

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2007年11月22日 (22.11.2007)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2007/132641 A1(51) 国際特許分類:  
C08L 45/00 (2006.01) C08L 23/24 (2006.01)  
C08L 23/04 (2006.01)

(74) 代理人: 鎌田 充生 (KUWATA, Mitsuo); 〒5300047 大阪府大阪市北区西天満6丁目3番17号みなと梅田ビル6階 鎌田充生特許事務所 Osaka (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2007/058731

(22) 国際出願日: 2007年4月23日 (23.04.2007)

(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2006-134392 2006年5月12日 (12.05.2006) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): ダイセル化学工業株式会社 (DAICEL CHEMICAL INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒5300001 大阪府大阪市北区梅田三丁目4番5号 毎日インテシオ Osaka (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 市川 晴雄 (ICHIKAWA, Haruo) [JP/JP]; 〒6711283 兵庫県姫路市網干区新在家1239 ダイセル化学工業株式会社総合研究所内 Hyogo (JP). 隅田 克彦 (SUMITA, Katsuhiko) [JP/JP]; 〒6711283 兵庫県姫路市網干区新在家1239 ダイセル化学工業株式会社総合研究所内 Hyogo (JP). 芹澤 肇 (SERIZAWA, Hajime) [JP/JP]; 〒4168533 静岡県富士市宮島973番地 ポリプラスチックス株式会社内 Shizuoka (JP). 金井 裕之 (KANAI, Hiroyuki) [JP/JP]; 〒4168533 静岡県富士市宮島973番地 ポリプラスチックス株式会社内 Shizuoka (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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 国際調査報告書
- 補正書・説明書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: CYCLOOLEFINIC RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称: 環状オレフィン系樹脂組成物

(57) Abstract: A cycloolefinic resin composition which exhibits excellent transparency and surface appearance even when molded into film or sheeting. The composition comprises as the polymer components a cycloolefinic resin (A1) and a low-molecular cycloolefinic resin (A2) having a number-average molecular weight of 10000 or below. The cycloolefinic resin (A1) and the low-molecular cycloolefinic resin (A2) may be each a copolymer of a polycyclic olefin and a linear olefin. The number-average molecular weight of the cycloolefinic resin (A1) may be about 15000 to 200000, while that of the low-molecular cycloolefinic resin (A2) may be about 500 to 8000. The content of the resin (A2) is about 0.1 to 50 parts by weight per 100 parts by weight of the resin (A1).

(57) 要約: フィルム又はシート状に成形しても、透明性及び外観特性に優れる環状オレフィン系樹脂組成物を提供する。環状オレフィン系樹脂(A1)と、数平均分子量が10000以下である低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)とを重合成分とする環状オレフィン系樹脂組成物を調製する。環状オレフィン系樹脂(A1)及び低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)は、多環式オレフィンと鎖状オレフィンとで構成された共重合体であってもよい。環状オレフィン系樹脂(A1)の数平均分子量が15000~200000程度であり、かつ低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)の数平均分子量が500~8000程度であってもよい。低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)の割合は、環状オレフィン系樹脂(A1)100重量部に対して、0.1~50重量部程度である。

WO 2007/132641 A1

## 明 細 書

### 環状オレフィン系樹脂組成物

### 技術分野

[0001] 本発明は、表面平滑性などの外観特性に優れた環状オレフィン系樹脂組成物及びその成形品に関する。

### 背景技術

[0002] 環状オレフィン系樹脂は、透明性、耐薬品性、防湿性、機械的特性などに優れるため、光学用途や、医薬又は医療機器用途などの材料として用いられている。例えば、射出成形やブロー成形、押出成形などの各種成形方法によって、レンズや光記録材料などの光学部品、コネクタやコンデンサなどの電気又は電子用部品、薬品用容器や注射器などの医薬又は医療機器用品、ビーカーや光学用セルなどの実験器具などが成形されている。また、環状オレフィン系樹脂は、熔融加工性や流動性にも優れ、フィルム状又はシート状成形品や、ブリストアパッケージなどの包装材料などにも利用されている。さらに、環状オレフィン系樹脂は、熱収縮性や印刷特性にも優れるため、シュリンクフィルム（例えば、シュリンクキャップ、ボトルや電池などのスリーブなど）としても利用されている。

[0003] 例えば、特開平5-32833号公報（特許文献1）には、軟化温度が70℃以上である環状オレフィン系ランダム共重合体（A）、軟化温度が70℃未満である環状オレフィン系ランダム共重合体などの軟質重合体（B）、及び炭素数5以上の脂肪酸類（C）で構成された環状オレフィン系ランダム共重合体組成物が開示されている。

[0004] また、特開2005-254508号公報（特許文献2）には、基材層と、基材層の一面側に積層されたシーラント層とを含む積層フィルムにおいて、前記基材層が融点110～220℃のポリオレフィン系樹脂を主成分として含み、かつ前記シーラント層がガラス転移温度100～170℃の環状ポリオレフィン系樹脂を主成分として含む積層フィルムで形成された医療用容器が開示されている。この文献には、ガラス転移温度100～170℃の環状オレフィン系樹脂とガラス転移温度100℃未満の環状オレフィン系樹脂とを組み合わせたシーラント層が記載されている。

[0005] さらに、特開2005－201987号公報(特許文献3)には、中心層とその両側の面に積層された表面層とで構成されたベースフィルムの少なくとも一方の面に印刷層が設けられたストレッチシュリンクラベルであって、前記表面層が、非晶性環状オレフィン系重合体と、線状低密度ポリエチレンとで構成されたストレッチシュリンクラベルが開示されている。

[0006] しかし、環状オレフィン系樹脂を溶融成形すると、ゲル状物(ブツ)が発生し、成形品の表面が荒れ、外観特性が低下する。特に、環状オレフィン系樹脂を溶融押出して、フィルムを成形すると、ゲル状物により表面平滑性(外観)が低下するとともに、透明性も低下する。従って、高い透明性や外観特性を要求される用途には適していない。

特許文献1:特開平5－32833号公報(請求項1)

特許文献2:特開2005－254508号公報(請求項1及び8、段落番号[0036]～[0038]、実施例)

特許文献3:特開2005－201987号公報(請求項1)

## 発明の開示

### 発明が解決しようとする課題

[0007] 従って、本発明の目的は、溶融成形しても、成形品の表面が平滑である環状オレフィン系樹脂組成物及びその成形品を提供することにある。

[0008] 本発明の他の目的は、射出成形やブロー成形に供しても、表面平滑性や透明性などの外観特性や、鮮明性などの光学特性に優れる環状オレフィン系樹脂組成物及びその成形品を提供することにある。

[0009] 本発明のさらに他の目的は、押出成形によりフィルム又はシート状に成形しても、表面平滑性や透明性などの外観特性、鮮明性などの光学特性に優れる環状オレフィン系樹脂組成物及びその組成物で形成されたフィルムを提供することにある。

[0010] 本発明の別の目的は、外観特性及び熱収縮性に優れたシュリンクフィルムを提供することにある。

### 課題を解決するための手段

[0011] 本発明者らは、前記課題を達成するため鋭意検討した結果、高分子量環状オレフ

イン系樹脂と低分子量環状オレフィン系樹脂とを組み合わせると、熔融成形しても、成形品の表面が平滑であることを見だし、本発明を完成した。

[0012] すなわち、本発明の環状オレフィン系樹脂組成物は、環状オレフィン系樹脂(A1)と、数平均分子量が10000以下である低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)とで構成されている。環状オレフィン系樹脂(A1)及び低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)は、多環式オレフィンと鎖状オレフィンとを重合成分とする共重合体であってもよい。環状オレフィン系樹脂(A1)の数平均分子量は15000～200000程度であり、かつ低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)の数平均分子量は500～8000程度であってもよい。さらに、低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)は、70℃以上の軟化点及び数平均分子量1000～7000を有していてもよい。低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)の軟化点は、環状オレフィン系樹脂(A1)の軟化点より10℃以上低くてもよい。低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)の割合は、環状オレフィン系樹脂(A1)100重量部に対して、0.1～50重量部程度である。本発明の樹脂組成物は、さらに、オレフィン系樹脂(B)を含んでいてもよい。前記オレフィン系樹脂(B)は、直鎖状低密度ポリエチレンであってもよい。前記オレフィン系樹脂(B)の割合は、環状オレフィン系樹脂(A1)100重量部に対して、1～100重量部程度である。本発明の樹脂組成物は、さらに、滑剤(C)を含んでいてもよい。滑剤(C)の割合は、環状オレフィン系樹脂(A1)100重量部に対して、0.01～5重量部程度である。

[0013] 本発明には、少なくとも前記環状オレフィン系樹脂組成物で形成された成形品(例えば、射出成形品、ブロー成形品、シュリンクフィルムなどのフィルム)も含まれる。

[0014] さらに、本発明には、環状オレフィン系樹脂(A1)に、数平均分子量が10000以下の低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)を添加し、成形品の透明性又は表面平滑性を向上させる方法も含まれる。

