(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
2017 年 3 月 2 日(02.03.2017)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2017/033871 A1

(51) 国際特許分類:
C08F 293/00 (2006.01) *C08J 5/18* (2006.01)
C08F 8/48 (2006.01) *G02B 5/30* (2006.01)
C08F 220/18 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2016/074288

(22) 国際出願日: 2016 年 8 月 19 日(19.08.2016)

(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 2015-163883 2015 年 8 月 21 日(21.08.2015) JP

(71) 出願人: 株式会社日本触媒(NIPPON SHOKUBAI CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5410043 大阪府大阪市中央区高麗橋４丁目１番１号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 中西　秀高(NAKANISHI, Hidetaka); 〒6711241 兵庫県姫路市網干区興浜字西沖９９２番地の１　株式会社日本触媒内 Hyogo (JP).

(74) 代理人: 岩谷　龍(IWATANI, Ryo); 〒5300003 大阪府大阪市北区堂島２丁目１番３１号　京阪堂島ビル３階 Osaka (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, 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:
— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

WO 2017/033871 A1

(54) **Title**: BLOCK COPOLYMER

(54) 発明の名称 : ブロック共重合体

(57) **Abstract**: Provided are a novel block copolymer having a (meth)acrylic acid ester as a polymer component, and a film composed of the block copolymer. The novel block copolymer is a block copolymer containing a (meth)acrylic acid ester as a polymer component and having a ring structure on the main chain.

(57) 要約: （メタ）アクリル酸エステルを重合成分とする新規なブロック共重合体及びこのブロック共重合体で構成されたフィルムを提供する。新規なブロック共重合体を、（メタ）アクリル酸エステルを重合成分として含み、主鎖に環構造を有するブロック共重合体とする。

明　細　書

発明の名称 ： ブロック共重合体

技術分野

[0001] 本発明は、（メタ）アクリル酸エステルを重合成分として含み、主鎖に環構造を有するブロック共重合体、それを含む樹脂組成物、該樹脂組成物で形成されたフィルム、該フィルムを備えた偏光板、並びに該偏光板を備えた画像表示装置に関する。

背景技術

[0002] 近年、透明性樹脂は、光学レンズ、プリズム、ミラー、光ディスク、光ファイバー、液晶ディスプレイ用シート及びフィルム、導光板等光学材料に幅広く使用されている。

これら光学材料用樹脂としては、従来、アクリル樹脂が主として用いられてきた。

[0003] 中でも、環構造を有するアクリル樹脂は、透明性と耐熱性を有することから、光学フィルム等に使用されている。一般的に環構造を有するアクリル樹脂は硬脆いために、特許文献１のように二軸延伸することによって強度を付与する方法や、特許文献２のようにソフト成分を導入することによって強度を付与する方法の検討が進められている。

しかしながら、二軸延伸で強度を付与する場合、延伸倍率等により強度の異方性が生じる問題があった。また、ソフト成分を導入する場合、透明性との両立が困難であり、更に改善の余地があった。

[0004] 一方、近年、リビングアニオン重合やリビングラジカル重合により、メタクリル酸メチルをハード成分とし、アクリル酸ブチルをソフト成分とするブロックポリマーが検討されている。しかしながら、このようなブロックポリマーはガラス転移温度が低く、更にはソフト成分の耐熱性が不十分であるため改善の余地があった。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開２００５－１６２８３５号公報

特許文献2：特開２００７－１００００４号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 本発明の目的は、（メタ）アクリル酸エステルを重合成分とする新規なブロック共重合体及びこのブロック共重合体で構成されたフィルムを提供することにある。

本発明の他の目的は、透明性、強度、耐熱性をバランス良く有する新規なブロック共重合体及びこのブロック共重合体で構成された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

[0007] 本発明者は、上記課題を解決するため鋭意研究を重ねた結果、メタクリル酸エステルを重合成分とするハード成分（ハードブロック、硬質成分）を有するブロック共重合体において、環構造（例えば、グルタルイミド構造）を導入することにより、意外なことに、ソフト成分（ソフトブロック、軟質成分）を有しているにもかかわらず、高い耐熱性を有する新規なブロック重合体が得られること、また、このようなブロック共重合体では、環構造を導入したにもかかわらず、意外にも透明性が損なわれないこと、さらに、このようなブロック共重合体は、高度の延伸処理を要しなくても十分な強度を有しているため、強度と透明性と（さらには耐熱性と）を効率よく両立できることを見出した。

本発明者は、上記以外にも下記するように種々の新知見を得て、さらに鋭意検討を重ねて本発明を完成するに至った。

[0008] 即ち、本発明は、以下の樹脂組成物等に関する。

［１］（メタ）アクリル酸エステルを重合成分として含み、主鎖に環構造を有するブロック共重合体。

［２］（メタ）アクリル酸エステルを重合成分として含むブロック（Ｉ）と、（メタ）アクリル酸エステルを重合成分として含み、ブロック（Ｉ）とは異なるガラス転移温度を有するブロック（ＩＩ）とを有する前記［１］記載のブロック共重合体。

［３］ブロック（ＩＩ）のガラス転移温度がブロック（Ｉ）のガラス転移温度より低い前記［２］記載のブロック共重合体。

［４］メタクリル酸エステルを重合成分として含むブロック（Ｉ）と、アクリル酸エステルを重合成分として含むブロック（ＩＩ）とを有する前記［１］～［３］のいずれかに記載のブロック共重合体。

［５］ブロック（ＩＩ）が環構造を有する前記［２］～［４］のいずれかに記載のブロック共重合体。

［６］環構造を、３～２０モル％含む前記［１］～［５］のいずれかに記載のブロック共重合体。

［７］４０℃以上の温度領域におけるガラス転移温度が１１０℃以上である前記［１］～［６］のいずれかに記載のブロック共重合体。

［８］環構造が、ラクトン構造、グルタルイミド構造、マレイミド構造、無水グルタル酸構造及び無水マレイン酸構造から選ばれる１以上である前記［１］～［７］のいずれかに記載のブロック共重合体。

［９］メタクリル酸エステルを重合成分として含むブロック（Ｉ）と、アクリル酸エステルを重合成分として含むブロック（ＩＩ）とを有し、ブロック（ＩＩ）が環構造を有する前記［１］～［８］のいずれかに記載のブロック共重合体。

［１０］分子量分布が２以下である前記［１］～［９］のいずれかに記載のブロック共重合体。

［１１］酸価が、１０ｍｍｏｌ／ｇ以下である前記［１］～［１０］のいずれかに記載のブロック共重合体。

［１２］メタクリル酸エステルを重合成分として含むブロック（Ｉ）と、アクリル酸エステルを重合成分として含むブロック（ＩＩ）とを有し、ブロッ

ク（ＩＩ）が環構造を有し、

環構造が、ラクトン構造、グルタルイミド構造、マレイミド構造から選ばれる１以上であり、

ブロック（ＩＩ）が環構造を有し、

分子量分布が１．１～２であり、

酸価が、１０ｍｍｏｌ／ｇ以下である前記［１］～［１１］のいずれかに記載のブロック共重合体。

［１３］前記［１］～［１２］のいずれかに記載のブロック共重合体を含む樹脂組成物。

［１４］さらに、アクリル系樹脂を含む前記［１３］記載の樹脂組成物。

［１５］アクリル系樹脂が、前記［１］～［１２］のいずれかに記載のブロック共重合体と共通する骨格を有する前記［１４］記載の樹脂組成物。

［１６］前記［１３］～［１５］のいずれかに記載の樹脂組成物で形成されたフィルム。

［１７］光学フィルムである前記［１６］記載のフィルム。

［１８］偏光子保護フィルムである前記［１６］又は［１７］記載のフィルム。

［１９］前記［１６］～［１８］のいずれかに記載のフィルムを備えた偏光板。

［２０］前記［１９］記載の偏光板を備えた画像表示装置。

発明の効果

[0009] 本発明では、主鎖に環構造を有しており、（メタ）アクリル酸エステルを重合成分とする新規なブロック共重合体を得ることができる。

このようなブロック共重合体は、透明性、強度、耐熱性などに優れており、これらの特性をバランス良く有している。例えば、メタクリル酸エステルを重合成分とするブロックは、通常、高強度に寄与するハードブロックを形成するが、このようなハードブロックを有するブロック共重合体では、ソフトブロック（例えば、アクリル酸エステルを重合成分とするブロック）を有

しているにもかかわらず、比較的高い耐熱性（ガラス転移温度）を実現できる。そのため、高強度と高耐熱性とを両立できる。更に、本発明はアクリル酸エステルを含むソフトブロックに環構造を有していることも好ましい。

また、このようなブロック共重合体は、耐熱分解性、耐溶剤性や硬度に優れる。また、塑形変形しにくい。また、ブロック共重合体内の屈折率差が少なくなるためか、透明性に優れる。特に、ソフトブロックに環構造を有する場合、ハードブロックとの屈折率差が少なくなるためか、透明性に優れる。

また、高強度を備えているため、強度を付与するために、高度の配向処理（延伸処理など）を要することがない。しかも、意外なことに、分散性が優れるためか、環構造の導入に伴って透明性が損なわれることもない。そのため、透明性にも優れ、高透明性と高強度と（さらには高耐熱性と）をバランス良く実現できる。

[0010] さらに、本発明のブロック共重合体では、上記のように、高度の配向処理を要することなく、高強度や高耐熱性を実現できるので、所望の光学特性を有するフィルムを容易に得ることができる。例えば、高強度、高耐熱性、高透明性を備えているため、本発明のブロック共重合体により、等方性フィルムや低位相差フィルムを効率よく形成できる。一方、環構造に起因してか、容易に異方性を得やすいため、透明性を損なわない範囲での配向処理（延伸処理など）により、位相差フィルムを形成することもできる。

さらにまた、本発明のブロック共重合体は、他の樹脂（例えば、アクリル系樹脂、特に、ブロック共重合体と共通する骨格を有するアクリル系樹脂）に対して混合することで、所望の物性を得ることができる。

そのため、本発明のブロック共重合体は、他の樹脂の添加剤（例えば、強度、耐熱性、及び／又は耐熱分解性を向上又は改善するための添加剤）として使用することも可能である。

発明を実施するための形態

[0011] 以下、本発明を詳細に説明する。

本発明のブロック共重合体は、（メタ）アクリル酸エステルを重合成分と

して含むブロック共重合体であって、環構造を有することを特徴とする。

[0012] ［ブロック共重合体］

ブロック共重合体は、通常、（メタ）アクリル酸エステルを重合成分として含むブロック［ブロック（Ｉ）という］と、ブロック（Ｉ）とは異なるブロック［ブロック（ＩＩ）という］とを少なくとも有している。

なお、ブロック（ＩＩ）は、通常、ブロック（Ｉ）とは異なるガラス転移温度を有している。

[0013] ブロック共重合体は、ブロック（Ｉ）及びブロック（ＩＩ）を有する限り、ブロック数は特に限定されず、例えば、ジ乃至デカブロック体などのポリブロック体であってもよい。

代表的なブロック共重合体には、（Ｉ）－（ＩＩ）で表されるジブロック体、（Ｉ）－（ＩＩ）－（Ｉ）または（ＩＩ）－（Ｉ）－（ＩＩ）で表されるトリブロック体、テトラブロック体［例えば、（Ｉ）－（ＩＩ）－（Ｉ）－（ＩＩ）、（ＩＩ）－（Ｉ）－（ＩＩ）－（Ｉ）等］、ペンタブロック体［例えば、（Ｉ）－（ＩＩ）－（Ｉ）－（ＩＩ）－（Ｉ）、（ＩＩ）－（Ｉ）－（ＩＩ）－（Ｉ）－（ＩＩ）等］等が含まれる。

ここで、ポリブロック体の両端に位置する（Ｉ）または（ＩＩ）の分子量、組成等は同じであってもよいし、相互に異なっていてもよい。

[0014] 本発明のブロック共重合体の分子鎖形態は、特に限定されることなく、例えば、線状、分岐状、放射状等のいずれでもよい。当該ブロック共重合体の構造は、ブロック共重合体を含む樹脂組成物の加工特性や機械特性等の必要特性に応じて使い分けられる。

[0015] ブロック共重合体は、（メタ）アクリル酸エステルを重合成分として含む限り、特に限定されないが、通常、メタクリル酸エステルを重合成分とするブロックを有する場合が多い。

[0016] ブロック（Ｉ）は、重合成分が、主として［ブロック（Ｉ）の全重合成分のうち、例えば５０～１００モル％、好ましくは７０～９５モル％の］メタクリル酸エステルであることが好ましい。

[0017] 代表的なブロック共重合体は、メタクリル酸エステルを重合成分として含むブロック（Ｉ）と、アクリル酸エステルを重合成分として含むブロック（ＩＩ）とを有するブロック共重合体［以下、ブロック共重合体（Ａ）ということがある］である。

このようなブロック共重合体では、ブロック（Ｉ）がハード成分（硬質成分）、ブロック（ＩＩ）がソフト成分（軟質成分）を形成する場合が多い。

[0018] 以下、ブロック共重合体（Ａ）について、詳述する。

（ブロック共重合体（Ａ））

重合体ブロック（Ｉ）を形成させるためのメタクリル酸エステルとしては、例えば、脂肪族メタクリレート［例えば、メタクリル酸アルキルエステル（例えば、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸ｎ－プロピル、メタクリル酸イソプロピル、メタクリル酸ｎ－ブチル、メタクリル酸イソブチル、メタクリル酸ｓｅｃ－ブチル、メタクリル酸ｔｅｒｔ－ブチル、メタクリル酸ペンチル、メタクリル酸アミル、メタクリル酸イソアミル、メタクリル酸ｎ－ヘキシル、メタクリル酸２－エチルヘキシル、メタクリル酸ヘプチル、メタクリル酸オクチル、メタクリル酸デシル、メタクリル酸ドデシル、メタクリル酸ペンタデシル、メタクリル酸ヘキサデシル、メタクリル酸ヘプタデシル、メタクリル酸オクタデシル等のメタクリル酸C_{1-18}アルキル、好ましくはメタクリル酸C_{1-12}アルキル）等］、脂環族メタクリレート［例えば、メタクリル酸シクロアルキルエステル（例えば、メタクリル酸シクロプロピル、メタクリル酸シクロブチル、メタクリル酸シクロペンチル、メタクリル酸シクロヘキシル等のメタクリル酸C_{3-20}シクロアルキル、好ましくはメタクリル酸C_{3-12}シクロアルキル）、架橋環式メタクリレート（例えば、メタクリル酸イソボルニル等）等］、芳香族メタクリレート［例えば、メタクリル酸アリールエステル（例えば、メタクリル酸フェニル、メタクリル酸ｏ－トリル、メタクリル酸ｍ－トリル、メタクリル酸ｐ－トリル、メタクリル酸２，３－キシリル、メタクリル酸２，４－キシリル、メタクリル酸２，５－キシリル、メタクリル酸２，６－キシリル、メタクリル酸３

，４－キシリル、メタクリル酸３，５－キシリル、メタクリル酸１－ナフチル、メタクリル酸２－ナフチル、メタクリル酸ビナフチル、メタクリル酸アントリル等のメタクリル酸C_{6-20}アリール、好ましくはメタクリル酸C_{6-10}アリール）、メタクリル酸アラルキルエステル（例えば、メタクリル酸ベンジル等のメタクリル酸C_{6-10}アリールC_{1-4}アルキル）、メタクリル酸フェノキシアルキル（例えば、メタクリル酸フェノキシエチル等のメタクリル酸フェノキシC_{1-4}アルキル）等］等を挙げることができる。

[0019] また、メタクリル酸エステルは、ヒドロキシル基、アルコキシ基、グリシジル基等の置換基を有していてもよい。このようなメタクリル酸エステルとしては、例えば、ヒドロキシル基を有するメタクリル酸エステル［例えば、メタクリル酸ヒドロキシアルキルエステル（例えば、メタクリル酸２－ヒドロキシエチル等のメタクリル酸ヒドロキシC_{1-12}アルキル）等］、アルコキシ基を有するメタクリル酸エステル［例えば、メタクリル酸アルコキシアルキルエステル（例えば、メタクリル酸２－メトキシエチル等のメタクリル酸C_{1-12}アルコキシC_{1-12}アルキル等）］、グリシジル基を有するメタクリル酸エステル（例えば、メタクリル酸グリシジル等）等が挙げられる。

[0020] 重合体ブロック（Ｉ）は、これらのメタクリル酸エステルの１種から構成されていても、２種以上から構成されていてもよい。

[0021] これらの中でも、透明性、耐熱性を向上させる等の観点から、メタクリル酸アルキルエステルが好ましく、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸イソプロピル、メタクリル酸ｎ－ブチル、メタクリル酸ｔｅｒｔ－ブチル、メタクリル酸シクロヘキシル、メタクリル酸イソボルニルなどのメタクリル酸C_{1-18}アルキルエステルがより好ましく、メタクリル酸メチルがさらに好ましい。

[0022] 特に、ブロック（Ｉ）において、メタクリル酸エステル中のメタアルキルエステル（特に、メタクリル酸メチル）の含有割合は、例えば５０～１００モル％、好ましくは７０～１００モル％、より好ましくは８０～１００モル％である。

[0023] また、本発明の目的および効果の妨げにならない限りにおいて、重合体ブロック（Ｉ）は、メタクリル酸エステル以外の他の重合性単量体１種又は２種以上を共重合成分に含んでいてもよい。

[0024] 前記他の重合性単量体としては、例えば、下記アクリル酸エステル、メタクリル酸、アクリル酸、ビニル化合物［例えば、芳香族ビニル化合物（例えば、スチレン、α－メチルスチレン等）、ビニルエステル（例えば、酢酸ビニル等）、α，β－不飽和ニトリル（例えば、アクリロニトリル、メタクリロニトリル等）、オレフィン（例えば、エチレン、プロピレン、１－ブテン、イソブチレン、１－オクテン等のC_{2-10}アルケン）］、２－（ヒドロキシメチル）アクリル酸エステル等が挙げられる。

[0025] また、他の重合性単量体は、アミド基含有ビニル系単量体［例えば、（メタ）アクリルアミド、Ｎ－置換（メタ）アクリルアミド（例えば、Ｎ－メチル（メタ）アクリルアミドなどのＮ－アルキル（メタ）アクリルアミド；Ｎ－シクロヘキシル（メタ）アクリルアミドなどのＮ－シクロアルキル（メタ）アクリルアミド；Ｎ－フェニル（メタ）アクリルアミドなどのＮ－アリール（メタ）アクリルアミド；Ｎ－ベンジル（メタ）アクリルアミドなどのＮ－アラルキル（メタ）アクリルアミド；Ｎ－クロロフェニル（メタ）アクリルアミドなどのＮ－クロロアリール（メタ）アクリルアミド；Ｎ－メチロール（メタ）アクリルアミドなど）など］を含んでいてもよい。アミド基含有ビニル系単量体は、単独で又は２種以上組み合わせてもよい。

２－（ヒドロキシメチル）アクリル酸エステルとしては、例えば、２－（ヒドロキシメチル）アクリル酸エチル等であり、炭化水素基等の置換基［例えば、脂肪族基（例えば、C_{1-20}アルキル基、C_{2-20}不飽和脂肪族炭化水素基等）、芳香族基（例えば、C_{6-20}芳香族炭化水素基等）等］で置換されていてもよい。

尚、２－（ヒドロキシメチル）アクリル酸メチルは、ブロック共重合体にラクトン環構造を導入するときの残存する単位であってもよい。

これらのうち、他の重合性単量体として、特に、芳香族ビニル化合物を好

適に含んでいてもよい。

また、本発明のブロック共重合体（例えば、環構造として環状酸無水物構造を有するブロック共重合体）は、アミド基含有ビニル系単量体（又はアミド基含有ビニル単量体由来の単位）を実質的に含まないのが好ましい。実質的に含まないことで、アミド基含有ビニル系単量体のアミド基が他のポリマーに含まれるエステル基と反応して分子間架橋することによる悪影響（フィッシュアイなど）などを効率よく抑えることができる。

[0026] 前記他の重合性単量体は、ブロック（Ｉ）の共重合成分として少量、例えば、ブロック（Ｉ）の全重合成分のうち、好ましくは２０質量％以下（例えば１～２０質量％）、より好ましくは１０質量％以下（例えば１～１０質量％）含んでいてもよい。

特に、前記のように、他の重合性単量体はアミド基含有ビニル系単量体を実質的に含まないのが好ましいが、アミド基含有ビニル系単量体を含む場合でも、ブロック共重合体を構成する環構造１００重量部に対して、例えば、０．１重量部以下、好ましくは０．０５重量部以下、さらに好ましくは０．０１重量部以下であってもよい。

[0027] 本発明のブロック共重合体におけるブロック（ＩＩ）は、重合成分が、主として［ブロック（ＩＩ）の全重合成分のうち、例えば５０～１００モル％、好ましくは７０～９５モル％の］アクリル酸エステルであることが好ましい。

[0028] 重合体ブロック（ＩＩ）を形成させるためのアクリル酸エステルとしては、例えば、脂肪族アクリレート［例えば、アクリル酸アルキルエステル（例えば、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸ｎ－プロピル、アクリル酸イソプロピル、アクリル酸ｎ－ブチル、アクリル酸イソブチル、アクリル酸ｓｅｃ－ブチル、アクリル酸ｔｅｒｔ－ブチル、アクリル酸ペンチル、アクリル酸アミル、アクリル酸イソアミル、アクリル酸ｎ－ヘキシル、アクリル酸２－エチルヘキシル、アクリル酸ヘプチル、アクリル酸オクチル、アクリル酸デシル、アクリル酸ドデシル、メタクリル酸ペンタデシル、ア

クリル酸ヘキサデシル、アクリル酸ヘプタデシル、アクリル酸オクタデシル等のアクリル酸C_{1-18}アルキル、好ましくはアクリル酸C_{1-12}アルキル等）］、脂環族アクリレート［例えば、アクリル酸シクロアルキルエステル（例えば、アクリル酸シクロプロピル、アクリル酸シクロブチル、アクリル酸シクロペンチル、アクリル酸シクロヘキシル等のアクリル酸C_{3-20}シクロアルキル、好ましくはアクリル酸C_{3-12}シクロアルキル）、架橋環式アクリレート（例えば、アクリル酸イソボルニル等）］、芳香族アクリレート［例えば、アクリル酸アリールエステル（例えば、アクリル酸フェニル、アクリル酸ｏ－トリル、アクリル酸ｍ－トリル、アクリル酸ｐ－トリル、アクリル酸２，３－キシリル、アクリル酸２，４－キシリル、アクリル酸２，５－キシリル、アクリル酸２，６－キシリル、アクリル酸３，４－キシリル、アクリル酸３，５－キシリル、アクリル酸１－ナフチル、アクリル酸２－ナフチル、アクリル酸ビナフチル、アクリル酸アントリル等のアクリル酸C_{6-20}アリール、好ましくはアクリル酸C_{6-10}アリール）、アクリル酸アラルキルエステル（例えば、アクリル酸ベンジル等のアクリル酸C_{6-10}アリールC_{1-4}アルキル）、アクリル酸フェノキシアルキル（例えば、アクリル酸フェノキシエチル等のアクリル酸フェノキシC_{1-4}アルキル）等］等を挙げることができる。

[0029] また、アクリル酸エステルは、ヒドロキシル基、アルコキシ基、グリシジル基等の置換基を有していてもよい。このようなアクリル酸エステルとしては、例えば、ヒドロキシル基を有するアクリル酸エステル［例えば、アクリル酸ヒドロキシアルキルエステル（例えば、アクリル酸２－ヒドロキシエチル等のアクリル酸ヒドロキシC_{1-12}アルキル等）］、アルコキシ基を有するアクリル酸エステル［例えば、アクリル酸アルコキシアルキルエステル（例えば、アクリル酸２－メトキシエチル等のアクリル酸C_{1-12}アルコキシC_{1-12}アルキル等）］、グリシジル基を有するアクリル酸エステル（例えば、アクリル酸グリシジル等）等が挙げられる。

[0030] 重合体ブロック（ＩＩ）は、これらのアクリル酸エステルの１種から構成

されていても、２種以上から構成されていてもよい。

[0031] これらの中でも、柔軟性を向上させる等の観点から、アクリル酸アルキルエステルが好ましく、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸イソプロピル、アクリル酸ｎ－ブチル、アクリル酸２－エチルヘキシル、アクリル酸ドデシル、アクリル酸フェノキシエチル、アクリル酸２－メトキシエチル等のアクリル酸C_{1-18}アルキルエステルがより好ましく、アクリル酸ｎ－ブチル、アクリル酸２－エチルヘキシルがさらに好ましい。

[0032] ブロック（ＩＩ）において、アクリル酸エステル中のアクリル酸アルキルエステルの含有割合は、例えば５０～１００モル％、好ましくは７０～１００モル％、より好ましくは８０～１００モル％である。

