

(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
2010 年 5 月 27 日(27.05.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/058723 A1

- (51) 国際特許分類:
C08L 25/12 (2006.01) C08L 35/06 (2006.01)
C08J 5/18 (2006.01) G02B 5/30 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/069183
- (22) 国際出願日: 2009 年 11 月 11 日(11.11.2009)
- (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 2008-298457 2008 年 11 月 21 日(21.11.2008) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 電気化学工業株式会社(DENKI KAGAKU KOGYO KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてののみ): 大橋 慶太(OHASHI Keita) [JP/JP]; 〒2908588 千葉県市原市五井南海岸 6 番地 電気化学工業株式会社千葉工場内 Chiba (JP). 小澤 幸一(OZAWA Koichi) [JP/JP]; 〒2908588 千葉県市原市五井南海岸 6 番地 電気化学工業株式会社千葉工場内 Chiba (JP). 野口 哲央(NOGUCHI Tetsuo) [JP/JP]; 〒2908588 千葉県市原市五井南海岸 6 番地 電気化学工業株式会社千葉工場内 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 園田 吉隆, 外(SONODA Yoshitaka et al.); 〒1630434 東京都新宿区西新宿二丁目 1 番 1 号 新宿三井ビル 3 4 階 園田・小林特許事務所 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: RESIN COMPOSITION FOR OPTICAL FILM AND OPTICAL FILM THEREOF

(54) 発明の名称: 光学フィルム用樹脂組成物及びその光学フィルム

(57) Abstract: Disclosed is a resin composition for an optical film having excellent transparency, heat-resistance, film formability, film strength, and phase difference expression; further disclosed is an optical film with few film defects and a negative orientation birefringence. Said composition contains: 20-40 mass% of a styrene-maleimide copolymer (A) with a weight-average molecular weight (Mw) of 100,000-145,000, comprised of 35-55 mass% of a styrene monomer unit, 30-60 mass% of a maleimide monomer unit, 0-15 mass% of an unsaturated dicarboxylic anhydride monomer unit, and 0-15 mass% of an acrylonitrile monomer unit; and 60-80 mass% of a styrene-acrylonitrile copolymer (B) with an Mw of 150,000-250,000, comprised of 65-70 mass% of a styrene monomer unit and 30-35 mass% of an acrylonitrile monomer unit.

(57) 要約: 本発明は、透明性、耐熱性、フィルム成形性、フィルム強度および位相差発現性が良好である光学フィルム用樹脂組成物、並びにフィルム欠陥が少なく、負の配向複屈折性を示す光学フィルムに関する。スチレン系単量体単位 35～55 質量%、マレイミド系単量体単位 30～60 質量%、不飽和ジカルボン酸無水物単量体単位 0～15 質量%、アクリロニトリル系単量体単位 0～15 質量%からなり、重量平均分子量 (Mw) が 100,000～145,000 であるスチレン-マレイミド系共重合体 (A) 20～40 質量%と、スチレン系単量体単位 65～70 質量%、アクリロニトリル系単量体単位 30～35 質量%からなり、Mw が 150,000～250,000 であるスチレン-アクリロニトリル系共重合体 (B) 60～80 質量%とを含有する。

WO 2010/058723 A1

明 細 書

発明の名称：光学フィルム用樹脂組成物及びその光学フィルム 技術分野

[0001] 本発明は、光学フィルム用樹脂組成物及びその光学フィルムに関するものである。

背景技術

[0002] 液晶ディスプレイ表示素子、エレクトロルミネッセンス素子などに、光学異方性を制御した光学成形体が用いられている。

[0003] 光学成形体には数多くの種類がある。例えば、光学フィルムがある。光学フィルムの1つとして、液晶ディスプレイの液晶の位相差を補償したり、視野角を向上させたりする役割を担う位相差フィルムと呼ばれるフィルムがある。位相差フィルムとしては例えばポリカーボネートや非晶性の環状ポリオレフィンが用いられていて、これらは正の配向複屈折性を有している。これと負の配向複屈折性を示す光学フィルムとを貼りあわせることで、更に視野角を向上させることができることが知られている。

一方、負の配向複屈折性を示す光学フィルムは実用化にはいたってはいないが、特許文献1、2に記載されているように、ポリスチレン、スチレンーアクリロニトリル共重合体や、スチレンー無水マレイン酸共重合体などが知られている。しかし、これらは、耐熱性やフィルム強度の面で不十分である。これに対し、耐熱性とフィルム強度とを向上させた光学フィルムとしては特許文献3に記載されているものが知られている。

