(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10月5日(05.10.2017)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2017/170175 A1

(51) 国際特許分類:
G02B 5/30 (2006.01) *B32B 27/32* (2006.01)
B32B 7/06 (2006.01) *C08J 7/04* (2006.01)
B32B 27/20 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2017/011854

(22) 国際出願日: 2017年3月23日(23.03.2017)

(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 2016-065094 2016年3月29日(29.03.2016) JP

(71) 出願人: 日本ゼオン株式会社(ZEON CORPORATION) [JP/JP]; 〒1008246 東京都千代田区丸の内一丁目６番２号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 摺出寺　浩成(SUDEJI, Hironari); 〒1008246 東京都千代田区丸の内一丁目６番２号 日本ゼオン株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人酒井国際特許事務所 (SAKAI INTERNATIONAL PATENT OFFICE); 〒1000013 東京都千代田区霞が関３丁目８番１号 虎の門三井ビルディング Tokyo (JP).

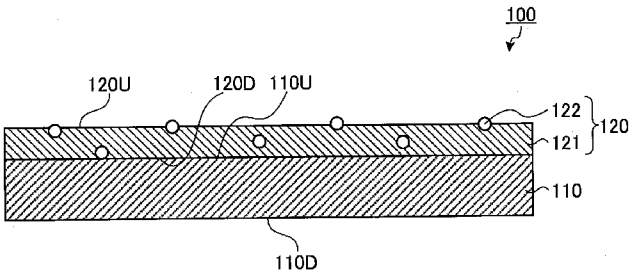
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA,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

[続葉有]

(54) **Title**: MULTILAYER OPTICAL FILM AND METHOD FOR PRODUCING SAME

(54) 発明の名称 : 複層光学フィルム及びその製造方法



(57) **Abstract**: A multilayer optical film which is provided with a layer A that is formed from an alicyclic structure-containing polymer resin and a layer B that is a masking layer provided directly on at least one surface of the layer A, and which is configured such that: the layer B is a cured product of a material Y containing a dispersion of crosslinkable polymer (a), and solid particles (b); and the thickness tB of the layer B is from 10 μm to 25 μm (inclusive). A production method which comprises: a step for forming a layer of a material Y by applying the material Y to the surface of the layer A; and a step for curing the layer of the material Y.

(57) 要約: 脂環式構造含有重合体樹脂からなるＡ層と、前記Ａ層の少なくとも片面に直接接して設けられたマスキング層であるＢ層とを備える、複層光学フィルムであって、前記Ｂ層は、架橋性重合体（ａ）の分散物及び固形粒子（ｂ）を含む材料Ｙの硬化物であり、前記Ｂ層の厚みｔＢが、１０μｍ以上２５μｍ以下である、複層光学フィルム；並びに、前記Ａ層の表面上に、材料Ｙを塗布し、前記材料Ｙの層を形成する工程、及び前記材料Ｙの層を硬化させる工程を含む製造方法。

WO 2017/170175 A1

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)）

明　細　書

発明の名称 ： 複層光学フィルム及びその製造方法

技術分野

[0001]　本発明は、複層光学フィルム及びその製造方法に関する。

背景技術

[0002]　光学的な用途に用いるために工業的に量産されるフィルムは、一般に、長尺のフィルムとして製造され、ロール状に巻回された巻回体の状態で保管及び運搬される。このような巻回体においては、巻回され重ね合わされたフィルムが、その表面において高い圧力で接触することによる不所望な現象が生じうる。そのような現象の例としては、ブロッキング（接触したフィルム同士が癒着する現象）、フィルム表面の傷の発生、及びフィルムの光学的特性の変化が挙げられる。そのような不所望な現象を抑制するため、長尺の光学フィルムに、マスキングフィルムと呼ばれる別の長尺のフィルムを貼合し、かかる貼合物を巻回し、これにより光学フィルムを保護することが行われている。例えば、光学フィルムとして用いられる脂環式構造含有重合体樹脂の長尺フィルムと、長尺のマスキングフィルムとを貼合し、これを巻回し、巻回体とすることが知られている（例えば特許文献１）。光学フィルムの使用に際しては、巻回体からフィルムを巻き出した後に、マスキングフィルムは剥離される。マスキングフィルムの材料としては、ポリエチレン及びポリエチレンテレフタレート等の樹脂が多く用いられている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開２０１５－１２５３４０号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004]　光学フィルムにマスキングフィルムを貼合するには、複数の長尺のフィルムを取り扱う製造ラインが必要であり、またマスキングフィルムを貼合に先

立ち調製するためのコストがかかる。したがって、マスキングに要するコストを低減することが課題となる。

[0005] さらに、従来マスキングフィルムとして用いられているポリエチレン及びポリエチレンテレフタレート等の樹脂のフィルムの表面には、微小な凹凸形状がある場合がある。そのような凹凸形状を有するフィルムをマスキングフィルムとして用いた場合、当該凹凸形状が光学フィルムに転写され、光学フィルムの表面にオレンジピールと呼ばれる不所望な凹凸形状が形成されることがある。また、このような凹凸形状が低減されたマスキングフィルムを得ようとすると、マスキングフィルムを調製するためのコストがさらに高まる。

[0006] さらに、従来マスキングフィルムとして用いられているポリエチレン及びポリエチレンテレフタレート等の樹脂のフィルムは、大きな位相差を有する場合、及び光線透過率が低い場合がある。このような場合、マスキングフィルムが貼合された状態で光学フィルムの光学特性を容易に測定することができず、従って、光学フィルムの品質管理における操作の自由度が制限されることになる。また、位相差が小さく光線透過率が高いマスキングフィルムを得ようとすると、マスキングフィルムを調製するためのコストがさらに高まる。

[0007] また、マスキングフィルムは、その基本的な性能として、保護対象のフィルムから容易に安定して剥離することができるものであることが求められる。

[0008] 従って、本発明の目的は、容易に安定して剥離できるマスキングを低コストで達成することができ、不所望な凹凸形状の転写等の不具合を発生させず、且つ光学フィルムの品質管理における制限の少ない、複層光学フィルム及びその製造方法を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明者は、前記課題を解決するために検討を行い、予め調製されたマスキングフィルムを貼合するのに代えて、光学フィルムの表面に、液体状の材

料を塗布し硬化させることにより、マスキングの効果を発現する層を形成することを着想した。本発明者はさらに検討を行ったところ、脂環式構造含有重合体樹脂においてそのようなマスキング機能を発現しうる層として、特定のものを採用することにより、良好なマスキング層が得られることを見出した。本発明は、かかる知見に基づき完成されたものである。

すなわち、本発明は以下の通りである。

[0010] 〔１〕 脂環式構造含有重合体樹脂からなるＡ層と、

前記Ａ層の少なくとも片面に直接接して設けられたマスキング層であるＢ層とを備える、複層光学フィルムであって、

前記Ｂ層は、架橋性重合体（ａ）の分散物及び固形粒子（ｂ）を含む材料Ｙの硬化物であり、

前記Ｂ層の厚みｔＢが、１０μｍ以上２５μｍ以下、

前記架橋性重合体（a）のガラス転移温度が０℃以上４０℃以下である、複層光学フィルム。

〔２〕 前記固形粒子（ｂ）が、シリカ、アルミナ、及びこれらの混合物からなる群から選択される材料の粒子である、〔１〕に記載の複層光学フィルム。

〔３〕 前記固形粒子（ｂ）の体積平均粒子径ｄｂが、０．０２≦ｄｂ／ｔＢ≦０．３の関係を満たす、〔１〕又は〔２〕に記載の複層光学フィルム。

〔４〕 前記架橋性重合体（ａ）が、メチロール基、ビニル基、エポキシ基、及びこれらの組み合わせからなる群より選択される架橋性基を含む、〔１〕～〔３〕のいずれか１項に記載の複層光学フィルム。

〔５〕 前記Ｂ層の引張弾性率ＥＢが５００ＭＰａ≦ＥＢ≦２２００ＭＰａである〔１〕～〔４〕のいずれか１項に記載の複層光学フィルム。

〔６〕 前記Ｂ層の破断伸度εＢが１０％≦εＢ≦３００％である、〔１〕～〔５〕のいずれか１項に記載の複層光学フィルム。

〔７〕 前記材料ＹのＡ層表面への接触角が３０度以下である、〔１〕～

〔６〕のいずれか１項に記載の複層光学フィルム。

〔８〕　〔１〕～〔７〕のいずれか１項に記載の複層光学フィルムの製造方法であって、

前記Ａ層の表面上に、架橋性重合体（ａ）の分散物及び固形粒子（ｂ）を含む材料Ｙを塗布し、前記材料Ｙの層を形成する工程、及び

前記材料Ｙの層を硬化させる工程

を含む製造方法。

発明の効果

[0011]　本発明の複層光学フィルムは、低コストでマスキングを達成することができ、不所望な凹凸形状の転写等の不具合を発生させず、容易にマスキングを安定して剥離する事ができ、且つ光学フィルムの品質管理における制限の少ないフィルムとすることができる。また、本発明の複層光学フィルムの製造方法によれば、そのような本発明の複層光学フィルムを容易に製造することができる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]図１は、本発明の複層光学フィルムの一例を模式的に示す断面図である。

発明を実施するための形態

[0013]　以下、実施形態及び例示物を示して本発明について詳細に説明する。ただし、本発明は以下に示す実施形態及び例示物等に限定されるものではなく、本発明の請求の範囲及びその均等の範囲を逸脱しない範囲において任意に変更して実施しうる。

[0014]　以下の説明において、フィルムが「長尺」とは、幅に対して、５倍以上の長さを有するものをいい、好ましくは１０倍若しくはそれ以上の長さを有し、具体的にはロール状に巻き取られて保管又は運搬される程度の長さを有するものをいう。幅に対する長さの倍率の上限は、特に限定されないが、通常１０万倍以下としうる。

[0015]　以下の説明において、「（メタ）アクリル」「（メタ）アクリレート」と

いった表現は、アクリル、メタクリル又はこれらの組み合わせを意味する。例えば、（メタ）アクリレートとは、アクリレート、メタクリレート、及びこれらの組み合わせのいずれかであることを意味する。

以下の説明において、説明の便宜上、「溶媒」とは、別に断らない限り、その中に溶質が溶解される、溶液を構成する媒体のみならず、その中に分散物が分散される、分散体を構成する媒体、及びその中に溶質が溶解され且つ分散物が分散される媒体をも含む用語として用いられる。

[0016] 以下の説明において、フィルムの面内レターデーションＲｅは、別に断らない限り、Ｒｅ＝（ｎｘ－ｎｙ）×ｄで表される値である。また、フィルムの厚み方向のレターデーションＲｔｈは、別に断らない限り、Ｒｔｈ＝｛（ｎｘ＋ｎｙ）／２－ｎｚ｝×ｄで表される値である。ここで、ｎｘは、フィルムの厚み方向に垂直な方向（面内方向）であって最大の屈折率を与える方向の屈折率を表す。ｎｙは、前記面内方向であってｎｘの方向に直交する方向の屈折率を表す。ｎｚは厚み方向の屈折率を表す。ｄは、フィルムの厚みを表す。測定波長は、別に断らない限り、５９０ｎｍである。フィルムの面内レターデーションＲｅ及び厚み方向のレターデーションＲｔｈは、例えば自動複屈折計（王子計測機器社製「ＫＯＢＲＡ－２１ＡＤＨ」等）を用いて測定しうる。

[0017] 〔１．複層光学フィルムの概要〕

本発明の複層光学フィルムは、脂環式構造含有重合体樹脂からなるＡ層と、Ａ層の少なくとも片面に直接接して設けられたＢ層とを備える。

[0018] 図１は、本発明の複層光学フィルムの一例を模式的に示す断面図である。図１において、複層光学フィルム１００は、Ａ層１１０と、Ａ層１１０の一方の面１１０Ｕに直接接して設けられたＢ層１２０とを備える。Ｂ層１２０は、架橋性重合体（ａ）の硬化物１２１と、固形粒子（ｂ）１２２とを含む。このような複層光学フィルムを、例えば長尺の形状として製造し、Ｂ層側の表面１２０Ｕを外側として巻回すると、巻回体の内部において、複層光学フィルム１００が高い圧力で接触する。即ち、複層光学フィルム１００の表

面１２０Ｕと、その外周側に隣接する複層光学フィルム１００のＡ層側の表面１１０Ｄとが、高い圧力で接触する。本発明の複層光学フィルムでは、以下に説明する特定の構成を有することにより、ブロッキング、Ａ層の表面の傷の発生、及びＡ層の光学的特性の変化等の不所望な現象を抑制することができる。

[0019] 〔２．Ａ層〕

Ａ層は、脂環式構造含有重合体樹脂からなる。脂環式構造含有重合体樹脂は、脂環式構造含有重合体を含有する樹脂である。脂環式構造含有重合体の例としては、結晶性の脂環式構造含有重合体、非結晶性の脂環式構造含有重合体、及び特定のブロック共重合体水素化物［Ｄ］である脂環式構造含有重合体が挙げられる。

[0020] 〔２．１．結晶性の脂環式構造含有重合体〕

結晶性を有する重合体とは、融点を有する（すなわち、示差走査熱量計（ＤＳＣ）で融点を観測することができる）重合体をいう。

[0021] 脂環式構造含有重合体とは、分子内に脂環式構造を有する重合体であって、環状オレフィンを単量体として用いた重合反応によって得られうる重合体又はその水素添加物をいう。結晶性を有する脂環式構造含有重合体は、耐熱性及び低吸湿性に優れるので、光学用途に適したフィルムを実現できる。また、脂環式構造含有重合体は、１種類を単独で用いてもよく、２種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

[0022] 脂環式構造含有重合体が有する脂環式構造としては、例えば、シクロアルカン構造及びシクロアルケン構造が挙げられる。これらの中でも、熱安定性などの特性に優れるフィルムが得られ易いことから、シクロアルカン構造が好ましい。１つの脂環式構造に含まれる炭素原子の数は、好ましくは４個以上、より好ましくは５個以上であり、好ましくは３０個以下、より好ましくは２０個以下、特に好ましくは１５個以下である。１つの脂環式構造に含まれる炭素原子の数が上記範囲内にあることで、機械的強度、耐熱性、及び成形性が高度にバランスされる。