[0033] また、本発明の目的および効果の妨げにならない限りにおいて、重合体ブロック（ＩＩ）は、アクリル酸エステル以外の他の重合性単量体を共重合成分に含んでいてもよい。

このような他の重合性単量体としては、前記ブロック（Ｉ）の重合成分として使用できる他の重合性単量体を使用することができる。

[0034] 前記他の重合性単量体は、本発明の効果を発現させる観点から少量であることが好ましく、ブロック（ＩＩ）の全重合成分のうち、好ましくは２０質量％以下（例えば１～２０質量％）、より好ましくは１０質量％以下（例えば１～１０質量％）である。

[0035] ブロック（Ｉ）のガラス転移温度は、例えば４０～２５０℃、好ましくは１１０～２００℃、より好ましくは１１５～１６０℃である。

また、ブロック（ＩＩ）のガラス転移温度は、例えば－５０～３０℃、好ましくは－４５～０℃、より好ましくは－４０～－２０℃である。ブロック（ＩＩ）のガラス転移温度は、ブロック（Ｉ）のガラス転移温度より、例えば２０～３００℃小さく、好ましくは８０～２５０℃小さく、より好ましくは１００～２００℃小さい。

[0036] ブロック（Ｉ）の重量平均分子量は、特に限定されないが、ブロック共重合体の強度が優れる等の観点から、例えば１０，０００～５００，０００で

あり、好ましくは１５，０００～２００，０００であり、より好ましくは２０，０００～１００，０００である。

また、ブロック（ＩＩ）の重量平均分子量は、特に限定されないが、ブロック共重合体の強度が優れる等の観点から、例えば５，０００～２００，０００であり、好ましくは１０，０００～１５０，０００であり、より好ましくは１５，０００～１００，０００である。

[0037] ブロック共重合体全体において、重合体ブロック（Ｉ）及び重合体ブロック（ＩＩ）の組成比は、例えばブロック（Ｉ）が２０～９０質量%、ブロック（ＩＩ）が８０～１０質量%であり、好ましくはブロック（Ｉ）が２５～８５質量%、ブロック（ＩＩ）が７５～１５質量%であり、さらに好ましくはブロック（Ｉ）が３０～７０質量%、ブロック（ＩＩ）が７０～３０質量%である。ブロック（Ｉ）の割合が２０質量%以上であれば、ブロック（ＩＩ）との相溶性が向上する傾向があり、ブロック（ＩＩ）の割合が１０質量%以上であれば、本発明のブロック共重合体を含む樹脂組成物で形成されたフィルムの耐折性等の機械的強度が向上する傾向がある。

[0038] 本発明のブロック共重合体において、ブロック（Ｉ）とブロック（ＩＩ）の含有割合は、ブロック（Ｉ）：ブロック（ＩＩ）のモル比が、例えば２０：８０～９０：１０、好ましくは２５：７５～８５：１５、さらに好ましく３０：７０～７０：３０である。ブロック（Ｉ）の割合が２０モル%以上であれば、ブロック（ＩＩ）との相溶性が向上する傾向があり、ブロック（ＩＩ）の割合が１０モル%以上であれば、ブロック共重合体を含む樹脂組成物で形成されたフィルムの耐折性等の機械的強度が向上するため好ましい。

[0039] 本発明の目的および効果の妨げにならない限りにおいて、ブロック共重合体は、ブロック（Ｉ）及び（ＩＩ）とは別の重合体ブロックとして、メタクリル酸エステル及びアクリル酸エステル以外の成分を重合成分とするブロック（ＩＩＩ）［以下、重合体ブロック（ＩＩＩ）ともいう］１種以上を有してもよい。

[0040] 重合体ブロック（ＩＩＩ）と、重合体ブロック（Ｉ）及び重合体ブロック

（ＩＩ）との結合の形態は特には限定されないが、例えば、（Ｉ）－（（ＩＩ）－（Ｉ））ｎ－（ＩＩＩ）や、（ＩＩＩ）－（Ｉ）－（（ＩＩ）－（Ｉ））ｎ－（ＩＩＩ）等の構造（ｎは１～２０の整数である）が挙げられる。

[0041] 上記重合体ブロック（ＩＩＩ）の重合成分としては、オレフィン（例えば、エチレン、プロピレン、１－ブテン、イソブチレン、１－オクテン等のC_{2-10}アルケン）、共役ジエン化合物（例えば、１，３－ブタジエン、イソプレン、ミルセン等）、ビニル化合物［例えば、芳香族ビニル化合物（例えば、スチレン、α－メチルスチレン、ｐ-メチルスチレン、ｍ－メチルスチレン、ビニルピリジン等）、ビニルエステル（例えば、酢酸ビニル等）、α，β－不飽和ニトリル（例えば、アクリロニトリル、メタクリロニトリル等）、ビニルケトン、ハロゲン化ビニル（例えば、塩化ビニル、塩化ビニリデン、フッ化ビニリデン等）］、（メタ）アクリルアミド類（例えば、アクリルアミド、メタクリルアミド等）、ラクトン系化合物（例えば、ε－カプロラクトン、バレロラクトン等）等を挙げることができる。重合体ブロック（ＩＩＩ）は、これらの重合成分の１種から構成されていても、２種以上から構成されていてもよい。

[0042] 本発明のブロック共重合体におけるブロック（ＩＩＩ）の含有量は、特に限定されないが、ブロック（Ｉ）及びブロック（ＩＩ）：ブロック（ＩＩＩ）のモル比が、例えば１００：０～５０：５０、好ましくは１００：０～７０:３０、より好ましくは１００：０～８０：２０である。

[0043] 本発明のブロック共重合体におけるブロック（ＩＩＩ）の含有量は、特に限定されないが、ブロック共重合体全体において、ブロック（ＩＩＩ）が、例えば０～５０質量%、好ましくは０～３０質量%、より好ましくは０～２０質量%である。

[0044] また、ブロック共重合体は、必要に応じて、分子鎖中または分子鎖末端に水酸基、カルボキシル基、アミノ基等の官能基を有していてもよい。

[0045] ［環構造］

本発明のブロック共重合体は、主鎖に環構造を有することが好ましい。主

鎖に環構造を有することにより、ブロック共重合体の軟化温度や熱分解温度等の耐熱性、硬度（強度）、耐溶剤性、表面硬度、接着性、酸素や水蒸気のバリヤ性、各種の光学特性が向上する。更に、フィルムやシートにした場合に、高温、高湿度条件下での寸法安定性や形状安定性が向上する。これに加えて、主鎖の環構造は、本発明のフィルムを位相差フィルムとする場合、延伸によってフィルムが大きな位相差を発現することに寄与する。この特徴は、位相差フィルムまたは位相差フィルムの機能を有する偏光子保護フィルムとしての、本発明の光学フィルムの使用を可能とする。

[0046] 本発明のブロック共重合体が主鎖に有する環構造は、例えば、環状イミド構造（例えば、マレイミド構造、グルタルイミド構造等）、環状無水物構造（例えば、無水マレイン酸構造、無水グルタル酸構造等）、ラクトン環構造等であり、好ましくは、マレイミド構造、無水マレイン酸構造、グルタルイミド構造、無水グルタル酸構造及びラクトン環構造から選ばれる少なくとも１種である。マレイミド構造は、例えば、シクロヘキシルマレイミド構造、メチルマレイミド構造、フェニルマレイミド構造、ベンジルマレイミド構造である。これら環構造は、ブロック共重合体の主鎖に１種又は２種以上含まれていてよい。

[0047] ブロック共重合体の耐熱性の観点からは、当該環構造は、ラクトン環構造、環状イミド構造（例えば、Ｎ－アルキル置換マレイミド構造、グルタルイミド構造等）、環状無水物構造（例えば、無水マレイン酸構造、無水グルタル酸構造等）が好ましい。

また、耐水性や耐熱水性などの観点からは、環状非無水物構造［例えば、ラクトン環構造、環状イミド構造（特に、グルタルイミド構造、マレイミド構造）］であるのが好ましい。

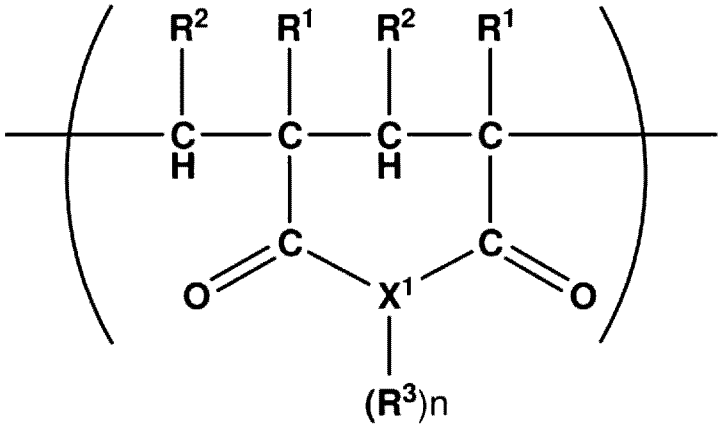
[0048] 本発明のフィルムが光学フィルムである場合、表面硬度、耐溶剤性、接着性、バリヤ特性、光学特性が付与される観点からは、当該環構造は、ラクトン環構造、グルタルイミド構造及び無水グルタル酸構造が好ましい。光学フィルムの中でも位相差フィルムである場合、正の位相差が付与でき、更に位

相差特性の安定性が優れる観点からは、当該環構造はラクトン環構造、グルタルイミド構造が好ましい。

これらの観点から、本発明において、特に好ましい環構造は、ラクトン環構造、環状イミド構造である。そのため、本発明のブロック共重合体は、特に、ラクトン環構造及び環状イミド構造（特に、グルタルイミド構造、マレイミド構造）から選択された少なくとも１種の環構造を有する（さらには、環状無水物構造を実質的に有しない）のが好ましい。

[0049] グルタルイミド構造及び無水グルタル酸構造としては、例えば、以下の式（１）で表される構造である。

[0050] [化1]



(1)

（式中、R^1およびR^2は、それぞれ独立して、水素原子またはアルキル基であり、R^3は水素原子又は置換基であり、X^1は酸素原子又は窒素原子である。X^1が酸素原子のときｎ＝０であり、X^1が窒素原子のときｎ＝１である。）

[0051] 式（１）のR^1及びR^2において、アルキル基としては、例えば、C_{1-8}アルキル基（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、イソブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、イソペンチル基、ｎ－ヘキシル基、イソヘキシル基、ｎ－ヘプチル基、イソヘプチル基、ｎ－オクチル基、２－エチルヘキシル基等）等が挙げられるが、本発明は、かかる例示のみに限定されるものではない。R^1およびR^2のなかでは、耐熱性に優れ、複屈折率が小さい光学フィルムを得る観点から、水素原子

またはＣ$_{1-4}$アルキル基が好ましい。

[0052] 式（１）のＲ^{3}において、置換基としては、例えば、炭化水素基等が挙げられる。

当該炭化水素基としては、例えば、脂肪族基、脂環族基、芳香族基である。尚、炭化水素基は、さらにハロゲン等の置換基を有していてもよい。

[0053] 式（１）のＲ^{3}において、脂肪族基としては、例えば、Ｃ$_{1-10}$アルキル基（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、イソブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、ｎ－ペンチル基、イソペンチル基、ｎ－ヘキシル基、イソヘキシル基、ｎ－ヘプチル基、イソヘプチル基、ｎ－オクチル基、２－エチルヘキシル基等）等が挙げられるが、本発明は、かかる例示のみに限定されるものではない。これらのアルキル基のなかでは、耐熱性に優れ、複屈折率が小さいブロック共重合体を得る観点から、Ｃ$_{1-4}$アルキル基が好ましく、メチル基がより好ましい。

[0054] 式（１）のＲ^{3}において、脂環族基としては、例えば、Ｃ$_{3-12}$シクロアルキル基（例えば、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等）が挙げられるが、本発明は、かかる例示のみに限定されるものではない。これらのシクロアルキル基のなかでは、耐熱性に優れ、複屈折率が小さいブロック共重合体を得る観点から、Ｃ$_{3-7}$シクロアルキル基が好ましく、シクロヘキシル基がより好ましい。

[0055] 式（１）のＲ^{3}において、芳香族基としては、例えば、Ｃ$_{6-20}$芳香族基［例えば、Ｃ$_{6-20}$アリール基（例えば、フェニル基、ｏ－トリル基、ｍ－トリル基、ｐ－トリル基、２，３－キシリル基、２，４－キシリル基、２，５－キシリル基、２，６－キシリル基、３，４－キシリル基、３，５－キシリル基、１－ナフチル基、２－ナフチル基、ビナフチル基、アントリル基等）、Ｃ$_{7-20}$アラルキル基（例えば、ベンジル基等）等］が挙げられるが、本発明は、かかる例示のみに限定されるものではない。これらの芳香族基のなかでは、耐熱性に優れ、複屈折率が小さいブロック共重合体を得る観点から、フェニル基およびトリル基が好ましい。

[0056] 式（１）において、耐熱性に優れ、複屈折率が小さいブロック共重合体を得られる等の観点から、好ましくは、R^1およびR^2がそれぞれ独立して水素原子またはメチル基、R^3が、C_{1-10}アルキル基、C_{3-12}シクロアルキル基又はC_{6-20}芳香族基であり、より好ましくは、R^1およびR^2がそれぞれ独立して水素原子またはメチル基、R^3が、C_{1-4}アルキル基、C_{3-7}シクロアルキル基、C_{6-20}アリール基又はC_{7-20}アラルキル基であり、さらに好ましくは、R^1およびR^2がそれぞれ独立して水素原子またはメチル基、R^3が、メチル基、シクロヘキシル基、フェニル基又はトリル基であり、最も好ましくは、R^1およびR^2がそれぞれ独立して水素原子またはメチル基、R^3がシクロヘキシル基又はフェニル基である。

[0057] なお、本発明のブロック共重合体に用いられるブロック（ＩＩ）、（ＩＩＩ）及び（ＩＩＩＩ）は、式（１）で表わされる構造を１種又は２種以上含んでいてよい。

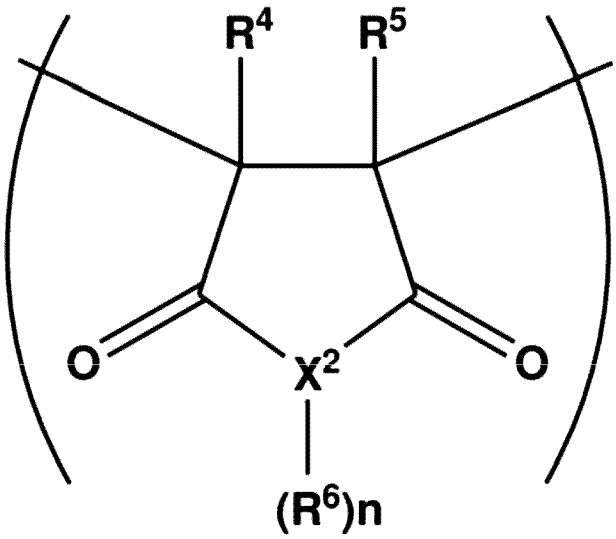
特に、前記のように、式（１）で表される構造を有する場合、本発明のブロック共重合体は、環状非無水物構造であるグルタルイミド構造（すなわち、式（１）において、X^1が窒素原子である構造）を有するのが好ましい。

なお、無水グルタル酸構造（すなわち、式（１）において、X^1が酸素原子である構造）は、加水分解したり、酸価が大きくなって耐水性や耐熱水性を低下させたり光学特性を変動させる虞があるため、本発明のブロック共重合体は、無水グルタル酸構造を実質的に有していないか、含んでいても少ないのが好ましい。

[0058] 無水マレイン酸構造及びマレイミド構造は、例えば、以下の式（２）で表される構造である。

[0059]

[化2]



(2)

（式中、R^4、R^5は互いに独立して水素原子またはメチル基であり、R^6は水素原子又は置換基であり、X^2は酸素原子または窒素原子である。X^2が酸素原子のときｎ＝０であり、X^2が窒素原子のときｎ＝１である。）

[0060] 式（２）のR^6において、置換基としては、例えば、炭化水素基等が挙げられる。

当該炭化水素基としては、例えば、脂肪族基｛例えば、アルキル基［例えば、C_{1-6}直鎖アルキル基（例えば、メチル基、エチル基等）、C_{1-6}分岐アルキル基（例えば、イソプロピル基等）等のC_{1-6}アルキル基等］等｝、脂環族基（例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等のC_{3-20}シクロアルキル基等）、芳香族基｛例えば、C_{6-20}芳香族基［例えば、C_{7-20}アラルキル基（例えば、ベンジル基等）、C_{6-20}アリール基（例えば、フェニル基等）］｝である。尚、炭化水素基は、さらにハロゲン等の置換基を有していてもよい。

[0061] X^2が酸素原子のとき、式（２）により示される環構造は無水マレイン酸構造となる。無水マレイン酸構造は、例えば、無水マレイン酸と（メタ）アクリル酸エステルとを共重合することによって形成することができる。

[0062] X^2が窒素原子のとき、式（２）により示される環構造はマレイミド構造となる。マレイミド構造は、例えば、マレイミドと（メタ）アクリル酸エステ

ルとを共重合することによって形成することができる。

[0063] X^2が窒素原子のとき、耐熱性に優れ、複屈折率が小さいブロック共重合体を得られる等の観点から、好ましくは、R^4及びR^5がそれぞれ独立して水素原子、R^6がC_{3-20}シクロアルキル基又はC_{6-20}芳香族基であり、より好ましくはR^4及びR^5がそれぞれ独立して水素原子、R^6がシクロヘキシル基またはフェニル基である。

[0064] なお、本発明のブロック共重合体に用いられるブロック（ＩＩ）、（ＩＩＩ）及び（ＩＩＩＩ）は、式（２）で表わされる構造を１種又は２種以上含んでいてよい。

特に、前記のように、式（２）で表される構造を有する場合、本発明のブロック共重合体は、環状非無水物構造であるマレイミド構造（すなわち、式（２）において、X^2が窒素原子である構造）を有するのが好ましい。

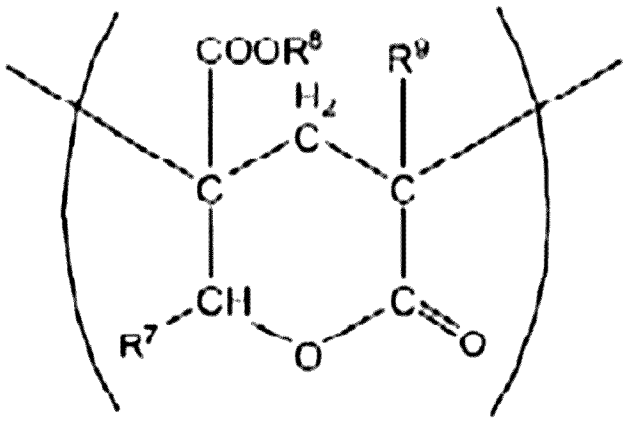
なお、無水マレイン酸構造（すなわち、式（２）において、X^2が酸素原子である構造）は、加水分解したり、酸価が大きくなって耐水性や耐熱水性を低下させたり光学特性を変動させる虞があるため、本発明のブロック共重合体は、無水マレイン酸構造を実質的に有していないか、含んでいても少ないのが好ましい。

[0065] ブロック共重合体が主鎖に有していてもよいラクトン環構造は特に限定されず、例えば、４から８員環であってもよいが、環構造の安定性に優れることから５員環又は６員環であることが好ましく、６員環であることがより好ましい。

[0066] ６員環であるラクトン環構造は、例えば、特開２００４－１６８８８２号公報に開示されている構造であるが、前駆体の重合収率が高いこと、前駆体の環化縮合反応により、高いラクトン環含有率を有するブロック共重合体が得られることなどの理由から以下の式（３）に示される構造が好ましい。

[0067]

[化3]



(3)

（式中、Ｒ^{7}、Ｒ^{8}及びＲ^{9}は、互いに独立して、水素原子または置換基である。）

[0068] 式（３）において、置換基としては、例えば、炭化水素基等の有機残基等が挙げられる。

当該炭化水素基としては、例えば、脂肪族基（例えば、メチル基、エチル基、プロピル基などのＣ$_{1-20}$アルキル基、エテニル基、プロペニル基などのＣ$_{2-20}$不飽和脂肪族炭化水素基等）、芳香族基（例えば、フェニル基、ナフチル基などのＣ$_{6-20}$芳香族炭化水素基等）等である。前記炭化水素基は、酸素原子を含んでいてもよく、水素原子の一つ以上が、水酸基、カルボキシル基、エーテル基及びエステル基から選ばれる少なくとも１種類の基により置換されていてもよい。

[0069] 式（３）において、耐熱性に優れ、複屈折率が小さいブロック共重合体を得られる等の観点から、好ましくは、Ｒ^{9}が水素原子またはメチル基、Ｒ^{7}及びＲ^{8}がそれぞれ独立して水素原子またはＣ$_{1-20}$アルキル基であり、より好ましくは、Ｒ^{9}が水素原子またはメチル基、Ｒ^{7}及びＲ^{8}がそれぞれ独立して水素原子またはメチル基である。

[0070] なお、本発明のブロック共重合体に用いられるブロック（Ｉ）、（ＩＩ）及び（ＩＩＩ）は、式（３）で表わされる構造を１種又は２種以上含んでいてよい。

[0071] 本発明のブロック共重合体において、環構造は、ブロック（Ｉ）、（ＩＩ

）及び（ＩＩＩ）のいずれのブロックに導入されていてもよく、通常はブロック（Ｉ）及び／又は（ＩＩ）に導入されており、少なくともブロック（ＩＩ）（ソフト成分など）に導入されていることが好ましく、特にブロック（Ｉ）及びブロック（ＩＩ）に導入されているのが好ましい。

ブロック（Ｉ）とブロック（ＩＩ）に環構造が含まれることで、ブロック（Ｉ）とブロック（ＩＩ）の屈折率が近くなることからブロックポリマーの透明性が向上する。また、ブロック（Ｉ）と（ＩＩ）両方の耐熱分解性が向上することからブロックポリマーの耐熱分解性が向上する。更に、ブロックポリマーの強度向上にも期待できる。また、他樹脂と混合した際の相溶性が向上し透明性が高まる。

[0072] 本発明のブロック共重合体における環構造の含有率は特に限定されないが、例えば１～６０モル％であり、好ましくは１～４０モル％であり、より好ましくは２～３０モル％であってもよく、２０モル％以下［例えば、１５モル％以下（例えば、１～１２モル％）、好ましくは１０モル％以下（例えば、２～９モル％）］であってもよい。この場合、ブロック共重合体が優れた透明性、耐熱性及び強度を両立できるため、好ましい。

特に、ブロック（ＩＩ）（ソフト成分など）が環構造を有する場合、ブロック（ＩＩ）における環構造とブロック（Ｉ）における環構造との割合は、前者／後者（モル比）＝５０／５０～０．１／９９．９、好ましくは３０／７０～０．５／９９．５、さらに好ましくは、１５／８５～１／９９であってもよい。

[0073] 本発明のブロック共重合体における環構造の含有率は特に限定されないが、例えば１～８０質量％であり、好ましくは１～５０質量％であり、より好ましくは２～４０質量％である。この場合、ブロック共重合体が優れた透明性、耐熱性及び強度を両立できるため、好ましい。

[0074] 特に、ブロック共重合体におけるグルタルイミド構造及び／又は無水グルタル酸構造の含有率は、ブロック共重合体の耐熱性及び透明性を向上させる等の観点から、好ましくは５質量％以上、より好ましくは１０質量％以上、

さらに好ましくは１５質量％以上であり、フィルムへの成形性を向上させ、機械的強度を高める等の観点から、例えば９０質量％以下、好ましくは６０質量％以下、より好ましくは５７質量％以下、さらに好ましくは５５質量％以下である。

ブロック共重合体における環構造の含有率が５質量％以上であれば、フィルムの耐熱性や、耐溶剤性および表面硬度が良好となるため好ましい。一方、前記含有率が９０質量％以下であれば、フィルムの成形性や機械的特性に優れるため好ましい。

[0075] ブロック共重合体におけるグルタルイミド構造及び／又は無水グルタル酸構造の含有率は、ブロック共重合体の耐熱性及び透明性を向上させる等の観点から、例えば３～８５モル％、好ましくは６～５０モル％、より好ましくは１０～４０モル％である。

[0076] また、ブロック共重合体における無水マレイン酸構造及び／又はＮ－置換マレイミド構造の含有率は、特に限定されないが、ブロック共重合体の耐熱性及び透明性を向上させる等の観点から、例えば５～９０質量％であり、好ましくは１０～７０質量％であり、より好ましくは１０～６０質量％であり、さらに好ましくは１０～５０質量％である。

[0077] ブロック共重合体における無水マレイン酸構造及び／又はマレイミド構造の含有率は、ブロック共重合体の耐熱性及び透明性を向上させる等の観点から、ブロック共重合体の耐熱性及び透明性を向上させる等の観点から、例えば７～９０モル％、好ましくは１０～７５モル％、より好ましくは１０～６０モル％である。

