

(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
2022年9月22日(22.09.2022)



(10) 国際公開番号

WO 2022/196644 A1

(51) 国際特許分類:

G02B 1/04 (2006.01) G02B 3/00 (2006.01)
B29C 45/00 (2006.01) G02B 5/30 (2006.01)
C08F 8/48 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2022/011370

(22) 国際出願日: 2022年3月14日(14.03.2022)

(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 2021-042744 2021年3月16日(16.03.2021) JP

(71) 出願人: 株式会社カネカ (KANEKA CORPORATION) [JP/JP]; 〒5308288 大阪府大阪市北区中之島二丁目3番18号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 江 ▲ 崎 ▼ 俊 朗 (EZAKI Toshiaki); 〒5660072 大阪府摂津市鳥飼西5-1-1 株式会社カネカ 大阪工場内 Osaka (JP). 三枝 一範 (SAEGUSA Kazunori); 〒5660072 大阪府摂

津市鳥飼西5-1-1 株式会社カネカ 大阪工場内 Osaka (JP). 羽田野 恵介 (HATANO Keisuke); 〒5660072 大阪府摂津市鳥飼西5-1-1 株式会社カネカ 大阪工場内 Osaka (JP). 平井 佳太 (HIRAI Keita); 〒5660072 大阪府摂津市鳥飼西5-1-1 株式会社カネカ 大阪工場内 Osaka (JP). 西河 利留 (NISHIKAWA Riru); 〒5660072 大阪府摂津市鳥飼西5-1-1 株式会社カネカ 大阪工場内 Osaka (JP).

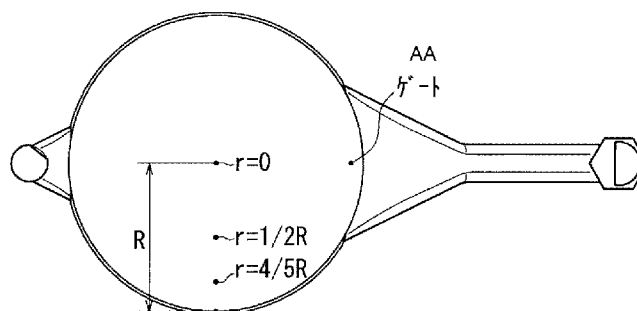
(74) 代理人: 新山 雄一, 外 (NIYAMA Yuichi et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内1-7-12 サピアタワー Tokyo (JP).

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

(54) Title: OPTICAL MEMBER AND METHOD FOR PRODUCING SAME

(54) 発明の名称: 光学部材およびその製造方法

【図2】



AA Gate

(57) Abstract: Provided are an optical member and a method for producing this optical member. The optical member is composed of an injection molded article, and the injection molded article comprises a glutarimide resin that contains: a glutarimide unit having an imidocarbonyl group provided by the imidization of a carbonyl group deriving from (meth)acrylate ester monomer, a repeat unit deriving from (meth)acrylate ester monomer, and a repeat unit deriving from aromatic vinyl monomer. The glutarimide resin has an orientation birefringence of -0.5×10^{-3} to 0.5×10^{-3} , a photoelastic constant of $-3.0 \times 10^{-12} \text{ Pa}^{-1}$ to $3.0 \times 10^{-12} \text{ Pa}^{-1}$, and a glass transition temperature of at least 125°C . The average value of the phase difference of the optical member is not more than 20 nm.

〔続葉有〕



WO 2022/196644 A1

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,
ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG,
US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

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

添付公開書類:

一 国際調査報告(条約第21条(3))

(57) 要約: 射出成形体で構成される光学部材であって、射出成形体が(メタ)アクリル酸エステル系単量体由来のカルボニル基がイミド化されたイミドカルボニル基を有するグルタリイミド単位、(メタ)アクリル酸エステル系単量体由来の繰り返し単位、および芳香族ビニル系単量体由来の繰り返し単位を含み、配向複屈折が -0.5×10^{-3} 以上 0.5×10^{-3} 以下であり、光弾性定数が $-3.0 \times 10^{-12} \text{ Pa}^{-1}$ 以上 $3.0 \times 10^{-12} \text{ Pa}^{-1}$ 以下であり、かつガラス転移温度が 125°C 以上であるグルタリイミド樹脂を含み、光学部材の位相差の平均値が 20 nm 以下である光学部材、およびその製造方法を提供する。

明 細 書

発明の名称：光学部材およびその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、低位相差の光学部材およびその製造方法に関する。

背景技術

[0002] 仮想空間（V R）レンズおよび拡張現実（A R）レンズを始めとする光学レンズ、車載用ディスプレイなどの光学部材では、画像品質の向上を目的に、位相差が小さい材料の使用が求められている。一方、従来から、偏光子保護フィルムなどには、位相差が小さい材料が用いられている。例えば、特許文献1には、グルタリイミド単位を有するグルタリイミド樹脂を用いることで、位相差を低減した偏光子保護フィルムが提案されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：国際公開第2005／054311号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] しかしながら、グルタリイミド樹脂を射出成形して得られた光学部材は、成形初期の位相差が低い場合でも、室温における保管時に、空気中の水分を吸収し、経時的に位相差が上昇してしまう場合があった。

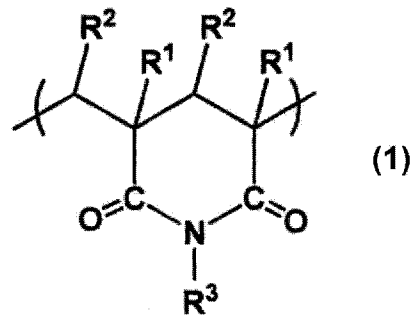
[0005] 本発明は、上記従来の問題を解決するため、射出成形後の成形初期の位相差が低く、かつ位相差の経時的な増加が抑制された光学部材、およびその製造方法を提供する。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明に係る光学部材は、射出成形体で構成される光学部材であって、前記射出成形体は、グルタリイミド樹脂を含み、前記グルタリイミド樹脂は、下記一般式（1）で表される繰り返し単位、下記一般式（2）で表される繰り返し単位、および下記一般式（3）で表される繰り返し単位を含み、前記

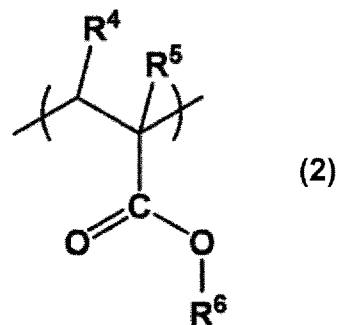
グルタリイミド樹脂は、配向複屈折が -0.5×10^{-3} 以上 0.5×10^{-3} 以下であり、光弾性定数が $-3.0 \times 10^{-12} \text{ Pa}^{-1}$ 以上 $3.0 \times 10^{-12} \text{ Pa}^{-1}$ 以下であり、かつガラス転移温度が 125°C 以上であり、前記光学部材は、位相差の平均値が 20 nm 以下である。

[化1]



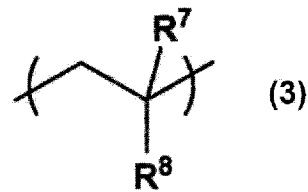
(但し、前記一般式(1)において、R¹およびR²は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数1～8のアルキル基を示し、R³は、水素原子、炭素数1～18のアルキル基、炭素数3～12のシクロアルキル基、または炭素数6～10のアリール基を示す。)

[化2]



(但し、前記一般式(2)において、R⁴およびR⁵は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数1～8のアルキル基を示し、R⁶は、炭素数1～18のアルキル基、炭素数3～12のシクロアルキル基、または炭素数6～10のアリール基を示す。)

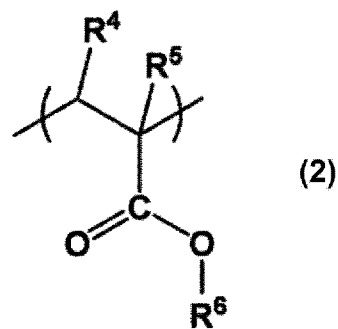
[化3]



(但し、前記一般式 (3) において、 R^7 は、水素原子または炭素数 1 ～ 8 のアルキル基を示し、 R^8 は、炭素数 6 ～ 10 のアリール基を示す。)

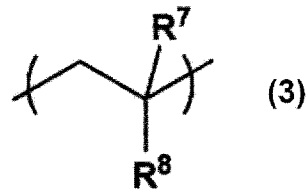
[0007] また、本発明に係る光学部材の製造方法は、前記光学部材の製造方法であって、下記一般式 (2) で表される繰り返し単位、および下記一般式 (3) で表される繰り返し単位を含む共重合体と、イミド化剤とを反応させてグルタリイミド樹脂を得る工程、前記グルタリイミド樹脂を含むグルタリイミド樹脂組成物を射出成形して射出成形体を得る工程、および前記射出成形体をアニール処理する工程を含む。

[化4]



(但し、前記一般式 (2) において、 R^4 および R^5 は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数 1 ～ 8 のアルキル基を示し、 R^6 は、炭素数 1 ～ 18 のアルキル基、炭素数 3 ～ 12 のシクロアルキル基、または炭素数 6 ～ 10 のアリール基を示す。)

[化5]



(但し、前記一般式(3)において、 R^7 は、水素原子または炭素数1～8のアルキル基を示し、 R^8 は、炭素数6～10のアリール基を示す。)

発明の効果

[0008] 本発明によれば、射出成形後の成形初期の位相差が低く、かつ位相差の経時的な増加が抑制された光学部材を提供することができる。

また、本発明の製造方法によれば、射出成形により、成形初期の位相差が低く、かつ位相差の経時的な増加が抑制された光学部材を製造することができる。

図面の簡単な説明

[0009] [図1]光学レンズの模式的正面図である。

[図2]同模式的背面図である。

[図3]同模式的側面図である。

[図4]車載ディスプレイの模式的正面図である。

[図5]同模式的背面図である。

[図6]同「」方向の模式的断面図である。

発明を実施するための形態

[0010] 本発明の発明者らは、射出成形した光学部材などの経時的位相差の増加を抑制するために鋭意検討を重ねた。その結果、下記一般式(1)～(3)の特定の繰り返し単位を含み、ゼロに近い配向複屈折および光弾性定数を有し、かつガラス転移温度が125℃以上のグルタリイミド樹脂を用いることで、光学部材の成形初期の位相差が低く、かつ位相差の経時的な増加が抑制されることを見出した。このような効果は、厚みが厚い、厚みが不均一、等方

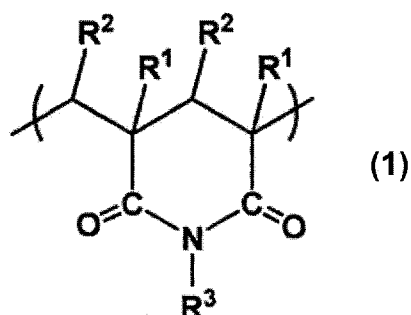
性がない、および曲面を有するなどの応力を発生しやすい形状を有する光学部材の場合に特に顕著である。

特に、（メタ）アクリル酸エステル系単量体と芳香族ビニル系単量体との共重合体をモノメチルアミン、アンモニアなどのイミド化剤と反応させることで得られた、ゼロに近い配向複屈折および光弾性定数を有し、かつガラス転移温度が125℃以上のグルタリイミド樹脂を射出成形して得られた光学部材は、例えば厚みが厚い、厚みが不均一、等方性がない、および曲面を有するなどの応力を発生しやすい形状を有する場合でも、成形初期の位相差が低く、かつ位相差の経時的増加が抑制されることを見出した。ここで、「曲面」を有するとは、光学部材の画像表示面に凹部、凸部などの曲面部が存在することを意味する。

