

(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
2020年7月2日(02.07.2020)



(10) 国際公開番号

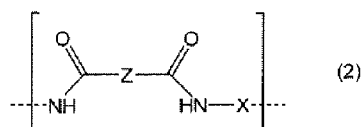
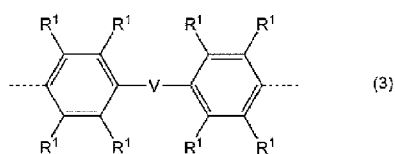
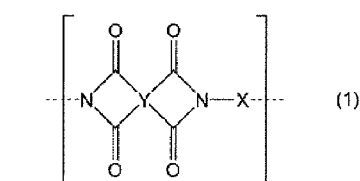
WO 2020/138043 A1

- (51) 国際特許分類:
C08G 73/14 (2006.01) *G02B 5/30* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2019/050539
- (22) 国際出願日: 2019年12月24日(24.12.2019)
- (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 2018-248565 2018年12月28日(28.12.2018) JP
特願 2019-019127 2019年2月5日(05.02.2019) JP
特願 2019-213442 2019年11月26日(26.11.2019) JP
特願 2019-218259 2019年12月2日(02.12.2019) JP
特願 2019-218184 2019年12月2日(02.12.2019) JP
特願 2019-218189 2019年12月2日(02.12.2019) JP
- (71) 出願人: 住友化学株式会社
(SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1048260 東京都中央区新川二丁目2番1号 Tokyo (JP).

- (72) 発明者: 増井 建太郎 (MASUI, Kentaro); 〒3003294 茨城県つくば市北原6番住友化学株式会社内 Ibaraki (JP). 宮本 皓史(MIYAMOTO, Koji); 〒5548558 大阪府大阪市此花区春日出中三丁目1番98号住友化学株式会社内 Osaka (JP). 金 成民(KIM, Seongmin); 〒5548558 大阪府大阪市此花区春日出中三丁目1番98号住友化学株式会社内 Osaka (JP). 池内 淳一(IKEUCHI, Junichi); 〒5548558 大阪府大阪市此花区春日出中三丁目1番98号住友化学株式会社内 Osaka (JP). 杉山 紘子(SUGIYAMA, Hiroko); 〒1048260 東京都中央区新川二丁目2番1号住友化学株式会社内 Tokyo (JP). 片ボラム(PYEON, Boram); 〒5548558 大阪府大阪市此花区春日出中三丁目1番98号住友化学株式会社内 Osaka (JP).
- (74) 代理人: 中山 亨, 外(NAKAYAMA, Tohru et al.); 〒5418550 大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号住友化学株式会社内 Osaka (JP).

(54) Title: POLYAMIDE-IMIDE-BASED RESIN, OPTICAL FILM AND FLEXIBLE DISPLAY DEVICE

(54) 発明の名称: ポリアミドイミド系樹脂、光学フィルム及びフレキシブル表示装置



(57) Abstract: Provided is a polyamide-imide-based resin with which an optical film having a high modulus of elasticity while maintaining a high light transmittance can be produced, and an optical film containing the resin. The polyamide-imide-based resin has at least a constituent unit represented by formula (1) and a constituent unit represented by formula (2). [In formula (1): Y represents an optionally substituted tetravalent aromatic group; and X represents a divalent organic group represented by formula (3)] [In formula (3): each of the R¹ symbols independently represents a hydrogen atom, an alkyl group having 1 to 6 carbons, an alkoxy group having 1 to 6 carbons, or an aryl group having 6 to 12 carbons; the hydrogen atoms contained in each R¹ may be substituted independently from one another by a halogen atom; V represents -O-, a diphenylmethylen group, a linear, branched or alicyclic divalent hydrocarbon group having 1 to 12 carbons, -SO₂-, -S-, -CO-, or -N(R¹²)₂-; the hydrogen atoms contained in the hydrocarbon group may be substituted independently from one another by a halogen atom; and R¹² represents a hydrogen atom, or an alkyl group having 1 to 12 carbons, optionally substituted with a halogen atom] [In formula (2): Z represents a divalent organic group; and X is as defined in the formula (1)].

(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, 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, 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: 高い光線透過率を維持しつつ、高い弾性率を有する光学フィルムを製造することが可能なポリアミドイミド系樹脂、及び、該樹脂を含む光学フィルムを提供する。式(1): [式(1)中、Yは、置換基を有していてもよい4価の芳香族基を表し、Xは、式(3): [式(3)中、R¹は、互いに独立に、水素原子、炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~6のアルコキシ基又は炭素数6~12のアリール基を表し、R¹に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよく、Vは、-O-、ジフェニルメチレン基、炭素数1~12の直鎖状、分枝状又は脂環式の2価の炭化水素基、-SO₂-, -S-, -CO-又は-N(R^{1 2})-を表し、ここで、該炭化水素基に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよく、R^{1 2}は、水素原子、又はハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数1~12のアルキル基を表す]で表される2価の有機基を表す]で表される構成単位、及び、式(2): [式(2)中、Zは2価の有機基を表し、Xは前記式(1)において定義した通りである]で表される構成単位を少なくとも有するポリアミドイミド系樹脂。

明 細 書

発明の名称：

ポリアミドイミド系樹脂、光学フィルム及びフレキシブル表示装置

技術分野

[0001] 本発明は、ポリアミドイミド系樹脂、該樹脂を含む光学フィルム、及び、該光学フィルムを備えるフレキシブル表示装置に関する。

背景技術

[0002] 現在、液晶表示装置や有機ＥＬ表示装置等の表示装置は、テレビのみならず、携帯電話やスマートウォッチといった種々の用途で広く活用されている。従来、このような表示装置の前面板としてはガラスが用いられてきた。しかし、ガラスは透明度が高く、種類によっては高硬度を発現できる反面、非常に剛直であり、割れやすいため、フレキシブル表示装置の前面板材料としての利用は難しい。

[0003] そのため、ガラスに代わる材料として高分子材料の活用が検討されている。高分子材料からなる前面板はフレキシブル特性を発現し易いため、種々の用途に用いることが期待される。柔軟性を有する高分子材料の１つとして、例えばポリアミドイミド系樹脂を用いる光学フィルムが検討されている（特許文献１及び２）。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献１：特表２０１５－５２１６８６号公報

特許文献２：特開２０１８－１１９１３２号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] ポリアミドイミド系樹脂を用いて製造される光学フィルムをフレキシブル表示装置等において使用する場合、屈曲や外部要因との接触に起因して、光学フィルムに傷、しわ等の欠陥が生じることがあった。このような欠陥の発

生を抑制する方法として、光学フィルムの弾性率を高めることが考えられるが、ポリアミドイミド系樹脂の種類によっては、得られる光学フィルムの弾性率を十分に高めることができない場合があった。

[0006] 従って本発明は、高い透過率を維持しつつ、高い弾性率を有する光学フィルムを製造することが可能なポリアミドイミド系樹脂、及び、該樹脂を含む光学フィルムを提供することを課題とする。

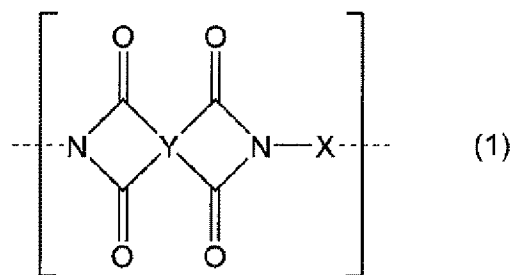
課題を解決するための手段

[0007] 本発明者らは、上記課題を解決すべく、光学フィルムに含まれるポリアミドイミド系樹脂を構成するモノマーの構造に着目し、鋭意検討を行った。その結果、特定の構成単位を少なくとも有するポリアミドイミド系樹脂が、高い透過率を維持しつつ、高い弾性率を有する光学フィルムを製造するに適していることを見出し、本発明を完成させるに至った。

[0008] すなわち、本発明は、以下の好適な態様を包含する。

[1] 式(1)：

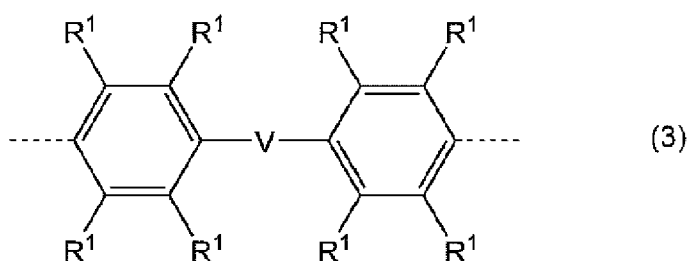
[0009] [化1]



[式(1)中、Yは、置換基を有していてもよい4価の芳香族基を表し、

Xは、式(3)：

[0010] [化2]



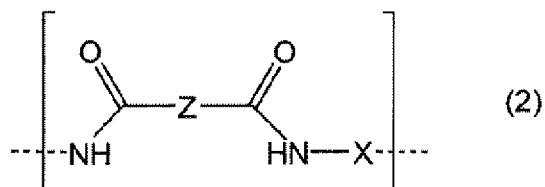
〔式（３）中、 R^1 は、互いに独立に、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基又は炭素数６～１２のアリール基を表し、 R^1 に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよく、

V は、 $-O-$ 、ジフェニルメチレン基、炭素数１～１２の直鎖状、分枝状又は脂環式の２価の炭化水素基、 $-SO_2-$ 、 $-S-$ 、 $-CO-$ 又は $-N(R^{12})-$ を表し、ここで、該炭化水素基に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよく、 R^{12} は、水素原子、又はハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～１２のアルキル基を表す]

で表される２価の有機基を表す]

で表される構成単位、及び、式（２）：

[0011] [化3]



〔式（２）中、 Z は２価の有機基を表し、

X は前記式（１）において定義した通りである]

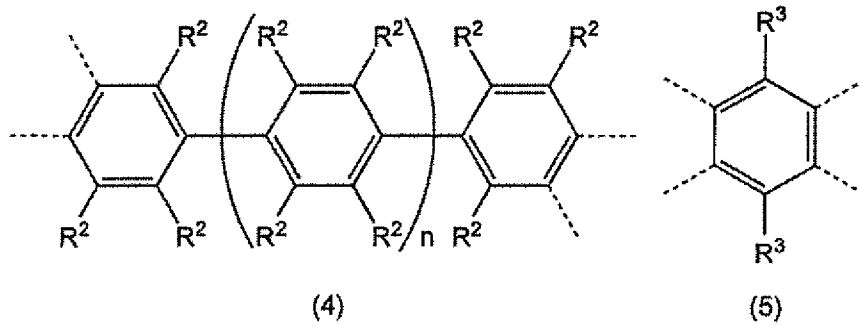
で表される構成単位を少なくとも有するポリアミドイミド系樹脂。

〔２〕式（３）中の V は炭素数１～１２の直鎖状、分枝状又は脂環式の２価の炭化水素基を表し、ここで、該炭化水素基に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよい、前記〔１〕に記載のポリアミドイミド系樹脂。

〔３〕式（１）で表される構成単位は、 Y として、式（４）で表される４価の芳香族基及び／又は式（５）で表される４価の芳香族基：

[0012]

[化4]



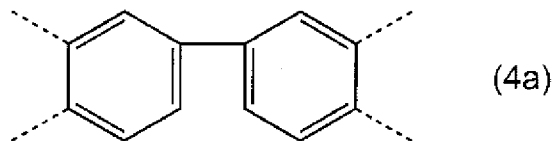
〔式（４）及び式（５）中、 R^2 及び R^3 は、互いに独立に、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基又は炭素数６～１２のアリール基を表し、 R^2 及び R^3 に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよく、

n は０～２の整数を表す〕

を含む、前記〔１〕又は〔２〕に記載のポリアミドイミド系樹脂。

〔４〕式（４）は式（４ａ）：

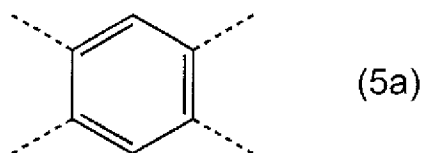
[0013] [化5]



で表される、前記〔３〕に記載のポリアミドイミド系樹脂。

〔５〕式（５）は式（５ａ）：

[0014] [化6]

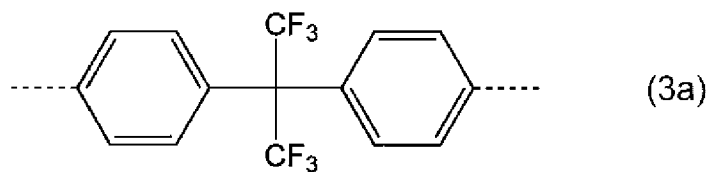


で表される、前記〔３〕に記載のポリアミドイミド系樹脂。

〔６〕式（３）は式（３ａ）：

[0015]

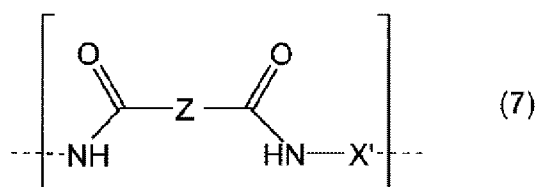
[化7]



で表される、前記〔1〕～〔5〕のいずれかに記載のポリアミドイミド系樹脂。

〔7〕ポリアミドイミド系樹脂は、少なくともZにおいて互いに異なる2種以上の式(2)で表される構成単位を有する、少なくともXにおいて互いに異なる2種以上の式(2)で表される構成単位を有する、及び／又は、式(7)：

[0016] [化8]



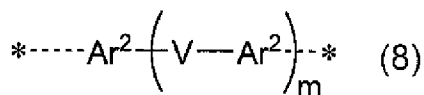
〔式(7)中、Zは式(1)において定義した通りであり、

X'は、式(2)中のXに該当しない2価の有機基を表す]

で表される構成単位をさらに有する、前記〔1〕～〔6〕のいずれかに記載のポリアミドイミド系樹脂。

〔8〕式(7)中のX'は式(8)：

[0017] [化9]



〔式(8)中、Ar²は置換基を有していてもよい2価の芳香族基を表し、

Vは、単結合を表し、mは0～3の整数を表し、*は結合手を表す]

で表される、前記〔7〕に記載のポリアミドイミド系樹脂。

〔9〕式(2)で表される構成単位及び式(7)で表される構成単位の合計

を100モル%としたときに、式(2)で表される構成単位の割合は1～50モル%である前記〔7〕又は〔8〕に記載のポリアミドイミド系樹脂。

〔10〕式(2)で表される構成単位は、Zとして、置換基を有していてもよい2価の芳香族基を含む、前記〔1〕～〔9〕のいずれかに記載のポリアミドイミド系樹脂。

〔11〕前記〔1〕～〔10〕のいずれかに記載のポリアミドイミド系樹脂を含む光学フィルム。

〔12〕前記〔11〕に記載の光学フィルムを備えるフレキシブル表示装置。

〔13〕タッチセンサをさらに備える、前記〔12〕に記載のフレキシブル表示装置。

〔14〕偏光板をさらに備える、前記〔12〕又は〔13〕に記載のフレキシブル表示装置。

発明の効果

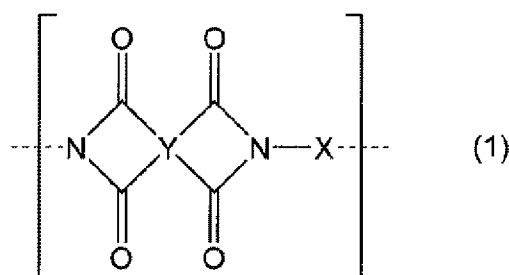
[0018] 本発明のポリアミドイミド系樹脂によれば、高い透過率を維持しつつ、高い弾性率を有する光学フィルムを提供することができる。また、本発明の光学フィルムは、高い透過率を維持しつつ、高い弾性率を有する。

発明を実施するための形態

[0019] 以下、本発明の実施の形態について詳細に説明する。なお、本発明の範囲はここで説明する実施の形態に限定されるものではなく、本発明の趣旨を逸脱しない範囲で種々の変更をすることができる。

[0020] 本発明のポリアミドイミド系樹脂は、式(1)：

[0021] [化10]

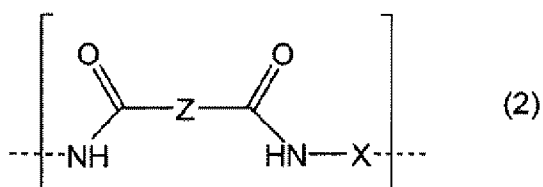


[式(1)中、Yは、置換基を有していてもよい4価の芳香族基を表し、

Xは、後述する式(3)で表される2価の有機基を表す]

で表される構成単位、及び、式(2)：

[0022] [化11]



[式(2)中、Zは2価の有機基を表し、

Xは式(1)において定義した通りである]

で表される構成単位を少なくとも有する。式(1)で表される構成単位は、テトラカルボン酸化合物とジアミン化合物とが反応して形成される構成単位であり、式(2)で表される構成単位は、ジカルボン酸化合物とジアミン化合物とが反応して形成される構成単位である。本発明のポリアミドイミド系樹脂は、式(1)で表される1種類の構成単位を有していてもよいし、式(1)で表される2種類以上の構成単位を有していてもよい。同様に、該ポリアミドイミド系樹脂は、式(2)で表される1種類の構成単位を有していてもよいし、式(2)で表される2種類以上の構成単位を有していてもよい。なお、該ポリアミドイミド系樹脂は、式(1)で表される構成単位にも式(2)で表される構成単位にも該当しない、さらなる構成単位を含んでいてもよい。本明細書において、式(1)で表される構成単位を「構成単位(1)」とも称し、式(2)で表される構成単位を「構成単位(2)」とも称する。なお、式(1)及び式(2)中、点線で表される結合は、隣接する構成単位と結合する結合手を表す。本明細書において、他の化学構造式中の点線で表される結合も、同様に、隣接する構成単位又は基と結合する結合手を表す。

[0023] 上記のような構成単位(1)及び構成単位(2)を有するポリアミドイミド系樹脂を用いて光学フィルムを製造した場合、高い弾性率及び光線透過率

を有する光学フィルムが得られる。その理由は明らかではないが、ポリアミドイミド系樹脂が構成単位（１）及び構成単位（２）を有する場合、構成単位（１）中のテトラカルボン酸に由来する構造部分においては、ポリアミドイミド系樹脂が剛直性を有し、かつ、構成単位（１）及び構成単位（２）中のジアミンに由来する構造部分においては、ポリアミドイミド系樹脂が柔軟性を有することとなり、分子間の相互作用を低減することとなる。ポリアミドイミド系樹脂がこのような構造を有する場合、驚くべきことに、かかるポリアミドイミド系樹脂を含む光学フィルムの弾性率を向上させやすく、また、光線透過率も向上させやすいことがわかった。

[0024] 本発明のポリアミドイミド系樹脂は、構成単位（１）及び構成単位（２）を有する。光学フィルムの弾性率及び光線透過率を向上させやすい観点からは、ポリアミドイミド系樹脂に含まれる構成単位（１）及び構成単位（２）の合計を１００モル%としたときに、構成単位（１）の割合は、好ましくは５～９０モル%、より好ましくは１０～８０モル%、さらに好ましくは２０～８０モル%、とりわけ好ましくは３０～７０モル%である。構成単位（１）の割合が上記の下限以上である場合、光学フィルムの弾性率を向上させやすい。また、構成単位（１）の割合が上記の上限以下である場合、光線透過率を向上させやすい。なお、構成単位（１）及び構成単位（２）の含有量は、例えば $^1\text{H-NMR}$ を用いて測定することができ、又は原料の仕込み比から算出することもできる。

[0025] ポリアミドイミド系樹脂において、式（１）で表される構成単位の含有量は、式（２）で表される構成単位１モルに対して、好ましくは０．１モル以上、より好ましくは０．２モル以上、さらに好ましくは０．３モル以上であり、好ましくは５モル以下、より好ましくは３モル以下、さらに好ましくは２モル以下、とりわけ好ましくは１モル以下である。式（１）で表される構成単位の含有量が上記の下限以上であると、光学フィルムの弾性率を向上させやすい。また、式（１）で表される構成単位の含有量が上記の上限以下であると、式（２）中のアミド結合間の水素結合による増粘を抑制し、光学フ

ィルムの加工性を向上させやすい。

- [0026] 式(1)中のYは、置換基を有していてもよい4価の芳香族基を表す。なお、本明細書において4価の芳香族基とは、単環式芳香族環、縮合多環式芳香族環又は環集合芳香族環の4つの水素原子が結合手に置き換わった基であり、好ましくは単環式芳香族環、縮合多環式芳香族環又は環集合芳香族環において、互いに隣接する2個の水素原子と、該水素原子とは別の互いに隣接する2個の水素原子との合計4つの水素原子が結合手に置き換わった基である。4価の芳香族基は、炭素原子のみで環(単環、縮合多環又は環集合)が形成された芳香族環を含んでいてもよいし、炭素原子以外の原子を含んで環が形成されたヘテロ芳香族環を含んでいてもよい。炭素原子以外の原子としては、例えば窒素原子、硫黄原子及び酸素原子が挙げられる。芳香族環を形成する炭素原子及び炭素原子以外の原子の合計数は、特に限定されないが、好ましくは5～18、より好ましくは5～14、さらに好ましくは5～13である。
- [0027] 単環式芳香族環としては、例えばベンゼン、フラン、ピロール、チオフェン、ピリジン、イミダゾール、ピラゾール、オキサゾール、チアゾール、イミダゾリン等が挙げられる。
- [0028] 縮合多環式芳香族環としては、例えばナフタレン、アントラセン、フェナントレン、インドール、ベンゾチアゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾイミダゾール等が挙げられる。
- [0029] 環集合芳香族環としては、2以上の単環式芳香族環及び／又は縮合多環式芳香族環が単結合で連結された構造が挙げられ、その例としては、単環式芳香族環又は縮合多環式芳香族環の例として上記に記載する環の2以上が単結合で連結された基、例えばビフェニル、テルフェニル、クアテルフェニル、ビナフチル、1-フェニルナフタレン、2-フェニルナフタレン、ビピリジン等が挙げられる。
- [0030] 光学フィルムの弾性率及び光線透過率を向上させやすい観点からは、置換基を有していてもよい4価の芳香族基は、好ましくは芳香族炭化水素環の4

つの水素原子が結合手に置き換わった基、より好ましくはベンゼン、ビフェニル、テルフェニル又はクアテルフェニルの4つの水素原子が結合手に置き換わった基、さらに好ましくはベンゼン又はビフェニルの4つの水素原子が結合手に置き換わった基である。