### 発明の効果

[0015] 本発明では、低分子量環状オレフィン系樹脂を含んでいるため、環状オレフィン系樹脂を主成分とする組成物を熔融成形しても、成形品の表面が平滑である。特に、射出成形やブロー成形に供しても、また、フィルム又はシート状に成形しても、成形品の表面は平滑であり、透明性などの外観特性や、鮮明性などの光学特性にも優れ

、液晶保護フィルム、位相差フィルム、偏光フィルム、偏光板保護フィルム、視野角拡大フィルム、拡散フィルム、配向フィルム、輝度向上フィルム、反射フィルムなどの光学フィルムとしても利用できる。さらに、この樹脂組成物は、熱収縮性も高いため、シュリンクフィルムとして利用してもよい。

### 発明の詳細な説明

[0016] 本発明の環状オレフィン系樹脂組成物は、環状オレフィン系樹脂(A1)と、数平均分子量が10000以下である低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)とで構成されている。本発明の樹脂組成物は、さらに、オレフィン系樹脂(B)や滑剤(C)を含んでいてもよい。

[0017] (A1)環状オレフィン系樹脂

環状ポリオレフィン系樹脂(A1)は、環内にエチレン性二重結合を有する重合性の環状オレフィンを少なくとも重合成分とする樹脂であればよい。環状オレフィンは、単環式オレフィンであってもよく、多環式オレフィンであってもよい。

[0018] 代表的な環状オレフィンとしては、例えば、ノルボルネン類、シクロペンタジエン類又はジシクロペンタジエン類、ノルボルネン類とシクロペンタジエンとの縮合により得られる1, 4, 5, 8-ジメタノー-1, 2, 3, 4, 4a, 5, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン類、ヘキサシクロ[6. 6. 1. 1. 1. 0. 0]ヘプタデセン-4類、1-ブテンとシクロペンタジエンとから合成される6-エチルビシクロ[2. 2. 1]ヘプト-2-エンなどの多環式オレフィンが例示できる。

[0019] また、環状オレフィンは、置換基{例えば、炭化水素基[例えば、アルキル基(例えば、メチル基などの $C_{1-10}$ アルキル基、好ましくは $C_{1-5}$ アルキル基)、シクロアルキル基(例えば、シクロヘキシル基などの $C_{5-10}$ シクロアルキル基)、アリール基(例えば、フェニル基などの $C_{6-10}$ アリール基)、アルケニル基(例えば、プロペニル基などの $C_{2-10}$ アルケニル基など)、シクロアルケニル基(例えば、シクロペンテニル基、シクロヘキセニル基などの $C_{5-10}$ シクロアルケニル基など)、アルキリデン基(例えば、エチリデン基などの $C_{2-10}$ アルキリデン基、好ましくは $C_{2-5}$ アルキリデン基など)など]、アルコキシ基(例えば、メキシ基などの $C_{1-10}$ アルコキシ基、好ましくは $C_{1-6}$ アルコキシ基)、アシル基(例えば、アセチル基などの $C_{2-5}$ アシル基など)、アルコキシカルボニル基

(例えば、メキシカルボニル基などのC<sub>1-10</sub> アルコキシカルボニル基)、ヒドロキシル基、カルボキシル基、アミノ基、置換アミノ基、ハロゲン原子、ハロアルキル基、ニトロ基、シアノ基、オキソ基(=O)、複素環基(ピリジル基などの窒素原子含有複素環基など)などを有していてもよい。環状オレフィンは、単独で又は2種以上組みあわせて置換基を有していてもよい。

[0020] 具体的な環状オレフィンとしては、単環式オレフィン類[例えば、シクロアルケン(例えば、シクロブテン、シクロペンテン、シクロヘプテン、シクロオクテンなどのシクロC<sub>3-10</sub> アルケンなど)など、シクロアルカジエン(例えば、シクロペンタジエンなどのシクロC<sub>10</sub> アルカジエン)など];二環式オレフィン類[例えば、ビスシクロアルケン[例えば、ノルボルネン類(例えば、2-ノルボルネン、5-メチル-2-ノルボルネン、5, 5又は5, 6-ジメチル-2-ノルボルネン、5-エチリデン-2-ノルボルネン、5-シアノ-2-ノルボルネン、5-メキシカルボニル-2-ノルボルネン、5-フェニル-2-ノルボルネン、5-メチル-5-メキシカルボニル-2-ノルボルネン、5, 6-ジメキシカルボニル-2-ノルボルネン、5, 6-ジ(トリフルオロメチル)-2-ノルボルネン、7-オキソ-2-ノルボルネンなど)などのC<sub>4-20</sub> ビシクロアルケンなど]、ビスシクロアルカジエン[例えば、ノルボルナジエン類(例えば、2, 5-ノルボルナジエン、5-メチル-2, 5-ノルボルナジエン、5-シアノ-2, 5-ノルボルナジエン、5-メキシカルボニル-2, 5-ノルボルナジエン、5-フェニル-2, 5-ノルボルナジエン、5, 6-ジメチル-2, 5-ノルボルナジエン、5, 6-ジ(トリフルオロメチル)-2, 5-ノルボルナジエン、7-オキソ-2-ノルボルナジエンなど)など]など}、三環式オレフィン{例えば、トリシクロアルケン[例えば、ジヒドロジシクロペンタジエン類(ジヒドロジシクロペンタジエンなど)などのC<sub>6-25</sub> トリシクロアルケンなど]、トリシクロアルカジエン[例えば、ジシクロペンタジエン類(ジシクロペンタジエン、メチルジシクロペンタジエンなど)、トリシクロ[4. 4. 0. 12, 5]ウンデカ-3, 7-ジエン、トリシクロ[4. 4. 0. 12, 5]ウンデカ-3, 8-ジエンなどのC<sub>6-25</sub> トリシクロアルカジエンなど]など}、四環以上の多環式オレフィン{例えば、四環式オレフィン[例えば、テトラシクロアルケン(例えば、テトラシクロ[4. 4. 0. 12, 5. 17, 10]-3-ドデセン、8-メチルテトラシクロ[4. 4. 0. 12, 5. 17, 10]-3-ドデセン、8, 9-ジメチルテトラシクロ[4. 4. 0. 12, 5. 17,

10]－3－ドデセンなどの $C_{8-30}$  テトラシクロアルケンなど)など]、五環式オレフィン[例えば、ペンタシクロアルカジエン(例えば、トリシクロペンタジエンなどの $C_{10-35}$  ペンタシクロアルカジエン)など]、六環式オレフィン[例えば、ヘキサシクロアルケン(例えば、ヘキサシクロ[6. 6. 1. 13, 6. 02, 7. 09, 14]－4－ヘプタデセンなどの $C_{12-40}$  ヘキサシクロアルケン)など]など}などの多環式オレフィン類などが挙げられる。

[0021] これらの環状オレフィン単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。これらの環状オレフィンのうち、ノルボルネン類などの多環式オレフィンが好ましい。

[0022] 環状オレフィン系樹脂は、環状オレフィンの単独又は共重合体(例えば、単環式オレフィンと多環式オレフィンとの共重合体など)であってもよく、環状オレフィンと共重合性単量体との共重合体であってもよい。

[0023] 共重合性単量体としては、共重合可能な限り特に限定されないが、鎖状オレフィン[アルケン(例えば、エチレン、プロピレン、1－ブテン、1－ペンテン、1－ヘキセン、3－メチル－1－ブテン、2－メチル－1－ペンテン、3－エチル－1－ペンテン、4－メチル－1－ペンテン、4－メチル－1－ヘキセン、4, 4－ジメチル－1－ヘキセン、4, 4－ジメチル－1－ペンテン、4－エチル－1－ヘキセン、3－エチル－1－ヘキセン、1－オクテン、1－デセン、1－ドデセン、1－テトラデセン、1－ヘキサデセン、1－オクタデセン、1－エイコセンなどの $C_{2-20}$  アルケン)、アルカジエン(例えば、1, 4－ヘキサジエン、4－メチル－1, 4－ヘキサジエン、5－メチル－1, 4－ヘキサジエン、1, 7－オクタジエンなどの非共役 $C_{5-20}$  アルカジエン)など]などが例示できる。これらの共重合性単量体は単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。共重合性単量体は、 $\alpha$ －オレフィン類(例えば、エチレン、プロピレン、1－ブテン、1－ペンテン、1－ヘキセンなどの $C_{2-10}$   $\alpha$ －オレフィン類、特に $C_{2-6}$   $\alpha$ －オレフィン類)であってもよい。

[0024] さらに、本発明の目的を損なわない範囲内で、共重合性単量体として、重合性ニトリル化合物(例えば、(メタ)アクリロニトリルなど)、(メタ)アクリル系単量体(例えば、(メタ)アクリル酸メチル、(メタ)アクリル酸エチルなどの(メタ)アクリル酸エステル類、(メタ)アクリル酸など)、不飽和ジカルボン酸又はその誘導体(無水マレイン酸など)、ビニルエステル類(例えば、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニルなど)、共役ジエン類(ブ