[0011] （光学部材）

グルタリイミド樹脂は、下記一般式（1）～（3）で表される特定の繰り返し単位を含む。一般式（2）で表される繰り返し単位は、（メタ）アクリル酸エステル系単量体由来の単位であり、一般式（3）で表される繰り返し単位は、芳香族ビニル系単量体由来の単位である。一般式（1）で表される繰り返し単位は、グルタリイミド単位であり、（メタ）アクリル酸エステル系単量体由来のカルボニル基がイミド化されたイミドカルボニル基を有する。グルタリイミド樹脂がこのような繰り返し単位を有することで、配向複屈折および光弾性定数がゼロに近づくとともに、耐熱性が高まる。

[0012] [化6]

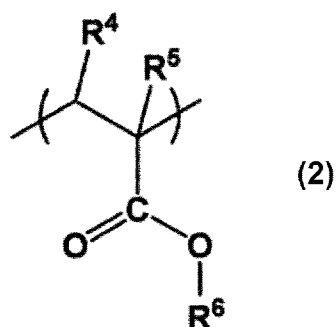


[0013] 一般式（1）において、R¹およびR²は、それぞれ独立に、水素原子また

は炭素数 1 ～ 8 のアルキル基を示し、 R^3 は、水素原子、炭素数 1 ～ 18 のアルキル基、炭素数 3 ～ 12 のシクロアルキル基、または炭素数 6 ～ 10 のアリール基を示す。一般式 (1) において、 R^1 および R^2 が、それぞれ独立に、水素原子またはメチル基であり、 R^3 が、水素原子、メチル基、またはシクロヘキシル基であることが好ましく、 R^1 がメチル基であり、 R^2 が水素原子であり、 R^3 が水素原子またはメチル基であることがより好ましい。

[0014] 一般式 (1) で表される繰り返し単位は、単一の種類でもよく、 R^1 、 R^2 、 R^3 が異なる複数の種類を含んでもよい。

[0015] [化7]



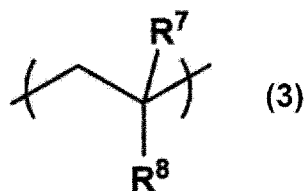
[0016] 一般式 (2) において、 R^4 および R^5 は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数 1 ～ 8 のアルキル基を示し、 R^6 は、炭素数 1 ～ 18 のアルキル基、炭素数 3 ～ 12 のシクロアルキル基、または炭素数 6 ～ 10 のアリール基を示す。

[0017] 一般式 (2) で表される繰り返し単位としては、(メタ)アクリル酸アルキルエステル系単量体由来の単位が挙げられる。(メタ)アクリル酸アルキルエステル系単量体としては、例えば、メチル(メタ)アクリレート、エチル(メタ)アクリレート、ブチル(メタ)アクリレート、イソブチル(メタ)アクリレート、*t*-ブチル(メタ)アクリレート、ベンジル(メタ)アクリレート、シクロヘキシル(メタ)アクリレートなどが挙げられる。本発明の 1 以上の実施形態において、「(メタ)アクリル酸」は、メタクリル酸であってもよく、アクリル酸であってもよい。また、「(メタ)アクリレート」は、メタクリレートであってもよく、アクリレートであってもよい。一般

式（２）で表される繰り返し単位としては、また、無水マレイン酸などの酸無水物またはそれらと炭素数１～２０の直鎖または分岐のアルコールとのハーフエステル；アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、無水マレイン酸、イタコン酸、無水イタコン酸、クロトン酸、フマル酸、シトラコン酸などの α ， β -エチレン性不飽和カルボン酸；などのイミド化可能な単量体由来の単位でもよい。これらの中でも、高い透明性、低い複屈折を有し、安価に入手しやすいという観点から、 R^4 が水素原子を示し、 R^5 がメチル基を示し、 R^6 がメチル基を示すこと、すなわちメタクリル酸メチル由来の単位が特に好ましい。

[0018] 一般式（２）で表される繰り返し単位は、単一の種類でもよく、 R^4 、 R^5 、 R^6 が異なる複数の種類を含んでもよい。

[0019] [化8]



[0020] 一般式（３）において、 R^7 は、水素原子または炭素数１～８のアルキル基を示し、 R^8 は、炭素数６～１０のアリール基を示す。一般式（３）で表される繰り返し単位としては、スチレン、 α -メチルスチレン、ビニルトルエン、ビニルナフタレンなどの芳香族ビニル系単量体由来の単位などが挙げられる。これらの中でも、熱安定性に優れ、配向複屈折を調節しやすいという観点から、 R^7 が水素原子を示し、 R^8 がフェニル基を示すこと、すなわちスチレン由来の単位が特に好ましい。

[0021] 一般式（３）で表される繰り返し単位は、単一の種類でもよく、 R^7 、 R^8 が異なる複数の種類を含んでもよい。

[0022] グルタルイミド樹脂において、一般式（２）で表される繰り返し単位が、メタクリル酸メチル由来の単位であり、一般式（３）で表される繰り返し単位が、スチレン由来の単位であり、一般式（１）で表される繰り返し単位が

、グルタリイミド単位であり、メタクリル酸メチル由来のカルボニル基がイミド化されたイミドカルボニル基を有することが好ましい。グルタリイミド樹脂がこのような繰り返し単位を有することで、配向複屈折および光弾性定数がよりゼロに近づくとともに、耐熱性も向上しやすい。

[0023] グルタリイミド樹脂は、配向複屈折が -0.5×10^{-3} 以上 0.5×10^{-3} 以下であり、実質的に配向複屈折を有さない。配向複屈折が上述した範囲外の場合、グルタリイミド樹脂を射出成形して得られた光学部材の位相差が増加しやすくなる。配向複屈折は、 -0.2×10^{-3} 以上 0.2×10^{-3} 以下であることが好ましく、 -0.1×10^{-3} 以上 0.2×10^{-3} 以下であることがより好ましい。

[0024] 本明細書において、特に断りのない限り、「配向複屈折」とは、グルタリイミド樹脂のガラス転移温度より 5°C 高い温度で、 100% 延伸した場合に発現する複屈折を意味する。配向複屈折 (Δn_{or}) は、具体的には、 $\Delta n_{or} = n_x - n_y = Re/d$ で定義される。 n_x は、試験片の延伸軸 (x 軸) 方向の屈折率を意味し、 n_y は、試験片の延伸軸と試験片面内において直交する軸 (y 軸) 方向の屈折率を意味し、 Re は試験片の面内位相差を意味し、 d は試験片の厚みを意味する。本発明の1以上の実施態様において、配向複屈折 (Δn_{or}) は、後述するとおり、複屈折計で測定することができる。

[0025] グルタリイミド樹脂は、光弾性定数が $-3.0 \times 10^{-12} \text{Pa}^{-1}$ 以上 $3.0 \times 10^{-12} \text{Pa}^{-1}$ 以下であり、実質的に光弾性定数はゼロに近い。光弾性定数が上述した範囲外の場合、グルタリイミド樹脂を射出成形して得られた光学部材の位相差が経時的に増加しやすくなる。光弾性定数は、 $-2.0 \times 10^{-12} \text{Pa}^{-1}$ 以上 $2.0 \times 10^{-12} \text{Pa}^{-1}$ 以下であることが好ましく、 $-1.5 \times 10^{-12} \text{Pa}^{-1}$ 以上 $1.0 \times 10^{-12} \text{Pa}^{-1}$ 以下であることがより好ましい。

[0026] 光弾性係数とは、等方性の固体に外力を加えて応力 (ΔF) を起こさせると、一時的に光学異方性を呈し、複屈折 (Δn) を示すようになるが、その

応力と複屈折の比を光弾性係数（ c ）と呼び、 $c = \Delta n / \Delta F$ で示される。本発明の1以上の実施態様において、後述するとおり、光弾性係数はセナルモン法により、 $23 \pm 2^\circ\text{C}$ 、 $50 \pm 5\% \text{RH}$ （相対湿度）において、波長586.4 nmにて測定することができる。

[0027] グルタルイミド樹脂は、ガラス転移温度が 125°C 以上であり、 130°C 以上であることが好ましく、 135°C 以上であることがより好ましく、 140°C 以上であることがさらに好ましく、 145°C 以上であることが特に好ましい。ガラス転移温度が上述した範囲内であると、耐熱性が高く、グルタルイミド樹脂を射出成形して得られた光学部材は、ゆがみなどが生じにくく、安定した光学的特性が得られやすい。

[0028] グルタルイミド樹脂は、耐熱性に優れ、安定した光学的特性を有する光学部材を得る観点から、5%重量減少温度が 350°C 以上であることが好ましく、 365°C 以上であることがより好ましく、 375°C 以上であることがさらに好ましい。本発明の1以上の実施態様において、5%重量減少温度は、熱重量分析（TGA）にて測定する。

[0029] グルタルイミド樹脂は、イミド化率が40%以上70%以下であることが好ましく、45%以上65%以下であることがより好ましく、50%以上65%以下であることがさらに好ましく、50%以上60%以下であることが特に好ましい。イミド化率が上述した範囲内であると、グルタルイミド樹脂を射出成形して得られた光学部材の成形初期の位相差が低く、かつ位相差の経時的な増加を抑制しやすく、耐熱性、透明性および加工性にも優れる。

[0030] グルタルイミド樹脂は、光学部材の吸湿を効果的に抑制する観点から、上記一般式（1）において、 R^3 がメチル基であることが好ましい。このようなグルタルイミド樹脂は、後述するイミド化剤としてモノメチルアミンを使用することにより得ることができる。この場合、グルタルイミド樹脂のイミド化率は、45%以上65%以下であることがより好ましく、50%以上60%以下であることがさらに好ましい。イミド化率が上述した範囲内であると、グルタルイミド樹脂を射出成形して得られた光学部材の成形初期の位相差

が低く、かつ位相差の経時的な増加を抑制しやすく、透明性および加工性にも優れる。

[0031] グルタリイミド樹脂は、光学部材の耐熱性をより高める観点から、上記一般式（１）において、 R^3 が水素原子である繰り返し単位と、 R^3 がメチル基である繰り返し単位とを含むこともまた好ましい。このようなグルタリイミド樹脂は、後述するイミド化剤としてアンモニアを使用することにより得ることができる。この場合、グルタリイミド樹脂のイミド化率は、４０％以上７０％以下であることがより好ましく、５０％以上６５％以下であることがさらに好ましい。イミド化率が上述した範囲内であると、グルタリイミド樹脂を射出成形して得られた光学部材の成形初期の位相差が低く、かつ位相差の経時的な増加を抑制しやすく、耐熱性、透明性および加工性にも優れる。

[0032] グルタリイミド樹脂は、耐熱性および透明性の観点から、一般式（１）で表される繰り返し単位を３０重量％以上含むことが好ましく、３０重量％以上６０重量％以下含むことがより好ましく、３５重量％以上５５重量％以下含むことがさらに好ましい。

[0033] グルタリイミド樹脂は、耐熱性および透明性の観点から、一般式（２）で表される繰り返し単位を６０重量％以下含むことが好ましく、２５重量％以上６０重量％以下含むことがより好ましく、３０重量％以上５５重量％以下含むことがさらに好ましい。

[0034] グルタリイミド樹脂は、光弾性係数、耐熱性、および機械的強度の観点から、一般式（３）で表される繰り返し単位を１０重量％以上含むことが好ましく、１０重量％以上２５重量％以下含むことがより好ましく、１０重量％以上２０重量％以下含むことがさらに好ましい。