[0023] 脂環式構造含有重合体において、全ての構造単位に対する脂環式構造を有する構造単位の割合は、好ましくは３０重量％以上、より好ましくは５０重量％以上、特に好ましくは７０重量％以上である。脂環式構造含有重合体における脂環式構造を有する構造単位の割合を前記のように多くすることにより、耐熱性を高めることができる。

また、脂環式構造含有重合体において、脂環式構造を有する構造単位以外の残部は、格別な限定はなく、使用目的に応じて適宜選択しうる。

[0024] 結晶性の脂環式構造含有重合体としては、例えば、下記の重合体（α）～重合体（δ）が挙げられる。これらの中でも、耐熱性に優れるフィルムが得られ易いことから、結晶性の脂環式構造含有重合体としては、重合体（β）が好ましい。

重合体（α）：環状オレフィン単量体の開環重合体であって、結晶性を有するもの。

重合体（β）：重合体（α）の水素添加物であって、結晶性を有するもの。

重合体（γ）：環状オレフィン単量体の付加重合体であって、結晶性を有するもの。

重合体（δ）：重合体（γ）の水素添加物であって、結晶性を有するもの。

[0025] 具体的には、脂環式構造含有重合体としては、ジシクロペンタジエンの開環重合体であって結晶性を有するもの、及び、ジシクロペンタジエンの開環重合体の水素添加物であって結晶性を有するものがより好ましく、ジシクロペンタジエンの開環重合体の水素添加物であって結晶性を有するものが特に好ましい。ここで、ジシクロペンタジエンの開環重合体とは、全構造単位に対するジシクロペンタジエン由来の構造単位の割合が、通常５０重量％以上、好ましくは７０重量％以上、より好ましくは９０重量％以上、さらに好ましくは１００重量％の重合体をいう。

[0026] 以下、重合体（α）及び重合体（β）の製造方法を説明する。

重合体（α）及び重合体（β）の製造に用いうる環状オレフィン単量体は、炭素原子で形成された環構造を有し、該環中に炭素－炭素二重結合を有する化合物である。環状オレフィン単量体の例としては、ノルボルネン系単量体等が挙げられる。また、重合体（α）が共重合体である場合には、環状オレフィン単量体として、単環の環状オレフィンを用いてもよい。

[0027] ノルボルネン系単量体は、ノルボルネン環を含む単量体である。ノルボルネン系単量体としては、例えば、ビシクロ［２．２．１］ヘプト－２－エン（慣用名：ノルボルネン）、５－エチリデン－ビシクロ［２．２．１］ヘプト－２－エン（慣用名：エチリデンノルボルネン）及びその誘導体（例えば、環に置換基を有するもの）等の、２環式単量体；トリシクロ［４．３．０．$1^{2,5}$］デカ－３，７－ジエン（慣用名：ジシクロペンタジエン）及びその誘導体等の、３環式単量体；７，８－ベンゾトリシクロ［４．３．０．$1^{2,5}$］デカ－３－エン（慣用名：メタノテトラヒドロフルオレン：１，４－メタノ－１，４，４ａ，９ａ－テトラヒドロフルオレンともいう）及びその誘導体、テトラシクロ［４．４．０．$1^{2,5}$．$1^{7,10}$］ドデカ－３－エン（慣用名：テトラシクロドデセン）、８－エチリデンテトラシクロ［４．４．０．$1^{2,5}$．$1^{7,10}$］－３－ドデセン及びその誘導体等の、４環式単量体；などが挙げられる。

[0028] 前記の単量体において置換基としては、例えば、メチル基、エチル基等のアルキル基；ビニル基等のアルケニル基；プロパン－２－イリデン等のアルキリデン基；フェニル基等のアリール基；ヒドロキシ基；酸無水物基；カルボキシル基；メトキシカルボニル基等のアルコキシカルボニル基；などが挙げられる。また、前記の置換基は、１種類を単独で有していてもよく、２種類以上を任意の比率で有していてもよい。

[0029] 単環の環状オレフィンとしては、例えば、シクロブテン、シクロペンテン、メチルシクロペンテン、シクロヘキセン、メチルシクロヘキセン、シクロヘプテン、シクロオクテン等の環状モノオレフィン；シクロヘキサジエン、メチルシクロヘキサジエン、シクロオクタジエン、メチルシクロオクタジエ

ン、フェニルシクロオクタジエン等の環状ジオレフィン；等が挙げられる。

[0030] 環状オレフィン単量体は、１種類を単独で用いてもよく、２種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。環状オレフィン単量体を２種以上用いる場合、重合体（α）は、ブロック共重合体であってもよいし、ランダム共重合体であってもよい。

[0031] 環状オレフィン単量体には、エンド体及びエキソ体の立体異性体が存在するものがありうる。環状オレフィン単量体としては、エンド体及びエキソ体のいずれを用いてもよい。また、エンド体及びエキソ体のうち一方の異性体のみを単独で用いてもよく、エンド体及びエキソ体を任意の割合で含む異性体混合物を用いてもよい。中でも、脂環式構造含有重合体の結晶性が高まり、耐熱性により優れるフィルムが得られ易くなることから、一方の立体異性体の割合を高くすることが好ましい。例えば、エンド体又はエキソ体の割合が、好ましくは８０％以上、より好ましくは９０％以上、さらに好ましくは９５％以上である。また、合成が容易であることから、エンド体の割合が高いことが好ましい。

[0032] 重合体（α）及び重合体（β）は、通常、そのシンジオタクチック立体規則性の度合い（ラセモ・ダイアッドの割合）を高めることで、結晶性を高くすることができる。重合体（α）及び重合体（β）の立体規則性の程度を高くする観点から、重合体（α）及び重合体（β）の構造単位についてのラセモ・ダイアッドの割合は、好ましくは５１％以上、より好ましくは６０％以上、特に好ましくは７０％以上である。

[0033] ラセモ・ダイアッドの割合は、^{13}Ｃ－ＮＭＲスペクトル分析により、測定しうる。具体的には、下記の方法により測定しうる。

オルトジクロロベンゼン－ｄ^{4}を溶媒として、２００℃で、ｉｎｖｅｒｓｅ－ｇａｔｅｄ　ｄｅｃｏｕｐｌｉｎｇ法を適用して、重合体試料の^{13}Ｃ－ＮＭＲ測定を行う。この^{13}Ｃ－ＮＭＲ測定の結果から、重合体試料のラセモ・ダイアッドの割合を求めうる。即ち、オルトジクロロベンゼン－ｄ^{4}の１２７．５ｐｐｍのピークを基準シフトとして、メソ・ダイアッド由来の４３．３

５ｐｐｍのシグナルと、ラセモ・ダイアッド由来の４３．４３ｐｐｍのシグナルの強度比に基づいて、重合体試料のラセモ・ダイアッドの割合を求めうる。

[0034] 重合体（α）の合成には、通常、開環重合触媒を用いる。開環重合触媒は、１種類を単独で用いてもよく、２種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。このような重合体（α）の合成用の開環重合触媒としては、環状オレフィン単量体を開環重合させ、シンジオタクチック立体規則性を有する開環重合体を生成させうるものが好ましい。好ましい開環重合触媒としては、下記式（Ａ）で示される金属化合物を含むものが挙げられる。

[0035] $M(NR^1)X_{4-a}(OR^2)_a \cdot L_b$ （Ａ）

（式（Ａ）において、

Ｍは、周期律表第６族の遷移金属原子からなる群より選択される金属原子を示し、

R^1は、３位、４位及び５位の少なくとも１つの位置に置換基を有していてもよいフェニル基、又は、$-CH_2R^3$（R^3は、水素原子、置換基を有していてもよいアルキル基、及び、置換基を有していてもよいアリール基からなる群より選択される基を示す。）で表される基を示し、

R^2は、置換基を有していてもよいアルキル基、及び、置換基を有していてもよいアリール基からなる群より選択される基を示し、

Ｘは、ハロゲン原子、置換基を有していてもよいアルキル基、置換基を有していてもよいアリール基、及び、アルキルシリル基からなる群より選択される基を示し、

Ｌは、電子供与性の中性配位子を示し、

ａは、０又は１の数を示し、

ｂは、０～２の整数を示す。）

[0036] 式（Ａ）において、Ｍは、周期律表第６族の遷移金属原子からなる群より選択される金属原子を示す。このＭとしては、クロム、モリブデン及びタングステンが好ましく、モリブデン及びタングステンがより好ましく、タング

ステンが特に好ましい。

[0037] 式（Ａ）において、R^1は、３位、４位及び５位の少なくとも１つの位置に置換基を有していてもよいフェニル基、又は、$-CH_2R^3$で表される基を示す。

R^1の、３位、４位及び５位の少なくとも１つの位置に置換基を有していてもよいフェニル基の炭素原子数は、好ましくは６～２０、より好ましくは６～１５である。また、前記置換基としては、例えば、メチル基、エチル基等のアルキル基；フッ素原子、塩素原子、臭素原子等のハロゲン原子；メトキシ基、エトキシ基、イソプロポキシ基等のアルコキシ基；などが挙げられる。これらの置換基は、１種類を単独で有していてもよく、２種類以上を任意の比率で有していてもよい。さらに、R^1において、３位、４位及び５位の少なくとも２つの位置に存在する置換基が互いに結合し、環構造を形成していてもよい。

[0038] ３位、４位及び５位の少なくとも１つの位置に置換基を有していてもよいフェニル基としては、例えば、無置換フェニル基；４－メチルフェニル基、４－クロロフェニル基、３－メトキシフェニル基、４－シクロヘキシルフェニル基、４－メトキシフェニル基等の一置換フェニル基；３，５－ジメチルフェニル基、３，５－ジクロロフェニル基、３，４－ジメチルフェニル基、３，５－ジメトキシフェニル基等の二置換フェニル基；３，４，５－トリメチルフェニル基、３，４，５－トリクロロフェニル基等の三置換フェニル基；２－ナフチル基、３－メチル－２－ナフチル基、４－メチル－２－ナフチル基等の置換基を有していてもよい２－ナフチル基；等が挙げられる。

[0039] R^1の、$-CH_2R^3$で表される基において、R^3は、水素原子、置換基を有していてもよいアルキル基、及び、置換基を有していてもよいアリール基からなる群より選択される基を示す。

R^3の、置換基を有していてもよいアルキル基の炭素原子数は、好ましくは１～２０、より好ましくは１～１０である。このアルキル基は、直鎖状であってもよく、分岐状であってもよい。さらに、前記置換基としては、例えば

、フェニル基、４－メチルフェニル基等の置換基を有していてもよいフェニル基；メトキシ基、エトキシ基等のアルコキシル基；等が挙げられる。これらの置換基は、１種類を単独で用いてもよく、２種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

R^3の、置換基を有していてもよいアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、ｔ－ブチル基、ペンチル基、ネオペンチル基、ベンジル基、ネオフィル基等が挙げられる。

[0040] R^3の、置換基を有していてもよいアリール基の炭素原子数は、好ましくは６～２０、より好ましくは６～１５である。さらに、前記置換基としては、例えば、メチル基、エチル基等のアルキル基；フッ素原子、塩素原子、臭素原子等のハロゲン原子；メトキシ基、エトキシ基、イソプロポキシ基等のアルコキシ基；等が挙げられる。これらの置換基は、１種類を単独で用いてもよく、２種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

R^3の、置換基を有していてもよいアリール基としては、例えば、フェニル基、１－ナフチル基、２－ナフチル基、４－メチルフェニル基、２，６－ジメチルフェニル基等が挙げられる。

[0041] これらの中でも、R^3で表される基としては、炭素原子数が１～２０のアルキル基が好ましい。

[0042] 式（Ａ）において、R^2は、置換基を有していてもよいアルキル基、及び、置換基を有していてもよいアリール基からなる群より選択される基を示す。R^2の、置換基を有していてもよいアルキル基、及び、置換基を有していてもよいアリール基としては、それぞれ、R^3の、置換基を有していてもよいアルキル基、及び、置換基を有していてもよいアリール基として示した範囲から選択されるものを任意に用いうる。

[0043] 式（Ａ）において、Ｘは、ハロゲン原子、置換基を有していてもよいアルキル基、置換基を有していてもよいアリール基、及び、アルキルシリル基からなる群より選択される基を示す。

Ｘのハロゲン原子としては、例えば、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が挙げられる。

Ｘの、置換基を有していてもよいアルキル基、及び、置換基を有していてもよいアリール基としては、それぞれ、R^3の、置換基を有していてもよいアルキル基、及び、置換基を有していてもよいアリール基として示した範囲から選択されるものを任意に用いうる。

Ｘのアルキルシリル基としては、例えば、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、ｔ－ブチルジメチルシリル基等が挙げられる。

式（Ａ）で示される金属化合物が１分子中に２以上のＸを有する場合、それらのＸは、互いに同じでもよく、異なっていてもよい。さらに、２以上のＸが互いに結合し、環構造を形成していてもよい。

[0044] 式（Ａ）において、Ｌは、電子供与性の中性配位子を示す。

Ｌの電子供与性の中性配位子としては、例えば、周期律表第１４族又は第１５族の原子を含有する電子供与性化合物が挙げられる。その具体例としては、トリメチルホスフィン、トリイソプロピルホスフィン、トリシクロヘキシルホスフィン、トリフェニルホスフィン等のホスフィン類；ジエチルエーテル、ジブチルエーテル、１，２－ジメトキシエタン、テトラヒドロフラン等のエーテル類；トリメチルアミン、トリエチルアミン、ピリジン、ルチジン等のアミン類；等が挙げられる。これらの中でも、エーテル類が好ましい。また、式（Ａ）で示される金属化合物が１分子中に２以上のＬを有する場合、それらのＬは、互いに同じでもよく、異なっていてもよい。