[0004] 特許文献1：特開2002-040258号公報

特許文献2：特開2005-292311号公報

特許文献3：特開2008-094912号公報

発明の概要

[0005] しかしながら、現在、更にフィルム強度が高く、しかも異物の混入や未溶融ブツの発生等によって生じるフィルム欠陥の少ない光学フィルムが求められ

ており、特許文献3の方法では必ずしもこの課題を解決することはできない。

本発明の目的は、光学フィルム用樹脂組成物及びその光学フィルムを提供するものである。また、強度が高く、フィルム欠陥が少なく、負の配向複屈折性を示し、位相差発現性に優れたフィルムを提供するものである。

[0006] 本発明は、以下を要旨とするものである。

(1) (i) スチレン系単量体単位35～55質量%、マレイミド系単量体単位30～60質量%、不飽和ジカルボン酸無水物単量体単位0～15質量%、アクリロニトリル系単量体単位0～15質量%からなり、重量平均分子量(Mw)が100,000～145,000であるスチレンーマレイミド系共重合体(A)20～40質量%と、

(ii) スチレン系単量体単位65～70質量%、アクリロニトリル系単量体単位30～35質量%からなり、重量平均分子量(Mw)が150,000～250,000であるスチレンーアクリロニトリル系共重合体(B)60～80質量%と

を含有してなる光学フィルム用樹脂組成物であって、厚み100 μ mの未延伸フィルムに成形した場合に長さ50 μ m以上のフィルム欠陥が5個/m²未満である光学フィルム用樹脂組成物。

(2) スチレンーマレイミド系共重合体(A)が溶液重合もしくは塊状重合により得られることを特徴とする(1)記載の光学フィルム用樹脂組成物。

(3) スチレンーアクリロニトリル系共重合体(B)が塊状重合もしくは溶液重合により得られることを特徴とする(1)又は(2)記載の光学フィルム用樹脂組成物。

(4) ガラス転移温度が110～150℃である(1)～(3)のいずれかに記載の光学フィルム用樹脂組成物。

(5) (1)～(4)のいずれかに記載の光学フィルム用樹脂組成物からなる光学フィルム。

(6) 延伸して配向させると負の配向複屈折性を示す(5)に記載の光学フ

ィルム。

(7) 溶融押出フィルムであって、さらに延伸して配向させると負の配向複屈折性を示す(5)に記載の光学フィルム。

(8) 延伸フィルムであることを特徴とする(6)又は(7)に記載の光学フィルム。

(9) 位相差フィルムであることを特徴とする(8)に記載の光学フィルム。

ここで「フィルム欠陥」とは、異物の混入や未溶融ブツの発生等により、周囲とは不均一となって見える部分を指す。未溶融ブツは、主として、溶融混練が不十分なために分散しきらなかったスチレンーマレイミド系共重合体(A)に起因する。フィルム欠陥の測定は、本発明に係る光学フィルム用樹脂組成物を押出成形機を用いて厚み100 μ mの未延伸フィルムに成形した後、画像処理解析装置を用いて、未延伸フィルム1m²あたりに存在する長さ50 μ m以上のフィルム欠陥の数を調べることによって行われる。

また「光学フィルム」とは、位相差フィルム、反射防止フィルム、偏光子保護フィルム等の光学用途に使用されるフィルムをいい、「溶融押出フィルム」とは溶融押出により形成されたフィルムをいう。

[0007] 本発明の樹脂組成物は、透明性、耐熱性、フィルム成形性、フィルム強度が良好なことから、薄型液晶表示素子用の光学フィルムに有用であり、特に、延伸して配向させたフィルムはフィルム欠陥が少なく、負の配向複屈折性を示し、かつ位相差発現性に優れることから位相差フィルムに有用である。

発明を実施するための形態

[0008] <スチレンーマレイミド系共重合体(A)>

スチレンーマレイミド系共重合体(A)の構成比率は、スチレン系単量体単位35～55質量%、マレイミド系単量体単位30～60質量%、不飽和ジカルボン酸無水物単量体単位0～15質量%、アクリロニトリル系単量体単位0～15質量%である。

スチレン系単量体単位が35質量%以上、または、マレイミド系単量体単位

が60質量%以下であれば、後述するスチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）と混合しやすくなるため、未溶融ブツの発生を抑制することができる。その結果、フィルム欠陥の発生を低減することができる。スチレン系単量体単位が55質量%以下、または、マレイミド系単量体単位が30質量%以上であれば、フィルムの透明性を十分に確保することができる。

