁹S i-NMRチャートを図8にそれぞれ示す。

[0213] 実施例4：本発明のアクリル基含有ポリオルガノシルセスキオキサンの製造
(1)

温度計、攪拌装置、還流冷却器、及び窒素導入管を取り付けた1000ミリリットルのフラスコ（反応容器）に、窒素気流下に製造例2で得られた中間体アクリル基含有ポリオルガノシルセスキオキサンを含む混合物（71g）を仕込み、中間体アクリル基含有ポリオルガノにシルセスキオキサンの正味含有量（55.0g）に対して水酸化カリウムを10ppm（0.55mg）、水を2000ppm（110mg）添加し、40℃で30時間加熱した時点でサンプリングして分子量を測定したところ、数平均分子量Mnが5693まで上昇しており、その後室温まで冷却し、メチルイソブチルケトン300mL添加し、水を300mL添加し、水洗を繰り返すことでアルカリ成分を除去して濃縮すると、メチルイソブチルケトンを25重量%含有する無色透明で液状の生成物（本発明のアクリル基含有ポリオルガノシルセスキオキサン）を71g得た。

生成物を分析したところ、数平均分子量は5693であり、分子量分散度は2.58であった。上記生成物の²⁹S i-NMRスペクトルから算出されるT2体とT3体の割合 [T3体/T2体] は47.3であった。

得られたアクリル基含有ポリオルガノシルセスキオキサン1の¹H-NMRチャートを図9、²⁹S i-NMRチャートを図10にそれぞれ示す。

[0214] 実施例5：転写フィルム及び成型体の製造

（離型剤塗工液Aの調製）

Nb/Et（2-ノルボルネン・エチレン共重合体、Topas Advanced Polymers GmbH社製「TOPAS（登録商標）6017S-04」、ガラス転移温度178℃）100重量部及びPVDC（ポリ塩化ビニリデン）1重量部を、固形分濃度が5重量%となるように、トルエン及びテトラヒドロフランの混合溶媒（トルエン/テトラヒドロフラン＝

70/30（重量比））に添加し、加温して溶解し、離型剤塗工液Aを調製した。

[0215]（離型フィルムAの作製）

基材層として、二軸延伸ポリエチレンテレフタレートフィルム（ユニチカ（株）製「エンブレットS50」、厚み50 μ m）を用い、このフィルムの片面に、離型剤塗工液Aをメイヤーバーコーティング法によりコーティングし、100 $^{\circ}$ Cの温度で1分間乾燥して、厚み0.3 μ mの離型層を形成し、離型フィルムAを得た。

[0216]（ハードコート塗工液Aの調製）

実施例3で得られたエポキシ基含有ポリオルガノシルセスキオキサン3（数平均分子量Mn3500）100重量部、CPI-210S（サンアプロ株式会社製光カチオン重合開始剤）1.13重量部を、固形分濃度が70重量%となるように、メチルイソブチルケトンに添加し、ハードコート塗工液Aを調製した。

[0217]（転写フィルムAの作製）

離型フィルムAの離型層面上に、ハードコート塗工液Aをメイヤーバーコーティング法によりコーティングし、80 $^{\circ}$ Cの温度で2分間乾燥し、さらに150 $^{\circ}$ Cの温度で8分間乾燥して厚み40 μ mのハードコート層を形成した。得られたハードコート層の表面を指で触ったところ、指に樹脂が付着せず、表面粘着性を示さない（タックフリーである）ことが確認された。このハードコート層上に、K468HPアンカー（東洋インキ株式会社製エポキシ樹脂系アンカーコート剤）をメイヤーバーコーティング法によりコーティングし、80 $^{\circ}$ Cの温度で30秒間乾燥して、厚み1 μ mのアンカーコート層を形成し、さらにこのアンカーコート層上に、K588HP接着グロスAワニス（東洋インキ製塩化ビニル-酢酸ビニル共重合樹脂系接着剤）をメイヤーバーコーティング法によりコーティングし、80 $^{\circ}$ Cの温度で30秒間乾燥して、厚み4 μ mの接着剤層を形成し、転写フィルムAを得た。

[0218]（成形体1の作製）

SE130DU-C1（住友重機械工業株式会社製全電動二材射出成型機）の金型内に転写フィルムAを設置し、透明ABS（東レ株式会社製トヨラック、グレード920-555）を、金型温度50℃、樹脂温度230℃で射出成型することにより未硬化のハードコート層を有する成形体1を得た。得られたハードコート層未硬化の成形体1のハードコート面に、高圧水銀ランプ（アイグラフィックス社製）からの紫外線を約10秒間照射（積算光量約400mJ/cm²）して紫外線硬化処理した後、さらに60℃で1週間アニール処理を行うことによりハードコート層が硬化された成形体1を得た。

[0219] 比較例1：転写フィルムB及び成型体の製造

（転写フィルムBの作製）

ハードコート層の形成を、セイカビームHT-S（大日精化工業株式会社製ウレタンアクリレート系ハードコート剤）をメイヤーバーコーティング法によりコーティングし、100℃の温度で1分間乾燥した後、高圧水銀ランプ（アイグラフィックス社製）からの紫外線で約2秒間UV硬化処理（積算光量約30mJ/cm²）することにより、厚み4.5μmの半硬化のハードコート層を形成したこと以外は転写フィルムAと同様の方法で、転写フィルムBを得た。

（成形体2の作製）

転写フィルムAの代わりに転写フィルムBを用いたこと、および射出成形後の処理を高圧水銀ランプ（アイグラフィックス社製）からの紫外線を約25秒間照射（積算光量約900mJ/cm²）として、半硬化ハードコート層を硬化したこと以外は成形体1と同様の方法でハードコート層が硬化された成形体2を得た。

[0220] （硬度の評価）

得られた成形体1及び2の鉛筆硬度を、JIS-K-5600に規定される鉛筆硬度の評価方法に従い評価した。この評価方法による結果を表1に示す。

[0221]

[表1]

項目	実施例 5	比較例 1
成形体	1	2
鉛筆硬度	6 H	HB

[0222] 上記で説明した本発明のバリエーションを以下に付記する。

[1] 下記式 (1)

[化31]



[式 (1) 中、 R^1 は、重合性官能基を含有する基を示す。]

で表される構成単位を有し、下記式 (1)

[化32]



[式 (I) 中、 R^a は、重合性官能基を含有する基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、又は水素原子を示す。]

で表される構成単位と、下記式 (II)

[化33]



[式 (II) 中、 R^b は、重合性官能基を含有する基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、又は水素原子を示す。 R^c は、水素原子又は炭素数 1~4 のアルキル基を示す。]

で表される構成単位モル比 [式 (I) で表される構成単位 / 式 (II) で

表される構成単位] が 20 以上 500 以下であり、シロキサン構成単位の全量 (100 モル%) に対する上記式 (1) で表される構成単位及び下記式 (4)

[化34]



[式 (4) 中、 R^1 は、式 (1) におけるものと同じ。 R^c は、式 (11) におけるものと同じ。]