[0031] 式(1)中のYで表される4価の芳香族基は置換基を有していてもよい。置換基としては、例えば、(i)炭素数1~12のアルキル基、(ii)炭素数1~12のアルコキシ基、(iii)炭素数6~12のアリール基、(iv)炭素数6~12のアリールオキシ基、(v)炭素数1~12のカルボニル基、(vi)炭素数1~12のオキシカルボニル基、又は、(vii)ハロゲノ基が挙げられる。なお、上記の置換基に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子、炭素数1~4のアルキル基、炭素数1~4のアルコキシ基、水酸基、又は、カルボキシル基でさらに置換されていてもよい。式(1)中のYで表される4価の芳香族基は、少なくとも1種類の上記(i)~(vii)の置換基、及び/又は上記(i)~(vii)の置換基に含まれる水素原子が、互いに独立に、ハロゲン原子、炭素数1~4のアルキル基、炭素数1~4のアルコキシ基、水酸基、又は、カルボキシル基でさらに置換された基を有していてもよいし、置換基を有していなくてもよい。高い弾性率及を有する光学フィルムを製造しやすい観点からは、式(1)中のYで表される4価の芳香族基は置換基を有さないことが好ましい。

[0032] (i)炭素数1~12のアルキル基としては、炭素数1~12の直鎖状、分枝状又は脂環式のアルキル基が挙げられる。炭素数1~12の直鎖状、分枝状又は脂環式のアルキル基としては、例えばメチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、2-メチルブチル基、3-メチルブチル基、2-エチルプロピル基、n-ヘキシル、n-ヘプチル基、n-オクチル基、tert-オクチル基、n-ノニル基、n-デシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。炭素数1~12のアルキル基は、直鎖状のアルキル基、分枝状のアルキル基、又は、脂環式炭化水素構造を含む脂

環式のアルキル基であってよい。炭素数 1 ～ 12 のアルキル基の炭素数は、好ましくは 1 ～ 6、より好ましくは 1 ～ 4、さらに好ましくは 1 ～ 3 である。上記の炭素数 1 ～ 12 のアルキル基は、少なくとも 1 つの水素原子が、互いに独立に、ハロゲン原子、炭素数 1 ～ 4 のアルキル基、炭素数 1 ～ 4 のアルコキシ基、水酸基、又は、カルボキシル基で置換された基であってもよい。ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が挙げられる。ここで、炭素数 1 ～ 12 のアルキル基が、炭素原子を含む置換基（例えば炭素数 1 ～ 4 のアルキル基）で置換されている場合、当該置換基に含まれる炭素原子の数は、炭素数 1 ～ 12 のアルキル基の炭素数には含まない。例えば上記の炭素数 1 ～ 12 のアルキル基が、炭素数 1 ～ 4 のアルキル基で置換された基は、炭素数 1 ～ 12 のアルキル基を主鎖とし、該アルキル基の少なくとも 1 つの水素原子が炭素数 1 ～ 4 のアルキル基で置換された基である。主鎖となるアルキル基部分の炭素数が 1 ～ 12 であれば、アルキル基全体としての炭素数は 12 を超えていてもよい。なお、アルキル基全体としての炭素原子の数が 12 を超えない基の場合、炭素数 1 ～ 12 のアルキル基が炭素数 1 ～ 4 のアルキル基で置換された基は、炭素数 1 ～ 12 の分枝状のアルキル基の定義にも包含される基である。

[0033] (i i) 炭素数 1 ～ 12 のアルコキシ基としては、例えばメトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、*n*-ブトキシ基、イソブトキシ基、*tert*-ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、ヘプチルオキシ基、オクチルオキシ基、ノニルオキシ基及びデシルオキシ基等が挙げられる。炭素数 1 ～ 12 のアルコキシ基におけるアルキル基部分及び／又はアルキレン基部分は、直鎖状、分枝状、又は、脂環式のいずれであってもよい。炭素数 1 ～ 12 のアルコキシ基の炭素数は、好ましくは 1 ～ 6、より好ましくは 1 ～ 4、さらに好ましくは 1 ～ 3 である。上記の炭素数 1 ～ 12 のアルコキシ基は、少なくとも 1 つの水素原子が、互いに独立に、ハロゲン原子、炭素数 1 ～ 4 のアルキル基、炭素数 1 ～ 4 のアルコキシ基、水酸基、又は、カルボキシル基で置換された基

であってもよい。ハロゲン原子としては、上記に記載した原子が挙げられる。ここで、炭素数 1 ～ 12 のアルコキシ基が炭素原子を含む置換基で置換されている場合、当該置換基に含まれる炭素原子の数は、炭素数 1 ～ 12 のアルコキシ基の炭素数には含めない。

[0034] (i i i) 炭素数 6 ～ 12 のアリール基としては、例えばフェニル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、ビフェニル基等が挙げられる。炭素数 6 ～ 12 のアリール基の炭素数は、好ましくは 6 又は 10 又は 12 である。上記の炭素数 6 ～ 12 のアリール基は、少なくとも 1 つの水素原子が、互いに独立に、ハロゲン原子、炭素数 1 ～ 4 のアルキル基、炭素数 1 ～ 4 のアルコキシ基、水酸基、又は、カルボキシル基で置換された基であってもよい。ハロゲン原子としては、上記に記載した原子が挙げられる。ここで、炭素数 6 ～ 12 のアリール基が炭素原子を含む置換基で置換されている場合、当該置換基に含まれる炭素原子の数は、炭素数 6 ～ 12 のアリール基の炭素数には含めない。

[0035] (i v) 炭素数 6 ～ 12 のアリールオキシ基としては、フェノキシ基、トリルオキシ基、キシリルオキシ基、ナフチルオキシ基、ビフェニルオキシ基等が挙げられる。炭素数 6 ～ 12 のアリールオキシ基の炭素数は、好ましくは 6 又は 10 又は 12 である。上記の炭素数 6 ～ 12 のアリールオキシ基は、少なくとも 1 つの水素原子が、互いに独立に、ハロゲン原子、炭素数 1 ～ 4 のアルキル基、炭素数 1 ～ 4 のアルコキシ基、水酸基、又は、カルボキシル基で置換された基であってもよい。ハロゲン原子としては、上記に記載した原子が挙げられる。ここで、炭素数 6 ～ 12 のアリールオキシ基が炭素原子を含む置換基で置換されている場合、当該置換基に含まれる炭素原子の数は、炭素数 6 ～ 12 のアリールオキシ基の炭素数には含めない。

[0036] (v) 炭素数 1 ～ 12 のカルボニル基は、 $*-C(=O)-R^a$ 又は $*-R^b-C(=O)-R^a$ で表される基である。 R^a としては、(i) 炭素数 1 ～ 12 のアルキル基について記載した基が挙げられ、 R^b としては、(i) 炭素数 1 ～ 12 のアルキル基について記載した基の少なくとも 1 つの水素原子が結合手に置き

換わった、炭素数 1 ～ 12 の 2 価のアルキレン基が挙げられる。上記の炭素数 1 ～ 12 のカルボニル基は、少なくとも 1 つの水素原子が、互いに独立に、ハロゲン原子、炭素数 1 ～ 4 のアルキル基、炭素数 1 ～ 4 のアルコキシ基、水酸基、又は、カルボキシル基で置換された基であってもよい。ハロゲン原子としては、上記に記載した原子が挙げられる。ここで、炭素数 1 ～ 12 のカルボニル基が炭素原子を含む置換基で置換されている場合、当該置換基に含まれる炭素原子の数は、炭素数 1 ～ 12 のカルボニル基の炭素数には含まない。

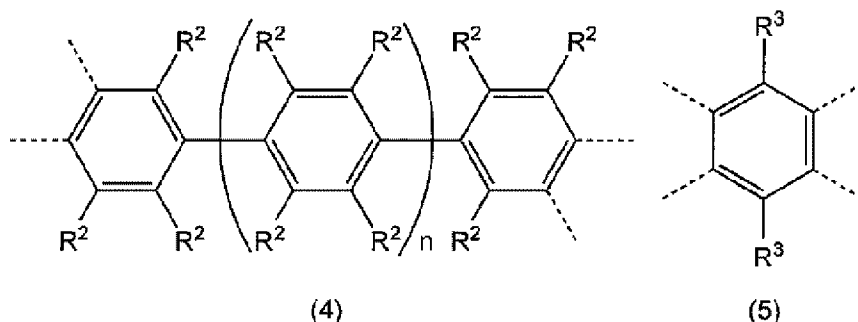
[0037] (v i) 炭素数 1 ～ 12 のオキシカルボニル基は、 $*-CO-O-R^a$ 、 $*-R^b-CO-O-R^a$ 、 $*-O-CO-R^a$ 、又は、 $-R^b-O-CO-R^a$ で表される基である。 R^a としては、(i) 炭素数 1 ～ 12 のアルキル基について記載した基が挙げられ、 R^b としては、(i) 炭素数 1 ～ 12 のアルキル基について記載した基の少なくとも 1 つの水素原子が結合手に置き換わった、炭素数 1 ～ 12 の 2 価のアルキレン基が挙げられる。上記の炭素数 1 ～ 12 のオキシカルボニル基は、少なくとも 1 つの水素原子が、互いに独立に、ハロゲン原子、炭素数 1 ～ 4 のアルキル基、炭素数 1 ～ 4 のアルコキシ基、水酸基、又は、カルボキシル基で置換された基であってもよい。ハロゲン原子としては、上記に記載した原子が挙げられる。ここで、炭素数 1 ～ 12 のオキシカルボニル基が炭素原子を含む置換基で置換されている場合、当該置換基に含まれる炭素原子の数は、炭素数 1 ～ 12 のオキシカルボニル基の炭素数には含まない。

[0038] (v i i) ハロゲノ基としては、フルオロ基、クロロ基、ブロモ基又はヨード基が挙げられる。

[0039] 本発明の好ましい一態様において、ポリアミドイミド系樹脂に含まれる構成単位 (1) は、Y として、式 (4) で表される 4 価の芳香族基及び／又は式 (5) で表される 4 価の芳香族基：

[0040]

[化12]



〔式（４）及び式（５）中、 R^2 及び R^3 は、互いに独立に、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基又は炭素数６～１２のアリール基を表し、

R^2 及び R^3 に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよく、

n は０～２の整数を表す〕

を含む。構成単位（１）が、 Y として、式（４）で表される４価の芳香族基及び／又は式（５）で表される４価の芳香族基を含む場合、ポリアミドイミド系樹脂を用いて製造した光学フィルムの弾性率及び光線透過率を高めやすい。ポリアミドイミド系樹脂における構成単位（１）が、 Y として、式（４）で表される４価の芳香族基及び／又は式（５）で表される４価の芳香族基を含む場合、ポリアミドイミド系樹脂は、 Y として式（４）で表される１種類の４価の芳香族を含む構成単位を含んでいてもよいし、 Y として式（４）で表される２種類以上の４価の芳香族を含む構成単位を含んでいてもよい。また、ポリアミドイミド系樹脂は、 Y として式（５）で表される１種類の４価の芳香族を含む構成単位を含んでいてもよいし、 Y として式（５）で表される２種類以上の４価の芳香族を含む構成単位を含んでいてもよい。さらに、ポリアミドイミド系樹脂は、 Y として、式（４）で表される１種類以上の４価の芳香族基を含む構成単位と、式（５）で表される１種以上の４価の芳香族を含む構成単位の、両方を含んでいてもよい。なお、ポリアミドイミド系樹脂は、 Y として式（４）にも式（５）にも該当しない芳香族基を有する

構成単位（１）をさらに含んでもよい。

[0041] 本発明のポリアミドイミド系樹脂は、上記のように構成単位（１）及び構成単位（２）を少なくとも有し、該樹脂は通常、複数個の構成単位（１）、複数個の構成単位（２）及び任意に他の構成単位を有している。本明細書において、構成単位（１）が、Ｙとして式（４）で表される４価の芳香族基を含むとは、ポリアミドイミド系樹脂が有する複数の構成単位（１）において、少なくとも一部の構成単位（１）中のＹが式（４）で表されることを意味する。上記の記載は、本明細書中の同様の他の記載にも当てはまる。

[0042] 本発明のポリアミドイミド系樹脂に含まれる構成単位（１）が、Ｙとして、式（４）で表される４価の芳香族基及び／又は式（５）で表される４価の芳香族基を含む本発明の好ましい一態様において、光学フィルムの弾性率を向上させやすい観点から、ポリアミドイミド系樹脂に含まれる構成単位（１）の合計を１００モル％としたときに、式（１）中のＹが式（４）で表される４価の芳香族基である構成単位及び式（１）中のＹが式（５）で表される４価の芳香族基である構成単位の合計の割合は、好ましくは７０～１００モル％、より好ましくは８０～１００モル％、さらに好ましくは９０～１００モル％であり、式（１）で表される全構成単位において、Ｙが、式（４）で表される４価の芳香族基及び／又は式（５）で表される４価の芳香族基であってもよい。得られる光学フィルムの表面硬度（鉛筆硬度）を高めやすい観点からは、式（１）で表される構成単位が、Ｙとして、式（４）で表される４価の芳香族基を含むことが好ましい。構成単位（１）、並びに、Ｙが式（４）又は式（５）で表される４価の芳香族基である構成単位（１）の含有量は、例えば¹H-NMRを用いて測定することができ、又は原料の仕込み比から算出することもできる。なお、上記の記載は、構成単位（１）中のＹが、後述する式（４a）で表される４価の芳香族基及び／又は式（５a）で表される４価の芳香族基である場合にも同様に当てはまる。

[0043] 式（４）及び式（５）中の R^2 及び R^3 は、互いに独立に、少なくとも１種類の上記（i）～（vii）の置換基、及び／又は上記（i）～（vii）

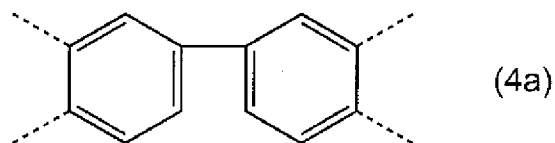
の置換基に含まれる水素原子が、互いに独立に、ハロゲン原子、炭素数 1 ～ 4 のアルキル基、炭素数 1 ～ 4 のアルコキシ基、水酸基、又は、カルボキシル基でさらに置換された基を表していてもよい。本発明の好ましい一態様において、式 (4) 及び式 (5) 中の R^2 及び R^3 は、互いに独立に、水素原子、炭素数 1 ～ 6 のアルキル基、炭素数 1 ～ 6 のアルコキシ基又は炭素数 6 ～ 12 のアリール基を表し、 R^2 及び R^3 に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよい。 R^2 及び／又は R^3 が炭素数 1 ～ 6 のアルキル基を表す場合、該基としては、4 価の芳香族基が有していてもよい置換基として上記に述べた (i) 炭素数 1 ～ 12 のアルキル基について記載した基のうち、炭素数が 1 ～ 6 である基が挙げられる。 R^2 及び／又は R^3 が炭素数 1 ～ 6 のアルコキシ基を表す場合、該基としては、4 価の芳香族基が有していてもよい置換基として上記に述べた (i i) 炭素数 1 ～ 12 のアルコキシ基について記載した基のうち、炭素数が 1 ～ 6 である基が挙げられる。 R^2 及び／又は R^3 が炭素数 6 ～ 12 のアリール基を表す場合、該基としては、4 価の芳香族基が有していてもよい置換基として上記に述べた (i i i) 炭素数 6 ～ 12 のアリール基について記載した基が挙げられる。 R^2 及び／又は R^3 が水素原子、又は、上記の基である場合、 R^2 及び／又は R^3 に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよい。本発明の好ましい一態様において、ポリアミドイミド系樹脂を用いて得られる光学フィルムの弾性率を高めやすい観点からは、 R^2 及び R^3 は水素原子であることが好ましい。

[0044] 式 (4) 中の n は 0 ～ 2 の整数を表し、ポリアミドイミド系樹脂を用いて得られる光学フィルムの弾性率を高めやすい観点から、好ましくは 0 又は 1、より好ましくは 0 である。

[0045] 本発明の好ましい一態様において、光学フィルムの弾性率及び光線透過率を高めやすい観点から、上記式 (4) は、式 (4 a) :

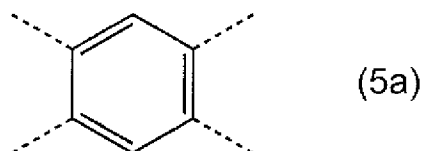
[0046]

[化13]



で表され、及び／又は、上記式（５）は、式（５a）：

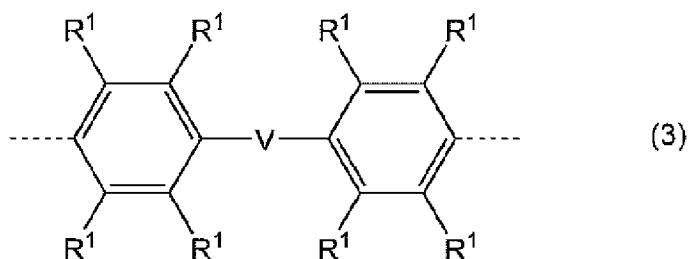
[0047] [化14]



で表される。なお、式（４a）は、式（４）中の R^2 が水素原子であり、かつ、 n が０である芳香族基に相当し、式（５a）は、式（５）中の R^3 が水素原子である芳香族基に相当する。

[0048] 式（１）及び式（２）中の X は、式（３）：

[0049] [化15]



〔式（３）中、 R^1 は、互いに独立に、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基又は炭素数６～１２のアリール基を表し、

R^1 に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよく、

V は、 $-O-$ 、ジフェニルメチレン基、炭素数１～１２の直鎖状、分枝状又は脂環式の２価の炭化水素基、 $-SO_2-$ 、 $-S-$ 、 $-CO-$ 又は $-N(R^{12})-$ を表し、ここで、該炭化水素基に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよく、

R^{12} は、水素原子、又はハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～

12のアルキル基を表す]

で表される2価の有機基である。

[0050] R¹は、互いに独立に、水素原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基又は炭素数6～12のアリール基を表し、R¹に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよい。R¹が炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基又は炭素数6～12のアリール基を表す場合、炭素数1～6のアルキル基としては、4価の芳香族基が有していてもよい置換基として上記に述べた(i)炭素数1～12のアルキル基について記載した基のうち、炭素数が1～6である基が挙げられ、炭素数1～6のアルコキシ基としては、(ii)炭素数1～12のアルコキシ基について記載した基のうち、炭素数が1～6である基が挙げられ、炭素数6～12のアリール基としては、(iii)炭素数6～12のアリール基に記載した基が挙げられる。

[0051] 式(3)中のVは、-O-、ジフェニルメチレン基、炭素数1～12の直鎖状、分枝状又は脂環式の2価の炭化水素基、-SO₂-、-S-、-CO-又は-N(R¹²)-を表し、ここで、該炭化水素基に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよく、R¹²は、水素原子、又はハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数1～12のアルキル基を表す。炭素数1～12の直鎖状、分枝状又は脂環式のアルキル基としては、式(1)中のR¹の(i)炭素数1～12のアルキル基について記載した基が挙げられる。

[0052] 本発明の好ましい一態様において、式(3)中のVは、好ましくは、-O-、ジフェニルメチレン基、炭素数1～12の直鎖状、分枝状又は脂環式の2価の炭化水素基、又は、炭素数1～12の2価の炭化水素基に含まれる水素原子がハロゲン原子で置換された基を表し、より好ましくは炭素数1～12の2価の炭化水素基、又は、炭素数1～12の2価の炭化水素基に含まれる水素原子がハロゲン原子で置換された基を表す。

[0053] 式(3)中のVに関し、炭素数1～12の直鎖状、分枝状又は脂環式の2

価の炭化水素基としては、炭素数 1 ～ 12 の直鎖状、分枝状又は脂環式のア
ルキル基の少なくとも 1 つの水素原子が結合手に置き換わった基が挙げられ
る。なお、かかる炭素数 1 ～ 12 の直鎖状、分枝状又は脂環式のア
ルキル基としては、例えばメチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、
n-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、*n*-ペンチル基、
2-メチルブチル基、3-メチルブチル基、2-エチルプロピル基、*n*-
ヘキシル、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、*tert*-オクチル基、*n*-
ノニル基、*n*-デシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げ
られる。炭素数 1 ～ 12 の 2 価の炭化水素基は、直鎖状のア
ルキレン基、分
枝状のア
ルキレン基、又は、脂環式炭化水素構造を含む脂環式のア
ルキレン
基であってよい。炭素数 1 ～ 12 の 2 価の炭化水素基の炭素数は、好ましく
は 1 ～ 6、より好ましくは 1 ～ 4、さらに好ましくは 1 ～ 3 である。上記の
炭素数 1 ～ 12 の 2 価の炭化水素基は、少なくとも 1 つの水素原子が、互い
に独立に、ハロゲン原子で置換された基であってもよい。ハロゲン原子とし
ては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が挙げられる。

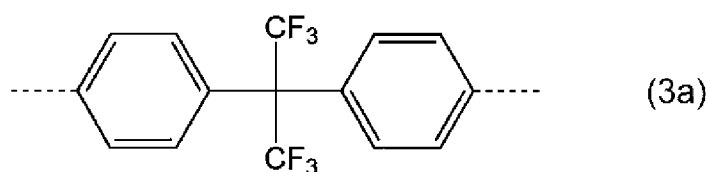
[0054] 式 (3) 中の V は、さらに好ましくは炭素数 1 ～ 12 の直鎖状、分枝状又
は脂環式のア
ルキレン基の少なくとも 1 つの水素原子がハロゲン原子（好ま
しくはフッ素原子）で置換された基（好ましくは炭素数 1 ～ 12 のフルオロ
アルキレン基）であり、さらにより好ましくは炭素数 1 ～ 12 の直鎖状、分
枝状又は脂環式のア
ルキレン基の全ての水素原子がハロゲン原子（好ましく
はフッ素原子）で置換された基（好ましくは炭素数 1 ～ 12 のパーフルオロ
アルキレン基、とりわけ好ましくはジトリフルオロメチルメチレン基）であ
る。

[0055] 本発明の好ましい一態様において、式 (1) 及び式 (2) 中の X は、式 (3)
中の R¹ が水素原子であり、かつ、V が、好ましくは炭素数 1 ～ 12 の直
鎖状、分枝状若しくは脂環式の 2 価の炭化水素基の少なくとも 1 つの水素原
子がハロゲン原子（好ましくはフッ素原子）で置換された基（好ましくは炭
素数 1 ～ 12 のフルオロアルキレン基）、より好ましくは炭素数 1 ～ 12 の