不飽和ジカルボン酸無水物単量体単位およびアクリロニトリル系単量体単位は、任意配合成分である。スチレンーマレイミド系共重合体（A）中に不飽和ジカルボン酸無水物単量体単位を配合することにより、フィルムの透明性を向上できる場合がある。また、アクリロニトリル系単量体単位を配合することにより、フィルムの強度を向上できる場合がある。一方、不飽和ジカルボン酸無水物単量体単位が15質量%以下であれば、熱安定性が損なわれずフィルムに着色を生じることがない。また、アクリロニトリル系単量体単位が15質量%以下であれば、フィルムの十分な透明性を確保することができる。

[0009] スチレンーマレイミド系共重合体（A）におけるスチレン系単量体としては、スチレン、 α -メチルスチレン、 o -メチルスチレン、 m -メチルスチレン、 p -メチルスチレン、 t -ブチルスチレン、クロルスチレン等のスチレン系単量体が挙げられ、これらの中でも特にスチレンが好ましい。また、これらのスチレン系単量体は2種以上の混合であってもよい。

[0010] スチレンーマレイミド系共重合体（A）におけるマレイミド系単量体としては、 N -メチルマレイミド、 N -ブチルマレイミド、 N -シクロヘキシルマレイミド等の N -アルキルマレイミド、及び N -フェニルマレイミド、 N -クロルフェニルマレイミド、 N -メチルフェニルマレイミド、 N -メトキシフェニルマレイミド、 N -トリブロモフェニルマレイミド等の N -アリールマレイミド等のマレイミド系単量体が挙げられ、これらの中で特に N -シクロヘキシルマレイミド、 N -フェニルマレイミドが好ましい。また、これらのマレイミド系単量体は2種以上の混合であってもよい。

[0011] スチレンーマレイミド系共重合体（A）における不飽和ジカルボン酸無水物

単量体としては、マレイン酸、イタコン酸、シトラコン酸、アコニット酸等の無水物が挙げられ、特にマレイン酸無水物が好ましい。また、これらの不飽和ジカルボン酸無水物単量体は2種以上の混合であってもよい。

[0012] スチレンーマレイミド系共重合体（A）におけるアクリロニトリル系単量体としては、アクリロニトリル、メタアクリロニトリル等が挙げられ、特にアクリロニトリルが好ましい。また、これらのアクリロニトリル系単量体は2種以上の混合であってもよい。

[0013] スチレンーマレイミド系共重合体（A）には、以上に加えて、共重合可能なビニル系単量体単位、例えばアクリル酸、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸n-ブチル、アクリル酸2エチルヘキシル、メタクリル酸、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸n-ブチル、メタクリル酸2エチルヘキシル等の単量体単位を10質量%未満の範囲で配合してもよい。

[0014] スチレンーマレイミド系共重合体（A）の製造法としては、公知の手法が採用でき、例えば、スチレン系単量体、マレイミド系単量体、アクリロニトリル系単量体および共重合可能なビニル単量体からなる単量体混合物を共重合させる方法や、スチレン系単量体、不飽和ジカルボン酸無水物単量体、アクリロニトリル系単量体及び共重合可能なビニル単量体からなる単量体混合物を共重合させた後、アンモニア及び／または第一級アミンを反応させて酸無水物基をイミド基に変換させる方法等が挙げられる。また、重合の様式は、溶液重合または塊状重合であることが好ましい。懸濁重合や乳化重合で得られたスチレンーマレイミド系共重合体を用いると、フィルムの透明性が低いものとなる場合がある。

[0015] スチレンーマレイミド系共重合体（A）の重量平均分子量（M_w）は、100,000～145,000であり、より好ましくは110,000～130,000である。M_wが145,000以下であれば、後述するスチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）と混合しやすくなるため未溶融ブツの発生を抑えることができ、その結果フィルム欠陥を低減できる。また、M_w

が100,000以上であれば、十分なフィルム強度を得ることができる。
スチレンーマレイミド系共重合体（A）のM_wの制御方法については、特に制限はないが、重合開始剤、連鎖移動剤及び溶剤の種類及び添加量、重合温度等を調節することで制御できる。

[0016] <スチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）>

スチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）のスチレン系単量体とアクリロニトリル系単量体の比率は、スチレン系単量体65～70質量%とアクリロニトリル系単量体30～35質量%である。

スチレン系単量体が65質量%以上でアクリロニトリル系単量体が35質量%以下であれば、フィルムの透明性を十分に確保することができる。スチレン系単量体が70質量%以下でアクリロニトリル系単量体が30質量%以上であれば、フィルム強度を十分に確保することができる。

[0017] スチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）のスチレン系単量体としては、スチレン、 α -メチルスチレン、 o -メチルスチレン、 m -メチルスチレン、 p -メチルスチレン、 t -ブチルスチレン、クロルスチレン等のスチレン系単量体が挙げられ、これらの中でも特にスチレンが好ましい。また、これらのスチレン系単量体は2種以上の混合であってもよい。