タジエン、イソプレンなど)などを用いてもよい。これらの共重合性単量体も単独で又は2種以上組み合わせて使用してもよい。

[0025] 環状ポリオレフィン系共重合体において共重合性単量体(例えば、エチレンなどの $\alpha$ -オレフィン類)の割合は、全単量体中0~99モル%程度の範囲から選択でき、例えば、1~95モル%、好ましくは10~90モル%、さらに好ましくは20~90モル%(特に30~85モル%)程度であってもよい。特に、共重合性単量体がエチレンである場合、エチレンの割合は、外観特性や機械的特性などのバランスに優れる点から、例えば、35~80モル%、好ましくは40~70モル%程度であってもよい。

[0026] 好ましい環状ポリオレフィン系樹脂は、環状オレフィンと鎖状オレフィンとの共重合体や、多環式オレフィン(例えば、二乃至六環式オレフィンなど)を重合成分とする樹脂、特に、多環式オレフィン(前記ノルボルネン類や前記ジシクロペンタジエン類などのノルボルネン骨格を有する単量体)と $\alpha$ -オレフィンとの共重合体である。特に、環状オレフィンと鎖状オレフィンとの共重合体(例えば、エチレンとノルボルネン系単量体との共重合体などの $\alpha$ -C<sub>2-4</sub>オレフィンと多環式オレフィンとの共重合体など)は、オレフィン系重合体(エチレン系重合体など)と環状オレフィン重合体との性質を兼ね備えており、鎖状オレフィンの共重合比率を調整することにより、高分子量の重合体を得ることができる。

[0027] 環状ポリオレフィン系樹脂(A1)の軟化点は、70℃以上であればよく、例えば、80~250℃、好ましくは100~230℃、さらに好ましくは120~220℃(特に130~210℃)程度である。なお、軟化点は、ガラス転移点、共重合成分の割合、分子量などを調整して制御することができる。

[0028] さらに、本発明では、軟化点は、熱・応力・歪測定装置(セイコーインスツルメント(株)製、TMA/SS100)を用いて1mm厚さのシートの熱変形挙動により測定した。すなわち、シート上に石英製針を載置し、荷重49gをかけて、5℃/分で昇温していき、針が0.635mm侵入した時の温度を軟化点とした。

[0029] 環状オレフィン系樹脂(A1)は、数平均分子量10000を超える高分子量環状オレフィン系樹脂である。環状オレフィン系樹脂(A1)の数平均分子量は、例えば、15000~200000、好ましくは20000~100000、さらに好ましくは30000~80000(特

に40000～70000)程度である。

[0030] これらの環状オレフィン系樹脂(A1)は、単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。例えば、使用したい環状オレフィン系樹脂の分子量が比較的低い場合には、より分子量の高い環状オレフィン系樹脂と組み合わせて衝撃強度や折り曲げ強度等の実用的強度を補うことができる。このように、複数種の環状オレフィン系樹脂(A1)を組み合わせる場合、各々の樹脂の共重合組成は同じであるのが望ましいが、組成が異なっても組成物の透明性を損なわない割合で組み合わせるのが好ましい。

[0031] 環状オレフィン系樹脂(A1)は、付加重合により得られた樹脂であってもよく、開環重合(開環メタセシス重合など)により得られた樹脂であってもよい。また、環状オレフィン系樹脂(例えば、開環メタセシス重合により得られた樹脂など)は、水素添加された水添樹脂であってもよい。また、環状オレフィン系樹脂は、結晶性又は非晶性樹脂であってもよく、通常、非晶性樹脂であってもよい。なお、環状オレフィン系樹脂(A1)は、慣用の重合方法(例えば、チーグラマー型触媒を用いた付加重合、メタロセン系触媒を用いた付加重合、メタセシス重合触媒を用いた開環メタセシス重合など)により調製してもよい。

[0032] (A2)低分子量環状オレフィン系樹脂

低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)としては、前記環状オレフィン系樹脂(A1)の項で例示された環状オレフィン系樹脂が例示できる。これらの環状オレフィン系樹脂のうち、相溶性などの観点から、環状オレフィン系樹脂(A1)と同系統又は同種の樹脂を用いるのが好ましい。

[0033] 低分子量環状ポリオレフィン系樹脂が共重合体である場合、共重合性単量体(例えば、エチレンなどの $\alpha$ -オレフィン類)の割合は、全単量体中0～99モル%程度の範囲から選択できるが、外観特性などの点から、例えば、50～99モル%、好ましくは55～95モル%程度であってもよい。特に、共重合性単量体がエチレンである場合、エチレンの割合は、外観特性などの点から、例えば、60～90モル%、好ましくは70～85モル%程度であってもよい。

[0034] 低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)の軟化点は、70℃以上であればよく、例えば

、75～200℃、好ましくは80～150℃、さらに好ましくは85～130℃(特に90～110℃)程度である。軟化点が低すぎると、樹脂組成物の機械的特性が低下する。

[0035] さらに、低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)の軟化点は、環状オレフィン系樹脂(A1)の軟化点よりも低いのが好ましく、例えば、10℃以上(例えば、10～150℃)低くてもよく、好ましくは20℃以上(例えば、20～140℃)、さらに好ましくは25℃以上(例えば、25～130℃)低くてもよい。

[0036] 低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)の数平均分子量は10000以下であり、例えば、500～8000、好ましくは1000～7000、さらに好ましくは1500～6000(特に2000～5000)程度である。

[0037] 高分子量環状オレフィン系樹脂(A1)と低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)との数平均分子量の差は1000～200000程度の範囲から選択でき、例えば、10000～150000、好ましくは20000～100000、さらに好ましくは30000～80000程度である。

[0038] 低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)の割合は、環状オレフィン系樹脂(A1)100重量部に対して、例えば、0.1～50重量部、好ましくは0.5～45重量部、さらに好ましくは1～40重量部(特に3～30重量部)程度である。本発明では、このような割合で低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)を用いることにより、フィルムの表面平滑性を向上させるとともに、フィルムの透明性や外観特性、鮮明性などの光学特性などを向上できる。低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)の割合が高すぎると、引張破断伸度などの機械的強度が低下し、一方、低すぎると、表面平滑性が低下する。

[0039] 環状オレフィン系樹脂組成物は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)において、複数(少なくとも2つ)の分離したピークを示してもよい。例えば、GPCにおいて、高分子量環状オレフィン系樹脂(A1)に対応する領域での少なくとも1つのピークと、低分子量オレフィン系樹脂(A2)に対応する領域での少なくとも1つのピークを示してもよい。

[0040] (B)オレフィン系樹脂

オレフィン系樹脂(B)には、オレフィンの単独又は共重合体が含まれる。本発明におけるオレフィン系樹脂は、非環状オレフィン系樹脂を意味し、オレフィンとしては、

例えば、前記環状オレフィン系樹脂(A1)の項で例示の鎖状オレフィン、例えば、エチレン、プロピレン、1-ブテン、イソブテン、4-メチル-1-ブテン、1-ペンテン、3-メチル-1-ペンテンなどの $\alpha-C_{2-10}$ オレフィン(好ましくは $\alpha-C_{2-8}$ オレフィン、さらに好ましくは $\alpha-C_{2-4}$ オレフィン)などが挙げられる。これらのオレフィン、単独で又は2種以上組み合わせて使用してもよい。これらのオレフィンのうち、エチレン、プロピレン、特に少なくともエチレンを含むのが好ましい。

[0041] オレフィン系樹脂(B)は、オレフィンと共重合性単量体との共重合体であってもよい。共重合性単量体としては、前記環状オレフィン系樹脂(A1)の項で例示の重合性ニトリル化合物、(メタ)アクリル系単量体、不飽和ジカルボン酸又はその誘導体、ビニルエステル類、ジエン類、例えば、(メタ)アクリル酸メチルや(メタ)アクリル酸エチルなどの(メタ)アクリル酸 $C_{1-6}$ アルキルエステル、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニルなどのビニルエステル類、ブタジエン、イソプレンなどのジエン類などが例示できる。共重合性単量体は、単独で又は2種以上組み合わせて使用できる。共重合性単量体の割合は、全単量体中0~50モル%、好ましくは0.1~25モル%、さらに好ましくは1~10モル%程度である。

[0042] オレフィン系樹脂(B)としては、例えば、ポリエチレン系樹脂[例えば、低、中又は高密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、エチレン-プロピレン共重合体、エチレン-ブテン-1共重合体、エチレン-プロピレン-ブテン-1共重合体、エチレン-(4-メチルペンテン-1)共重合体など]、ポリプロピレン系樹脂(例えば、ポリプロピレン、プロピレン-エチレン共重合体、プロピレン-ブテン-1共重合体、プロピレン-エチレン-ブテン-1共重合体などのプロピレン含有80重量%以上のプロピレン- $\alpha$ -オレフィン共重合体など)、ポリ(メチルペンテン-1)樹脂などが挙げられる。共重合体としては、例えば、エチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-(メタ)アクリル酸共重合体又はそのアイオノマー、エチレン-アクリル酸エチル共重合体などのエチレン-(メタ)アクリレート共重合体、無水マレイン酸グラフトポリプロピレンなどが例示できる。