特に、ブロック共重合体における環状イミド構造（例えば、グルタルイミド構造及び／又はマレイミド構造）の含有率は、例えば、２モル％以上（例えば、２～３０モル％）、好ましくは３モル％以上（例えば、３～２５モル％）、さらに好ましくは４モル％以上（例えば、４～２０モル％）であってもよい。

また、ブロック共重合体における環状無水物構造（例えば、グルタル酸無

水物構造及びマレイン酸無水物構造など）の含有率は、例えば、２０モル％以下、好ましくは１０モル％以下、さらに好ましくは８モル％以下であってもよい。

なお、上記の通り、ブロック共重合体における環状無水物構造の含有割合は少ないのが好ましいが、ブロック共重合体が環状無水物構造を有する場合、その含有率の下限値は、例えば、２モル％、３モル％、４モル％などであってもよい。

[0078] また、ブロック共重合体におけるラクトン環構造の含有率は特に限定はされないが、ブロック共重合体の耐熱性及び透明性を向上させる等の観点から、例えば１０～７０質量％であり、好ましくは１５～５０質量％であり、より好ましくは１５～４５質量％である。

[0079] ブロック共重合体におけるラクトン環構造の含有率は、ブロック共重合体の耐熱性及び透明性を向上させる等の観点から、ブロック共重合体の耐熱性及び透明性を向上させる等の観点から、例えば６～６０モル％、好ましくは９～３７モル％、より好ましくは９～３０モル％である。

[0080] 本発明のブロック共重合体のＧＰＣ測定法によるスチレン換算の重量平均分子量（Ｍｗ）は、特に限定されないが、１０，０００～５００，０００であることが好ましく、より好ましくは３０，０００～３００，０００であり、さらに好ましくは５０，０００～２００，０００である。この重量平均分子量が１０，０００よりも大きいと、溶融押出成形において十分な溶融張力を保持でき、良好なシート状成形体が得られやすく、また得られたシート状成形体の破断強度等の力学物性が優れる。一方５００，０００よりも小さいと、溶融樹脂が高粘度化せず、溶融押出成形で得られるシート状成形体の表面に微細なイボ状の凹凸や未溶融物（高分子量体）に起因する異物の発生を抑制でき、良好なシート状成形体が得られやすい傾向がある。

[0081] 本発明のブロック共重合体が、グルタルイミド構造及び／又は無水グルタル酸構造を有する場合、ブロック共重合体の重量平均分子量は、ブロック共重合体の機械的強度を高める等の観点から、好ましくは１００００以上、よ

り好ましくは３００００以上であり、フィルムへの成形性を向上させる等の観点から、好ましくは５００００以下、より好ましくは３００００以下である。

[0082] 本発明のブロック共重合体のＧＰＣ測定法による分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、１～１０であることが好ましい。成形加工に適した樹脂粘度に調整する等の観点から、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、より好ましくは１．１～７．０、さらに好ましくは１．２～５．０、より一層好ましくは１．５～４．０である。特に、本発明のブロック共重合体の分子量分布は、３以下［例えば、２．５以下（例えば、１～２．２）、好ましくは２以下（例えば、１～１．９）、さらに好ましくは１～１．８（例えば、１．０５～１．７５）］であってもよく、最も好ましくは１．１～２であってもよい。

[0083] 本発明のブロック共重合体の酸価は、用途等にもよるが、小さいのが好ましく、例えば、１０ｍｍｏｌ／ｇ以下、好ましくは５ｍｍｏｌ／ｇ以下、さらに好ましくは３ｍｍｏｌ／ｇ以下、最も好ましくは１．５ｍｍｏｌ／ｇ以下である。

酸価が１０ｍｍｏｌを超える場合、耐水性に劣る。また、吸水率や透湿率が高くなることから寸法安定性や耐久性に課題を生じる。

[0084] 本発明のブロック共重合体の４０℃以下の温度領域で観測されるガラス転移温度（Ｔｇ）は、－１００℃以上４０℃以下が好ましく、より好ましくは－９０℃以上０℃以下、さらに好ましくは－８０℃以上－２０℃以下である。

また、４０℃以上の温度領域で観測されるガラス転移温度（Ｔｇ）は、１１０℃以上２５０℃以下が好ましく、より好ましくは１１５℃以上２３０℃以下、更に好ましくは、１２０℃以上２００℃以下である。

[0085] 本発明のブロック共重合体が、グルタルイミド構造及び／又は無水グルタル酸構造を有する場合、ブロック共重合体の４０℃以上で観察されるガラス転移温度は、１１０℃以上２５０℃以下が好ましく、より好ましくは１１５℃以上２３０℃以下、さらに好ましくは１２０℃以上２００℃以下である。

[0086] ［ブロック共重合体の重合方法］

（メタ）アクリル酸エステルを重合成分として含むブロック（Ｉ）と、（メタ）アクリル酸エステルを重合成分として含み、ブロック（Ｉ）よりも低いガラス転移温度を有するブロック（ＩＩ）とを有するブロック共重合体であり、ブロック（ＩＩ）が環構造を有することを特徴とするブロック共重合体は、例えば、環構造を形成し得る単量体をモノマーとして用いてブロック共重合体を共重合することによって形成することができる。

[0087] また、前記ブロック共重合体（Ａ）を形成した後、環化反応を進行させてブロック共重合体のブロック（ＩＩ）に環構造を導入することによっても形成できる。このような導入方法は、後述のように、他の樹脂を含んでいる場合でも行うことが可能である。また、このような方法では、他の樹脂の種類に応じて、ブロック共重合体（Ａ）及び他の樹脂の双方に環構造を形成（導入）することもできる。

例えば、他の樹脂として、ブロック（Ｉ）及び／又はブロック（ＩＩ）と同様の骨格を有する樹脂［例えば、アクリル系樹脂（例えば、ポリメタクリル酸メチルなどのメタクリル系樹脂）など］を使用することで、ブロック共重合体（Ａ）及び他の樹脂の双方に、共通する環構造（例えば、グルタルイミド構造など）を導入することもできる。

尚、後から環化反応を行う場合、ブロック共重合体（Ａ）としては市販品のブロック共重合体を使用してもよく、市販品としては、例えば、株式会社クラレ社製クラリティＬＡ４２８５やＬＡ２２５０等が挙げられる。

[0088] 本発明のブロック共重合体の製造方法は、特に制限はなく、公知の手法に準じた方法を採用することができる。

例えば、各ブロックの構成単位であるモノマーをリビング重合する方法が一般に使用される。このようなリビング重合の手法としては、例えば、特開平１１－３３５４３２号公報に記載の方法である有機アルカリ金属化合物を重合開始剤とし有機アルミニウム化合物の存在下でアニオン重合する方法、特開平６－９３０６０号公報に記載の方法である有機希土類金属錯体を重合

開始剤として重合する方法、Ｍａｃｒｏｍｏｌ．Ｃｈｅｍ．Ｐｈｙｓ．２０１巻、１１０８～１１１４頁（２０００年）に記載の方法であるα－ハロゲン化エステル化合物を開始剤として銅化合物の存在下ラジカル重合する方法、Ｍａｃｒｏｍｏｌｅｃｕｌｅｓ、２６巻、２９８７頁（１９９３）に記載の方法であるニトロキシル基媒介重合、Ｍａｃｒｏｍｏｌｅｃｕｌｅｓ、２８巻、２０９３頁（１９９５）に記載の方法である原子移動ラジカル重合、Ｍａｃｒｏｍｏｌｅｃｕｌｅｓ、３１巻、５５５９頁（１９９８）に記載の方法である可逆的付加一開裂連鎖移動重合等が挙げられる。

[0089] また、多価ラジカル重合開始剤や多価ラジカル連鎖移動剤を用いて、各ブロックを構成するモノマーを重合し、本発明のブロック共重合体を含有する混合物として製造する方法等も挙げられる。

これらの方法のうち、特に、ブロック共重合体が高純度で得られ、また分子量や組成比の制御が容易であり、かつ経済的であることから、有機アルカリ金属化合物（例えば、有機リチウム化合物等）を重合開始剤とし有機アルミニウム化合物の存在下でアニオン重合する方法が推奨される。

[0090] 本発明において、有機アルカリ金属化合物等の重合開始剤の使用量は、特に限定されないが、例えば、（メタ）アクリル酸エステル単量体１００モル％に対して、０．０１～１０モル％である。

また、有機アルカリ金属化合物及び有機アルミニウム化合物を使用する場合、有機アルミニウム化合物の使用量は、特に限定されないが、有機アルカリ金属化合物１モルに対して、例えば１～５００モル、好ましくは２～１００モルである。

[0091] 重合において、必要に応じて公知の添加剤［例えば、無機塩類（例えば、塩化リチウム等）、有機四級塩（例えば、テトラエチルアンモニウムクロリド等）］や触媒等を添加してもよい。添加剤の使用量は、単量体の組合せや反応条件等に応じて適宜設定すればよく、特に限定されるものではない。

[0092] 重合においては、重合溶媒を使用することができる。重合溶媒としては、特に限定されないが、有機溶媒が好ましい。

有機溶媒としては、特に限定されないが、例えば、炭化水素系溶媒［例えば、芳香族炭化水素系溶媒（例えば、ベンゼン、トルエン、キシレン等）、脂環族炭化水素系溶媒（例えば、シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン等）、ハロゲン化炭化水素系溶媒（例えば、クロロホルム、塩化メチレン、四塩化炭素等）等］等が挙げられる。これらの溶媒は、単独で用いても２種以上を併用してもよい。

[0093] 重合溶媒の使用量は、特に限定されないが、重合系内における単量体組成物の総量１００質量部に対して、通常は１～２００質量部の範囲から適宜選択すれば良く、好ましくは１０～１５０質量部であり、より好ましくは５０～１００質量部である。

[0094] 重合時間は、反応規模や反応温度等により一定しないが、単量体の転化率が９０％以上となる等の観点から、例えば数分（１分～１０分程度）～２０時間の範囲で適宜選択すれば良く、好ましくは０．５～２０時間であり、より好ましくは１～１０時間である。

[0095] 尚、各種重合体を作成するにあたり、重合を行う際にそのモノマー原料、重合開始剤や触媒などの副原料および重合に用いる溶媒などは可能な限り濾過してから使用することが、重合体の異物低減の観点、および重合後に濾過することよりも低粘度の段階で濾過できることから好ましい。

濾過の方法としては、液体であれば直接、固体であれば重合に使用する溶媒等に溶解してからメンブレンフィルタや中空糸膜フィルタ等の各種フィルタに通せばよく、それぞれ別々に濾過しても、混合物としてから濾過してもよい。また、この際の濾過の精度は、好ましくは５．０μｍ以下、より好ましくは１．０μｍ以下、さらに好ましくは０．５μｍ以下である。

[0096] また、重合中に発生するゲル成分等の濾過、重合後の環化反応等の反応工程や樹脂ペレット等の成形体とする際の加熱溶融による熱劣化樹脂の除去の観点から、重合溶液の濾過および／または加熱溶融樹脂の濾過を併用することが好ましい。

濾過の方法としては、例えば、リーフディスクフィルタ、キャンドルフィ

ルタ、パックディスクフィルタおよび円筒型フィルタである。なかでも、有効濾過面積が高いリーフディスクフィルタおよびキャンドルフィルタが好ましい。

フィルタ濾材は特に限定されない。例えば、ポリプロピレン、コットン、ポリエステル、ビスコースレーヨン、グラスファイバーなどの各種の繊維の不織布もしくはロービングヤーン巻回体、またはフェノール樹脂含浸セルロースからなる濾材、金属繊維の不織布を焼結した濾材、金属粉末を焼結した濾材、複数の金網を積層した濾材、これらの濾材を組み合わせたいわゆるハイブリッド型の濾材など、いずれの濾材も使用可能である。なかでも、耐久性および耐圧性に優れることから、金属繊維の不織布を焼結した濾材が好ましい。

重合液を濾過する精度は、例えば１５μｍ以下であり、得られた樹脂体を光学フィルムなどの光学部材に使用することを想定すると、その光学的欠点の低減のために５μｍ以下が好ましい。濾過精度の下限は特に限定されないが、例えば０．２μｍである。これら濾過工程は、重合工程、或いは環化反応工程などに引き続いて連続的に実施することができる。

[0097] ブロック（Ｉ）及び（ＩＩ）［必要に応じてブロック（ＩＩＩ）］は、例えばリビング重合によって重合することができる。

本発明のブロック共重合体は、アニオン重合の場合、例えば、ブロック（Ｉ）又は（ＩＩ）のいずれか一方の単量体を添加して重合した後、もう一方のブロックの単量体を追加して重合することにより、得ることができる。この方法によって、ブロック（Ｉ）とブロック（ＩＩ）が交互に結合したブロック共重合体を得ることができる。

[0098] ブロック（Ｉ）の単量体とブロック（ＩＩ）の単量体の添加順序については、特に限定されず、先にブロック（Ｉ）の単量体を添加して重合した後にブロック（ＩＩ）の単量体を追加して重合してもよいし、先にブロック（ＩＩ）の単量体を添加して重合した後にブロック（Ｉ）の単量体を追加して重合してもよい。

[0099] 例えば、ブロック（Ｉ）の単量体を重合した後、ブロック（ＩＩ）の単量体を追加して重合し、さらにブロック（Ｉ）の単量体を追加して重合することにより、（Ｉ）－（ＩＩ）－（Ｉ）で表されるトリブロック体を得ることができる。

ブロック（ＩＩＩ）を導入する場合も、同様に、所望の順序でブロック（ＩＩＩ）の単量体を添加して重合してよい。

[0100] 主鎖にグルタルイミド構造を有するブロック共重合体は、例えば、前記ブロック共重合体（Ａ）を、特開２００６－３０９０３３号公報、特開２００６－３１７５６０号公報、特開２００６－３２８３２９号公報、特開２００６－３２８３３４号公報、特開２００６－３３７４９１号公報、特開２００６－３３７４９２号公報、特開２００６－３３７４９３号公報、特開２００７－００９１８２号公報に記載されている方法によりイミド化を行うことによって形成することができる。イミド化方法は特に限定されず、イミド化剤を用いて行うことができる。

[0101] イミド化剤としては、例えば、メチルアミン等のC_{1-10}アルキルアミン、シクロヘキシルアミン等のC_{3-12}シクロアルキルアミン、アニリン、ベンジルアミン、トルイジン、トリクロロアニリン等のC_{6-10}アリールアミンなどが挙げられるが、本発明は、かかる例示のみに限定されるものではない。これらのイミド化剤は、それぞれ単独で用いてもよく、２種類以上を併用してもよい。イミド化剤のなかでは、耐熱性に優れ、複屈折率が小さいブロック共重合体を得る観点から、メチルアミン、シクロヘキシルアミン、アニリン、トルイジンが好ましく、メチルアミンとアニリンが特に好ましい。

[0102] ブロック共重合体（Ａ）をイミド化剤でイミド化させる方法としては、例えば、公知のイミド化方法などを挙げることができる。

具体的な方法としては、例えば、（１）ブロック共重合体（Ａ）を溶解させることができ、イミド化に対して不活性な溶媒に当該ブロック共重合体を溶解させ、得られた溶液にイミド化剤を添加して反応させる方法（バッチ式反応法）、（２）押出機などを用いて溶融状態のブロック共重合体（Ａ）に

イミド化剤を添加し、イミド化させる方法（溶融混練法）などが挙げられるが、本発明は、かかる例示のみに限定されるものではない。

[0103] 前記バッチ式反応法には、バッチ式反応槽（圧力容器）を用いることができる。バッチ式反応槽（圧力容器）は、ブロック共重合体（Ａ）を溶媒に溶解させた溶液を加熱し、撹拌することができ、イミド化剤を添加することができる構造を有するものであることが好ましく、イミド化反応の進行に伴って前記溶液の粘度が高くなることがあるので、撹拌効率に優れているものがより好ましい。前記バッチ式反応槽（圧力容器）としては、例えば、住友重機械工業（株）製、マックスブレンド（登録商標）撹拌槽などが挙げられるが、本発明は、かかる例示のみに限定されるものではない。

[0104] 前記バッチ式反応法において、イミド化に対して不活性な溶媒としては、例えば、メチルアルコール、エチルアルコール、ｎ－プロピルアルコール、イソプロピルアルコール、ｎ－ブチルアルコール、イソブチルアルコールなどの脂肪族アルコール；ベンゼン、トルエン、キシレン、クロロベンゼン、クロロトルエンなどの芳香族系化合物；エーテル系化合物などが挙げられるが、本発明は、かかる例示のみに限定されるものではない。これら溶媒は、それぞれ単独で用いてもよく、２種類以上を併用してもよい。これらの溶媒のなかでは、トルエン、およびトルエンとメチルアルコールとの混合溶媒が好ましい。

[0105] 前記バッチ式反応法において、イミド化反応の反応温度は、ブロック共重合体（Ａ）をイミド化剤で効率よくイミド化させるとともに、過剰な熱履歴による当該ブロック共重合体の分解、着色などを抑制する観点から、好ましくは１６０～４００℃、より好ましくは１８０～３５０℃、さらに好ましくは２００～３００℃である。

[0106] 前記溶融混練法には、押出機を用いることができる。押出機としては、例えば、単軸押出機、二軸押出機、多軸押出機などが挙げられるが、本発明は、かかる例示のみに限定されるものではない。これらの押出機のなかでは、ブロック共重合体（Ａ）とイミド化剤とを効率よく混合することができるこ

とから、二軸押出機が好ましい。二軸押出機としては、例えば、非噛合い型同方向回転式二軸押出機、噛合い型同方向回転式二軸押出機、非噛合い型異方向回転式二軸押出機、噛合い型異方向回転式二軸押出機などが挙げられるが、本発明は、かかる例示のみに限定されるものではない。これらの押出機は、それぞれ単独で用いてもよく、２機以上を直列に接続してもよい。二軸押出機のなかでは、噛合い型同方向回転式二軸押出機は、高速回転が可能であり、ブロック共重合体（Ａ）とイミド化剤とを効率よく混合することができるので好ましい。

[0107] 前記溶融混練法において、ブロック共重合体（Ａ）のイミド化は、例えば、当該ブロック共重合体を押出機の原料投入部から投入し、溶融させ、シリンダ内に充満させた後、イミド化剤を添加ポンプで押出機中に注入することにより、行うことができる。

[0108] 前記溶融混練法において、押出機中の反応ゾーンの温度（樹脂温度）はイミド化反応を効率よく進行させるとともに、耐薬品性および耐熱性を向上させる観点から、好ましくは１８０℃以上、より好ましくは２２０℃以上であり、ブロック共重合体の分解を抑制し、フィルムの耐折り曲げ性を向上させる観点から、好ましくは３５０℃以下、より好ましくは３００℃以下である。なお、前記押出機中の反応ゾーンは、押出機のシリンダにおいて、イミド化剤の注入位置から樹脂吐出口（ダイス部）までの間の領域を意味する。

[0109] 前記溶融混練法においては、押出機中の反応ゾーンにおける反応時間を長くすることにより、イミド化を促進させることができる。押出機中の反応ゾーン内におけるイミド化の時間は、イミド化を十分に行なう観点から、好ましくは１０秒間以上、より好ましくは３０秒間以上である。押出機内におけるブロック共重合体（Ａ）の圧力は、イミド化剤の溶解性を向上させる観点から、好ましくは大気圧以上、より好ましくは１ＭＰａ以上であり、押出機の耐圧性を考慮して、好ましくは５０ＭＰａ以下、より好ましくは３０ＭＰａ以下である。

[0110] なお、押出機には、未反応のイミド化剤や副生物を除去するために、大気

圧以下に減圧させることができるベントを押出機に設けることが好ましい。ベントの数は、１つだけであってもよく、複数であってもよい。

前記溶融混練法によってブロック共重合体（Ａ）をイミド化させる際には、押出機の代わりに、例えば、横型二軸反応装置〔住友重機械工業（株）製、商品名：バイボラック〕、竪型同心二軸攪拌槽〔住友重機械工業(株)製、商品名：スーパーブレンド〕などの高粘度に対応することができる反応装置を用いることができる。

[0111] 以上のようにして（メタ）アクリル酸エステル単位を含むブロック共重合体をイミド化剤でイミド化させることにより、式（１）で表わされるグルタルイミド構造の繰返し単位を有するブロック共重合体を得ることができる。

[0112] 主鎖に無水グルタル酸構造を有するブロック共重合体は、例えば、（メタ）アクリル酸エステル単位及び（メタ）アクリル酸単位を含むブロック共重合体［以下、ブロック共重合体（Ｂ）ともいう］を、隣接する（メタ）アクリル酸エステル単位及び（メタ）アクリル酸単位間で分子内脱アルコール反応（例えば、特開２００６－２８３０１３号公報、特開２００６－３３５９０２号公報、特開２００６－２７４１１８号公報に記載の方法等）により形成することができる。

[0113] 前記分子内脱アルコール反応を行う方法は、特に限定されないが、例えば、ブロック共重合体（Ｂ）を加熱することによって行うことができる。

当該加熱方法は、特に限定されないが、例えば、ブロック共重合体（Ｂ）をベントを有する加熱した押出機に通す方法や、ブロック共重合体（Ｂ）を不活性ガス（例えば、窒素ガス等）雰囲気又は真空下で加熱脱揮する方法等を使用することができる。

[0114] 押出機としては、例えば、ユニメルトタイプのスクリューを備えた単軸押出機、二軸押出機、二軸・単軸複合型連続混練押出装置、三軸押出機、連続式またはバッチ式ニーダータイプの混練機等を用いることができ、二軸押出機、二軸・単軸複合型連続混練押出装置等が好ましい。

[0115] 加熱の温度は、脱アルコールにより分子内環化反応が生じる温度であれば

特に限定されないが、例えば１８０～３５０℃等である。

また、加熱の時間は、ブロック重合体の組成等に応じて適宜変更できるが、例えば１～２時間等である。

[0116] また、前記ブロック共重合体（Ｂ）の分子内脱アルコール反応においては、触媒（例えば、酸触媒、塩基性触媒、塩系触媒等）を使用することができる。

触媒の添加量は、ブロック共重合体（Ｂ）１００重量部に対して、例えば０．０１～１ 重量部である。

[0117] 酸触媒としては、例えば、塩酸、硫酸、ｐ－トルエンスルホン酸、リン酸、亜リン酸、フェニルホスホン酸、リン酸メチル等が挙げられる。

塩基性触媒としては、例えば、金属水酸化物、アミン類、イミン類、アルカリ金属誘導体、アルコキシド類、水酸化アンモニウム等が挙げられる。

塩系触媒としては、酢酸金属塩、ステアリン酸金属塩、炭酸金属塩、各種アルキルアンモニウム塩を含むアンモニウム塩等が挙げられる。

[0118] 主鎖に無水マレイン酸構造及び／又はマレイミド構造を有するブロック重合体は、例えば、ブロック（Ｉ）及び／又はブロック（ＩＩ）の重合成分に無水マレイン酸及び／又はマレイミド系化合物｛［例えば、Ｎ－アルキルマレイミド（例えば、Ｎ－メチルマレイミド、Ｎ－エチルマレイミド等のＮ－C_{1-10}アルキルマレイミド等）、Ｎ－シクロアルキルマレイミド（例えば、シクロヘキシルマレイミド等のＮ－C_{3-20}シクロアルキルマレイミド等）、Ｎ－アリールマレイミド（例えば、Ｎ－フェニルマレイミド等のＮ－C_{6-10}アリールマレイミドｎ等）、Ｎ－アラルキルマレイミド（例えば、Ｎ－ベンジルマレイミド等のＮ－C_{7-10}アラルキルマレイミド等）］、マレイミド等｝を含んでブロック共重合体を形成することにより、得ることができる。

[0119] 主鎖にラクトン環構造を有するブロック重合体は、例えば、２－（ヒドロキシメチル）アクリル酸エステル単位と（メタ）アクリル酸エステル単位を含むブロック共重合体［以下、ブロック共重合体（Ｃ）ともいう］を、隣接する単位間で、水酸基とエステル基を分子内脱アルコール反応（例えば、特

開２０００－２３００１６号公報、特開２００１－１５１８１４号公報、特開２００２－１２０３２６号公報、特開２００２－２５４５４４号公報、特開２００５－１４６０８４号公報の記載の方法等）することにより形成することができる。

[0120] 前記分子内脱アルコール反応を行う方法は、特に限定されないが、例えば、ブロック共重合体（Ｃ）を加熱することによって行うことができる。

当該加熱方法は、特に限定されないが、例えば、ブロック共重合体（Ｃ）の重合工程によって得られた、溶剤を含む重合反応混合物を、そのまま加熱処理してもよい。また、揮発成分を除去するための真空装置あるいは脱揮装置を持つ加熱炉や反応装置、脱揮装置のある押出機等を用いて加熱処理を行うこともできる。