で表される構成単位の割合が 55 ~ 100 モル%であり、数平均分子量が 2500 ~ 50000、分子量分散度 (重量平均分子量 / 数平均分子量) が 1.0 ~ 4.0 であることを特徴とするポリオルガノシルセスキオキサン。

[2] 前記重合性官能基が、カチオン重合性官能基、又はラジカル重合性官能基である、前記 [1] に記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[3] 前記カチオン重合性官能基が、エポキシ基、オキセタン基、ビニルエーテル基、及びビニルフェニル基からなる群から選ばれる少なくとも 1 種 (好ましくはエポキシ基) である、前記 [2] に記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

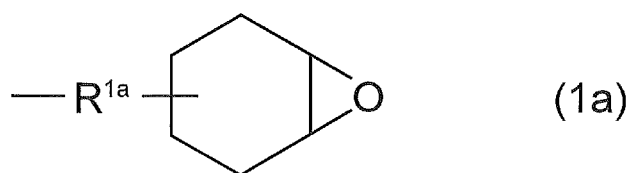
[4] 前記ラジカル重合性官能基が、(メタ) アクリルオキシ基、(メタ) アクリルアミド基、ビニル基、及びビニルチオ基からなる群から選ばれる少なくとも 1 種 (好ましくは (メタ) アクリルオキシ基) である、前記 [2] に記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[5] 前記重合性官能基が、エポキシ基、又は (メタ) アクリルオキシ基である、前記 [1] ~ [4] のいずれか 1 つに記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[6] 前記重合性官能基が、エポキシ基である、前記 [1] ~ [5] のいずれか 1 つに記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[7] 前記 R^1 が、下記式 (1a)

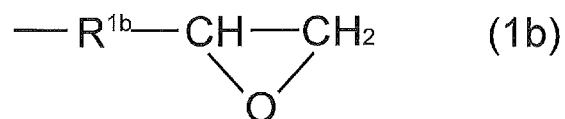
[化35]



[式(1a)中、R^{1a}は、直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基（好ましくはエチレン基、トリメチレン基、より好ましくはエチレン基）を示す。]

で表される基、下記式(1b)

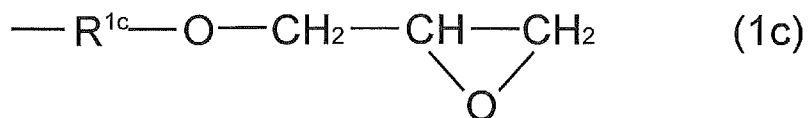
[化36]



[式(1b)中、R^{1b}は、直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基（好ましくはエチレン基、トリメチレン基、より好ましくはトリメチレン基）を示す。]

で表される基、下記式(1c)

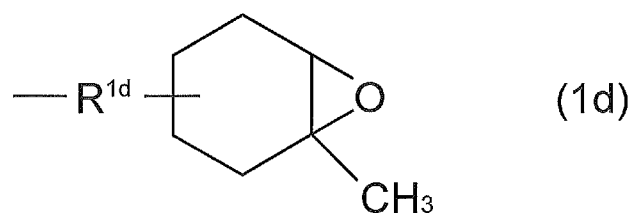
[化37]



[式(1c)中、R^{1c}は、直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基（好ましくはエチレン基、トリメチレン基、より好ましくはトリメチレン基）を示す。]

で表される基、又は、下記式(1d)

[化38]



[式(1d)中、R^{1d}は、直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基(好ましくはエチレン基、トリメチレン基、より好ましくはエチレン基)を示す。]

で表される基である、前記[1]～[6]のいずれか1つに記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[8] 前記R¹が、(メタ)アクリルオキシ基を含有する基(好ましくは2-(メタ)アクリルオキシ)エチル基、又は3-(メタ)アクリルオキシ)プロピル基)である、前記[1]～[7]のいずれか1つに記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[9] 前記R¹が、2-(3', 4'-エポキシシクロヘキシル)エチル基)、3-(アクリルオキシ)プロピル基、又は3-(メタクリルオキシ)プロピル基である、前記[1]～[8]のいずれか1つに記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[10] さらに、下記式(2)

[化39]



[式(2)中、R²は、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルキル基、又は、置換若しくは無置換のアルケニル基を示す。]

で表される構成単位を有する、前記[1]～[9]のいずれか1つに記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[11] 前記R²が、置換若しくは無置換のアリール基(好ましくはフェニル基)である、前記[10]に記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[0223] [12] 上記式(1)で表される構成単位(T3体)と、上記式(11)で表される構成単位(T2体)の割合[T3体/T2体]の下限値が21(好ましくは23、より好ましくは25)である、前記[1]～[11]のいずれか1つに記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[13] 前記[T3体/T2体]の上限値が100(好ましくは50、より

好ましくは40)である、前記[1]～[12]のいずれか1つに記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[14] シロキサン構成単位の全量(100モル%)に対する、上記式(1)で表される構成単位及び上記式(4)で表される構成単位の割合(総量)が、65～100モル%(好ましくは80～99モル%)である、前記[1]～[13]のいずれか1つに記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[15] シロキサン構成単位の全量(100モル%)に対する、上記式(2)で表される構成単位及び上記式(5)で表される構成単位の割合(総量)が、0～70モル%(好ましくは0～60モル%、より好ましくは0～40モル%、特に好ましくは1～15モル%)である、前記[1]～[14]のいずれか1つに記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[16] シロキサン構成単位の全量(100モル%)に対する、上記式(1)で表される構成単位、上記式(2)で表される構成単位、上記式(4)で表される構成単位、及び上記式(5)で表される構成単位の割合(総量)が、60～100モル%(好ましくは70～100モル%、より好ましくは80～100モル%)である、前記[1]～[15]のいずれか1つに記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[17] 数平均分子量(M_n)が、2800～10000(好ましくは3000～8000)である、前記[1]～[16]のいずれか1つに記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[18] 分子量分散度(M_w/M_n)が、1.1～3.0(好ましくは1.2～2.5)である、前記[1]～[17]のいずれか1つに記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[19] 空気雰囲気下における5%重量減少温度(T_{d5})が、330℃以上(例えば、330～450℃、好ましくは340℃以上、より好ましくは350℃以上)である、前記[1]～[18]のいずれか1つに記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[0224] [20] 前記[1]～[19]のいずれか1つに記載のポリオルガノシルセ

スキオキサンを含む硬化性組成物。

[21] 前記ポリオルガノシルセスキオキサンの含有量（配合量）が、溶媒を除く硬化性組成物の全量（100重量%）に対して、70重量%以上、100重量%未満（好ましくは80～99.8重量%、より好ましくは90～99.5重量%）である、前記[20]に記載の硬化性組成物。

[22] 前記硬化性組成物に含まれるカチオン硬化性化合物又はラジカル硬化性化合物の全量（100重量%）に対する前記ポリオルガノシルセスキオキサンの割合が、70～100重量%（好ましくは75～98重量%、より好ましくは80～95重量%）である、前記[20]又は[21]に記載の硬化性組成物。