[0043] 前記共重合体(オレフィン同士の共重合体及びオレフィンと共重合性単量体との共重合体)には、ランダム共重合体、ブロック共重合体、又はグラフト共重合体が含まれ

る。

[0044] これらのオレフィン系樹脂は、単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。本発明では、これらのオレフィン系樹脂のうち、低密度ポリエチレン(LDPE)や直鎖状低密度ポリエチレン(LLDPE)などのポリエチレン系樹脂、特に、直鎖状低密度ポリエチレン(LLDPE)が好ましい。低密度ポリエチレン又は直鎖状低密度ポリエチレンの密度は、 $0.9 \sim 0.95 \text{g/cm}^3$ 、好ましくは $0.905 \sim 0.945 \text{g/cm}^3$ 、さらに好ましくは $0.91 \sim 0.94 \text{g/cm}^3$ 程度である。

[0045] 本発明では、オレフィン系樹脂(B)を用いることにより、環状オレフィン系樹脂組成物の成形性や柔軟性、破断点伸度、衝撃強度などを向上できる。特に、直鎖状低密度ポリエチレンなどのポリエチレン系樹脂を用いることにより、成形品の表面平滑性及び透明性を向上できる。

[0046] オレフィン系樹脂(B)の割合は、環状オレフィン系樹脂(A1)100重量部に対して、例えば、1~100重量部、好ましくは5~80重量部、さらに好ましくは10~70重量部(特に20~50重量部)程度である。

[0047] (C)滑剤

本発明では、前記低分子量環状オレフィン系樹脂に加えて、さらに滑剤(C)を用いることにより、樹脂組成物の流動性を高め、フィルムやシートの表面平滑性を向上できる。

[0048] 滑剤(C)には、低分子量の炭化水素骨格を有する化合物、例えば、ワックス類や脂質類などが含まれる。

[0049] ワックス類としては、例えば、脂肪族炭化水素系ワックス(ポリエチレンワックス、エチレン共重合体ワックス、ポリプロピレンワックスなどのポリ $\text{C}_{2-4}$ オレフィン系ワックス、パラフィン系ワックス、マイクロクリスタリンワックスなど)、植物性又は動物性ワックス(カルナウバワックス、ミツロウ、セラックワックス、モンタンワックスなど)などが挙げられる。これらのワックス類は、単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。

[0050] 脂質類としては、例えば、高級脂肪酸(例えば、カプリル酸、カプリン酸、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、アラキン酸、ベヘン酸などの $\text{C}_{8-35}$ 飽和脂肪酸、パルミトオレイン酸、オレイン酸、エルカ酸などの $\text{C}_{10-35}$ 不飽和脂肪酸など)

、高級脂肪酸塩(例えば、ラウリン酸バリウム、ラウリン酸亜鉛、ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸亜鉛、ステアリン酸マグネシウムなどの $C_{8-35}$ 脂肪酸金属塩など)、高級脂肪酸エステル(例えば、グリセリン脂肪酸エステル、ペンタエリスリトール脂肪酸エステル、ジグリセリン脂肪酸エステル、ポリグリセリン脂肪酸エステルなどの $C_{8-35}$ 脂肪酸エステルなど)、高級脂肪酸アミド(例えば、ステアリン酸アミド、エルカ酸アミドなどの $C_{8-35}$ 脂肪酸アミド、メチレンビスステアリン酸アミド、エチレンビスステアリン酸アミド、エチレンビスヒドロキシステアリン酸アミドなどのアルキレンビス脂肪酸アミドなど)などが挙げられる。

[0051] これらの滑剤は、単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。これらの滑剤のうち、脂質類、特に、ラウリン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、ベヘン酸などの $C_{8-35}$ 飽和脂肪酸、ステアリン酸カルシウムやステアリン酸マグネシウムなどの $C_{8-35}$ 飽和脂肪酸金属塩、ペンタエリスリトールステアリン酸エステルなどのペンタエリスリトール $C_{8-35}$ 飽和脂肪酸エステル、エチレンビスステアリン酸アミドやエチレンビスヒドロキシステアリン酸アミドなどのアルキレンビス脂肪酸アミドなどが好ましい。

[0052] 滑剤(C)の割合は、環状オレフィン系樹脂(A1)100重量部に対して、例えば、0.01～5重量部、好ましくは0.02～3重量部、さらに好ましくは0.03～2重量部(特に0.05～1重量部)程度である。

[0053] 本発明の環状オレフィン系樹脂組成物は、さらに、慣用の添加剤、例えば、可塑剤又は軟化剤、着色剤、分散剤、離型剤、安定化剤(ヒンダードフェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤、硫黄系酸化防止剤などの酸化防止剤、紫外線吸収剤、熱安定化剤など)、帯電防止剤、難燃剤、アンチブロッキング剤、結晶核成長剤、充填剤(シリカやタルクなどの粒状充填剤や、ガラス繊維や炭素繊維などの繊維状充填剤など)などを含んでもよい。これらの添加剤は、単独で又は二種以上組み合わせて使用できる。

[0054] これらの添加剤の割合は、種類に応じて選択すればよく、特に限定されないが、環状オレフィン系樹脂(A1)100重量部に対して、0.01～100重量部程度の範囲から選択でき、例えば、0.1～50重量部、好ましくは0.5～30重量部程度である。

[0055] [環状オレフィン系樹脂組成物及びその成形品]

本発明の環状オレフィン系樹脂組成物は、光学的特性、外観特性、耐薬品性、防湿性、機械的特性、電気特性などの種々の特性に優れるため、機械部品、電気又は電子部品、光学部品、容器などの各種成形品、フィルム又はシート状成形品など、各種成形品として利用できる。このような成形品は、慣用の成形法、例えば、射出成形法、押出成形法、ブロー成形法、真空成形法、異型成形法、インジェクションプレス法、プレス成形法、ガス注入成形法、圧縮成形法、トランスファー成形法などの成形法を利用して製造できる。

[0056] 特に、本発明の環状オレフィン系樹脂組成物は、溶融成形しても、成形品の表面が平滑であるため、射出成形、ブロー成形、押出成形などとして利用してもよい。例えば、射出成形やブロー成形しても成形品の表面平滑性及び透明性が高いため、これらの成形方法により、レンズや容器などの三次元形状の成形品を成形してもよい。さらに、本発明の環状オレフィン系樹脂組成物は、押出成形しても、高い透明性及び外観特性を有するため、フィルム又はシートを形成してもよい。

[0057] 本発明の成形品は、透明性が高く、例えば、フィルムの場合、ヘイズ(全ヘイズ)は、例えば、0.01~30%、好ましくは0.05~20%、さらに好ましくは0.1~15%(特に、0.2~13%)程度である。フィルムの内部におけるヘイズ(層の内部で散乱を引き起こす内部ヘイズ)は、例えば、0.001~20%、好ましくは0.005~15%、さらに好ましくは0.01~10%(特に、0.02~8%)程度である。本発明のフィルムは、表面平滑性が高いため、内部ヘイズと全ヘイズとの差が小さく、透明性に優れている。

[0058] なお、内部ヘイズは、例えば、予め、所定の光路長(例えば1cm)のセル中にホワイトオイル(エクソンモービル社製、商品名「クリストールJ-352」など)やエチレングリコールなどを充填してヘイズを測定しておき、このセル中にフィルムを浸漬しヘイズを測定し、両者の差を算出することにより求めることができる。

[0059] 本発明の成形品は、表面光沢に優れ、例えば、フィルムの場合、JIS K7105に準拠して角度60°で測定した表面光沢(グロス)は、例えば、50~300、好ましくは70~280、さらに好ましくは80~250(特に100~200)程度である。

[0060] 本発明の成形品は、表面平滑性が高く、例えば、フィルムの場合、表面粗さの平均値(中心線平均粗さRa)は、例えば、0.01~1  $\mu$ m、好ましくは0.03~0.8  $\mu$ m、さ

らに好ましくは0.05～0.5  $\mu\text{m}$  (特に0.1～0.3  $\mu\text{m}$ ) 程度である。

[0061] 本発明の成形品は、鮮明性も高く、例えば、フィルムの場合、写像(透過像)鮮明度は、0.5mm幅の光学櫛を使用した場合、10～99%であり、好ましくは15～98%、さらに好ましくは20～97% (特に25～95%) 程度である。

[0062] 像鮮明度とは、フィルムを透過した光のボケや歪みを定量化する尺度である。像鮮明度は、JIS K7105に準拠して、フィルムからの透過光を移動する光学櫛を通して測定し、光学櫛の明暗部の光量により値を算出する。すなわち、フィルムが透過光をぼやかす場合、光学櫛上に結像されるスリットの像は太くなるため、透過部での光量は100%以下となり、一方、不透過部では光が漏れるため0%以上となる。像鮮明度の値Cは光学櫛の透明部の透過光最大値Mと不透明部の透過光最小値mから次式により定義される。