[0035] グルタリイミド樹脂は、本発明の目的を阻害しない範囲内で、上記一般式（１）～（３）で表される繰り返し単位に加えて、他の単位をさらに含んでもよいが、他の単位の含有量は、２０重量％以下であることが好ましく、１０重量％以下であることがより好ましく、５重量％以下であることがさらに好ましい。

[0036] 他の単位としては、例えば、アクリルアミド、メタクリルアミドなどのアミド系単量体由来の単位；アクリロニトリル、メタクリロニトリルなどのニトリル系単量体由来の単位；マレイミド、N-メチルマレイミド、N-フェニルマレイミド、N-シクロヘキシルマレイミドなどのマレイミド系単量体由来の単位；などが挙げられる。これらの他の単位は、グルタリイミド樹脂中に、直接共重合されてもよいし、グラフト共重合されてもよい。

[0037] グルタリイミド樹脂は、特に限定されないが、重量平均分子量（Mw）が10000以上500000以下であることが好ましく、50000以上300000以下であることがより好ましく、50000以上200000以下であることがさらに好ましく、50000以上150000以下が特に好ましい。上記範囲内であれば、成形加工性および成形体の機械的強度が良好になるとともに、グルタリイミド樹脂を射出成形して得られた光学部材の位相差が低くなりやすい。

[0038] 本発明の1以上の実施形態の光学部材は、特に限定されず、例えば、光学レンズ、光学カバーレンズ、液晶ディスプレイ、マイクロディスプレイ、液晶用導光板、光ファイバ、マイクロレンズアレイ、屈折率分布型レンズ、フレネルレンズ、プリズム、フレネルロム波長板、偏光ビームスプリッターなどが挙げられる。特に、高い画像品質が求められるVRレンズおよびARレンズを始めとする光学レンズ、および車載用ディスプレイなどのディスプレイに好適に適用することができる。特に、グルタリイミド樹脂がスチレン由来の繰り返し単位を有することで、屈折率が高くなり、高屈折率が求められる光学レンズに好適に用いることができる。

[0039] 光学レンズとしては、例えば、球面レンズ、非球面レンズ、両凸レンズ、平凸レンズ、凸メニスカレンズ、両凹レンズ、平凹レンズ、凹メニスカレンズなどが挙げられる。

[0040] 上記光学部材を用いた製品としては、例えば、ヘッドマウントディスプレイ、ARスマートグラス、スマートフォン、カメラ、プロジェクター、光コネクタ、CDプレイヤー、DVDプレイヤー、MDプレイヤー、監視カメ

ラ、光スイッチ、自動車ヘッドライト、自動車テールランプ、ヘッドアップディスプレイ、自動車メーターカバー、センターインフォメーションディスプレイ、カーナビゲーション装置、自動車用光学センサー、レーザー発振装置、フォトリソグラフィ装置、3Dホログラムディスプレイ、生体認証システム、量子暗号通信システム、光演算システム、半導体製造装置、人工衛星、望遠鏡、眼鏡、コンタクトレンズ、内視鏡用レンズ、道路透光板、ペーガラス用レンズ、照明用レンズ、照明カバーなどが挙げられる。

[0041] 光学部材の形状は、特に限定されず、用途などに応じて適宜に設定することができる。本発明の1以上の実施形態において、光学部材は、応力を受けやすい形状でもよい。応力を発生しやすい形状として、例えば、厚みが厚い形状、厚みが不均一な形状、等方性がない形状、曲面を有する形状などが挙げられる。このような応力を受けやすい形状を有する場合でも、本発明の1以上の実施形態の光学部材は、成形初期の位相差が低く、かつ位相差の経時的な増加が抑制される。

[0042] 光学部材の位相差の平均値が20nm以下であり、15nm以下であることが好ましく、10nm以下であることがより好ましく、5nm以下であることがさらに好ましい。これにより、光学部材の画像品質が向上する。本発明の1以上の実施形態において、「位相差の平均値」とは、光学部材の画像表示面における位相差の面積平均値を言う。本発明の1以上の実施形態において、「位相差の平均値」とは、後述するとおりに測定することができる。

[0043] 光学部材は、画像品質の観点から、ゲート部の位相差が30nm以下であることが好ましく、25nm以下であることがより好ましく、20nm以下であることがさらに好ましく、15nm以下であることが特に好ましい。射出成形体において、通常、ゲート周辺部において位相差が高くなる傾向があるが、本発明の1以上の実施形態にでは、上述した配向複屈折が0に近似するグルタリイミド樹脂を射出成形したことで、ゲート部の位相差も低くなりやすい。本発明の1以上の実施形態において、ゲート部の位相差とは、後述するとおりに測定することができる。

- [0044] 光学部材の厚みは、特に限定されず、用途などに応じて適宜に設定することができる。光学レンズの場合、例えば、0.01mm以上100mm以下であってもよく、0.1mm以上50mm以下であってもよく、0.5mm以上30mm以下であってもよく、1mm以上20mm以下であってもよい。
- [0045] 光学部材の曲率半径は、特に限定されず、用途などに応じて適宜に設定することができる。光学レンズの場合、例えば、曲率半径は、0.1mm以上10000mm以下であってもよく、1mm以上500mm以下であってもよい。光学部材がディスプレイの場合、1mm以上50000mm以下であってもよく、10mm以上10000mm以下であってもよく、10mm以上5000mm以下であってもよい。
- [0046] 光学部材は、透明性に優れる観点から、全光線透過率が80%以上であることが好ましく、より好ましくは85%以上であり、さらに好ましくは90%以上である。また、透明性に優れる観点から、ヘイズは2.0%以下であることが好ましく、より好ましくは1.5%以下であり、さらに好ましくは1.0%以下である。本発明の1以上の実施形態において、全光線透過率は、後述するとおりに測定することができる。
- [0047] 光学部材は、耐熱性が高く、熱変形しにくい観点から、荷重撓み温度が120℃以上であることが好ましく、125℃以上であることがより好ましく、130℃以上であることがさらに好ましく、135℃以上であることが特に好ましい。本発明の1以上の実施形態において、荷重撓み温度は、後述するとおりに測定することができる。
- [0048] 光学部材は、高温高湿下における長期耐久性に優れる観点から、温度85℃、相対湿度85%雰囲気下で1000時間放置した後の寸法変化率が0.50%以下であることが好ましく、0.45%以下であることがより好ましく、0.40%以下であることがさらに好ましい。本発明の1以上の実施形態において、寸法変化率は、後述するとおりに測定することができる。
- [0049] (光学部材の製造方法)

本発明の1以上の実施形態において、光学部材は、上記一般式(2)で表される繰り返し単位、および上記一般式(3)で表される繰り返し単位を含む共重合体(以下において、単に「(メタ)アクリル酸エステルー芳香族ビニル共重合体」とも記す)と、イミド化剤とを反応させ、得られたグルタルイミド樹脂を含む樹脂組成物を射出成形し、得られた射出成形体をアニール処理することで作製することができる。

[0050] (メタ)アクリル酸エステルー芳香族ビニル共重合体において、(メタ)アクリル酸エステル系単量体および芳香族ビニル系単量体としては、上述したものを適宜用いることができる。(メタ)アクリル酸エステルー芳香族ビニル共重合体としては、メタクリル酸メチル(単量体)由来の単位、スチレン(単量体)由来の単位(以下において、単に「スチレン単位」とも記す。)を含むメタクリル酸メチルスチレン共重合体を好適に用いることができる。

[0051] まず、(メタ)アクリル酸エステルー芳香族ビニル共重合体(以下において、原料樹脂とも記す)を、イミド化剤と反応させてイミド化することでグルタルイミド樹脂を得る。

[0052] 原料樹脂は、リニア(線状)ポリマー、ブロックポリマー、コアシェルポリマー、分岐ポリマー、ラダーポリマー、架橋ポリマーのいずれであってもよい。ブロックポリマーは、A-B型、A-B-A型、またはこれら以外のいずれのタイプのブロックポリマーであってもよい。コアシェルポリマーは、一層のコアおよび一層のシェルのみからなるものであってもよく、コアおよびシェルのそれぞれが二層以上の多層であってもよい。

[0053] 原料樹脂は、例えば、(メタ)アクリル酸エステル系単量体および芳香族ビニル系単量体を、乳化重合法、乳化ー懸濁重合法、懸濁重合法、イオン重合法、塊状重合法、溶液重合法などの重合法で共重合させることで製造することができる。不純物が少ない観点から、塊状重合法又は溶液重合法等の連続重合法が好ましい。重合時に、必要に応じて、重合開始剤、連鎖移動剤、重合溶剤などが用いられる。重合開始剤、連鎖移動剤、重合溶剤としては、

特に制限はなく、公知のものを使用することができる。

[0054] 原料樹脂の製造方法として、例えば、特開昭57-149311号公報、特開昭57-153009号公報、特開平10-152505号公報、特開2004-27191号公報、国際公開第2009/41693号などに記載された製造方法が例示されるが、これらに限定されるものではない。

[0055] メタクリル酸メチルースチレン共重合体などの原料樹脂は、特に限定されないが、重量平均分子量（Mw）が10000以上500000以下であることが好ましく、50000以上300000以下であることがより好ましく、50000以上200000以下であることがさらに好ましく、50000以上150000以下であることが特に好ましい。上記範囲内であれば、該原料樹脂をイミド化して得られたグルタリイミド樹脂の成形加工性および成形体の機械的強度が良好になるとともに、該グルタリイミド樹脂を射出成形して得られた光学部材の位相差が低くなりやすい。

[0056] メタクリル酸メチルースチレン共重合体などの原料樹脂は、スチレン単位などの一般式（3）で表される繰り返し単位を10mol%超18mol%以下含むことが好ましく、10mol%超15mol%以下含むことがより好ましい。スチレン単位の含有量が上述した範囲内であると、該原料樹脂をイミド化したグルタリイミド樹脂は、耐熱性が高くなるとともに、配向複屈折および光弾性係数がゼロに近似する。

[0057] イミド化剤としては、原料樹脂をイミド化して上記一般式（1）で表される繰り返し単位を形成可能なものであれば特に制限されない。イミド化剤としては、例えば、アンモニア；メチルアミン、エチルアミン、n-プロピルアミン、イソプロピルアミン、n-ブチルアミン、イソブチルアミン、tert-ブチルアミン、n-ヘキシルアミンなどのモノアルキルアミン；シクロヘキシルアミンなどのモノシクロアルキルアミン；アニリン、トルイジン、トリクロロアニリンなどのモノアールアミン；などが挙げられる。これらの中でも、グルタリイミド樹脂の配向複屈折および光弾性係数をゼロに近づける観点から、モノアルキルアミンおよびアンモニアが好ましく、モノメ