直鎖状、分枝状若しくは脂環式の２価の炭化水素基の全ての水素原子がハロゲン原子（好ましくはフッ素原子）で置換された基（好ましくは炭素数１～１２のパーフルオロアルキレン基、さらに好ましくはジトリフルオロメチルメチレン基）である、式（３）で表される２価の有機基であることが好ましい。

[0056] 本発明の好ましい一態様において、ポリアミドイミド系樹脂を用いて得られる光学フィルムの加工性及び光線透過率を向上させやすい観点から、式（３）は式（３a）：

[0057] [化16]

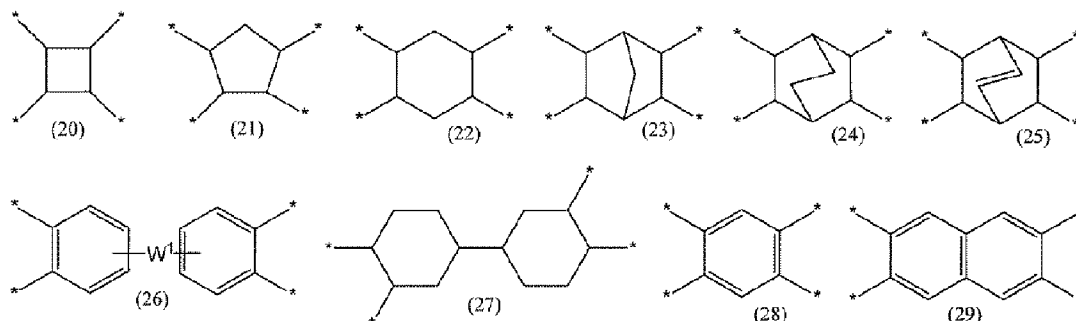


で表される。本発明のポリアミドイミド系樹脂に含まれる構成単位（１）及び構成単位（２）が、Xとして、式（３a）で表される２価の有機基を含む場合、ポリアミドイミド系樹脂に含まれる構成単位（１）及び構成単位（２）の合計を１００モル%としたときに、式（１）中のXが式（３a）で表される構成単位及び式（２）中のXが式（３a）で表される構成単位の合計の割合は、光学フィルムの加工性及び光線透過率を向上させやすい観点から、好ましくは１～５０モル%、より好ましくは３～４０モル%、さらに好ましくは５～３０モル%である。構成単位（１）及び構成単位（２）、並びに、Xが式（３a）で表される構成単位（１）及び構成単位（２）の含有量は、例えば¹H-NMRを用いて測定することができ、又は原料の仕込み比から算出することもできる。

[0058] 式（２）中のZは、２価の有機基であり、好ましくは、炭素数１～８の炭化水素基又はフッ素置換された炭素数１～８の炭化水素基で置換されていてもよい、炭素数４～４０の２価の有機基であり、より好ましくは、炭素数１～８の炭化水素基又はフッ素置換された炭素数１～８の炭化水素基で置換されていてもよい、環状構造を有する炭素数４～４０の２価の有機基である。

環状構造としては、脂環、芳香環、ヘテロ環構造が挙げられる。Zとしては、式(20)、式(21)、式(22)、式(23)、式(24)、式(25)、式(26)、式(27)、式(28)及び式(29)：

[0059] [化17]



で表される基の結合手のうち、隣接しない2つが水素原子に置き換わった2価の有機基及び炭素数6以下の2価の鎖式炭化水素基が例示され、Zのヘテロ環構造としてはチオフェン環骨格を有する2価の有機基が例示される。光学積層体の黄色度（以下、YI値とも称する）を低減しやすい観点から、式(20)～式(29)で表される基の結合手のうち、隣接しない2つが水素原子に置き換わった2価の有機基、及び、チオフェン環骨格を有する2価の有機基が好ましい。

[0060] 式(20)～式(29)中、*は結合手を表し、

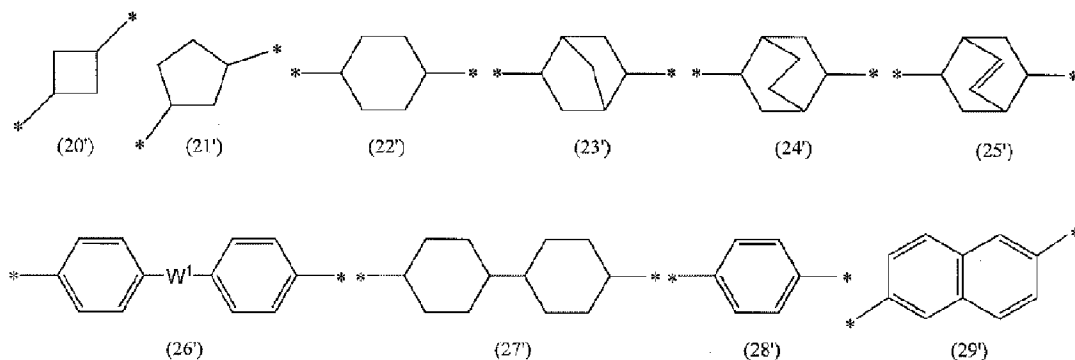
W¹は、単結合、 $-O-$ 、 $-CH_2-$ 、 $-CH_2-CH_2-$ 、 $-CH(CH_3)-$ 、 $-C(CH_3)_2-$ 、 $-C(CF_3)_2-$ 、 $-Ar-$ 、 $-SO_2-$ 、 $-CO-$ 、 $-O-Ar-O-$ 、 $-Ar-O-Ar-$ 、 $-Ar-CH_2-Ar-$ 、 $-Ar-C(CH_3)_2-Ar-$ 又は $-Ar-SO_2-Ar-$ を表す。

Arは、水素原子がフッ素原子で置換されていてもよい炭素数6～20のアリーレン基を表し、具体例としてはフェニレン基が挙げられる。

[0061] 式(2)中のZの2価の有機基としては、式(20')、式(21')、式(22')、式(23')、式(24')、式(25')、式(26')、式(27')、式(28')及び式(29')：

[0062]

[化18]

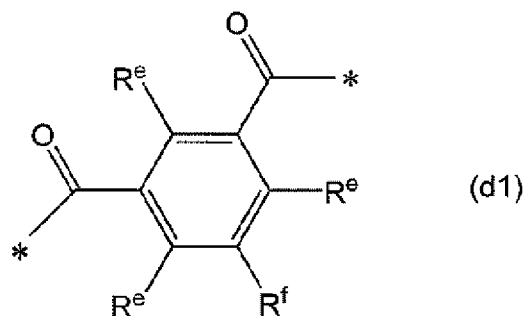


〔式(20')～式(29')中、 W^1 及び*は、式(20)～式(29)において定義する通りである〕

で表される2価の有機基がより好ましい。なお、式(20)～式(29)及び式(20')～式(29')における環上の水素原子は、炭素数1～8の炭化水素基、フッ素置換された炭素数1～8の炭化水素基、炭素数1～6のアルコキシ基、フッ素置換された炭素数1～6のアルコキシ基で置換されていてもよい。

[0063] ポリアミドイミド系樹脂が、式(2)中のZが上記の式(20')～式(29')のいずれかで表される構成単位を有する場合、中でも式(2)中のZが後述する式(6)で表される構成単位を有する場合、ポリアミドイミド系樹脂は、該構成単位に加えて、次の式(d1)：

[0064] [化19]



〔式(d1)中、 R^e は、互いに独立に、水素原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基又は炭素数6～12のアリール基を表し、

R^f は、 R^e 又は $-C(=O)-*$ を表し、 $*$ は結合手を表す]

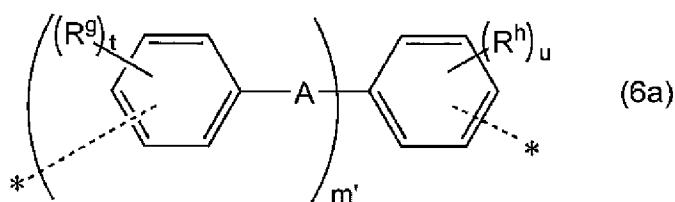
で表されるカルボン酸由来の構成単位をさらに有することが、ワニスの成膜性を高めやすく、光学フィルムの均一性を得やすい観点から好ましい。

[0065] R^e において、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基及び炭素数6～12のアリール基としては、それぞれ、式(6)中の $R^4 \sim R^{11}$ における炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基又は炭素数6～12のアリール基として例示のものが挙げられる。構成単位(d1)としては、具体的には、 R^e 及び R^f がいずれも水素原子である構成単位(ジカルボン酸化合物に由来する構成単位)、 R^e がいずれも水素原子であり、 R^f が $-C(=O)-*$ を表す構成単位(トリカルボン酸化合物に由来する構成単位)等が挙げられる。

[0066] 本発明の一実施形態において、ポリアミドイミド系樹脂は、式(2)中のZとして、1種類の2価の有機基を含んでいてもよいし、2種以上の2価の有機基を含んでいてもよい。ポリアミドイミド系樹脂が、式(2)中のZとして、2種以上の2価の有機基を含む場合、該2価の有機基は互いに同一であってもよいし、異なってもよい。

[0067] 本発明の一実施形態において、ポリアミドイミド系樹脂は、本発明のポリアミドイミド系樹脂を用いて製造した光学フィルムの表面硬度を高めやすい観点及び光学特性を向上させやすい観点から、式(2)中のZとして、式(6a)：

[0068] [化20]



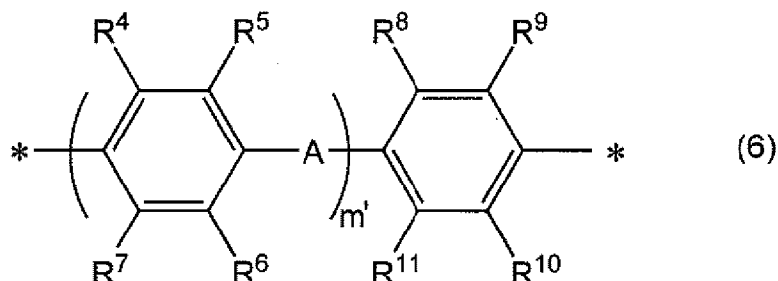
[式(6a)中、 R^g 及び R^h は、互いに独立に、ハロゲン原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、又は炭素数6～12のアリール基を表し、

A、 m' 及び*は式（6）中のA、 m' 及び*と同じであり、

t 及びuは互いに独立に0～4の整数である]

で表される2価の有機基を含むことが好ましく、式（6）：

[0069] [化21]



[式（6）中、 $R^4 \sim R^{11}$ は、互いに独立に、水素原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、又は炭素数6～12のアリール基を表し、

$R^4 \sim R^{11}$ に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよく、

Aは、互いに独立に、単結合、 $-O-$ 、 $-CH_2-$ 、 $-CH_2-CH_2-$ 、 $-CH(CH_3)-$ 、 $-C(CH_3)_2-$ 、 $-C(CF_3)_2-$ 、 $-SO_2-$ 、 $-S-$ 、 $-CO-$ 又は $-N(R^{12})-$ を表し、

R^{12} は水素原子、ハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数1～12の1価の炭化水素基を表し、

m' は0～4の整数であり、

*は結合手を表す]

で表される2価の有機基を含むことがより好ましい。

[0070] 式（6a）において、各ベンゼン環の結合手は、 $-A-$ を基準に、オルト位、メタ位又はパラ位のいずれに結合していてもよく、好ましくはメタ位又はパラ位に結合していてもよい。式（6a）中の R^g 及び R^h は、互いに独立に、ハロゲン原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、又は炭素数6～12のアリール基を表す。式（6a）中のt 及びuは0であることが好ましいが、t 及び／又はuが1以上である場合、 R^g 及び R^h

は、好ましくは炭素数 1～6 のアルキル基を表し、より好ましくは炭素数 1～3 のアルキル基を表す。式 (6 a) 中の R^g 及び R^h において、ハロゲン原子、炭素数 1～6 のアルキル基、炭素数 1～6 のアルコキシ基及び炭素数 6～12 のアリール基としては、それぞれ、式 (6) におけるハロゲン原子、炭素数 1～6 のアルキル基、炭素数 1～6 のアルコキシ基又は炭素数 6～12 のアリール基として例示のものが挙げられる。

[0071] 式 (6 a) 中の t 及び u は、互いに独立に、0～4 の整数であり、好ましくは 0～2 の整数、より好ましくは 0 又は 1、さらにより好ましくは 0 である。

[0072] 式 (6) 及び式 (6 a) 中の A は、単結合、 $-O-$ 、 $-CH_2-$ 、 $-CH_2-CH_2-$ 、 $-CH(CH_3)-$ 、 $-C(CH_3)_2-$ 、 $-C(CF_3)_2-$ 、 $-SO_2-$ 、 $-S-$ 、 $-CO-$ 又は $-N(R^{12})-$ を表し、光学フィルムの耐屈曲性の観点から、好ましくは $-O-$ 又は $-S-$ を表し、より好ましくは $-O-$ を表す。

式 (6) において、 R^4 、 R^5 、 R^6 、 R^7 、 R^8 、 R^9 、 R^{10} 、 R^{11} は、互いに独立に、水素原子、炭素数 1～6 のアルキル基、炭素数 1～6 のアルコキシ基、又は炭素数 6～12 のアリール基を表す。炭素数 1～6 のアルキル基としては、例えばメチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、 sec -ブチル基、 $tert$ -ブチル基、 n -ペンチル基、2-メチルブチル基、3-メチルブチル基、2-エチルプロピル基、 n -ヘキシル基等が挙げられる。炭素数 1～6 のアルコキシ基としては、例えばメトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、 $tert$ -ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等が挙げられる。炭素数 6～12 のアリール基としては、例えばフェニル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、ビフェニル基等が挙げられる。光学フィルムの表面硬度及び柔軟性の観点から、 $R^4 \sim R^{11}$ は、互いに独立に、好ましくは水素原子又は炭素数 1～6 のアルキル基を表し、より好ましくは水素原子又は炭素数 1～3 のアルキ

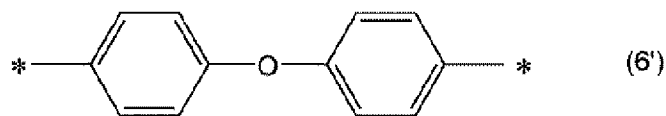
ル基を表し、さらに好ましくは水素原子を表す。ここで、 $R^4 \sim R^{11}$ に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよい。

R^{12} は水素原子、ハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数1～12の1価の炭化水素基を表す。炭素数1～12の1価の炭化水素基としては、例えばメチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、*n*-ペンチル基、2-メチルブチル基、3-メチルブチル基、2-エチルプロピル基、*n*-ヘキシル、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、*tert*-オクチル基、*n*-ノニル基、*n*-デシル基等が挙げられ、これらはハロゲン原子で置換されていてもよい。前記ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子などが挙げられる。

[0073] 式(6a)及び式(6)中の m' は、0～4の範囲の整数であり、 m' がこの範囲内であると、光学フィルムの耐屈曲性や弾性率が良好になりやすい。また、式(6a)及び式(6)中の m' は、好ましくは0～3の範囲の整数、より好ましくは0～2、さらに好ましくは0又は1、とりわけ好ましくは0である。 m' がこの範囲内であると、光学フィルムの耐屈曲性や弾性率を向上させやすい。また、構成単位(2)は、Zとして、式(6)で表される2価の有機基を1種又は2種類以上含んでいてもよく、光学フィルムの弾性率及び耐屈曲性の向上、 YI 値低減の観点から、構成単位(2)は、Zとして、特に m' の値が互いに異なる2種類以上の2価の有機基、好ましくは m' の値が互いに異なる2種類の2価の有機基を含んでいてもよい。その場合、光学フィルムの高い弾性率、耐屈曲性及び低い YI 値を発現しやすい観点から、ポリアミドイミド系樹脂が有する構成単位(2)が、Zとして、 m' が0である式(6a)又は式(6)で表される2価の有機基を含有することが好ましく、該2価の有機基に加えて m' が1である式(6a)又は式(6)で表される2価の有機基をさらに含有することがより好ましい。この場合、ポリアミドイミド系樹脂は、式(2)中の少なくともZが互いに異なる2種類以上の構成単位(2)を含むこととなる。

[0074] 本発明の好ましい一実施形態において、ポリアミドイミド系樹脂は、式（2）中のZとして、式（6a）又は式（6）で表される2価の有機基であって、 $m' = 0$ であり、かつ式（6a）中のtが0であるか、又は式（6）中の $R^8 \sim R^{11}$ が水素原子である有機基を有する。より好ましい本発明の一実施形態において、ポリアミドイミド系樹脂は、式（2）中のZが式（6a）又は式（6）で表される2価の有機基であって、 $m' = 0$ であり、かつ式（6a）中のtが0であるか、又は式（6）中の $R^8 \sim R^{11}$ が水素原子である構成単位（2）（さらに好ましくは式（2）中のZが式（6）で表される2価の有機基であり、 $m' = 0$ であり、かつ $R^8 \sim R^{11}$ が水素原子である構成単位（2））と、式（2）中のZが式（6'）：

[0075] [化22]



で表される2価の有機基である構成単位（2）とを有する。この場合、光学フィルムの表面硬度及び耐屈曲性を向上させやすく、YI値を低減しやすい。

[0076] 本発明のポリアミドイミド系樹脂が、式（2）中のZとして、式（6a）又は式（6）で表される2価の有機基を含む場合、ポリアミドイミド系樹脂に含まれる構成単位（1）及び構成単位（2）の合計を100モル%としたときに、Zが式（6a）又は式（6）で表される2価の有機基である構成単位（2）の割合は、好ましくは20モル%以上、より好ましくは30モル%以上、さらに好ましくは40モル%以上、さらにより好ましくは50モル%以上、とりわけ好ましくは60モル%以上であり、好ましくは95モル%以下、より好ましくは90モル%以下、さらに好ましくは85モル%以下である。Zが式（6a）又は式（6）で表される2価の有機基である構成単位（2）の割合が上記の下限以上であると、光学フィルムの表面硬度を高めやすく、かつ耐屈曲性や弾性率を高めやすい。Zが式（6a）又は式（6）で表

される2価の有機基である構成単位(2)の割合が上記の上限以下であると、該構成単位に由来するアミド結合間水素結合による樹脂含有ワニスの粘度上昇を抑制し、フィルムの加工性を向上しやすい。

[0077] また、ポリアミドイミド樹脂が、 $m' = 1 \sim 4$ である式(6a)又は式(6)で表される2価の有機基をZとして有する構成単位(2)を有する場合、ポリアミドイミド樹脂に含まれる構成単位(1)及び構成単位(2)の合計を100モル%としたときに、 m' が $1 \sim 4$ である式(6a)又は式(6)で表される2価の有機基をZとして有する構成単位(2)の割合は、好ましくは3モル%以上、より好ましくは5モル%以上、さらに好ましくは7モル%以上、とりわけ好ましくは9モル%以上であり、好ましくは90モル%以下、より好ましくは70モル%以下、さらに好ましくは50モル%以下、とりわけ好ましくは30モル%以下である。 m' が $1 \sim 4$ である式(6a)又は式(6)で表される2価の有機基をZとして有する構成単位(2)の割合が上記の下限以上であると、光学フィルムの表面硬度及び耐屈曲性を高めやすい。 m' が $1 \sim 4$ である式(6a)又は式(6)で表される2価の有機基をZとして有する構成単位(2)の割合が上記の上限以下であると、式(6a)又は式(6)で表される2価の有機基をZとして有する構成単位(2)に由来するアミド結合間水素結合による樹脂含有ワニスの粘度上昇を抑制し、フィルムの加工性を向上しやすい。なお、構成単位(1)、構成単位(2)、及び、式(6a)又は式(6)で表される2価の有機基をZとして有する構成単位(2)の含有量は、例えば $^1\text{H-NMR}$ を用いて測定することができ、又は原料の仕込み比から算出することもできる。

[0078] 本発明の好ましい一実施形態において、上記ポリアミドイミド系樹脂が有する構成単位(2)中のZの、好ましくは30モル%以上、より好ましくは40モル%以上、さらに好ましくは45モル%以上、さらにより好ましくは50モル%以上、とりわけ好ましくは70モル%以上が、 m' が $0 \sim 4$ である式(6a)又は式(6)で表される2価の有機基である。Zの上記の下限以上が、 m' が $0 \sim 4$ である式(6a)又は式(6)で表される2価の有機

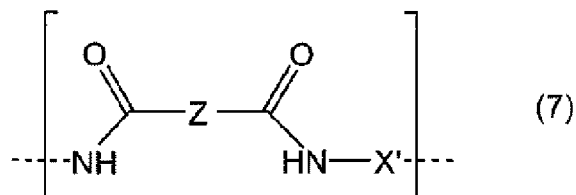
基であると、光学フィルムの表面硬度を高めやすいと共に、耐屈曲性及び弾性率も高めやすい。また、ポリアミドイミド系樹脂が有する構成単位（２）中のＺの、１００モル％以下が、 m' が０～４である式（６a）又は式（６）で表される２価の有機基であればよい。なお、Ｚが、 m' が０～４である式（６a）又は式（６）で表される２価の有機基である構成単位（２）の割合は、例えば $^1\text{H-NMR}$ を用いて測定することができ、又は原料の仕込み比から算出することもできる。

[0079] 本発明の好ましい一実施形態において、上記ポリアミドイミド系樹脂が有する構成単位（２）中のＺの、好ましくは５モル％以上、より好ましくは８モル％以上、さらに好ましくは１０モル％以上、とりわけ好ましくは１２モル％以上が、 m' が１～４である式（６a）又は式（６）で表される２価の有機基である。構成単位（２）中のＺの上記の下限以上が、 m' が１～４である式（３）で表される２価の有機基であると、光学フィルムの表面硬度を高めやすく、かつ耐屈曲性及び弾性率を高めやすい。また、構成単位（２）中のＺの、好ましくは９０モル％以下、より好ましくは７０モル％以下、さらに好ましくは５０モル％以下、とりわけ好ましくは３０モル％以下が、 m' が１～４である式（６a）又は式（６）で表される２価の有機基であることが好ましい。Ｚの上記の上限以下が、 m' が１～４である式（６a）又は式（６）で表される２価の有機基であると、 m' が１～４である式（６a）又は式（６）で表される２価の有機基をＺとして有する構成単位（２）由来のアミド結合間水素結合による樹脂含有ワニスの粘度上昇を抑制し、フィルムの加工性を向上しやすい。なお、Ｚが、 m' が１～４である式（６a）又は式（６）で表される２価の有機基である構成単位（２）の割合は、例えば $^1\text{H-NMR}$ を用いて測定することができ、又は原料の仕込み比から算出することもできる。