[0063] 
$$C(\%) = [(M - m) / (M + m)] \times 100$$

すなわち、Cの値が100%に近づく程、フィルムによる像のボケが小さい[参考文献;須賀、三田村、塗装技術、1985年7月号]。

[0064] [フィルム又はシート]

本発明の環状オレフィン系樹脂組成物で形成されたフィルム又はシートの厚みは、用途に応じて選択でき、例えば、5～500  $\mu\text{m}$ 、好ましくは10～300  $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは20～200  $\mu\text{m}$  (特に50～150  $\mu\text{m}$ ) 程度であつてもよい。

[0065] 本発明のフィルムの表面は、慣用の表面処理、例えば、コロナ放電処理、火炎処理、プラズマ処理、オゾンや紫外線照射処理などによって、表面処理してもよい。

[0066] 本発明のフィルムは、必要に応じて、他の熱可塑性樹脂フィルム(例えば、ポリエステル系樹脂、ポリアミド系樹脂、オレフィン系樹脂フィルムなど)と積層してもよい。特に、オレフィン系樹脂との接着性に優れるため、オレフィン系樹脂で形成されたフィルム又はシートと積層させてもよい。

[0067] さらに、フィルムの中でも、本発明の樹脂組成物は、熱収縮性も高いため、加熱して収縮させることにより目的物(容器や機具などの固体状物品)を密着させて被うためのフィルム、いわゆるシュリンクフィルムとして利用してもよい。シュリンクフィルムは、他の熱可塑性樹脂フィルムとの積層体であつてもよく、例えば、本発明の環状オレフ

イン系樹脂組成物で形成された層を表面層(外層)又はコア層(内層)とするオレフィン系樹脂フィルムとの積層体であってもよい。

[0068] 本発明のフィルムは、さらに他の機能的な層を形成してもよい。機能的な層としては、例えば、ガスバリア層(酸素ガスバリア、水蒸気ガスバリア層など)、帯電防止層、滑性層、防曇層、印刷層、蒸着層(金属酸化物蒸着層など)などが挙げられる。

[0069] 本発明のフィルムは、未延伸フィルムであってもよいが、延伸(又は延伸処理、通常、一軸又は二軸延伸)された延伸フィルムであってもよい。延伸フィルムは、慣用のフィルム製造方法、例えば、混合又は混練された樹脂又はその組成物(コア層を構成する樹脂又はその組成物)を、1軸又は2軸押出機に供給し、熔融混練してダイ[フラット状、T状(Tダイ)、円筒状(サーキュラダイ)など]から押出して成形し、得られた未延伸フィルムを、慣用の方法で一軸又は二軸延伸することにより調製できる。

[0070] 特に、シュリンクフィルムの場合、熱収縮性を高めるため、高い延伸倍率で延伸を行うのが好ましい。具体的に、延伸倍率は、例えば、1.5~30倍程度の範囲から選択でき、好ましくは4~8倍、さらに好ましくは5~7倍程度である。

[0071] 延伸フィルムは、熱収縮性も高い。例えば、フィルムを90℃の温水中に10秒間浸漬したとき、フィルム引取方向(MD方向又は縦方向又は一方の方向)の熱収縮率(又はその絶対値)は、例えば、15~50%、好ましくは18~40%程度である。

#### 産業上の利用可能性

[0072] 本発明の環状オレフィン系樹脂組成物は、透明性、耐薬品性、防湿性、機械的特性などに優れるため、光学フィルム(液晶保護フィルム、位相差フィルム、偏光フィルム、偏光板保護フィルム、視野角拡大フィルム、拡散フィルム、配向、輝度向上フィルム、反射フィルムなど)、光学部品(カメラやビデオなどの光学部品、レンズ、パネル、光記録材料など)、電気又は電子用部品(コネクタ、フィルム状コンデンサ、絶縁部材(絶縁層)、半導体用備品又は包装材料など)、医薬又は医療機器用品(薬品用容器、注射器、血液検査用セル、集尿ビン、ビーカー、シリンダー、シリンジなど)、実験器具(光学用セル、光学用機器、ビーカー、フラスコなど)、容器又は包装材料(食品や薬品などのブリスターパッケージ、シュリンクフィルム、飲料用タンク、化粧品容器用キャップなど)などとして利用できる。

[0073] さらに、透明性及び外観特性に加えて、熱収縮性も高いため、シュリンクフィルム、例えば、飲料などのシュリンクフィルム(ワインボトルのコルク栓の保護用シュリンクキャップ、ペットボトルのシュリンクフィルムなど)、スリーブフィルム(電池、オフィスオートメーション機器、電気及び電子機具又は部品などのスリーブフィルムなど)などとして好適である。

### 実施例

[0074] 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って限定されるものではない。なお、実施例及び比較例で用いた材料は以下の通りであり、評価項目は以下の方法で測定した。

[0075] [材料]

COC(A1-1):環状オレフィン系樹脂、Topas Advanced Polymers GmbH社製、商品名「TOPAS9506」、数平均分子量66000、熱変形温度(軟化点)134℃、ガラス転移温度70℃、密度1.02

COC(A1-2):環状オレフィン系樹脂、Topas Advanced Polymers GmbH社製、商品名「TOPAS8007」、数平均分子量51000、熱変形温度138℃、ガラス転移温度80℃、密度1.02

COC(A1-3):環状オレフィン系樹脂、Topas Advanced Polymers GmbH社製、商品名「TOPAS6013」、数平均分子量47000、熱変形温度206℃、ガラス転移温度130℃、密度1.02

COC(A1-4):低分子量環状オレフィン系樹脂、Topas Advanced Polymers GmbH社製、TOPAS 4017、数平均分子量15000、ガラス転移温度140℃、熱変形温度190℃、密度1.02

COC(A2-1):低分子量環状オレフィン系樹脂、Topas Advanced Polymers GmbH社製、TOPAS TM、数平均分子量4400、ガラス転移温度67℃、熱変形温度96℃、密度1.02

COC(A2-2):低分子量環状オレフィン系樹脂、Topas Advanced Polymers GmbH社製、TOPAS TMX1T2、数平均分子量2400、ガラス転移温度57℃、熱変形温度80℃

LLDPE (B1): 直鎖状低密度ポリエチレン、プライムポリマー(株)製、商品名「エボリューSP2320」、MFR: 1.9g/10分、密度0.92、 $\alpha$ -オレフィン: ヘキセン

LLDPE (B2): 直鎖状低密度ポリエチレン、プライムポリマー(株)製、商品名「ネオゼックス043L」、MFR: 4g/10分、密度0.92、 $\alpha$ -オレフィン: ブテン

LLDPE (B3): 直鎖状低密度ポリエチレン、プライムポリマー(株)製、商品名「モアテック0258CN」、MFR: 2.1g/10分、密度0.93、 $\alpha$ -オレフィン: オクテン

滑剤: エチレンビスステアリン酸アミド。

[0076] [分子量の測定方法]

環状オレフィン系樹脂の数平均分子量は、以下の条件で測定した。

[0077] (測定条件)

装置: Shodex SYSTEM-21 (RI)

溶媒: トルエン(ナカライHPLCグレード)

カラム: Polymer Laboratories社製、MIXED-C (1本)

流速: 0.8ml/分

温度: 40℃

試料濃度: 0.2w/v% (予め0.2  $\mu$ mのメンブレンフィルタでろ過)

注入量: 100  $\mu$ l

標準試料: 分子量1090000、706000、427000、190000、96400、37900、18100、10200、5970、2630、1050、500のPS (0.1w/v%濃度のポリスチレン)

解析: PS換算の分子量を評価

繰り返した測定の回数: 2回。

[0078] [軟化点]

熱機械分析装置(セイコー電子工業(株)製、TMA/SS100)を用いて厚み1mmの熱変形挙動に基づいて測定した。具体的には、厚み1mmのシートを試料ホルダーに置き、石英製針を載せ、49gf (0.48N)の荷重をかけた状態で、5℃/分で昇温し、針が0.635mm侵入した温度を軟化点とした。

[0079] [フィルムの外観]

フィルムの外観を目視で観察し、以下の基準で評価した。

- [0080]   ◎:フィルム表面にゲル(ブツ)の発生が全く見られない  
          ○:フィルム表面にゲル(ブツ)の発生が僅かに見られる  
          △:フィルム表面にゲル(ブツ)の発生が見られる  
          ×:フィルム表面に多数のゲル(ブツ)の発生が見られる。

[0081]   [ヘイズ]

ヘイズは、JIS K7105に準拠して、日本電色工業(株)製、NDH-300Aヘイズメーターを用いて測定した。

[0082]   [光沢]

グロスは、JIS K7105に準拠し、MD方向について、角度60°で測定した。

[0083]   [表面粗さ]