[23] さらに、硬化触媒を含む、前記[20]～[22]のいずれか1つに記載の硬化性組成物。

[24] 前記硬化触媒が光カチオン重合開始剤である、前記[23]に記載の硬化性組成物。

[25] 前記硬化触媒が熱カチオン重合開始剤である、前記[23]に記載の硬化性組成物。

[26] 前記硬化触媒が光ラジカル重合開始剤である、前記[23]に記載の硬化性組成物。

[27] 前記硬化触媒が熱ラジカル重合開始剤である、前記[23]に記載の硬化性組成物。

[28] 前記硬化触媒の含有量（配合量）が、前記ポリオルガノシルセスキオキサン100重量部に対して、0.01～3.0重量部（好ましくは0.05～3.0重量部、より好ましくは0.1～1.0重量部、さらに好ましくは0.3～1.0重量部）である、前記[23]～[28]のいずれか1つに記載の硬化性組成物。

[29] さらに、ビニルエーテル化合物を含む、前記[20]～[28]のいずれか1つに記載の硬化性組成物。

[30] さらに、分子内に水酸基を有するビニルエーテル化合物を含む、前

記〔20〕～〔29〕のいずれか1つに記載の硬化性組成物。

〔31〕前記ビニルエーテル化合物（特に、分子内に1個以上の水酸基を有するビニルエーテル化合物）の含有量（配合量）が、前記硬化性組成物中のカチオン硬化性化合物とラジカル硬化性化合物の全量（100%）に対して、0.01～10重量%（好ましくは0.05～9重量%、より好ましくは1～8重量%）である、前記〔29〕又は〔30〕に記載の硬化性組成物。

〔32〕ハードコート層形成用硬化性組成物である、前記〔20〕～〔31〕のいずれか1つに記載の硬化性組成物。

〔33〕前記〔20〕～〔32〕のいずれか1つに記載の硬化性組成物の硬化物。

[0225] 〔34〕基材と、該基材の少なくとも一方の表面に形成された離型層上に、ハードコート層が積層された転写用フィルムであって、該ハードコート層が、前記〔32〕に記載の硬化性組成物を含むことを特徴とする転写用フィルム。

〔35〕前記基材が、ポリエステルフィルム（特に、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）、環状ポリオレフィンフィルム、ポリカーボネートフィルム、トリアセチルセルロースフィルム、又はポリメチルメタクリレートフィルムである、前記〔34〕に記載の転写用フィルム。

〔36〕前記基材の厚みが、0.01～10000 μ m（好ましくは2～250 μ m、より好ましくは5～100 μ m、さらに好ましくは20～100 μ m）である、前記〔34〕又は〔35〕に記載の転写用フィルム。

〔37〕前記離形層と前記ハードコート層の剥離強度が、30～500mN/24mm（好ましくは40～300mN/24mm、より好ましくは50～200mN/24mm）である、前記〔34〕～〔35〕のいずれか1つに記載の転写用フィルム。

〔38〕前記離型層を形成する成分が、不飽和エステル系樹脂、エポキシ系樹脂、エポキシエーメラミン系樹脂、アミノアルキド系樹脂、アクリル系樹脂、メラミン系樹脂、シリコン系樹脂、フッ素系樹脂、セルロース系樹脂、尿

素樹脂系樹脂、ポリオレフィン系樹脂、パラフィン系樹脂、及びシクロオレフィン系樹脂から選ばれる少なくとも一種（好ましくはシクロオレフィン系樹脂、特に好ましくは2-ノルボルネン・エチレン共重合体等のシクロオレフィン共重合体樹脂）である、前記 [34] ~ [37] のいずれか1つに記載の転写用フィルム。

[39] 離型層の厚さが、0.01~5 μm （好ましくは0.1~3.0 μm ）である、前記 [34] ~ [38] のいずれか1つに記載の転写用フィルム。

[40] 前記ハードコート層の厚さが、1~200 μm （好ましくは3~150 μm ）である、前記 [34] ~ [39] のいずれか1つに記載の転写用フィルム。

[41] 前記ハードコート層の50 μm の厚みのヘイズが、1.5%以下（好ましくは1.0%以下）である、前記 [34] ~ [40] のいずれか1つに記載の転写用フィルム。

[42] 前記ハードコート層の50 μm の厚みのヘイズが、0.1%以上である、前記 [34] ~ [41] のいずれか1つに記載の転写用フィルム。

[43] 前記ハードコート層の50 μm の厚みの全光線透過率が、85%以上（好ましくは90%以上）である、前記 [34] ~ [42] のいずれか1つに記載の転写用フィルム。

[44] 前記ハードコート層の50 μm の厚みの全光線透過率が、99%以下である、前記 [34] ~ [43] のいずれか1つに記載の転写用フィルム。

[45] 前記ハードコート層上に、アンカーコート層及び接着剤層が、この順でさらに積層される、前記 [34] ~ [44] のいずれか1つに記載の転写用フィルム。

[46] さらに、少なくとも1層の着色層を含む、前記 [34] ~ [45] のいずれか1つに記載の転写用フィルム。

[47] 前記アンカーコート層が、フェノール樹脂、アルキド樹脂、メラミ

ン系樹脂、エポキシ系樹脂、尿素樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ウレタン系樹脂、熱硬化性ポリイミド、シリコン樹脂、塩化ビニル-酢酸ビニル共重合体樹脂、アクリル樹脂、塩化ゴム、ポリアミド樹脂、硝化綿樹脂、及び環状ポリオレフィン系樹脂からなる群から選ばれる少なくとも1種（好ましくはエポキシ樹脂）である、前記〔34〕～〔46〕のいずれか1つに記載の転写用フィルム。

〔48〕前記アンカーコート層の厚みが、0.1～20 μm （好ましくは、0.5～5 μm ）である、前記〔34〕～〔47〕のいずれか1つに記載の転写用フィルム。

〔49〕前記接着剤層に用いられる樹脂が、アクリル系樹脂、塩化ビニル系樹脂、酢酸ビニル系樹脂、塩化ビニル-酢酸ビニル系共重合樹脂、スチレン-アクリル系共重合樹脂、ポリエステル系樹脂、及びポリアミド系樹脂からなる群から選ばれる少なくとも1種（好ましくは、アクリル系樹脂、塩化ビニル-酢酸ビニル系共重合樹脂）である、前記〔34〕～〔48〕のいずれか1つに記載の転写用フィルム。

〔50〕前記接着剤層の厚みが、0.1～10 μm （好ましくは0.5～5 μm ）である、前記〔34〕～〔49〕のいずれか1つに記載の転写用フィルム。

〔51〕前記転写用フィルムの厚みが、1～10000 μm （好ましくは2～250 μm 、より好ましくは5～150 μm が、さらに好ましくは25～150 μm ）である、前記〔34〕～〔50〕のいずれか1つに記載の転写用フィルム。

〔52〕インモールド射出成型に使用される転写用フィルムである、前記〔34〕～〔51〕のいずれか1つに記載の転写用フィルム。

〔53〕前記〔52〕に記載の転写用フィルムから前記離型層が形成された基材を除いた層（転写層）が転写されたインモールド成型品。

[0226] 〔54〕基材と、該基材の少なくとも一方の表面に形成されたハードコート層とを有するハードコートフィルムであって、該ハードコート層が、前記〔

32]に記載の硬化性組成物の硬化物層であることを特徴とするハードコートフィルム。

[55]前記基材が、ポリエステルフィルム（特に、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）、環状ポリオレフィンフィルム、ポリカーボネートフィルム、トリアセチルセルロースフィルム、又はポリメチルメタクリレートフィルムである、前記[54]に記載のハードコートフィルム。