[0018] スチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）のアクリロニトリル系単量体としては、アクリロニトリル、メタクリロニトリル等が挙げられ、これらの中では特にアクリロニトリルが好ましい。また、これらのアクリロニトリル系単量体は2種以上の混合であってもよい。

[0019] スチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）には、以上に加えて、共重合可能なビニル系単量体単位、例えばアクリル酸、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸 n -ブチル、アクリル酸2エチルヘキシル、メタクリル酸、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸 n -ブチル、メタクリル酸2エチルヘキシル、マレイン酸無水物等の単量体単位をスチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）に対して10質量%未満の範囲で配合してもよい。

[0020] スチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）の製造法としては、公知の手法が採用でき、例えば、スチレン系単量体、アクリロニトリル系単量体および共重合可能なビニル単量体からなる単量体混合物を共重合させる方法が挙げられる。また、重合の様式は、塊状重合または溶液重合であることが好ましく、さらに好ましくは塊状重合である。懸濁重合や乳化重合で得られたスチレンーアクリロニトリル系共重合体を用いると、フィルムの透明性が劣るものとなる場合がある。

[0021] スチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）のM_wは、150,000～250,000であり、より好ましくは170,000～230,000である。M_wが250,000以下であれば流動性が十分であるためフィルム成形性が良好であり、M_wが150,000以上であればフィルム強度が十分となる。

スチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）のM_wの制御方法については、特に制限はないが、重合開始剤、連鎖移動剤及び溶剤の種類及び添加量、重合温度等を調節することで制御できる。

[0022] <光学フィルム用樹脂組成物>

光学フィルム用の樹脂組成物は、スチレンーマレイミド系共重合体（A）20～40質量%とスチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）60～80質量%、より好ましくはスチレンーマレイミド系共重合体（A）25～35質量%とスチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）65～75質量%とからなる。

スチレンーマレイミド系共重合体（A）が20質量%以上でスチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）が80質量%以下であれば、耐熱性が十分に優れたものとなり、スチレンーマレイミド系共重合体（A）が40質量%以下でスチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）が60質量%以上であれば、フィルム強度が十分に優れたものとなる。

[0023] 光学フィルム用樹脂組成物のガラス転移温度は好ましくは110～150℃であり、より好ましくは115～140℃である。ガラス転移温度が110

℃以上であれば、耐熱性が高いため光学フィルムに好適である。また150℃以下であれば、十分なフィルム成形性を確保することができる。ガラス転移温度は、樹脂組成物を構成する共重合体の組成比等により調整できる。

- [0024] 光学フィルム用樹脂組成物は、厚み100 μ mの未延伸フィルム1m²あたり、長さ50 μ m以上のフィルム欠陥の個数が5個未満である。未延伸フィルムとは、押出成形機を用いて押し出したフィルムであって、押し出した後に延伸処理を施していないフィルムのことを指す。フィルム欠陥は、例えば、LUZEX SE（ニレコ社製）等の画像処理解析装置を用いて測定することができる。

フィルム欠陥の原因となる未溶融ブツは、スチレンーマレイミド系共重合体（A）のマレイミド系単量体単位の構成比率、M_w、及びスチレンーマレイミド系共重合体（A）とスチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）との溶融混練の条件の調節等によって減らすことができる。

- [0025] 光学フィルム用樹脂組成物の製造方法としては、スチレンーマレイミド系共重合体（A）とスチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）とが均一に分散される方法であれば特に制限はなく、公知の混練方法を用いることができるが、例えば二軸押出機を用いて以下のように溶融混練する方法が挙げられる。

- [0026] まずスチレンーマレイミド系共重合体（A）とスチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）との押出方法としては、全量一括フィードする方法や、スチレンーマレイミド系共重合体（A）とスチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）の一部をスクリュウの根元位置からフィードし、スチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）の残りをスクリュウの中間位置からサイドフィードする方法等が挙げられる。

- [0027] 次いで二軸押出機を用いて溶融混練する際の押出条件としては、樹脂温度が260～320℃であることが好ましく、さらに好ましくは270～310℃である。シリンダー温度、スクリュウ回転数、および原料フィード量を調整することで樹脂温度は調整することができる。