[0045] 式（Ａ）で示される金属化合物としては、フェニルイミド基を有するタングステン化合物が好ましい。即ち、式（Ａ）において、Ｍがタングステン原子であり、且つ、R^1がフェニル基である化合物が好ましい。さらに、その中でも、テトラクロロタングステンフェニルイミド（テトラヒドロフラン）錯体がより好ましい。

[0046] 式（Ａ）で示される金属化合物の製造方法は、特に限定されない。例えば、特開平５－３４５８１７号公報に記載されるように、第６族遷移金属のオ

キシハロゲン化物；３位、４位及び５位の少なくとも１つの位置に置換基を有していてもよいフェニルイソシアナート類又は一置換メチルイソシアナート類；電子供与性の中性配位子（Ｌ）；並びに、必要に応じて、アルコール類、金属アルコキシド及び金属アリールオキシド；を混合することにより、式（Ａ）で示される金属化合物を製造することができる。

[0047] 前記の製造方法では、式（Ａ）で示される金属化合物は、通常、反応液に含まれた状態で得られる。金属化合物の製造後、前記の反応液をそのまま開環重合反応の触媒液として用いてもよい。また、結晶化等の精製処理により、金属化合物を反応液から単離及び精製した後、得られた金属化合物を開環重合反応に供してもよい。

[0048] 開環重合触媒は、式（Ａ）で示される金属化合物を単独で用いてもよく、式（Ａ）で示される金属化合物を他の成分と組み合わせて用いてもよい。例えば、式（Ａ）で示される金属化合物と有機金属還元剤とを組み合わせて用いることで、重合活性を向上させることができる。

[0049] 有機金属還元剤としては、例えば、炭素原子数１～２０の炭化水素基を有する周期律表第１族、第２族、第１２族、第１３族又は１４族の有機金属化合物が挙げられる。このような有機金属化合物としては、例えば、メチルリチウム、ｎ－ブチルリチウム、フェニルリチウム等の有機リチウム；ブチルエチルマグネシウム、ブチルオクチルマグネシウム、ジヘキシルマグネシウム、エチルマグネシウムクロリド、ｎ－ブチルマグネシウムクロリド、アリルマグネシウムブロミド等の有機マグネシウム；ジメチル亜鉛、ジエチル亜鉛、ジフェニル亜鉛等の有機亜鉛；トリメチルアルミニウム、トリエチルアルミニウム、トリイソブチルアルミニウム、ジエチルアルミニウムクロリド、エチルアルミニウムセスキクロリド、エチルアルミニウムジクロリド、ジエチルアルミニウムエトキシド、ジイソブチルアルミニウムイソブトキシド、エチルアルミニウムジエトキシド、イソブチルアルミニウムジイソブトキシド等の有機アルミニウム；テトラメチルスズ、テトラ（ｎ－ブチル）スズ、テトラフェニルスズ等の有機スズ；等が挙げられる。これらの中でも、有

機アルミニウム又は有機スズが好ましい。また、有機金属還元剤は、１種類を単独で用いてもよく、２種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

[0050] 開環重合反応は、通常、有機溶媒中で行われる。有機溶媒は、開環重合体及びその水素添加物を、所定の条件で溶解もしくは分散させることが可能であり、かつ、開環重合反応及び水素化反応を阻害しないものを用いうる。このような有機溶媒としては、例えば、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン等の脂肪族炭化水素溶媒；シクロペンタン、シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、ジメチルシクロヘキサン、トリメチルシクロヘキサン、エチルシクロヘキサン、ジエチルシクロヘキサン、デカヒドロナフタレン、ビシクロヘプタン、トリシクロデカン、ヘキサヒドロインデン、シクロオクタン等の脂環族炭化水素溶媒；ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素溶媒；ジクロロメタン、クロロホルム、１，２－ジクロロエタン等のハロゲン系脂肪族炭化水素溶媒；クロロベンゼン、ジクロロベンゼン等のハロゲン系芳香族炭化水素溶媒；ニトロメタン、ニトロベンゼン、アセトニトリル等の含窒素炭化水素溶媒；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン等のエーテル溶媒；これらを組み合わせた混合溶媒；等が挙げられる。これらの中でも、有機溶媒としては、芳香族炭化水素溶媒、脂肪族炭化水素溶媒、脂環族炭化水素溶媒、エーテル溶媒が好ましい。また、有機溶媒は、１種類を単独で用いてもよく、２種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

[0051] 開環重合反応は、例えば、環状オレフィン単量体と、式（Ａ）で示される金属化合物と、必要に応じて有機金属還元剤とを混合することにより、開始させることができる。これらの成分を混合する順序は、特に限定されない。例えば、環状オレフィン単量体を含む溶液に、式（Ａ）で示される金属化合物及び有機金属還元剤を含む溶液を混合してもよい。また、有機金属還元剤を含む溶液に、環状オレフィン単量体及び式（Ａ）で示される金属化合物を含む溶液を混合してもよい。さらに、環状オレフィン単量体及び有機金属還元剤を含む溶液に、式（Ａ）で示される金属化合物の溶液を混合してもよい

。各成分を混合する際は、それぞれの成分の全量を一度に混合してもよいし、複数回に分けて混合してもよい。また、比較的に長い時間（例えば１分間以上）にわたって連続的に混合してもよい。

[0052] 開環重合反応の開始時における反応液中の環状オレフィン単量体の濃度は、好ましくは１重量％以上、より好ましくは２重量％以上、特に好ましくは３重量％以上であり、好ましくは５０重量％以下、より好ましくは４５重量％以下、特に好ましくは４０重量％以下である。環状オレフィン単量体の濃度を前記範囲の下限値以上にすることにより、生産性を高くできる。また、上限値以下にすることにより、開環重合反応後の反応液の粘度を低くできるので、その後の水素化反応を容易に行うことができる。

[0053] 開環重合反応に用いる式（Ａ）で示される金属化合物の量は、「金属化合物：環状オレフィン単量体」のモル比が、所定の範囲の収まるように設定することが望ましい。具体的には、前記のモル比は、好ましくは１：１００～１：２，０００，０００、より好ましくは１：５００～１，０００，０００、特に好ましくは１：１，０００～１：５００，０００である。金属化合物の量を前記範囲の下限値以上にすることにより、十分な重合活性を得ることができる。また、上限値以下にすることにより、反応後に金属化合物を容易に除去できる。

[0054] 有機金属還元剤の量は、式（Ａ）で示される金属化合物１モルに対して、好ましくは０．１モル以上、より好ましくは０．２モル以上、特に好ましくは０．５モル以上であり、好ましくは１００モル以下、より好ましくは５０モル以下、特に好ましくは２０モル以下である。有機金属還元剤の量を前記範囲の下限値以上にすることにより、重合活性を十分に高くできる。また、上限値以下にすることにより、副反応の発生を抑制することができる。

[0055] 重合体（α）の重合反応系は、活性調整剤を含んでいてもよい。活性調整剤を用いることで、開環重合触媒を安定化したり、開環重合反応の反応速度を調整したり、重合体の分子量分布を調整したりできる。

活性調整剤としては、官能基を有する有機化合物を用いうる。このような

活性調整剤としては、例えば、含酸素化合物、含窒素化合物、含リン有機化合物等が挙げられる。

[0056] 含酸素化合物としては、例えば、ジエチルエーテル、ジイソプロピルエーテル、ジブチルエーテル、アニソール、フラン、テトラヒドロフラン等のエーテル類；アセトン、ベンゾフェノン、シクロヘキサノンなどのケトン類；エチルアセテート等のエステル類；等が挙げられる。

含窒素化合物としては、例えば、アセトニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル類；トリエチルアミン、トリイソプロピルアミン、キヌクリジン、Ｎ，Ｎ－ジエチルアニリン等のアミン類；ピリジン、２，４－ルチジン、２，６－ルチジン、２－ｔ－ブチルピリジン等のピリジン類；等が挙げられる。

含リン化合物としては、例えば、トリフェニルホスフィン、トリシクロヘキシルホスフィン、トリフェニルホスフェート、トリメチルホスフェート等のホスフィン類；トリフェニルホスフィンオキシド等のホスフィンオキシド類；等が挙げられる。

[0057] 活性調整剤は、１種を単独で用いてもよく、２種以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

重合体（α）の重合反応系における活性調整剤の量は、式（Ａ）で示される金属化合物１００モル％に対して、好ましくは０．０１モル％～１００モル％である。

[0058] 重合体（α）の重合反応系は、重合体（α）の分子量を調整するために、分子量調整剤を含んでいてもよい。分子量調整剤としては、例えば、１－ブテン、１－ペンテン、１－ヘキセン、１－オクテン等のα－オレフィン類；スチレン、ビニルトルエン等の芳香族ビニル化合物；エチルビニルエーテル、イソブチルビニルエーテル、アリルグリシジルエーテル、酢酸アリル、アリルアルコール、グリシジルメタクリレート等の酸素含有ビニル化合物；アリルクロライド等のハロゲン含有ビニル化合物；アクリルアミド等の窒素含有ビニル化合物；１，４－ペンタジエン、１，４－ヘキサジエン、１，５－ヘキサジエン、１，６－ヘプタジエン、２－メチル－１，４－ペンタジエン

、２，５－ジメチル－１，５－ヘキサジエン等の非共役ジエン；１，３－ブタジエン、２－メチル－１，３－ブタジエン、２，３－ジメチル－１，３－ブタジエン、１，３－ペンタジエン、１，３－ヘキサジエン等の共役ジエン；等が挙げられる。

[0059] 分子量調整剤は、１種を単独で用いてもよく、２種以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

重合体（α）を重合するための重合反応系における分子量調整剤の量は、目的とする分子量に応じて適切に決定しうる。分子量調整剤の具体的な量は、環状オレフィン単量体に対して、好ましくは０．１モル％～５０モル％の範囲である。

[0060] 重合温度は、好ましくは－７８℃以上、より好ましくは－３０℃以上であり、好ましくは＋２００℃以下、より好ましくは＋１８０℃以下である。

重合時間は、反応規模に依存しうる。具体的な重合時間は、好ましくは１分間から１０００時間の範囲である。

[0061] 上述した製造方法により、重合体（α）が得られる。この重合体（α）を水素化することにより、重合体（β）を製造することができる。

重合体（α）の水素化は、例えば、常法に従って水素化触媒の存在下で、重合体（α）を含む反応系内に水素を供給することによって行うことができる。この水素化反応において、反応条件を適切に設定すれば、通常、水素化反応により水素添加物のタクチシチーが変化することはない。

[0062] 水素化触媒としては、オレフィン化合物の水素化触媒として公知の均一系触媒及び不均一触媒を用いうる。

均一系触媒としては、例えば、酢酸コバルト／トリエチルアルミニウム、ニッケルアセチルアセトナート／トリイソブチルアルミニウム、チタノセンジクロリド／ｎ－ブチルリチウム、ジルコノセンジクロリド／ｓｅｃ－ブチルリチウム、テトラブトキシチタネート／ジメチルマグネシウム等の、遷移金属化合物とアルカリ金属化合物の組み合わせからなる触媒；ジクロロビス（トリフェニルホスフィン）パラジウム、クロロヒドリドカルボニルトリス

（トリフェニルホスフィン）ルテニウム、クロロヒドリドカルボニルビス（トリシクロヘキシルホスフィン）ルテニウム、ビス（トリシクロヘキシルホスフィン）ベンジリジンルテニウム（IV）ジクロリド、クロロトリス（トリフェニルホスフィン）ロジウム等の貴金属錯体触媒；等が挙げられる。

不均一触媒としては、例えば、ニッケル、パラジウム、白金、ロジウム、ルテニウム等の金属触媒；ニッケル／シリカ、ニッケル／ケイソウ土、ニッケル／アルミナ、パラジウム／カーボン、パラジウム／シリカ、パラジウム／ケイソウ土、パラジウム／アルミナ等の、前記金属をカーボン、シリカ、ケイソウ土、アルミナ、酸化チタンなどの担体に担持させてなる固体触媒が挙げられる。

水素化触媒は、１種類を単独で用いてもよく、２種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

[0063] 水素化反応は、通常、不活性有機溶媒中で行われる。不活性有機溶媒としては、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素溶媒；ペンタン、ヘキサン等の脂肪族炭化水素溶媒；シクロヘキサン、デカヒドロナフタレンなどの脂環族炭化水素溶媒；テトラヒドロフラン、エチレングリコールジメチルエーテル等のエーテル溶媒；等が挙げられる。不活性有機溶媒は、１種類を単独で用いてもよく、２種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。また、不活性有機溶媒は、開環重合反応に用いた有機溶媒と同じものであってもよいし、異なるものであってもよい。さらに、開環重合反応の反応液に水素化触媒を混合して、水素化反応を行ってもよい。

[0064] 水素化反応の反応条件は、通常、用いる水素化触媒によって異なる。

水素化反応の反応温度は、好ましくは－２０℃以上、より好ましくは－１０℃以上、特に好ましくは０℃以上であり、好ましくは＋２５０℃以下、より好ましくは＋２２０℃以下、特に好ましくは＋２００℃以下である。反応温度を前記範囲の下限値以上にすることにより、反応速度を速くできる。また、上限値以下にすることにより、副反応の発生を抑制できる。

[0065] 水素圧力は、好ましくは０．０１ＭＰａ以上、より好ましくは０．０５Ｍ

Ｐａ以上、特に好ましくは０．１ＭＰａ以上であり、好ましくは２０ＭＰａ以下、より好ましくは１５ＭＰａ以下、特に好ましくは１０ＭＰａ以下である。水素圧力を前記範囲の下限値以上にすることにより、反応速度を速くできる。また、上限値以下にすることにより、高耐圧反応装置等の特別な装置が不要となり、設備コストを抑制できる。

[0066] 水素化反応の反応時間は、所望の水素添加率が達成される任意の時間に設定してもよく、好ましくは０．１時間～１０時間である。

水素化反応後は、通常、常法に従って、重合体（α）の水素添加物である重合体（β）を回収する。

[0067] 水素化反応における水素添加率（水素化された主鎖二重結合の割合）は、好ましくは９８％以上、より好ましくは９９％以上である。水素添加率が高くなるほど、脂環式構造含有重合体の耐熱性を良好にできる。