[56]前記基材の厚みが、0.01~10000 μm である、前記[54]又は[55]に記載のハードコートフィルム。

[57]前記ハードコート層の厚さが1~200 μm （好ましくは3~150 μm ）である、前記[54]~[56]のいずれか1つに記載のハードコートフィルム。

[58]前記ハードコート層の50 μm の厚みのヘイズが、1.5%以下（好ましくは1.0%以下）である、前記[54]~[57]のいずれか1つに記載のハードコートフィルム。

[59]前記ハードコート層の50 μm の厚みのヘイズが、0.1%以上である、前記[54]~[58]のいずれか1つに記載のハードコートフィルム。

[60]前記ハードコート層の50 μm の厚みの全光線透過率が、85%以上（好ましくは90%以上）である、前記[54]~[59]のいずれか1つに記載のハードコートフィルム。

[61]前記ハードコート層の50 μm の厚みの全光線透過率が、99%以下である、前記[54]~[60]のいずれか1つに記載のハードコートフィルム。

[62]ロールトゥロール方式での製造が可能な、前記[54]~[61]のいずれか1つに記載のハードコートフィルム。

[63]さらに、前記ハードコート層表面に表面保護フィルムを有する、前記[54]~[62]のいずれか1つに記載のハードコートフィルム。

[64] 前記ハードコートフィルムの厚みが、1～10000 μm である、前記[54]～[63]のいずれか1つに記載のハードコートフィルム。

[65] 前記ハードコートフィルムのヘイズが、1.5%以下（好ましくは1.0%以下）である、前記[54]～[64]のいずれか1つに記載のハードコートフィルム。

[66] 前記ハードコートフィルムのヘイズが、0.1%以上である、前記[54]～[65]のいずれか1つに記載のハードコートフィルム。

[67] 前記ハードコートフィルムの全光線透過率が、85%以上（好ましくは90%以上）である、前記[54]～[66]のいずれか1つに記載のハードコートフィルム。

[68] 前記ハードコートフィルムの全光線透過率が、99%以下である、前記[54]～[67]のいずれか1つに記載のハードコートフィルム。

[65] ロール状に巻いた基材を繰り出す工程Aと、繰り出した基材の少なくとも一方の表面に前記[32]に記載の硬化性組成物を塗布し、次いで、該硬化性組成物を硬化させることによりハードコート層を形成する工程Bと、その後、得られたハードコートフィルムを再びロールに巻き取る工程Cとを含み、工程A～Cを連続的に実施することを特徴とするハードコートフィルムの製造方法。

産業上の利用可能性

[0227] 本発明のポリオルガノシルセスキオキサンを必須成分として含む硬化性組成物を含むハードコート層を有する転写用フィルムを用いてインモールド射出成型を行うことにより、高い表面硬度を有するハードコート層で被覆された成型品を製造することができる。また、本発明のポリオルガノシルセスキオキサンを含む未硬化又は半硬化のハードコート層がタックフリーとなってロール状に巻き取って取り扱うことができ、該ハードコート層を含む転写用フィルムをロールトゥロールで取り扱うことが可能である。従って、本発明の硬化性組成物は、特に、インモールド射出成型に使用される転写用フィルムやハードコートフィルムのハードコート層形成用硬化性組成物として好ま

しく使用できる。

請求の範囲

[請求項1] 下記式 (1)

[化1]



[式 (1) 中、 R^1 は、重合性官能基を含有する基を示す。]

で表される構成単位を有し、下記式 (1)

[化2]



[式 (I) 中、 R^a は、重合性官能基を含有する基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、又は水素原子を示す。]

で表される構成単位と、下記式 (II)

[化3]



[式 (II) 中、 R^b は、重合性官能基を含有する基、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、又は水素原子を示す。 R^c は、水素原子又は炭素数 1 ~ 4 のアルキル基を示す。]

で表される構成単位と、下記式 (1) で表される構成単位 / 式 (II) で表される構成単位] が 20 以上 500 以下であり、シロキサン構成単位の全量 (100 モル%) に対する上記式 (1) で表される構成単位及び下記式 (4)

[化4]



[式(4)中、 R^1 は、式(1)におけるものと同じ。 R^c は、式(1)におけるものと同じ。]

で表される構成単位の割合が55～100モル%であり、数平均分子量が2500～50000、分子量分散度(重量平均分子量/数平均分子量)が1.0～4.0であることを特徴とするポリオルガノシルセスキオキサン。

[請求項2] さらに、下記式(2)

[化5]



[式(2)中、 R^2 は、置換若しくは無置換のアリール基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルキル基、又は、置換若しくは無置換のアルケニル基を示す。]

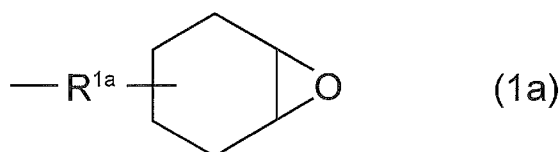
で表される構成単位を有する請求項1に記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[請求項3] 前記 R^2 が、置換若しくは無置換のアリール基である請求項2に記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[請求項4] 前記重合性官能基が、エポキシ基である、請求項1～3のいずれか1項に記載のポリオルガノシルセスキオキサン。

[請求項5] 前記 R^1 が、下記式(1a)

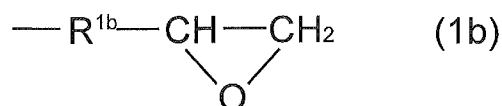
[化6]



[式(1a)中、R^{1a}は、直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基を示す。
]

で表される基、下記式(1b)

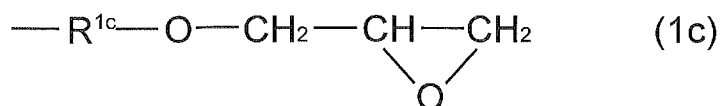
[化7]



[式(1b)中、R^{1b}は、直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基を示す。
]

で表される基、下記式(1c)

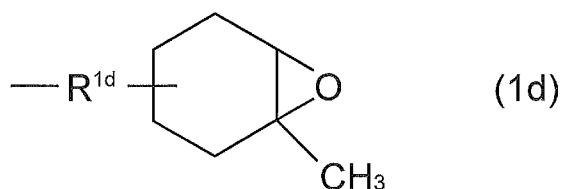
[化8]



[式(1c)中、R^{1c}は、直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基を示す。
]

で表される基、又は、下記式(1d)

[化9]



[式(1d)中、R^{1d}は、直鎖又は分岐鎖状のアルキレン基を示す。
]