[0080] 本発明の好ましい一態様において、ポリアミドイミド系樹脂は、ポリアミドイミド系樹脂を用いて製造した光学フィルムの弾性率及び光線透過率を高めやすい観点から、式（２）中の少なくともＺが互いに異なる式（２）で表

される２種以上の構成単位を有するか、式（２）中の少なくともＸが互いに異なる式（２）で表される２種以上の構成単位を有するか、及び／又は、式（７）：

[0081] [化23]



[式（７）中、Ｚは式（１）において定義した通りであり、

Ｘ' は、式（２）中のＸに該当しない２価の有機基を表す]

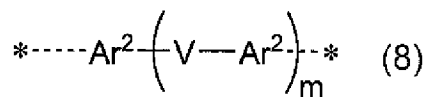
で表される構成単位をさらに有する。なお、以下において、式（７）で表される構成単位を、構成単位（７）とも称する。上記の態様においては、ポリアミドイミド系樹脂は、式（２）中の少なくともＺ部分において互いに異なる２種類以上の構成単位（２）を含むか、式（２）中の少なくともＸ部分において互いに異なる２種類以上の構成単位（２）を含むか、及び／又は、少なくともＸ部分において式（２）に該当しないさらなる構成単位（７）を有してよい。

[0082] ポリアミドイミド系樹脂が構成単位（７）をさらに有する本発明の好ましい態様において、式（７）中のＸ' は、式（１）中のＸ（式（３）で表される２価の有機基）に該当しない２価の有機基を表す限り特に限定されないが、ポリアミドイミド系樹脂を用いて製造した光学フィルムの弾性率及び光線透過率を高めやすい観点から、好ましくは、式（３）で表される２価の有機基に該当しない炭素数４～４０の２価の有機基、より好ましくは式（３）で表される２価の有機基に該当しない環状構造を有する炭素数４～４０の２価の有機基を表す。環状構造としては、脂環、芳香環、ヘテロ環構造が挙げられる。前記有機基は、有機基中の水素原子が炭化水素基又はフッ素置換された炭化水素基で置換されていてもよく、その場合、炭化水素基及びフッ素置換された炭化水素基の炭素数は好ましくは１～８である。本発明の一実施

形態において、ポリアミドイミド系樹脂に含まれ得る構成単位（７）は、 X' として１種類の有機基を含んでいてもよいし、２種類以上の有機基を含んでいてもよい。

[0083] 本発明の好ましい一態様において、式（７）中の X' は、光学フィルムの弾性率及び光線透過率を向上させやすい観点から、好ましくは置換基を有していてもよい２価の有機基であり、より好ましくは式（８）：

[0084] [化24]



[式（８）中、 Ar^2 は置換基を有していてもよい２価の芳香族基を表し、 V は、単結合を表し、 m は０～３の整数を表し、 $*$ は結合手を表す]
で表される。構成単位（７）における X' が式（８）で表される２価の有機基である場合、構成単位（７）は、 X' として、式（８）で表される１種類又は２種類以上の２価の有機基を含んでよい。

[0085] 式（８）中の Ar^2 は置換基を有していてもよい２価の芳香族基を表す。２価の芳香族基は、単環式芳香族環、縮合多環式芳香族環又は環集合芳香族環の２つの水素原子が結合手に置き換わった基である。２価の芳香族基は、炭素原子のみで環（単環、縮合多環又は環集合）が形成された芳香族環を含んでいてもよいし、炭素原子以外の原子を含んで環が形成されたヘテロ芳香族環を含んでいてもよい。炭素原子以外の原子としては、例えば窒素原子、硫黄原子及び酸素原子が挙げられる。芳香族環を形成する炭素原子及び炭素原子以外の原子の合計数は、特に限定されないが、好ましくは５～１８、より好ましくは５～１４、さらに好ましくは５～１２である。単環式芳香族環、縮合多環式芳香族環及び環集合芳香族環の具体例としては、式（１）中の Y に関して記載した単環式芳香族環、縮合多環式芳香族環及び環集合芳香族環が挙げられる。式（８）中の m が１以上である場合に複数存在する Ar^2 は、互いに同一であってもよいし、異なってもよい。

[0086] 光学フィルムの弾性率及び光線透過率を向上させやすい観点からは、置換

基を有していてもよい2価の芳香族基は、好ましくは、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素環の2つの水素原子が結合手に置き換わった基、より好ましくは、置換基を有していてもよいベンゼン、ビフェニル、テルフェニル又はクアテルフェニルの2つの水素原子が結合手に置き換わった基、さらに好ましくは、置換基を有していてもよいベンゼン又はビフェニルの2つの水素原子が結合手に置き換わった基である。

[0087] $A r^2$ における置換基としては、炭素数1～12のアルキル基、炭素数1～12のアルコキシ基、炭素数6～12のアリール基、及び、ハロゲノ基、並びに、これらに含まれる水素原子がハロゲン原子で置換された基が挙げられる。炭素数1～12のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数6～12のアリール基、及び、ハロゲノ基、並びに、これらに含まれる水素原子がハロゲン原子で置換された基の具体例としては、式(1)中のYで表される4価の芳香族基が有し得る置換基として(i)炭素数1～12のアルキル基、(i i)炭素数1～12のアルコキシ基、(i i i)炭素数6～12のアリール基

(v i i)ハロゲノ基について記載した基が挙げられる。

[0088] $A r^2$ における置換基としては、ハロゲン基、又は、水素原子がハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数1～12のアルキル基が好ましく、メチル基、フルオロ基、クロロ基又はトリフルオロメチル基がより好ましい。

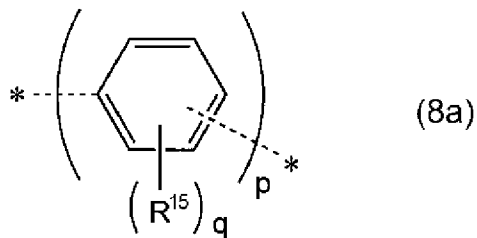
[0089] 式(8)中のVは、単結合を表す。式(8)中のmは、0～3の整数を表し、光学フィルムの弾性率、光線透過率及び耐久性を向上させやすい観点から、好ましくは0～2、より好ましくは0又は1である。

[0090] 本発明のポリアミドイミド系樹脂が、構成単位(1)及び構成単位(2)に加えて、構成単位(7)(好ましくはX'が式(8)で表される式(7)で表される構成単位)を含む本発明の好ましい一態様において、ポリアミドイミド系樹脂に含まれる構成単位(2)及び構成単位(7)の合計を100モル%としたときに、構成単位(2)の割合は、光学フィルムの弾性率及び光線透過率を向上させやすい観点から、好ましくは1～50モル%、より好

ましくは3～40モル%、さらに好ましくは5～30モル%である。

[0091] 本発明の好ましい一態様において、式(8)は、光学フィルムの弾性率及び光線透過率を向上させやすい観点から、式(8a)：

[0092] [化25]



[式(8a)中、 R^{15} は、炭素数1～12のフルオロアルキル基を表し、

p 及び q は、互いに独立に、1～4の整数を表し、ただし、 p 及び/又は q が2～4の整数を表す場合に複数存在する R^{15} は、互いに同一であってもよいし、異なってもよく、

*は結合手を表す]

で表される。構成単位(7)が、 X' として式(8a)で表される2価の有機基を含む場合、構成単位(7)は、 X' として、式(8a)で表される1種類又は2種類以上の2価の有機基を含んでよい。構成単位(7)は、 X' として、式(8a)で表される2価の有機基の他に、式(8a)で表される2価の有機基にも、式(8)で表される2価の有機基にも該当しない、他の2価の有機基を含んでいてもよい。

[0093] 式(8a)中の R^{15} は、炭素数1～12のフルオロアルキル基を表す。該基としては、炭素数1～12の直鎖状又は分枝状のアルキル基の少なくとも1つの水素原子がフッ素原子で置換された基である。炭素数1～12の直鎖状又は分枝状のフルオロアルキル基としては、例えばメチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、 sec -ブチル基、 $tert$ -ブチル基、 n -ペンチル基、2-メチルブチル基、3-メチルブチル基、2-エチルプロピル基、 n -ヘキシル、 n -ヘプチル基、 n -オクチル基、 $tert$ -オクチル基、 n -ノニル基及び n -デシル基等における

少なくとも1つの水素原子がフッ素原子で置換された基が挙げられる。炭素数1～12のフルオロアルキル基として、具体的には、例えばフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、フルオロエチル基、ジフルオロエチル基、トリフルオロエチル基、ペンタフルオロエチル基、ヘプタフルオロプロピル基、ノナフルオロブチル基等が挙げられる。フルオロアルキル基の炭素数は、好ましくは1～6、より好ましくは1～4、さらに好ましくは1又は2である。

[0094] 炭素数1～12のフルオロアルキル基は、光学フィルムの弾性率、光線透過率及び耐久性を向上させやすい観点から、好ましくは炭素数1～12のパーフルオロアルキル基、より好ましくは炭素数1～6のパーフルオロアルキル基、さらに好ましくは炭素数1～4のパーフルオロアルキル基、とりわけ好ましくはトリフルオロメチル基又はペンタフルオロエチル基である。

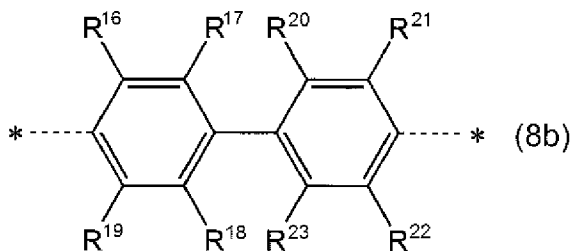
[0095] p 及び q は、互いに独立に、1～4の整数を表す。 p は、光学フィルムの弾性率、光線透過率及び耐久性を向上させやすい観点から、好ましくは1又は2の整数、より好ましくは2である。 q は、光学フィルムの弾性率、光線透過率及び耐久性を向上させやすい観点から、好ましくは1又は2の整数、より好ましくは1である。ここで、 p 及び q 又は q が2～4の整数を表す場合、複数存在する R^4 は、互いに同一であってもよいし、異なってもよいが、複数存在する R^4 は互いに同一であることが好ましい。

[0096] 式(8a)中の2つの結合手について、互いの位置は特に限定されず、オルト位、メタ位、パラ位のいずれであってもよいが、光学フィルムの弾性率、光線透過率及び耐久性を向上させやすい観点からは、該結合手は好ましくは互いにパラ位に位置する。

[0097] 式(8a)で表される2価の芳香族基の好ましい例として、式(8a)中の R^2 が炭素数1～12のパーフルオロアルキル基を表す、 p が2である、 q が1又は2である、及び q 又は q が2つの結合手が互いにパラ位に位置する、芳香族基が挙げられる。

[0098] 本発明の好ましい一態様において、式(8a)は、式(8b)：

[0099] [化26]

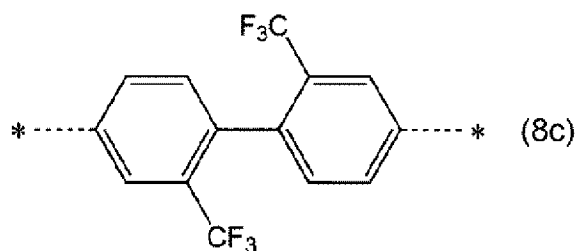


〔式（８ｂ）中、 $R^{16} \sim R^{23}$ は、互いに独立に、水素原子又は炭素数１～１２のフルオロアルキル基を表し、＊は結合手を表す〕

で表される。なお、式（８ｂ）は、式（８ａ）中の結合手が互いにパラ位に位置し、 p が２である式に相当する。光学フィルムの弾性率及び光線透過率、並びに耐久性を向上させやすい観点から、式（８ｂ）中、 $R^{16} \sim R^{23}$ の少なくとも２つが炭素数１～１２のフルオロアルキル基を表すことが好ましく、少なくとも R^{18} 及び R^{20} が炭素数１～１２のフルオロアルキル基を表すことがより好ましく、 R^{18} 及び R^{20} が炭素数１～１２のフルオロアルキル基を表し、 R^{16} 、 R^{17} 、 R^{19} 、 R^{21} 、 R^{22} 及び R^{23} が水素原子を表すことがさらに好ましい。また、上記態様において、炭素数１～１２のフルオロアルキル基は、好ましくは炭素数１～１２のパーフルオロアルキル基、より好ましくは炭素数１～６のパーフルオロアルキル基、さらに好ましくは炭素数１～４のパーフルオロアルキル基、さらにより好ましくはトリフルオロメチル基又はペンタフルオロエチル基、とりわけ好ましくはトリフルオロメチル基である。

[0100] 本発明の好ましい一態様において、式（８ｂ）は、式（８ｃ）：

[0101] [化27]

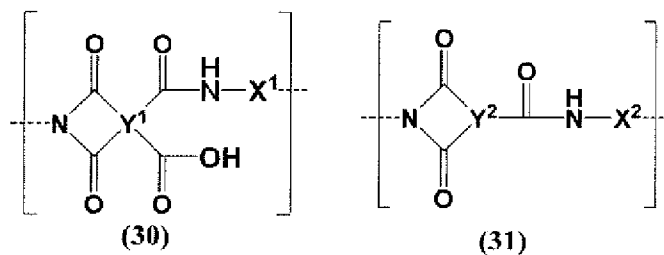


[式(8c)中、*は結合手を表す]

で表される。なお、式(8c)は、式(8b)中の R^{18} 及び R^{20} がトリフルオロメチル基を表し、 R^{16} 、 R^{17} 、 R^{19} 、 R^{21} 、 R^{22} 及び R^{23} が水素原子を表す式に相当する。

[0102] ポリアミドイミド系樹脂は、式(1)で表される構成単位、式(2)で表される構成単位、場合により式(7)で表される構成単位他に、式(30)で表される構成単位及び／又は式(31)で表される構成単位を含んでもよい。

[0103] [化28]



[0104] 式(30)において、 Y^1 は4価の有機基であり、好ましくは有機基中の水素原子が炭化水素基又はフッ素置換された炭化水素基で置換されていてもよい有機基である。 Y^1 としては、式(1)中の Y として記載した基が挙げられる。本発明の一実施形態において、ポリアミドイミド系樹脂は、複数種の Y^1 を含み得、複数種の Y^1 は、互いに同一であってもよいし、異なってもよい。

[0105] 式(31)において、 Y^2 は3価の有機基であり、好ましくは有機基中の水素原子が炭化水素基又はフッ素置換された炭化水素基で置換されていてもよい有機基である。 Y^2 としては、式(1)中の Y として記載した基の結合手のいずれか1つが水素原子に置き換わった基、及び3価の炭素数6以下の鎖式炭化水素基が例示される。本発明の一実施形態において、ポリアミドイミド系樹脂は、複数種の Y^2 を含み得、複数種の Y^2 は、互いに同一であってもよいし、異なってもよい。

[0106] 式(30)及び式(31)において、 X^1 及び X^2 は、互いに独立に、2価

の有機基であり、好ましくは有機基中の水素原子が炭化水素基又はフッ素置換された炭化水素基で置換されていてもよい有機基である。X¹及びX²としては、式（２）中のXとして記載した基、式（７）中のX'として記載した基が例示される。

[0107] 本発明の一実施形態において、ポリアミドイミド系樹脂は、式（１）で表される構成単位、式（２）で表される構成単位、並びに、場合により式（７）で表される構成単位、式（３０）で表される構成単位、及び／又は、式（３１）で表される構成単位からなる。光学フィルムの弾性率、光線透過率、光学特性、表面硬度を向上させやすい観点から、上記ポリアミドイミド系樹脂において、式（１）及び式（２）で表される構成単位は、式（１）及び式（２）、並びに場合により式（７）、式（３０）及び式（３１）で表される全構成単位に基づいて、好ましくは８０モル％以上、より好ましくは９０モル％以上、さらに好ましくは９５モル％以上である。なお、ポリアミドイミド系樹脂において、式（１）及び式（２）で表される構成単位は、式（１）及び式（２）、並びに場合により式（７）、式（３０）及び／又は式（３１）で表される全構成単位に基づいて、通常１００％以下である。なお、上記割合は、例えば、¹H-NMRを用いて測定することができ、又は原料の仕込み比から算出することもできる。

[0108] 本発明の一実施形態において、光学フィルム中におけるポリアミドイミド系樹脂の含有量は、光学フィルム１００質量部に対して、好ましくは１０質量部以上、より好ましくは３０質量部以上、さらに好ましくは５０質量部以上であり、好ましくは９９．５質量部以下、より好ましくは９５質量部以下である。ポリアミドイミド系樹脂の含有量が上記範囲内であると、光学フィルムの光学特性、弾性率及び光線透過率を向上させやすい。

[0109] ポリアミドイミド系樹脂の重量平均分子量は、光学フィルムの弾性率、表面硬度及び耐屈曲性を高めやすい観点から、標準ポリスチレン換算で、好ましくは２００，０００以上、より好ましくは２５０，０００以上、さらに好ましくは２７０，０００以上、とりわけ好ましくは３００，０００以上であ

る。また、ポリアミドイミド系樹脂の溶媒に対する溶解性を向上しやすいと共に、光学フィルムの延伸性及び加工性を向上させやすい観点から、該樹脂の重量平均分子量は、好ましくは1,000,000以下、より好ましくは800,000以下、さらに好ましくは700,000以下、とりわけ好ましくは600,000以下である。重量平均分子量は、例えばGPC測定を行い、標準ポリスチレン換算によって求めることができ、例えば実施例に記載の方法により算出してよい。

[0110] 本発明の光学フィルムの弾性率は、光学フィルムのシワや傷付き等を防止しやすい観点から、好ましくは5.2 GPa以上、より好ましくは5.5 GPa以上、さらに好ましくは5.8 GPa以上、とりわけ好ましくは6.0 GPa以上であり、通常100 GPa以下である。なお、弾性率は、引張試験機（チャック間距離50 mm、引張速度10 mm/分）を用いて測定でき、例えば実施例に記載の方法により測定できる。

[0111] 本発明の光学フィルムの全光線透過率（及び／又は300～800 nmの光に対する光線透過率）は、好ましくは80%以上、より好ましくは85%以上、さらに好ましくは88%以上、さらにより好ましくは89%以上、とりわけ好ましくは90%以上であり、通常100%以下である。全光線透過率が上記の下限以上であると、光学フィルムを、特に前面板として、表示装置に組み込んだ際に視認性を高めやすい。本発明の光学フィルムは通常、高い全光線透過率を示すので、例えば、透過率の低いフィルムを用いた場合と比べて、一定の明るさを得るために必要な表示素子等の発光強度を抑えることが可能となる。このため、消費電力を削減することができる。例えば、本発明の光学フィルムを表示装置に組みこむ場合、バックライトの光量を減らしても明るい表示を得られる傾向があり、エネルギーの節約に貢献できる。なお、全光線透過率は、例えばJIS K 7361-1:1997に準拠してヘーズコンピュータを用いて測定できる。全光線透過率は、後述する光学フィルムの厚さの範囲における全光線透過率であってよい。

[0112] 本発明の光学フィルムのヘーズは、好ましくは5%以下、より好ましくは

4%以下、さらに好ましくは3%以下、さらにより好ましくは2.5%以下、とりわけ好ましくは2%以下、とりわけより好ましくは1%以下、とりわけさらに好ましくは0.5%以下であり、通常0.01%以上である。光学フィルムのヘーズが上記の上限以下であると、光学フィルムを、特に前面板として、表示装置に組み込んだ際に、視認性を高めやすい。なお、ヘーズは、JIS K 7136:2000に準拠してヘーズコンピュータを用いて測定できる。

[0113] 本発明の光学フィルムのYI値は、好ましくは3.5以下、より好ましくは3.0以下、さらに好ましくは2.5以下であり、通常-5以上、好ましくは-2以上である。光学フィルムのYI値が上記の上限以下であると、透明性が良好となり、表示装置の前面板に使用した場合に、高い視認性に寄与することができる。なお、YI値は紫外可視近赤外分光光度計を用いて300~800nmの光に対する透過率測定を行い、3刺激値(X、Y、Z)を求め、 $YI = 100 \times (1.2769X - 1.0592Z) / Y$ の式に基づいて算出できる。なお、本明細書において、光学フィルムが光学特性に優れるとは、光線透過率が高いことを意味する。

[0114] 本発明の光学フィルムの厚さは、好ましくは10μm以上、より好ましくは20μm以上、さらに好ましくは25μm以上、とりわけ好ましくは30μm以上であり、好ましくは200μm以下、より好ましくは100μm以下、さらに好ましくは80μm以下、とりわけ好ましくは60μm以下であり、これらの上限と下限の組合せであってよい。光学フィルムの厚さが上記の範囲内であると、光学フィルムの弾性率をより高めやすい。なお、光学フィルムの厚さは、マイクロメーターを用いて測定でき、例えば実施例に記載の方法により測定できる。

[0115] 本発明の光学フィルムの少なくとも一方の面の鉛筆硬度は、好ましくはHB以上、より好ましくはF以上である。光学フィルムの少なくとも一方の面の鉛筆硬度が上記の硬度以上である場合、光学フィルムの該表面における傷等を防止しやすい。なお、鉛筆硬度は、JIS K 5600-5-4:1

999に準拠して測定でき、例えば実施例に記載の方法により測定できる。

[0116] ポリアミドイミド系樹脂のイミド化率は、好ましくは90%以上、より好ましくは93%以上、さらに好ましくは96%以上であり、通常100%以下である。光学フィルムの光学特性を向上させやすい観点から、イミド化率が上記の下限以上であることが好ましい。イミド化率は、ポリアミドイミド系樹脂中のテトラカルボン酸化合物に由来する構成単位のリモ量の2倍の値に対する、ポリアミドイミド系樹脂中のイミド結合のリモ量の割合を示す。なお、ポリアミドイミド系樹脂がトリカルボン酸化合物を含む場合には、ポリアミドイミド系樹脂中のテトラカルボン酸化合物に由来する構成単位のリモ量の2倍の値と、トリカルボン酸化合物に由来する構成単位のリモ量との合計に対する、ポリアミドイミド系樹脂中のイミド結合のリモ量の割合を示す。また、イミド化率は、IR法、NMR法などにより求めることができる。