ここで、重合体の水素添加率は、オルトジクロロベンゼン－d^4を溶媒として、１４５℃で、^{1}Ｈ－ＮＭＲ測定により測定しうる。

[0068] 次に、重合体（γ）及び重合体（δ）の製造方法を説明する。

重合体（γ）及び（δ）の製造に用いる環状オレフィン単量体としては、重合体（α）及び重合体（β）の製造に用いうる環状オレフィン単量体として示した範囲から選択されるものを任意に用いうる。また、環状オレフィン単量体は、１種類を単独で用いてもよく、２種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

[0069] 重合体（γ）の製造においては、単量体として、環状オレフィン単量体に組み合わせて、環状オレフィン単量体と共重合可能な任意の単量体を用いうる。任意の単量体としては、例えば、エチレン、プロピレン、１－ブテン、１－ペンテン、１－ヘキセン等の炭素原子数２～２０のα－オレフィン；スチレン、α－メチルスチレン等の芳香環ビニル化合物；１，４－ヘキサジエン、４－メチル－１，４－ヘキサジエン、５－メチル－１，４－ヘキサジエン、１，７－オクタジエン等の非共役ジエン；等が挙げられる。これらの中でも、α－オレフィンが好ましく、エチレンがより好ましい。また、任意の

単量体は、１種類を単独で用いてもよく、２種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

[0070] 環状オレフィン単量体と任意の単量体との量の割合は、重量比（環状オレフィン単量体：任意の単量体）で、好ましくは３０：７０～９９：１、より好ましくは５０：５０～９７：３、特に好ましくは７０：３０～９５：５である。

[0071] 環状オレフィン単量体を２種以上用いる場合、及び、環状オレフィン単量体と任意の単量体を組み合わせて用いる場合は、重合体（γ）は、ブロック共重合体であってもよく、ランダム共重合体であってもよい。

[0072] 重合体（γ）の合成には、通常、付加重合触媒を用いる。このような付加重合触媒としては、例えば、バナジウム化合物及び有機アルミニウム化合物から形成されるバナジウム系触媒、チタン化合物及び有機アルミニウム化合物から形成されるチタン系触媒、ジルコニウム錯体及びアルミノオキサンから形成されるジルコニウム系触媒等が挙げられる。また、付加重合触媒は、１種類を単独で用いてもよく、２種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

[0073] 付加重合触媒の量は、単量体１モルに対して、好ましくは０．０００００１モル以上、より好ましくは０．００００１モル以上であり、好ましくは０．１モル以下、より好ましくは０．０１モル以下である。

[0074] 環状オレフィン単量体の付加重合は、通常、有機溶媒中で行われる。有機溶媒としては、環状オレフィン単量体の開環重合に用いうる有機溶媒として示した範囲から選択されるものを任意に用いうる。また、有機溶媒は、１種類を単独で用いてもよく、２種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。

[0075] 重合体（γ）を製造するための重合における重合温度は、好ましくは－５０℃以上、より好ましくは－３０℃以上、特に好ましくは－２０℃以上であり、好ましくは２５０℃以下、より好ましくは２００℃以下、特に好ましくは１５０℃以下である。また、重合時間は、好ましくは３０分以上、より好

ましくは１時間以上であり、好ましくは２０時間以下、より好ましくは１０時間以下である。

[0076] 上述した製造方法により、重合体（γ）が得られる。この重合体（γ）を水素化することにより、重合体（δ）を製造することができる。

重合体（γ）の水素化は、重合体（α）を水素化する方法として先に示したものと同様の方法により、行いうる。

[0077] Ａ層が、脂環式構造含有重合体として結晶性の重合体を含む場合、その結晶化度は、好ましくは１％以上、より好ましくは２％以上、さらにより好ましくは３％以上である。このように高い結晶化度を有することにより、Ａ層に高い耐熱性及び耐薬品性を付与することができる。結晶性を有する重合体の結晶化度の上限に制限は無いが、好ましくは７０％以下、より好ましくは６０％以下、特に好ましくは５０％以下である。結晶化度が前記の上限値以下であることにより、Ａ層の透明性を良好にし易い。重合体の結晶化度は、Ｘ線回折法によって測定しうる。

[0078] 結晶性を有する重合体の融点は、好ましくは２００℃以上、より好ましくは２３０℃以上であり、好ましくは２９０℃以下である。このような融点を有する重合体を用いることによって、成形性と耐熱性とのバランスに更に優れたＡ層を得ることができる。

[0079] 結晶性を有する重合体の重量平均分子量（Ｍｗ）は、好ましくは１，０００以上、より好ましくは２，０００以上であり、好ましくは１，０００，０００以下、より好ましくは５００，０００以下である。このような重量平均分子量を有する重合体は、成形加工性と耐熱性とのバランスに優れる。

[0080] 結晶性を有する重合体の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、好ましくは１．０以上、より好ましくは１．５以上であり、好ましくは４．０以下、より好ましくは３．５以下である。ここで、Ｍｎは数平均分子量を表す。このような分子量分布を有する重合体は、成形加工性に優れる。

結晶性を有する重合体の重量平均分子量（Ｍｗ）及び分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、テトラヒドロフランを展開溶媒とするゲル・パーミエーション・

クロマトグラフィー（ＧＰＣ）により、ポリスチレン換算値として測定しうる。

[0081] 〔２．２．非結晶性の脂環式構造含有重合体〕

非結晶性の脂環式構造含有重合体とは、上に述べた脂環式構造含有重合体のうち、結晶性を有しないものである。非結晶性の脂環式構造含有重合体を構成する単量体の例としては、上に述べた、結晶性の脂環式構造含有重合体を構成する単量体の例と同様のものが挙げられる。非結晶性の脂環式構造含有重合体は、上に述べた単量体を、既知の重合法により重合し、シンジオタクチック立体規則性の度合いが低い重合体、通常のアタクチックな重合体又はアイソタクチックな重合体とすることにより製造しうる。重合の態様は、開環重合及び付加重合のいずれであってもよい。

非結晶性の脂環式構造含有重合体を含む樹脂としては、市販の製品を用いうる。そのような製品の例としては、日本ゼオン社製「ＺＥＯＮＯＲ」、ＪＳＲ社製「ＡＲＴＯＮ」、ＴＯＰＡＳ ＡＤＶＡＮＣＥＤ ＰＯＬＹＭＥＲＳ社製「ＴＯＰＡＳ」、三井化学社製「アペル」が挙げられる。

[0082] 〔２．３．ブロック共重合体水素化物［Ｄ］〕

本発明における脂環式構造含有重合体の一例であるブロック共重合体水素化物［Ｄ］は、特定のブロック共重合体［Ｃ］を水素化してなる。ブロック共重合体［Ｃ］は、１分子あたり２つ以上の特定の重合体ブロック［Ａ］と、１分子あたり１つ以上の特定の重合体ブロック［Ｂ］からなる。ブロック共重合体水素化物［Ｄ］は、結晶性のものであっても非結晶性のものであってもよいが、通常は非結晶性である。

[0083] 〔２．３．１．重合体ブロック［Ａ］〕

重合体ブロック［Ａ］は、芳香族ビニル化合物由来の繰り返し単位［Ｉ］を主成分とする。本願において、ある化合物由来の単位とは、その化合物の重合により得られる構造を有する単位である。重合体ブロック［Ａ］中の、芳香族ビニル化合物由来の繰り返し単位［Ｉ］の含有量は、好ましくは９８重量％以上、より好ましくは９９重量％以上である。重合体ブロック［Ａ］

の芳香族ビニル化合物由来の繰り返し単位［Ｉ］以外の繰り返し単位の例としては、鎖状共役ジエン由来の繰り返し単位［ＩＩ］及び／又はその他のビニル化合物（即ち、ビニル化合物であって、且つ芳香族ビニル化合物でも鎖状共役ジエン化合物でも無い化合物）由来の繰り返し単位［ＩＩＩ］が挙げられる。その含有量は、好ましくは２重量％以下、より好ましくは１重量％以下である。

[0084] 重合体ブロック［Ａ］中の鎖状共役ジエン由来の繰り返し単位［ＩＩ］及び／又はその他のビニル化合物由来の繰り返し単位［ＩＩＩ］の成分を前記下限値以下とすることにより、Ａ層の耐熱性を向上させることができる。ブロック共重合体［Ｃ］に含まれる２つの重合体ブロック［Ａ］同士は、上記の範囲を満足するものであれば、互いに同じであっても、相異なっていても良い。

[0085] 〔２．３．２．重合体ブロック［Ｂ］〕

重合体ブロック［Ｂ］は、鎖状共役ジエン化合物由来の繰り返し単位［ＩＩ］を主成分とするか、又は芳香族ビニル化合物由来の繰り返し単位［Ｉ］及び鎖状共役ジエン化合物由来の繰り返し単位［ＩＩ］を主成分とするものである。重合体ブロック［Ｂ］に占める、繰り返し単位［Ｉ］の重量分率ｗ［ＩＢ］及び繰り返し単位［ＩＩ］の重量分率ｗ［ＩＩＢ］の比、即ちｗ［ＩＢ］／ｗ［ＩＩＢ］は、好ましくは５０／５０以下、より好ましくは４５／５５以下、さらにより好ましくは４０／６０以下であり、一方好ましくは０／１００以上、より好ましくは５／９５以上、さらにより好ましくは１０／９０以上である。

[0086] 重合体ブロック［Ｂ］中の、繰り返し単位［Ｉ］及び繰り返し単位［ＩＩ］の合計含有量は、好ましくは９５重量％以上、より好ましくは９７重量％以上、さらにより好ましくは９９重量％以上である。重合体ブロック［Ｂ］中の、繰り返し単位［Ｉ］及び繰り返し単位［ＩＩ］以外の成分としては、その他のビニル化合物由来の繰り返し単位［ＩＩＩ］が挙げられる。その含有量は、好ましくは５重量％以下、より好ましくは３重量％以下、さらによ

り好ましくは１重量％以下である。

[0087] 重合体ブロック［Ｂ］中の、繰り返し単位［Ｉ］及び繰り返し単位［ＩＩ］の含有割合を上記範囲にすることにより、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］を含むＡ層の機械的強度と柔軟性を向上させることができ、位相差変化に対する耐熱性を向上させることができる。

[0088] 〔２．３．３．芳香族ビニル化合物〕

芳香族ビニル化合物の例としては、スチレン；α－メチルスチレン、２－メチルスチレン、３－メチルスチレン、４－メチルスチレン、２，４－ジイソプロピルスチレン、２，４－ジメチルスチレン、４－ｔ－ブチルスチレン、５－ｔ－ブチル－２－メチルスチレンなどの、置換基として炭素数１～６のアルキル基を有するスチレン類；４－クロロスチレン、ジクロロスチレン、４－モノフルオロスチレンなどの、置換基としてハロゲン原子を有するスチレン類；４－メトキシスチレンなどの、置換基として炭素数１～６のアルコキシ基を有するスチレン類；４－フェニルスチレンなどの、置換基としてアリール基を有するスチレン類；１－ビニルナフタレン、２－ビニルナフタレンなどのビニルナフタレン類；などが挙げられる。これらの中でも、吸湿性の観点から、スチレン、置換基として炭素数１～６のアルキル基を有するスチレン類などの、極性基を含有しない芳香族ビニル化合物が好ましく、工業的な入手の容易さから、スチレンが特に好ましい。

[0089] 〔２．３．４．鎖状共役ジエン系化合物〕

鎖状共役ジエン系化合物の例としては、１，３－ブタジエン、イソプレン、２，３－ジメチル－１，３－ブタジエン、１，３－ペンタジエンなどが挙げられる。なかでも、吸湿性の観点から、極性基を含有しない鎖状共役ジエン系化合物が好ましく、工業的な入手の容易さから、１，３－ブタジエン、イソプレンが特に好ましい。

[0090] 〔２．３．５．その他のビニル系化合物〕

その他のビニル系化合物の例としては、鎖状オレフィン化合物、環状オレフィン化合物、不飽和の環状酸無水物、不飽和イミド化合物などが挙げられ

る。これらの化合物は、ニトリル基、アルコキシカルボニル基、ヒドロキシカルボニル基、又はハロゲン原子を置換基として有していてもよい。

[0091] これらの中でも、吸湿性の観点から、エチレン、プロピレン、１－ブテン、１－ペンテン、１－ヘキセン、１－ヘプテン、１－オクテン、１－ノネン、１－デセン、１－ドデセン、１－エイコセン、４－メチル－１－ペンテン、４，６－ジメチル－１－ヘプテンなどの炭素数２～２０の鎖状オレフィン化合物；ビニルシクロヘキサン、４－ビニルシクロヘキセン、ノルボルネンなどの１分子当たり炭素数５～２０の環状オレフィン化合物；などの、極性基を含有しないものが好ましく、１分子当たり炭素数２～２０の鎖状オレフィン化合物がより好ましく、エチレン、プロピレンが特に好ましい。

[0092] 〔２．３．６．ブロック共重合体［Ｃ］〕

好ましい例において、１分子のブロック共重合体［Ｃ］が有する重合体ブロック［Ａ］及び重合体ブロック［Ｂ］の数は、通常、重合体ブロック［Ａ］が２つであり、且つ重合体ブロック［Ｂ］が１つである。従ってブロック共重合体［Ｃ］は通常［Ａ］－［Ｂ］－［Ａ］のトリブロック構造を有する。但しブロック共重合体［Ｃ］はトリブロック構造を有するものに限定されず、例えば［Ａ］－［Ｂ］－［Ａ］－［Ｂ］－［Ａ］のペンタブロック構造を有するものであってもよい。

[0093] ブロック共重合体[Ｃ]が２つ以上の重合体ブロック［Ａ］を有する場合、これらは互いに同じであっても、相異なってもよい。１分子のブロック共重合体［Ｃ］が有する２つの重合体ブロック［Ａ］の重量平均分子量は同一でも相異なってもよい。重合体ブロック［Ａ］の重量平均分子量をＭｗ（Ａ）は各々３，０００～９０，０００、好ましくは３，５００～８０，０００、より好ましくは４，０００～６０，０００である。