で表される基である請求項1～4のいずれか1項に記載のポリオルガ
ノシルセスキオキサン。

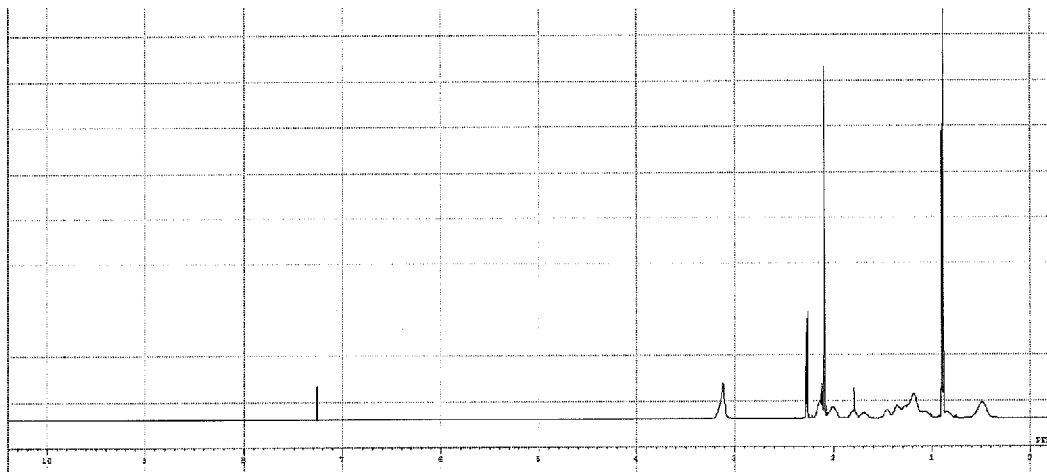
[請求項6]

請求項1～5のいずれか1項に記載のポリオルガノシルセスキオキ
サンを含む硬化性組成物。

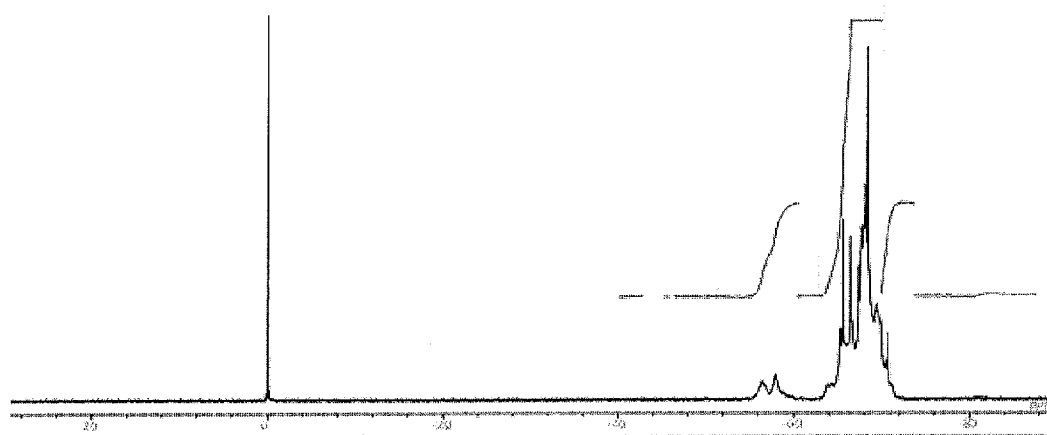
- [請求項7] さらに、硬化触媒を含む請求項6に記載の硬化性組成物。
- [請求項8] 前記硬化触媒が光カチオン重合開始剤である請求項7に記載の硬化性組成物。
- [請求項9] 前記硬化触媒が熱カチオン重合開始剤である請求項7に記載の硬化性組成物。
- [請求項10] 前記硬化触媒が光ラジカル重合開始剤である請求項7に記載の硬化性組成物。
- [請求項11] 前記硬化触媒が熱ラジカル重合開始剤である請求項7に記載の硬化性組成物。
- [請求項12] さらに、ビニルエーテル化合物を含む請求項6～11のいずれか1項に記載の硬化性組成物。
- [請求項13] さらに、分子内に水酸基を有するビニルエーテル化合物を含む請求項6～12のいずれか1項に記載の硬化性組成物。
- [請求項14] ハードコート層形成用硬化性組成物である請求項6～13のいずれか1項に記載の硬化性組成物。
- [請求項15] 請求項6～14のいずれか1項に記載の硬化性組成物の硬化物。
- [請求項16] 基材と、該基材の少なくとも一方の表面に形成された離型層上に、ハードコート層が積層された転写用フィルムであって、該ハードコート層が、請求項14に記載の硬化性組成物を含むことを特徴とする転写用フィルム。
- [請求項17] 前記ハードコート層上に、アンカーコート層及び接着剤層が、この順でさらに積層される請求項16に記載の転写用フィルム。
- [請求項18] さらに、少なくとも1層の着色層を含む請求項16又は17に記載の転写用フィルム。
- [請求項19] 前記ハードコート層の厚さが3～150 μm である請求項16～18のいずれか1項に記載の転写用フィルム。
- [請求項20] インモールド射出成型に使用される転写用フィルムである、請求項16～19のいずれか1項に記載の転写用フィルム。

- [請求項21] 請求項20に記載の転写用フィルムから前記離型層が形成された基材を除いた層（転写層）が転写されたインモールド成型品。
- [請求項22] 基材と、該基材の少なくとも一方の表面に形成されたハードコート層とを有するハードコートフィルムであって、該ハードコート層が、請求項14に記載の硬化性組成物の硬化物層であることを特徴とするハードコートフィルム。
- [請求項23] 前記ハードコート層の厚さが1～200 μ mである請求項22に記載のハードコートフィルム。
- [請求項24] ロールトゥロール方式での製造が可能な請求項22又は23に記載のハードコートフィルム。
- [請求項25] さらに、前記ハードコート層表面に表面保護フィルムを有する請求項22～24のいずれか1項に記載のハードコートフィルム。
- [請求項26] ロール状に巻いた基材を繰り出す工程Aと、繰り出した基材の少なくとも一方の表面に請求項14に記載の硬化性組成物を塗布し、次いで、該硬化性組成物を硬化させることによりハードコート層を形成する工程Bと、その後、得られたハードコートフィルムを再びロールに巻き取る工程Cとを含み、工程A～Cを連続的に実施することを特徴とするハードコートフィルムの製造方法。

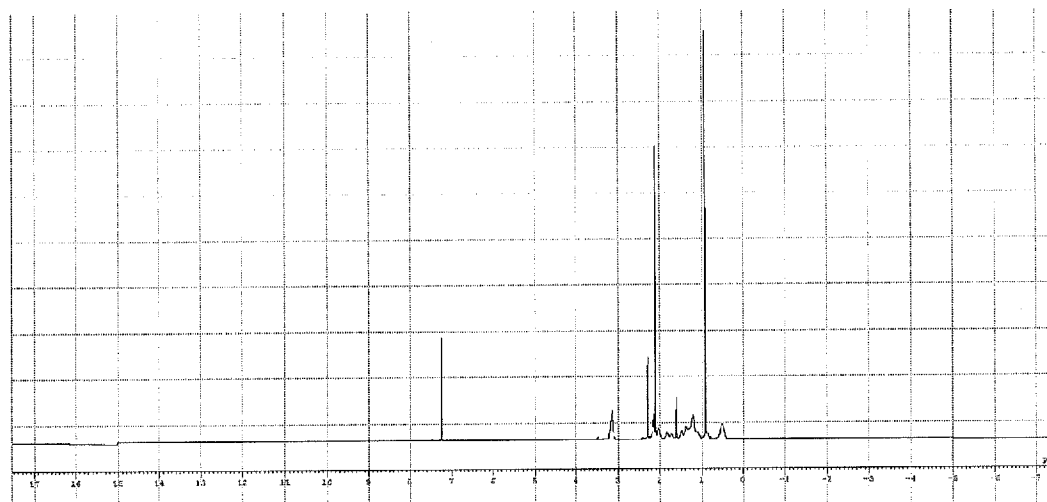
[図1]