[0121] 加熱の温度は、脱アルコールにより分子内環化反応が生じる温度であれば特に限定されず、例えば６０～３５０℃であり、加熱の際に脱揮を行う場合は、１５０～３５０℃等であってよい。

また、加熱の時間は、ブロック重合体の組成等に応じて適宜変更できるが、例えば１～５時間等である。

[0122] また、前記ブロック共重合体（Ｃ）の分子内脱アルコール反応においては、触媒（例えば、有機リン化合物、塩基性化合物、有機カルボン酸塩、炭酸塩等）を使用することができる。

触媒の添加量は、ブロック共重合体（Ｂ）に対して、例えば０．００１～５重量％、好ましくは０．０１～２．５重量％である。

[0123] ［樹脂組成物］

本発明は、本発明のブロック共重合体を含む樹脂組成物も含有する。

本発明の樹脂組成物は、本発明のブロック共重合体を２種以上組み合わせたものであってもよいし、本発明の効果が得られる限り、本発明のブロック共重合体以外の他の樹脂（例えば、熱可塑性重合体等）を含んでいてもよい。

[0124] 熱可塑性重合体としては、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチ

レン－プロピレン共重合体、ポリ（４－メチル－１－ペンテン）などのオレフィン重合体；ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリ塩化ビニルなどのハロゲン化ビニル重合体；ポリスチレン、スチレン－メタクリル酸メチル共重合体、スチレン－アクリロニトリル共重合体、アクリロニトリル－ブタジエン－スチレンブロック共重合体などのスチレン系重合体；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などのポリエステル；セルローストリアセテート、セルロースアセテートプロピオネート、セルロースアセテートブチレートなどのセルロースアシレート；ナイロン６、ナイロン６６、ナイロン６１０などのポリアミド；ポリアセタール；ポリカーボネート；ポリフェニレンオキシド；ポリフェニレンスルフィド；ポリエーテルエーテルケトン；ポリスルホン；ポリエーテルスルホン；ポリオキシベンジレン；ポリアミドイミド；ポリブタジエン系ゴムあるいはアクリル系ゴムを配合したＡＢＳ樹脂、ＡＳＡ樹脂などのゴム質重合体等である。

[0125] ゴム質重合体は、表面にアクリル樹脂と相溶し得る組成のグラフト部を有するのが好ましく、ゴム質重合体の平均粒子径は、フィルムとした際の透明性向上の観点から、例えば２０～３００ｎｍであることが好ましく、より好ましくは５０～２００ｎｍであり、さらに好ましくは７０～１５０ｎｍである。

[0126] また、他の樹脂（熱可塑性重合体）には、アクリル系樹脂も含まれる。アクリル系樹脂としては、前記ブロック（ＩＩ）及び／又はブロック（ＩＩＩ）に対応する樹脂［例えば、メタクリル酸エステル（例えば、メタクリル酸メチルなどの前記例示のメタクリル酸エステル）を重合成分とするメタクリル系樹脂（メタクリル系樹脂、例えば、ポリメタクリル酸メチルなどのメタクリル酸アルキルエステルを重合成分とする樹脂）、このようなメタクリル系樹脂に環構造が導入された樹脂（環構造を有するメタクリル系樹脂）など］、前記ブロック共重合体の範疇に属さないブロック共重合体［例えば、前記ブロック共重合体（Ａ）などの環構造が導入されていないブロック共重合体］

も含まれる。

[0127] 特に、他の樹脂は、ブロック共重合体と共通する骨格を有する樹脂、例えば、ブロック（Ｉ）に対応する樹脂（ポリメタクリル酸メチルなどのメタクリル酸エステルを重合成分とするメタクリル系樹脂、環構造を有するメタクリル系樹脂）、ブロック（ＩＩ）に対応する樹脂、ブロック（Ｉ）及びブロック（ＩＩ）を有し、環構造を有しないブロック共重合体［例えば、メタクリル酸メチルを重合成分とするブロック（ハードブロック）と、アクリル酸エステル（アクリル酸ブチルなど）を重合成分とするブロック（ソフトブロック）とを有するブロック共重合体）など］などを含んでいてもよい。

[0128] 本発明のブロック共重合体は、アクリル系樹脂やブロック共重合体と共通する骨格を有する樹脂と混合しても、相溶性等を損なうことがなく、所望の物性を効率よく得ることができる。

そのため、本発明のブロック共重合体は、他の樹脂（特に、アクリル系樹脂やブロック共重合体と共通する骨格を有する樹脂）の改質剤として用いることもできる。

[0129] なお、環構造を有する他の樹脂（環構造を有するメタクリル系樹脂など）は、前記のように、ブロック共重合体（Ａ）の共存下で、環化させて得ることもできる。

[0130] 本発明の樹脂組成物において、熱可塑性重合体等の他の樹脂の含有率は、好ましくは０～５０質量％、より好ましくは０～４０質量％、さらに好ましくは０～３０質量％、特に好ましくは０～２０質量％である。

[0131] また、他の樹脂が、アクリル系樹脂（例えば、ブロック共重合体と共通する骨格を有するアクリル系樹脂）を含む場合、本発明のブロック共重合体と、他の樹脂（例えば、メタクリル酸メチルを重合成分とする樹脂、メタクリル酸メチルを重合成分とし、環構造を有する樹脂など）との割合は、所望の物性等に応じて、適宜選択できるが、例えば、前者／後者（質量比）＝９９／１～１／９９、好ましくは９５／５～５／９５、さらに好ましくは９０／１０～１０／９０程度であってもよい。

[0132] 本発明の樹脂組成物は、耐熱性、光学特性等の物性を損なわない範囲で、紫外線吸収能を有してもよい。

紫外線吸収能を有する樹脂組成物は、具体的には、ブロック共重合体を製造するときの単量体成分として紫外線吸収性単量体及び／又は紫外線安定性単量体を用いる方法や、紫外線吸収剤及び／又は紫外線安定剤をブロック共重合体に配合する方法によって得ることができる。

本発明の光学フィルムに支障がない限り、これらの方法を併用してもかまわない。

[0133] また、前記紫外線吸収機能を持続させるためには、紫外線吸収性単量体と紫外線安定性単量体とを併用することや、紫外線吸収剤と紫外線安定剤とを併用することが好ましい。

また、紫外線吸収性単量体及び／又は紫外線安定性単量体と合わせて、紫外線吸収剤及び／又は紫外線安定剤を併用することも好ましい。

[0134] 紫外線吸収性単量体としては、例えば、ベンゾトリアゾール系化合物あるいはベンゾフェノン系化合物あるいはトリアジン系化合物と重合性不飽和基とを有するアクリル系単量体が挙げられる。

ベンゾトリアゾール系化合物としては、例えば２－［２’－ヒドロキシ－５’－（メタ）アクリロイルオキシメチルフェニル］－２Ｈ－ベンゾトリアゾール、２－［２’－ヒドロキシ－５’－（メタ）アクリロイルオキシエチルフェニル］－２Ｈ－ベンゾトリアゾール、２－［２’－ヒドロキシ－５’－（メタ）アクリロイルオキシプロピルフェニル］－２Ｈ－ベンゾトリアゾール、２－［２’－ヒドロキシ－５’－（メタ）アクリロイルオキシヘキシルフェニル］－２Ｈ－ベンゾトリアゾール、２－［２’－ヒドロキシ－３’－ｔｅｒｔ－ブチル－５’－（メタ）アクリロイルオキシエチルフェニル］－２Ｈ－ベンゾトリアゾール、２－〔２’－ヒドロキシ－５’－（β－（メタ）アクリロイルオキシエトキシ）－３’－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル〕－５－ｔｅｒｔ－ブチル－２Ｈ－ベンゾトリアゾール、２－［２’－ヒドロキシ－３’－メタクリルアミノメチル－５’－（１”，１”，３”，３”－テ

トラメチル）ブチルフェニル］－２Ｈ－ベンゾトリアゾール等を用いることができる。

[0135] また、ベンゾフェノン系化合物としては、例えば、２－ヒドロキシ－４－［２－（メタ）アクリロイルオキシ］エトキシベンゾフェノン、２－ヒドロキシ－４－［２－（メタ）アクリロイルオキシ］ブトキシベンゾフェノン、２，２’－ジヒドロキシ－４－［２－（メタ）アクリロイルオキシ］エトキシベンゾフェノン、２－ヒドロキシ－４－［２－（メタ）アクリロイルオキシ］エトキシ－４’－（２－ヒドロキシエトキシ）ベンゾフェノンなどを用いることができる。

[0136] また、トリアジン系化合物としては、例えば、４－ジフェニル－６－［２－ヒドロキシ－４－（２－アクリロイルオキシエトキシ）］－ｓ－トリアジン、２，４－ビス（２－メチルフェニル）－６－［２－ヒドロキシ－４－（２－アクリロイルオキシエトキシ）］－ｓ－トリアジン、２，４－ビス（２－メトキシフェニル）－６－［２－ヒドロキシ－４－（２－アクリロイルオキシエトキシ）］－ｓ－トリアジンなどを用いることができる。

[0137] このような紫外線吸収性単量体を用いる場合には、紫外線吸収性単量体が全単量体の０．１～２５質量％共重合されることが好ましく、１～１５質量％共重合されることがさらに好ましい。含有量が０．１質量％以上であれば耐候性向上の寄与が大きく、含有量が２５質量％以下であれば耐熱水性、耐溶剤性が向上したり、黄変を抑制できたりする。

[0138] 前記紫外線安定性単量体としては、ヒンダードアミン系化合物に重合性不飽和基が結合されたものを用いることができ、具体例としては、４－（メタ）アクリロイルオキシ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン、４－（メタ）アクリロイルアミノ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン、４－（メタ）アクリロイルオキシ－１，２，２，６，６－ペンタメチルピペリジン、４－（メタ）アクリロイルアミノ－１，２，２，６，６－ペンタメチルピペリジン、４－シアノ－４－（メタ）アクリロイルアミノ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン、４－クロトノイルオキシ－２，２，６，６

－テトラメチルピペリジン、４－クロトノイルアミノ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン、１－（メタ）アクリロイル－４－（メタ）アクリロイルアミノ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン、１－（メタ）アクリロイル－４－シアノ－４－（メタ）アクリロイルアミノ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン、１－クロトノイル－４－クロトノイルオキシ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジンなどが挙げられる。

[0139] このような紫外線安定性単量体を用いる場合には、紫外線安定性単量体は、全単量体の０．１～２５質量％共重合されることが好ましく、１～１５質量％共重合されることがさらに好ましい。含有量が０．１質量％以上であれば耐候性向上の寄与が大きく、含有量が２５質量％以下であれば耐熱水性、耐溶剤性が向上したり、黄変を抑制できたりする。

[0140] 前記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、ベンゾエート系化合物、トリアゾール系化合物、トリアジン系化合物等が挙げられる。

ベンゾフェノン系化合物としては、例えば、２，４－ジヒドロキシベンゾフェノン、４－ｎ－オクチルオキシ－２－ヒドロキシベンゾフェノン、２，２’－ジヒドロキシ－４，４’－ジメトキシベンゾフェノン、２－ヒドロキシ－４－ｎ－オクチルオキシベンゾフェノン、ビス（５－ベンゾイル－４－ヒドロキシ－２－メトキシフェニル）メタン、１，４－ビス（４－ベンゾイル－３－ヒドロキシフェノン）－ブタン等が挙げられる。

[0141] サリシケート系化合物としては、例えば、ｐ－ｔ－ブチルフェニルサリシケート等が挙げられる。

ベンゾエート系化合物としては、例えば、２，４－ジ－ｔ－ブチルフェニル－３’，５’－ジ－ｔ－ブチル－４’－ヒドロキシベンゾエート等が挙げられる。

[0142] また、トリアゾール系化合物としては、例えば、２，２’－メチレンビス［４－（１，１，３，３－テトラメチルブチル）－６－（２Ｈ－ベンゾトリアゾール－２－イル）フェノール］、２－（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル

－２－ヒドロキシフェニル）－５－クロロベンゾトリアゾール、２－（２Ｈ－ベンゾトリアゾール－２－イル）－ｐ－クレゾール、２－（２Ｈ－ベンゾトリアゾール－２－イル）－４，６－ビス（１－メチル－１－フェニルエチル）フェノール、２－ベンゾトリアゾール－２－イル－４，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェノール、２－［５－クロロ（２Ｈ）－ベンゾトリアゾール－２－イル］－４－メチル－６－ｔ－ブチルフェノール、２－（２Ｈ－ベンゾトリアゾール－２－イル）－４，６－ジ－ｔ－ブチルフェノール、２－（２Ｈ－ベンゾトリアゾール－２－イル）－４－（１，１，３，３－テトラメチルブチル）フェノール、２－（２Ｈ－ベンゾトリアゾール－２－イル）－４－メチル－６－（３，４，５，６－テトラヒドロフタルイミジルメチル）フェノール、メチル３－（３－（２Ｈ－ベンゾトリアゾール－２－イル）－５－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート／ポリエチレングリコール３００の反応生成物、２－（２Ｈ－ベンゾトリアゾール－２－イル）－６－（直鎖及び側鎖ドデシル）－４－メチルフェノール、２－（５－メチル－２－ヒドロキシフェニル）ベンゾトリアゾール、２－［２－ヒドロキシ－３，５－ビス（α，α－ジメチルベンジル）フェニル］－２Ｈ－ベンゾトリアゾール、３－（２Ｈ－ベンゾトリアゾール－２－イル）－５－（１，１－ジメチルエチル）－４－ヒドロキシ－Ｃ７－９側鎖及び直鎖アルキルエステルが挙げられる。

[0143] さらに、トリアジン系化合物としては、例えば、２－モノ（ヒドロキシフェニル）－１，３，５－トリアジン化合物や２，４－ビス（ヒドロキシフェニル）－１，３，５－トリアジン化合物、２，４，６－トリス（ヒドロキシフェニル）－１，３，５－トリアジン化合物が挙げられ、具体的には、２，４－ジフェニル－６－（２－ヒドロキシ－４－メトキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４－ジフェニル－６－（２－ヒドロキシ－４－エトキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４－ジフェニル－（２－ヒドロキシ－４－プロポキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４－ジフェニル－（２－ヒドロキシ－４－ブトキシフェニル）－１，３，５－ト

リアジン、２，４－ジフェニル－６－（２－ヒドロキシ－４－ブトキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４－ジフェニル－６－（２－ヒドロキシ－４－ヘキシルオキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４－ジフェニル－６－（２－ヒドロキシ－４－オクチルオキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４－ジフェニル－６－（２－ヒドロキシ－４－ドデシルオキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４－ジフェニル－６－（２－ヒドロキシ－４－ベンジルオキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４－ジフェニル－６－（２－ヒドロキシ－４－ブトキシエトキシ）－１，３，５－トリアジン、２，４－ビス（２－ヒドロキシ－４－ブトキシフェニル）－６－（２，４－ジブトキシフェニル）－１，３－５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－４－メトキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－４－エトキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－４－プロポキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－４－ブトキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－４－ヘキシルオキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－４－オクチルオキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－４－ドデシルオキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－４－ベンジルオキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－４－エトキシエトキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－４－ブトキシエトキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－４－プロポキシエトキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－４－メトキシカルボニルプロピルオキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－４－エトキシ

カルボニルエチルオキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－４－（１－（２－エトキシヘキシルオキシ）－１－オキソプロパン－２－イルオキシ）フェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－３－メチル－４－メトキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－３－メチル－４－エトキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－３－メチル－４－プロポキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－３－メチル－４－ブトキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－３－メチル－４－ブトキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－３－メチル－４－ヘキシルオキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－３－メチル－４－オクチルオキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－３－メチル－４－ドデシルオキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－３－メチル－４－ベンジルオキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－３－メチル－４－エトキシエトキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－３－メチル－４－ブトキシエトキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－３－メチル－４－プロポキシエトキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－３－メチル－４－メトキシカルボニルプロピルオキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－３－メチル－４－エトキシカルボニルエチルオキシフェニル）－１，３，５－トリアジン、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－３－メチル－４－（１－（２－エトキシヘキシルオキシ）－１－オキソプロパン－２－イルオキシ）フェニル）－１，３，５－トリアジン等が挙げられる。

[0144] その中でも、非晶性の熱可塑性樹脂、特にアクリル樹脂と相溶性が高く吸

収特性が優れている点から、２，４－ビス（２，４－ジメチルフェニル）－６－［２－ヒドロキシ－４－（３－アルキルオキシ－２－ヒドロキシプロピルオキシ）－５－α－クミルフェニル］－ｓ－トリアジン骨格（アルキルオキシ；オクチルオキシ、ノニルオキシ、デシルオキシなどの長鎖アルキルオキシ基）を有する紫外線吸収剤が挙げられる。

[0145] また、２，４，６－トリス（ヒドロキシフェニル）－１，３，５－トリアジン骨格を有する紫外線吸収剤が好ましく用いられ、２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－４－長鎖アルキルオキシ基置換フェニル）－１，３，５－トリアジン骨格や２，４，６－トリス（２－ヒドロキシ－３－アルキル－４－長鎖アルキルオキシ基置換フェニル）－１，３，５－トリアジン骨格を有する紫外線吸収剤が特に好ましいトリアジン系紫外線吸収剤である。

[0146] 市販品としては、例えば、トリアジン系紫外線吸収剤として「チヌビン１５７７」「チヌビン４６０」「チヌビン４７７」（ＢＡＳＦジャパン製）、トリアゾール系紫外線吸収剤として「アデカスタブＬＡ－３１」「アデカスタブＬＡ－Ｆ７０」（ＡＤＥＫＡ製）等が挙げられる。

これらは単独で、または２種類以上の組み合わせで使用することができる。また、紫外線吸収剤と合わせて、前記紫外線吸収性単量体を共重合する手法を併用することも好ましい。

[0147] 紫外線吸収剤の配合量は特に限定されないが、本発明の樹脂組成物を含むフィルム中に、本発明のブロック共重合体に対して、０．０１～２５質量％であることが好ましく、さらに好ましくは０．０５～１０質量％である。添加量が少なすぎると耐候性向上の寄与が低く、また多すぎると機械的強度の低下や黄変を引き起こす場合がある。

[0148] 前記紫外線吸収剤は、分子量が６００以上であることが好ましく、より好ましくは６５０以上であり、さらに好ましくは７００以上である。

当該分子量が６００以上の場合、紫外線吸収剤を添加した樹脂組成物を成形する際に発泡が生じたり、紫外線吸収剤がブリードアウトしたりすることを防止できる。また、成形時に加えられる熱により紫外線吸収剤が蒸散して

、得られた樹脂成形品の紫外線吸収能が低下したり、蒸散した紫外線吸収剤により成形装置を汚染したりするなどの問題を防止できる。

一方、紫外線吸収剤の分子量の上限は、１００００以下であることが好ましく、８０００以下がなお好ましく、５０００以下がより好ましい。当該分子量が１００００以下であれば、本発明のブロック共重合体との相溶性が良好となり、最終的に得られる樹脂成形品の色相、濁度などの光学的特性が向上する。

[0149] また、本発明の樹脂組成物には、本発明の目的が阻害されない範囲内で、その他の添加剤を含んでいてもよい。

その他の添加剤としては、例えば、ヒンダードフェノール系、リン系、イオウ系などの酸化防止剤；耐光安定剤、耐候安定剤、熱安定剤などの安定剤；ガラス繊維、炭素繊維などの補強材；近赤外線吸収剤；トリス（ジブロモプロピル）ホスフェート、トリアリルホスフェート、酸化アンチモンなどの難燃剤；アニオン系、カチオン系、ノニオン系の界面活性剤から構成される帯電防止剤；無機顔料、有機顔料、染料などの着色剤；有機フィラー、無機フィラー；アンチブロッキング剤；樹脂改質剤；有機充填剤、無機充填剤；可塑剤；滑剤；位相差低減剤である。

[0150] 添加剤を添加するタイミングは、特に限定されるものではない。例えば、本発明のブロック共重合体の製造中に所定の段階で添加するか、或いは、ブロック共重合体を製造した後に添加剤を加えて加熱溶融させて混練する方法、本発明のブロック共重合体以外の他の熱可塑性重合体に混練しておいてからブロック共重合体に加える方法、などが挙げられる。

これら添加剤は、可能であれば濾過などの方法で異物除去してから使用することが好ましい。濾過の方法としては、液体であれば直接、固体であれば重合に使用する溶媒等に溶解してからメンブレンフィルタや中空糸膜フィルタなどの各種フィルタに通せばよく、それぞれ別々に濾過しても、混合物としてから濾過してもよい。また、この際の濾過の精度は、好ましくは５．０μｍ以下、より好ましくは１．０μｍ以下、さらに好ましくは０．５μｍ以

下である。

[0151] その他の添加剤の含有率は、本発明のブロック共重合体に対して、好ましくは０～５質量％、より好ましくは０～２質量％、さらに好ましくは０～１質量％である。

[0152] ［フィルム］

本発明は、本発明の樹脂組成物で形成されたフィルムも含有する。

本発明のフィルムは、光学フィルムとして使用することができる。

[0153] フィルムの厚さは、特に限定されず、用途等によって適宜調製できるが、例えば１～４００μｍ、好ましくは５～２００μｍ、より好ましくは１０～１００μｍ、さらに好ましくは２０～６０μｍである。

当該厚さが１μｍ以上であれば、光学フィルムとしての十分な強度が保てるため好ましい。当該厚さが４００μｍ以下であれば、フィルムの透明性が優れ、光学フィルムとしての使用に適するため好ましい。

これに加えて、過度に厚い場合、本発明の光学フィルムと他の部材（例えば、機能性フィルム）とを接合する際に接着層に使用する接着剤組成物の乾燥を阻害する。特に、水系の接着剤組成物を使用する際に、溶剤又は分散媒である水の乾燥が遅くなることによって、本発明の光学フィルムと他の部材との積層構造を有する光学部材の品質および生産性の低下を招きやすい。

[0154] 光学フィルムの厚さは、例えば、液晶表示装置、有機ＥＬ表示装置等の画像表示装置に用いられる保護フィルム、反射防止フィルム、偏光フィルム等の用途に用いる場合には、好ましくは１～２５０μｍ、より好ましくは１０～１００μｍ、さらに好ましくは２０～８０μｍである。

また、例えば、ＩＴＯ蒸着フィルム、銀ナノワイヤーフィルム、メタルメッシュフィルム等に用いられる透明導電性フィルム等の用途に用いる場合には、本発明の光学フィルムの厚さは、好ましくは２０～４００μｍ、より好ましくは３０～３５０μｍ、さらに好ましくは４０～３００μｍである。

[0155] 本発明のフィルムは、１．０％以下（例えば、０．１～１．０％）のヘイズを有することが好ましい。本発明のフィルムの構成によっては、そのヘイ

ズは、０．５％以下（例えば、０．１～０．５％）、さらには０．３％以下（例えば、０．１～０．３％）となる。ヘイズは、ＪＩＳ　Ｋ７１３６の規定に基づいて測定される。

[0156] 本発明のフィルムは、ｂ値が０～２．０％であることが好ましい。より好ましくは、ｂ値が０～１．５％であり、更に好ましくは０～１．０％であり、最も好ましくは０～０．５％である。ｂ値を２．０％以下にすることにより、本光学フィルムを画像表示装置に組み込んだ場合に表示される色感が優れたものとなる。

[0157] 本発明のフィルムの表面の濡れ張力は、例えば３０～７０ｍＮ／ｍであることが好ましい。より好ましくは３５～６０ｍＮ／ｍであり、さらに好ましくは４０～５０ｍＮ／ｍである。表面の濡れ張力が３０ｍＮ／ｍ以上の場合、本発明の光学フィルムと他の部材との接着性がさらに向上する。

表面の濡れ張力を調整するために、任意の適切な表面処理をフィルムの表面に施し得る。表面処理は、例えば、コロナ放電処理、プラズマ処理、オゾン吹き付け、紫外線照射、火炎処理、化学薬品処理である。なかでも、コロナ放電処理およびプラズマ処理が好ましい。

[0158] 本発明のフィルムは、機械的強度を高める観点から二軸延伸フィルムであってもよい。二軸延伸フィルムは、同時二軸延伸フィルムおよび逐次二軸延伸フィルムのいずれでもよい。また、延伸フィルムの遅相軸の方向は、フィルムの流れ方向であってもよく、幅方向であってもよく、更には任意の方向であってもよい。

[0159] 本発明のフィルムが前記紫外線吸収剤を含む場合、当該フィルムの波長３８０ｎｍにおける光線透過率は３０％以下（例えば、０～３０％）であることが好ましく、より好ましくは２０％以下（例えば、０～２０％）であり、さらに好ましくは１０％以下（例えば、０～１０％）であり、５％以下（例えば、０～５％）が特に好ましい。