チルアミンおよびアンモニアがより好ましい。

- [0058] メタクリル酸メチルースチレン共重合体などの原料樹脂をモノアルキルアミンでイミド化したグルタリイミド樹脂は、耐吸水性に優れる。この場合、原料樹脂は、スチレン単位などの一般式（３）で表される繰り返し単位を 10 mol % 超 18 mol % 以下含むことが好ましく、10 mol % 超 15 mol % 以下含むことがより好ましく、10 mol % 超 13 mol % 以下含むことがさらに好ましい。
- [0059] メタクリル酸メチルースチレン共重合体などの原料樹脂をアンモニアでイミド化したグルタリイミド樹脂は、ガラス転移温度が高く、耐熱性により優れる。この場合、原料樹脂は、スチレン単位などの一般式（３）で表される繰り返し単位を 10 mol % 超 18 mol % 以下含むことが好ましく、12 mol % 以上 16 mol % 以下含むことがより好ましい。
- [0060] アンモニアとしては、アンモニア水を使用してもよい。アンモニア水の濃度は特に限定されないが、入手性および反応性を考慮すると 25 重量% 以上 35 重量% 以下が好ましい。
- [0061] イミド化工程において、イミド化剤の添加割合を調整することにより、得られるグルタリイミド樹脂における一般式（１）で表される繰り返し単位、一般式（２）で表される繰り返し単位、および一般式（３）で表される繰り返し単位の割合を調整することができる。
- [0062] イミド化剤は、光学部材の用途や要求される特性に応じて適宜調整することが可能であるが、例えば、耐熱性の観点から、メタクリル酸メチルースチレン共重合体などの原料樹脂 100 重量部に対して、0.5 重量部以上であることが好ましく、3 重量部以上であることがより好ましい。イミド化剤の上限は特に限定されないが、例えば、ハンドリングの容易さから、メタクリル酸メチルースチレン共重合体などの原料樹脂 100 重量部に対して、30 重量部以下であることが好ましく、20 重量部以下であることがより好ましい。
- [0063] イミド化工程においては、イミド化剤に加えて、必要に応じて、閉環促進

剤（触媒）を添加してもよい。

[0064] イミド化反応を実施するための方法は特に限定されず、従来公知の方法を用いることができる。例えば、押出機、または、バッチ式反応槽（圧力容器）を用いることでイミド化反応を進行させることができる。

[0065] 押出機は特に限定されるものではなく、例えば、単軸押出機、二軸押出機または多軸押出機などを用いることができる。中でも、二軸押出機を用いることが好ましい。二軸押出機によれば、原料樹脂とイミド化剤（閉環促進剤）を用いる場合は、イミド化剤および閉環促進剤）との混合を促進することができる。

[0066] 二軸押出機としては、例えば、非噛合い型同方向回転式、噛合い型同方向回転式、非噛合い型異方向回転式、噛合い型異方向回転式などが挙げられる。中でも、噛合い型同方向回転式が好ましい。噛合い型同方向回転式の二軸押出機は、高速回転可能であるため、原料樹脂とイミド化剤（閉環促進剤）を用いる場合は、イミド化剤および閉環促進剤）との混合を、より一層促進することができる。上記例示した押出機は、1種を単独で用いてもよいし、複数を直列に連結して用いてもよい。例えば、特開2008-273140号公報に記載のタンデム型反応押出機を用いることができる。

[0067] 押出機中でイミド化反応を行う場合は、例えば、メタクリル酸メチルースチレン共重合体などの原料樹脂を押出機の原料投入部から投入し、該樹脂を溶融させ、シリンダ内を充填させた後、添加ポンプを用いてイミド化剤を押出機中に注入することにより、押出機中でイミド化反応を進行させることができる。

[0068] この場合、押出機中での反応ゾーンの温度（樹脂温度）は、180℃以上270℃以下であることが好ましく、200℃以上250℃以下であることがより好ましい。反応ゾーンの温度が上述した範囲内であると、イミド化反応が進行しやすく、樹脂の分解も抑制することができ、得られたグルタリイミド樹脂を用いた光学部材の耐屈曲性が向上する。ここで、押出機中での反応ゾーンとは、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）までの間の領域をいう。

[0069] 押出機の反応ゾーン内での反応時間は、特に限定されず、イミド反応が進行すればよいが、例えば、10秒以上であってもよく、30秒以上であってもよい。

[0070] 押出機での樹脂圧力は、特に限定されないが、例えば、コストなどの観点から、大気圧以上50MPa以下であってもよく、1MPa以上30MPa以下であってもよい。

[0071] 押出機に代えて、例えば住友重機械工業株式会社製のバイボラックのような横型二軸反応装置やスーパーブレンドのような縦型二軸攪拌槽などの高粘度対応の反応装置も好適に用いることができる。

[0072] グルタルイミド樹脂をバッチ式反応槽（圧力容器）を用いて製造する場合、そのバッチ式反応槽の構造は特に限定されない。具体的には、原料樹脂を加熱により溶融させ、攪拌することができ、イミド化剤（閉環促進剤を用いる場合は、イミド化剤および閉環促進剤）を添加することができる構造を有していればよいが、攪拌効率が良好な構造を有するものであることが好ましい。このようなバッチ式反応槽によれば、反応の進行により樹脂粘度が上昇し、攪拌が不十分となることを防止することができる。このような構造を有するバッチ式反応槽としては、例えば、住友重機械工業株式会社製の攪拌槽マックスブレンドなどが挙げられる。

[0073] イミド化方法の具体例としては、例えば、特開2008-273140号公報、特開2008-274187号公報に記載の方法など、公知の方法が挙げられる。グルタルイミド樹脂を原料樹脂として、さらにイミド化剤と反応させる工程を繰り返してもよい。

[0074] グルタルイミド樹脂を製造するにあたっては、イミド化工程に加えて、エステル化剤で処理するエステル化工程を含むことができる。このエステル化工程によって、イミド化工程にて副生した、樹脂中に含まれるカルボキシ基を、エステル基に変換することができる。これにより、グルタルイミド樹脂の酸価を所望の範囲内に調整することができる。

[0075] グルタリイミド樹脂の酸価は特に限定されないが、 0.50 mmol/g 以下であることが好ましく、 0.45 mmol/g 以下であることがより好ましい。下限は特に制限されないが、実質的に 0 mmol/g であること（検出限界以下であること）が特に好ましい。酸価が上記範囲内であれば、耐熱性、機械物性、および成形加工性のバランスに優れたグルタリイミド樹脂を得ることができる。グルタリイミド樹脂の酸価は、グルタリイミド樹脂 0.3 g を塩化メチレン 37.5 mL に溶解し、さらにメタノール 37.5 mL を加えた後、 $0.1 \text{ mmol}\%$ の水酸化ナトリウム水溶液 5 mL とフェノールフタレインのエタノール溶液数滴を加えた後、 $0.1 \text{ mmol}\%$ の塩酸を用いて逆滴定を行い、中和に要する塩酸の量から求めることができる。

[0076] エステル化剤としては特に限定されず、例えば、ジメチルカーボネート、2,2-ジメトキシプロパン、ジメチルスルホキシド、トリエチルオルトホルメート、トリメチルオルトアセテート、トリメチルオルトホルメート、ジフェニルカーボネート、ジメチルサルフェート、メチルトルエンスルホネート、メチルトリフルオロメチルスルホネート、メチルアセテート、メタノール、エタノール、メチルイソシアネート、p-クロロフェニルイソシアネート、ジメチルカルボジイミド、ジメチルー α -ブチルシリルクロライド、イソプロペニルアセテート、ジメチルウレア、テトラメチルアンモニウムハイドロオキサイド、ジメチルジエトキシシラン、テトラ-N-ブトキシシラン、ジメチル（トリメチルシラン）フォスファイト、トリメチルフォスファイト、トリメチルフォスフェート、トリクレジルフォスフェート、ジアゾメタン、エチレンオキサイド、プロピレンオキサイド、シクロヘキセンオキサイド、2-エチルヘキシルグリシジルエーテル、フェニルグリシジルエーテル、ベンジルグリシジルエーテルなどが挙げられる。これらの中でも、コスト、反応性などの観点から、ジメチルカーボネートおよびトリメチルオルトアセテートが好ましく、コストの観点から、ジメチルカーボネートがより好ましい。

[0077] エステル化剤の使用量は特に限定されないが、メタクリル酸メチルースチ

レン共重合体などの原料樹脂 100 重量部に対して 12 重量部以下であってもよく、8 重量部以下であってもよい。エステル化剤の使用量が上記範囲内であれば、グルタリイミド樹脂の酸価を適切な範囲に調整できる。

[0078] エステル化剤に加え、触媒を併用することもできる。触媒の種類は特に限定されないが、例えば、トリメチルアミン、トリエチルアミン、トリブチルアミンなどの脂肪族 3 級アミンが挙げられる。これらの中でもコスト、反応性などの観点からトリエチルアミンが好ましい。

[0079] エステル化工程は、イミド化工程と同様、例えば、押出機またはバッチ式反応槽を用いることで進行させることができる。

[0080] エステル化工程は、エステル化剤を使用せずに、加熱処理のみによって実施することもできる。当該加熱処理は、押出機内で溶融樹脂を混練および分散することで達成することができる。エステル化工程として加熱処理のみを行う場合、イミド化工程にて副生した樹脂中のカルボキシ基同士の脱水反応、および／または樹脂中のカルボキシ基と樹脂中のアルキルエステル基との脱アルコール反応などにより、上記カルボキシ基の一部または全部を酸無水物基とすることができる。このとき、閉環促進剤（触媒）を使用することも可能である。

[0081] エステル化剤を用いたエステル化工程においても、並行して、加熱処理による酸無水物基化を進行させることが可能である。

[0082] イミド化工程およびエステル化工程において、押出機を使用する場合は、押出機に大気圧以下に減圧可能なベント口を装着することが好ましい。このような構成によれば、未反応のイミド化剤、エステル化剤、メタノールなどの副生物、または、モノマー類などを除去することができる。

[0083] また、グルタリイミド樹脂中の異物低減を目的として、押出機の最後にフィルターを設置することも可能である。フィルターの前にはグルタリイミド樹脂を昇圧するためにギアポンプを設置した方が好ましい。フィルターの種類としては、溶融樹脂からの異物除去が可能なステンレス製のリーフディスクフィルターを使用するのが好ましく、フィルターエレメントとしては、フ

アイバータイプ、パウダータイプ、あるいはそれらの複合タイプを使用するのが好ましい。

[0084] 次に、グルタリイミド樹脂を含むグルタリイミド樹脂組成物を射出成形して射出成形体を得る。通常、熱可塑性樹脂を射出成形または射出プレス形成して得られた成形体は、射出条件、金型形状、ゲート形状などによって配向や残留歪が生じ、配向複屈折が生じて位相差が高くなるが、本発明の1以上の実施形態においては、上記で得られたグルタリイミド樹脂を用いることで、形状や成形条件によらず、位相差が小さい射出成形体を得ることができる。

[0085] グルタリイミド樹脂組成物は、実質的にグルタリイミド樹脂のみからなるものでもよく、必要に応じて、本発明の目的を損なわない範囲で、グルタリイミド樹脂に加えて他の樹脂および添加剤などを含んでもよい。

[0086] 添加剤としては、例えば、酸化防止剤、熱安定剤、光安定剤、紫外線吸収剤、ラジカル捕捉剤などの耐候性安定剤；触媒、可塑剤、滑剤、帯電防止剤、着色剤、収縮防止剤、抗菌剤、脱臭剤；などが挙げられる。これらは、1種を単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせても用いてもよい。また、これらの添加剤は、予めグルタリイミド樹脂に添加して得られた混合物の状態で成形加工してもよく、グルタリイミド樹脂を成形加工する際に直接成形機に添加することも可能である。

[0087] 他の樹脂としては、例えば、架橋弾性体などが挙げられる。これにより、グルタリイミド樹脂の機械的強度を向上させることができる。架橋弾性体としては、ゴム状重合体からなるコア層とガラス状重合体（硬質重合体）からなるシェル層とを有するコアシェル型弾性体が好ましい。ゴム状重合体からなるコア層は、最内層あるいは中間層としてガラス状重合体からなる層を一層以上有していてもよい。

[0088] 射出成形は、一般的に公知の射出成形機などの装置を用いる成形方法であれば特に限定されない。射出成形機は、縦型でもよく、横型でもよい。射出成形では、一般に公知の成形技術を用いることもできる。射出成形は、成形