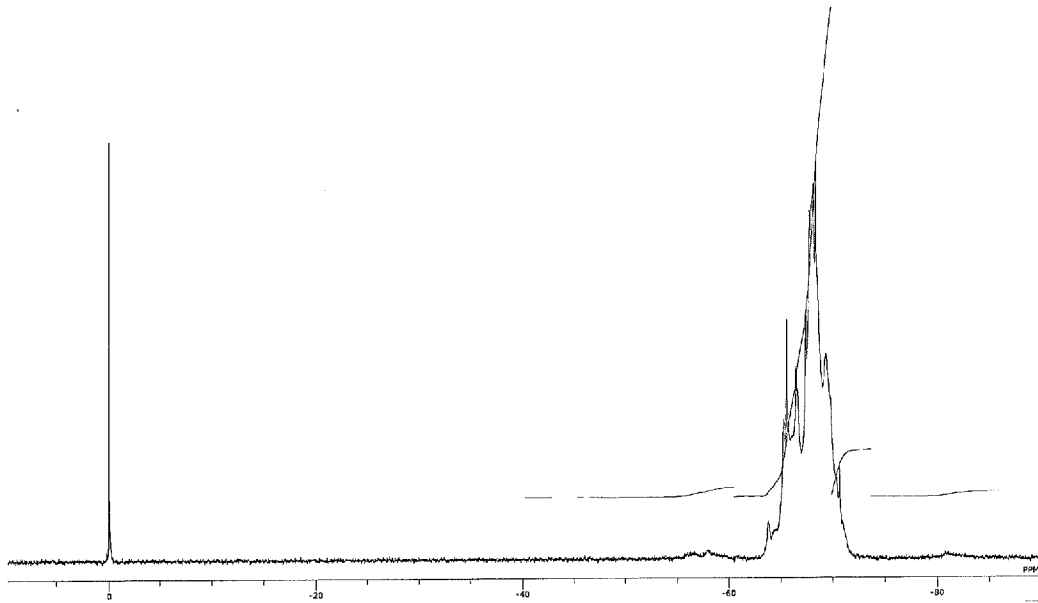
[図2]



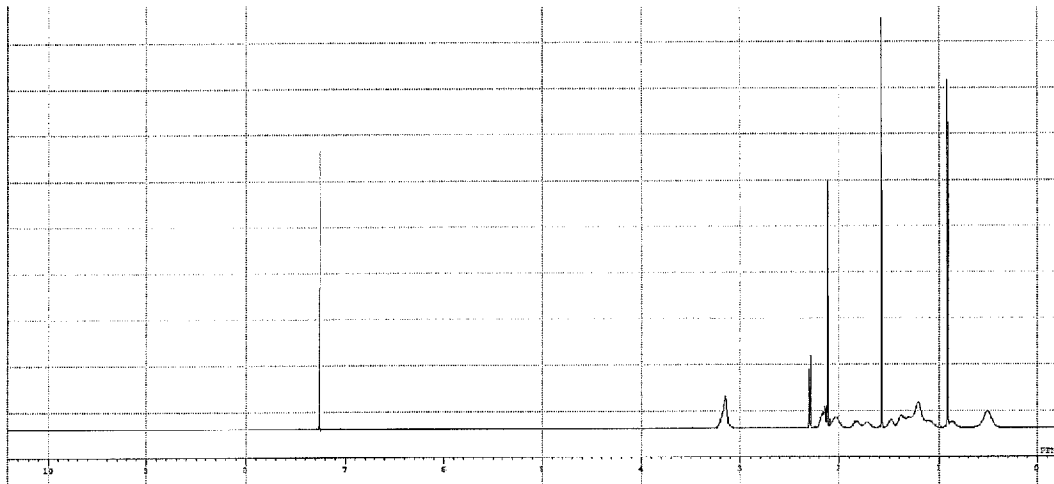
[図3]



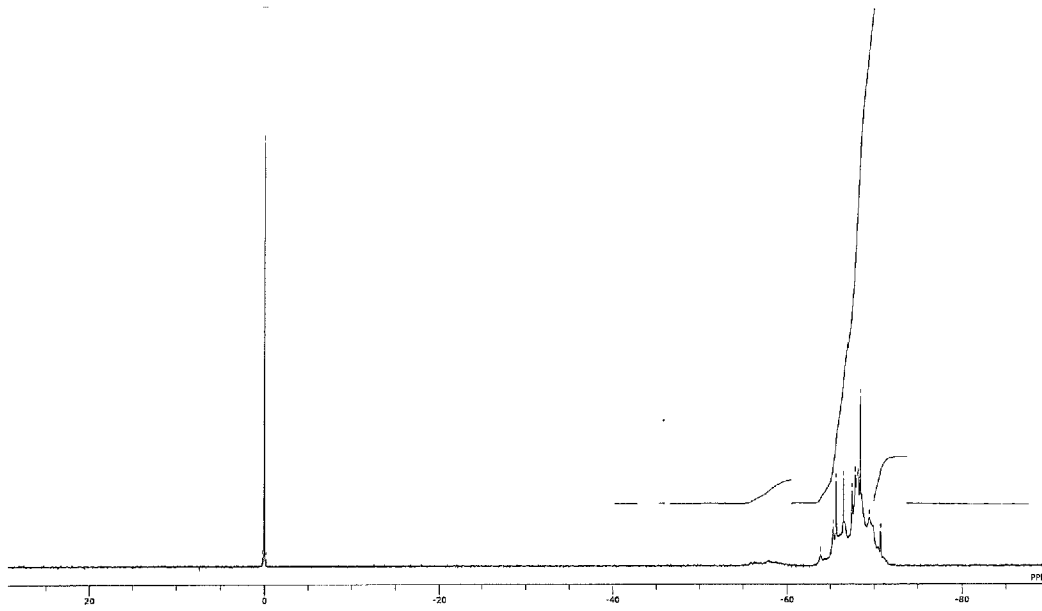
[図4]