波長３８０ｎｍにおける光線透過率が３０％以下であれば、偏光子の劣化を十分抑制することができる。

[0160] 本発明のフィルムは、公知のフィルム成膜手法により形成できる。フィルム成膜手法は、例えば、溶液キャスト法（溶液流延法）、溶融押出法、カレンダー法、圧縮成形法である。なかでも、溶液キャスト法及び溶融押出法が好ましい。

フィルムの成膜に用いる組成物（ドープ）は、公知の方法により形成できる。例えば、得たいアクリル樹脂の組成に応じて配合したブロック共重合体と、所望により、溶媒、その他の樹脂（熱可塑性重合体等）および添加剤等を混合することにより、形成される。

[0161] 混合方法は、例えば、押出混練または溶液状態での混合である。また、フィルムの成膜に市販のアクリル樹脂を併用してもよい。市販のアクリル樹脂は、例えば、アクリペットＶＨおよびアクリペットＶＲＬ２０Ａ（いずれも三菱レイヨン製）である。押出混練には、任意の適切な混合機、例えば、オムニミキサー、単軸押出機、二軸押出機、加圧ニーダーを使用できる。

[0162] 溶液キャスト法を実施するための装置は、例えば、ドラム式キャスティングマシン、バンド式キャスティングマシン、スピンコーターである。

溶液キャスト法に使用する溶媒は、アクリル樹脂を溶解する限り限定されない。当該溶媒は、例えば、ベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素；シクロヘキサン、デカリンなどの脂肪族炭化水素；酢酸エチル、酢酸ブチルなどのエステル；アセトン、メチルエチエルケトン、メチルイソブチルケトンなどのケトン；メタノール、エタノール、イソプロパノール、ブタノール、イソブタノール、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、ブチルセロソルブなどのアルコール；テトラヒドロフラン、ジオキサンなどのエーテル；ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素などのハロゲン化炭化水素；ジメチルホルムアミド；ジメチルスルホキシドである。２種以上のこれら溶媒を併用してもよい。

[0163] 溶融押出法は、例えば、Ｔダイ法、インフレーション法である。溶融押出時の成形温度は、好ましくは１５０～３５０℃、より好ましくは２００～３００℃である。

Ｔダイ法を選択した場合、例えば、公知の押出機の先端部にＴダイを取り付けることにより、帯状のフィルムを形成できる。形成した帯状のフィルムは、ロールに巻き取って、フィルムロールとしてもよい。溶融押出法では、材料の混合によるアクリル樹脂の形成から、当該樹脂を用いたフィルムの成形までを連続的に行うことができる。帯状のフィルムに易接着層を形成して、帯状の光学フィルムを得てもよい。

[0164] 延伸フィルムは、前記のようにして得たフィルムを延伸して形成できる。延伸方法は特に限定されず、延伸には公知の延伸機を使用できる。Ｔダイ法によりフィルムを形成する場合、形成したフィルムを巻き取るロールの温度を調整して、一軸延伸とフィルムの巻き取りとを同時に行うことも可能である。

[0165] フィルムを溶融製膜により形成する場合、材料の混合によるアクリル樹脂の形成から、フィルムの形成を経て、延伸フィルムを得るまでの工程を連続的に行うことができる。

[0166] 溶融成膜に押出機を用いる場合、押出機の種類は特に限定されず、単軸であっても二軸であっても多軸であってもよいが、そのＬ／Ｄ値は（Ｌは押出機のシリンダの長さ、Ｄはシリンダ内径）、樹脂を十分に可塑化して良好な混練状態を得るために、好ましくは１０以上１００以下であり、より好ましくは１５以上８０以下であり、さらに好ましくは２０以上６０以下である。Ｌ／Ｄ値が１０未満の場合、樹脂を十分に可塑化できず、良好な混練状態が得られないことがある。一方、Ｌ／Ｄ値が１００を超えると、樹脂に対して過度に剪断発熱が加わることで、樹脂が熱分解する可能性がある。

またこの場合、シリンダの設定温度は、好ましくは２００℃以上３５０℃以下であり、より好ましくは２５０℃以上３２０℃以下である。設定温度が２００℃未満では、樹脂の溶融粘度が過度に高くなって、原フィルム（未延伸のフィルム）の生産性が低下する。一方、設定温度が３５０℃を超えると、樹脂が熱分解する可能性がある。

[0167] 溶融成膜に押出機を用いる場合、押出機の形状は特に限定されないが、１

個以上の開放ベント部を有することが好ましい。このような押出機を用いることによって、開放ベント部から分解ガスを吸引することができ、得られた原フィルムに残存する揮発成分の量を低減できる。開放ベント部から分解ガスを吸引するためには、例えば、開放ベント部を減圧状態にすればよく、その減圧度は、開放ベント部の圧力にして、９３１～１．３ｈＰａの範囲が好ましく、７９８～１３．３ｈＰａの範囲がより好ましい。開放ベント部の圧力が９３１ｈＰａより高い場合、揮発成分、あるいは樹脂の分解により発生する単量体成分などが、樹脂中に残存しやすい。一方、開放ベント部の圧力を１．３ｈＰａより低く保つことは工業的に困難である。

[0168] 溶融成膜の際には、ポリマーフィルタで濾過した樹脂を成形して原フィルムとすることが好ましい。ポリマーフィルタにより、樹脂中に存在する異物を除去できるため、最終的に得られたフィルムの外観上の欠点を低減できる。なお、ポリマーフィルタによる濾過時には、樹脂は高温の溶融状態となる。このため、ポリマーフィルタを通過する際に樹脂が劣化し、劣化により形成されたガス成分や着色劣化物が流れだして、得られたフィルムに、穴あき、流れ模様、流れスジなどの欠点が観察されることがある。この欠点は、特に、フィルムを連続して溶融成膜する際に観察されやすい。このため、ポリマーフィルタで濾過した樹脂を成形する際には、その成形温度は、樹脂の溶融粘度を低下させ、ポリマーフィルタにおける樹脂の滞留時間を短くするために、例えば、２５０～３２０℃であり、２６０～３００℃が好ましい。

[0169] ポリマーフィルタの構成は特に限定されないが、ハウジング内に多数枚のリーフディスク型フィルタを配したポリマーフィルタを好適に用いることができる。リーフディスク型フィルタの濾材は、金属繊維不織布を焼結したタイプ、金属粉末を焼結したタイプ、金網を数枚積層したタイプ、あるいはそれらを組み合わせたハイブリッドタイプのいずれでもよいが、金属繊維不織布を焼結したタイプが最も好ましい。

ポリマーフィルタによる濾過精度は特に限定されないが、通常１５μｍ以下、好ましくは１０μｍ以下、より好ましくは５μｍ以下である。濾過精度

が１μｍ以下になると、ポリマーフィルタにおける樹脂の滞留時間が長くなることで当該樹脂の熱劣化が大きくなる他、原フィルムおよびフィルムの生産性が低下する。一方、濾過精度が１５μｍを超えると、樹脂中の異物を除去することが難しくなる。

[0170] ポリマーフィルタの形状は特に限定されず、例えば、複数の樹脂流通口を有し、センターポール内に樹脂の流路を有する内流型；断面が複数の頂点もしくは面においてリーフディスクフィルタの内周面に接し、センターポールの外面に樹脂の流路がある外流型；などがある。特に、樹脂の滞留箇所の少ない外流型を用いることが好ましい。

[0171] ポリマーフィルタにおける樹脂の滞留時間に特に制限はないが、好ましくは２０分以下であり、より好ましくは１０分以下であり、さらに好ましくは５分以下である。また、濾過時におけるフィルタ入口圧およびフィルタ出口圧は、例えば、それぞれ、３～１５ＭＰａおよび０．３～１０ＭＰａであり、圧力損失（フィルタの入口圧と出口圧の圧力差）は、１ＭＰａ～１５ＭＰａの範囲が好ましい。圧力損失が１ＭＰａ以下になると、樹脂がフィルタを通過する流路に偏りが生じやすく、得られた原フィルムおよび光学フィルムの品質が低下する傾向がある。一方、圧力損失が１５ＭＰａを超えると、ポリマーフィルタの破損が起こり易くなる。

[0172] ポリマーフィルタに導入される樹脂の温度は、その溶融粘度に応じて適宜設定すればよく、例えば２５０～３２０℃であり、好ましくは２５５～３１０℃であり、さらに好ましくは２６０～３００℃である。

[0173] ポリマーフィルタを用いた濾過処理により、異物、着色物の少ない光学フィルムを得る具体的な工程は、特に限定されない。例えば、（１）クリーン環境下で樹脂の形成および濾過処理を行い、引き続いてクリーン環境下で樹脂の成形を行うプロセス、（２）異物または着色物を有する樹脂を、クリーン環境下で濾過処理した後、引き続いてクリーン環境下で樹脂の成形を行うプロセス、（３）異物または着色物を有する樹脂を、クリーン環境下で濾過処理すると同時に成形を行うプロセス、などが挙げられる。それぞれの工程

毎に、複数回、ポリマーフィルタによる樹脂の濾過処理を行ってもよい。

[0174] ポリマーフィルタによって樹脂を濾過する際には、押出機とポリマーフィルタとの間にギアポンプを設置して、フィルタ内の樹脂の圧力を安定化することが好ましい。

溶融樹脂は、例えば、押出機等の溶融手段を用いて、熱可塑性樹脂を加熱溶融後ダイへ供給し、ダイからフィルム状に吐出することで供給することができる。フィルム状の溶融樹脂は、温調されたロール（以下、キャストロール）へキャスティングし、引き取りながらさらに温調された他のロール（以下、冷却ロール）へ接せさせて冷却固化してもよく、また、キャストロールとタッチロールの間にフィルム状の溶融樹脂を挟み込んで冷却固化を行ってもよい。本製法はフィルムのロール着地位置が安定し、厚み品質が向上することに加え、フィルム幅方向の冷却も均一化され、冷却固化時の配向状態も均一化し易い利点がある。タッチロールには、フィルム全幅を均一に押圧するため、その用途で設計されたロールを用いることが好ましい。例えば、ゴムやシリコン等柔らかい材質のロールや、ロールの幅方向中央から両端部にかけてロール径が小さくなる構造のロール（クラウンロール）や、金属等薄膜スリーブとゴム等の弾性ロールの二重構造の弾性ロール等を挙げることができる。このうち、ロールの表面粗さを細かくするために表面に金属メッキが可能でロールの幅方向中央から両端部にかけてロール径が小さくなる構造のロール、金属薄膜スリーブと弾性ロールの二重構造のロールが特に好ましい。ロール表面はＨｃｒやＮｉメッキを施し、表面粗さ０．２ｓ以下とし、表面の傷や汚れのないように管理することが好ましい。

得られたフィルムはそのままでも使用できるが、公知の方法で逐次、若しくは同時に延伸しても良い。また、フィルムの光学的等方性および機械的特性を安定化するために、フィルムに対する熱処理（アニーリング）を実施してもよい。熱処理の方法および条件は、適宜、選択できる。

[0175] 本発明のフィルムは、機能性コーティング層を有していてもよい。機能性コーティング層は、例えば、帯電防止層、ハードコート層、防眩（ノングレ

ア）層、低反射層やモスアイ層などの反射防止層、紫外線遮蔽層、熱線遮蔽層、電磁波遮蔽層、ガスバリヤー層、光触媒層などの防汚層、粘接着剤層などであり、各種画像表示装置の最表面に好適に用いることができる。機能性コーティング層は一層のみ積層しても良いし、２層以上を積層しても良い。

[0176] 機能性コーティング層の積層方法は、種々の機能性コーティング層を各々積層塗工したり、各々の単独の機能性コーティング層が塗工された部材を粘着剤や接着剤を介して積層した積層体であってもよい。なお、各層の積層順序は特に限定されるものではなく、積層方法も特に限定されない。

[0177] 紫外線遮蔽層は、紫外線遮蔽層よりも下層にある基材層や印刷層などの紫外線劣化する材料の紫外線劣化を防ぐために設けるものである。紫外線遮蔽層は、分子量が１０００以下の紫外線吸収剤をアクリル系樹脂、ポリエステル系樹脂、フッ素系樹脂などの熱可塑性または熱硬化性、湿気硬化性、紫外線硬化、電子線硬化などの硬化性樹脂に配合したものが使用できるが、特に、耐候性の点から、特許第３０８１５０８号公報、特許第３４０４１６０号公報、特許第２８３５３９６号公報で開示されているような紫外線吸収性骨格を有する単量体を必須に含む単量体混合物を重合して得られるアクリル系ポリマーが好ましい。市販品としては、例えば、「ハルスハイブリッドＵＶ－Ｇ１３」や「ハルスハイブリッドＵＶ－Ｇ３０１」（以上、日本触媒社製）、「ＵＬＳ－９３５ＬＨ」（一方社油脂工業社製）などが挙げられる。

[0178] 熱線遮蔽層は、例えば、ディスプレイ装置の発光に伴い発生する近赤外線（特に７００－１２００ｎｍ）による周辺機器の誤動作を防ぐために設けられる。熱線遮蔽層としては、有機系や無機系熱線遮蔽物質がアクリル系樹脂、ポリエステル系樹脂、フッ素系樹脂などの熱可塑性または熱硬化性、湿気硬化性、紫外線硬化、電子線硬化などの硬化性樹脂に配合したものが使用される。有機系熱線遮蔽物質としては、フタロシアニン色素やジイモニウム系、スクアリリウム系などの近赤外線領域（７００－１８００ｎｍ）に吸収を有する物質であれば特に限定はなく、用途によってはポルフィリン系やシアニン系色素などの可視領域（４００－７００ｎｍ）に吸収を有する色素と、

１種または２種以上組み合わせて使用できる。また、無機系熱線遮蔽物質としては、例えば、金属、金属窒化物、金属酸化物などが挙げられるが、分散媒体への溶解性、耐候性の点から、金属酸化物の微粒子が好ましく使用される。金属酸化物としては、酸化インジウム系、酸化亜鉛系が好ましく、透明性の点から、平均粒径が０．１μｍ以下であるものが好ましい。

[0179] 粘接着剤層としては、アクリル樹脂、アクリル酸エステル樹脂、またはこれらの共重合体、スチレン－ブタジエン共重合体、ポリイソプレンゴム、ポリイソブチレンゴム等のゴム類や、ポリビニルエーテル系、シリコーン系、マレイミド系、シアノアクリレート系粘接着剤などが挙げられ、これらは単独としても使用しても良いが、さらに架橋剤、粘着付与剤を用いることもできる。光学特性上、耐光性、透明性からはアクリル酸アルキルエステル単量体を主成分とする共重合体であるアクリル系樹脂が好ましく、さらに好ましくは、芳香族系粘着付与剤を添加して屈折率を調節し、アクリル樹脂フィルムやフィルムの屈折率に近づけた粘着剤がより好ましい。必要に応じて、粘着剤に前記の熱線遮蔽物質、例えば、フタロシアニン色素やシアニン色素を混合して機能性の粘着剤層とすることができ、光学積層体として薄層化、生産性の点で有利である。

[0180] 電磁波遮蔽層は、例えば、ディスプレー装置からの発光に伴い発生する電磁波による生体や電子機器への悪影響を防ぐために設けるものである。電磁波遮蔽層は、銀、銅、酸化インジウム、酸化亜鉛、酸化インジウムスズ、酸化アンチモンスズ等のような金属または金属酸化物の薄膜からなり、これらは真空蒸着法、イオンプレーティング法、スパッタリング法、ＣＶＤ法、プラズマ化学蒸着法等の従来公知のドライプレーティング法を利用し、製造することができる。電磁波遮蔽層は、最もよく用いられるのは、酸化インジウムスズ（ＩＴＯと略記されることもある）の薄膜であるが、メッシュ状の穴を有する銅の薄膜や誘電体層と金属層を基材上に交互に積層させた積層体も好適に用いることができる。前記誘電体層としては、酸化インジウム、酸化亜鉛などの透明な金属酸化物等であり、金属層としては銀あるいは銀－パラ

ジウム合金が一般的である。積層体は、通常、誘電体層よりはじまり３～１３層程度の間で奇数層となるように積層される。

[0181] 反射防止層は、表面の反射を抑えて、表面への蛍光灯などの外光の写り込みを防止するためのものである。反射防止層は、金属酸化物、フッ化物、ケイ化物、ホウ化物、炭化物、窒化物、硫化物等の無機物の薄膜からなる場合と、アクリル樹脂、フッ素樹脂などの屈折率の異なる樹脂を単層あるいは多層に積層させたものからなる場合とがある。また、特開２００３－２９２８０５号公報に開示されているような無機系化合物と有機系化合物との複合微粒子を含む薄膜を積層させたものも使用できる。

[0182] ノングレア層は、視野角を広げ、透過光を散乱させるために設けられる。シリカ、メラミン樹脂、アクリル樹脂等の微粉体をインキ化し、従来公知の塗布法で、他の機能層上に塗布し、熱あるいは光硬化させることにより形成される。また、ノングレア処理したフィルムを他の機能性フィルム上に貼り付けても良い。

[0183] 本発明のフィルムには、機能層としてハードコート層を設けることも好ましい。本発明において、ハードコート層とは、該層を形成することで透明支持体の鉛筆硬度が上昇する層をいう。実用的には、ハードコート層積層後の鉛筆硬度（ＪＩＳ Ｋ－５４００）はＨ以上が好ましく、更に好ましくは２Ｈ以上であり、最も好ましくは３Ｈ以上である。ハードコート層の厚みは、０．４～３５μｍが好ましく、更に好ましくは１～３０μｍであり、最も好ましくは１．５～２０μｍである。本発明においてハードコート層は１層でも複数でもかまわない。ハードコート層が複数層の場合、全てのハードコート層の膜厚の合計が上記範囲であることが好ましい。

[0184] 本発明のフィルムのハードコート層の表面は平坦であって凹凸があっても構わない。また、必要に応じて、表面凹凸や内部散乱付与のためにハードコート層に微粒子を含有させることもできる。

[0185] 本発明において、ハードコート層は、不飽和二重結合を有する化合物、重合開始剤、必要に応じて、微粒子、含フッ素又はシリコーン系化合物、溶剤

を含有する組成物を、支持体上に直接又は他の層を介して塗布、乾燥及び硬化することにより形成することができる。以下各成分について説明する。

[0186] ハードコート層形成用組成物には不飽和二重結合を有する化合物を含有することができる。不飽和二重結合を有する化合物はバインダーとして機能することができ、重合性不飽和基を２つ以上有する多官能モノマーであることが好ましい。該重合性不飽和基を２つ以上有する多官能モノマーは、硬化剤として機能することができ、塗膜の強度や耐擦傷性を向上させることが可能となる。重合性不飽和基は３つ以上であることがより好ましい。これらモノマーは、１又は２官能のモノマーと３官能以上のモノマーを併用して用いることもできる。

[0187] 不飽和二重結合を有する化合物としては、（メタ）アクリロイル基、ビニル基、スチリル基、アリル基等の重合性官能基を有する化合物が挙げられ、中でも、（メタ）アクリロイル基及び－Ｃ（Ｏ）ＯＣＨ＝ＣＨ２が好ましい。特に好ましくは下記の１分子内に３つ以上の（メタ）アクリロイル基を含有する化合物を用いることができる。

[0188] 重合性の不飽和結合を有する化合物の具体例としては、アルキレングリコールの（メタ）アクリル酸ジエステル類、ポリオキシアルキレングリコールの（メタ）アクリル酸ジエステル類、多価アルコールの（メタ）アクリル酸ジエステル類、エチレンオキシドあるいはプロピレンオキシド付加物の（メタ）アクリル酸ジエステル類、エポキシ（メタ）アクリレート類、ウレタン（メタ）アクリレート類、ポリエステル（メタ）アクリレート類等を挙げることができる。

中でも、多価アルコールと（メタ）アクリル酸とのエステル類が好ましい。例えば、１，４－ブタンジオールジ（メタ）アクリレート、１，６－ヘキサンジオールジ（メタ）アクリレート、ネオペンチルグリコール（メタ）アクリレート、エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、トリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、トリメチロ

ールプロパントリ（メタ）アクリレート、ＥＯ変性トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、ＰＯ変性トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、ＥＯ変性リン酸トリ（メタ）アクリレート、トリメチロールエタントリ（メタ）アクリレート、ジトリメチロールプロパンテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、１，２，３－シクロヘキサンテトラメタクリレート、ポリウレタンポリアクリレート、ポリエステルポリアクリレート、カプロラクトン変性トリス（アクリロキシエチル）イソシアヌレート等が挙げられる。

[0189] （メタ）アクリロイル基を有する多官能アクリレート系化合物類は市販されているものを用いることもでき、新中村化学工業（株）社製ＮＫエステルＡ－ＴＭＭＴ、日本化薬（株）製ＫＡＹＡＲＡＤ ＤＰＨＡ等を挙げることができる。多官能モノマーについては、特開２００９－９８６５８号公報の段落［０１１４］～［０１２２］に記載されており、本発明においても同様である。

[0190] 不飽和二重結合を有する化合物としては、水素結合性の置換基を有する化合物であることが、支持体との密着性、低カール、後述する含フッ素又はシリコーン系化合物の固定性の点から好ましい。水素結合性の置換基とは、窒素、酸素、硫黄、ハロゲンなどの電気陰性度が大きな原子と水素結合とが共有結合で結びついた置換基を指し、具体的にはＯＨ－、ＳＨ－、－ＮＨ－、ＣＨＯ－、ＣＨＮ－などが挙げられ、ウレタン（メタ）アクリレート類や水酸基を有する（メタ）アクリレート類が好ましい。市販されている（メタ）アクリロイル基を有する多官能アクリレートを用いることもでき、新中村化学工業（株）社製ＮＫオリゴ Ｕ４ＨＡ、同ＮＫエステルＡ－ＴＭＭ－３、日本化薬（株）製ＫＡＹＡＲＡＤ ＰＥＴ－３０等を挙げることができる。

[0191] ハードコート層形成用組成物中の不飽和二重結合を有する化合物の含有量は、十分な重合率を与えて硬度などを付与するため、ハードコート層形成用

組成物中の無機成分を除いた全固形分に対して、５０質量％以上が好ましく、６０～９９質量％がより好ましく、７０～９９質量％が更に好ましく、８０～９９質量％が特に好ましい。

[0192] ハードコート層形成用組成物に分子内に環状脂肪族炭化水素と不飽和二重結合基を有する化合物を用いることも好ましい。このような化合物を用いることで、ハードコート層に低透湿性を付与することができる。ハードコート性を高めるために、分子内に環状脂肪族炭化水素と不飽和二重結合基を２以上有する化合物を用いることがより好ましい。

[0193] ハードコート層形成用組成物が分子内に環状脂肪族炭化水素と不飽和二重結合基を有する化合物を含有する場合、分子内に環状脂肪族炭化水素と不飽和二重結合を有する化合物はハードコート層形成用組成物中の不飽和二重結合を有する化合物中、１～９０質量％が好ましく、２～８０質量％がより好ましく、５～７０質量％が特に好ましい。ハードコート層形成用組成物が分子内に環状脂肪族炭化水素と不飽和二重結合基を有する化合物を含有する場合、更に５官能以上の（メタ）アクリレートを含有することが好ましい。

[0194] ハードコート層形成用組成物が更に、５官能以上の（メタ）アクリレートを含有する場合、５官能以上の（メタ）アクリレートは、ハードコート層形成用組成物中の不飽和二重結合を有する化合物中、１～７０質量％が好ましく、２～６０質量％がより好ましく、５～５０質量％が特に好ましい。

[0195] 市販品としては、例えば、「Ｓｉコート２」（第八化学社製）、「トスガード５１０」や「ＵＶＨＣ８５５３」（以上、東芝シリコーン社製）、「ソルガードＮＰ７２０」や「ソルガードＮＰ７３０」や「ソルガードＲＦ０８３１」（以上、日本ダクロシャムロック社製）などが挙げられる。また、有機ポリマー複合無機微粒子とは、無機微粒子の表面に有機ポリマーが固定された複合無機微粒子を意味し、当該微粒子を含む硬化性樹脂で表面保護層を形成することにより、表面硬度の向上等が図られる。当該複合無機微粒子とはとその製法の詳細は、例えば、特開平７－１７８３３５号公報、特開平９－３０２２５７号公報、特開平１１－１２４４６７号公報などに記載されて

いる。当該複合無機微粒子を含有させる硬化性樹脂にも格別の制限はなく、例えば、メラミン樹脂、ウレタン樹脂、アルキド樹脂、アクリル樹脂、多官能アクリル樹脂などが挙げられる。多官能アクリル樹脂としては、ポリオールアクリレート、ポリエステルアクリレート、ウレタンアクリレート、エポキシアクリレートなどの樹脂を挙げることができる。上記複合無機微粒子を含有する硬化性樹脂の市販品としては、例えば、「ユーダブルＣ－３３００」や「ユーダブルＣ－３６００」（以上、日本触媒社製）等が挙げられる。