- [0028] 二軸押出機のスクリー長さ／シリンダー径（＝ L/D ）は21～48であることが好ましく、さらに好ましくは27～42である。スクリー構成については特に制限はないが、複数のパドル型円盤が右方向にずれて重なったニーディングディスクライト、複数のパドル型円盤が左方向にずれて重なったニーディングディスクレフト、パドル型円盤が90度ずつずれて重なったニーディングディスクニュートラル等のニーディングディスクを複数個組み合わせたものが好ましい。
- [0029] さらに、異物除去のため目開きが50 μm 以下のスクリーンメッシュや焼結フィルター、ポリマーフィルター等のフィルターを、押出機先端のダイス部に設置する方法が好適である。
- [0030] 光学フィルム用樹脂組成物には必要に応じて、ヒンダードフェノール系化合物、ラクトン系化合物、リン系化合物、イオウ系化合物などの耐熱安定剤、ヒンダードアミン系化合物、ベンゾトリアゾール系化合物等の耐光安定剤、滑剤や可塑剤、着色剤、帯電防止剤、鉱油等の添加剤を添加しても差し支えない。その添加量は樹脂組成物100質量部に対して1質量部未満であることが好ましい。
- [0031] 本実施形態に係る光学フィルム用樹脂組成物は、延伸して配向させると負の配向複屈折性を示すものである。
- [0032] 光学フィルム用樹脂組成物のフィルムを成形する方法は特に制限はないが、フィルム押出機を用いて熔融押出する方法が好ましい。
- [0033] 本実施形態に係る光学フィルムは、公知の手法で延伸して配向させることができる。延伸配向により負の配向複屈折性が発生するため、位相差フィルム用途に最も好ましい。

実施例

- [0034] 以下、詳細な内容について実施例を用いて説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

以下において、重量平均分子量（ M_w ）は、ゲル浸透クロマトグラフィー（GPC）にて測定されるポリスチレン換算の M_w であり、下記の測定条件で

測定した。

装置名：SYSTEM-21 Shodex（昭和電工社製）

カラム：PL gel MIXED-Bを3本直列

温度：40℃

検出：示差屈折率

溶媒：テトラヒドロフラン

濃度：2質量%

検量線：標準ポリスチレン（PS）（PL社製）を用いて作製し、Mwはポリスチレン換算値で表した。

[0035] [実験例A-1]

攪拌機を備えた容積約25リットルのオートクレーブ中にスチレン60質量部、 α -メチルスチレンダイマー0.1質量部、メチルエチルケトン100質量部を仕込み、系内を窒素ガスで置換した後、温度を90℃に昇温し、マレイン酸無水物40質量部とt-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート0.14質量部をメチルエチルケトン200部に溶解した溶液を10時間かけて連続的に添加した。添加後、100℃にて3時間保った。粘稠な反応液にアニリン36質量部、トリエチルアミン0.6質量部を加え140℃で7時間反応させた。反応液をベント付き二軸押出機に供給し、脱揮してスチレン-マレイミド系共重合体A-1を得た。C-13 NMR分析よりスチレン単位47質量%、N-フェニルマレイミド単位51質量%、マレイン酸無水物単位2質量%であり、Mwは121,000であった。

[0036] [実験例A-2]

α -メチルスチレンダイマー0.05質量部とした以外は、実験例A-1と同様に行い、スチレン-マレイミド系共重合体A-2を得た。C-13 NMR分析よりスチレン単位47質量%、N-フェニルマレイミド単位51質量%、マレイン酸無水物単位2質量%であり、Mwは144,000であった。

[0037] [実験例A-3]

α -メチルスチレンダイマー 0.15 質量部とした以外は、実験例 A-1 と同様に行い、スチレン-マレイミド系共重合体 A-3 を得た。C-13 NMR 分析よりスチレン単位 47 質量%、N-フェニルマレイミド単位 51 質量%、マレイン酸無水物単位 2 質量%であり、Mw は 106,000 であった。

[0038] [実験例 A-4]

α -メチルスチレンダイマー 0.25 質量部とした以外は、実験例 A-1 と同様に行い、スチレン-マレイミド系共重合体 A-4 を得た。C-13 NMR 分析よりスチレン単位 47 質量%、N-フェニルマレイミド単位 51 質量%、マレイン酸無水物単位 2 質量%であり、Mw は 92,000 であった。

[0039] [実験例 A-5]

α -メチルスチレンダイマー 0.03 質量部とした以外は、実験例 A-1 と同様に行い、スチレン-マレイミド系共重合体 A-5 を得た。C-13 NMR 分析よりスチレン単位 47 質量%、N-フェニルマレイミド単位 51 質量%、マレイン酸無水物単位 2 質量%であり、Mw は 160,000 であった。

[0040] [実験例 A-6]

スチレン 54 質量部、マレイン酸無水物 46 質量部、アニリン 41 質量部、トリエチルアミン 0.7 質量部とした以外は、実験例 A-1 と同様に行い、スチレン-マレイミド系共重合体 A-6 を得た。C-13 NMR 分析よりスチレン単位 41 質量%、N-フェニルマレイミド 57 質量%、マレイン酸無水物単位 2 質量%であり、Mw は 123,000 であった。