ひずみを低減する観点から、射出プレス成形であってもよい。所定の形状を有する金型を用いることで、所定の形状を有する射出成形体を得ることができる。

[0089] 光学部材は、形状、使用環境、用途などによっては、射出成形時に光学部材中に応力歪みが発生しやすい場合や外部応力をうけやすい場合がある。このような応力を発生しやすい形状として、例えば、厚みが厚い形状、厚みが不均一な形状、等方性がない形状、曲面を有する形状などが挙げられるが、本発明の1以上の実施形態では、上述したグルタリミド樹脂を用いることで、光学部材の位相差を低減しやすい。

[0090] 射出成形において、射出成形体の形状や寸法において成形条件を適宜決めればよい。例えば、シリンダ温度は、 190°C 以上 290°C 以下であってもよく、 210°C 以上 280°C 以下であってもよい。ノズル温度は、 230°C 以上 300°C 以下であってもよく、 240°C 以上 290°C 以下であってもよい。射出速度は、 1 mm/sec 以上 200 mm/sec 以下であってもよく、 3 mm/sec 以上 150 mm/sec 以下であってもよい。金型温度は、グルタリミド樹脂のガラス転移温度(T_g)より小さくすることがよく、 $T_g - 5^{\circ}\text{C}$ 以下であってもよく、 $T_g - 10^{\circ}\text{C}$ 以下であってもよい。冷却時間は、 10 sec 以上 400 sec 以下であってもよく、 30 sec 以上 300 sec 以下であってもよい。

[0091] 次に、射出成形体をアニーリング処理する。これにより、射出成形体の残留歪みを除去し、光学部材の位相差を低減することができる。アニーリング処理は、射出成形体を構成するグルタリミド樹脂の T_g 付近で行うことができる。アニーリング処理は、例えば、 $(T_g - 40^{\circ}\text{C})$ 以上 $(T_g - 5^{\circ}\text{C})$ 以下で行ってもよく、 $(T_g - 30^{\circ}\text{C})$ 以上 $(T_g - 10^{\circ}\text{C})$ 以下で行ってもよく、 $(T_g - 25^{\circ}\text{C})$ 以上 $(T_g - 15^{\circ}\text{C})$ 以下で行ってもよい。

[0092] 上記で得られた光学部材は、位相差（位相差の平均値）が低いとともに、温度 $23^{\circ}\text{C} \pm 2^{\circ}\text{C}$ 、相対湿度 $50\% \pm 5\%$ の条件下で長期間保管した場合でも、位相差の増加が少ない。光学部材は、温度 $23^{\circ}\text{C} \pm 2^{\circ}\text{C}$ 、相対湿度 50

%±5%の条件下で29日間放置した際の位相差の変化率は20%以下であることが好ましく、15%以下であることがより好ましく、10%以下であることがさらに好ましく、5%以下であることが特に好ましい。

実施例

[0093] 以下では、本発明を実施例に基づいてより具体的に説明する。なお、本発明は、下記の実施例に限定されない。以下で「部」および「%」は、特記ない限り、「重量部」および「重量%」を意味する。

[0094] まず、各種評価方法を説明する。

[0095] (平均分子量)

重量平均分子量 M_w と数平均分子量 M_n は、サイズ排除クロマトグラフィー (SEC) を用いた標準ポリスチレン換算法により算出した。測定装置としては、Waters社製GPCシステムを用いて、クロロホルムを移動相とし、カラム温度35℃の条件にて、樹脂濃度が0.04 g/3.5 mLである試料溶液を用いて測定した。

[0096] (イミド化率)

イミド化率の算出は、IR (赤外分光光度計) を用いて下記の通り行った。対象物のペレットを塩化メチレンに溶解し、その溶液について、SensIR Technologies社製TravelIRを用いて、室温(23±2℃)にてIRスペクトルを測定した。得られたIRスペクトルより、1720 cm^{-1} のエステルカルボニル基に帰属する吸収強度 (Abs ester) と、1660 cm^{-1} のイミドカルボニル基に帰属する吸収強度 (Abs imide) との比から、エステルカルボニル基とイミドカルボニル基のモル吸光係数を同一とみなし、イミド化率 (Im% (IR)) を求めた。ここで、「イミド化率」とは、全カルボニル基中のイミドカルボニル基の占める割合をいう。

[0097] (メタクリル酸メチルースチレン共重合体中のスチレン単位の含有量)

$^1\text{H-NMR}$ BRUKER Avance III (400 MHz) を用いて、樹脂30 mgを重クロロホルムに溶解し、樹脂の $^1\text{H-NMR}$ 測定を行っ

た。2.7～3.1 ppm付近と3.4～3.7 ppm付近の2つのピークからなるメタクリル酸メチルの OCH_3 プロトン由来のピークの面積を3で割った値Eと、6.8～7.3 ppm付近のスチレンの芳香環由来のピークの面積を5で割った値Fより下記式で求めた。

$$\text{スチレン単位の含有量 (mol\%)} = (F / (E + F)) \times 100$$

[0098] (ガラス転移温度)

グルタリイミド樹脂5 mgを用いて、示差走査熱量計(DSC、株式会社日立ハイテクサイエンス製、示差走査熱量計DSC7020)を用いて、窒素雰囲気下、昇温速度 $10^\circ\text{C}/\text{min}$ で測定し、中点法により決定した。

[0099] (5%重量減少温度)

示差熱重量同時測定装置(TG/DTA、株式会社日立ハイテクサイエンス製、STA7200)を用いて、グルタリイミド樹脂5 mgを、窒素雰囲気下、室温から $10^\circ\text{C}/\text{min}$ で昇温させ、グルタリイミド樹脂の熱減量(重量%)が5%になるときの温度を測定した。

[0100] (配向複屈折)

グルタリイミド樹脂を、熱風乾燥機を用いて 90°C で6時間乾燥した後、株式会社神藤金属工業所製の70Tプレス成形機(LM-L211A)を用いて、グルタリイミド樹脂のガラス転移温度より 60°C 高い温度で、0.5 mm厚みのシートを作製した。得られたシートから、幅20 mm、長さ100 mmのサンプルを切り出し、延伸倍率100%で、ガラス転移温度より 5°C 高い温度で、延伸フィルムを作成した。この1軸2倍延伸フィルムのTD方向の中央部から40 mm×20 mmの試験片を切り出した。この試験片を、自動複屈折計(王子計測機器株式会社製「KOBRA-WR」)を用いて、温度 $23 \pm 2^\circ\text{C}$ 、相対湿度 $50 \pm 5\%$ において、波長590 nm、入射角 40° で面内位相差 R_e を測定した。面内位相差 R_e を、温度 $23^\circ\text{C} \pm 2^\circ\text{C}$ 、相対湿度 $50\% \pm 5\%$ において、株式会社ミットヨ製デジマティックインジケーターを用いて測定した試験片の厚みで割った値を配向複屈折とした。

[0101] (光弾性係数)

配向複屈折測定の際に作成したシートから2 cm×9 cmの短冊状に試験片を切り出した。この試験片を用い、自動複屈折計（王子計測機器株式会社製「KOBRA-WR」）を用いて、温度 $23 \pm 2^{\circ}\text{C}$ 、相対湿度 $50 \pm 5\%$ において、波長586.4 nmにて複屈折率を測定した。複屈折率の測定は、シート的一方を固定し、他方は無荷重および500 gの荷重をかけた状態で行い、得られた結果から、単位応力による複屈折率の変化量を算出し、光弾性係数とした。

[0102] （全光線透過率）

試験片1を用いて、スガ試験機株式会社製ヘイズメーターHZ-V3を用いて、温度 $23^{\circ}\text{C} \pm 2^{\circ}\text{C}$ 、相対湿度 $50\% \pm 5\%$ において、JIS K 7361に準じて全光線透過率を測定した。

[0103] （ヘイズ）

試験片1を用い、スガ試験機株式会社製ヘイズメーターHZ-V3にて、温度 $23^{\circ}\text{C} \pm 2^{\circ}\text{C}$ 、相対湿度 $50\% \pm 5\%$ において、JIS K 7136に準じてヘイズを測定した。

[0104] （荷重撓み温度）

試験片3を用い、株式会社安田精機製作所製ヒートディストーションテスター148-HDPCにて、ISO 75規格に準拠して、荷重1.8 MPaで荷重撓み温度を測定した。

[0105] （高温高湿による寸法変化率）

試験片2を温度 $23^{\circ}\text{C} \pm 2^{\circ}\text{C}$ 、相対湿度 $50\% \pm 5\%$ で1日放置した。次に、小型恒温恒湿器（ESPEC社製、PL-3KP）を用いて、温度 85°C 、相対湿度85%雰囲気下で1000時間放置した。株式会社トプコン製測定顕微鏡（TMM-130D）を用いて、高温高湿条件下に放置前後の試験片の樹脂流動方向（MD）の寸法を測定し、寸法変化率（%）＝放置後の寸法／放置前の寸法×100を算出した。

[0106] （位相差）

Photonic Lattice社製二次元複屈折評価システムWPA

−200−Lを用いて、常温（23℃±2℃）において、測定波長543nmにて、画像表示面の位相差を測定し、位相差の平均値を算出した。具体的には、光学部材の画像表示面を位相差マッピングしてデジタルイメージを取得し、対象視野をピクセルに分割して、各ピクセルの位相差絶対値から数平均値を求めた。なお、位相差は、光学部材を温度23℃±2℃、相対湿度50%±5%で24時間放置した後に測定した。これは成形初期の位相差となる。また、光学部材が光学レンズの場合、図2に示すように、ゲート位置、レンズの半径をR、光学レンズの中心から距離をrとし、 $r=0$ 、 $r=1/2R$ 、 $r=4/5R$ の位置における位相差を測定した。

[0107] （経時的な位相差の変化率）

光学部材（光学レンズ）を、温度23℃±2℃、相対湿度50%±5%で29日間放置した後の画像表示面の位相差を測定し、位相差の平均値を算出した。具体的には、光学部材の画像表示面を位相差マッピングしてデジタルイメージを取得し、対象視野をピクセルに分割して、各ピクセルの位相差絶対値から数平均値を求めた。その後、成形初期の位相差P0および29日間放置後の位相差P1に基づいて、下記式で経時的な位相差の変化率を算出した。

$$\text{位相差の変化率（\%）} = (P1 - P0) / P0 \times 100$$

[0108] （吸水量）

光学部材（光学レンズ）の成形初期の重量（W0）および29日間放置後の重量（W1）を測定し、下記式より吸水率を測定した。

$$\text{吸水率（\%）} = (W1 - W0) / W0 \times 100$$

[0109] （実施例1）

＜グルタリイミド樹脂の製造＞

40mmφ完全噛合型同方向回転二軸押出反応機を用いて、樹脂を製造した。押出機に関しては直径40mm、L/D（押出機の長さLと直径Dの比）が90の同方向噛合型二軸押出機を使用し、定重量フィーダー（クボタ株式会社製CE-T-2E）を用いて、押出機原料供給口に原料樹脂を投入し