[0117] ポリアミドイミド系樹脂におけるハロゲン原子の含有量は、ポリアミドイミド系樹脂の質量を基準として、好ましくは1~40質量%、より好ましくは5~40質量%、さらに好ましくは5~30質量%である。ハロゲン原子の含有量が上記の下限以上であると、光学フィルムの弾性率、表面硬度、透明性及び視認性をより向上させやすい。ハロゲン原子の含有量が上記の上限以下であると、樹脂の合成がしやすくなる。

[0118] <樹脂の製造方法>

ポリアミドイミド系樹脂は、例えば、テトラカルボン酸化合物、ジカルボン酸化合物及びジアミン化合物を主な原料として製造できる。ここで、上記の式(1)で表される構成単位は、テトラカルボン酸化合物とジアミン化合物とが反応して形成される構成単位であり、上記の式(2)で表される構成単位及び式(7)で表される構成単位は、ジカルボン酸化合物とジアミン化合物とが反応して形成される構成単位である。そのため、上記の式(1)及び式(2)で表される構成単位、場合により式(7)で表される構成単位となるような、ジカルボン酸化合物、テトラカルボン酸化合物及びジアミン化

合物を用いて、ポリアミドイミド系樹脂を製造してよい。

[0119] 樹脂の製造に用いられるテトラカルボン酸化合物としては、芳香族テトラカルボン酸二無水物等の芳香族テトラカルボン酸化合物が挙げられる。テトラカルボン酸化合物は、単独で用いてもよいし、2種以上を組合せて用いてもよい。テトラカルボン酸化合物は、二無水物の他、酸クロリド化合物等のテトラカルボン酸化合物類縁体であってもよい。

[0120] 芳香族テトラカルボン酸二無水物の具体例としては、非縮合多環式の芳香族テトラカルボン酸二無水物、単環式の芳香族テトラカルボン酸二無水物及び縮合多環式の芳香族テトラカルボン酸二無水物が挙げられる。非縮合多環式の芳香族テトラカルボン酸二無水物としては、例えば4, 4'-オキシジフタル酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、2, 2', 3, 3'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物 (BPDA)、2, 2', 3, 3'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ジフェニルスルホンテトラカルボン酸二無水物、2, 2'-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)プロパン二無水物、2, 2'-ビス(2, 3-ジカルボキシフェニル)プロパン二無水物、2, 2'-ビス(3, 4-ジカルボキシフェノキシフェニル)プロパン二無水物、4, 4'-(ヘキサフルオロイソプロピリデン)ジフタル酸二無水物(6FDAと記載することがある)、1, 2'-ビス(2, 3-ジカルボキシフェニル)エタン二無水物、1, 1'-ビス(2, 3-ジカルボキシフェニル)エタン二無水物、1, 2'-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)エタン二無水物、1, 1'-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)エタン二無水物、ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)メタン二無水物、ビス(2, 3-ジカルボキシフェニル)メタン二無水物、4, 4'-(p-フェニレンジオキシ)ジフタル酸二無水物、4, 4'-(m-フェニレンジオキシ)ジフタル酸二無水物が挙げられる。また、単環式の芳香族テトラカルボン酸二無水物としては、例えば1, 2, 4, 5-ベンゼンテトラカルボン酸二無水物(ピロメリット酸二無水物(PM

D A)) が挙げられ、縮合多環式の芳香族テトラカルボン酸二無水物としては、例えば 2, 3, 6, 7-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物が挙げられる。

[0121] これらの中でも、好ましくは 4, 4'-オキシジフタル酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、2, 2', 3, 3'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物 (BPDA)、1, 2, 4, 5-ベンゼンテトラカルボン酸二無水物 (PMDA)、2, 2', 3, 3'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ジフェニルスルホンテトラカルボン酸二無水物、2, 2-ビス (3, 4-ジカルボキシフェニル) プロパン二無水物、2, 2-ビス (2, 3-ジカルボキシフェニル) プロパン二無水物、2, 2-ビス (3, 4-ジカルボキシフェノキシフェニル) プロパン二無水物、1, 2-ビス (2, 3-ジカルボキシフェニル) エタン二無水物、1, 1-ビス (2, 3-ジカルボキシフェニル) エタン二無水物、1, 2-ビス (3, 4-ジカルボキシフェニル) エタン二無水物、1, 1-ビス (3, 4-ジカルボキシフェニル) エタン二無水物、ビス (3, 4-ジカルボキシフェニル) メタン二無水物、ビス (2, 3-ジカルボキシフェニル) メタン二無水物、4, 4'- (p-フェニレンジオキシ) ジフタル酸二無水物及び 4, 4'- (m-フェニレンジオキシ) ジフタル酸二無水物が挙げられ、より好ましくは 4, 4'-オキシジフタル酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物 (BPDA)、2, 2', 3, 3'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、ビス (3, 4-ジカルボキシフェニル) メタン二無水物、4, 4'- (p-フェニレンジオキシ) ジフタル酸二無水物及び 1, 2, 4, 5-ベンゼンテトラカルボン酸二無水物 (PMDA) が挙げられる。これらは単独又は 2 種以上を組合せて使用できる。

[0122] 上記テトラカルボン酸二無水物の中でも、光学フィルムの弾性率、光線透過率、表面硬度、透明性、屈曲耐性を高めやすく、着色性を低減しやすい観

点から、4, 4'-オキシジフタル酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、2, 2', 3, 3'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ジフェニルスルホンテトラカルボン酸二無水物、2, 2'-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)プロパン二無水物、4, 4'-(ヘキサフルオロイソプロピリデン)ジフタル酸二無水物、1, 2, 4, 5-ベンゼンテトラカルボン酸二無水物(PMDA)、並びにこれらの混合物が好ましく、3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物(BPDA)及び1, 2, 4, 5-ベンゼンテトラカルボン酸二無水物(PMDA)、並びにこれらの混合物がより好ましい。

[0123] ポリアミドイミド系樹脂の製造に用いられるジカルボン酸化合物としては、芳香族ジカルボン酸、脂肪族ジカルボン酸及びそれらの類縁の酸クロリド化合物、酸無水物等が挙げられ、これらのジカルボン酸化合物の2種以上を組合せて用いてもよい。ジカルボン酸化合物としては、好ましくはテレフタル酸、4, 4'-オキシビス安息香酸又はそれらの酸クロリド化合物が用いられる。テレフタル酸や4, 4'-オキシビス安息香酸又はそれらの酸クロリド化合物に加えて、他のジカルボン酸化合物を用いてもよい。他のジカルボン酸化合物としては、具体例としては、イソフタル酸；ナフタレンジカルボン酸；4, 4'-ビフェニルジカルボン酸；3, 3'-ビフェニルジカルボン酸；炭素数8以下である鎖式炭化水素のジカルボン酸化合物及び2つの安息香酸が単結合、 $-CH_2-$ 、 $-C(CH_3)_2-$ 、 $-C(CF_3)_2-$ 、 $-SO_2-$ 又はフェニレン基で連結された化合物並びに、それらの酸クロリド化合物が挙げられる。具体例としては、4, 4'-オキシビス(ベンゾイルクロリド)、テレフタロイルクロリドが好ましく、4, 4'-オキシビス(ベンゾイルクロリド)とテレフタロイルクロリドとを組合せて用いることがさらに好ましい。

[0124] 本発明のポリアミドイミド系樹脂の製造に使用されるジアミン化合物としては、例えば、芳香族ジアミンが挙げられる。なお、本実施形態において「

芳香族ジアミン」とは、アミノ基が芳香環に直接結合しているジアミンを表し、その構造の一部に脂肪族基又はその他の置換基を含んでいてもよい。この芳香環は単環でも縮合環でもよく、ベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環及びフルオレン環等が例示されるが、これらに限定されるわけではない。これらの中でも、好ましくはベンゼン環である。

[0125] 芳香族ジアミンとしては、例えばp-フェニレンジアミン、m-フェニレンジアミン、2,4-トルエンジアミン、m-キシリレンジアミン、p-キシリレンジアミン、1,5-ジアミノナフタレン、2,6-ジアミノナフタレン等の、芳香環を1つ有する芳香族ジアミン、4,4'-ジアミノジフェニルメタン、4,4'-ジアミノジフェニルプロパン、4,4'-ジアミノジフェニルエーテル、3,4'-ジアミノジフェニルエーテル、3,3'-ジアミノジフェニルエーテル、4,4'-ジアミノジフェニルスルホン、3,4'-ジアミノジフェニルスルホン、3,3'-ジアミノジフェニルスルホン、1,4-ビス(4-アミノフェノキシ)ベンゼン、1,3-ビス(4-アミノフェノキシ)ベンゼン、ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]スルホン、ビス[4-(3-アミノフェノキシ)フェニル]スルホン、2,2-ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]プロパン、2,2-ビス[4-(3-アミノフェノキシ)フェニル]プロパン、2,2'-ジメチルベンジジン、2,2'-ビス(トリフルオロメチル)-4,4'-ジアミノジフェニル(TFMBと記載することがある)、4,4'-ビス(4-アミノフェノキシ)ビフェニル、9,9-ビス(4-アミノフェニル)フルオレン、9,9-ビス(4-アミノ-3-メチルフェニル)フルオレン、9,9-ビス(4-アミノ-3-クロロフェニル)フルオレン、9,9-ビス(4-アミノ-3-フルオロフェニル)フルオレン等の、芳香環を2つ以上有する芳香族ジアミンが挙げられる。これらは単独又は2種以上を組合せて使用できる。

[0126] 芳香族ジアミンは、好ましくは4,4'-ジアミノジフェニルメタン、4,4'-ジアミノジフェニルプロパン、4,4'-ジアミノジフェニルエー

テル、3, 3'-ジアミノジフェニルエーテル、4, 4'-ジアミノジフェニルスルホン、3, 3'-ジアミノジフェニルスルホン、1, 4-ビス(4-アミノフェノキシ)ベンゼン、ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]スルホン、ビス[4-(3-アミノフェノキシ)フェニル]スルホン、2, 2-ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]プロパン、2, 2-ビス[4-(3-アミノフェノキシ)フェニル]プロパン、2, 2'-ジメチルベンジジン、2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)-4, 4'-ジアミノジフェニル(TFMB)、4, 4'-ビス(4-アミノフェノキシ)ビフェニル、4, 4'-(ヘキサフルオロプロピリデン)ジアニリン(6FDAM)であり、より好ましくは4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、4, 4'-ジアミノジフェニルプロパン、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、4, 4'-ジアミノジフェニルスルホン、1, 4-ビス(4-アミノフェノキシ)ベンゼン、ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]スルホン、2, 2-ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]プロパン、2, 2'-ジメチルベンジジン、2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)-4, 4'-ジアミノジフェニル(TFMB)、4, 4'-ビス(4-アミノフェノキシ)ビフェニル、4, 4'-(ヘキサフルオロプロピリデン)ジアニリン(6FDAM)である。これらは単独又は2種以上を組合せて使用できる。

[0127] 本発明のポリアミドイミド系樹脂の製造に使用されるジアミン化合物として、芳香族ジアミンの他に、脂肪族ジアミンをさらに使用してもよい。なお、「脂肪族ジアミン」とは、アミノ基が脂肪族基に直接結合しているジアミンを表し、その構造の一部に芳香環やその他の置換基を含んでいてもよい。脂肪族ジアミンとしては、例えば、ヘキサメチレンジアミン等の非環式脂肪族ジアミン、並びに1, 3-ビス(アミノメチル)シクロヘキサン、1, 4-ビス(アミノメチル)シクロヘキサン、ノルボルナレンジアミン及び4, 4'-ジアミノジシクロヘキシルメタン等の環式脂肪族ジアミン等が挙げられる。

[0128] 上記ジアミン化合物の中でも、光学フィルムの高表面硬度、高透明性、高柔軟性、高屈曲耐性及び低着色性の観点からは、ビフェニル構造を有する芳香族ジアミンからなる群から選ばれる1種以上を用いることが好ましい。2, 2'-ジメチルベンジジン、2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ベンジジン、4, 4'-ビス(4-アミノフェノキシ)ビフェニル及び4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、4, 4'-(ヘキサフルオロプロピリデン)ジアニリンからなる群から選ばれる1種以上を用いることがより好ましく、2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)-4, 4'-ジアミノジフェニル(TFMB)及び/又は4, 4'-(ヘキサフルオロプロピリデン)ジアニリン(6FDAM)を用いることがよりさらに好ましい。

[0129] なお、上記ポリアミドイミド系樹脂は、光学積層体の各種物性を損なわない範囲で、上記テトラカルボン酸化合物に加えて、テトラカルボン酸及びトリカルボン酸並びにそれらの無水物及び誘導体をさらに反応させたものであってもよい。

[0130] テトラカルボン酸としては、上記テトラカルボン酸化合物の無水物の水付加体が挙げられる。

[0131] トリカルボン酸化合物としては、芳香族トリカルボン酸、脂肪族トリカルボン酸及びそれらの類縁の酸クロリド化合物、酸無水物等が挙げられ、2種以上を組合せて用いてもよい。具体例としては、1, 2, 4-ベンゼントリカルボン酸の無水物；2, 3, 6-ナフタレントリカルボン酸-2, 3-無水物；フタル酸無水物と安息香酸とが単結合、-O-、-CH₂-、-C(C₂H₅)₂-、-C(CF₃)₂-、-SO₂-又はフェニレン基で連結された化合物が挙げられる。

[0132] 樹脂の製造において、ジアミン化合物、テトラカルボン酸化合物及び/又はジカルボン酸化合物の使用量は、所望とするポリアミドイミド系樹脂の各構成単位の比率に応じて適宜選択できる。

[0133] 上記の構成単位(1)及び構成単位(2)を少なくとも有するポリアミドイミド系樹脂の製造方法は、上記のポリアミドイミド系樹脂が得られる限り

特に限定されないが、光学フィルムの弾性率及び表面硬度を高めやすい観点からは、ジアミン化合物とテトラカルボン酸化合物とジカルボン酸化合物とを反応させる製造方法であって、ジカルボン酸化合物を分割添加する製造方法により、ポリアミドイミド系樹脂を製造することが好ましく、ジアミン化合物とテトラカルボン酸化合物とを反応させて中間体（A）を生成する工程（I）、及び、該中間体（A）とジカルボン酸化合物とを反応させる工程（II）を含み、該工程（II）において、該ジカルボン酸化合物を分割添加する方法によりポリアミドイミド系樹脂を製造することがより好ましい。

[0134] 構成単位（1）及び構成単位（2）を少なくとも有する本発明のポリアミドイミド系樹脂を、ジカルボン酸化合物を分割添加する方法を用いて製造することにより、光学フィルムの透過率及び弾性率を向上しやすいと考えられる。また、ジカルボン酸化合物を分割添加する方法を用いて製造することにより、樹脂の重量平均分子量も所望の範囲に調整しやすくなる。

[0135] したがって、本発明の光学フィルムに含まれるポリアミドイミド系樹脂、及び、本発明のポリアミドイミド系樹脂は、ジアミン化合物とテトラカルボン酸化合物とジカルボン酸化合物とを反応させる製造方法であって、ジカルボン酸化合物を分割添加する製造方法により製造された樹脂であることが好ましく、ジアミン化合物とテトラカルボン酸化合物とを反応させて中間体（A）を生成する工程（I）、及び、該中間体（A）とジカルボン酸化合物とを反応させる工程（II）を含む製造方法であって、該工程（II）において、該ジカルボン酸化合物を分割添加する製造方法により製造された樹脂であることがより好ましい。

[0136] 上記の工程（I）及び工程（II）を含む製造方法によりポリアミドイミド系樹脂を製造する場合、ジアミン化合物とテトラカルボン酸化合物とを反応させて中間体（A）を生成する工程（I）の反応温度は、特に限定されないが、例えば5～200℃、好ましくは5～100℃、より好ましくは5～50℃、さらに好ましくは5℃～室温（25℃程度）であってよい。反応時間は、例えば1分～72時間、好ましくは10分～24時間であってよい。

また、反応は空气中又は窒素やアルゴン等の不活性ガス雰囲気で攪拌しながら行ってよく、常圧下、加圧下又は減圧下で行ってもよい。好ましい実施態様では、常圧及び／又は前記不活性ガス雰囲気下、攪拌しながら行う。

[0137] 工程（Ⅰ）では、ジアミン化合物とテトラカルボン酸化合物とが反応して中間体（A）、すなわち、ポリアミック酸が生成する。そのため、中間体（A）はジアミン化合物由来の構成単位とテトラカルボン酸化合物由来の構成単位とを少なくとも有する。

[0138] 次に工程（ⅠⅠ）において、中間体（A）とジカルボン酸化合物とを反応させ、ここで、該ジカルボン酸化合物を分割添加することが好ましい。工程（Ⅰ）で得られた反応液にジカルボン酸化合物を分割添加し、中間体（A）とジカルボン酸化合物とを反応させる。ジカルボン酸化合物を一度に添加するのではなく、分割添加することにより、ポリアミドイミド系樹脂の分子量を上記の好ましい範囲に調整しやすい。なお、本明細書において、分割添加とは、添加するジカルボン酸化合物を何回かに分けて添加すること、より詳細には添加するジカルボン酸を特定量に分け、所定間隔又は所定時間あけてそれぞれ添加することを意味する。該所定間隔又は所定時間は非常に短い間隔又は時間も含まれるため、分割添加には連続添加又は連続フィードも含まれる。

[0139] 工程（ⅠⅠ）において、ジカルボン酸化合物を分割添加する際の分割回数は、反応スケールや原料の種類等により適宜選択でき、好ましくは2～20回、より好ましくは3～10回、さらに好ましくは3～6回である。分割回数が上記範囲であると、光学フィルムの透過率を維持しつつ、弾性率を高めるに最適な構造となりやすいと考えられる。また、ポリアミドイミド系樹脂の重量平均分子量も、上記の好ましい範囲に調整しやすいと考えられる。

[0140] ジカルボン酸化合物は、均等な量に分割して添加してもよく、不均等な量に分割して添加してもよい。各添加の間の時間（添加間隔という場合がある）は、全て同一であってもよいし、異なってもよい。また、ジカルボン酸化合物を二種以上添加する場合、用語「分割添加」は、全てのジカルボン

酸化合物の合計量を分割して添加することを意味し、各ジカルボン酸化合物の分割の仕方は特に限定されないが、例えば各ジカルボン酸化合物を別々一括又は分割添加してもよいし、各ジカルボン酸化合物と一緒に分割添加してもよいし、これらの組合せであってもよい。

[0141] 工程（１１）において、ポリアミド系樹脂の重量平均分子量が、得られるポリアミド系樹脂の重量平均分子量に対して好ましくは１０％以上、より好ましくは１５％以上に達した時点で、添加するジカルボン酸化合物の総モル量に対して好ましくは１～４０モル％、より好ましくは２～２５モル％のジカルボン酸化合物を添加することが好ましい。

[0142] 工程（１１）の反応温度は、特に限定されないが、例えば５～２００℃、好ましくは５～１００℃、より好ましくは５～５０℃、さらに好ましくは５～室温（２５℃程度）であってよい。また、反応は空气中又は窒素やアルゴン等の不活性ガス雰囲気で攪拌しながら行ってよく、常圧下、加圧下又は減圧下で行ってもよい。好ましい態様では、常圧及び／又は不活性ガス雰囲気下、攪拌しながら工程（１１）を行う。

[0143] 工程（１１）において、ジカルボン酸化合物を分割添加後、所定時間攪拌等して反応させることで、ポリアミドイミド前駆体を得られる。なお、ポリアミドイミド前駆体は、例えば、ポリアミドイミド前駆体を含む反応液に多量の水等を加え、ポリアミドイミド前駆体を析出させ、濾過、濃縮、乾燥等を行うことにより単離できる。

[0144] 工程（１１）では、中間体（Ａ）とジカルボン酸化合物とが反応してポリアミドイミド前駆体を得られる。そのため、ポリアミドイミド前駆体は、ジアミン化合物由来の構成単位、テトラカルボン酸由来の構成単位、及びジカルボン酸化合物由来の構成単位を少なくとも有するイミド化前（閉環前）のポリアミドイミドを示す。

[0145] 樹脂の製造において、ジアミン化合物、テトラカルボン酸化合物及びジカルボン酸化合物の反応温度は、特に限定されないが、例えば５～３５０℃、好ましくは５～２００℃、より好ましくは５～１００℃である。反応時間も

特に限定されないが、例えば30分～10時間程度である。必要に応じて、不活性雰囲気又は減圧の条件下において反応を行ってよい。好ましい態様では、反応は、常圧及び／又は不活性ガス雰囲気下、攪拌しながら行う。また、反応は、反応に不活性な溶媒中で行うことが好ましい。溶媒としては、反応に影響を与えない限り特に限定されないが、例えば、水、メタノール、エタノール、エチレングリコール、イソプロピルアルコール、プロピレングリコール、エチレングリコールメチルエーテル、エチレングリコールブチルエーテル、1-メトキシ-2-プロパノール、2-ブトキシエタノール、プロピレングリコールモノメチルエーテル等のアルコール系溶媒；酢酸エチル、酢酸ブチル、エチレングリコールメチルエーテルアセテート、 γ -ブチロラクトン、 γ -バレロラクトン、プロピレングリコールメチルエーテルアセテート、乳酸エチル等のエステル系溶媒；アセトン、メチルエチルケトン、シクロペンタノン、シクロヘキサノン、2-ヘプタノン、メチルイソブチルケトン等のケトン系溶媒；ペンタン、ヘキサン、ヘプタン等の脂肪族炭化水素溶媒；エチルシクロヘキサノン等の脂環式炭化水素溶媒；トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素溶媒；アセトニトリル等のニトリル系溶媒；テトラヒドロフラン及びジメトキシエタン等のエーテル系溶媒；クロロホルム及びクロロベンゼン等の塩素含有溶媒；N,N-ジメチルアセトアミド、N,N-ジメチルホルムアミド等のアミド系溶媒；ジメチルスルホン、ジメチルスルホキシド、スルホラン等の含硫黄系溶媒；エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート等のカーボネート系溶媒；及びそれらの組合せ（混合溶媒）などが挙げられる。これらの中でも、溶解性の観点から、アミド系溶媒を好適に使用できる。