[0041] [実験例 A-7]

スチレン 70 質量部、マレイン酸無水物 30 質量部、アニリン 27 質量部、トリエチルアミン 0.5 質量部とした以外は、実験例 A-1 と同様に行い、スチレン-マレイミド系共重合体 A-7 を得た。C-13 NMR 分析よりスチレン単位 58 質量%、N-フェニルマレイミド 41 質量%、マレイン酸無水物単位 1 質量%であり、Mw は 122,000 であった。

[0042] [実験例 A-8]

攪拌機を備えた容積約 25 リットルのオートクレーブ中にスチレン 37 質量部、 α -メチルスチレンダイマー 0.1 質量部、メチルエチルケトン 100 質量部を仕込み、系内を窒素ガスで置換した後、温度を 90°C に昇温し、N-フェニルマレイミド 63 質量部と t-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート 0.14 質量部をメチルエチルケトン 200 部に溶解した溶液を 12 時間かけて連続的に添加した。添加後、100°C にて 4 時間保った。反応液をベント付き二軸押出機に供給し、脱揮してスチレン-マレイミド系共重合体 A-8 を得た。C-13 NMR 分析よりスチレン単位 37 質量%、N-フェニルマレイミド単位 63 質量%であり、Mw は 124,000 であった。

[0043] [実験例 A-9]

攪拌機を備えた容積約 15 リットルのオートクレーブ中に水 150 質量部、第三リン酸カルシウム 3 質量部を仕込み、系内を窒素ガスで置換した後、温度を 90°C に昇温した。スチレン 45 質量部、N-フェニルマレイミド 55 質量部、 α -メチルスチレンダイマー 0.1 質量部の混合液と、t-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート 0.14 質量部を 10 時間かけて連続的に添加した。添加終了後、t-ブチルパーオキシアセレート 0.1 質量部を加え、130°C にて 3 時間保った。得られたスラリーを塩酸で中和し、脱水、乾燥して得られたビーズをベント付き二軸押出機にて押し出し、スチレン-マレイミド系共重合体 A-9 を得た。C-13 NMR 分析よりスチレン単位 45 質量%、N-フェニルマレイミド単位 55 質量%であり、Mw は 129,000 であった。

[0044] [実験例 A-10]

攪拌機を備えた容積約 25 リットルのオートクレーブ中にスチレン 54 質量部、アクリロニトリル 13 質量部、 α -メチルスチレンダイマー 0.1 質量部、メチルエチルケトン 100 質量部を仕込み、系内を窒素ガスで置換した後、温度を 90°C に昇温し、N-フェニルマレイミド 33 質量部と t-ブチ

ルパーオキシ２－エチルヘキサノエート０．１４質量部をメチルエチルケトン２００部に溶解した溶液を１２時間かけて連続的に添加した。添加後、１００℃にて４時間保った。反応液をベント付き二軸押出機に供給し、脱揮してスチレン－マレイミド系共重合体Ａ－１０を得た。Ｃ－１３ＮＭＲ分析よりスチレン単位５４質量％、Ｎ－フェニルマレイミド単位３３質量％、アクリロニトリル単位１３質量％であり、 M_w は１２８，０００であった。

[0045] [実験例Ａ－１１]

スチレン４９質量部、アクリロニトリル１１質量部、Ｎ－フェニルマレイミド４０質量部とした以外は実験例Ａ－１０と同様に行い、スチレン－マレイミド系共重合体Ａ－１１を得た。Ｃ－１３ＮＭＲ分析よりスチレン単位４９質量％、Ｎ－フェニルマレイミド単位４０質量％、アクリロニトリル単位１１質量％であり、 M_w は１２５，０００であった。

[0046] [実験例Ａ－１２]

スチレン３７質量部、アクリロニトリル１１質量部、Ｎ－フェニルマレイミド５２質量部とした以外は実験例Ａ－１０と同様に行い、スチレン－マレイミド系共重合体Ａ－１２を得た。Ｃ－１３ＮＭＲ分析よりスチレン単位３７質量％、Ｎ－フェニルマレイミド単位５２質量％、アクリロニトリル単位１１質量％であり、 M_w は１２６，０００であった。

[0047] [実験例Ａ－１３]

アニリン３６質量部をシクロヘキシルアミン３６質量部とした以外は、実験例Ａ－１と同様に行い、スチレン－マレイミド系共重合体Ａ－１３を得た。Ｃ－１３ＮＭＲ分析よりスチレン単位４７質量％、Ｎ－シクロヘキシルマレイミド単位５１質量％、マレイン酸無水物単位２質量％であり、 M_w は１２０，０００であった。