中心線平均粗さRaは、JIS B 0601に準拠し、表面粗さ形状測定器((株)東京精密製、サーフコム1400A)を用いて、基材表面の中心線平均粗さRaを測定した。

[0084]   [鮮明度]

写像性測定器(スガ試験機(株)製、ICM-1DP)により、0.5mm幅の光学櫛をMD方向と平行に用いて、像鮮明度を測定した。

[0085]   [引張試験]

シートからダンベル状に試験片を打ち抜き、引張試験機で破断するまで引っ張り、JIS K 7113に準じて、引張破断伸度、最大点強度、初期弾性率(kgf/cm<sup>2</sup>)を評価した。

[0086]   実施例1

環状オレフィン系樹脂COC(A1-1)95重量%と、低分子量環状オレフィン系樹脂(A2-1)5重量%との混合物100重量部に対し、滑剤を0.1重量部添加した。このブレンド物を一軸押出機(L/D=28、圧縮比1.8)を用い、厚さ約100μmのフィルムに押し出した。得られたフィルムについてそれぞれ所定の形状にカットし、特性を評価した結果を表1に示す。

[0087]   実施例2～7及び比較例1～3

表1に示す処方で、実施例1と同様にしてフィルムを作製した。フィルムの特性を評

価した結果を表1に示す。

[0088] [表1]

| 処 方                                | 実 施 例 |       |       |       |       |       |       |       |       |       | 比 較 例 |  |  |
|------------------------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|--|--|
|                                    | 1     | 2     | 3     | 4     | 5     | 6     | 7     | 1     | 2     | 3     |       |  |  |
| COC (A1-1)                         | 95    | 90    | 80    | —     | —     | —     | —     | 100   | —     | —     |       |  |  |
| COC (A1-2)                         | —     | —     | —     | 97    | 95    | 90    | —     | —     | 100   | —     |       |  |  |
| COC (A1-3)                         | —     | —     | —     | —     | —     | —     | 90    | —     | —     | 100   |       |  |  |
| COC (A2-1)                         | 5     | 10    | 20    | 3     | 5     | 10    | 10    | —     | —     | —     |       |  |  |
| LLDPE (B1)                         | —     | —     | —     | —     | —     | —     | —     | —     | —     | —     |       |  |  |
| LLDPE (B2)                         | —     | —     | —     | —     | —     | —     | —     | —     | —     | —     |       |  |  |
| LLDPE (B3)                         | —     | —     | —     | —     | —     | —     | —     | —     | —     | —     |       |  |  |
| 滑剤                                 | 0.1   | 0.1   | 0.1   | 0.1   | 0.1   | 0.1   | 0.1   | 0.1   | 0.1   | 0.1   |       |  |  |
| 外観                                 | ○     | ○     | ○     | ○     | ○     | ○     | △~○   | ×     | ×     | ×     |       |  |  |
| 全ヘイズ(%)                            | 0.2   | 0.6   | 0.4   | 0.6   | 0.2   | 0.6   | 4.9   | 0.3   | 1     | 5.4   |       |  |  |
| 内部ヘイズ(%)                           | 0.04  | 0.12  | 0.1   | 0.13  | 0.03  | 0.18  | 0.13  | 0.07  | 0.04  | 0.42  |       |  |  |
| 光沢                                 | 192   | 193   | 184   | 190   | 193   | 189   | 157   | 189   | 182   | 119   |       |  |  |
| 表面粗さ(μm)                           | 0.088 | 0.09  | 0.231 | 0.199 | 0.093 | 0.091 | 0.224 | 0.563 | 0.285 | 0.825 |       |  |  |
| 鮮明度(%)                             | 91.8  | 89.4  | 13.5  | 89.8  | 92.8  | 91.7  | 14.7  | 93.4  | 85.8  | 10.8  |       |  |  |
| 引張破断伸度(MD) (%)                     | 8.3   | 7.1   | 6.3   | 7.5   | 6.9   | 6.4   | 7.7   | 7.3   | 2.6   | 1.8   |       |  |  |
| 引張破断伸度(TD) (%)                     | 8.1   | 7.3   | 7.1   | 7.3   | 6.4   | 7.4   | 7.1   | 7.6   | 7.4   | 4.3   |       |  |  |
| 引張破断強度(MD) (kgf/cm <sup>2</sup> )  | 448   | 437   | 423   | 390   | 449   | 508   | 462   | 400   | 489   | 814   |       |  |  |
| 引張破断強度(TD) (kgf/cm <sup>2</sup> )  | 501   | 453   | 473   | 507   | 520   | 486   | 478   | 376   | 467   | 271   |       |  |  |
| 引張破断弾性率(MD) (kgf/cm <sup>2</sup> ) | 24000 | 22200 | 24400 | 22400 | 23400 | 22400 | 26800 | 22000 | 23000 | 30200 |       |  |  |
| 引張破断弾性率(TD) (kgf/cm <sup>2</sup> ) | 23800 | 22800 | 21800 | 23000 | 23200 | 22800 | 22200 | 22000 | 21800 | 23000 |       |  |  |

表1の結果から明らかなように、実施例1~7のフィルムは、表面が平滑で、透明性

や外観特性に優れ、機械的特性も高い。これに対して、比較例1～3のフィルムでは、ゲルが発生し、外観が低下している。

[0089] 実施例8

環状オレフィン系樹脂COC (A1-1) 68.3重量部と、低分子量環状オレフィン系樹脂 (A2-1) 3.1重量部と、直鎖状低密度ポリエチレンLLDPE (B1) 27.6重量部との混合物に対し、ステアリン酸を0.1重量部添加した。このブレンド物を一軸押出機 ( $L/D=28$ 、圧縮比1.8) を用い、厚さ約 $100\ \mu\text{m}$ のフィルムに押し出した。得られたフィルムについてそれぞれ所定の形状にカットし、特性を評価した結果を表2に示す。

[0090] 実施例9～14及び比較例4～6

表2に示す処方で、実施例8と同様にしてフィルムを作製した。フィルムの特性を評価した結果を表2に示す。

[0091] [表2]

表2

|                                    | 実 施 例                              |       |       |       |       |      |      |      |      |      | 比 較 例 |       |       |       |
|------------------------------------|------------------------------------|-------|-------|-------|-------|------|------|------|------|------|-------|-------|-------|-------|
|                                    | 8                                  | 9     | 10    | 11    | 12    | 13   | 14   | 14   | 14   | 14   | 4     | 5     | 5     | 6     |
| 処方                                 | COC (A1-1)                         | 68.3  | 66.3  | 61.2  | 56.1  | 51   | 71.4 | 51   | 71.4 | 71.4 | 71.4  | 71.4  | 71.4  | 71.4  |
| 重量部                                | COC (A1-2)                         | —     | —     | —     | —     | —    | —    | —    | —    | —    | —     | —     | —     | —     |
| 重量部                                | COC (A1-3)                         | —     | —     | —     | —     | —    | —    | —    | —    | —    | —     | —     | —     | —     |
| 重量部                                | COC (A2-1)                         | 3.1   | 5.1   | 10.2  | 15.3  | 20.4 | 10.2 | 10.2 | 10.2 | 10.2 | —     | —     | —     | —     |
| 重量部                                | LDPE (B1)                          | 27.6  | 27.6  | 27.6  | 27.6  | 27.6 | 18.4 | 36.8 | 36.8 | 27.6 | 27.6  | —     | —     | —     |
| 重量部                                | LDPE (B2)                          | —     | —     | —     | —     | —    | —    | —    | —    | —    | —     | 27.6  | —     | —     |
| 重量部                                | LDPE (B3)                          | —     | —     | —     | —     | —    | —    | —    | —    | —    | —     | —     | —     | 27.6  |
| 滑剤                                 | 滑剤                                 | 0.1   | 0.1   | 0.1   | 0.1   | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1  | 0.1   | 0.1   | 0.1   | 0.1   |
| 外観                                 | 外観                                 | ○     | ○     | ○     | △     | △    | △    | △    | △    | △    | △     | △     | △     | △     |
| 全へイズ(%)                            | 全へイズ(%)                            | 11.5  | 11.8  | 11.6  | 8.2   | 10.4 | 4.9  | 15.2 | 15.2 | 15.2 | 16.6  | 17.9  | 17.9  | 16.5  |
| 内部へイズ(%)                           | 内部へイズ(%)                           | 3.5   | 4.1   | 5     | 6.9   | 5.5  | 4.2  | 4.7  | 4.7  | 4.7  | 3.8   | 4     | 4     | 3.9   |
| 光沢                                 | 光沢                                 | 127   | 130   | 141   | 145   | 111  | 172  | 120  | 120  | 120  | 118   | 109   | 109   | 100   |
| 表面粗さ(μm)                           | 表面粗さ(μm)                           | 0.153 | 0.18  | 0.174 | 0.16  | 1.23 | 0.12 | 0.65 | 0.65 | 0.65 | 1.29  | 1.79  | 1.79  | 1.92  |
| 鮮明度(%)                             | 鮮明度(%)                             | 25.4  | 38.1  | 58    | 50.4  | 27.9 | 85.2 | 10.5 | 10.5 | 10.5 | 5.8   | 5     | 5     | 5.9   |
| 引張破断伸び率(MD) (%)                    | 引張破断伸び率(MD) (%)                    | 181   | 74.8  | 38.9  | 25.1  | 18.4 | 23.1 | 45.2 | 45.2 | 45.2 | 155   | 178   | 178   | 201   |
| 引張破断伸び率(TD) (%)                    | 引張破断伸び率(TD) (%)                    | 169   | 178   | 200   | 197   | 210  | 73.3 | 223  | 223  | 223  | 389   | 351   | 351   | 368   |
| 引張破断強度(MD) (kgf/cm <sup>2</sup> )  | 引張破断強度(MD) (kgf/cm <sup>2</sup> )  | 447   | 302   | 389   | 379   | 359  | 392  | 350  | 350  | 350  | 296   | 284   | 284   | 313   |
| 引張破断強度(TD) (kgf/cm <sup>2</sup> )  | 引張破断強度(TD) (kgf/cm <sup>2</sup> )  | 420   | 416   | 447   | 449   | 451  | 353  | 270  | 270  | 270  | 392   | 388   | 388   | 395   |
| 引張破断弾性率(MD) (kgf/cm <sup>2</sup> ) | 引張破断弾性率(MD) (kgf/cm <sup>2</sup> ) | 16200 | 16500 | 16800 | 16000 | 1590 | 1900 | 1310 | 1310 | 1310 | 16200 | 16000 | 16000 | 16200 |
| 引張破断弾性率(TD) (kgf/cm <sup>2</sup> ) | 引張破断弾性率(TD) (kgf/cm <sup>2</sup> ) | 15100 | 14600 | 15000 | 15200 | 1500 | 1530 | 1270 | 1270 | 1270 | 14900 | 15100 | 15100 | 14500 |