[0146] ポリアミドイミド系樹脂の製造方法は、さらに、イミド化触媒の存在下、ポリアミドイミド前駆体をイミド化する工程（111）を含んでいてもよい。工程（11）で得たポリアミドイミド前駆体を工程（111）に供することにより、ポリアミドイミド前駆体の構成単位のうち、ポリアミック酸構造を有する構造単位部分がイミド化され（閉環され）、式（1）で表される構

成単位と式（２）で表される構成単位とを含むポリアミドイミド系樹脂を得ることができる。イミド化触媒としては、例えばトリプロピルアミン、ジブチルプロピルアミン、エチルジブチルアミン等の脂肪族アミン；N-エチルピペリジン、N-プロピルピペリジン、N-ブチルピロリジン、N-ブチルピペリジン、及びN-プロピルヘキサヒドロアゼピン等の脂環式アミン（単環式）；アザビシクロ〔2. 2. 1〕ヘプタン、アザビシクロ〔3. 2. 1〕オクタン、アザビシクロ〔2. 2. 2〕オクタン、及びアザビシクロ〔3. 2. 2〕ノナン等の脂環式アミン（多環式）；並びにピリジン、2-メチルピリジン（2-ピコリン）、3-メチルピリジン（3-ピコリン）、4-メチルピリジン（4-ピコリン）、2-エチルピリジン、3-エチルピリジン、4-エチルピリジン、2, 4-ジメチルピリジン、2, 4, 6-トリメチルピリジン、3, 4-シクロペンテノピリジン、5, 6, 7, 8-テトラヒドロイソキノリン、及びイソキノリン等の芳香族アミンが挙げられる。また、イミド化反応を促進しやすい観点から、イミド化触媒とともに、酸無水物を用いることが好ましい。酸無水物は、イミド化反応に用いられる慣用の酸無水物等が挙げられ、その具体例としては、無水酢酸、無水プロピオン酸、無水酪酸等の脂肪族酸無水物、フタル酸等の芳香族酸無水物などが挙げられる。

[0147] ポリアミドイミド系樹脂は、慣用の方法、例えば、濾過、濃縮、抽出、晶析、再結晶、カラムクロマトグラフィーなどの分離手段や、これらを組合せた分離手段により単離（分離精製）してもよく、好ましい態様では、ポリアミドイミド系樹脂を含む反応液に、多量のメタノール等のアルコールを加え、樹脂を析出させ、濃縮、濾過、乾燥等を行うことにより単離することができる。

[0148] ＜フィラー＞

本発明は、上記のポリアミドイミド系樹脂を含む光学フィルムも提供する。本発明の光学フィルムは、少なくとも１種のフィラーを含んでよい。フィラーとしては、例えば有機粒子、無機粒子などが挙げられ、好ましくは無機

粒子が挙げられる。無機粒子としては、シリカ、ジルコニア、アルミナ、チタニア、酸化亜鉛、酸化ゲルマニウム、酸化インジウム、酸化スズ、インジウムスズ酸化物（ITO）、酸化アンチモン、酸化セリウム等の金属酸化物粒子、フッ化マグネシウム、フッ化ナトリウム等の金属フッ化物粒子などが挙げられ、これらの中でも、光学フィルムの弾性率及び／又は引裂き強度を高め、耐衝撃性を向上しやすい観点から、好ましくはシリカ粒子、ジルコニア粒子、アルミナ粒子が挙げられ、より好ましくはシリカ粒子が挙げられる。これらのフィラーは単独又は2種以上を組合せて使用できる。

[0149] フィラー、好ましくはシリカ粒子の平均一次粒子径は、通常1 nm以上、好ましくは5 nm以上、より好ましくは10 nm以上、さらに好ましくは15 nm以上、とりわけ好ましくは20 nm以上であり、好ましくは100 nm以下、より好ましくは90 nm以下、さらに好ましくは80 nm以下、さらにより好ましくは70 nm以下、とりわけ好ましくは60 nm以下、とりわけより好ましくは50 nm以下、とりわけさらに好ましくは40 nm以下である。シリカ粒子の平均一次粒子径が上記範囲内であると、シリカ粒子の凝集を抑制し、得られる光学フィルムの光学特性を向上しやすい。フィラーの平均一次粒子径は、BET法により測定できる。なお、透過型電子顕微鏡や走査型電子顕微鏡の画像解析により、平均一次粒子径を測定してもよい。

[0150] 本発明の光学フィルムがフィラー、好ましくはシリカ粒子を含有する場合、フィラーの含有量は、光学フィルム100質量部に対して、通常0.1質量部以上、好ましくは1質量部以上、より好ましくは5質量部以上、さらに好ましくは10質量部以上、さらにさらに好ましくは20質量部以上、とりわけ好ましくは30質量部以上であり、好ましくは60質量部以下である。フィラーの含有量が上記の下限以上であると、得られる光学フィルムの弾性率を向上しやすい。また、フィラーの含有量が上記の上限以下であると、光学フィルムの光学特性を向上しやすい。

[0151] <紫外線吸収剤>

本発明の光学フィルムは、少なくとも1種の紫外線吸収剤を含んでもよい

。紫外線吸収剤は、樹脂材料の分野で紫外線吸収剤として通常用いられているものから、適宜選択することができる。紫外線吸収剤は、400nm以下の波長の光を吸収する化合物を含んでいてもよい。紫外線吸収剤としては、例えば、ベンゾフェノン系化合物、サリシレート系化合物、ベンゾトリアゾール系化合物、及びトリアジン系化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種の化合物が挙げられる。紫外線吸収剤は単独又は二種以上を組合せて使用できる。光学フィルムが紫外線吸収剤を含有することにより、樹脂の劣化が抑制されるため、本発明の光学フィルムを表示装置等に適用した場合に視認性を高めることができる。本明細書において、「系化合物」とは、当該「系化合物」が付される化合物の誘導体を指す。例えば、「ベンゾフェノン系化合物」とは、母体骨格としてのベンゾフェノンと、ベンゾフェノンに結合している置換基とを有する化合物を指す。

[0152] 本発明の光学フィルムが紫外線吸収剤を含有する場合、紫外線吸収剤の含有量は、光学フィルムに含まれるポリアミドイミド系樹脂の質量に対して、好ましくは0.01～10質量部、より好ましくは1～8質量部、さらに好ましくは2～7質量部である。紫外線吸収剤の含有量が上記の下限以上であると、紫外線吸収性を向上させやすい。紫外線吸収剤の含有量が上記の上限以下であると、基材製造時の熱による紫外線吸収剤の分解を抑制でき、光学特性を向上させやすく、例えばヘーズを低減させやすい。

[0153] <他の添加剤>

本発明の光学フィルムは、フィラー、紫外線吸収剤以外の他の添加剤をさらに含有していてもよい。他の添加剤としては、例えば、酸化防止剤、離型剤、安定剤、ブルーイング剤等の着色剤、難燃剤、pH調整剤、シリカ分散剤、滑剤、増粘剤、及びレベリング剤等が挙げられる。他の添加剤を含有する場合、その含有量は、光学フィルムの質量に対して、好ましくは0.001～20質量部、より好ましくは0.01～15質量部、さらに好ましくは0.1～10質量部であってよい。

[0154] (光学フィルムの製造方法)

本発明のポリアミドイミド系樹脂を用いて光学フィルムを製造する方法は、特に限定されないが、例えば以下の工程：

(a) 前記ポリアミドイミド系樹脂及び溶媒を少なくとも含むポリアミドイミド系樹脂組成物（以下において、「ワニス」とも称する）を調製する工程（ワニス調製工程）、

(b) ワニスを支持材に塗布して塗膜を形成する工程（塗布工程）、及び

(c) 塗布された液（塗膜）を乾燥させて、光学フィルムを形成する工程（光学フィルム形成工程）

を含む製造方法であってよい。

[0155] ワニス調製工程において、ポリアミドイミド系樹脂を溶媒に溶解させ、必要に応じて、前記フィラー、紫外線吸収剤等の添加剤を添加して攪拌混合することによりワニスを調製する。なお、フィラーとしてシリカ粒子を用いる場合、シリカ粒子を含むシリカゾルの分散液を、前記樹脂が溶解可能な溶媒、例えば下記のワニスの調製に用いられる溶媒で置換したシリカゾルを樹脂に添加してもよい。

[0156] ワニスの調製に用いる溶媒は、前記樹脂を溶解可能であれば特に限定されない。かかる溶媒としては、例えばN，N－ジメチルアセトアミド、N，N－ジメチルホルムアミド等のアミド系溶媒； γ －ブチロラクトン、 γ －バレロラクトン等のラクトン系溶媒；ジメチルスルホン、ジメチルスルホキシド、スルホラン等の含硫黄系溶媒；エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート等のカーボネート系溶媒；及びそれらの組合せ（混合溶媒）が挙げられる。これらの中でも、アミド系溶媒又はラクトン系溶媒が好ましい。これらの溶媒は単独又は二種以上組合せて使用できる。また、ワニスには水、アルコール系溶媒、ケトン系溶媒、非環状エステル系溶媒、エーテル系溶媒などが含まれてもよい。ワニスの固形分濃度は、好ましくは1～25質量%、より好ましくは5～20質量%、さらに好ましくは5～15質量%である。

[0157] 塗布工程において、公知の塗布方法により、支持材上にワニスを塗布して塗膜を形成する。公知の塗布方法としては、例えばワイヤーバーコーティン

グ法、リバースコーティング、グラビアコーティング等のロールコーティング法、ダイコート法、カンマコート法、リップコート法、スピンコーティング法、スクリーンコーティング法、ファウンテンコーティング法、ディッピング法、スプレー法、流涎成形法等が挙げられる。

[0158] フィルム形成工程において、塗膜を乾燥し、支持材から剥離することによって、光学フィルムを形成することができる。剥離後にさらに光学フィルムを乾燥する工程を設けてもよい。塗膜の乾燥は、通常50～350℃の温度にて行うことができる。必要に応じて、不活性雰囲気又は減圧の条件下において塗膜の乾燥を行ってよい。

[0159] 支持材の例としては、金属系であれば、SUS板、樹脂系であればPETフィルム、PENフィルム、ポリアミド系樹脂フィルム、ポリイミド系樹脂フィルム、シクロオレフィン系ポリマー(COP)フィルム、アクリル系フィルム等が挙げられる。中でも、平滑性、耐熱性に優れる観点から、PETフィルム、COPフィルム等が好ましく、さらに光学フィルムとの密着性及びコストの観点から、PETフィルムがより好ましい。

[0160] 本発明の光学フィルムの用途は特に限定されず、種々の用途に使用してよい。本発明の光学フィルムは、上記に述べたように単層であっても、積層体であってもよく、本発明の光学フィルムをそのまま使用してもよいし、さらに他のフィルムとの積層体として使用してもよい。なお、光学フィルムが積層体である場合、光学フィルムの片面又は両面に積層された全ての層を含めて光学フィルムと称する。

[0161] (機能層)

本発明の光学フィルムの少なくとも一方の面には、1以上の機能層が積層されていてもよい。機能層としては、例えば紫外線吸収層、ハードコート層、プライマー層、ガスバリア層、粘着層、色相調整層、屈折率調整層などが挙げられる。機能層は単独又は二種以上を組合せて使用できる。

[0162] 紫外線吸収層は、紫外線吸収の機能を有する層であり、例えば、紫外線硬化型の透明樹脂、電子線硬化型の透明樹脂、及び熱硬化型の透明樹脂から選

ばれる主材と、この主材に分散した紫外線吸収剤とから構成される。

[0163] 本発明の光学フィルムの少なくとも一方の面には、ハードコート層が設けられていてもよい。ハードコート層の厚さは特に限定されず、例えば、2～100 μm であってもよい。前記ハードコート層の厚さが前記の範囲にあると、十分な耐擦傷性を確保することができ、また耐屈曲性が低下しにくく、硬化収縮によるカール発生の問題が発生し難い傾向がある。

前記ハードコート層は、活性エネルギー線照射、或いは熱エネルギー付与により架橋構造を形成し得る反応性材料を含むハードコート組成物を硬化させて形成することができ、活性エネルギー線照射によるものが好ましい。活性エネルギー線は、活性種を発生する化合物を分解して活性種を発生させることができるエネルギー線と定義され、可視光、紫外線、赤外線、X線、 α 線、 β 線、 γ 線及び電子線などが挙げられ、好ましくは紫外線が挙げられる。前記ハードコート組成物は、ラジカル重合性化合物及びカチオン重合性化合物の少なくとも1種の重合物を含有する。

[0164] 前記ラジカル重合性化合物は、ラジカル重合性基を有する化合物である。前記ラジカル重合性化合物が有するラジカル重合性基としては、ラジカル重合反応を生じ得る官能基であればよく、炭素-炭素不飽和二重結合を含む基などが挙げられ、具体的には、ビニル基、(メタ)アクリロイル基などが挙げられる。なお、前記ラジカル重合性化合物が2個以上のラジカル重合性基を有する場合、これらのラジカル重合性基は、互いに同一であってもよいし、異なってもよい。前記ラジカル重合性化合物が1分子中に有するラジカル重合性基の数は、ハードコート層の硬度を向上する点から、好ましくは2以上である。前記ラジカル重合性化合物としては、反応性の高さの点から、好ましくは(メタ)アクリロイル基を有する化合物が挙げられ、具体的には1分子中に2～6個の(メタ)アクリロイル基を有する多官能アクリレートモノマーと称される化合物やエポキシ(メタ)アクリレート、ウレタン(メタ)アクリレート、ポリエステル(メタ)アクリレートと称される分子内に数個の(メタ)アクリロイル基を有する分子量が数百から数千のオリゴマ

ーが挙げられ、好ましくはエポキシ（メタ）アクリレート、ウレタン（メタ）アクリレート及びポリエステル（メタ）アクリレートから選択された1種以上が挙げられる。

[0165] 前記カチオン重合性化合物は、エポキシ基、オキセタニル基、ビニルエーテル基等のカチオン重合性基を有する化合物である。前記カチオン重合性化合物が1分子中に有するカチオン重合性基の数は、ハードコート層の硬度を向上する点から、好ましくは2以上であり、より好ましくは3以上である。

[0166] また、前記カチオン重合性化合物としては、中でも、カチオン重合性基としてエポキシ基及びオキセタニル基の少なくとも1種を有する化合物が好ましい。エポキシ基、オキセタニル基等の環状エーテル基は、重合反応に伴う収縮が小さいという点から好ましい。また、環状エーテル基のうちエポキシ基を有する化合物は多様な構造の化合物が入手し易く、得られたハードコート層の耐久性に悪影響を与えず、ラジカル重合性化合物との相溶性もコントロールし易いという利点がある。また、環状エーテル基のうちオキセタニル基は、エポキシ基と比較して重合度が高くなりやすく、得られたハードコート層のカチオン重合性化合物から得られるネットワーク形成速度を早め、ラジカル重合性化合物と混在する領域でも未反応のモノマーを膜中に残さずに独立したネットワークを形成する等の利点がある。

[0167] エポキシ基を有するカチオン重合性化合物としては、例えば、脂環族環を有する多価アルコールのポリグリシジルエーテル又は、シクロヘキセン環、シクロペンテン環含有化合物を、過酸化水素、過酸等の適当な酸化剤でエポキシ化する事によって得られる脂環族エポキシ樹脂；脂肪族多価アルコール、又はそのアルキレンオキサイド付加物のポリグリシジルエーテル、脂肪族長鎖多塩基酸のポリグリシジルエステル、グリシジル（メタ）アクリレートのホモポリマー、コポリマーなどの脂肪族エポキシ樹脂；ビスフェノールA、ビスフェノールFや水添ビスフェノールA等のビスフェノール類、又はそれらのアルキレンオキサイド付加体、カプロラクトン付加体等の誘導体と、エピクロルヒドリンとの反応によって製造されるグリシジルエーテル、及び

ノボラックエポキシ樹脂等でありビスフェノール類から誘導されるグリシジルエーテル型エポキシ樹脂等が挙げられる。

[0168] 前記ハードコート組成物は重合開始剤をさらに含むことができる。重合開始剤としては、ラジカル重合開始剤、カチオン重合開始剤、ラジカル及びカチオン重合開始剤等が挙げられ、適宜選択して用いられる。これらの重合開始剤は、活性エネルギー線照射及び加熱の少なくとも一種により分解されて、ラジカル又はカチオンを発生してラジカル重合とカチオン重合を進行させるものである。

ラジカル重合開始剤は、活性エネルギー線照射及び加熱の少なくともいずれかによりラジカル重合を開始させる物質を放出することが可能であればよい。例えば、熱ラジカル重合開始剤としては、過酸化水素、過安息香酸等の有機過酸化物、アゾビスブチロニトリル等のアゾ化合物等があげられる。

活性エネルギー線ラジカル重合開始剤としては、分子の分解でラジカルが生成されるType 1型ラジカル重合開始剤と、3級アミンと共存して水素引き抜き型反応でラジカルを生成するType 2型ラジカル重合開始剤があり、それらは単独で又は併用して使用される。

カチオン重合開始剤は、活性エネルギー線照射及び加熱の少なくともいずれかによりカチオン重合を開始させる物質を放出することが可能であればよい。カチオン重合開始剤としては、芳香族ヨードニウム塩、芳香族スルホニウム塩、シクロペンタジエニル鉄(II)錯体等が使用できる。これらは、構造の違いによって活性エネルギー線照射又は加熱のいずれか又はいずれでもカチオン重合を開始することができる。

[0169] 前記重合開始剤は、前記ハードコート組成物全体100質量%に対して好ましくは0.1～10質量%を含むことができる。前記重合開始剤の含量が前記の範囲にあると、硬化を十分に進行させることができ、最終的に得られる塗膜の機械的物性や密着力を良好な範囲とすることができ、また、硬化収縮による接着力不良や割れ現象及びカール現象が発生し難くなる傾向がある。

[0170] 前記ハードコート組成物は、溶剤及び添加剤からなる群から選択される一つ以上をさらに含むことができる。前記溶剤は、前記重合性化合物及び重合開始剤を溶解又は分散させることができるもので、本技術分野のハードコート組成物の溶剤として知られている溶剤であれば、本発明の効果を阻害しない範囲で、使用することができる。前記添加剤は、無機粒子、レベリング剤、安定剤、界面活性剤、帯電防止剤、潤滑剤、防汚剤などをさらに含むことができる。

[0171] 粘着層は、粘着性の機能を有する層であり、光学フィルムを他の部材に接着させる機能を有する。粘着層の形成材料としては、通常知られたものを用いることができる。例えば、熱硬化性樹脂組成物又は光硬化性樹脂組成物を用いることができる。この場合、事後的にエネルギーを供給することで樹脂組成物を高分子化し硬化させることができる。

[0172] 粘着層は、感圧型接着剤（Pressure Sensitive Adhesive、PSA）と呼ばれる、押圧により対象物に貼着される層であってもよい。感圧型接着剤は、「常温で粘着性を有し、軽い圧力で被着材に接着する物質」（JIS K 6800）である粘着剤であってもよく、「特定成分を保護被膜（マイクロカプセル）に内容し、適当な手段（圧力、熱等）によって被膜を破壊するまでは安定性を保持できる接着剤」（JIS K 6800）であるカプセル型接着剤であってもよい。

[0173] 色相調整層は、色相調整の機能を有する層であり、光学フィルムを含む積層体を目的の色相に調整することができる層である。色相調整層は、例えば、樹脂及び着色剤を含有する層である。この着色剤としては、例えば、酸化チタン、酸化亜鉛、弁柄、チタニウムオキサイド系焼成顔料、群青、アルミン酸コバルト、及びカーボンブラック等の無機顔料；アゾ系化合物、キナクリドン系化合物、アンスラキノン系化合物、ペリレン系化合物、イソインドリノン系化合物、フタロシアニン系化合物、キノフタロン系化合物、スレン系化合物、及びジケトピロロピロール系化合物等の有機顔料；硫酸バリウム、及び炭酸カルシウム等の体質顔料；並びに塩基性染料、酸性染料、及び媒

染料等の染料を挙げることができる。

[0174] 屈折率調整層は、屈折率調整の機能を有する層であり、例えば光学フィルムとは異なる屈折率を有し、光学積層体に所定の屈折率を付与することができる層である。屈折率調整層は、例えば、適宜選択された樹脂、及び場合によりさらに顔料を含有する樹脂層であってもよいし、金属の薄膜であってもよい。屈折率を調整する顔料としては、例えば、酸化珪素、酸化アルミニウム、酸化アンチモン、酸化錫、酸化チタン、酸化ジルコニウム及び酸化タンタルが挙げられる。該顔料の平均一次粒子径は、 $0.1\ \mu\text{m}$ 以下であってもよい。顔料の平均一次粒子径を $0.1\ \mu\text{m}$ 以下とすることにより、屈折率調整層を透過する光の乱反射を防止し、透明度の低下を防止することができる。屈折率調整層に用いられる金属としては、例えば、酸化チタン、酸化タンタル、酸化ジルコニウム、酸化亜鉛、酸化錫、酸化ケイ素、酸化インジウム、酸窒化チタン、窒化チタン、酸窒化ケイ素、窒化ケイ素等の金属酸化物又は金属窒化物が挙げられる。

[0175] 本発明の光学フィルムは、単層であっても、積層体であってもよく、例えば上記のようにして製造される光学フィルムをそのまま使用してもよいし、さらに他のフィルムとの積層体として使用してもよい。

[0176] 本発明の一実施態様において、光学フィルムは、少なくとも一方の面（片面又は両面）に保護フィルムを有していてもよい。例えば光学フィルムの片面に機能層を有する場合には、保護フィルムは、光学フィルム側の表面又は機能層側の表面に積層されていてもよく、光学フィルム側と機能層側の両方に積層されていてもよい。光学フィルムの両面に機能層を有する場合には、保護フィルムは、片方の機能層側の表面に積層されていてもよく、両方の機能層側の表面に積層されていてもよい。保護フィルムは、光学フィルム又は機能層の表面を一時的に保護するためのフィルムであり、光学フィルム又は機能層の表面を保護できる剥離可能なフィルムである限り特に限定されない。保護フィルムとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート等のポリエステル系樹脂フ

ィルム；ポリエチレン、ポリプロピレンフィルムなどのポリオレフィン系樹脂フィルム、アクリル系樹脂フィルム等が挙げられ、ポリオレフィン系樹脂フィルム、ポリエチレンテレフタレート系樹脂フィルム及びアクリル系樹脂フィルムからなる群から選択されることが好ましい。光学フィルムが保護フィルムを2つ有する場合、各保護フィルムは互いに同一であってもよいし、異なってもよい。