[0048] [実験例Ａ－１４]

アニリン３０質量部とした以外は、実験例Ａ－１と同様に行い、スチレン－マレイミド系共重合体Ａ－１４を得た。Ｃ－１３ＮＭＲ分析よりスチレン単位４８質量％、Ｎ－フェニルマレイミド単位４６質量％、マレイン酸無水物

単位 6 質量%であり、 M_w は 120,000 であった。

上記実験例 A-1 ~ A-14 の成分組成と M_w を表 1 に示す。

[0049]

[表1]

記号	成分組成		重量平均分子量
A-1	スチレン	47%	121, 000
	N-フィニルマレイミド	51%	
	マレイン酸無水物	2%	
A-2	スチレン	47%	144, 000
	N-フィニルマレイミド	51%	
	マレイン酸無水物	2%	
A-3	スチレン	47%	106, 000
	N-フィニルマレイミド	51%	
	マレイン酸無水物	2%	
A-4	スチレン	47%	92, 000
	N-フィニルマレイミド	51%	
	マレイン酸無水物	2%	
A-5	スチレン	47%	160, 000
	N-フィニルマレイミド	51%	
	マレイン酸無水物	2%	
A-6	スチレン	41%	123, 000
	N-フィニルマレイミド	57%	
	マレイン酸無水物	2%	
A-7	スチレン	58%	122, 000
	N-フィニルマレイミド	41%	
	マレイン酸無水物	1%	
A-8	スチレン	37%	124, 000
	N-フィニルマレイミド	63%	
A-9	スチレン	45%	129, 000
	N-フィニルマレイミド	55%	
A-10	スチレン	54%	128, 000
	N-フィニルマレイミド	33%	
	アクリロニトリル	13%	
A-11	スチレン	49%	125, 000
	N-フィニルマレイミド	40%	
	アクリロニトリル	11%	
A-12	スチレン	37%	126, 000
	N-フィニルマレイミド	52%	
	アクリロニトリル	11%	
A-13	スチレン	47%	120, 000
	N-シクロヘキシルマレイミド	51%	
	マレイン酸無水物	2%	
A-14	スチレン	48%	120, 000
	N-フィニルマレイミド	46%	
	マレイン酸無水物	6%	

[0050] [実験例B-1]

攪拌機を付した容積約20リットルの完全混合型反応器、予熱器を付した脱揮槽を接続して構成した。スチレン69.1質量部、アクリロニトリル30.9質量部、エチルベンゼン18質量部で構成される単量体混合液を調整し、さらにt-ブチルパーオキシイソプロピルモノカーボネート0.015質量部とn-ドデシルメルカプタン0.013質量部を混合し原料溶液とした。この原料溶液を毎時5kgで温度120℃に制御した完全混合型反応器に導入した。なお、完全混合型反応器の攪拌数は180rpmで実施した。次いで完全混合型反応器より反応液を連続的に抜き出し、この反応液を予熱器で加温しながら、温度235℃で圧力1.0kPaに制御した脱揮槽に導入し、未反応単量体等の揮発分を除去した。この樹脂液をギアポンプで抜き出し、ストランド状に押し出し切断することによりペレット形状の重合体B-1を得た。C-13NMR分析よりスチレン単位69質量%、アクリロニトリル単位31質量%であり、Mwは198,000であった。

[0051] [実験例B-2]

スチレン60.5質量部、アクリロニトリル39.5質量部とした以外は、実験例B-1と同様に行い、スチレン-アクリロニトリル系共重合体B-2を得た。C-13NMR分析よりスチレン単位65質量%、アクリロニトリル単位35質量%であり、Mwは210,000であった。

[0052] [実験例B-3]

スチレン73.6質量部、アクリロニトリル26.4質量部、エチルベンゼン20質量部とした以外は、実験例B-1と同様に行い、スチレン-アクリロニトリル系共重合体B-3を得た。C-13NMR分析よりスチレン単位74質量%、アクリロニトリル単位26質量%であり、Mwは202,000であった。

[0053] [実験例B-4]

スチレン55.8質量部、アクリロニトリル44.2質量部とした以外は、実験例B-1と同様に行い、スチレン-アクリロニトリル系共重合体B-4

を得た。C-13 NMR分析よりスチレン単位62質量%、アクリロニトリル単位38質量%であり、Mwは201,000であった。

[0054] [実験例B-5]