た。

原料樹脂としてメタクリル酸メチルースチレン共重合体 (M_w : 9.5万、 M_n : 5.0万、スチレン単位11mol%、連続重合法) を使用し、イミド化剤としてモノメチルアミン (以下において、「mMA」とも記す) を用いて、グルタリイミド樹脂を製造した。この際、押出機の各温調ゾーンの設定温度を240℃、スクリー回転数77rpm、メタクリル酸メチルースチレン共重合体を20kg/hで供給し、モノメチルアミンの供給量はメタクリル酸メチルースチレン共重合体100部に対して8部とした。ホッパーからメタクリル酸メチルースチレン共重合体を投入し、ニーディングブロックによって樹脂を溶融、充満させた後、ノズルからモノメチルアミンを注入した。反応ゾーンの末端にはシールリングを入れて樹脂を充満させた。反応後の副生成物および過剰のモノメチルアミンをベント口の圧力を-0.09MPaに減圧して脱揮した。押出機から吐出された樹脂(ストランド)は、冷却水槽で冷却した後、ペレタイザーでカッティングしペレットとした。ここで、押出機の内部の圧力確認、または押出変動を見極めるために、押出機出口に樹脂圧力計を設けた。

<射出成形>

上記で得られたグルタリイミド樹脂(ペレット)を、熱風乾燥機を用いて、温度90℃で6時間乾燥した後、下記表1に示す成形加工条件で射出成形を行い、各種試験片、光学レンズおよびディスプレイを作製した。射出成形体としては、日精樹脂工業株式会社製80トン射出成形機「FN-1000」を用いた。光学レンズは、図1～3に示す両面凸形レンズであり、レンズ半径Rは48mm、中心厚み(最大厚み)は9mm、端厚み(最小厚み)は1mm、上面曲率は0.0086mm、上面曲率半径は116.45mm、下面曲率は0.017mm、下面曲率半径は58.17mmである。車載ディスプレイは、図4～6に示す形状を有する。

<アニーリング処理>

射出成形体が試験片2、試験片3、または光学レンズである場合、グルタ

ルイミド樹脂のガラス転移温度より 15℃低い温度で4時間アニール処理した。

射出成形体が車載ディスプレイの場合、グルタルイミド樹脂のガラス転移温度より 20℃低い温度で4時間アニール処理した。

[0110] (実施例2)

＜グルタルイミド樹脂の製造＞

モノメチルアミンの供給量を原料樹脂 100部に対して 10部とした以外は、実施例1と同様にグルタルイミド樹脂を製造した。

＜射出成形およびアニーリング処理＞

上記で得られたグルタルイミド樹脂（ペレット）を用いた以外は、実施例1と同様に射出成形およびアニーリング処理を行った。

[0111] (実施例3)

＜グルタルイミド樹脂の製造＞

原料樹脂としてメタクリル酸メチルースチレン共重合体（ M_w ：9.5万、 M_n ：5.0万、スチレン単位 13mol%、連続重合法）を使用し、モノメチルアミンの供給量を原料樹脂 100部に対して 12部とした以外は、実施例1と同様にグルタルイミド樹脂を製造した。

＜射出成形およびアニーリング処理＞

上記で得られたグルタルイミド樹脂（ペレット）を用いた以外は、実施例1と同様に射出成形およびアニーリング処理を行った。

[0112] (実施例4)

＜グルタルイミド樹脂の製造＞

イミド化剤として、28重量%のアンモニア水（以下において、「 NH_3 水」とも記す）を用いてグルタルイミド樹脂を製造した。この際、押出機最高温部温度を 280℃、スクリー回転数は 100rpm、原料樹脂の供給量は 10kg/h、アンモニア水の供給量は原料樹脂 100部に対して 20.0部とした。上記以外は、実施例3と同様に行った。

＜射出成形およびアニーリング処理＞

上記で得られたグルタリイミド樹脂（ペレット）を用い、射出成形を下記表 1 に示す条件で行った以外は、実施例 1 と同様に射出成形およびアニーリング処理を行った。

[0113] （実施例 5）

＜グルタリイミド樹脂の製造＞

原料樹脂としてメタクリル酸メチルスチレン共重合体（ M_w ：9.5 万、 M_n ：5.0 万、スチレン単位 15 mol %、連続重合法）を使用した以外は、実施例 4 と同様にグルタリイミド樹脂を製造した。

＜射出成形およびアニーリング処理＞

上記で得られたグルタリイミド樹脂（ペレット）を用いた以外は、実施例 4 と同様に射出成形およびアニーリング処理を行った。

[0114] （比較例 1）

＜グルタリイミド樹脂の製造＞

押出反応機を 2 台直列に並べたタンデム型反応押出機を用いて、樹脂を製造した。タンデム型反応押出機に関しては、第 1 押出機および第 2 押出機のいずれも直径 75 mm、 L/D （押出機の長さ L と直径 D の比）が 7.4 の同方向噛合型二軸押出機を使用し、定重量フィーダー（クボタ株式会社製）を用いて、第 1 押出機原料供給口に原料樹脂を供給した。第 1 押出機、第 2 押出機における各ベントの減圧度は -0.095 MPa とした。直径 38 mm、長さ 2 m の配管で第 1 押出機と第 2 押出機を接続し、第 1 押出機の樹脂吐出口と第 2 押出機の原料供給口を接続する部品内圧力制御機構には定流圧力弁を用いた。第 2 押出機から吐出された樹脂（ストランド）は、冷却コンベアで冷却した後、ペレタイザーでカッティングしペレットとした。ここで、第 1 押出機の樹脂の吐出口と第 2 押出機の原料供給口とを接続する部品内圧力調整、または押出変動を見極めるために、第 1 押出機出口、第 1 押出機と第 2 押出機との接続部品中央部、第 2 押出機出口に樹脂圧力計を設けた。

第 1 押出機に関して、原料樹脂としてポリメタクリル酸メチル（ M_w ：10.5 万、アクリル酸エステル単位 0.1 %未満、連続重合法）を使用し、

イミド化剤として、モノメチルアミンを用いてイミド樹脂中間体を製造した。この際、押出機最高温部温度を280℃、スクリー回転数は55rpm、原料樹脂の供給量は450kg/時間、モノメチルアミンの添加量は原料樹脂100部に対して2.0部とした。定流圧弁は第2押出機原料供給口直前に設置し、第1押出機モノメチルアミン圧入部圧力を8MPaになるように調整した。

第2押出機において、リアベントおよび真空ベントで残存しているイミド化反応試剤および副生成物を脱揮したのち、エステル化剤として炭酸ジメチルとトリエチルアミンとの混合溶液を添加し、イミド樹脂を製造した。この際、押出機各バレル温度を260℃、スクリー回転数は55rpm、炭酸ジメチルの添加量は原料樹脂100部に対して3.2部、トリエチルアミンの添加量は原料樹脂100部に対して0.8部とした。さらに、ベントでエステル化剤を除去した後、ストランドダイから押し出し、水槽で冷却した後、ペレタイザーでペレット化することで、グルタルイミド樹脂を得た。

＜射出成形およびアニーリング処理＞

上記で得られたグルタルイミド樹脂（ペレット）を用いた以外は、実施例1と同様に射出成形およびアニーリング処理を行った。

[0115] （比較例2）

＜グルタルイミド樹脂の製造＞

原料樹脂としてメタクリル酸メチルースチレン共重合体（Mw：10.5万、Mn：5.5万、スチレン単位5mol%、連続重合法）を使用し、モノメチルアミンの供給量を原料樹脂100部に対して8部とした以外は、実施例1と同様にグルタルイミド樹脂を製造した。

＜射出成形およびアニーリング処理＞

上記で得られたグルタルイミド樹脂（ペレット）を用いた以外は、実施例1と同様に射出成形およびアニーリング処理を行った。

[0116] （比較例3）

＜グルタルイミド樹脂の製造＞

原料樹脂としてメタクリル酸メチルスチレン共重合体（ M_w ：10.5万、 M_n ：5.5万、スチレン単位20mol%、連続重合法）を使用し、モノメチルアミンの供給量を原料樹脂100部に対して13部とした以外は、実施例1と同様にグルタリミド樹脂を製造した。

＜射出成形およびアニーリング処理＞

上記で得られたグルタリミド樹脂（ペレット）を用いた以外は、実施例1と同様に射出成形およびアニーリング処理を行った。

[0117] （比較例4）

＜グルタリミド樹脂の製造＞

原料樹脂としてメタクリル酸メチルスチレン共重合体（ M_w ：10.5万、 M_n ：5.5万、スチレン単位20mol%、連続重合法）を使用した以外は、実施例4と同様にグルタリミド樹脂を製造した。

＜射出成形およびアニーリング処理＞

上記で得られたグルタリミド樹脂（ペレット）を用い、射出成形を下記表1に示す条件で行った以外は、実施例1と同様に射出成形およびアニーリング処理を行った。

[0118] 実施例および比較例において、グルタリミド樹脂および光学部材を上述した評価方法で評価し、その結果を下記表2および表3に示した。

[0119]

[表1]

	樹脂	シリンダー温度(°C)				金型温度 (°C)	射出速度 (mm/sec)	冷却時間 (sec)
		ノズル	H1	H2	H3	ホッパー下		
試験片1: 80mmx50mmx2mm(厚み)	実施例1~3	250	250	240	230	50	20	30
	比較例1~3	260	260	240	230	50	20	30
	実施例4~5	270	270	250	230	50	20	30
試験片2: 120mmx120mmx3mm(厚み)	比較例4	270	270	250	230	50	20	30
	実施例1~3	250	250	240	230	50	20	30
	比較例1~3	260	260	240	230	50	20	30
試験片3: 80mmx10mmx4mm(厚み)	実施例4~5	270	270	250	230	50	20	30
	比較例4	270	270	250	230	50	20	30
	実施例1~3	250	250	240	230	50	20	30
直径48mm光学レンズ	比較例1~3	260	260	240	230	50	20	30
	実施例1~5	270	270	250	230	50	20	30
	比較例1~3	260	260	240	230	50	10	100
車載ディスプレイ	比較例4	270	270	250	230	50	10	100
	実施例3、4 比較例3	260	260	240	230	50	20	30

[0120]

[表2]

項目		単位	実施例				
			1	2	3	4	5
イミド化剤		—	mMA	mMA	mMA	NH ₂ 水	NH ₂ 水
原料樹脂中のスチレン単位の含有量		mol%	11	11	13	13	15
ゲルタ ルイミ ド樹脂	イミド化率	mol%	50	55	60	55	60
	ガラス転移温度	°C	130.5	131.9	132.5	145.5	150.8
	5%重量減少温度	°C	378	379	382	385	386
	配向複屈折	×10 ⁻³	-0.03	0.14	0.07	-0.01	0.17
	光弾性定数	10 ⁻¹² Pa ⁻¹	-0.88	-0.10	0.01	-0.29	0.54
	全光線透過率	%	91.6	91.7	91.5	91.2	91.2
	ヘイズ	%	0.3	0.3	0.4	0.8	0.8
射出成 形体	光学レンズの吸水量		0.39	0.39	0.38	0.43	0.43
	光学レンズの位相 差 (成形初期)	全体平均値	2.4	2.5	2.3	2.3	2.8
		ゲート部	4.1	7.2	5.3	3.3	7.8
		r=0	0.7	0.8	0.6	0.7	0.8
		r=1/2R	1.2	1.5	0.9	0.9	1.1
		r=4/5R	2.8	2.6	2.5	2.6	2.9
	光学レンズの位相 差 (29日間経過後)	全体平均値	2.5	2.5	2.2	2.3	2.9
		ゲート部	4.2	7.0	5.1	3.5	8.5
		r=0	0.8	0.9	0.7	0.7	0.9
		r=1/2R	1.2	1.4	0.8	1.1	1.1
		r=4/5R	3.0	2.8	2.4	2.5	3.3
	光学レンズの位相 差の変化率 (29日間経過後 ／成形初期)	全体平均値	4.2	0.0	-4.3	0.0	3.6
		ゲート部	2.4	-2.8	-3.8	6.1	9.0
		r=0	14.3	12.5	16.7	0.0	12.5
		r=1/2R	0.0	-6.7	-11.1	22.2	0.0
		r=4/5R	7.1	7.7	-4.0	-3.8	13.8
	車載ディスプレイの位相差(成形初期)		—	—	3.5	2.8	—
	荷重撓み温度		124	125	125	136	137
	高温高湿試験後の寸法変化率		—	0.37	0.38	—	—