[0177] 保護フィルムの厚さは、特に限定されるものではないが、通常、 $10 \sim 120 \mu\text{m}$ 、好ましくは $15 \sim 110 \mu\text{m}$ 、より好ましくは $20 \sim 100 \mu\text{m}$ である。光学フィルムが保護フィルムを2つ有する場合、各保護フィルムの厚さは同じであってもよいし、異なってもよい。

[0178] 本発明の好ましい一実施形態において、本発明の光学フィルムは、表示装置の前面板、特にフレキシブル表示装置の前面板（以下、ウインドウフィルムと称することがある）として有用である。フレキシブル表示装置は、例えば、フレキシブル機能層と、フレキシブル機能層に重ねられて前面板として機能する光学フィルムを有する。すなわち、フレキシブル表示装置の前面板は、フレキシブル機能層の上の視認側に配置される。この前面板は、フレキシブル機能層を保護する機能を有する。

[0179] 表示装置としては、テレビ、スマートフォン、携帯電話、カーナビゲーション、タブレットPC、携帯ゲーム機、電子ペーパー、インジケータ、掲示板、時計、及びスマートウォッチ等のウェアラブルデバイス等が挙げられる。フレキシブル表示装置としては、フレキシブル特性を有する全ての表示装置が挙げられる。

[0180] [フレキシブル表示装置]

本発明は、本発明の光学フィルムを備える、フレキシブル表示装置も提供する。本発明の光学フィルムは、好ましくはフレキシブル表示装置において前面板として用いられ、該前面板はウインドウフィルムと称されることがある。該フレキシブル表示装置は、フレキシブル表示装置用積層体と、有機EL表示パネルとからなり、有機EL表示パネルに対して視認側にフレキシブ

ル表示装置用積層体が配置され、折り曲げ可能に構成されている。フレキシブル表示装置用積層体は、ウインドウフィルム、偏光板（好ましくは円偏光板）、タッチセンサを含有していてもよく、それらの積層順は任意であるが、視認側からウインドウフィルム、偏光板、タッチセンサ又はウインドウフィルム、タッチセンサ、偏光板の順に積層されていることが好ましい。タッチセンサの視認側に偏光板が存在すると、タッチセンサのパターンが視認されにくくなり表示画像の視認性が良くなるので好ましい。それぞれの部材は接着剤、粘着剤等を用いて積層することができる。また、前記ウインドウフィルム、偏光板、タッチセンサのいずれかの層の少なくとも一面に形成された遮光パターンを具備することができる。

[0181] [偏光板]

本発明のフレキシブル表示装置は、偏光板、好ましくは円偏光板をさらに備えてよい。円偏光板は、直線偏光板に $\lambda/4$ 位相差板を積層することにより右円偏光成分又は左円偏光成分のみを透過させる機能を有する機能層である。たとえば外光を右円偏光に変換して有機ELパネルで反射されて左円偏光となった外光を遮断し、有機ELの発光成分のみを透過させることで反射光の影響を抑制して画像を見やすくするために用いられる。円偏光機能を達成するためには、直線偏光板の吸収軸と $\lambda/4$ 位相差板の遅相軸は理論上 45° である必要があるが、実用的には $45 \pm 10^\circ$ である。直線偏光板と $\lambda/4$ 位相差板とは必ずしも隣接して積層される必要はなく、吸収軸と遅相軸の関係が前述の範囲を満足していればよい。全波長において完全な円偏光を達成することが好ましいが実用上は必ずしもその必要はないので本発明における円偏光板は楕円偏光板をも包含する。直線偏光板の視認側にさらに $\lambda/4$ 位相差フィルムを積層して、出射光を円偏光とすることで偏光サングラスをかけた状態での視認性を向上させることも好ましい。

[0182] 直線偏光板は、透過軸方向に振動している光は通すが、それとは垂直な振動成分の偏光を遮断する機能を有する機能層である。前記直線偏光板は、直線偏光子単独又は直線偏光子及びその少なくとも一面に貼り付けられた保護

フィルムを備えた構成であってもよい。前記直線偏光板の厚さは、 $200\mu\text{m}$ 以下であってもよく、好ましくは、 $0.5\sim 100\mu\text{m}$ である。厚さが前記の範囲にあると柔軟性が低下し難い傾向にある。

前記直線偏光子は、ポリビニルアルコール（PVA）系フィルムを染色、延伸することで製造されるフィルム型偏光子であってもよい。延伸によって配向したPVA系フィルムに、ヨウ素等の二色性色素が吸着、又はPVAに吸着した状態で延伸されることで二色性色素が配向し、偏光性能を発揮する。前記フィルム型偏光子の製造においては、他に膨潤、ホウ酸による架橋、水溶液による洗浄、乾燥等の工程を有していてもよい。延伸や染色工程はPVA系フィルム単独で行ってもよいし、ポリエチレンテレフタレートのような他のフィルムと積層された状態で行うこともできる。用いられるPVA系フィルムの厚さは好ましくは $10\sim 100\mu\text{m}$ であり、延伸倍率は好ましくは $2\sim 10$ 倍である。

さらに前記偏光子の他の一例としては、液晶偏光組成物を塗布して形成する液晶塗布型偏光子であってもよい。前記液晶偏光組成物は、液晶性化合物及び二色性色素化合物を含むことができる。前記液晶性化合物は液晶状態を示す性質を有していればよく、スメクチック相等の高次の配向状態を有していると高い偏光性能を発揮することができるため好ましい。また、液晶性化合物は重合性官能基を有していることも好ましい。

[0183] 前記二色性色素は、前記液晶化合物とともに配向して二色性を示す色素であって、二色性色素自身が液晶性を有していてもよいし、重合性官能基を有していることもできる。液晶偏光組成物の中のいずれかの化合物は重合性官能基を有している。

前記液晶偏光組成物はさらに開始剤、溶剤、分散剤、レベリング剤、安定剤、界面活性剤、架橋剤、シランカップリング剤などを含むことができる。

前記液晶偏光層は、配向膜上に液晶偏光組成物を塗布して液晶偏光層を形成することにより製造される。

液晶偏光層は、フィルム型偏光子に比べて厚さを薄く形成することができ

る。前記液晶偏光層の厚さは好ましくは $0.5 \sim 10 \mu\text{m}$ 、より好ましくは $1 \sim 5 \mu\text{m}$ であってもよい。

前記配向膜は、例えば基材上に配向膜形成組成物を塗布し、ラビング、偏光照射等により配向性を付与することで製造することができる。前記配向膜形成組成物は、配向剤の他に溶剤、架橋剤、開始剤、分散剤、レベリング剤、シランカップリング剤等を含んでいてもよい。前記配向剤としては、例えば、ポリビニルアルコール類、ポリアクリレート類、ポリアミック酸類、ポリイミド類を使用できる。光配向を適用する場合にはシンナメート基を含む配向剤を使用することが好ましい。前記配向剤として使用される高分子の重量平均分子量が $10,000 \sim 1,000,000$ 程度であってもよい。前記配向膜の厚さは、配向規制力の観点から、好ましくは $5 \sim 10,000 \text{ nm}$ 、より好ましくは $10 \sim 500 \text{ nm}$ である。前記液晶偏光層は基材から剥離して転写して積層することもできるし、前記基材をそのまま積層することもできる。前記基材が、保護フィルムや位相差板、ウインドウの透明基材としての役割を担うことも好ましい。

[0184] 前記保護フィルムとしては、透明な高分子フィルムであればよく、前記透明基材に使用される材料、添加剤が使用できる。セルロース系フィルム、オレフィン系フィルム、アクリルフィルム、ポリエステル系フィルムが好ましい。エポキシ樹脂等のカチオン硬化組成物やアクリレート等のラジカル硬化組成物を塗布して硬化して得られるコーティング型の保護フィルムであってもよい。必要により可塑剤、紫外線吸収剤、赤外線吸収剤、顔料や染料のような着色剤、蛍光増白剤、分散剤、熱安定剤、光安定剤、帯電防止剤、酸化防止剤、滑剤、溶剤等を含んでいてもよい。前記保護フィルムの厚さは、 $200 \mu\text{m}$ 以下であってもよく、好ましくは、 $1 \sim 100 \mu\text{m}$ である。前記保護フィルムの厚さが前記の範囲にあると、保護フィルムの柔軟性が低下し難い。保護フィルムは、ウインドウの透明基材の役割を兼ねることもできる。

[0185] 前記 $\lambda/4$ 位相差板は、入射光の進行方向に直交する方向（フィルムの面内方向）に $\lambda/4$ の位相差を与えるフィルムである。前記 $\lambda/4$ 位相差板は

、セルロース系フィルム、オレフィン系フィルム、ポリカーボネート系フィルム等の高分子フィルムを延伸することで製造される延伸型位相差板であってもよい。必要により位相差調整剤、可塑剤、紫外線吸収剤、赤外線吸収剤、顔料や染料のような着色剤、蛍光増白剤、分散剤、熱安定剤、光安定剤、帯電防止剤、酸化防止剤、滑剤、溶剤等を含んでいてもよい。前記延伸型位相差板の厚さは、 $200\mu\text{m}$ 以下であってもよく、好ましくは $1\sim100\mu\text{m}$ である。厚さが前記の範囲にあるとフィルムの柔軟性が低下し難い傾向にある。

さらに前記 $\lambda/4$ 位相差板の他の一例としては、液晶組成物を塗布して形成する液晶塗布型位相差板であってもよい。前記液晶組成物は、ネマチック、コレステリック、スメクチック等の液晶状態を示す性質を有する液晶性化合物を含む。液晶組成物の中の液晶性化合物を含むいずれかの化合物は重合性官能基を有している。前記液晶塗布型位相差板はさらに開始剤、溶剤、分散剤、レベリング剤、安定剤、界面活性剤、架橋剤、シランカップリング剤などを含むことができる。前記液晶塗布型位相差板は、前記液晶偏光層での記載と同様に配向膜上に液晶組成物を塗布硬化して液晶位相差層を形成することで製造することができる。液晶塗布型位相差板は、延伸型位相差板に比べて厚さを薄く形成することができる。前記液晶偏光層の厚さは、通常 $0.5\sim10\mu\text{m}$ 、好ましくは $1\sim5\mu\text{m}$ であってもよい。前記液晶塗布型位相差板は基材から剥離して転写して積層することもできるし、前記基材をそのまま積層することもできる。前記基材が、保護フィルムや位相差板、ウインドウの透明基材としての役割を担うことも好ましい。

[0186] 一般的には、短波長ほど複屈折が大きく長波長になるほど小さな複屈折を示す材料が多い。この場合には全可視光領域で $\lambda/4$ の位相差を達成することはできないので、視感度の高い 560nm 付近に対して $\lambda/4$ となるような面内位相差 $100\sim180\text{nm}$ 、好ましくは $130\sim150\text{nm}$ となるように設計されることが多い。通常とは逆の複屈折率波長分散特性を有する材料を用いた逆分散 $\lambda/4$ 位相差板を用いることは視認性をよくすることがで

きるので好ましい。このような材料としては延伸型位相差板の場合は特開 2007-232873 号公報等、液晶塗布型位相差板の場合には特開 2010-30979 号公報に記載されているものを用いることも好ましい。

また、他の方法としては $\lambda/2$ 位相差板と組合せることで広帯域 $\lambda/4$ 位相差板を得る技術も知られている（特開平 10-90521 号公報）。 $\lambda/2$ 位相差板も $\lambda/4$ 位相差板と同様の材料方法で製造される。延伸型位相差板と液晶塗布型位相差板との組合せは任意であるが、どちらも液晶塗布型位相差板を用いることは厚さを薄くすることができるので好ましい。

前記円偏光板には斜め方向の視認性を高めるために、正の C プレートを積層する方法も知られている（特開 2014-224837 号公報）。正の C プレートも液晶塗布型位相差板であっても延伸型位相差板であってもよい。厚さ方向の位相差は $-200 \sim -20 \text{ nm}$ 好ましくは $-140 \sim -40 \text{ nm}$ である。

[0187] [タッチセンサ]

本発明のフレキシブル表示装置は、タッチセンサをさらに備えていてもよい。タッチセンサは入力手段として用いられる。タッチセンサとしては、抵抗膜方式、表面弾性波方式、赤外線方式、電磁誘導方式、静電容量方式等様々な様式が提案されており、いずれの方式でも構わない。中でも静電容量方式が好ましい。静電容量方式タッチセンサは活性領域及び前記活性領域の外郭部に位置する非活性領域に区分される。活性領域は表示パネルで画面が表示される表示部である領域に対応する領域であって、使用者のタッチが感知される領域であり、非活性領域は表示装置で画面が表示されない非表示部である領域に対応する領域である。タッチセンサはフレキシブルな特性を有する基板と；前記基板の活性領域に形成された感知パターンと；前記基板の非活性領域に形成され、前記感知パターンとパッド部を介して外部の駆動回路と接続するための各センシングラインを含むことができる。フレキシブルな特性を有する基板としては、前記ウインドウの透明基板と同様の材料が使用できる。タッチセンサの基板は、その靱性が $2,000 \text{ MPa} \%$ 以上である

ものがタッチセンサのクラック抑制の面から好ましい。より好ましくは靱性が2,000~30,000MPa%であってもよい。ここで、靱性は、高分子材料の引張実験を通じて得られる応力(MPa)×歪み(%)曲線(Stress-strain curve)で破壊点までの曲線の下部面積として定義される。

[0188] 前記感知パターンは、第1方向に形成された第1パターン及び第2方向に形成された第2パターンを備えることができる。第1パターンと第2パターンは互いに異なる方向に配置される。第1パターン及び第2パターンは、同一層に形成され、タッチされる地点を感知するためには、それぞれのパターンが電氣的に接続されなければならない。第1パターンは各单位パターンが継ぎ手を介して互いに接続された形態であるが、第2パターンは各单位パターンがアイランド形態に互いに分離された構造になっているので、第2パターンを電氣的に接続するためには別途のブリッジ電極が必要である。感知パターンは周知の透明電極素材を適用することができる。例えば、インジウムスズ酸化物(ITO)、インジウム亜鉛酸化物(IZO)、亜鉛酸化物(ZnO)、インジウム亜鉛スズ酸化物(IZTO)、インジウムガリウム亜鉛酸化物(IGZO)、カドミウムスズ酸化物(CTO)、PEDOT(poly(3,4-ethylenedioxythiophene))、炭素ナノチューブ(CNT)、グラフェン、金属ワイヤなどを挙げることができる。これらは単独又は2種以上混合して使用することができる。好ましくはITOを使用することができる。金属ワイヤに使用される金属は特に限定されず、例えば、銀、金、アルミニウム、銅、鉄、ニッケル、チタン、セレンウム、クロムなどを挙げることができる。これらは単独又は2種以上混合して使用することができる。

[0189] ブリッジ電極は感知パターン上部に絶縁層を介して前記絶縁層上部に形成することができる。基板上にブリッジ電極が形成されており、その上に絶縁層及び感知パターンを形成することができる。前記ブリッジ電極は感知パターンと同じ素材で形成することもでき、モリブデン、銀、アルミニウム、銅、パラジウム、金、白金、亜鉛、スズ、チタン又はこれらのうちの2種以上の

合金などの金属で形成することもできる。第1パターンと第2パターンは電氣的に絶縁されなければならないので、感知パターンとブリッジ電極の間には絶縁層が形成される。絶縁層は第1パターンの継ぎ手とブリッジ電極の間にのみ形成することもでき、感知パターンを覆う層の構造に形成することもできる。後者の場合は、ブリッジ電極は絶縁層に形成されたコンタクトホールを介して第2パターンを接続することができる。前記タッチセンサはパターンが形成されたパターン領域と、パターンが形成されていない非パターン領域間の透過率の差、具体的には、これらの領域における屈折率の差によって誘発される光透過率の差を適切に補償するための手段として基板と電極の間に光学調節層をさらに含むことができ、前記光学調節層は無機絶縁物質又は有機絶縁物質を含むことができる。光学調節層は光硬化性有機バインダー及び溶剤を含む光硬化組成物を基板上にコーティングして形成することができる。前記光硬化組成物は無機粒子をさらに含むことができる。前記無機粒子によって光学調節層の屈折率を上昇させることができる。

前記光硬化性有機バインダーは、例えば、アクリレート系単量体、スチレン系単量体、カルボン酸系単量体などの各単量体の共重合体を含むことができる。前記光硬化性有機バインダーは、例えば、エポキシ基含有繰返し単位、アクリレート繰返し単位、カルボン酸繰返し単位などの互いに異なる各繰返し単位を含む共重合体であってもよい。

前記無機粒子は、例えば、ジルコニア粒子、チタニア粒子、アルミナ粒子などを含むことができる。前記光硬化組成物は、光重合開始剤、重合性モノマー、硬化補助剤などの各添加剤をさらに含むこともできる。

[0190] [接着層]

前記フレキシブル表示装置用積層体を形成する、ウインドウフィルム、偏光板、タッチセンサ等の各層、並びに各層を構成する直線偏光板、 $\lambda/4$ 位相差板等のフィルム部材は接着剤によって接着することができる。接着剤としては、水系接着剤、有機溶剤系接着剤、無溶剤系接着剤、固体接着剤、溶剤揮散型接着剤、水系溶剤揮散型接着剤、湿気硬化型接着剤、加熱硬化型接

着剤、嫌気硬化型接着剤、活性エネルギー線硬化型接着剤、硬化剤混合型接着剤、熱溶融型接着剤、感圧型接着剤、感圧型粘着剤、再湿型接着剤等、汎用に使用されているものが使用できる。中でも水系溶剤揮散型接着剤、活性エネルギー線硬化型接着剤、粘着剤がよく用いられる。接着層の厚さは、求められる接着力等に応じて適宜調節することができ、例えば0.01～500 μm 、好ましくは0.1～300 μm である。接着層は、前記フレキシブル表示装置用積層体には複数存在してよいが、それぞれの厚さ及び用いられる接着剤の種類は同一であってもよいし、異なってもよい。

[0191] 前記水系溶剤揮散型接着剤としてはポリビニルアルコール系ポリマー、でんぷん等の水溶性ポリマー、エチレン-酢酸ビニル系エマルジョン、スチレン-ブタジエン系エマルジョン等水分散状態のポリマーを主剤ポリマーとして使用することができる。水、前記主剤ポリマーに加えて、架橋剤、シラン系化合物、イオン性化合物、架橋触媒、酸化防止剤、染料、顔料、無機フィラー、有機溶剤等を配合してもよい。前記水系溶剤揮散型接着剤によって接着する場合、前記水系溶剤揮散型接着剤を被接着層間に注入して被着層を貼合した後、乾燥させることで接着性を付与することができる。前記水系溶剤揮散型接着剤を用いる場合の接着層の厚さは0.01～10 μm 、好ましくは0.1～1 μm であってもよい。前記水系溶剤揮散型接着剤を複数層の形成に用いる場合、それぞれの層の厚さ及び前記接着剤の種類は同一であってもよいし、異なってもよい。

[0192] 前記活性エネルギー線硬化型接着剤は、活性エネルギー線を照射して接着剤層を形成する反応性材料を含む活性エネルギー線硬化組成物の硬化により形成することができる。前記活性エネルギー線硬化組成物は、ハードコート組成物と同様のラジカル重合性化合物及びカチオン重合性化合物の少なくとも1種の重合物を含有することができる。前記ラジカル重合性化合物とは、ハードコート組成物と同様であり、ハードコート組成物と同様の種類のものが使用できる。接着層に用いられるラジカル重合性化合物としてはアクリロイル基を有する化合物が好ましい。接着剤組成物としての粘度を下げるため

に単官能の化合物を含むことも好ましい。

[0193] 前記カチオン重合性化合物は、ハードコート組成物と同様であり、ハードコート組成物と同様の種類のものが使用できる。活性エネルギー線硬化組成物に用いられるカチオン重合性化合物としては、エポキシ化合物がより好ましい。接着剤組成物の粘度を下げるために単官能の化合物を反応性希釈剤として含むことも好ましい。

活性エネルギー線組成物には重合開始剤をさらに含むことができる。重合開始剤としては、ラジカル重合開始剤、カチオン重合開始剤、ラジカル及びカチオン重合開始剤等であり、適宜選択して用いることができる。これらの重合開始剤は、活性エネルギー線照射及び加熱の少なくとも一種により分解されて、ラジカル又はカチオンを発生してラジカル重合とカチオン重合を進行させるものである。ハードコート組成物の記載の中で活性エネルギー線照射によりラジカル重合又はカチオン重合の内の少なくともいずれか開始することができる開始剤を使用することができる。

[0194] 前記活性エネルギー線硬化組成物はさらに、イオン捕捉剤、酸化防止剤、連鎖移動剤、密着付与剤、熱可塑性樹脂、充填剤、流動粘度調整剤、可塑剤、消泡剤溶剤、添加剤、溶剤を含むことができる。前記活性エネルギー線硬化型接着剤によって接着する場合、前記活性エネルギー線硬化組成物を被接着層のいずれか又は両方に塗布後貼合し、いずれかの被着層又は両方の被着層を通して活性エネルギー線を照射して硬化させることで接着することができる。前記活性エネルギー線硬化型接着剤を用いる場合の接着層の厚さは0.01～20 μm 、好ましくは0.1～10 μm であってもよい。前記活性エネルギー線硬化型接着剤を複数層の形成に用いる場合には、それぞれの層の厚さ及び用いられる接着剤の種類は同一であってもよいし、異なってもよい。

[0195] 前記粘着剤としては、主剤ポリマーに応じて、アクリル系粘着剤、ウレタン系粘着剤、ゴム系粘着剤、シリコン系粘着剤等に分類され何れを使用することもできる。粘着剤には主剤ポリマーに加えて、架橋剤、シラン系化合

物、イオン性化合物、架橋触媒、酸化防止剤、粘着付与剤、可塑剤、染料、顔料、無機フィラー等を配合してもよい。前記粘着剤を構成する各成分を溶剤に溶解・分散させて粘着剤組成物を得て、該粘着剤組成物を基材上に塗布した後に乾燥させることで、粘着層（接着層）が形成される。粘着層は直接形成されてもよいし、別途基材に形成したものを転写することもできる。接着前の粘着面をカバーするためには離型フィルムを使用することも好ましい。前記粘着剤を用いる場合の接着層の厚さは1～500 μ m、好ましくは2～300 μ mであってもよい。前記粘着剤を複数層の形成に用いる場合、それぞれの層の厚さ及び用いられる粘着剤の種類は同一であってもよいし、異なってもよい。