[0094] 重合体ブロック［Ａ］のＭｗ（Ａ）が３，０００以上であることにより、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］の機械的強度を良好なものとすることができる。一方重合体ブロック［Ａ］のＭｗ（Ａ）が９０，０００以下であることにより、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］の溶融成形性を良好なものとす

ることができる。

[0095] ブロック共重合体［Ｃ］中の、全重合体ブロック［Ａ］がブロック共重合体［Ｃ］に占める重量分率ｗＡと、重合体ブロック［Ｂ］がブロック共重合体［Ｃ］に占める重量分率ｗＢとは、所定の比率を有することが好ましい。即ちｗＡとｗＢとの比（ｗＡ／ｗＢ）は好ましくは５０／５０以上、より好ましくは５３／４７以上、さらにより好ましくは５７／４３以上であり、一方好ましくは７５／２５以下、より好ましくは７０／３０以下、さらにより好ましくは６５／３５以下である。ｗＡ／ｗＢを前記上限以下とすることにより、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］に柔軟性を付与し、良好な機械的強度を付与することができる。ｗＡ／ｗＢを前記下限以上とすることにより、良好な耐熱性を付与することができる。

[0096] ブロック共重合体［Ｃ］の分子量は、テトラヒドロフラン（ＴＨＦ）を溶媒とするゲル・パーミエーション・クロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定されるポリスチレン換算の重量平均分子量（Ｍｗ）で、好ましくは６０，０００以上、より好ましくは６５，０００以上、さらにより好ましくは７０，０００以上であり、一方好ましくは１５０，０００以下、より好ましくは１３０，０００以下、さらにより好ましくは１００，０００以下である。また、ブロック共重合体［Ｃ］の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、好ましくは３以下、より好ましくは２以下、特に好ましくは１．５以下である。

[0097] ブロック共重合体［Ｃ］は、芳香族ビニル化合物を主成分として含有するモノマー混合物（ａ）、及び鎖状共役ジエン系化合物を主成分として含有するか、又は芳香族ビニル化合物及び鎖状共役ジエン系化合物を主成分として含有するモノマー混合物（ｂ）を用いて製造することができる。例えば、リビングアニオン重合などの方法により、モノマー混合物（ａ）とモノマー混合物（ｂ）とを交互に重合させる方法；モノマー混合物（ａ）とモノマー混合物（ｂ）を順に重合させた後、重合体ブロック［Ｂ］の末端同士を、カップリング剤によりカップリングさせる方法；などにより製造することができる。

[0098] モノマー混合物（ｂ）が、芳香族ビニル化合物及び鎖状共役ジエン系化合物を主成分として含有する場合、モノマー混合物（ｂ）を重合させて共重合体ブロック［Ｂ］を形成させる工程では、モノマー混合物（ｂ）を重合反応系に少量ずつ連続的に供給することが好ましい。それにより、芳香族ビニル化合物と鎖状共役ジエン化合物の重合速度が大きく異なる場合であっても、モノマー組成の均質な共重合体ブロック［Ｂ］を形成することができる。これにより、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］の耐熱性を向上させることができる。

[0099] 〔２．３．７．ブロック共重合体水素化物［Ｄ］〕

ブロック共重合体水素化物［Ｄ］は、ブロック共重合体［Ｃ］の主鎖及び側鎖の炭素－炭素不飽和結合、並びに、芳香環の炭素－炭素不飽和結合を水素化することにより得うる。

[0100] ブロック共重合体水素化物［Ｄ］の水素化率（ブロック共重合体［Ｃ］の全不飽和結合のうち、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］において水素化されたものの割合）は、好ましくは９０％以上、好ましくは９５％以上、より好ましくは９９％以上である。水素化率が高いほど、成形体の耐候性、耐熱性及び透明性が良好である。ブロック共重合体水素化物［Ｄ］の水素化率は、^{1}Ｈ－ＮＭＲ、又はＧＰＣによるＵＶ検出器及びＲＩ検出器によるピーク面積の比較などにより求めうる。^{1}Ｈ－ＮＭＲは、具体的には、上に述べた重合体（β）及び重合体（δ）の水素添加率の測定と同様に行いうる。

[0101] 不飽和結合の水素化方法や反応形態などは特に限定されず、既知の方法にしたがって行いうる。水素化率を高くでき、重合体鎖切断反応の少ない水素化方法が好ましい。このような水素化方法の例としては、例えば、国際公開第２０１１／０９６３８９号に記載された方法、及び国際公開第２０１２／０４３７０８号に記載された方法が挙げられる。

[0102] 水素化反応終了後、水素化触媒及び／又は重合触媒を反応溶液から除去した後、得られた溶液からブロック共重合体水素化物［Ｄ］を回収することができる。ブロック共重合体水素化物［Ｄ］は、通常はペレット状の形状とし

、その後の操作に供しうる。

[0103] ブロック共重合体水素化物［Ｄ］の分子量は、ＴＨＦを溶媒としたＧＰＣにより測定されるポリスチレン換算の重量平均分子量（Ｍｗ）で、好ましくは５０，０００以上、より好ましくは５５，０００以上、さらにより好ましくは６０，０００以上であり、一方好ましくは１５０，０００以下、より好ましくは１３０，０００以下、さらにより好ましくは１００，０００以下としうる。ブロック共重合体水素化物［Ｄ］の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、好ましくは３以下、より好ましくは２以下、特に好ましくは１．５以下にする。Ｍｗ及びＭｗ／Ｍｎが上記範囲となるようにすると、成形したＡ層の位相差の変化に対する耐熱性や機械的強度が良好である。

[0104] 〔２．４．脂環式構造含有重合体の割合〕

Ａ層を構成する脂環式構造含有重合体樹脂における、脂環式構造含有重合体の割合は、好ましくは５０重量％以上、より好ましくは７０重量％以上、特に好ましくは９０重量％以上である。脂環式構造含有重合体の割合を当該範囲内とすることにより、高い機械的強度及び良好な光学的特性等の、脂環式構造含有重合体の利点を得ることができる。

[0105] 〔２．５．任意の成分〕

Ａ層を構成する脂環式構造含有重合体樹脂は、脂環式構造含有重合体以外に、任意の成分を含有しうる。任意の成分の例としては、架橋助剤；酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤などの安定剤；滑剤、可塑剤などの樹脂改質剤；染料や顔料などの着色剤；帯電防止剤などの配合剤が挙げられる。これらの配合剤は１種単独で、あるいは２種以上を組み合わせて用いることができ、その配合量は本発明の目的を損なわない範囲で適宜選択される。

[0106] 〔２．６．Ａ層フィルムの成形〕

本発明の複層光学フィルムを製造するための材料としての、Ａ層のフィルム（以下において単に「Ａ層フィルム」という場合がある）は、上に述べた各種の脂環式構造含有重合体樹脂のいずれかをフィルムの形状に成形することにより得られる。

[0107] フィルムの成形方法は、特に限定されず、溶融押出成形等の既知の方法を採用しうる。

[0108] Ａ層フィルムは、溶融押出成形等により成形されたものそのままであってもよく、さらに延伸が施されたものであってもよい。

Ａ層フィルムが延伸フィルムである場合、延伸前のフィルムに施される延伸の態様は、一軸延伸、二軸延伸等の任意の態様としうる。また、延伸前のフィルムが長尺状のフィルムである場合、延伸の方向は、縦方向（長尺状のフィルムの長手方向に平行な方向）、横方向（長尺状のフィルムの幅方向に平行な方向）、及び斜め方向（縦方向でも横方向でも無い方向）のいずれであってもよい。

[0109] Ａ層フィルムが延伸フィルムである場合、延伸前のフィルムに施される延伸の延伸倍率は、好ましくは１．１倍以上、より好ましくは１．５倍以上であり、一方好ましくは７倍以下、より好ましくは６倍以下である。延伸温度は、好ましくは８０℃以上、より好ましくは１００℃以上であり、一方好ましくは２００℃以下、より好ましくは１８０℃以下である。

[0110] 〔２．７．Ａ層の形状及び物性〕

本発明の複層光学フィルムは好ましくは長尺のフィルムであり、従ってＡ層も好ましくは長尺のフィルムである。

[0111] Ａ層の厚みは、特に限定されず、Ａ層を光学フィルムとして用いる際に求められる所望の厚みとしうる。具体的には、Ａ層の厚みは、好ましくは１μｍ以上、より好ましくは５μｍ以上であり、一方好ましくは２００μｍ以下、より好ましくは１５０μｍ以下である。

[0112] Ａ層は、その用途に応じて、異方性を有していてもよく、異方性を実質的に有さない等方性のものであってもよい。例えば、Ａ層の面内レターデーションＲｅは、０～６００ｎｍの範囲で適宜設定しうる。また、Ａ層の厚み方向のレターデーションＲｔｈは、０～１０００ｎｍの範囲で適宜設定しうる。本発明によれば、Ａ層は、Ｂ層を伴った複層光学フィルムの状態においてもその光学的特性を容易に測定しうるので、Ａ層の光学的特性に関する品質

管理を容易に行うことができる。

[0113] Ａ層のガラス転移温度は、特に限定されないが、好ましくは９０℃以上、より好ましくは１００℃以上であり、一方好ましくは２００℃以下、より好ましくは１９０℃以下である。かかる範囲のガラス転移温度を有することにより、光学フィルムとして加工及び使用するのに適したものとすることができ、且つ、Ａ層の表面上にＢ層を形成する工程を容易に行うことができる。

[0114] 〔３．Ｂ層〕

本発明の複層光学フィルムにおけるＢ層は、マスキング層として機能する。即ち、Ｂ層は、本発明の複層光学フィルムを、巻回体とした場合において、巻回体内部においてＡ層同士が直接接触することを回避させ、ブロッキング等の不所望な現象を抑制する層として機能する。複層光学フィルムを巻回体から巻き出し、Ａ層を光学フィルムとして使用する場合、Ｂ層は、複層光学フィルムを巻き出した後、任意の適切な段階においてＡ層から剥離しうる。剥離されたＢ層は、廃棄するか、もしくは適切な手段により再利用しうる。

[0115] Ｂ層は、架橋性重合体（ａ）の分散物及び固形粒子（ｂ）を含む材料Ｙの硬化物である。

[0116] 架橋性重合体（ａ）は、架橋性基を有する重合体である。架橋性基の例としては、メチロール基、ビニル基、エポキシ基、及びこれらの組み合わせが挙げられ、中でもメチロール基が好ましい。架橋性重合体（ａ）における架橋性基の数は、所望の物性のＢ層が得られるよう適宜調整しうる。例えば、架橋性重合体（ａ）における架橋性基の数は、好ましくは１．０×１０$^{-5}$ｍｏｌ／ｇ以上、より好ましくは３．０×１０$^{-5}$ｍｏｌ／ｇ以上であり、一方好ましくは１．０×１０$^{-3}$ｍｏｌ／ｇ以下、より好ましくは１．０×１０$^{-4}$ｍｏｌ／ｇ以下である。

[0117] 架橋性重合体（ａ）は、架橋性単位を含みうる。架橋性単位とは、架橋性基を有する重合単位である。架橋性重合体（ａ）は、架橋性単量体（即ち架橋性基を有する単量体）を含む単量体組成物（ａ）を重合して製造しうる。

架橋性単量体の例としては、Ｎ－メチロールアクリルアミド、ジビニルベンゼン、アクリル酸グリシジル、メタクリル酸グリシジル等が挙げられ、中でもＮ－メチロールアクリルアミドが好ましい。架橋性重合体（ａ）における架橋性単位の割合は、所望の数の架橋性基が得られるよう適宜調整しうる。例えば、架橋性重合体（ａ）において、好ましくは０．１重量％以上、より好ましくは０．３重量％以上であり、一方好ましくは１０重量％以下、より好ましくは１．０重量％以下である。

[0118] 架橋性重合体（ａ）は、架橋性単位以外の任意の単位を含みうる。任意の単位の例としては、（メタ）アクリレート単量体由来の単位、α，β－不飽和ニトリル単量体由来の単位、（メタ）アクリル酸単量体由来の単位、及びこれらの組み合わせが挙げられる。これらの単位を含み、これらの割合を適宜調整することにより、所望の物性のＢ層を得ることができる。

[0119] （メタ）アクリレート単量体の例としては、メチルアクリレート、メチルメタクリレート、エチルアクリレート、エチルメタクリレート、ｎ－プロピルアクリレート、ｎ－プロピルメタクリレート、ｎ－ブチルアクリレート、ｎ－ブチルメタクリレート及びこれらの組み合わせが挙げられる。架橋性重合体（ａ）における（メタ）アクリレート単量体由来の単位の割合は、所望の物性のＢ層が得られるよう適宜調整しうる。例えば、架橋性重合体（ａ）において、好ましくは７７重量％以上、より好ましくは８０重量％以上であり、一方好ましくは９８重量％以下、より好ましくは９５重量％以下である。

[0120] α，β－不飽和ニトリル単量体の例としては、アクリロニトリル、メタクリロニトリル及びこれらの組み合わせが挙げられ、アクリロニトリルが特に好ましい。架橋性重合体（ａ）におけるα，β－不飽和ニトリル単量体由来の単位の割合は、所望の物性のＢ層が得られるよう適宜調整しうる。例えば、架橋性重合体（ａ）において、好ましくは５重量％以上、より好ましくは８重量％以上であり、一方好ましくは１５重量％以下、より好ましくは１２重量％以下である。

[0121] （メタ）アクリル酸単量体の例としては、アクリル酸、メタクリル酸及びこれらの組み合わせが挙げられる。架橋性重合体（ａ）における（メタ）アクリル酸単量体由来の単位の割合は、所望の物性のＢ層が得られるよう適宜調整しうる。例えば、架橋性重合体（ａ）１００重量部当たり、好ましくは０．５重量部以上、より好ましくは１．０重量部以上であり、一方好ましくは２．０重量部以下、より好ましくは１．５重量部以下である。