[0196] 本発明のフィルムは、易接着層を有してもよい。易接着層はフィルムの少なくとも一方の主面に積層されていればよく、両方の主面に積層されていてもよい。

前記易接着層は、前記フィルムの一方の主面に形成されていればよい。なお、本明細書において「主面」とは、フィルムが有する面のうち、フィルムの厚み方向における面ではなく、フィルムの長手方向の辺と幅方向の辺とで決まる面、つまり表面および裏面のことをいう。

[0197] 易接着層の厚さは、特に限定されず、フィルムの厚さによって異なるが、１ｎｍ～１０μｍが好ましく、１０ｎｍ～５μｍがより好ましく、５０ｎｍ～１．５μｍがさらに好ましい。この範囲では、易接着層による、フィルムと機能性コーティング層との密着性の向上効果が良好である。これに加えて、易接着層自体に位相差が発現することを抑制できる。

[0198] 易接着層を構成する樹脂は特に限定されず、易接着性を有する公知の樹脂であればよく、例えば、ウレタン樹脂、セルロース樹脂、ポリオール樹脂、ポリカルボン酸樹脂、ポリエステル樹脂、アクリル樹脂、ポリエステル－アクリル複合樹脂である。

易接着層を構成する樹脂の数平均分子量は、０．５万～６０万が好ましく、１万～４０万がより好ましい。

易接着層は易接着層と同様、微粒子を含有してもよく、好ましい微粒子としては、前記の微粒子があげられる。

[0199] 易接着層を構成する樹脂は、ウレタン樹脂が好ましい。この場合、易接着

層が他の樹脂層であるときよりも、偏光子に対する接着性が向上する。

ウレタン樹脂は特に限定されず、典型的には、ポリオールとポリイソシアネートとを反応させて得た樹脂である。ポリオールは、分子中にヒドロキシル基を２個以上有する、任意のポリオールを採用できる。ポリオールは、例えば、ポリアクリルポリオール、ポリエステルポリオール、ポリエーテルポリオールである。２種以上のポリオールを組み合わせてもよい。

[0200] ポリアクリルポリオールは、典型的には、（メタ）アクリル酸エステル単量体と、水酸基を有する単量体との共重合体である。

（メタ）アクリル酸エステル単量体は、例えば、（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸ブチル、（メタ）アクリル酸２－エチルヘキシル、（メタ）アクリル酸シクロヘキシルである。

[0201] 水酸基を有する単量体は、例えば、（メタ）アクリル酸２－ヒドロキシエチル、（メタ）アクリル酸２－ヒドロキシプロピル、（メタ）アクリル酸３－ヒドロキシプロピル、（メタ）アクリル酸２－ヒドロキシブチル、（メタ）アクリル酸４－ヒドロキシブチル、（メタ）アクリル酸２－ヒドロキシペンチルなどの（メタ）アクリル酸ヒドロキシアルキルエステル；グリセリン、トリメチロールプロパンなどの多価アルコールの（メタ）アクリル酸モノエステル；Ｎ－メチロール（メタ）アクリルアミドである。

[0202] ポリアクリルポリオールは、さらなる他の単量体との共重合体であってもよい。他の単量体は、前記（メタ）アクリル酸エステル単量体および水酸基を有する単量体と共重合が可能である限り、限定されない。

[0203] 当該他の単量体は、例えば、（メタ）アクリル酸などの不飽和モノカルボン酸；マレイン酸などの不飽和ジカルボン酸ならびにその無水物およびモノまたはジエステル類；（メタ）アクリロニトリルなどの不飽和ニトリル類；（メタ）アクリルアミド、Ｎ－メチロール（メタ）アクリルアミドなどの不飽和アミド類；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；メチルビニルエーテルなどのビニルエーテル類；エチレン、プロピレンなどのα－オレフィン類；塩化ビニル、塩化ビニリデンなどのハロゲン化α，β

－不飽和脂肪族単量体；スチレン、α－メチルスチレンなどのα，β－不飽和芳香族単量体である。

[0204] ポリエステルポリオールは、典型的には、多塩基酸成分とポリオール成分との反応により得られる。多塩基酸成分は、例えば、オルトフタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、１，４－ナフタレンジカルボン酸、２，５－ナフタレンジカルボン酸、２，６－ナフタレンジカルボン酸、ビフェニルジカルボン酸、テトラヒドロフタル酸などの芳香族ジカルボン酸；シュウ酸、コハク酸、マロン酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、デカンジカルボン酸、ドデカンジカルボン酸、オクタデカンジカルボン酸、酒石酸、アルキルコハク酸、リノレイン酸、マレイン酸、フマル酸、メサコン酸、シトラコン酸、イタコン酸などの脂肪族ジカルボン酸；ヘキサヒドロフタル酸、テトラヒドロフタル酸、１，３－シクロヘキサンジカルボン酸、１，４－シクロヘキサンジカルボン酸などの脂環式ジカルボン酸；あるいは、これらの酸無水物、アルキルエステル、酸ハライドなどの反応性誘導体である。

[0205] ポリオール成分は、例えば、エチレングリコール、１，２－プロパンジオール、１，３－プロパンジオール、１，３－ブタンジオール、１，４－ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、ペンタンジオール、１，６－ヘキサンジオール、１，８－オクタンジオール、１，１０－デカンジオール、１－メチル－１，３－ブチレングリコール、２－メチル－１，３－ブチレングリコール、１－メチル－１，４－ペンチレングリコール、２－メチル－１，４－ペンチレングリコール、１，２－ジメチル－ネオペンチルグリコール、２，３－ジメチル－ネオペンチルグリコール、１－メチル－１，５－ペンチレングリコール、２－メチル－１，５－ペンチレングリコール、３－メチル－１，５－ペンチレングリコール、１，２－ジメチルブチレングリコール、１，３－ジメチルブチレングリコール、２，３－ジメチルブチレングリコール、１，４－ジメチルブチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ポリエチレングリコール、ジプロピレングリコール、ポリ

プロピレングリコール、１，４－シクロヘキサンジメタノール、１，４－シクロヘキサンジオール、ビスフェノールＡ、ビスフェノールＦ、水添ビスフェノールＡ、水添ビスフェノールＦである。

[0206] ポリエーテルポリオールは、典型的には、多価アルコールにアルキレンオキシドを開環重合して付加させることにより得られる。多価アルコールは、例えば、エチレングリコール、ジエチレングリコール、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、グリセリン、トリメチロールプロパンである。アルキレンオキシドは、例えば、エチレンオキシド、プロピレンオキシド、ブチレンオキシド、スチレンオキシド、テトラヒドロフランである。

ポリイソシアネートは、例えば、テトラメチレンジイソシアネート、ドデカメチレンジイソシアネート、１，４－ブタンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、２，２，４－トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート、２，４，４－トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート、リジンジイソシアネート、２－メチルペンタン－１，５－ジイソシアネート、３－メチルペンタン－１，５－ジイソシアネートなどの脂肪族ジイソシアネート；イソホロンジイソシアネート、水添キシリレンジイソシアネート、４，４′－シクロヘキシルメタンジイソシアネート、１，４－シクロヘキサンジイソシアネート、メチルシクロヘキシレンジイソシアネート、１，３－ビス（イソシアネートメチル）シクロヘキサンなどの脂環族ジイソシアネート；トリレンジイソシアネート、２，２′－ジフェニルメタンジイソシアネート、２，４′－ジフェニルメタンジイソシアネート、４，４′－ジフェニルメタンジイソシアネート、４，４′－ジフェニルジメチルメタンジイソシアネート、４，４′－ジベンジルジイソシアネート、１，５－ナフチレンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、１，３－フェニレンジイソシアネート、１，４－フェニレンジイソシアネートなどの芳香族ジイソシアネート；ジアルキルジフェニルメタンジイソシアネート、テトラアルキルジフェニルメタンジイソシアネート、α，α，α，α－テトラメチルキシリレンジイソシアネートなどの芳香脂肪族ジイソシアネートである。

[0207] ウレタン樹脂は、好ましくは、カルボキシル基を有する。カルボキシル基を有することにより、易接着層の性能（易接着性）が向上する。この効果は、特に、高温・高湿の環境下において顕著である。

カルボキシル基を有するウレタン樹脂は、例えば、ポリオールとポリイソシアネートとに加え、遊離カルボキシル基を有する鎖長剤を反応させることにより得られる。遊離カルボキシル基を有する鎖長剤は、例えば、ジヒドロキシカルボン酸、ジヒドロキシスクシン酸である。ジヒドロキシカルボン酸は、例えば、ジメチロールアルカン酸（例えば、ジメチロール酢酸、ジメチロールブタン酸、ジメチロールプロピオン酸、ジメチロール酪酸、ジメチロールペンタン酸）などのジアルキロールアルカン酸である。

[0208] ウレタン樹脂の酸価は、好ましくは１０以上、さらに好ましくは１０～５０、特に好ましくは２０～４５である。これらの場合、易接着層の性能（例えば、偏光子などの他の機能性フィルムとの密着性）がより向上する。

[0209] ウレタン樹脂は、上述した各成分に加えて、さらに他のポリオールあるいは他の鎖長剤との反応によって得たものでもよい。

[0210] 他のポリオールは、例えば、ソルビトール、１，２，３，６－ヘキサンテトラオール、１，４－ソルビタン、１，２，４－ブタントリオール、１，２，５－ペンタントリオール、グリセリン、トリメチロールエタン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトールなど、３以上の水酸基を有するポリオールである。

[0211] 他の鎖長剤は、例えば、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、１，３－プロパンジオール、１，３－ブタンジオール、１，４－ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、ペンタンジオール、１，６－ヘキサンジオール、プロピレングリコールなどのグリコール類；エチレンジアミン、プロピレンジアミン、ヘキサメチレンジアミン、１，４－ブタンジアミン、アミノエチルエタノールアミンなどの脂肪族ジアミン；イソホロンジアミン、４，４′－ジシクロヘキシルメタンジアミンなどの脂環族ジアミン；キシリレンジアミン、トリレンジアミンなどの芳香族ジアミ

ンである。

[0212] ウレタン樹脂は、公知の方法を応用して形成できる。当該方法は、例えば、各成分を一度に反応させるワンショット法、段階的に反応させる多段法である。カルボキシル基を有するウレタン樹脂は、カルボキシル基の導入が容易であることから、多段法により形成することが好ましい。ウレタン樹脂の形成に用いる触媒は、特に限定されない。

[0213] ウレタン樹脂層である易接着層の形成に用いられる水系の易接着組成物は、微粒子およびウレタン樹脂以外に、中和剤を含むことが好ましい。この場合、易接着組成物におけるウレタン樹脂の安定性が向上する。中和剤は、例えば、アンモニア、Ｎ－メチルモルホリン、トリエチルアミン、ジメチルエタノールアミン、メチルジエタノールアミン、トリエタノールアミン、モルホリン、トリプロピルアミン、エタノールアミン、トリイソプロパノールアミン、２－アミノ－２－メチル－１－プロパノールである。

[0214] ウレタン樹脂を含有する易接着組成物が水系である場合、ウレタン樹脂を形成する際に、ポリイソシアネートに対して不活性であるとともに水と相溶する有機溶媒を用いることが好ましい。有機溶剤は、例えば、酢酸エチル、酢酸ブチル、エチルセロソルブアセテートなどのエステル系溶媒；アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトンなどのケトン系溶媒；ジオキサン、テトラハイドロフラン、プロピレングリコールモノメチルエーテルなどのエーテル系溶媒である。

[0215] ウレタン樹脂を含有する易接着組成物は、架橋剤を含有することが好ましく、この場合、易接着層の性能が向上する。架橋剤は、特に限定されない。ウレタン樹脂がカルボキシル基を有する場合、架橋剤は、当該カルボキシル基と反応し得る基を有するポリマーが好ましい。

[0216] カルボキシル基と反応し得る基は、例えば、有機アミノ基、オキサゾリン基、エポキシ基、カルボジイミド基であり、オキサゾリン基が好ましい。オキサゾリン基を有する架橋剤は、ウレタン樹脂と混合したときの室温でのポットライフが長く、加熱によって架橋反応が進行するため、作業性が良好で

ある。当該ポリマーは、例えば、（メタ）アクリルポリマー、スチレン・アクリルポリマーであり、（メタ）アクリルポリマーが好ましい。架橋剤が（メタ）アクリルポリマーである場合、易接着層の性能がさらに向上する。これに加えて、（メタ）アクリルポリマーは、水系の易接着組成物に安定的に相溶し、ウレタン樹脂を良好に架橋する。

[0217] ウレタン樹脂を含む易接着組成物において、当該組成物におけるウレタン樹脂の含有率は、１．５～１５質量％が好ましく、２～１０質量％がより好ましい。含有率がこれらの範囲にある場合、易接着組成物をフィルムの表面に塗布する際の塗工性が高い。この組成物が架橋剤をさらに含む場合、架橋剤の含有量は、ウレタン樹脂（固形分）１００重量部に対して、１～３０重量部が好ましく、３～２０重量部がより好ましい。ウレタン樹脂を含む易接着組成物における微粒子の含有率は、ウレタン樹脂（固形分）１００重量部に対して、０．３～１０重量部が好ましく、０．５～１重量部がより好ましい。

易接着層は、前記密着性を損ねない範囲において微粒子を含有していても良い。微粒子として、任意の適切な微粒子を用いることができ、好ましくは、水分散性の微粒子である。具体的には、無機系微粒子、有機系微粒子のいずれも用いることができ、有機無機複合微粒子であってもよい。

[0218] 無機系微粒子としては、例えば、シリカ、チタニア、アルミナ、ジルコニア等の無機酸化物、炭酸カルシウム、タルク、クレイ、焼成カオリン、焼成珪酸カルシウム、水和珪酸カルシウム、珪酸アルミニウム、珪酸マグネシウム、燐酸カルシウム等が挙げられる。

有機系微粒子としては、例えば、シリコーン系樹脂、フッ素系樹脂、（メタ）アクリル系樹脂等が挙げられる。

これらの中でも、好ましくは、シリカである。ブロッキング抑制能にさらに優れ得、かつ、透明性に優れ、ヘイズを生じず、着色もないので、偏光板の光学特性に与える影響がより小さいからである。また、シリカは易接着組成物への分散性および分散安定性が良好であるので、易接着層形成時の作業

性にもより優れ得るからである。さらに、シリカは、フィルムとの密着性にも優れる。

[0219] 微粒子の粒子径（平均一次粒子径）は、３００ｎｍ以下であり、好ましくは１０～３００ｎｍ、さらに好ましくは２０～２００ｎｍであり、さらに好ましくは、３０～１５０ｎｍである。

[0220] このような粒子径の微粒子を用いることにより、易接着層表面に適切に凹凸を形成して、フィルムと易接着層および／または易接着層どうしの接触面における摩擦力を効果的に低減し得る。その結果、ブロッキング抑制能にさらに優れ得る。また、平均一次粒子径が可視光波長よりも小さく、かつ小さければ小さいほど、粒子による光散乱を抑制できるので、偏光板の光学特性に与える影響をより抑制し得る。

[0221] 前記微粒子の粒度分布は、１．０～１．４であることが好ましく、１．０～１．２がより好ましい。

前記微粒子の平均一次粒子径および粒度分布は、レーザー回折・散乱式の粒度分布測定装置（例えば、Ｐａｒｔｉｃｌｅ Ｓｉｚｉｎｇ Ｓｙｓｔｅｍｓ製、Ｓｕｂｍｉｃｒｏｎ Ｐａｒｔｉｃｌｅ Ｓｉｚｅｒ ＮＩＣＯＭＰ３８０）により求めることができる。

[0222] 具体的には、媒体中に分散した状態にある微粒子に対して、前記測定装置により、その等価球形分布を求める。次に、求めた分布における、大粒子側から積算した積算体積分率５０％の粒子の粒子径を求め、これを微粒子の平均一次粒子径（ｄ５０）とする。

これとは別に、当該分布における、大粒子側から積算した積算体積分率２５％の粒子の粒子径（ｄ２５）および７５％の粒子の粒子径（ｄ７５）を求め、その比（ｄ２５／ｄ７５）を微粒子の粒度分布とする。なお、媒体は、粒度分布装置の構成および能力に応じて適宜選択でき、例えば水であるが、液体に限られない。

[0223] 易接着層を形成する組成物が水系の場合、好ましくは、前記微粒子は水分散体として配合される。具体的には、微粒子としてシリカを採用する場合、

好ましくは、コロイダルシリカとして配合される。コロイダルシリカとしては、市販品をそのまま用い得る。市販品としては、例えば、扶桑化学工業（株）製のクォートロンＰＬシリーズ、日産化学工業（株）製のスノーテックスシリーズ、日本アエロジル（株）製のＡＥＲＯＤＩＳＰシリーズおよびＡＥＲＯＳＩＬシリーズ等が挙げられる。

[0224] 易接着層における微粒子の含有率の上限は、１０質量％未満が好ましく、５質量％未満がより好ましく、２質量％未満がさらに好ましい。微粒子の含有率が１０質量％を超えると、易接着層の塗膜強度が低下したり透明性が損なわれたりすることがある。易接着層における微粒子の含有率の下限は、０．１質量％以上が好ましく、０．１５質量％以上がより好ましく、０．２質量％以上がさらに好ましい。微粒子の含有率が０．１質量％未満になると、光学フィルムの耐ブロッキング性が低下することがある。

[0225] フィルムの表面に対する易接着層の形成方法は限定されず、公知の方法に従えばよい。易接着層は、易接着層用樹脂を含有する易接着組成物をフィルムの表面に塗布して、当該組成物の塗布膜を形成した後、形成した塗布膜を乾燥させて形成することが好ましい。前記易接着組成物は上述した微粒子を含有していてもよい。

[0226] 易接着組成物は、水系の組成物が好ましい。水系の組成物は、有機溶剤系の組成物に比べて、易接着層を形成する際に生じる環境への負荷が小さく、作業性に優れる。水系の組成物は、例えば、易接着性を有する樹脂の分散体である。分散体は、典型的には、易接着性を有する樹脂のエマルジョンである。易接着層用樹脂のエマルジョンは、乾燥により易接着層用樹脂を含む層となる。当該エマルジョンに含まれる微粒子は、そのまま樹脂層に残留する。

[0227] 易接着層用樹脂を含む易接着組成物が水系である場合、水と相溶する有機溶媒を用いることが好ましい。当該有機溶剤は、例えば、酢酸エチル、酢酸ブチル、エチルセロソルブアセテートなどのエステル系溶媒；アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトンなどのケトン系溶媒；ジオキサ

ン、テトラハイドロフラン、プロピレングリコールモノメチルエーテルなどのエーテル系溶媒である。

[0228] 易接着組成物は、易接着性を有する樹脂および微粒子以外に、添加剤を含んでいてもよい。添加剤は、例えば、分散安定剤、揺変剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、消泡剤、増粘剤、分散剤、界面活性剤、触媒、帯電防止剤である。

[0229] 易接着層用樹脂層である易接着層の形成に用いられる水系の易接着組成物において、当該組成物における易接着層用樹脂の含有率は、１～２０質量％が好ましく、２～１５質量％がより好ましい。含有率がこれらの範囲にある場合、易接着組成物をフィルムの表面に塗布する際の塗工性が高いほか、易接着層の効果を十分に確保できる。

この組成物が架橋剤をさらに含む場合、架橋剤の含有量は易接着層用樹脂１００重量部に対して、１～３０重量部が好ましく、３～２０重量部がより好ましい。易接着層用樹脂を含有する易接着組成物における微粒子の含有率は、易接着層用樹脂１００重量部に対して、０．３～１０重量部が好ましく、０．５～１重量部がより好ましい。

[0230] 易接着層を形成する場合、フィルムの主面（表面）に、易接着層用樹脂を含有する易接着組成物を塗布して当該組成物の塗布膜を形成する工程（塗布工程）と、形成した塗布膜を乾燥させて、前記易接着層用樹脂を含有する易接着層を前記表面に形成する工程（乾燥工程）とを含むことが好ましい。前記易接着組成物は上述した微粒子を含有していてもよい。

[0231] この場合、主面（表面）に易接着層用樹脂を含有する易接着層が形成されたフィルムから構成される光学フィルム（本発明の光学フィルム）が形成される。易接着層は、易接着組成物に含まれていた樹脂を含む。

[0232] 塗布工程では、フィルムの少なくとも一方の主面（表面）に、易接着組成物の塗布膜が形成される。典型的には、フィルムの一方の主面（表面）に、当該塗布膜が形成される。

塗布工程において易接着組成物を塗布する方法には、公知の方法を適用で

きる。当該方法は、例えば、バーコート法、ロールコート法、グラビアコート法、ロッドコート法、スロットオリフィスコート法、カーテンコート法、ファウンテンコート法である。塗布工程において形成する塗布膜の厚さは、当該塗布膜が易接着層となったときに必要な厚さに応じて、適宜調整できる。

[0233] フィルムにおける易接着組成物が塗布される主面（表面）は、表面処理が施されていることが好ましい。表面処理は、上述したとおりであるが、コロナ放電処理およびプラズマ処理が好ましい。コロナ放電処理の条件は限定されない。コロナ放電処理における電子照射量は、５０～１５０Ｗ／ｍ^2／分が好ましく、７０～１００Ｗ／ｍ^2／分がより好ましい。

[0234] 乾燥工程は、公知の方法に従えばよい。乾燥温度は、典型的には５０℃以上であり、９０℃以上が好ましく、１１０℃以上がより好ましい。乾燥温度をこれらの範囲とすることにより、例えば、耐色性（特に、高温・高湿の環境下）に優れるフィルムが得られる。乾燥温度の上限は２００℃以下が好ましく、１８０℃以下がより好ましい。

[0235] 未延伸のフィルムから延伸フィルムを製造する場合、ならびに一軸延伸されたフィルムから二軸延伸フィルムを製造する場合、フィルムをいずれかの時点で延伸する必要がある。フィルムの延伸は、易接着層の形成前に行ってもよいし、易接着層の形成後に行ってもよい。易接着層の形成と、フィルムの延伸とを同時に行うこともできる。

[0236] フィルムの延伸は、公知の方法に従えばよい。機械的強度を高める観点から二軸延伸フィルムであることが好ましい。

二軸延伸は、典型的には、逐次二軸延伸であるが、縦横延伸を同時に行う同時二軸延伸も好適に使用できる。さらに、フィルムロールに対して斜め方向への延伸であってもよい。なお、本明細書では、フィルムの流れ方向（ＭＤ方向）の延伸を縦延伸、幅手方向（ＴＤ方向）の延伸を横延伸と呼ぶ。帯状のフィルムの場合、ＭＤ方向は当該フィルムの長手方向である。

[0237] フィルムの延伸には、公知の延伸機が使用できる。縦延伸機は特に限定さ

れず、例えば、オーブン延伸機またはロール縦延伸機である。

オーブン縦延伸機は、一般に、オーブンと、当該オーブンの入口側および出口側に各々設けられた搬送ロールとから構成される。オーブンの入口側の搬送ロールと、出口側の搬送ロールとの間に周速差を与えることによって、樹脂フィルムがその搬送方向に延伸される。

[0238] ロール縦延伸機は、一般に、原反を加熱可能な多数のロールまたはニップロール（これらは予熱ロールとして機能する）と、原反を冷却可能な多数のロールまたはニップロール（これらは冷却ロールとして機能する）とから構成される。この延伸機に送られた原反は、多数の予熱ロールに次々と接触しながら延伸温度にまで予熱され、冷却ロールとの間に設けられた延伸区間においてその流れ方向に延伸された後、多数の冷却ロールに次々と接触して冷却される。

[0239] 横延伸機は特に限定されないが、テンター延伸機が好ましい。テンター延伸機は、グリップ式でもピン式でも構わないが、フィルムの引き裂けが生じ難いことから、グリップ式が好ましい。グリップ式のテンター延伸機は、一般に、横延伸用のクリップ走行装置とオーブンとから構成される。クリップ走行装置では、フィルムの横端部がクリップで挟まれた状態で当該樹脂フィルムが搬送される。このとき、クリップ走行装置のガイドレールを開き、左右２列のクリップ間の距離を広げることによって、フィルムが横延伸される。グリップ式のテンター延伸機では、フィルムの搬送方向に対してクリップの拡縮機能を持たせることで、同時二軸延伸も可能となる。また、フィルムの延伸方向の左右を異なる速度で、当該フィルムの搬送方向に引張延伸する斜め延伸機であってもよい。

[0240] 延伸温度は、フィルムを構成するブロック共重合体のＴｇ以上が好ましい。具体的には、Ｔｇ＋８℃～Ｔｇ＋４０℃の範囲が好ましく、Ｔｇ＋１０℃～Ｔｇ＋３３℃の範囲がより好ましく、Ｔｇ＋１３℃～Ｔｇ＋２８℃の範囲がさらに好ましい。延伸温度がＴｇ＋１３℃未満の場合、十分な延伸倍率が確保できずに、フィルムの耐折り曲げ白化性が悪化することがある。延伸温