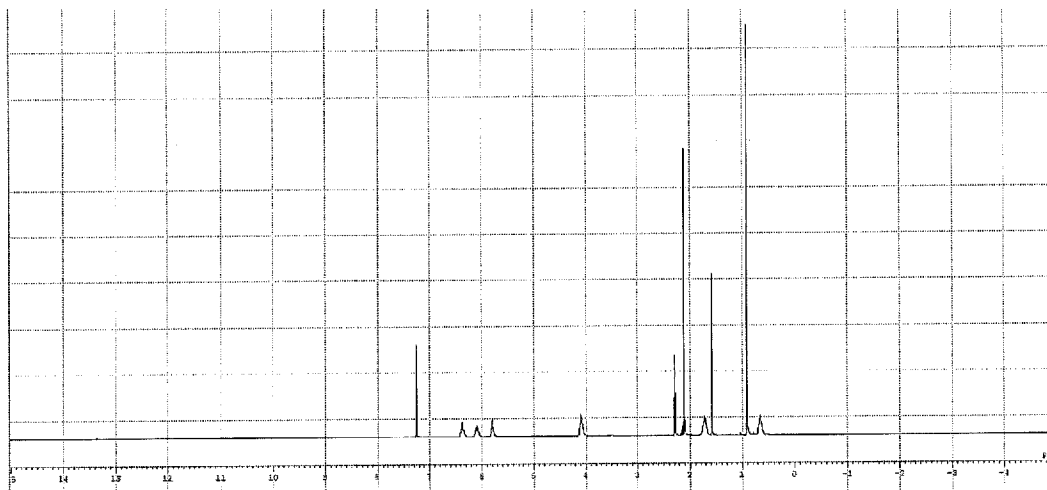
[図5]



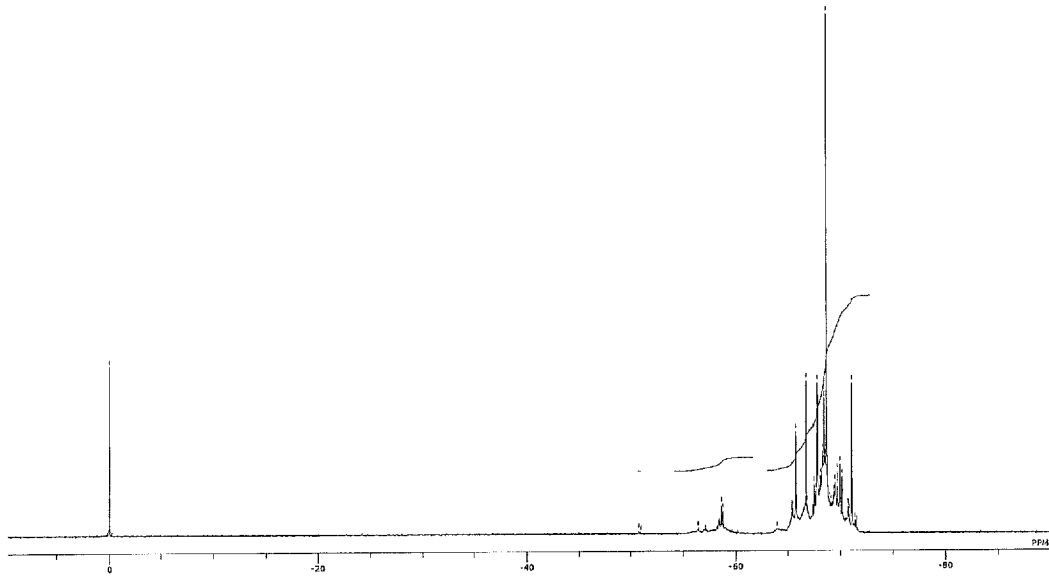
[圖6]



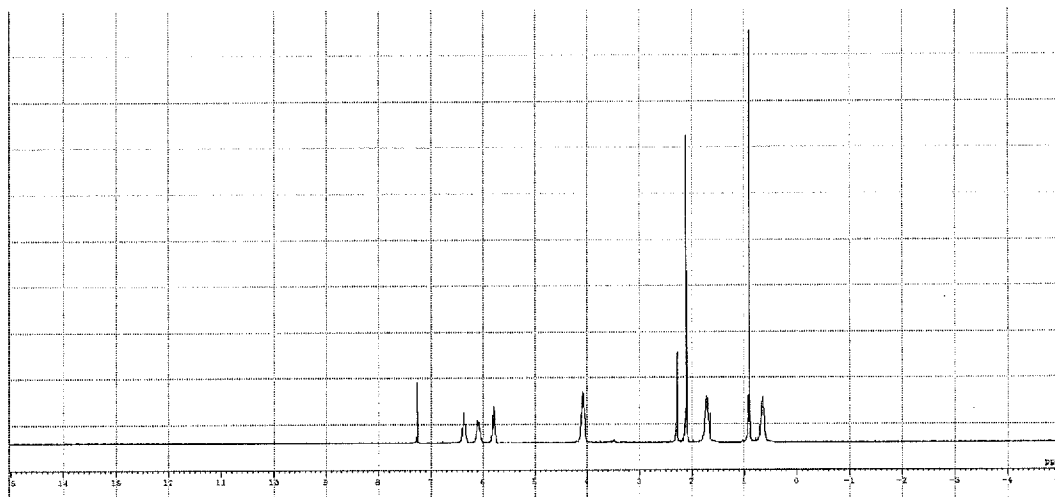
[圖7]



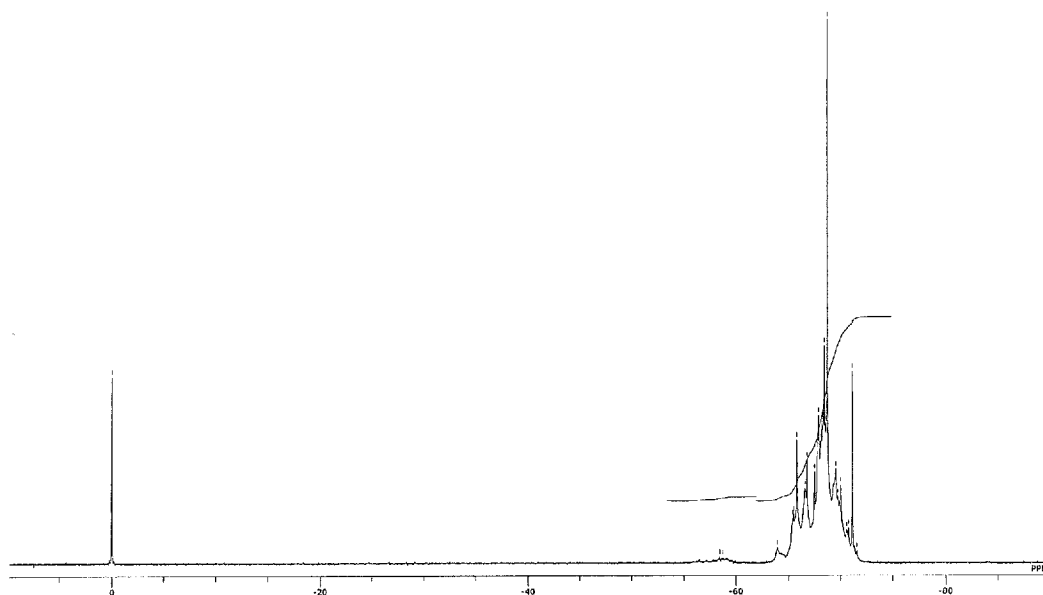
[图8]