[0122] 前記架橋性重合体（ａ）は、そのガラス転移温度が、０℃以上、好ましくは１５℃以上であり、一方４０℃以下、好ましくは３５℃以下である。ガラス転移温度を前記下限以上とすることにより、粘着性の少ないＢ層を容易に形成することができ、巻取り及び繰り出しにおける取り扱い性を向上させることができる。ガラス転移温度を前記上限以下とすることにより、Ｂ層に十分な柔軟性を賦与することができ、Ａ層からＢ層を剥離する際に、安定した剥離を行うことができる。

[0123] 架橋性重合体（ａ）は、材料Ｙ中において分散物として存在する。具体的には、架橋性重合体（ａ）は、材料Ｙ中において、体積平均粒子径が５００ｎｍ以下、好ましくは１０～３００ｎｍの粒径の粒子の形状で存在し、材料Ｙ中の溶媒と共にラテックスを形成する。架橋性重合体が材料Ｙ中において分散物として存在することにより、材料Ｙが硬化した際に所望の物性を有するＢ層を得ることができる。

[0124] 固形粒子（ｂ）は、材料Ｙにおいて、固形物として存在する粒子である。固形粒子（ｂ）の材料の例としては、シリカ、アルミナ、及びこれらの混合物が挙げられる。

[0125] 固形粒子（ｂ）の体積平均粒子径ｄｂは、Ｂ層の膜厚ｔＢとの間において、特定の関係を有することが好ましい。具体的には、ｄｂとｔＢの比ｄｂ／ｔＢが、好ましくは０．０２以上、より好ましくは０．０３以上、さらにより好ましくは０．０５以上であり、一方好ましくは０．３以下、より好ましくは０．２以下である。ｄｂ／ｔＢが当該範囲であることにより、ブロッキングの効果的な抑制等の、本発明の好ましい効果を容易に得ることができ、

且つ、オレンジピール等の不所望な現象を低減することができる。

[0126] 材料Ｙは、分散物として存在する架橋性重合体（ａ）、及び固形粒子（ｂ）に加えて、溶媒を含みうる。溶媒の例としては、水、メチルエチルケトン、メタノール、Ｎ－メチルピロリドン、２－プロパノール及びこれらの混合物を挙げることができ、水が特に好ましい。材料Ｙにおける溶媒の割合は、材料ＹがＢ層の形成に適した性状となるよう適宜調整しうる。具体的には材料Ｙの固形分濃度（材料Ｙから溶媒を揮発させた際に残存する成分の濃度；材料Ｙにおいて固形粒子として存在しているもののみならず、材料Ｙ中に溶解している不揮発性の成分をも含む）が、３５～５０重量％となるよう適宜調整しうる。

[0127] 材料ＹのＡ層表面への接触角は、好ましくは３０度以下、より好ましくは２８度以下である。接触角が低いことにより、塗布抜けを防ぐ事ができ、安定してＢ層を形成することができる。接触角の下限は、特に限定されないが０度以上としうる。材料ＹのＡ層表面への接触角が高い場合は、Ａ層表面にコロナ処理等の表面処理を施すことにより、接触角を低減することが可能である。ただし、かかる表面処理を行った場合、表面処理に起因する異物が発生する場合があり、それにより複層光学フィルムの光学性能が損なわれる場合がある。本発明では、Ａ層を構成する材料、及び材料Ｙの成分を上に例示したものから適宜選択することにより、コロナ処理等の表面処理を行わなくても、このような低い接触角を達成しうる。

[0128] Ｂ層は、材料Ｙの硬化物である。Ｂ層は、Ａ層の表面上に材料Ｙを塗布して材料Ｙの層を形成し、これを硬化させることにより、容易に形成することができる。具体的に説明すると、従来行われているマスキングフィルムによるマスキングでは、保護される長尺のフィルムとは別に、長尺のマスキングフィルムを形成し、これらを、長手方向を揃えて貼合している。このような操作を行うためには、複数本の長尺のフィルムを扱い、且つこれらを正確に向きを揃えて貼合するための製造ラインが必要となる。これに対して、本発明の複層光学フィルムの製造は、１本のフィルム（Ａ層）を搬送し、その上

に材料Ｙを塗布し硬化させる装置があれば実施できるため、比較的簡易な装置による製造が可能である。

[0129] 材料Ｙの塗布は、ダイコーター等の塗布装置を用いて行いうる。塗布により形成された材料Ｙの層の厚み（ウェット厚み）は、所望の厚みのＢ層が得られるよう適宜調整しうる。材料Ｙの層の硬化は、材料Ｙの層を加熱することにより行いうる。かかる加熱により、溶媒を揮発させ、架橋性基の反応による架橋を形成させ、材料Ｙの層の硬化を達成しうる。加熱の条件は、かかる硬化が達成されるよう適宜調整しうる。例えば、加熱温度は１００～１８０℃、加熱時間は０．５～２分間としうる。Ｂ層として、このような材料Ｙの硬化物の層を採用することにより、所望の性能を有するマスキング層を低コストで形成できる。

[0130] このような硬化を行った場合、Ｂ層において、架橋性重合体（ａ）の分散物は通常分散物としての粒子状の形状をほとんど残さず架橋した硬化物となる一方、固形粒子（ｂ）は、材料Ｙ中に存在していた際の形状と同様の形状でＢ層において存在する。Ｂ層の、Ａ層とは反対側の面（図１における面１２０Ｕ）には、固形粒子（ｂ）に起因する微細な凹凸形状が形成されうる一方、Ｂ層のＡ層に接する側の面（図１における面１２０Ｄ）は、そのような凹凸が形成されず、Ａ層１１０の表面１１０Ｕの形状に追随した平坦な形状となる。したがって、オレンジピール等の形成が転写されるといった問題が低減される。

[0131] また、このような硬化を行った場合、本発明の複層光学フィルムにおいて、Ｂ層は、位相差の少ない層としうる。Ｂ層の位相差が少ないと、複層光学フィルムの光学的性質を測定することにより、Ｂ層以外の層（具体的にはＡ層）の光学的性質を容易に測定することができる。したがって、Ｂ層の位相差が少ないと、マスキングがされた状態を維持しながらＢ層以外の層の光学的品質を容易に測定及び管理することができる。具体的には、Ｂ層の面内レターデーションＲｅは、好ましくは０．５ｎｍ以下、より好ましくは０．４ｎｍ以下であり、理想的には０ｎｍである。Ｂ層の厚み方向のレターデーシ

ョンＲｔｈは、好ましくは－２ｎｍ以上、より好ましくは－１．５ｎｍ以上であり、好ましくは２ｎｍ以下、より好ましくは１．５ｎｍ以下である。このような低い位相差を得るために、Ｂ層は、材料Ｙの硬化を行った後に、延伸等の位相差を変化させる工程を経ずに、複層光学フィルムとすることが好ましい。

[0132] Ｂ層の厚みｔＢは、１０μｍ以上、好ましくは１２μｍ以上であり、一方２５μｍ以下、好ましくは２０μｍ以下である。かかる厚み範囲を有することにより、Ｂ層を、良好なマスキング性能を有し、且つ容易に剥離しうる層とすることができる。

[0133] Ｂ層の引張弾性率は、好ましくは５００ＭＰａ以上、より好ましくは６００ＭＰａ以上、さらにより好ましくは１０００ＭＰａ以上、特により好ましくは１５００ＭＰａ以上であり、一方好ましくは２２００ＭＰａ以下、より好ましくは２０００ＭＰａ以下である。Ｂ層の引張弾性率がかかる範囲であることにより、良好なマスキング性能を有し、且つ容易に剥離しうる層とすることができる。Ｂ層の引張弾性率の測定方法は、ＪＩＳ　Ｋ７１２７に準拠しうる。かかる範囲の引張弾性率は、Ｂ層を構成する材料を、上に例示した材料から適宜選択することにより得ることができる。

[0134] Ｂ層の破断伸度εＢは、好ましくは１０％以上、より好ましくは２０％以上であり、一方好ましくは３００％以下、より好ましくは２００％以下である。Ｂ層の破断伸度εＢがかかる範囲であることにより、容易に剥離しうる層とすることができる。Ｂ層の破断伸度の測定方法は、ＪＩＳ　Ｋ７１２７に準拠しうる。かかる範囲の伸度は、Ｂ層を構成する材料を、上に例示した材料から適宜選択することにより得ることができる。

[0135] 〔４．複層光学フィルム〕

本発明の複層光学フィルムは、図１に示す複層光学フィルム１００の例の通り、１層のみのＡ層とその片面に直接接して設けられた１層のＢ層のみからなりうる。しかしながら、本発明の複層光学フィルムはこれに限られず、１枚の複層光学フィルムが有するＡ層及びＢ層の枚数は、それぞれ２枚以上

であってもよい。例えば、本発明の複層光学フィルムは、１層のＡ層と、その両面に直接接して設けられた２層のＢ層を備えるものであってもよい。

[0136] 本発明の複層光学フィルムの幅方向の寸法は、例えば５００～２５００ｍｍとしうる。また、長さは、例えば５００～６０００ｍとしうる。本発明の複層光学フィルムは、このような長尺の形状として製造し、巻き取って巻回体とすることにより、好ましく保存しうる。

[0137] 本発明の複層光学フィルムの全光線透過率は、好ましくは９０％以上、より好ましくは９１％以上である。複層光学フィルムがかかる高い全光線透過率を有することにより、Ｂ層以外の層（具体的にはＡ層）の光学的性質を容易に測定することができる。したがって、マスキングがされた状態を維持しながらＢ層以外の層の光学的品質を容易に測定及び管理することができる。全光線透過率は、例えば、ヘイズメーター（日本電色工業株式会社製「ＮＤＨ４０００」等）を用いて、ＪＩＳ　Ｋ７３６１に準拠して測定しうる。かかる範囲の全光線透過率は、Ａ層及びＢ層を構成する材料を、上に例示した材料から適宜選択することにより得ることができる。

[0138] 本発明の複層光学フィルムにおいては、Ａ層とＢ層との間の剥離強度が、好ましくは０．００５Ｎ／５０ｍｍ以上、より好ましくは０．０１Ｎ／５０ｍｍ以上であり、一方好ましくは０．０５Ｎ／５０ｍｍ以下、より好ましくは０．０４Ｎ／５０ｍｍ以下である。かかる範囲の剥離強度を有することにより、Ｂ層による良好なマスキングを達成することができ、且つＢ層をＡ層から容易に剥離することができる。かかる範囲の剥離強度は、Ａ層及びＢ層を構成する材料を、上に例示した材料から適宜選択することにより得ることができる。また、Ａ層及びＢ層を構成する材料を、上に例示した材料から適宜選択することにより、巻回体として長期間保存しても、上記範囲内の剥離強度を維持しうる複層光学フィルムを容易に得ることができる。Ａ層とＢ層との間の剥離強度は、複層光学フィルムを幅方向５０ｍｍ、長手方向２００ｍｍの矩形の試験片とし、剥離方向１８０°、剥離速度３００ｍｍ／ｍｉｎにてＢ層をＡ層から剥離し、剥離に要する力を、適切な測定機器（例えば高

性能型デジタルフォースゲージＺＰ－５Ｎ（イマダ社製））を用いて測定することにより測定しうる。

[0139] 〔５．複層光学フィルムから剥離したＡ層の用途〕

本発明の複層光学フィルムからＢ層を剥離した後のＡ層は、各種の光学装置の部材として用いうる。例えば、偏光板において偏光子層を保護する保護フィルム、位相差フィルム等の、各種の光学部材として用いうる。

実施例

[0140] 以下、実施例を示して本発明について具体的に説明する。ただし、本発明は以下に示す実施例に限定されるものではなく、本発明の請求の範囲及びその均等の範囲を逸脱しない範囲において任意に変更して実施しうる。

以下の説明において、量を表す「％」及び「部」は、別に断らない限り重量基準である。また、以下に説明する操作は、別に断らない限り、常温及び常圧の条件において行った。

[0141] 〔評価方法〕

〔ガラス転移温度〕

窒素雰囲気下で３００℃に加熱した試料を液体窒素で急冷し、示差操作熱量計（ＤＳＣ）を用いて、１０℃／分で昇温して試料のガラス転移温度Ｔｇを求めた。測定対象がフィルムの場合は、当該フィルムをそのまま試料として測定した。測定対象が液体状のラテックスである場合、当該ラテックスの乾燥フィルムを作製し、それを試料として測定した。乾燥フィルムは、ラテックスをガラスモールドに流延し、温度２０℃、相対湿度６５％の恒温恒湿室に４８時間静置することにより乾燥させて作製した。

[0142] 〔Ｂ層とＡ層との間の剥離強度〕

製造した複層光学フィルムの巻回体の巻末から長尺の複層光学フィルムを引き出して、３箇所から試験片を切り出した。それぞれの試験片の形状は幅方向５０ｍｍ、長手方向２００ｍｍの矩形とし、試験片の長手方向が、長尺の複層光学フィルムの長手方向と一致するよう切り出した。３つの試験片を切り出す３つの位置は、長尺の複層光学フィルムの幅方向の３箇所（幅方向

に間隔をあけて離れた３箇所）とした。それぞれの試験片において、Ｂ層をＡ層から剥離し、剥離強度を測定した。Ｂ層の剥離方向は１８０°方向とし、剥離の速度は３００ｍｍ／ｍｉｎとし、試験片の長手方向の一端から他端に剥離が進むよう剥離した。剥離強度を検出する機器としては、高性能型デジタルフォースゲージＺＰ－５Ｎ（イマダ社製）を使用した。３つの試験片についての測定結果の平均値を剥離強度として得た。

[0143] 〔複層光学フィルムの全光線透過率〕

複層光学フィルムを切断し、５０ｍｍ×５０ｍｍの試料を得た。試料の全光線透過率をＮＤＨ４０００（日本電色工業社製）を用いて、ＪＩＳ　Ｋ７３６１に準拠して測定した。

[0144] 〔各層の厚み〕

複層光学フィルムを切断し、５０ｍｍ×５０ｍｍの試料を得た。試料のＡ層とＢ層とを剥離して、それぞれについて、スナップゲージ（ミツトヨ製）で任意の４箇所において厚みを測定し、その平均値を厚みとして得た。