度がＴｇ＋２８℃を超えると、フィルムの面内配向が十分に確保できずに、フィルムの耐折り曲げ白化性が悪化することがある。

[0241] 面積比で定義した延伸倍率は、好ましくは３．５倍以上、より好ましくは３．８倍以上、さらに好ましくは４倍以上である。延伸倍率が３．５倍未満の場合、フィルムの面内配向が十分に確保できずに、フィルムの耐折り曲げ白化性が悪化することがある。なお、面積比で定義した延伸倍率は、未延伸フィルムの膜厚と延伸フィルムの膜厚とから求められる。例えば、未延伸フィルムの膜厚をｘμｍ、延伸フィルムの膜厚をｙμｍとすると、面積比で定義した延伸倍率は、ｘ／ｙ倍となる。

[0242] 長手方向の延伸倍率は、１．３～１．９倍の範囲が好ましく、１．４～１．９倍の範囲がより好ましい。延伸倍率が１．３倍未満の場合、フィルムの面内配向が十分に確保できずに、フィルムの耐折り曲げ白化性が悪化することがある。なお、長手方向の延伸倍率は面積比で定義される。例えば、延伸倍率をｚ倍とすると、固定端一軸延伸であるロール縦延伸の場合の延伸倍率はｚ倍となり、自由端一軸延伸であるオーブン縦延伸の場合の延伸倍率は$\sqrt{z}$倍となる。

[0243] 幅手方向の延伸倍率は、１．８～４．０倍の範囲が好ましく、２．０～３．８倍の範囲がより好ましい。延伸倍率が１．８倍未満の場合、フィルムの面内配向が十分に確保できずに、フィルムの耐折り曲げ白化性が悪化することがある。また、幅手方向の延伸倍率は、長手方向の延伸倍率の好ましくは１．３倍以上、より好ましくは１．４倍以上、さらに好ましくは１．５倍以上である。長手方向の延伸倍率の１．３倍未満の場合、フィルム長手方向と幅手方向の延伸配向が同程度となり、耐折り曲げ白化性が悪化することがある。なお、幅手方向の延伸倍率は面積比で定義される。例えば、延伸倍率をｚ倍とすると、固定端一軸延伸であるテンター横延伸の場合の延伸倍率はｚ倍となる。

[0244] 延伸速度は、一方向の延伸につき、好ましくは１０～２０，０００％／分、より好ましく１００～１０，０００％／分である。延伸速度が１０％／分

未満の場合、フィルムの延伸に必要な時間が過度に長くなり、フィルムの製造コストが増すことがある。延伸速度が２０，０００％／分を超えると、フィルムが破断することがある。

[0245] 易接着層の形成と、フィルムの延伸とを同時に行う場合、例えば、塗布工程の後に、易接着組成物の塗布膜を形成したフィルムを加熱雰囲気下で延伸すればよい。延伸のために当該フィルムに加える熱により、フィルムの表面に形成された易接着組成物の塗布膜が乾燥し、易接着層となる。なお、本発明のフィルムのＴｇは通常１００℃以上であるため、上述した延伸温度は、易接着組成物の塗布膜から易接着層が形成されるのに十分に高い温度である。

[0246] 塗布工程において易接着組成物の塗布膜を形成するフィルムは、未延伸フィルムであっても、既に延伸された延伸フィルムであってもよい。塗布膜を形成するフィルムが帯状の一軸延伸フィルムであり、二軸延伸フィルムであるフィルムを製造する場合、一軸延伸の方向が当該フィルムのＭＤ方向であり、塗布膜を形成した後の延伸方向がそのＴＤ方向であることが好ましい。これにより、効率的なフィルムの製造が可能となる。

[0247] フィルムを溶融押出により形成する場合、フィルムの形成から、光学フィルムを得るまでの工程を連続的に行うことができる。この場合、フィルムの表面に易接着組成物を塗布する工程、ならびに易接着組成物を塗布したフィルムを加熱雰囲気下で延伸する工程を、連続的に行うことが好ましい。このような連続的に実施される易接着組成物の塗布工程を、インライン塗工と呼ぶ。

[0248] 二軸延伸フィルムを製造する場合、未延伸のフィルムを延伸して一軸延伸フィルムとする工程、当該一軸延伸フィルムの表面に易接着組成物を塗布する工程、および易接着組成物を塗布したフィルムを加熱雰囲気下で延伸する工程、を連続的に行うことが特に好ましい。

さらに、フィルムに対してコロナ放電処理およびプラズマ処理などの表面処理を行う場合、未延伸のフィルムを延伸して一軸延伸フィルムとする工程

、当該一軸延伸フィルムの表面を表面処理する工程、表面処理したフィルムの表面に易接着組成物を塗布する工程、および易接着組成物を塗布したフィルムを加熱雰囲気下で延伸する工程、を連続的に行うことが好ましい。

[0249] フィルムの製造方法において、本発明の効果が得られる限り、上述した工程以外の任意の工程を含んでいてもよい。当該工程は、例えば、形成したフィルムに対してさらなる層（例えば樹脂層）を積層する工程、あるいは形成したフィルムに対してコーティング処理、表面処理などの後加工を施す工程である。

[0250] 本発明の光学フィルムは、例えば、偏光子保護フィルム、位相差フィルム、視野角補償フィルム、光拡散フィルム、反射フィルム、反射防止フィルム、防眩フィルム、輝度向上フィルム、タッチパネル用導電フィルムである。

[0251] 本発明の光学フィルムが示す位相差は、ブロック共重合体の組成および延伸状態により制御できる。本発明の光学フィルムは、光学的に等方なフィルムであり得るし、延伸処理等により、光学的な異方性を有する（例えば、位相差などの複屈折を発現する）フィルムでもあり得る。

[0252] 本発明のフィルムは、ロールに巻回されていてもよい（フィルムロールであってもよい）。

[0253] 本発明の光学フィルムは、画像表示装置への使用に好適である。画像表示装置は、例えば、エレクトロルミネッセンス（ＥＬ）ディスプレイパネル、プラズマディスプレイパネル（ＰＤＰ）、電界放出ディスプレイ（ＦＥＤ：Ｆｉｅｌｄ　Ｅｍｉｓｓｉｏｎ　Ｄｉｓｐｌａｙ）、ＬＣＤである。ＬＣＤは、液晶セルと、液晶セルの少なくとも一方の主面に配置された偏光板とを有する。

[0254] 本発明の偏光子保護フィルムは上記光学フィルムを含む。光学フィルム以外のフィルムや層を含んでもよい。

[0255] ［偏光板］

本発明は、本発明のフィルムを備えた偏光板も含有する。

本発明の偏光板は、本発明にかかる光学フィルムを備えている。

ＬＣＤ（液晶表示装置）には、その画像表示原理に基づき、液晶セルを狭持するように一対の偏光板が配置される。本発明の偏光板は、例えば、偏光子の少なくとも一方の表面に、易接着層を介して本発明の光学フィルム（偏光子保護フィルム）が積層された構造を有する。

[0256] 従来、偏光子保護フィルムには、トリアセチルセルロース（ＴＡＣ）フィルムが用いられている。しかし、ＴＡＣフィルムは耐湿熱性が十分ではなく、ＴＡＣフィルムを偏光子保護フィルムとして用いた場合、高温または高湿度の環境下で偏光板の特性が劣化することがある。また、ＴＡＣフィルムは厚さ方向の位相差を有しており、この位相差は、ＬＣＤなどの画像表示装置、特に大画面の画像表示装置、の視野角特性に悪影響を与える。

これに対して、偏光子保護フィルムである本発明の光学フィルムはアクリル樹脂フィルムから構成されるため、ＴＡＣフィルムに比べて耐湿熱性および光学特性を向上させることができる。

[0257] 偏光板は、典型的には、光学フィルムと偏光子とを接着層（粘接着剤層）を介して積層することにより製造される。本発明の光学フィルムが易接着層を有する場合、易接着層が偏光子側となるように、両者は積層されることが好ましい。

具体的には、例えば、偏光子または光学フィルムから選ばれるいずれか一方の表面に、乾燥後に接着層（粘接着剤層）となる接着剤組成物を塗布した後、両者を貼り合わせて乾燥させる。

[0258] 接着剤組成物の塗布方法は、例えば、ロール法、噴霧法、浸漬法である。接着剤組成物が金属化合物コロイドを含む場合、乾燥後の接着層の厚さが金属化合物コロイド粒子の平均粒子径よりも大きくなるように、接着剤組成物を塗布する。乾燥温度は、典型的には、５～１５０℃、好ましくは３０～１２０℃である。乾燥時間は、典型的には、１２０秒以上、好ましくは３００秒以上である。

[0259] 偏光子は限定されず、偏光板として必要な機能に応じて、任意の適切な偏光子を採用できる。偏光子は、例えば、ポリビニルアルコール（ＰＶＡ）系

フィルム、部分ホルマール化ＰＶＡ系フィルム、エチレン－酢酸ビニル共重合体（ＥＶＡ）の部分けん化フィルムのような親水性の高分子フィルムに、ヨウ素または二色性染料のような二色性物質を吸着させて一軸延伸したフィルム；ＰＶＡの脱水処理物あるいはポリ塩化ビニルの脱塩酸処理物を用いたポリエン系配向フィルム、である。なかでも、ＰＶＡ系フィルムに二色性物質を吸着させて一軸延伸したフィルムが、偏光子として好ましい。この偏光子は、高い偏光二色比を示す。偏光子の厚さは限定されず、一般に、１～８０μｍ程度である。

[0260] ＰＶＡ系フィルムにヨウ素を吸着させて一軸延伸した偏光子は、例えば、ＰＶＡ系フィルムを、ヨウ素を含む水溶液に浸漬することによって染色し、延伸倍率３～７倍で一軸延伸することによって作製することができる。

染色に用いる水溶液は、必要に応じて、ホウ酸、硫酸亜鉛、塩化亜鉛などを含んでいてもよい。ヨウ素を含む水溶液として、ヨウ化カリウムなどのヨウ化物の水溶液を用いてもよい。

[0261] ＰＶＡ系フィルムは、染色の前に、水に浸漬して水洗してもよい。ＰＶＡ系フィルムの水洗により、当該フィルムの表面に存在する汚れおよびブロッキング防止剤などを除去できる。さらに、水洗によってＰＶＡ系フィルムが膨潤するため、染色時のムラが抑制される。延伸は、染色前に行っても、染色後に行っても、染色と同時に行ってもよい。

[0262] 乾燥後に接着層（粘接着剤層）となる接着剤組成物は、限定されない。接着剤組成物は、ＰＶＡ系樹脂を含むことが好ましい。

ＰＶＡ系樹脂は、例えば、以下の重合体を含む：ポリ酢酸ビニルのけん化物およびその誘導体；酢酸ビニルと他の単量体との共重合体のけん化物；ＰＶＡをアセタール化、ウレタン化、エーテル化、グラフト化またはリン酸エステル化した変性ＰＶＡ。

[0263] 前記他の単量体は、例えば、（無水）マレイン酸、フマル酸、クロトン酸、イタコン酸、（メタ）アクリル酸などの不飽和カルボン酸およびそのエステル；エチレン、プロピレンなどのα－オレフィン；（メタ）アリルスルホ

ン酸（ソーダ）、スルホン酸ソーダ（モノアルキルマレート）、ジスルホン酸ソーダアルキルマレート、Ｎ－メチロールアクリルアミド、アクリルアミドアルキルスルホン酸アルカリ塩、Ｎ－ビニルピロリドン、Ｎ－ビニルピロリドン誘導体である。ＰＶＡ系樹脂は、アセトアセチル基含有ＰＶＡを含むことが好ましい。この場合、偏光子と光学フィルム（アクリル樹脂フィルム）との密着性が向上し、偏光板の耐久性が向上する。

[0264] ＰＶＡ系樹脂の平均重合度は、接着剤組成物の接着性の観点から、１００～５０００程度が好ましく、１０００～４０００がより好ましい。ＰＶＡ系樹脂の平均ケン化度は、接着剤組成物の接着性の観点から、８５～１００モル％程度が好ましく、９０～１００モル％がより好ましい。

[0265] アセトアセチル基含有ＰＶＡは、例えば、ＰＶＡとジケテンとを任意の方法で反応させて得られる。具体例は、ＰＶＡを酢酸などの溶媒中に分散させた分散体に、ジケテンを添加する方法；ＰＶＡをジメチルホルムアミドまたはジオキサンなどの溶媒に溶解させた溶液に、ジケテンを添加する方法；ＰＶＡにジケテンガスまたは液状ジケテンを直接接触させる方法である。

[0266] アセトアセチル基含有ＰＶＡにおけるアセトアセチル基変性度は、典型的には、０．１モル％以上であり、好ましくは０．１～４０モル％、より好ましくは１～２０％、さらに好ましくは２～７モル％である。０．１モル％未満の変性度では、変性による効果（例えば、耐水性の向上）が不十分となることがある。変性度が４０モル％を超えると、それ以上、耐水性が向上しない。ＰＶＡのアセトアセチル基変性度は、ＮＭＲにより測定できる。

[0267] 接着剤組成物は、架橋剤を含んでいてもよい。架橋剤は限定されないが、ＰＶＡ系樹脂に対する反応性を示す官能基を少なくとも２つ有する化合物である。

架橋剤は、例えば、エチレンジアミン、トリエチレンジアミン、ヘキサメチレンジアミンなど、アルキレン基と２つのアミノ基とを有するアルキレンジアミン；トリレンジイソシアネート、水素化トリレンジイソシアネート、トリメチロールプロパントリレンジイソシアネートアダクト、トリフェニル

メタントリイソシアネート、メチレンビス（４－フェニルメタントリイソシアネート）、イソホロンジイソシアネート、およびこれらのケトオキシムブロック物またはフェノールブロック物、などのイソシアネート；エチレングリコールジグリシジルエーテル、ポリエチレングリコールジグリシジルエーテル、グリセリンジグリシジルエーテル、グリセリントリグリシジルエーテル、１，６－ヘキサンジオールジグリシジルエーテル、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル、ジグリシジルアニリン、ジグリシジルアミンなどのエポキシ；ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、ブチルアルデヒドなどのモノアルデヒド；グリオキザール、マロンジアルデヒド、スクシンジアルデヒド、グルタルジアルデヒド、マレインジアルデヒド、フタルジアルデヒドなどのジアルデヒド；メチロール尿素、メチロールメラミン、アルキル化メチロール尿素、アルキル化メチロールメラミン、アセトグアナミン、ベンゾグアナミンとホルムアルデヒドとの縮合物などのアミノ－ホルムアルデヒド樹脂；ナトリウム、カリウム、マグネシウム、カルシウム、アルミニウム、鉄、ニッケルなど、一価から三価の金属の塩および酸化物である。

なかでも、架橋剤は、アミノ－ホルムアルデヒド樹脂およびジアルデヒドが好ましい。アミノ－ホルムアルデヒド樹脂は、メチロール基を有することが好ましく、メチロールメラミンが好適である。ジアルデヒドは、グリオキザールが好適である。

[0268] 接着剤組成物における架橋剤の配合量は、ＰＶＡ系樹脂の種類に応じて、適宜、設定できる。典型的には、ＰＶＡ系樹脂１００重量部に対して１０～６０重量部程度であり、２０～５０重量部が好ましい。この範囲において、良好な接着性が得られる。架橋剤の配合量が過度に多くなると、架橋剤を介した反応が短時間で進行するため、接着剤組成物がゲル化する傾向がある。このため、接着剤組成物としての可使時間（ポットライフ）が極端に短くなり、工業的な使用が困難になることがある。

[0269] 接着剤組成物は、金属化合物コロイドを含んでいてもよい。金属化合物コ

ロイドは、金属化合物の粒子が分散媒中に分散したコロイドであり得る。金属化合物コロイドは、粒子が有する同種の電荷の相互反発に起因する静電的な安定化により、永続的に安定性を有するコロイドであり得る。接着剤組成物が金属化合物コロイドを含むことにより、例えば、架橋剤の配合量が多い場合であっても、接着剤組成物の安定性が向上する。

[0270] 金属化合物コロイドにおけるコロイド粒子の平均粒子径は、偏光板としての光学特性（例えば、偏光特性）に悪影響を及ぼさない範囲で設定できる。コロイド粒子の平均粒子径は、１～１００ｎｍが好ましく、１～５０ｎｍがより好ましい。

なお、前記コロイド粒子の平均粒子径は、前述した微粒子の平均一次粒子径の求め方と同じ方法で測定することができる。

これらの範囲では、接着層中に当該コロイド粒子を均一に分散させることができる。これにより、接着性が確保されるとともに、クニック欠陥の発生が抑えられる。クニック欠陥が発生すると、例えば、当該偏光板を組み込んだ画像表示装置において、光抜けが生じる。

[0271] 金属化合物は限定されず、例えば、アルミナ、シリカ、ジルコニア、チタニアなどの酸化物；ケイ酸アルミニウム、炭酸カルシウム、ケイ酸マグネシウム、炭酸亜鉛、炭酸バリウム、リン酸カルシウムなどの金属塩；セライト、タルク、クレイ、カオリンなどの鉱物である。正電荷を有する金属化合物コロイドが好ましい。正電荷を有するコロイドとなる金属化合物は、アルミナ、チタニアが好ましく、アルミナが特に好ましい。

[0272] 金属化合物コロイドは、典型的には、分散媒に分散したコロイド溶液である。分散媒は、例えば、水、アルコールである。コロイド溶液における固形分濃度は、典型的には、１～５０重量％程度であり、１～３０重量％が好ましい。コロイド溶液は、安定剤として、硝酸、塩酸、酢酸などの酸を含んでいてもよい。

[0273] 接着剤組成物における金属化合物コロイドの配合量（固形分換算）は、ＰＶＡ系樹脂１００重量部に対して２００重量部以下が好ましく、１０～２０

０重量部がより好ましく、２０～１７５重量部がさらに好ましく、３０～１５０重量部が特に好ましい。これらの範囲では、接着剤組成物の接着性がより確実となりながら、クニック欠陥の発生がより抑えられる。

[0274] 接着剤組成物は、シランカップリング剤、チタンカップリング剤などのカップリング剤；各種の粘着付与剤；紫外線吸収剤；酸化防止剤；耐熱安定剤、耐加水分解安定剤などの安定剤を含んでいてもよい。

[0275] 接着剤組成物は、好ましくは水溶液（樹脂溶液）である。水溶液における樹脂の濃度は、組成物の塗工性および放置安定性の観点から、０．１～１５重量％が好ましく、０．５～１０重量％がより好ましい。

[0276] 水溶液の粘度は、１～５０ｍＰａ・ｓが好ましい。接着剤組成物が金属化合物コロイドを含む場合、１～２０ｍＰａ・ｓの低い粘度であっても、クニック欠陥の発生が効果的に抑制される。

水溶液のｐＨは、２～６が好ましく、２．５～５がより好ましく、３～５がさらに好ましく、３．５～４．５が特に好ましい。一般に、水溶液のｐＨの調整によって、金属化合物コロイドの表面電荷が調整される。表面電荷は、好ましくは正電荷である。正電荷であることにより、クニック欠陥の発生がさらに抑制される。金属化合物コロイドの表面電荷は、例えば、ゼータ電位測定機でゼータ電位を測定することで確認できる。

[0277] 水溶液（樹脂溶液）である接着剤組成物は、公知の方法により形成できる。接着剤組成物が架橋剤および金属化合物コロイドを含む場合、例えば、ＰＶＡ系樹脂と架橋剤とを混合して適切な濃度に調整した溶液に、金属化合物コロイドを配合する方法をとり得る。ＰＶＡ系樹脂と金属化合物コロイドとを混合した後に、架橋剤を、接着剤組成物の使用時期を考慮しながら混合してもよい。水溶液の濃度は、水溶液を調製した後に調整可能である。

[0278] 接着剤組成物から形成される接着層（粘接着剤層）の厚さは、当該組成物の組成に応じて、適宜、設定できる。当該厚さは、１０～３００ｎｍが好ましく、１０～２００ｎｍがより好ましく、２０～１５０ｎｍが特に好ましい。この範囲において、接着層（粘接着剤層）は十分な接着力を示す。

[0279] ［画像表示装置］

本発明は、上述した本発明の偏光板を備えた画像表示装置も含有する。

本発明の画像表示装置は、本発明にかかる光学フィルムを備える。画像表示装置は、例えば、エレクトロルミネッセンス（ＥＬ）ディスプレイパネル、プラズマディスプレイパネル（ＰＤＰ）、電界放出ディスプレイ（ＦＥＤ：Ｆｉｅｌｄ　Ｅｍｉｓｓｉｏｎ　Ｄｉｓｐｌａｙ）、ＬＣＤである。

[0280] 本発明にかかる光学フィルムを備える画像表示装置（本発明の画像表示装置）の構成は特に限定されず、電源、バックライト部、操作部などの部材を、必要に応じて適宜備えればよい。

[0281] 本発明は上述した各実施形態に限定されるものではなく、請求項に示した範囲で種々の変更が可能であり、異なる実施形態にそれぞれ開示された技術的手段を適宜組み合わせて得られる実施形態についても本発明の技術的範囲に含まれる。

実施例

[0282] 本発明を以下の実施例及び比較例によって具体的に説明するが、本発明はこれらによって限定されるものではない。

[0283] ［ガラス転移温度（Ｔｇ）］

ブロック共重合体のＴｇは、ＪＩＳ　Ｋ７１２１の規定に準拠して始点法により求めた。

４０℃以上で観測されるＴｇは、具体的には示差走査熱量計（株式会社リガク製、ＤＳＣ－８２３０）を用い、窒素ガス雰囲気下、約１０ｍｇのサンプルを２５℃から毎分１０℃の昇温速度で２００℃まで昇温を複数回繰り返すことで安定させたＤＳＣ曲線から得た。尚、リファレンスには、α－アルミナを用いた。

また、４０℃未満で観測されるＴｇは、示差走査熱量計（ＮＥＴＺＳＣＨ社製、ＤＳＣ２０４Ｆ１）を用い、窒素ガス雰囲気下、約１０ｍｇのサンプルを－１００℃から毎分１０℃の昇温速度で４０℃まで昇温を複数回繰り返すことで安定させたＤＳＣ曲線から得た。

[0284] ［環構造の割合］

本願では、環構造の含有割合（モル％）は、ＢＲＵＫＥＲ社製ＡＶＡＮＣＥ３００を用いた重クロロホルム中の１Ｈ－ＮＭＲ測定により得られる積分強度比により求めた。

例えば、実施例１の場合、４．０４ＭＨｚ（アクリル酸ブチル由来の構造に含まれる酸素原子に隣接するメチレン基）、３．６０ＭＨｚ（メタクリル酸メチル由来の構造に含まれる酸素原子に隣接するメチル基）、３．１０ＭＨｚ（グルタルイミド構造に由来する窒素原子に隣接するメチル基）の積分強度比から求めた。更に、原料として用いたトリブロックポリマーの１Ｈ－ＮＭＲの積分強度と比較することで、ＰＭＭＡ部位とＰＢＡ部位の導入量を求めた。

[0285] ［破壊強度］

ブロック共重合体を、手動式加熱プレス機（井元製作所製、ＩＭＣ－１８０Ｃ型）を用い、２７０℃で２分間溶融プレス成形し、１００±１０μｍの未延伸フィルム（原フィルム）を作製した。この原フィルムに５．５ｇの試験球を１０ｍｍずつ高さを上げながら落下させ、フィルムに亀裂が入る前後の高さ（破壊前後の高さ；ｍｍ）をｎ数＝１０で記録し、それぞれの値をｙ軸に、フィルムの厚み（μｍ）をｘ軸にプロットし、厚み１００μｍでの破壊前後の高さ（ｍｍ）をそれぞれ算出した。この破壊前の高さと破壊後の高さの平均値からフィルムにかかった試験力を下記式により算出し、その値を１００μｍの厚みのシートにした場合の破壊強度（ｍＪ）とした。

破壊強度（ｍＪ）＝｛試験球重量（ｇ）｝×｛破壊前後の高さの平均値（ｍｍ）｝×９．８０７／１０００

[0286] ［熱分解温度］

ブロック共重合体の熱分解温度は、以下の方法（ダイナミックＴＧ法）で分析した。

測定装置：差動型示差熱天秤（ＴｈｅｒｍｏＰｌｕｓ２　ＴＧ－８１２０、ダイナミックＴＧ、（株）リガク製）

測定条件：試料量１０ｍｇ

昇温速度：１０℃／分

雰囲気：窒素フロー２００ｍＬ／分

方法：階段状等温制御法（１５０℃から５００℃までの範囲内における質量減少速度値０．００５％／秒以下に制御）

[0287] ［ヘイズ］

ブロック共重合体を、手動式加熱プレス機（井元製作所製、ＩＭＣ－１８０Ｃ型）を用い、２７０℃で２分間溶融プレス成形し、１００±１０μｍの未延伸フィルム（原フィルム）を作製した。得られたフィルムを、石英セル中で１，２，３，４－テトラヒドロナフタレン（テトラリン）に含浸した状態で、日本電色工業社製ＮＤＨ－１００１ＤＰを用いて測定し、１００μｍあたりの値に換算した。