表2の結果から明らかなように、実施例8～11、13及び14のフィルムは、表面が平滑で、透明性や外観特性に優れ、機械的特性も高い。実施例12のフィルムは、外観特性は低下しているが、透明性や機械的特性は優れている。これに対して、比較例4～6のフィルムでは、ゲルが発生し、外観が低下している。

## [0092] 実施例15

環状オレフィン系樹脂COC (A1-1) 10重量%と、環状オレフィン系樹脂COC (A1-3) 80重量%と、低分子量環状オレフィン系樹脂 (A2-1) 10重量%との混合物 100重量部に対し、滑剤を0.1重量部添加した。このブレンド物を一軸押出機(L/D=28、圧縮比1.8)を用い、厚さ約120  $\mu$ mのフィルムに押し出した。得られたフィルムについてそれぞれ所定の形状にカットし、特性を評価した結果を表3に示す。

## [0093] 実施例16～17及び比較例7

表3に示す処方で、実施例15と同様にしてフィルムを作製した。フィルムの特性を評価した結果を表3に示す。

## [0094] [表3]

表 3

|                                    |            | 実 施 例 |       |       | 比較例   |
|------------------------------------|------------|-------|-------|-------|-------|
|                                    |            | 15    | 16    | 17    | 7     |
| 処<br>方<br>入<br>重<br>量<br>部<br>V    | COC (A1-1) | 10    | 10    | 5     | 10    |
|                                    | COC (A1-2) | —     | —     | —     | —     |
|                                    | COC (A1-3) | 80    | 80    | 90    | 80    |
|                                    | COC (A1-4) | —     | —     | —     | 10    |
|                                    | COC (A2-1) | 10    | —     | —     | —     |
|                                    | COC (A2-2) | —     | 10    | 5     | —     |
|                                    | 滑剤         | 0.1   | 0.1   | 0.1   | 0.1   |
| 外 観                                |            | ◎     | ◎     | ◎     | △     |
| 全ヘイズ(%)                            |            | 0.2   | 0.71  | 0.85  | 1.25  |
| 内部ヘイズ(%)                           |            | 0.12  | 0.19  | 0.57  | 0.33  |
| 光 沢                                |            | 199   | 188   | 197   | 192   |
| 表面粗さ( $\mu$ m)                     |            | 0.109 | 0.138 | 0.077 | 0.143 |
| 鮮明度(%)                             |            | 95.3  | 60.8  | 84.3  | 50.6  |
| 引張破断伸度(MD) (%)                     |            | 4.4   | 3.8   | 4.2   | 4.4   |
| 引張破断伸度(TD) (%)                     |            | 4     | 3.8   | 4     | 4.2   |
| 引張破断強度(MD) (kgf/cm <sup>2</sup> )  |            | 400   | 375   | 428   | 406   |
| 引張破断強度(TD) (kgf/cm <sup>2</sup> )  |            | 382   | 350   | 382   | 385   |
| 引張破断弾性率(MD) (kgf/cm <sup>2</sup> ) |            | 22800 | 22600 | 23200 | 22400 |
| 引張破断弾性率(TD) (kgf/cm <sup>2</sup> ) |            | 22400 | 21800 | 22700 | 21700 |

表3の結果から明らかなように、実施例15～17のフィルムは、表面が平滑で、透明性や外観特性に優れ、機械的特性も高い。これに対して、比較例7のフィルムでは、

鮮明性が低い。

## 請求の範囲

- [1] 環状オレフィン系樹脂(A1)と、数平均分子量が10000以下である低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)とで構成されている環状オレフィン系樹脂組成物。
- [2] 環状オレフィン系樹脂(A1)及び低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)が、多環式オレフィンと鎖状オレフィンとを重合成分とする共重合体である請求項1記載の樹脂組成物。
- [3] 環状オレフィン系樹脂(A1)の数平均分子量が15000～200000であり、かつ低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)の数平均分子量が500～8000である請求項1記載の樹脂組成物。
- [4] 低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)が、70℃以上の軟化点及び数平均分子量1000～7000を有する請求項1記載の樹脂組成物。
- [5] 低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)の軟化点が、環状オレフィン系樹脂(A1)の軟化点より10℃以上低い請求項1記載の樹脂組成物。
- [6] 低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)の割合が、環状オレフィン系樹脂(A1)100重量部に対して、0.1～50重量部である請求項1記載の樹脂組成物。
- [7] さらに、オレフィン系樹脂(B)を含む請求項1記載の樹脂組成物。
- [8] オレフィン系樹脂(B)が、直鎖状低密度ポリエチレンである請求項7記載の樹脂組成物。
- [9] オレフィン系樹脂(B)の割合が、環状オレフィン系樹脂(A1)100重量部に対して、1～100重量部である請求項7記載の樹脂組成物。
- [10] さらに、滑剤(C)を含む請求項1記載の樹脂組成物。
- [11] 滑剤(C)の割合が、環状オレフィン系樹脂(A1)100重量部に対して、0.01～5重量部である請求項10記載の樹脂組成物。
- [12] 少なくとも請求項1記載の樹脂組成物で形成された成形品。
- [13] 少なくとも請求項1記載の樹脂組成物で形成された射出成形品。
- [14] 少なくとも請求項1記載の樹脂組成物で形成されたブロー成形品。
- [15] 少なくとも請求項1記載の樹脂組成物で形成されたフィルム。
- [16] 少なくとも請求項1記載の樹脂組成物で形成されたシュリンクフィルム。

- [17] 環状オレフィン系樹脂(A1)に、数平均分子量が10000以下の低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)を添加し、成形品の透明性又は表面平滑性を向上させる方法。

## 補正書の請求の範囲

[2007年10月11日 (11. 10. 2007) 国際事務局受理]

- [1] (補正後) 数平均分子量が15000～20000である環状オレフィン系樹脂(A1)と、数平均分子量が10000以下である低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)とで構成されている環状オレフィン系樹脂組成物。
- [2] 環状オレフィン系樹脂(A1)及び低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)が、多環式オレフィンと鎖状オレフィンとを重合成分とする共重合体である請求項1記載の樹脂組成物。
- [3] (補正後) 環状オレフィン系樹脂(A1)の数平均分子量が4000～20000であり、かつ低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)の数平均分子量が500～8000である請求項1記載の樹脂組成物。
- [4] 低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)が、70℃以上の軟化点及び数平均分子量1000～7000を有する請求項1記載の樹脂組成物。
- [5] 低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)の軟化点が、環状オレフィン系樹脂(A1)の軟化点より10℃以上低い請求項1記載の樹脂組成物。
- [6] 低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)の割合が、環状オレフィン系樹脂(A1)100重量部に対して、0.1～50重量部である請求項1記載の樹脂組成物。
- [7] さらに、オレフィン系樹脂(B)を含む請求項1記載の樹脂組成物。
- [8] オレフィン系樹脂(B)が、直鎖状低密度ポリエチレンである請求項7記載の樹脂組成物。
- [9] オレフィン系樹脂(B)の割合が、環状オレフィン系樹脂(A1)100重量部に対して、1～100重量部である請求項7記載の樹脂組成物。
- [10] さらに、滑剤(C)を含む請求項1記載の樹脂組成物。
- [11] 滑剤(C)の割合が、環状オレフィン系樹脂(A1)100重量部に対して、0.01～5重量部である請求項10記載の樹脂組成物。
- [12] 少なくとも請求項1記載の樹脂組成物で形成された成形品。
- [13] 少なくとも請求項1記載の樹脂組成物で形成された射出成形品。
- [14] 少なくとも請求項1記載の樹脂組成物で形成されたブロー成形品。
- [15] 少なくとも請求項1記載の樹脂組成物で形成されたフィルム。
- [16] 少なくとも請求項1記載の樹脂組成物で形成されたシュリンクフィルム。