[0196] [遮光パターン]

前記遮光パターンは前記フレキシブル表示装置のベゼル又はハウジングの少なくとも一部として適用することができる。遮光パターンによって前記フレキシブル表示装置の辺縁部に配置される配線が隠されて視認されにくくすることで、画像の視認性が向上する。前記遮光パターンは単層又は複層の形態であってもよい。遮光パターンのカラーは特に制限されることはなく、黒色、白色、金属色などの多様なカラーを有することができる。遮光パターンはカラーを具現するための顔料と、アクリル系樹脂、エステル系樹脂、エポキシ系樹脂、ポリウレタン、シリコンなどの高分子で形成することができる。これらの単独又は2種類以上の混合物で使用することもできる。前記遮光パターンは、印刷、リソグラフィ、インクジェットなど各種の方法にて形成することができる。遮光パターンの厚さは、通常1～100 μ m、好ましくは2～50 μ mである。また、遮光パターンの厚さ方向に傾斜等の形状を付与することも好ましい。

実施例

[0197] 以下、実施例により本発明をさらに詳細に説明する。例中の「%」及び「部」は、特記しない限り、質量%及び質量部を意味する。まず評価方法について説明する。

[0198] <弾性率の測定>

実施例及び比較例において得られたポリアミドイミドフィルムの弾性率を(株)島津製作所製「オートグラフAG-IS」を用いて測定した。縦横10mm幅のフィルムを作製し、チャック間距離50mm、引張速度10mm/分の条件で応力-歪曲線(S-S曲線)を測定し、その傾きから弾性率を算出した。

[0199] <光線透過率の測定>

サンプルの全光線透過率 T_t を、JIS K 7105:1981に準拠して、スガ試験機(株)製の全自動直読ヘイズコンピュータHGM-2DPにより、実施例及び比較例で得られた光学フィルムを測定した。

[0200] <表面硬度の測定>

実施例及び比較例において得られたポリアミドイミドフィルムの表面硬度として、JIS K 5600-5-4:1999に準拠して、フィルム表面の鉛筆硬度を採用した。荷重は100g、走査速度60mm/分とし、4,000ルクスの環境下で、傷の有無の評価を行い、表面硬度鉛筆硬度で表される表面硬度を測定した。

[0201] <重量平均分子量の測定>

ゲル浸透クロマトグラフィー(GPC)測定

(1) 前処理方法

サンプルにDMF溶離液(10mmol/L臭化リチウム溶液)を濃度2mg/mLとなるように加え、80℃にて30分間攪拌しながら加熱し、冷却後、0.45 μ mメンブランフィルターろ過したものを測定溶液とした。

(2) 測定条件

カラム: 東ソー(株)製TSKgel α -2500((7)7.8mm径×300mm)×1本、 α -M((13)7.8mm径×300mm)×2本

溶離液: DMF(10mmol/Lの臭化リチウム添加)

流量: 1.0mL/分

検出器：RI検出器

カラム温度：40℃

注入量：100μL

分子量標準：標準ポリスチレン

[0202] <厚さの測定>

実施例及び比較例で得られたポリアミドイミドフィルムの厚さは、マイクロメーター（（株）ミットヨ製「ID-C112XBS」）を用いて測定した。

[0203] <実施例1>

[ポリアミドイミド樹脂（1）の調製]

窒素雰囲気下、攪拌翼を備えたセパラブルフラスコに、2, 2'-ビス（トリフルオロメチル）ベンジジン（TFMB）及びN, N-ジメチルアセトアミド（DMAc）をTFMBの固形分が5.39質量%となるように加え、さらに4, 4'-（ヘキサフルオロプロピリデン）ジアニリン（6FDAM）をTFMBに対して11.11mol%加え、室温で攪拌しながらTFMBと6FDAMをDMAc中に溶解させた。次に、フラスコに3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物（BPDA）をTFMBに対して33.50mol%になるように添加し、室温で3時間攪拌した。その後、10℃に冷却した後に、4, 4'-オキシビス（ベンゾイルクロライド）（OBBC）をTFMBに対して5.59mol%、テレフタル酸クロライド（TPC）をTFMBに対して30.15mol%になるように加え、10分攪拌後に、さらにOBBCをTFMBに対して5.59mol%、TPCを30.15mol%になるように加え、30分間攪拌した。その後、はじめに加えたDMAcと同量のDMAcを加え、10分間攪拌した後に、TPCをTFMBに対して6.70mol%になるように加え、2時間攪拌した。次いで、フラスコにジイソプロピルエチルアミンと4-ピコリンをそれぞれTFMBに対して78.17mol%、無水酢酸をTFMBに対して234.51mol%とを加え、30分間攪拌した後、内温を70℃に昇温

し、さらに3時間攪拌し、反応液を得た。

得られた反応液を室温まで冷却し、大量のメタノール中に糸状に投入し、析出した沈殿物を取り出し、メタノール中に6時間浸漬後、メタノールで洗浄した。次に、60℃にて沈殿物の減圧乾燥を行い、ポリアミドイミド樹脂(1)を得た。ポリアミドイミド樹脂(1)の重量平均分子量は、583,000であった。

[0204] [ポリアミドイミドフィルム(1)の製造]

得られたポリアミドイミド樹脂(1)に、濃度が10質量%となるようにDMAcを加え、ポリアミドイミドワニス(1)を作製した。得られたポリアミドイミドワニス(1)をポリエステル基材(東洋紡(株)製、商品名「A4100」)の平滑面上に自立膜の厚さが50μmとなるようにアプリケーションターを用いて塗工し、50℃で30分間、次いで140℃で15分間乾燥し、自立膜を得た。自立膜を金枠に固定し、さらに200℃で60分間乾燥し、厚さ45μmのポリアミドイミドフィルム(1)を得た。

[0205] <実施例2>

[ポリアミドイミド樹脂(2)の調製]

窒素雰囲気下、攪拌翼を備えたセパラブルフラスコに、TFMB及びDMAcをTFMBの固形分が5.60質量%となるように加え、さらに6FDAMをTFMBに対して11.11mol%加え、室温で攪拌しながらTFMBと6FDAMをDMAc中に溶解させた。次に、フラスコにピロメリット酸二無水物(PMDA)をTFMBに対して33.50mol%になるように添加し、室温で3時間攪拌した。その後、10℃に冷却した後に、OBBCをTFMBに対して5.59mol%、TPCをTFMBに対して30.15mol%になるように加え、10分攪拌後に、さらにOBBCをTFMBに対して5.59mol%、TPCを30.15mol%になるように加え、30分間攪拌した。その後、はじめに加えたDMAcと同量のDMAcを加え、10分間攪拌した後に、TPCをTFMBに対して6.70mol%になるように加え、2時間攪拌した。次いで、フラスコにジイソプロピ

ルエチルアミンと4-ピコリンをそれぞれTFMBに対して78.17mol%、無水酢酸をTFMBに対して234.51mol%とを加え、30分間攪拌した後、内温を70℃に昇温し、さらに3時間攪拌し、反応液を得た。

得られた反応液を室温まで冷却し、大量のメタノール中に糸状に投入し、析出した沈殿物を取り出し、メタノール中に6時間浸漬後、メタノールで洗浄した。次に、60℃にて沈殿物の減圧乾燥を行い、ポリアミドイミド樹脂(2)を得た。ポリアミドイミド樹脂(2)の重量平均分子量は、436,000であった。

[0206] [ポリアミドイミドフィルム(2)の製造]

得られたポリアミドイミド樹脂(2)に、濃度が10質量%となるようにDMAcを加え、ポリアミドイミドワニス(2)を作製した。得られたポリアミドイミドワニス(2)をポリエステル基材(東洋紡(株)製、商品名「A4100」)の平滑面上に自立膜の厚さが55μmとなるようにアプリケーションターを用いて塗工し、50℃で30分間、次いで140℃で15分間乾燥し、自立膜を得た。自立膜を金枠に固定し、さらに200℃で60分間乾燥し、厚さ50μmのポリアミドイミドフィルム(2)を得た。

[0207] <比較例1>

[ポリアミドイミド樹脂(3)の調製]

窒素雰囲気下、攪拌翼を備えたセパラブルフラスコに、TFMB及びDMAcをTFMBの固形分が5.54質量%となるように加え、室温で攪拌しながらTFMBをDMAc中に溶解させた。次に、フラスコに4,4'-ヘキサフルオロイソプロピリデンジフタル酸二無水物(6FDA)をTFMBに対して30.20mol%になるように添加し、室温で3時間攪拌した。その後、10℃に冷却した後に、OBBCをTFMBに対して10.07mol%、TPCをTFMBに対して54.35mol%になるように加え、30分間攪拌した。その後、はじめに加えたDMAcと同量のDMAcを加え、10分間攪拌した後に、TPCをTFMBに対して6.04mol%

%になるように加え、2時間攪拌した。次いで、フラスコにジイソプロピルエチルアミンと4-ピコリンをそれぞれTFMBに対して70.46mol%、無水酢酸をTFMBに対して211.37mol%とを加え、30分間攪拌した後、内温を70℃に昇温し、さらに3時間攪拌し、反応液を得た。

得られた反応液を室温まで冷却し、大量のメタノール中に糸状に投入し、析出した沈殿物を取り出し、メタノール中に6時間浸漬後、メタノールで洗浄した。次に、60℃にて沈殿物の減圧乾燥を行い、ポリアミドイミド樹脂(3)を得た。ポリアミドイミド樹脂(3)の重量平均分子量は、402,000であった。

[0208] [ポリアミドイミドフィルム(3)の製造]

得られたポリアミドイミド樹脂(3)に、濃度が10質量%となるようにDMAcを加え、ポリアミドイミドワニス(3)を作製した。得られたポリアミドイミドワニス(3)をポリエステル基材(東洋紡(株)製、商品名「A4100」)の平滑面上に自立膜の厚さが55μmとなるようにアプリケーションターを用いて塗工し、50℃で30分間、次いで140℃で15分間乾燥し、自立膜を得た。自立膜を金枠に固定し、さらに200℃で60分間乾燥し、厚さ50μmのポリアミドイミドフィルム(3)を得た。

[0209] <比較例2>

[ポリアミドイミド樹脂(4)の調製]

窒素雰囲気下、攪拌翼を備えたセパラブルフラスコに、TFMB及びDMAcをTFMBの固形分が5.35質量%となるように加え、室温で攪拌しながらTFMBをDMAc中に溶解させた。次に、フラスコに6FDAをTFMBに対して41.24mol%になるように添加し、室温で3時間攪拌した。その後、10℃に冷却した後に、TPCをTFMBに対して55.67mol%になるように加え、30分間攪拌した。その後、はじめに加えたDMAcと同量のDMAcを加え、10分間攪拌した後に、TPCをTFMBに対して6.19mol%になるように加え、2時間攪拌した。次いで、フラスコにジイソプロピルエチルアミンと4-ピコリンをそれぞれTFMB

に対して61.86mol%、無水酢酸をTFMBに対して288.66mol%とを加え、30分間攪拌した後、内温を70℃に昇温し、さらに3時間攪拌し、反応液を得た。

得られた反応液を室温まで冷却し、大量のメタノール中に糸状に投入し、析出した沈殿物を取り出し、メタノール中に6時間浸漬後、メタノールで洗浄した。次に、60℃にて沈殿物の減圧乾燥を行い、ポリアミドイミド樹脂(4)を得た。ポリアミドイミド樹脂(4)の重量平均分子量は、174,000であった。

[0210] [ポリアミドイミドフィルム(4)の製造]

得られたポリアミドイミド樹脂(4)に、濃度が10質量%となるようにDMAcを加え、ポリアミドイミドワニス(4)を作製した。得られたポリアミドイミドワニス(4)をポリエステル基材(東洋紡(株)製、商品名「A4100」)の平滑面上に自立膜の厚さが55μmとなるようにアプリケーションターを用いて塗工し、50℃で30分間、次いで140℃で15分間乾燥し、自立膜を得た。自立膜を金枠に固定し、さらに200℃で60分間乾燥し、厚さ50μmのポリアミドイミドフィルム(4)を得た。

[0211] ポリアミドイミド系樹脂フィルム(1)～(4)の弾性率、光線透過率及び表面硬度(鉛筆硬度)を上記の方法に従い測定した。得られた結果を表1に示す。

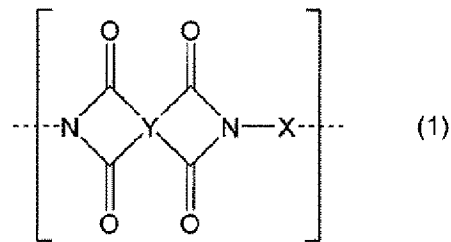
[0212] [表1]

		樹脂 フィルム	弾性率 [GPa]	光線透過率 [%]	鉛筆 硬度
実施例	1	(1)	6.5	90	F
	2	(2)	6.2	90	HB
比較例	1	(3)	5.1	92	HB
	2	(4)	4.7	92	<6B

請求の範囲

[請求項1] 式(1) :

[化1]

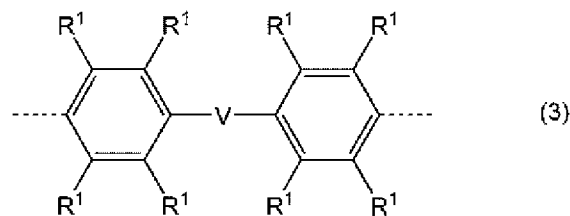


[式(1)中、

Yは、置換基を有していてもよい4価の芳香族基を表し、

Xは、式(3) :

[化2]



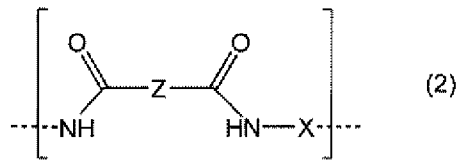
[式(3)中、R¹は、互いに独立に、水素原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基又は炭素数6～12のアリール基を表し、R¹に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよく、

Vは、 $-O-$ 、ジフェニルメチレン基、炭素数1～12の直鎖状、分枝状又は脂環式の2価の炭化水素基、 $-SO_2-$ 、 $-S-$ 、 $-CO-$ 又は $-N(R^{12})-$ を表し、ここで、該炭化水素基に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよく、R¹²は、水素原子、又はハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数1～12のアルキル基を表す]

で表される2価の有機基を表す]

で表される構成単位、及び、式(2) :

[化3]



[式（２）中、Zは２価の有機基を表し、

Xは前記式（１）において定義した通りである]

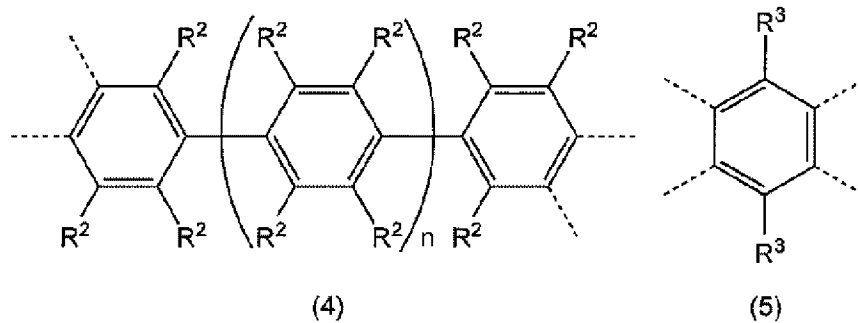
で表される構成単位を少なくとも有するポリアミドイミド系樹脂。

[請求項2]

式（３）中のVは炭素数１～１２の直鎖状、分枝状又は脂環式の２価の炭化水素基を表し、ここで、該炭化水素基に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよい、請求項１に記載のポリアミドイミド系樹脂。

[請求項3]

式（１）で表される構成単位は、Yとして、式（４）で表される４価の芳香族基及び／又は式（５）で表される４価の芳香族基：



[式（４）及び式（５）中、R²及びR³は、互いに独立に、水素原子、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６のアルコキシ基又は炭素数６～１２のアリール基を表し、R²及びR³に含まれる水素原子は、互いに独立に、ハロゲン原子で置換されていてもよく、

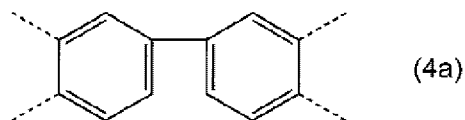
nは０～２の整数を表す]

を含む、請求項１又は２に記載のポリアミドイミド系樹脂。

[請求項4]

式（４）は式（４a）：

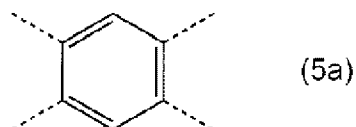
[化4]



で表される、請求項3に記載のポリアミドイミド系樹脂。

[請求項5] 式(5)は式(5a)：

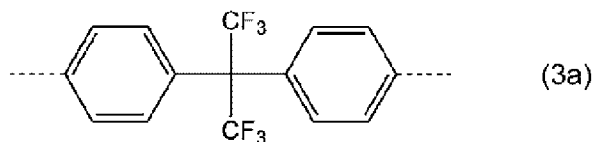
[化5]



で表される、請求項3に記載のポリアミドイミド系樹脂。

[請求項6] 式(3)は式(3a)：

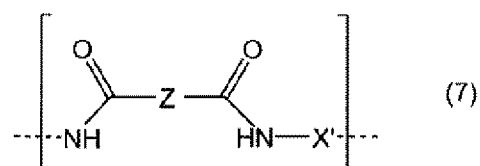
[化6]



で表される、請求項1～5のいずれかに記載のポリアミドイミド系樹脂。

[請求項7] ポリアミドイミド系樹脂は、少なくともZにおいて互いに異なる2種以上の式(2)で表される構成単位を有する、少なくともXにおいて互いに異なる2種以上の式(2)で表される構成単位を有する、及び／又は、式(7)：

[化7]

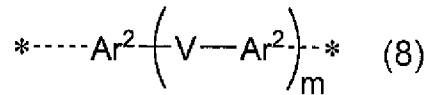


[式(7)中、Zは式(1)において定義した通りであり、
X' は、式(2)中のXに該当しない2価の有機基を表す]

で表される構成単位をさらに有する、請求項 1 ～ 6 のいずれかに記載のポリアミドイミド系樹脂。

[請求項 8] 式 (7) 中の X' は式 (8) :

[化 8]



[式 (8) 中、Ar²は置換基を有していてもよい 2 価の芳香族基を表し、

V は単結合を表し、

m は 0 ～ 3 の整数を表し、

* は結合手を表す]

で表される、請求項 7 に記載のポリアミドイミド系樹脂。

[請求項 9] 式 (2) で表される構成単位及び式 (7) で表される構成単位の合計を 100 モル%としたときに、式 (2) で表される構成単位の割合は 1 ～ 50 モル%である請求項 7 又は 8 に記載のポリアミドイミド系樹脂。

[請求項 10] 式 (2) で表される構成単位は、Z として、置換基を有していてもよい 2 価の芳香族基を含む、請求項 1 ～ 9 のいずれかに記載のポリアミドイミド系樹脂。

[請求項 11] 請求項 1 ～ 10 のいずれかに記載のポリアミドイミド系樹脂を含む光学フィルム。

[請求項 12] 請求項 11 に記載の光学フィルムを備えるフレキシブル表示装置。

[請求項 13] タッチセンサをさらに備える、請求項 12 に記載のフレキシブル表示装置。

[請求項 14] 偏光板をさらに備える、請求項 12 又は 13 に記載のフレキシブル表示装置。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/050539

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl. G08G73/14 (2006.01) i, G02B5/30 (2006.01) i
FI: C08G73/14, G02B5/30

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. C08G73/14, G02B5/30

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 1971-2020

Registered utility model specifications of Japan 1996-2020

Published registered utility model applications of Japan 1994-2020

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	JP 2004-143051 A (CHISSO CORP.) 20 May 2004, claims 9-13, paragraphs [0073]-[0083], [0096]-[0157], experimental example 9	1-14
P, A	JP 2019-031670 A (SAMSUNG ELECTRONICS CO., LTD.) 28 February 2019, claim 1, paragraphs [0146]-[0150], example 1	1-14

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

☒ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
26.02.2020

Date of mailing of the international search report
10.03.2020

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

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2019/050539

Patent Documents referred to in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2004-143051 A	20.05.2004	(Family: none)	
JP 2019-031670 A	28.02.2019	US 2019/0048144 A1 claim 1, paragraphs [0185]-[0189], example 1 US 2019/0048145 A1 EP 3441418 A1 KR 10-2019-0016809 A CN 109384923 A	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08G 73/14(2006.01)i; G02B 5/30(2006.01)i FI: C08G73/14; G02B5/30														
B. 調査を行った分野														
調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） C08G73/14; G02B5/30														
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの														
<table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922 - 1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971 - 2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2020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 - 2020年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2020年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2020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 - 2020年													
日本国実用新案登録公報	1996 - 2020年													
日本国登録実用新案公報	1994 - 2020年													
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語） CAplus/REGISTRY (STN)														
C. 関連すると認められる文献														
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号												
X	JP 2004-143051 A（チッソ株式会社）20.05.2004（2004 - 05 - 20） 請求項9-13, [0073]-[0083], [0096]-[0157]実験例9	1-14												
P, A	JP 2019-031670 A（三星電子株式会社）28.02.2019（2019 - 02 - 28） 請求項1, [0146]-[0150]実施例1	1-14												
☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。														
<table border="0"> <tr> <td>* 引用文献のカテゴリー</td> <td>“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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）</td> <td>“&” 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td></td> </tr> <tr> <td>“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献</td> <td></td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー	“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの	“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	“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	“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	“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	“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）	“&” 同一パテントファミリー文献	“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献		“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献	
* 引用文献のカテゴリー	“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの													
“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	“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													
“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	“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													
“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）	“&” 同一パテントファミリー文献													
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献														
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献														
国際調査を完了した日 26.02.2020	国際調査報告の発送日 10.03.2020													
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 中村 英司 4J 4772 電話番号 03-3581-1101 内線 3457													

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2019/050539

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2004-143051	A	20.05.2004	(ファミリーなし)	
JP	2019-031670	A	28.02.2019	US 2019/0048144 A1	
				請求項1, [0185]-[0189]実施	
				例1	
				US 2019/0048145 A1	
				EP 3441418 A1	
				KR 10-2019-0016809 A	
				CN 109384923 A	