[0121]

[表3]

項目		単位	比較例				
イミド化剤			1	2	3	4	
原料樹脂中のスチレン単位の含有量		—	mMA	mMA	mMA	NH ₃ 水	
	イミド化率	mol%	0	5	20	20	
	ガラス転移温度	mol%	10	50	65	70	
	5%重量減少温度	°C	123.6	132.9	131.2	164.7	
	配向複屈折	°C	362	372	378	394	
	光弾性定数	$\times 10^{-3}$	-0.01	0.69	-0.61	0.63	
	全光線透過率	10^{-12}Pa^{-1}	-4.00	-1.96	-1.53	2.49	
射出成形体	ヘイズ	%	92.1	91.8	91.1	91.0	
	光学レンズの吸水量	%	0.5	0.3	0.7	1.0	
	光学レンズの位相差 (成形初期)	全体平均値	%	0.38	0.38	0.36	0.40
		ゲート部		2.4	7.3	6.2	7.8
		r=0	nm	3.5	69	58	67
		r=1/2R		0.8	1.8	1.5	2.1
	光学レンズの位相差 (29日間経過後)	r=4/5R		1.1	5.3	4.3	5.5
全体平均値			3.5	11	9.4	13	
ゲート部			9.5	9.8	7.8	10.2	
r=0		nm	11	75	62	74	
光学レンズの位相差 (29日間経過後／成形初期)	r=1/2R		0.8	2.4	1.6	2.6	
	r=4/5R		3.1	7.5	5.4	7.5	
	全体平均値		12	15	11	19	
	ゲート部		295.8	34.2	25.8	30.8	
	r=0	%	214.3	8.7	6.9	10.4	
	r=1/2R		0.0	33.3	6.7	23.8	
	r=4/5R		181.8	41.5	25.6	36.4	
車載ディスプレイの位相差(成形初期)	nm	242.9	36.4	17.0	46.2		
荷重構み温度	°C	2.7	35	—	—		
高温高湿試験後の寸法変化率	%	114	125	124	156		
		0.62	—	—	—		

[0122] 表2および表3から分かるように、実施例の場合、射出成形体は成形初期の位相差が低く、ゲート部の位相差も低い。さらに、長期間放置した後の位相差の増加が抑制されていた。

一方、スチレン単位を含まず、ガラス転移温度が125℃未満であり、光弾性係数の絶対値が $3.0 \times 10^{-12} \text{Pa}^{-1}$ より大きい比較例1の場合、射出成形体は成形初期の位相差が低いものの、長時間放置した際、位相差が大きく増加していた。また、光弾性係数の絶対値が大きく、配向複屈折の絶対値が 0.5×10^{-3} より大きい比較例2～4の場合、射出成形体はゲート部の

位相差が高く、成形初期の位相差が低いものの、長期間放置した際、位相差が大きく増加していた。

請求の範囲

[請求項1]

射出成形体で構成される光学部材であって、

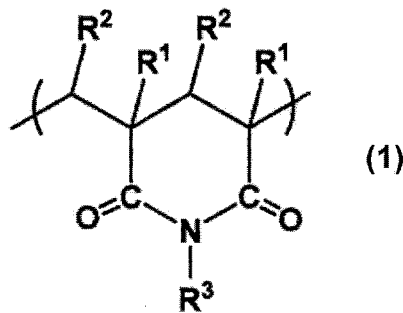
前記射出成形体は、グルタリイミド樹脂を含み、

前記グルタリイミド樹脂は、下記一般式（１）で表される繰り返し単位、下記一般式（２）で表される繰り返し単位、および下記一般式（３）で表される繰り返し単位を含み、

前記グルタリイミド樹脂は、配向複屈折が 0.5×10^{-3} 以上 0.5×10^{-3} 以下であり、光弾性定数が $-3.0 \times 10^{-12} \text{ Pa}^{-1}$ 以上 $3.0 \times 10^{-12} \text{ Pa}^{-1}$ 以下であり、かつガラス転移温度が 125°C 以上であり、

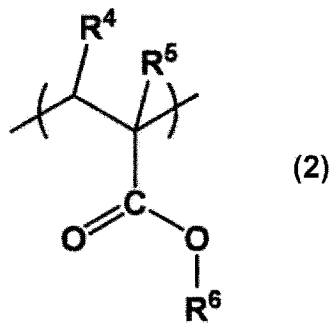
前記光学部材は、位相差の平均値が 20 nm 以下である、光学部材。

[化1]



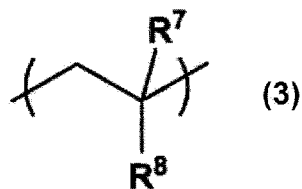
（但し、前記一般式（１）において、 R^1 および R^2 は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数 $1 \sim 8$ のアルキル基を示し、 R^3 は、水素原子、炭素数 $1 \sim 18$ のアルキル基、炭素数 $3 \sim 12$ のシクロアルキル基、または炭素数 $6 \sim 10$ のアリール基を示す。）

[化2]



(但し、前記一般式(2)において、 R^4 および R^5 は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数1～8のアルキル基を示し、 R^6 は、炭素数1～18のアルキル基、炭素数3～12のシクロアルキル基、または炭素数6～10のアリール基を示す。)

[化3]



(但し、前記一般式(3)において、 R^7 は、水素原子または炭素数1～8のアルキル基を示し、 R^8 は、炭素数6～10のアリール基を示す。)

[請求項2] 前記グルタリイミド樹脂は、5%重量減少温度が350℃以上である、請求項1に記載の光学部材。

[請求項3] 前記グルタリイミド樹脂は、イミド化率が40%以上70%以下である、請求項1または2に記載の光学部材。

[請求項4] 前記グルタリイミド樹脂は、前記一般式(1)における R^3 がメチル基であり、かつイミド化率が45%以上65%以下である、請求項1または2に記載の光学部材。

[請求項5] 前記グルタリイミド樹脂は、前記一般式(1)における R^3 が水素

原子である繰り返し単位と、前記一般式（１）における R^3 がメチル基である繰り返し単位とを含み、かつイミド化率が４０％以上７０％以下である、請求項１または２に記載の光学部材。

[請求項６] 前記光学部材は、ゲート部の位相差が３０ｎｍ以下である、請求項１～５のいずれかに記載の光学部材。

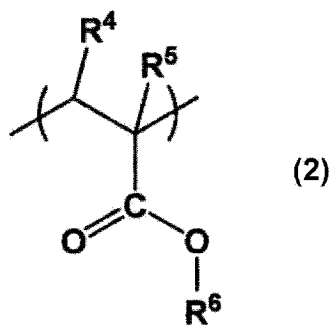
[請求項７] 前記光学部材は、光学レンズ又は車載ディスプレイである、請求項１～６のいずれかに記載の光学部材。

[請求項８] 請求項１～７のいずれかに記載の光学部材の製造方法であって、
下記一般式（２）で表される繰り返し単位、および下記一般式（３）で表される繰り返し単位を含む共重合体と、イミド化剤とを反応させてグルタリイミド樹脂を得る工程、

前記グルタリイミド樹脂を含むグルタリイミド樹脂組成物を射出成形して射出成形体を得る工程、および

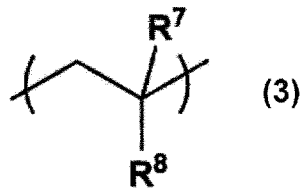
前記射出成形体をアニール処理する工程を含む、光学部材の製造方法。

[化４]



（但し、前記一般式（２）において、 R^4 および R^5 は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数１～８のアルキル基を示し、 R^6 は、炭素数１～１８のアルキル基、炭素数３～１２のシクロアルキル基、または炭素数６～１０のアリール基を示す。）

[化5]



(但し、前記一般式 (3) において、 R^7 は、水素原子または炭素数 1 ～ 8 のアルキル基を示し、 R^8 は、炭素数 6 ～ 10 のアリール基を示す。)

[請求項9] 前記共重合体は、前記一般式 (3) で表される繰り返し単位を 10 mol % 超 18 mol % 以下含む、請求項 8 に記載の光学部材の製造方法。

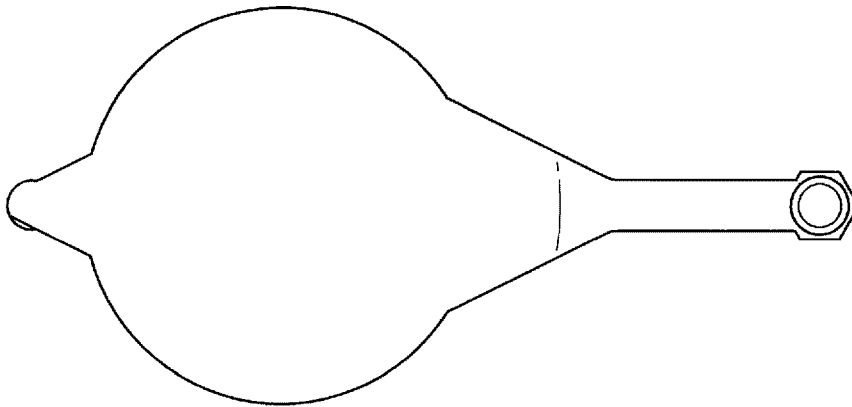
[請求項10] 前記イミド化剤は、モノメチルアミンまたはアンモニアである、請求項 8 または 9 に記載の光学部材の製造方法。

[請求項11] 前記アニール処理後の射出成形品において、温度 $23 \pm 2^\circ\text{C}$ かつ相対湿度 $50 \pm 5\%$ で 24 時間放置した後に測定した位相差の平均値を P_0 とし、温度 $23 \pm 2^\circ\text{C}$ かつ相対湿度 $50 \pm 5\%$ で 29 日間放置した後に測定した位相差の平均値を P_1 とした場合、下記式：

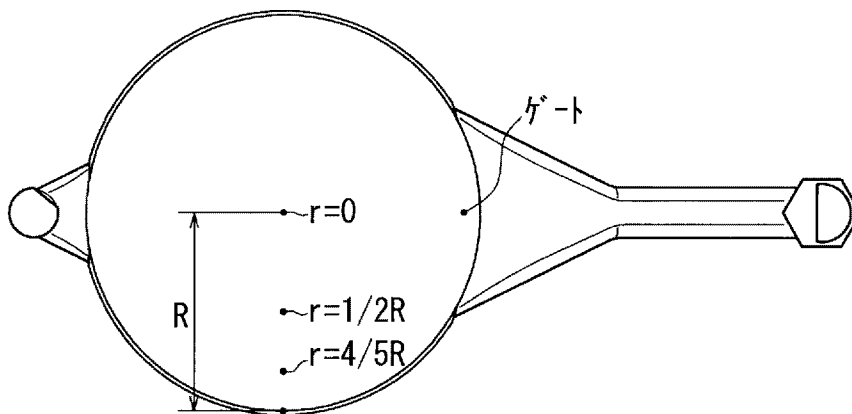
$$\text{位相差の変化率 (\%)} = (P_1 - P_0) / P_0 \times 100$$