[17] (補正後) 数平均分子量が15000～200000である環状オレフィン系樹脂(A1)に、数平均分子量が10000以下の低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)を添加し、成形品の透明性又は表面平滑性を向上させる方法。

## 条約第19条(1)に基づく説明書

請求の範囲第1項及び第17項において、請求の範囲第3項に基づいて、環状オレフィン系樹脂(A1)の数平均分子量を特定した。

請求の範囲第3項において、段落[0029]の記載に基づいて、環状オレフィン系樹脂(A1)の数平均分子量の下限を40000に限定した。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/058731

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L45/00(2006.01) i, C08L23/04(2006.01) i, C08L23/24(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)

C08L45/00, C08L23/04, C08L23/24

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

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2007

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2007 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2007

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

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                                                                                                                         | Relevant to claim No. |
|-----------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| X         | JP 2003-3048 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.),<br>08 January, 2003 (08.01.03),<br>Claims; Par. Nos. [0030], [0087]; examples<br>& US 2004/0039122 A1 & EP 1331245 A1<br>& WO 2002/028966 A1 & AU 9232301 A<br>& CA 2424335 A & TW 539717 B<br>& CN 1468283 A | 1, 2                  |

☐ 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  
06 June, 2007 (06.06.07)

Date of mailing of the international search report  
14 August, 2007 (14.08.07)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2007/058731

**Box No. II      Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box No. III      Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

See extra sheet

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☒ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.: 1 and 2

**Remark on Protest**  
the

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, payment of a protest fee..
- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2007/058731

Continuation of Box No.III of continuation of first sheet (2)

An invention relating to "a melt-moldable thermoplastic norbornene resin composition characterized by comprising a base polymer (A) consisting of a thermoplastic norbornene resin and an olefin compound (B) having a number-average molecular weight of 200 to 10000 and a softening point of 70 to 170°C" is disclosed in Document 1, claim 1, and another invention relating to "a thermoplastic norbornene resin composition set forth in claim 1, characterized in that the olefin compound (B) is an alicyclic olefin or a polymer thereof" is also disclosed in claim 4.

Since claim 1 of the application concerned relates to "a cycloolefinic resin composition comprising a cycloolefinic resin (A1) and a low-molecular cycloolefinic resin (A2) having a number-average molecular weight of 10000 or below", the technical feature of claim 1 of the application concerned cannot be considered to be "special technical features" within the meaning of PCT Rule 13.2, second sentence.

Claims 2-7 and 10 of the application concerned each independently refer to claim 1. Further, claims 12-16 describe "articles" made from the resin composition of claim 1, but "moldings", "injection moldings", "blow moldings" and "films" described as the articles are considered to be extremely ordinary, though "shrink film" is a special molded article. Furthermore, claim 17 is different from claim 1 in category.

Thus, it is considered that this international application includes the following 10 inventions:

Invention 1: the inventions set forth in claims 1 and 2,  
Invention 2: the invention set forth in claim 3,  
Invention 3: the invention set forth in claim 4,  
Invention 4: the invention set forth in claim 5,  
Invention 5: the invention set forth in claim 6,  
Invention 6: the inventions set forth in claims 7-9,  
Invention 7: the inventions set forth in claims 10 and 11,  
Invention 8: the inventions set forth in claims 12-15,  
Invention 9: the invention set forth in claim 16, and  
Invention 10: the invention set forth in claim 17.

Document 1: JP 2003-3048 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.) 08 January, 2003 (08.01.03)

|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            |                                                                                                                                                                                                     |                                                      |                  |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------|------------------|
| A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））<br>Int.Cl. C08L45/00(2006.01)i, C08L23/04(2006.01)i, C08L23/24(2006.01)i                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |                                                                                                                                                                                                     |                                                      |                  |
| B. 調査を行った分野<br>調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））<br>Int.Cl. C08L45/00, C08L23/04, C08L23/24                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       |                                                                                                                                                                                                     |                                                      |                  |
| 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<br><div style="display: flex; justify-content: space-between;"> <div>           日本国実用新案公報<br/>           日本国公開実用新案公報<br/>           日本国実用新案登録公報<br/>           日本国登録実用新案公報         </div> <div>           1 9 2 2－1 9 9 6 年<br/>           1 9 7 1－2 0 0 7 年<br/>           1 9 9 6－2 0 0 7 年<br/>           1 9 9 4－2 0 0 7 年         </div> </div>                                                            |                                                                                                                                                                                                     |                                                      |                  |
| 国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |                                                                                                                                                                                                     |                                                      |                  |
| C. 関連すると認められる文献                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            |                                                                                                                                                                                                     |                                                      |                  |
| 引用文献の<br>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<br>請求の範囲の番号 |
| X                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          | JP 2003-3048 A（積水化学工業株式会社） 2003.01.08<br>特許請求の範囲、段落番号【0030】、【0087】、実施例<br>& US 2004/0039122 A1 & EP 1331245 A1<br>& WO 2002/028966 A1 & AU 9232301 A & CA 2424335 A<br>& TW 539717 B & CN 1468283 A |                                                      | 1、2              |
| <input 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。                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   |                                                                                                                                                                                                     |                                                      |                  |
| * 引用文献のカテゴリー<br>「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<br>「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<br>「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）<br>「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献<br>「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献<br>「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<br>「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<br>「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<br>「&」同一パテントファミリー文献 |                                                                                                                                                                                                     |                                                      |                  |
| 国際調査を完了した日<br>0 6 . 0 6 . 2 0 0 7                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |                                                                                                                                                                                                     | 国際調査報告の発送日<br>1 4 . 0 8 . 2 0 0 7                    |                  |
| 国際調査機関の名称及びあて先<br>日本国特許庁（I S A / J P）<br>郵便番号100-8915<br>東京都千代田区霞が関三丁目4番3号                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                 |                                                                                                                                                                                                     | 特許庁審査官（権限のある職員）<br>守安 智<br>電話番号 03-3581-1101 内線 3457 | 4 J 8 5 1 9      |

## 第Ⅱ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（P C T 17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。  
つまり、
2. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってP C T 規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第Ⅲ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。  
特別ページ参照

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

1 及び 2

## 追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- ☐ 追加調査手数料の納付を伴う異議申立てがなかった。

文献1の特許請求の範囲請求項1には、「熱可塑性ノルボルネン系樹脂からなるベースポリマー(A)に、数平均分子量が200～10000で、かつ軟化点が70～170℃であるオレフィン系化合物(B)を配合することを特徴とする熔融成形可能な熱可塑性ノルボルネン系樹脂組成物」に係る発明が記載されていて、請求項4に「オレフィン系化合物(B)が、脂環族オレフィン又はその重合体であることを特徴とする請求項1に記載の熱可塑性ノルボルネン系樹脂組成物」に係る発明も記載されている。

本願の請求の範囲1は「環状オレフィン系樹脂(A1)と、数平均分子量が10000以下である低分子量環状オレフィン系樹脂(A2)とで構成されている環状オレフィン系樹脂組成物」に係るものであるから、本願の請求の範囲1の技術的特徴は、PCT規則13.2の第2文の意味において「特別な技術的特徴」とは認めることができない。

本願請求の範囲2～7、10は、それぞれ独立して同1に従属するものである。そして、同12～16は、同1に係る樹脂組成物で形成された「物」に係る発明が記載されているところ、そのような物として「成形品」、「射出成形品」、「ブロー成形品」、「フィルム」は極めて普通のものであると認められるが、「シュリングフィルム」は特殊な成形品である。また、同17は、同1とカテゴリーが相違するものである。

そうしてみると、本国際出願には、次の10発明が記載されているものと認める。

発明1：請求の範囲1及び2に記載の発明

発明2：請求の範囲3に記載の発明

発明3：請求の範囲4に記載の発明

発明4：請求の範囲5に記載の発明

発明5：請求の範囲6に記載の発明

発明6：請求の範囲7～9に記載の発明

発明7：請求の範囲10及び11に記載の発明

発明8：請求の範囲12～15に記載の発明

発明9：請求の範囲16に記載の発明

発明10：請求の範囲17に記載の発明

文献1：JP 2003-3048 A（積水化学工業株式会社） 2003.01.08