[0145] 〔各層の位相差〕

複層光学フィルムを切断し、５０ｍｍ×５０ｍｍの試料を得た。試料のＡ層とＢ層とを剥離して、それぞれについて、面内レターデーションＲｅ、及び厚み方向のレターデーションＲｔｈを、自動複屈折計（王子計測機器社製「ＫＯＢＲＡ－２１ＡＤＨ」）を用いて、測定波長５９０ｎｍで測定した。

[0146] 〔材料ＹのＡ層表面への接触角測定〕

Ａ層フィルムを切断し、１００ｍｍ×１００ｍｍの試料を得た。テフロン（登録商標）コート針２２Ｇを付けたＤｒｏｐＭａｓｔｅｒ（協和界面科学社製）を用いて、材料ＹをＡ層表面に着液させ、着液から３秒後の液滴の接触角を測定した。

[0147] 〔製造例１〕

脱イオン水３０部に、アクリル酸エチル４８．２部、メタクリル酸メチル４０部、アクリロニトリル１０部、Ｎ－メチロールアクリルアミド０．５部、およびアククリル酸１．３部からなる単量体混合物、ならびに、ラウリル

硫酸ナトリウム０．３部を添加して混合物とし、混合物を撹拌して、単量体乳化物を得た。

[0148] 還流冷却器、滴下ロート、温度計、窒素吹込口、および撹拌機を備えたガラス製反応容器を準備し、このガラス製反応容器に、脱イオン水５０部を入れ、上記にて得られた単量体乳化物のうち１０重量％を添加して、次いで、温度を７０℃に昇温させた。そして、７０℃を維持した状態で、脱イオン水４部に溶解させた過硫酸アンモニウム０．２部を添加して、重合反応を開始した。重合反応開始後９０分経過した時点で、脱イオン水２部に溶解させた過硫酸アンモニウム０．１部を添加し、上記にて得られた単量体乳化物の残り（９０重量％）を、５時間かけて徐々に添加した。そして、添加終了後、反応容器を８０℃に昇温し、さらに４時間撹拌を継続した後、冷却して反応を終了させ、ラテックスを得た。この時の重合転化率は９８％以上であった。ラテックスに１０％アンモニア水溶液を添加してｐＨを６．５に調整し、これにより、共重合体ラテックス（Ａ）を得た。得られた共重合体ラテックス（Ａ）のガラス転移温度（Ｔｇ）を測定したところ、ガラス転移温度（Ｔｇ）は３５℃であった。

[0149] 〔製造例２〕

撹拌装置を備えたステンレス製耐圧反応器に、シードラテックス（スチレン３８部、１，３－ブタジエン６０部及びメタクリル酸２部を重合して得られる、粒子径７０ｎｍの重合体粒子のラテックス）を固形分にて１６部、スチレン：６３．８部、１，３－ブタジエン：１８部、メタクリル酸：３．２部、ドデシルジフェニルエーテルスルホン酸ナトリウム：１．２部、ナフタレンスルホン酸ナトリウムのホルムアルデヒド縮合物：０．３部、ｔ－ドデシルメルカプタン：０．２部、エチレンジアミン四酢酸ナトリウム：０．０１部、重炭酸ナトリウム：０．３部、およびイオン交換水：１６７部を入れ、撹拌した。次いで、反応器内の温度を５０℃に昇温した後、３％過硫酸カリウム水溶液：１２部を投入して重合反応を開始させた。重合転化率が５０％に達したとき、反応温度を５５℃に昇温し、さらに、重合転化率が９０％

に達したとき、反応温度を７０℃に昇温した。反応温度を７０℃に維持しながら、さらに８時間、重合反応を継続した。その後、５％亜硝酸ナトリウム水溶液：０．５部を添加して、重合反応を停止し、未反応単量体を除去し、ラテックスを得た。その後、５％水酸化カリウム水溶液を添加することによりラテックスのｐＨを９に調整した。これにより、共重合体ラテックス（Ｂ）を得た。この時の重合転化率は９８％以上であり、得られた共重合体ラテックス（Ｂ）のガラス転移温度（Ｔｇ）を測定したところ、ガラス転移温度（Ｔｇ）は４４℃であった。

[0150] 〔製造例３〕

（Ｐ３－１）ブロック共重合体［Ｃ１］の製造

攪拌装置を備え、内部が十分に窒素置換された反応器に、脱水シクロヘキサン２７０部、脱水スチレン７５部及びジブチルエーテル７．０部を入れた。全容を６０℃で攪拌しながら、ｎ－ブチルリチウム（１５％シクロヘキサン溶液）５．６部を加えて重合を開始させた。引続き全容を６０℃で６０分間攪拌した。反応温度は、反応停止まで６０℃を維持した。この時点（重合第１段階）で反応液をガスクロマトグラフィー（以下、「ＧＣ」と記載することがある。）及びＧＰＣにより分析した結果、重合転化率は９９．４％であった。

[0151] 次に、反応液に、脱水イソプレン１５部を４０分間に亘って連続的に添加し、添加終了後そのまま３０分間攪拌を続けた。この時点（重合第２段階）で、反応液をＧＣ及びＧＰＣにより分析した結果、重合転化率は９９．８％であった。

その後、更に、反応液に脱水スチレン１０部を、３０分間に亘って連続的に添加し、添加終了後そのまま３０分攪拌した。この時点（重合第３段階）で、反応液をＧＣ及びＧＰＣにより分析した結果、重合転化率はほぼ１００％であった。

[0152] ここで、イソプロピルアルコール１．０部を加えて反応を停止させることによって、［Ａ１］－［Ｂ］－［Ａ２］型のブロック共重合体［Ｃ１］を含

む重合体溶液を得た。得られたブロック共重合体［Ｃ１］においては、Ｍｗ［Ｃ１］＝８２，４００、Ｍｗ／Ｍｎは１．３２、ｗＡ：ｗＢ＝８５：１５であった。

[0153] （Ｐ３－２）水素化ブロック共重合体［Ｄ１］の製造

（Ｐ３－１）で得た重合体溶液を、攪拌装置を備えた耐圧反応器に移送し、水素化触媒として、珪藻土担持型ニッケル触媒（製品名「Ｅ２２Ｕ」、ニッケル担持量６０％、日揮触媒化成社製）４．０部、及び脱水シクロヘキサン３０部を添加して混合した。反応器内部を水素ガスで置換し、さらに溶液を攪拌しながら水素を供給し、温度１９０℃、圧力４．５ＭＰａにて６時間水素化反応を行った。

水素化反応により得られた反応溶液には、水素化ブロック共重合体［Ｄ１］が含まれていた。水素化ブロック共重合体のＭｗ［Ｄ１］は７１，８００、分子量分布Ｍｗ／Ｍｎは１．３０、水素化率はほぼ１００％であった。

[0154] 水素化反応終了後、反応溶液を濾過して水素化触媒を除去した後、フェノール系酸化防止剤であるペンタエリスリチル・テトラキス［３－（３，５－ジ－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート］（製品名「ＡＯ６０」、ＡＤＥＫＡ社製）０．３部を溶解したキシレン溶液２．０部を添加して溶解し、溶液とした。

次いで、上記溶液を、円筒型濃縮乾燥器（製品名「コントロ」、日立製作所社製）を用いて、温度２６０℃、圧力０．００１ＭＰａ以下で処理し、溶液からシクロヘキサン、キシレン及びその他の揮発成分を除去し、溶融した樹脂を得た。これをダイからストランド状に押出し、冷却し、ペレタイザーによりペレットに成形した。これにより、水素化ブロック共重合体［Ｄ１］を含む、樹脂［Ｄ１］のペレット９５部を製造した。

得られた樹脂［Ｄ１］における水素化ブロック共重合体［Ｄ１］は、Ｍｗ［Ｄ１］＝６８，５００、Ｍｗ／Ｍｎ＝１．３０、Ｔｓ＝１３９℃であった。

[0155] 〔実施例１〕

（１－１．材料Ｙの調製）

固形粒子として、非晶質二酸化ケイ素の粒子（商品名「サイリシア３１０Ｐ」富士シリシア化学社製、体積平均粒子径２．７μｍ）を用意した。固形粒子とイオン交換水を混合して、固形分濃度０．２５％の固形粒子水分散体を得た。得られた固形粒子水分散体と、架橋性重合体としての、製造例１で得られた共重合体ラテックス（Ａ）とを混合し、固形分４１％の液状の水系樹脂組成物を得た。これを材料Ｙとして用いた。

[0156] （１－２．Ａ層フィルムの製造）

非結晶性の脂環式構造含有重合体を含む樹脂（ガラス転移温度１６０℃；日本ゼオン社製「ＺＥＯＮＯＲ」）のペレットを１００℃で５時間乾燥した。その後、乾燥した樹脂のペレットを、単軸の押出し機に供給した。樹脂は押出し機内で加熱され溶融された後、ポリマーパイプ及びポリマーフィルターを経て、Ｔダイからキャスティングドラム上にシート状に押出されて、冷却された。これにより、脂環式構造含有重合体樹脂からなる、厚み３０μｍ、幅１５００ｍｍの長尺のＡ層フィルムを得た。

材料ＹのＡ層表面への接触角を測定したところ、２６度であった。

[0157] （１－３．複層光学フィルムの製造及び評価）

（１－２）で得たＡ層フィルムの一方の面上に、（１－１）で得た材料Ｙを、スロットダイコーターを用いて、ウエット厚み２５μｍで塗布し、材料Ｙの層を形成した。これを、１２５℃に設定したフローティング式の乾燥オーブンに通し、材料Ｙの層を乾燥させ、硬化させた。これにより、Ａ層フィルム上に、Ｂ層を形成し、厚み３０μｍのＡ層及び厚み１０μｍのＢ層からなる、幅１５００ｍｍの複層光学フィルムを得た。得られた複層光学フィルムは、巻取り巻回体とした。

[0158] 得られた複層光学フィルムを評価した。Ｂ層はＲｅ＝０．０４ｎｍ、Ｒｔｈ＝－０．７ｎｍであった。Ａ層はＲｅ＝２ｎｍ、Ｒｔｈ＝６ｎｍであった。また、Ｂ層の引張弾性率は１７６０ＭＰａ、破断伸度は３０％であった。Ａ層とＢ層との間の剥離強度は０．０１１Ｎ／５０ｍｍであった。複層光学

フィルムの全光線透過率は９１．９％、ｄｂ／ｔＢは０．２７であった。

[0159] 得られた複層光学フィルムのＢ層をロールから連続で剥離しながら巻き出した際、Ｂ層は安定して剥離可能であった。

[0160] 〔実施例２〕

（１－１）において、非晶質二酸化ケイ素の粒子を、他の非晶質二酸化ケイ素の粒子（商品名「シーホスターＫＥ－Ｐ１５０」、日本触媒社製、体積平均粒子径１．５μｍ）に変更した以外は実施例１と同様の手順で、複層光学フィルムの巻回体を得た。得られた複層光学フィルムは、厚み３０μｍのＡ層及び厚み１０μｍのＢ層を有する、幅１５００ｍｍのフィルムであった。

[0161] 得られたＡ層及び複層光学フィルムを評価した。Ｂ層はＲｅ＝０．０５ｎｍ、Ｒｔｈ＝－０．９ｎｍであった。Ａ層はＲｅ＝２ｎｍ、Ｒｔｈ＝６ｎｍであった。また、Ｂ層の引張弾性率は１７６０ＭＰａ、破断伸度は３０％であった。Ａ層とＢ層との間の剥離強度は０．０１Ｎ／５０ｍｍであった。複層光学フィルムの全光線透過率は９２％、ｄｂ／ｔＢは０．１５、材料ＹのＡ層表面への接触角は２６度であった。

[0162] 得られた複層光学フィルムのＢ層をロールから連続で剥離しながら巻き出した際、Ｂ層は安定して剥離可能であった。

[0163] 〔実施例３〕

（１－３）において、材料Ｙを塗布する際のウェット厚みを４０μｍに変更した以外は実施例１と同様の手順で、複層光学フィルムの巻回体を得た。得られた複層光学フィルムは、厚み３０μｍのＡ層及び厚み１６μｍのＢ層を有する、幅１５００ｍｍのフィルムであった。

[0164] 得られたＡ層及び複層光学フィルムを評価した。Ｂ層はＲｅ＝０．０６ｎｍ、Ｒｔｈ＝－１．１ｎｍであった。Ａ層はＲｅ＝２ｎｍ、Ｒｔｈ＝６ｎｍであった。また、Ｂ層の引張弾性率は１７００ＭＰａ、破断伸度は３５％であった。Ａ層とＢ層との間の剥離強度は０．０１１Ｎ／５０ｍｍであった。複層光学フィルムの全光線透過率は９１．７％、ｄｂ／ｔＢは０．１７、材

料ＹのＡ層表面への接触角は２６度であった。

[0165] 得られた複層光学フィルムのＢ層をロールから連続で剥離しながら巻き出した際、Ｂ層は安定して剥離可能であった。

[0166] 〔実施例４〕

（１－２）において、非結晶性の脂環式構造含有重合体を含む樹脂（ガラス転移温度１６０℃；日本ゼオン社製「ＺＥＯＮＯＲ」）を製造例３で得た樹脂［Ｄ１］に変更し、（１－３）において、材料Ｙを塗布する際のウェット厚みを４０μｍに変更した以外は実施例１と同様の手順で、複層光学フィルムの巻回体を得た。得られた複層光学フィルムは、厚み３０μｍのＡ層及び厚み１６μｍのＢ層を有する、幅１５００ｍｍのフィルムであった。

[0167] 得られたＡ層及び複層光学フィルムを評価した。Ｂ層はＲｅ＝０．０６ｎｍ、Ｒｔｈ＝－１．１ｎｍであった。Ａ層はＲｅ＝０．１ｎｍ、Ｒｔｈ＝０．２ｎｍであった。また、Ｂ層の引張弾性率は１７００ＭＰａ、破断伸度は３５％であった。Ａ層とＢ層との間の剥離強度は０．０１１Ｎ／５０ｍｍであった。複層光学フィルムの全光線透過率は９１．７％、ｄｂ／ｔＢは０．１７、材料ＹのＡ層表面への接触角は２６度であった。