で表される位相差の変化率が 20 % 以下である、請求項 8 ～ 10 のいずれかに記載の光学部材の製造方法。

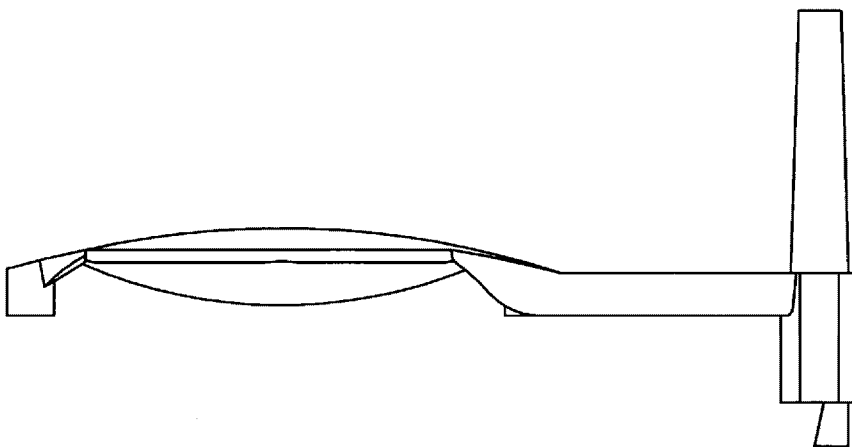
[図1]



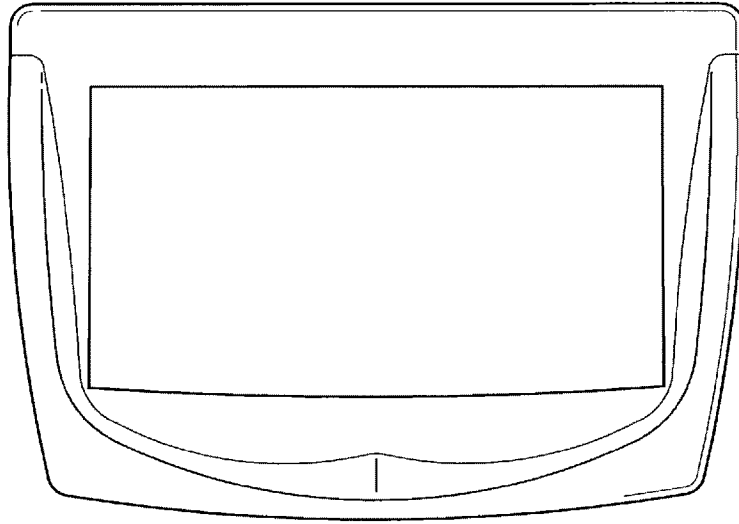
[図2]



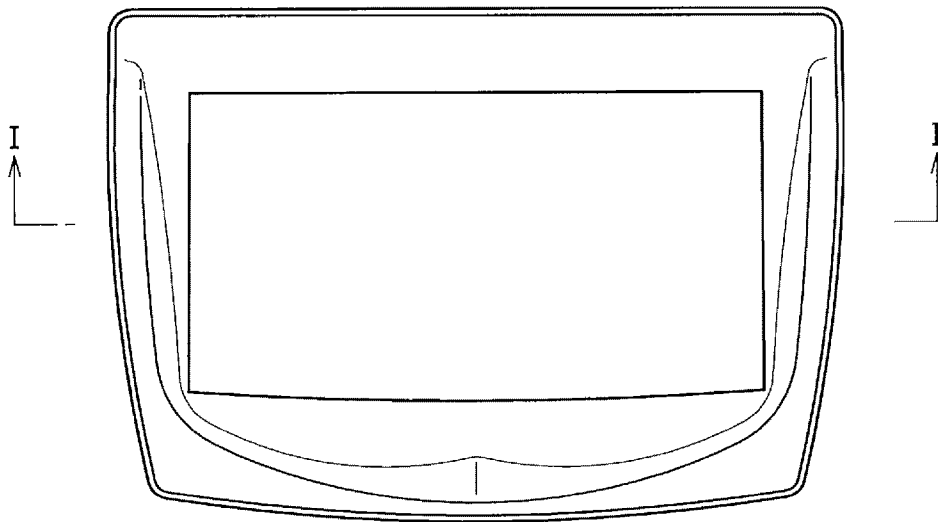
[図3]



[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/011370

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**G02B 1/04**(2006.01)i; **B29C 45/00**(2006.01)i; **C08F 8/48**(2006.01)i; **G02B 3/00**(2006.01)i; **G02B 5/30**(2006.01)i

FI: G02B1/04; G02B3/00 Z; B29C45/00; C08F8/48; G02B5/30

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

G02B1/04; B29C45/00; C08F8/48; G02B3/00; G02B5/30

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

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996

Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2022

Registered utility model specifications of Japan 1996-2022

Published registered utility model applications of Japan 1994-2022

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 2002-338702 A (KANEKAFUCHI CHEM. IND. CO., LTD.) 27 November 2002 (2002-11-27)	1, 7
Y	paragraphs [0002], [0013], [0024], [0026], [0031], [0043], [0048], [0073]-[0100], table 1 paragraphs [0002], [0013], [0024], [0026], [0031], [0043], [0048], [0073]-[0100], table 1	2-6, 8-11
Y	JP 2010-270162 A (KANEKA CORP.) 02 December 2010 (2010-12-02) paragraphs [0172], [0216], table 1	2
Y	WO 2012/114718 A1 (KANEKA CORP.) 30 August 2012 (2012-08-30) paragraphs [0139], [0142]	3-5, 8-11
Y	WO 2005/054311 A1 (KANEKA CORP.) 16 June 2005 (2005-06-16) tables 1, 3, 5, 8, 11, 15	3-5
Y	WO 2015/098980 A1 (KANEKA CORP.) 02 July 2015 (2015-07-02) paragraph [0110], table 4	6
Y	WO 2014/002491 A1 (KANEKA CORP.) 03 January 2014 (2014-01-03) paragraph [0321], table 4	6

☒ 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

18 May 2022

Date of mailing of the international search report

31 May 2022

Name and mailing address of the ISA/JP

Japan Patent Office (ISA/JP)
3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915
Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/011370**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2012-008248 A (NIPPON SHOKUBAI CO., LTD.) 12 January 2012 (2012-01-12) paragraph [0151], table 1	11
A	US 2017/0052286 A1 (RIPCLEAR LLC) 23 February 2017 (2017-02-23) whole document, fig. 1-6	1-11

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2022/011370

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)
JP	2002-338702	A	27 November 2002	(Family: none)			
JP	2010-270162	A	02 December 2010	JP	2014-95926	A	
WO	2012/114718	A1	30 August 2012	US	2014/0045995	A1	
				paragraphs [0163], [0164], [0166]			
				EP	2690139	A1	
				CN	103380175	A	
				KR	10-2013-0140771	A	
WO	2005/054311	A1	16 June 2005	US	2008/0318072	A1	
				tables 1, 3, 5, 8, 11, 15			
				EP	1705195	A1	
				KR	10-2006-0116845	A	
				CN	1902240	A	
				KR	10-2008-0091306	A	
				KR	10-2008-0091405	A	
				CN	101482628	A	
				TW	200535160	A	
				JP	2011-186482	A	
				JP	2013-231188	A	
WO	2015/098980	A1	02 July 2015	US	2016/0326289	A1	
				paragraph [0155], table 4			
				EP	3088920	A1	
				CN	105829923	A	
				TW	201533072	A	
WO	2014/002491	A1	03 January 2014	US	2015/0147550	A1	
				paragraph [0436], table 4			
				EP	2865716	A1	
				CN	104334635	A	
				KR	10-2015-0023238	A	
				BR	112014030481	A	
				TW	201404817	A	
JP	2012-008248	A	12 January 2012	(Family: none)			
US	2017/0052286	A1	23 February 2017	WO	2017/031073	A1	
				EP	3338138	A1	
				AU	2016308063	A	
				CA	2994857	A1	
				CN	107924067	A	
				KR	10-2018-0088630	A	
				HK	1254311	A	
				AU	2021200736	A	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） G02B 1/04(2006.01)i; B29C 45/00(2006.01)i; C08F 8/48(2006.01)i; G02B 3/00(2006.01)i; G02B 5/30(2006.01)i FI: G02B1/04; G02B3/00 Z; B29C45/00; C08F8/48; G02B5/30		
B. 調査を行った分野		
調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） G02B1/04; B29C45/00; C08F8/48; G02B3/00; 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 1971-2022年 日本国実用新案登録公報 1996-2022年 日本国登録実用新案公報 1994-2022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 2002-338702 A（鐘淵化学工業株式会社）27.11.2002（2002-11-27） [0002], [0013], [0024], [0026], [0031], [0043], [0048], [0073]-[0100], [表1]	1, 7
Y	[0002], [0013], [0024], [0026], [0031], [0043], [0048], [0073]-[0100], [表1]	2-6, 8-11
Y	JP 2010-270162 A（株式会社カネカ）02.12.2010（2010-12-02） [0172], [0216], [表1]	2
Y	WO 2012/114718 A1（株式会社カネカ）30.08.2012（2012-08-30） [0139], [0142]	3-5, 8-11
Y	WO 2005/054311 A1（株式会社カネカ）16.06.2005（2005-06-16） [表1], [表3], [表5], [表8], [表11], [表15]	3-5
Y	WO 2015/098980 A1（株式会社カネカ）02.07.2015（2015-07-02） [0110], [表4]	6
Y	WO 2014/002491 A1（株式会社カネカ）03.01.2014（2014-01-03） [0321], [表4]	6
☒ 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、一般的な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抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “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 18.05.2022		国際調査報告の発送日 31.05.2022
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 小西 隆 20 4081 電話番号 03-3581-1101 内線 3271

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
Y	JP 2012-008248 A (株式会社日本触媒) 12.01.2012 (2012 - 01 - 12) [0151],[表1]	11
A	US 2017/0052286 A1 (RIPCLEAR LLC) 23.02.2017 (2017 - 02 - 23) the whole document, FIGs. 1-6	1-11

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2022/011370

引用文献			公表日	パテントファミリー文献		公表日
JP	2002-338702	A	27.11.2002	(ファミリーなし)		
JP	2010-270162	A	02.12.2010	JP	2014-95926	A
WO	2012/114718	A1	30.08.2012	US	2014/0045995	A1
					[0163]-[0164], [0166]	
				EP	2690139	A1
				CN	103380175	A
				KR	10-2013-0140771	A
WO	2005/054311	A1	16.06.2005	US	2008/0318072	A1
					TABLEs 1, 3, 5, 8, 11, 15	
				EP	1705195	A1
				KR	10-2006-0116845	A
				CN	1902240	A
				KR	10-2008-0091306	A
				KR	10-2008-0091405	A
				CN	101482628	A
				TW	200535160	A
				JP	2011-186482	A
				JP	2013-231188	A
WO	2015/098980	A1	02.07.2015	US	2016/0326289	A1
					[0155], [TABLE 4]	
				EP	3088920	A1
				CN	105829923	A
				TW	201533072	A
WO	2014/002491	A1	03.01.2014	US	2015/0147550	A1
					[0436], [TABLE 4]	
				EP	2865716	A1
				CN	104334635	A
				KR	10-2015-0023238	A
				BR	112014030481	A
				TW	201404817	A
JP	2012-008248	A	12.01.2012	(ファミリーなし)		
US	2017/0052286	A1	23.02.2017	WO	2017/031073	A1
				EP	3338138	A1
				AU	2016308063	A
				CA	2994857	A1
				CN	107924067	A
				KR	10-2018-0088630	A
				HK	1254311	A
				AU	2021200736	A