[图9]



[図10]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/018896

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
 Int.Cl. C08G77/14 (2006.01) i, B29C45/14 (2006.01) i, B32B27/00 (2006.01) i,
 C08G59/20 (2006.01) i, C08J7/04 (2006.01) i, C09D7/40 (2018.01) i,
 C09D7/63 (2018.01) i, C09D183/04 (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)
 Int.Cl. C08G77/14, B29C45/14, B32B27/00, C08G59/20, C08J7/04,
 C09D7/40, C09D7/63, C09D183/04

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

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2018
Registered utility model specifications of Japan	1996-2018
Published registered utility model applications of Japan	1994-2018

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2015/087686 A1 (DAICEL CORPORATION) 18 June 2015, claims, examples & US 2016/0297933 A1, claims, examples & JP 2015-212353 A	1-26
X	JP 2017-008148 A (DAICEL CORPORATION) 12 January 2017, claims, examples (Family: none)	1-26
X	JP 2017-008144 A (DAICEL CORPORATION) 12 January 2017, claims, examples (Family: none)	1-26
X	JP 2017-008143 A (DAICEL CORPORATION) 12 January 2017, claims, examples (Family: none)	1-26

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"I" 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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search 18 July 2018 (18.07.2018)	Date of mailing of the international search report 14 August 2018 (14.08.2018)
----------------------------------------------------------------------------------------	-----------------------------------------------------------------------------------

Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.
--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------	-----------------------------------------

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/018896

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2017-008142 A (DAICEL CORPORATION) 12 January 2017, claims, examples (Family: none)	1-26
X	JP 2017-008147 A (DAICEL CORPORATION) 12 January 2017, claims, examples (Family: none)	1-13, 15
X	JP 2017-008145 A (DAICEL CORPORATION) 12 January 2017, claims, examples (Family: none)	1-13, 15
X	WO 2016/204014 A1 (DAICEL CORPORATION) 22 December 2016, claims, examples & CN 107709400 A & KR 10-2018-0019090 A & TW 201710456 A	1-13, 15
X	JP 2008-179811 A (ASAHI KASEI CORPORATION) 07 August 2008, claims, examples (Family: none)	1-13, 15

<p>A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))</p> <p>Int.Cl. C08G77/14(2006.01)i, B29C45/14(2006.01)i, B32B27/00(2006.01)i, C08G59/20(2006.01)i, C08J7/04(2006.01)i, C09D7/40(2018.01)i, C09D7/63(2018.01)i, C09D183/04(2006.01)i</p>											
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))</p> <p>Int.Cl. C08G77/14, B29C45/14, B32B27/00, C08G59/20, C08J7/04, C09D7/40, C09D7/63, C09D183/04</p>											
<p>最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの</p> <table style="width:100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="width:30%;">日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2018年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2018年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2018年</td> </tr> </table>			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2018年	日本国実用新案登録公報	1996-2018年	日本国登録実用新案公報	1994-2018年	
日本国実用新案公報	1922-1996年										
日本国公開実用新案公報	1971-2018年										
日本国実用新案登録公報	1996-2018年										
日本国登録実用新案公報	1994-2018年										
<p>国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)</p> <p>CAplus/REGISTRY (STN)</p>											
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1" style="width:100%; border-collapse: collapse;"> <thead> <tr> <th style="width:10%;">引用文献の カテゴリー*</th> <th style="width:70%;">引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示</th> <th style="width:20%;">関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td style="text-align:center;">X</td> <td>WO 2015/087686 A1 (株式会社ダイセル) 2015.06.18, 特許請求の範囲、実施例 & US 2016/0297933 A1, claims, examples & JP 2015-212353 A</td> <td style="text-align:center;">1-26</td> </tr> <tr> <td style="text-align:center;">X</td> <td>JP 2017-008148 A (株式会社ダイセル) 2017.01.12, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)</td> <td style="text-align:center;">1-26</td> </tr> </tbody> </table>			引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号	X	WO 2015/087686 A1 (株式会社ダイセル) 2015.06.18, 特許請求の範囲、実施例 & US 2016/0297933 A1, claims, examples & JP 2015-212353 A	1-26	X	JP 2017-008148 A (株式会社ダイセル) 2017.01.12, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-26
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号									
X	WO 2015/087686 A1 (株式会社ダイセル) 2015.06.18, 特許請求の範囲、実施例 & US 2016/0297933 A1, claims, examples & JP 2015-212353 A	1-26									
X	JP 2017-008148 A (株式会社ダイセル) 2017.01.12, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-26									
<p><input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p>											
<table style="width:100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="width:50%; vertical-align: top;"> <p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの</p> <p>「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの</p> <p>「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)</p> <p>「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</p> </td> <td style="width:50%; vertical-align: top;"> <p>の日の後に公表された文献</p> <p>「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と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</p> <p>「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの</p> <p>「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの</p> <p>「&」 同一パテントファミリー文献</p> </td> </tr> </table>			<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの</p> <p>「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの</p> <p>「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)</p> <p>「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</p>	<p>の日の後に公表された文献</p> <p>「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と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</p> <p>「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの</p> <p>「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの</p> <p>「&」 同一パテントファミリー文献</p>							
<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの</p> <p>「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの</p> <p>「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)</p> <p>「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</p>	<p>の日の後に公表された文献</p> <p>「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と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</p> <p>「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの</p> <p>「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの</p> <p>「&」 同一パテントファミリー文献</p>										
<p>国際調査を完了した日</p> <p style="text-align:center;">18.07.2018</p>		<p>国際調査報告の発送日</p> <p style="text-align:center;">14.08.2018</p>									
<p>国際調査機関の名称及びあて先</p> <p style="text-align:center;">日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号</p>		<table border="1" style="width:100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="width:70%;"> <p>特許庁審査官 (権限のある職員)</p> <p style="text-align:center;">安田 周史</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3457</p> </td> <td style="width:10%; text-align:center;">4 J</td> <td style="width:20%; text-align:center;">3445</td> </tr> </table>	<p>特許庁審査官 (権限のある職員)</p> <p style="text-align:center;">安田 周史</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3457</p>	4 J	3445						
<p>特許庁審査官 (権限のある職員)</p> <p style="text-align:center;">安田 周史</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3457</p>	4 J	3445									

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
X	JP 2017-008144 A (株式会社ダイセル) 2017. 01. 12, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-26
X	JP 2017-008143 A (株式会社ダイセル) 2017. 01. 12, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-26
X	JP 2017-008142 A (株式会社ダイセル) 2017. 01. 12, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-26
X	JP 2017-008147 A (株式会社ダイセル) 2017. 01. 12, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-13, 15
X	JP 2017-008145 A (株式会社ダイセル) 2017. 01. 12, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-13, 15
X	WO 2016/204014 A1 (株式会社ダイセル) 2016. 12. 22, 特許請求の範囲、実施例 & CN 107709400 A & KR 10-2018-0019090 A & TW 201710456 A	1-13, 15
X	JP 2008-179811 A (旭化成株式会社) 2008. 08. 07, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-13, 15