[0168] 得られた複層光学フィルムのＢ層をロールから連続で剥離しながら巻き出した際、Ｂ層は安定して剥離可能であった。

[0169] 〔実施例５〕

（１－１）において、非晶質二酸化ケイ素の粒子を、他の非晶質二酸化ケイ素の粒子（商品名「シーホスターＫＥ－Ｐ１００」、日本触媒社製、体積平均粒子径１．０μｍ）に変更した以外は実施例１と同様の手順で、複層光学フィルムの巻回体を得た。得られた複層光学フィルムは、厚み３０μｍのＡ層及び厚み１０μｍのＢ層を有する、幅１５００ｍｍのフィルムであった。

[0170] 得られたＡ層及び複層光学フィルムを評価した。Ｂ層はＲｅ＝０．０５ｎｍ、Ｒｔｈ＝－０．９ｎｍであった。Ａ層はＲｅ＝２ｎｍ、Ｒｔｈ＝６ｎｍであった。また、Ｂ層の引張弾性率は１７５０ＭＰａ、破断伸度は３０％で

あった。Ａ層とＢ層との間の剥離強度は０．０１Ｎ／５０ｍｍであった。複層光学フィルムの全光線透過率は９２％、ｄｂ／ｔＢは０．０６、材料ＹのＡ層表面への接触角は２６度であった。

[0171] 得られた複層光学フィルムのＢ層をロールから連続で剥離しながら巻き出した際、Ｂ層は安定して剥離可能であった。

[0172] 〔比較例１〕

下記の事項を変更した以外は、実施例１と同様の手順で、複層光学フィルムの巻回体を得た。

・（１－１）において、共重合体ラテックス（Ａ）に代えて、製造例２で得られた共重合体ラテックス（Ｂ）を用いた。

・材料Ｙの、Ａ層フィルム表面への接触角は７１度と濡れ性が不十分であり、そのままでは塗布を行うことができなかったため、（１－３）において、材料Ｙの塗布を行う前に、Ａ層フィルムの被塗布面に、０．３ｋＷの出力でコロナ処理を施した。

複層光学フィルムの全光線透過率は８９％であった。得られた複層光学フィルムのＡ層とＢ層とを剥離することを試みたところ、Ｂ層が割れてしまい、膜として剥離できなかった。

[0173] 〔比較例２〕

（１－３）において、材料Ｙを塗布する際のウェット厚みを７μｍに変更した以外は実施例１と同様の手順で、複層光学フィルムの巻回体を得た。

得られた複層光学フィルムは、厚み３０μｍのＡ層及び厚み３μｍのＢ層を有する、幅１５００ｍｍのフィルムであった。

[0174] 得られたＡ層及び複層光学フィルムを評価した。Ｂ層はＲｅ＝０．０２ｎｍ、Ｒｔｈ＝－０．３ｎｍであった。Ａ層はＲｅ＝２ｎｍ、Ｒｔｈ＝６ｎｍであった。複層光学フィルムの全光線透過率は９１．８％、ｄｂ／ｔＢは０．９０、材料ＹのＡ層表面への接触角は２６度であった。得られた複層光学フィルムのＡ層とＢ層とを剥離することを試みたところ、膜が破壊し、剥離強度を安定して測定できなかった。

[0175] 〔比較例３〕

（１－３）において、材料Ｙを塗布する際のウェット厚みを７０μｍに変更した以外は実施例１と同様の手順で、複層光学フィルムの製造を試みた。材料Ｙの層の硬化を十分に行うことができず、Ｂ層を形成することができなかった。

[0176] 〔比較例４〕

（１－１）において、非晶質二酸化ケイ素の粒子を添加しなかった以外は実施例１と同様の手順で、複層光学フィルムの巻回体を得た。即ち、（１－１）において、イオン交換水と、アクリレート系重合体のラテックスとを混合し、材料Ｙとして、固形分４１％の液状の水系樹脂組成物を得て、これを材料Ｙとして用いた。

得られた複層光学フィルムは、厚み３０μｍのＡ層及び厚み１０μｍのＢ層を有する、幅１５００ｍｍのフィルムであった。複層光学フィルムの全光線透過率は９２％、ｄｂ／ｔＢは０、材料ＹのＡ層表面への接触角は２６度であった。

[0177] 得られた複層光学フィルムの評価を試みたが、ロールからフィルムを巻き出した際、複層光学フィルムのＢ層側の面と、巻回体においてそれに隣接する複層光学フィルムのＡ層側の面との間でブロッキングが見られた。

[0178] 〔比較例５〕

（１－３）において、材料Ｙを塗布する際のウェット厚みを２０μｍに変更した以外は実施例１と同様の手順で、複層光学フィルムの巻回体を得た。得られた複層光学フィルムは、厚み３０μｍのＡ層及び厚み８μｍのＢ層を有する、幅１５００ｍｍのフィルムであった。

[0179] 得られたＡ層及び複層光学フィルムを評価した。Ｂ層はＲｅ＝０．０３ｎｍ、Ｒｔｈ＝－０．５ｎｍであった。Ａ層はＲｅ＝２ｎｍ、Ｒｔｈ＝６ｎｍであった。また、Ｂ層の引張弾性率は１７４０ＭＰａ、破断伸度は１．５％であった。Ａ層とＢ層との間の剥離強度は０．０１Ｎ／５０ｍｍであった。複層光学フィルムの全光線透過率は９１．７％、ｄｂ／ｔＢは０．３４、材

料ＹのＡ層表面への接触角は２６度であった。

[0180] 得られた複層光学フィルムのＢ層をロールから連続で剥離しながら巻き出した際、Ｂ層が途中で破断し安定して剥離不可能であった。

[0181] 〔比較例６〕

（１－３）において、材料Ｙを塗布する際のウェット厚みを１５μｍに変更した以外は実施例１と同様の手順で、複層光学フィルムの巻回体を得た。得られた複層光学フィルムは、厚み３０μｍのＡ層及び厚み６μｍのＢ層を有する、幅１５００ｍｍのフィルムであった。

[0182] 得られたＡ層及び複層光学フィルムを評価した。Ｂ層はＲｅ＝０．０３ｎｍ、Ｒｔｈ＝－０．４ｎｍであった。Ａ層はＲｅ＝２ｎｍ、Ｒｔｈ＝６ｎｍであった。また、Ｂ層の引張弾性率は１７８０ＭＰａ、破断伸度は１．４％であった。Ａ層とＢ層との間の剥離強度は０．０１Ｎ／５０ｍｍであった。複層光学フィルムの全光線透過率は９１．７％、ｄｂ／ｔＢは０．４５、材料ＹのＡ層表面への接触角は２６度であった。

[0183] 得られた複層光学フィルムのＢ層をロールから連続で剥離しながら巻き出した際、Ｂ層が途中で破断し安定して剥離不可能であった。

符号の説明

[0184] １００：複層光学フィルム

１１０：Ａ層

１１０Ｄ：複層光学フィルムのＡ層側の表面

１１０Ｕ：Ａ層の一方の面

１２０：Ｂ層

１２０Ｄ：Ｂ層のＡ層に接する側の面

１２０Ｕ：複層光学フィルムのＢ層側の表面

１２１：架橋性重合体（ａ）の硬化物

１２２：固形粒子（ｂ）

請求の範囲

[請求項1] 脂環式構造含有重合体樹脂からなるＡ層と、

前記Ａ層の少なくとも片面に直接接して設けられたマスキング層であるＢ層とを備える、複層光学フィルムであって、

前記Ｂ層は、架橋性重合体（ａ）の分散物及び固形粒子（ｂ）を含む材料Ｙの硬化物であり、

前記Ｂ層の厚みｔＢが、１０μｍ以上２５μｍ以下、

前記架橋性重合体（ａ）のガラス転移温度が０℃以上４０℃以下である、複層光学フィルム。

[請求項2] 前記固形粒子（ｂ）が、シリカ、アルミナ、及びこれらの混合物からなる群から選択される材料の粒子である、請求項１に記載の複層光学フィルム。

[請求項3] 前記固形粒子（ｂ）の体積平均粒子径ｄｂが、０．０２≦ｄｂ／ｔＢ≦０．３の関係を満たす、請求項１又は２に記載の複層光学フィルム。

[請求項4] 前記架橋性重合体（ａ）が、メチロール基、ビニル基、エポキシ基、及びこれらの組み合わせからなる群より選択される架橋性基を含む、請求項１～３のいずれか１項に記載の複層光学フィルム。

[請求項5] 前記Ｂ層の引張弾性率ＥＢが５００ＭＰａ≦ＥＢ≦２２００ＭＰａである請求項１～４のいずれか１項に記載の複層光学フィルム。

[請求項6] 前記Ｂ層の破断伸度εＢが１０％≦εＢ≦３００％である、請求項１～５のいずれか１項に記載の複層光学フィルム。

[請求項7] 前記材料ＹのＡ層表面への接触角が３０度以下である、請求項１～６のいずれか１項に記載の複層光学フィルム。

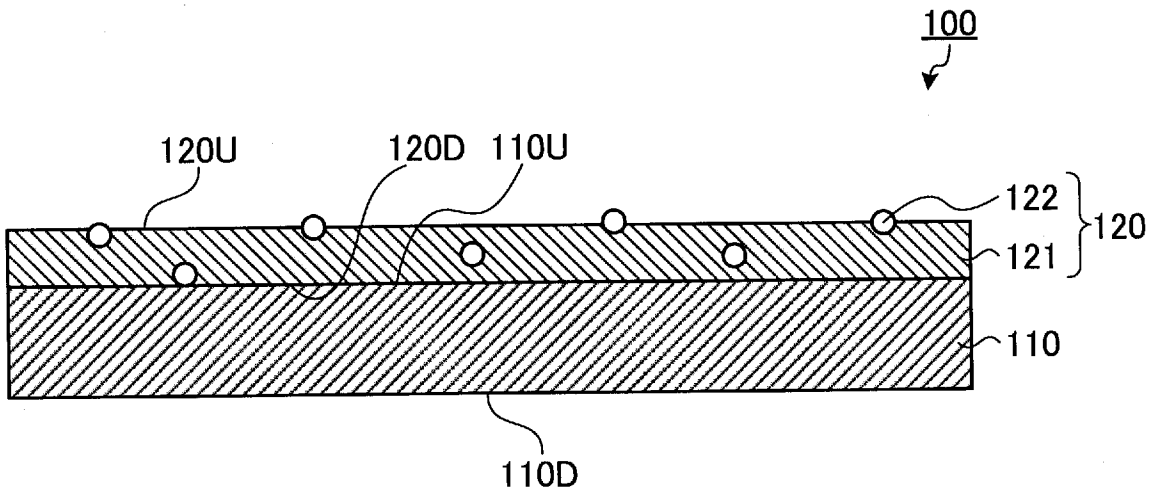
[請求項8] 請求項１～７のいずれか１項に記載の複層光学フィルムの製造方法であって、

前記Ａ層の表面上に、架橋性重合体（ａ）の分散物及び固形粒子（ｂ）を含む材料Ｙを塗布し、前記材料Ｙの層を形成する工程、及び

前記材料Ｙの層を硬化させる工程

を含む製造方法。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/011854

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
G02B5/30(2006.01)i, *B32B7/06*(2006.01)i, *B32B27/20*(2006.01)i, *B32B27/32*(2006.01)i, *C08J7/04*(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
G02B5/30, B32B7/06, B32B27/20, B32B27/32, C08J7/04

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	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

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.
A	JP 2008-518279 A (3M Innovative Properties Co.), 29 May 2008 (29.05.2008), & US 2006/0159888 A1	1-8
A	JP 2010-38924 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 18 February 2010 (18.02.2010), (Family: none)	1-8
A	JP 2010-72111 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 02 April 2010 (02.04.2010), (Family: none)	1-8
A	JP 2013-79360 A (Nitto Denko Corp.), 02 May 2013 (02.05.2013), & US 2013/0071656 A1	1-8

☒ 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 05 June 2017 (05.06.17)	Date of mailing of the international search report 13 June 2017 (13.06.17)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3,Kasumigaseki,Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915,Japan	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/011854

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2012-32821 A (3M Innovative Properties Co.), 16 February 2012 (16.02.2012), & US 2006/0093809 A1	1-8
A	JP 2003-64297 A (Nippon Zeon Co., Ltd.), 05 March 2003 (05.03.2003), (Family: none)	1-8
P,A	JP 2016-190373 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 10 November 2016 (10.11.2016), (Family: none)	1-8

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１７／０１１８５４

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　G02B5/30(2006.01)i, B32B7/06(2006.01)i, B32B27/20(2006.01)i, B32B27/32(2006.01)i, C08J7/04(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.　G02B5/30, B32B7/06, B32B27/20, B32B27/32, C08J7/04

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	１９７１－２０１７年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１７年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１７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
A	JP 2008-518279 A（スリーエム　イノベイティブ　プロパティズ　カンパニー）2008.05.29, & US 2006/0159888 A1	１－８
A	JP 2010-38924 A（三井化学株式会社）2010.02.18, (ファミリーなし)	１－８
A	JP 2010-72111 A（大日本印刷株式会社）2010.04.02, (ファミリーなし)	１－８

☑ 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 ０５．０６．２０１７	国際調査報告の発送日 １３．０６．２０１７
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）　４Ｓ　９８４３ 加賀　直人 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４７４

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
A	JP 2013-79360 A (日東電工株式会社) 2013.05.02, & US 2013/0071656 A1	１－８
A	JP 2012-32821 A (スリーエム　イノベイティブ　プロパティズ　カンパニー) 2012.02.16, & US 2006/0093809 A1	１－８
A	JP 2003-64297 A (日本ゼオン株式会社) 2003.03.05, (ファミリーなし)	１－８
P, A	JP 2016-190373 A (大日本印刷株式会社) 2016.11.10, (ファミリーなし)	１－８