[0288] ［酸価］

１）酸成分の量（カルボキシル基および酸無水物基の合計量）（ｍｍｏｌ／ｇ）

塩化メチレン２５ｇに試料０．１５ｇを溶解させ、得られた溶液にメタノール１５ｇを添加し、３時間撹拌した。その後、この溶液に１重量％フェノールフタレインエタノール溶液２滴を添加し、撹拌しながら０．１Ｎ水酸化ナトリウム水溶液をＡｍｌ添加し、さらに室温で１時間撹拌した。この溶液に０．１Ｎ塩酸を滴下し、溶液の赤紫色が消失するまでの０．１Ｎ塩酸の滴下量（Ｂｍｌ）を測定した。

次に、塩化メチレン２５ｇとメタノール１５ｇとの混合液に１重量％フェノールフタレインエタノール溶液２滴を添加し、撹拌しながら０．１Ｎ水酸化ナトリウム水溶液をＣｍｌ添加し、さらに室温で１時間撹拌した。この溶液に０．１Ｎ塩酸を滴下し、溶液の赤紫色が消失するまでに要した０．１Ｎ塩酸の滴下量（Ｄｍｌ）を測定した。

式：〔試料中に残存する酸成分の量（カルボキシル基および酸無水物基の合計量）（ｍｍｏｌ／ｇ）〕Ａ１＝０．１×［（Ａ－Ｂ）－（Ｃ－Ｄ）］／０

．１５

に基づいて求めた。

[0289] ２）酸成分の量（酸無水物基をカルボキシル基に変換した際の合計量）（ｍｍｏｌ／ｇ）

塩化メチレン２５ｇに試料０．１５ｇを溶解させ、得られた溶液にジメチルスルホキシド（ＤＭＳＯ）２０ｇを添加し、３時間撹拌した。その後、この溶液に１重量％フェノールフタレインエタノール溶液２滴を添加し、撹拌しながら０．１Ｎ水酸化ナトリウム水溶液をＥｍｌ添加し、さらに室温で１時間撹拌した。この溶液に０．１Ｎ塩酸を滴下し、溶液の赤紫色が消失するまでの０．１Ｎ塩酸の滴下量（Ｆｍｌ）を測定した。

次に、塩化メチレン２５ｇとＤＭＳＯ２０ｇとの混合液に１重量％フェノールフタレインエタノール溶液２滴を添加し、撹拌しながら０．１Ｎ水酸化ナトリウム水溶液をＧｍｌ添加し、さらに室温で１時間撹拌した。この溶液に０．１Ｎ塩酸を滴下し、溶液の赤紫色が消失するまでに要した０．１Ｎ塩酸の滴下量（Ｈｍｌ）を測定した。

式：〔試料中に残存する酸成分の量（酸無水物基をカルボキシル基に変換した際の合計量）（ｍｍｏｌ／ｇ）〕Ａ２＝０．１×［（Ｅ－Ｆ）－（Ｇ－Ｈ）］／０．１５

に基づいて求めた。

そして、酸価＝２×Ａ１－Ａ２　として求めた。

[0290] ［重量平均分子量および数平均分子量］

重量平均分子量Ｍｗおよび数平均分子量Ｍｎは、ゲル浸透クロマトグラフィー（ＧＰＣ）を用いて、ポリスチレン換算により求めた。測定に用いた装置および測定条件は以下の通りである。

システム：東ソー製ＧＰＣシステムＨＬＣ－８２２０

測定側カラム構成：

・ガードカラム（東ソー製、ＴＳＫｇｕａｒｄｃｏｌｕｍｎ　ＳｕｐｅｒＨＺ－Ｌ）

・分離カラム（東ソー製、ＴＳＫｇｅｌ　ＳｕｐｅｒＨＺＭ－Ｍ）２本直列接続

リファレンス側カラム構成：

・リファレンスカラム（東ソー製、ＴＳＫｇｅｌ　ＳｕｐｅｒＨ－ＲＣ）

展開溶媒：クロロホルム（和光純薬工業製、特級）

展開溶媒の流量：０．６ｍＬ／分

標準試料：ＴＳＫ標準ポリスチレン（東ソー製、ＰＳ－オリゴマーキット）

カラム温度：４０℃

[0291]（実施例１）

市販のポリメチルメタクリレート部位（ＰＭＭＡ部位）とポリブチルアクリレート部位（ＰＢＡ部位）を含むトリブロック共重合体［クラレ社製　クラリティＬＡ４２８５（ＰＭＭＡ部位：ＰＢＡ部位の組成比（モル比）が５５：４５、４０℃以上のＴｇ１０７℃、４０℃未満のＴｇ－４２℃）］３２０部、トルエン４８０部を攪拌機付のオートクレーブに導入し、１００℃で３０分間加熱して溶解し、冷却後４０％メチルアミンメタノール溶液１５０部加え、更に２００℃で９０分加熱した。この反応液の成分には、ブタノールが約２００ｐｐｍ程度含まれていたことから、ＰＢＡにもグルタルイミド構造が導入されたことを確認した。得られた樹脂溶液を２００℃の減圧乾燥器にて１時間減圧乾燥後に粉砕することで、４０℃以上のガラス転移温度が１２５℃、４０℃未満のガラス転移温度が－４０℃であるグルタルイミド環を有するトリブロック共重合体（ＴＢ－１）を得た。トリブロック共重合体（ＴＢ－１）において、Ｍｎは３．３万、Ｍｗは４．０万、Ｍｗ／Ｍｎ＝１．２１、酸価は０．２ｍｍｏｌ／ｇ、グルタルイミド環構造の割合は、８モル％であり、ＰＭＭＡ部位に７モル％、ＰＢＡ部位に１モル％導入されていた。

[0292]（実施例２）

市販のポリメチルメタクリレート部位とポリブチルアクリレート部位を含

むトリブロック共重合体［アルケマ社製　Ｍ５２（ＰＭＭＡ部位：ＰＢＡ部位の組成比（モル比）が５５：４５、４０℃以上のＴｇ１０４℃、４０℃未満のＴｇ－４３℃）］３２０部、トルエン４８０部を攪拌機付のオートクレーブに導入し、１００℃で３０分間加熱して溶解し、冷却後４０％メチルアミンメタノール溶液１２０部加え、更に２００℃で２０分加熱した。この反応液の成分には、ブタノールが約２００ｐｐｍ程度含まれていたことから、ＰＢＡにもグルタルイミド構造が導入されたことを確認した。得られた樹脂溶液を２００℃の減圧乾燥器にて１時間減圧乾燥後に粉砕することで、４０℃以上のガラス転移温度が１２０℃、４０℃未満のガラス転移温度が－４１℃であるグルタルイミド環を有するトリブロック共重合体（ＴＢ－２）を得た。トリブロック共重合体（ＴＢ－２）において、Ｍｎは２．９万、Ｍｗは５．１万、Ｍｗ／Ｍｎ＝１．７５、酸価は０．４ｍｍｏｌ／ｇ、グルタルイミド環構造の割合は、６モル％であり、ＰＭＭＡ部位に５モル％、ＰＢＡ部位に１モル％導入されていた。

[0293]（実施例３）

市販のポリメチルメタクリレート部位とポリブチルアクリレート部位を含むトリブロック共重合体（クラレ社製　クラリティＬＡ４２８５）３２０部、トルエン４８０部を攪拌機付のオートクレーブに導入し、１００℃で３０分間加熱して溶解し、冷却後アニリン２００部を加え、更に２５０℃で８時間加熱した。この反応液の成分には、ブタノールが約１５０ｐｐｍ程度含まれていたことから、ＰＢＡにもグルタルイミド構造が導入されたことを確認した。得られた樹脂溶液を２４０℃の減圧乾燥器にて２時間減圧乾燥後に粉砕することで、４０℃以上のガラス転移温度が１３２℃、４０℃未満のガラス転移温度が－３８℃であるグルタルイミド環を有するトリブロック共重合体（ＴＢ－３）を得た。トリブロック共重合体（ＴＢ－３）において、Ｍｎは２．４万、Ｍｗは３．２万、Ｍｗ／Ｍｎ＝１．３５、酸価は０．３ｍｍｏｌ／ｇ、グルタルイミド環構造の割合は、１２モル％であり、ＰＭＭＡ部位に１０モル％、ＰＢＡ部位に２モル％導入されていた。

[0294] （比較例１）

市販のポリメチルメタクリレート（ＰＭＭＡ）樹脂［住友化学社製スミペックスＥＸＴｇ：１０５℃］３２０部、トルエン４８０部を攪拌機付のオートクレーブに導入し、１００℃で３０分間加熱して溶解し、冷却後４０％メチルアミンメタノール溶液１３０部加え、更に２００℃で６０分加熱した。得られた樹脂溶液を２５０℃の減圧乾燥器にて２時間減圧乾燥後に粉砕することで、ガラス転移温度が１２０℃であるグルタルイミド環を有する重合体（ＴＢ－４）を得た。重合体（ＴＢ－４）において、Ｍｎは３．７万、Ｍｗは８．２万、Ｍｗ／Ｍｎ＝２．２１、酸価は０．４ｍｍｏｌ／ｇであった。

[0295] （比較例２）

市販のポリメチルメタクリレート部位とポリブチルアクリレート部位を含むトリブロック共重合体（クラレ社製　クラリティＬＡ４２８５）をそのまま使用した。

[0296] （実施例４）

攪拌装置、温度センサー、冷却管、窒素導入管を備えた反応装置に、０．５２部の臭化第一銅（ＣｕＢｒ；和光純薬製）、１．０部の２，５－ジブロモアジピン酸ジエチル（ＤＢＡＤＥ；和光純薬製）、９０．７部のアクリル酸ｎ－ブチル（ＢＡ；日本触媒製）、７．２部のアセトニトリル（ＡＣＮ；和光純薬製）を仕込み、これに窒素を通じつつ、８０℃まで昇温した。次いで、０．４３部のＮ，Ｎ，Ｎ’，Ｎ’，Ｎ’’－ペンタメチルジエチレントリアミン（ＰＭＤＥＴＡ；和光純薬工業製）を加え、４．５時間反応を進行させた。

[0297] 反応溶液を活性アルミナでろ過し触媒残渣を除去した後、２．４ｋＰａ、８０℃で約１時間残存モノマーおよび溶媒を除去し、重合体ブロックを得た。重合体ブロックはＢＡポリマーを構成成分とし、Ｍｎは２．５万、Ｍｗは２．８万、Ｍｗ／Ｍｎ＝１．１２、ガラス転移温度は－４５℃であった。次いで得られた重合体ブロック１２部、４３部のＭＭＡ、５部のＳＴ、１．３部のＣｕＢｒを攪拌装置、温度センサー、冷却管、窒素導入管を備えた反応

装置に仕込み、窒素を通じつつ８０℃まで昇温させた。次いで、開始剤として０．４７部のトリス［２－（ジメチルアミノ）エチル］アミン（和光純薬工業製）と、４．７部のＡＣＮの混合液を添加し、１時間反応を進行させた。得られた反応溶液を活性アルミナでろ過し触媒残渣を除去した後、多量のメタノールに沈殿させ、ろ過、乾燥することによりポリメチルメタクリレートとスチレン共重合部位（ＰＭＭＡ－Ｓｔ部位）とポリブチルアクリレート部位（ＰＢＡ部位）を含むトリブロック共重合体を得た。得られたトリブロック共重合体において、４０℃以上の領域におけるガラス転移温度は１０３℃であった。

[0298] 得られたトリブロック共重合体３０部、トルエン４５部を攪拌機付のオートクレーブに導入し、１００℃で３０分間加熱して溶解し、冷却後４０％メチルアミンメタノール溶液１５部加え、更に２２０℃で９０分加熱した。この反応液の成分には、ブタノールが約１５０ｐｐｍ程度含まれていたことから、ＰＢＡにもグルタルイミド構造が導入されたことを確認した。得られた樹脂溶液を２００℃の減圧乾燥器にて１時間減圧乾燥後に粉砕することで、４０℃以上のガラス転移温度が１２３℃、４０℃未満のガラス転移温度が－３８℃であるグルタルイミド環を有するトリブロック共重合体（ＴＢ－５）を得た。トリブロック共重合体（ＴＢ－５）において、Ｍｎは６．０万、Ｍｗは９．２万、Ｍｗ／Ｍｎ＝１．５２、酸価は０．６ｍｍｏｌ／ｇ、スチレン単位の割合は２重量％、グルタルイミド環構造の割合は、８モル％であり、ＰＭＭＡ部位に７モル％、ＰＢＡ部位に１モル％導入されていた。

[0299]（実施例５）

市販のポリメチルメタクリレート部位（ＰＭＭＡ部位）とポリブチルアクリレート部位（ＰＢＡ部位）を含むトリブロック共重合体［クラレ社製　クラリティＬＡ４２８５（ＰＭＭＡ部位：ＰＢＡ部位の組成比（モル比）が５５：４５、４０℃以上のＴｇ１０７℃、４０℃未満のＴｇ－４２℃）］２０部、市販のポリメチルメタクリレート（ＰＭＭＡ）樹脂［住友化学社製スミペックスＥＸＴｇ：１０５℃］８０部、トルエン２００部を攪拌機付のオー

トクレーブに導入し、１００℃で３０分間加熱して溶解し、冷却後４０％メチルアミンメタノール溶液４０部加え、更に２００℃で９０分加熱した。この反応液の成分には、ブタノールが約８０ｐｐｍ程度含まれていたことから、ＰＢＡにもグルタルイミド構造が導入されたことを確認した。得られた樹脂溶液を２００℃の減圧乾燥器にて１時間減圧乾燥後に粉砕することで、４０℃以上のガラス転移温度が１２３℃であるグルタルイミド環を有するトリブロック共重合体とグルタルイミド環を有する重合体混合物（ＴＢ－６）を得た。トリブロック共重合体（ＴＢ－６）において、酸価は０．２ｍｍｏｌ／ｇであった。

[0300] （実施例６）

実施例１で合成したグルタルイミド環を有するトリブロック共重合体（ＴＢ－１）３０重量部、比較例１で合成したグルタルイミド環を有する重合体（ＴＢ－４）７０重量部を、バレル温度２３０℃、回転数２００ｒｐｍ、減圧度１３．３～４００ｈＰａ（１０～３００ｍｍＨｇ）、ベント数が１個のベントタイプスクリュー二軸押出機（孔径：１５ｍｍ、Ｌ／Ｄ：４５）内に樹脂量換算で３００ｇ／ｈｒの処理速度でホッパーから導入し、混練することにより、４０℃以上のガラス転移温度が１２３℃であるグルタルイミド環を有するトリブロック共重合体とグルタルイミド環を有する重合体混合物（ＴＢ－７）を得た。得られた混合物（ＴＢ－７）において、酸価は０．５ｍｍｏｌ／ｇであった。

[0301] 実施例１～６及び比較例１～２で得られた樹脂の組成及び各種物性を、下記表に示す。

[0302]

[表1]

	実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2	実施例4	実施例5	実施例6
樹脂の種類	TB-1	TB-2	TB-3	TB-4	—	TB-5	TB-6	TB-7
ベース ポリマー	トリブロック 共重合体 (PMMA部位/ PBA部位)	トリブロック 共重合体 (PMMA部位/ PBA部位)	トリブロック 共重合体 (PMMA部位/P BA部位)	PMMA 樹脂	トリブロック 共重合体 (PMMA部位 /PBA部位)	トリブロック 共重合体 (PMMA－St 部位 /PBA部位)	トリブロック 共重合体 (PMMA部位/PBA 部位)/PMMA 樹脂 (重量比)＝20／80 の混合物	TB-1/TB-4 (重量比) ＝30／70 の混合物
導入した 環構造	グルタルイミド 構造	グルタルイミド 構造	グルタルイミド 構造	グルタルイミド 構造	—	グルタルイミド 構造	グルタルイミド 構造	グルタルイミド 構造
環構造の 割合 (モル%)	8 PMMA 部位：7 PBA 部位：1	6 PMMA 部位：5 PBA 部位：1	12 PMMA 部位：10 PBA 部位：2	5	0	6	8	—
スチレンの割合 (重量%)	0	0	0	0	0	2	0	0
酸価 (mmol/g)	0.2	0.4	0.3	0.4	—	0.6	0.2	0.5
Mn($\times 10^4$)	3.3	2.9	2.4	3.7	—	6.0	—	—
Mw($\times 10^4$)	4.0	5.1	3.2	8.2	—	9.2	—	—
Mw/Mn	1.21	1.75	1.35	2.21	—	1.52	—	—
Tg(℃)	125	120	132	120	85	123	123	120
破壊強度 (mJ)	＞100	＞100	82	8	＞100	77	19	28
熱分解温度 (℃)	330	332	355	325	280	317	330	332
ヘイズ (%)	0.3	0.2	0.2	0.3	0.1	0.5	0.4	0.6

[0303] 上記表に示すように、ブロック共重合体に環構造を導入しなかった比較例

２は、Ｔｇが１１０℃未満と低く、透明性、耐熱性及び強度を両立することができなかったのに対して、ブロック共重合体に環構造を導入した実施例１～３では、Ｔｇが１１０℃以上と高く、透明性、耐熱性及び強度を両立することができた。

[0304] また、環構造が導入されていても、ベースポリマーがＰＭＭＡ部位のみの比較例１では、破壊強度が小さかったのに対し、ベースポリマーとしてＰＭＭＡ部位とＰＢＡ部位を有するブロック共重合体を用いて環構造を導入した実施例１～３及び実施例４～６では、破壊強度が大きくなり、透明性、耐熱性及び強度の全てが優れたものとなった。

[0305] さらに、比較例２と実施例１～３の比較から明らかなように、ベースポリマーのブロック共重合体に環構造が導入されても、ヘイズに変化はなく、透明性を維持できることがわかった。これは、環構造が導入されても、ブロックポリマーにおける各ブロック間の相溶性を維持できるためと考えられる。

[0306] しかも、このようなヘイズは、スチレン単位を導入しても、また、異種のブロック共重合体や他の樹脂と混合しても、ほとんど上昇することがなく、高い透明性を維持でき、上記のような優れた物性が得られることがわかった。

産業上の利用可能性

[0307] 本発明によれば、透明性、耐熱性及び強度に優れた光学フィルムを得ることができるため、該光学フィルムを用いて、優れた偏光子保護フィルム、偏光板、及び画像表示装置を製造することができる。

請求の範囲

[請求項1] （メタ）アクリル酸エステルを重合成分として含み、主鎖に環構造を有するブロック共重合体。

[請求項2] （メタ）アクリル酸エステルを重合成分として含むブロック（Ｉ）と、（メタ）アクリル酸エステルを重合成分として含み、ブロック（Ｉ）とは異なるガラス転移温度を有するブロック（ＩＩ）とを有する請求項１記載のブロック共重合体。

[請求項3] ブロック（ＩＩ）のガラス転移温度がブロック（Ｉ）のガラス転移温度より低い請求項２記載のブロック共重合体。

[請求項4] メタクリル酸エステルを重合成分として含むブロック（Ｉ）と、アクリル酸エステルを重合成分として含むブロック（ＩＩ）とを有する請求項１～３のいずれかに記載のブロック共重合体。

[請求項5] ブロック（ＩＩ）が環構造を有する請求項２～４のいずれかに記載のブロック共重合体。

[請求項6] 環構造を、３～２０モル％含む請求項１～５のいずれかに記載のブロック共重合体。

[請求項7] ４０℃以上の温度領域におけるガラス転移温度が１１０℃以上である請求項１～６のいずれかに記載のブロック共重合体。

[請求項8] 環構造が、ラクトン構造、グルタルイミド構造、マレイミド構造、無水グルタル酸構造及び無水マレイン酸構造から選ばれる１以上である請求項１～７のいずれかに記載のブロック共重合体。

[請求項9] メタクリル酸エステルを重合成分として含むブロック（Ｉ）と、アクリル酸エステルを重合成分として含むブロック（ＩＩ）とを有し、ブロック（ＩＩ）が環構造を有する請求項１～８のいずれかに記載のブロック共重合体。

[請求項10] 分子量分布が２以下である請求項１～９のいずれかに記載のブロック共重合体。

[請求項11] 酸価が、１０ｍｍｏｌ／ｇ以下である請求項１～１０のいずれかに

記載のブロック共重合体。

[請求項12] メタクリル酸エステルを重合成分として含むブロック（Ｉ）と、アクリル酸エステルを重合成分として含むブロック（ＩＩ）とを有し、ブロック（ＩＩ）が環構造を有し、

環構造が、ラクトン構造、グルタルイミド構造、マレイミド構造から選ばれる１以上であり、

ブロック（ＩＩ）が環構造を有し、

分子量分布が１．１～２であり、

酸価が、１０ｍｍｏｌ／ｇ以下である請求項１～１１のいずれかに記載のブロック共重合体。

[請求項13] 請求項１～１２のいずれかに記載のブロック共重合体を含む樹脂組成物。

[請求項14] さらに、アクリル系樹脂を含む請求項１３記載の樹脂組成物。

[請求項15] アクリル系樹脂が、請求項１～１２のいずれかに記載のブロック共重合体と共通する骨格を有する請求項１４記載の樹脂組成物。

[請求項16] 請求項１３～１５のいずれかに記載の樹脂組成物で形成されたフィルム。

[請求項17] 光学フィルムである請求項１６記載のフィルム。

[請求項18] 偏光子保護フィルムである請求項１６又は１７記載のフィルム。

[請求項19] 請求項１６～１８のいずれかに記載のフィルムを備えた偏光板。

[請求項20] 請求項１９記載の偏光板を備えた画像表示装置。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/074288

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08F293/00(2006.01)i, *C08F8/48*(2006.01)i, *C08F220/18*(2006.01)i, *C08J5/18*(2006.01)i, *G02B5/30*(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)
C08F293/00, C08F8/48, C08F220/18, C08J5/18, G02B5/30

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

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 2014-12782 A (Asahi Kasei Chemicals Corp.), 23 January 2014 (23.01.2014), claims; paragraphs [0040], [0049], [0064]; examples (Family: none)	1-4,6-8,10, 11,13-20
X	JP 2010-13613 A (Toray Industries, Inc.), 21 January 2010 (21.01.2010), claims; paragraphs [0011], [0033], [0044], [0072]; examples (Family: none)	1-4,6-8,10, 11,13-20
X	JP 2006-8821 A (Kaneka Corp.), 12 January 2006 (12.01.2006), claims; paragraphs [0036], [0148]; examples (Family: none)	1-10,13-16

☒ 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	Date of mailing of the international search report
01 November 2016 (01.11.16)	08 November 2016 (08.11.16)

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

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/074288

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2014-237817 A (Dow Global Technologies L.L.C.), 18 December 2014 (18.12.2014), claims; paragraphs [0035], [0067], [0070], [0074]; examples & US 2014/0360975 A1 claims; paragraphs [0039], [0071], [0074], [0078]; examples & CN 104231192 A & KR 10-2014-0143715 A	1-3,5-7,11, 13
X	JP 2009-256457 A (Mitsubishi Rayon Co., Ltd.), 05 November 2009 (05.11.2009), claims; paragraph [0031]; examples (Family: none)	1-7,9-11,13

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１６／０７４２８８

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08F293/00(2006.01)i, C08F8/48(2006.01)i, C08F220/18(2006.01)i, C08J5/18(2006.01)i, G02B5/30(2006.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08F293/00, C08F8/48, C08F220/18, C08J5/18, G02B5/30

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１６年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１６年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１６年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	JP 2014-12782 A（旭化成ケミカルズ株式会社）2014.01.23，特許請求の範囲、【００４０】、【００４９】、【００６４】、実施例（ファミリーなし）	1-4, 6-8, 10, 11, 13-20
X	JP 2010-13613 A（東レ株式会社）2010.01.21，特許請求の範囲、【００１１】、【００３３】、【００４４】、【００７２】、実施例（ファミリーなし）	1-4, 6-8, 10, 11, 13-20

☑　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。　　☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「Ｘ」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Ｙ」特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
０１．１１．２０１６	０８．１１．２０１６

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｊ　３４４６
大久保　智之
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４５７

Ｃ（続き）．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	JP 2006-8821 A (株式会社カネカ) 2006.01.12, 特許請求の範囲、【００３６】、【０１４８】、実施例（ファミリーなし）	1-10, 13-16
X	JP 2014-237817 A (ダウ　グローバル　テクノロジーズ　エルエルシー) 2014.12.18, 特許請求の範囲、【００３５】、【００６７】、【００７０】、【００７４】、実施例 & US 2014/0360975 A1, Claims, [0039], [0071], [0074], [0078], Examples & CN 104231192 A & KR 10-2014-0143715 A	1-3, 5-7, 11, 13
X	JP 2009-256457 A (三菱レイヨン株式会社) 2009.11.05, 特許請求の範囲、【００３１】、実施例（ファミリーなし）	1-7, 9-11, 13