攪拌機を備えた容積約15リットルのオートクレーブ中に純水150質量部、第三リン酸カルシウム3部、スチレン45質量部、アクリロニトリル31質量部、 α -メチルスチレンダイマー0.05質量部、*t*-ブチルパーオキシイソプロピルモノカーボネート0.2質量部、*t*-ブチルパーオシキアセテート0.1部を仕込み、系内を窒素ガスで置換した後、温度を103℃に保ち、その後スチレン24質量部を103℃で4時間、105℃で2時間の計6時間かけて連続添加した。添加終了後、120℃で3時間保った。得られたスラリーを塩酸で中和し、脱水、乾燥して得られたビーズをベント付き二軸押出機にて押し出し、スチレン-アクリロニトリル系共重合体B-5を得た。C-13 NMR分析よりスチレン単位69質量%、アクリロニトリル単位31質量%であり、Mwは153,000であった。

[0055] [実験例B-6]

α -メチルスチレンダイマー0.02質量部とした以外は、実験例B-5と同様に行い、スチレン-アクリロニトリル系共重合体B-6を得た。C-13 NMR分析よりスチレン単位69質量%、アクリロニトリル単位31質量%であり、Mwは192,000であった。

[0056] [実験例B-7]

エチルベンゼン15質量部とした以外は、実験例B-1と同様に行い、スチレン-アクリロニトリル系共重合体B-7を得た。C-13 NMR分析よりスチレン単位69質量%、アクリロニトリル単位31質量%であり、Mwは245,000であった。

[0057] [実験例B-8]

n-ドデシルメルカプタン0.056質量部とした以外は、実験例B-1と同様に行い、スチレン-アクリロニトリル系共重合体B-8を得た。C-13 NMR分析よりスチレン単位69質量%、アクリロニトリル単位31質量

%であり、 M_w は134,000であった。

[0058] [実験例B-9]

エチルベンゼン15質量部、 n -ドデシルメルカプタン0.005質量部とした以外は、実験例B-1と同様に行い、スチレン-アクリロニトリル系共重合体B-9を得た。C-13 NMR分析よりスチレン単位69質量%、アクリロニトリル単位31質量%であり、 M_w は272,000であった。

[0059] [実験例B-10]

スチレン51.1質量部、 α -メチルスチレン17.5質量部、アクリロニトリル31.4質量部、エチルベンゼン18質量部とした以外は、実験例B-1と同様に行い、スチレン-アクリロニトリル系共重合体B-10を得た。C-13 NMR分析よりスチレン単位55質量%、 α -メチルスチレン単位14質量%、アクリロニトリル単位31質量%であり、 M_w は201,000であった。

上記実験例B-1～B-10の成分組成と M_w を表2に示す。

[0060]

[表2]

記号	成分組成		重量平均分子量
B-1	アクリロニトリル	31%	198,000
	スチレン	69%	
B-2	アクリロニトリル	35%	210,000
	スチレン	65%	
B-3	アクリロニトリル	26%	202,000
	スチレン	74%	
B-4	アクリロニトリル	38%	201,000
	スチレン	62%	
B-5	アクリロニトリル	31%	153,000
	スチレン	69%	
B-6	アクリロニトリル	31%	192,000
	スチレン	69%	
B-7	アクリロニトリル	31%	245,000
	スチレン	69%	
B-8	アクリロニトリル	31%	134,000
	スチレン	69%	
B-9	アクリロニトリル	31%	272,000
	スチレン	69%	
B-10	アクリロニトリル	31%	201,000
	スチレン	55%	
	α -メチルスチレン	14%	

[0061] [実施例 1～16 及び比較例 1～10]

上記実験例で製造したスチレンーマレイミド系共重合体（A）とスチレンーアクリロニトリル系共重合体（B）を、表 3～表 4 で示した割合（質量％）でヘンシェルミキサーを用いて混合した後、二軸押出機（東芝機械（株）社製 TEM-35B、L/D=32）を用い、シリンダー温度 270℃、フィード量 20kg/時、スクリー回転数 250rpm の条件にて溶融混練してペレット化し、樹脂組成物を得た。なお、溶融混練する際の樹脂温度はどれも 280～320℃の範囲であった。

[0062] 樹脂組成物を、Tダイを付したフィルム押出成形機を用いシリンダー温度 260℃、ダイ温度 260℃で、厚さ 100 μ m の未延伸フィルムを押し出し、ロールに巻き取った。

得られた未延伸フィルムを、テンター横延伸機を用い、 $T_g + 20^\circ\text{C}$ で1.8倍に一軸延伸し、延伸された光学フィルムを得た。得られたフィルムの評価結果を表3～表4に示した。

[0063] [表3]

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8
A-1	20	30	40		30	30	30	30
A-2								
A-3								
A-6				30				
A-9								
A-10								
A-11								
A-12								
A-13								
A-14								
B-1	80	70	60					
B-2				70				
B-5					70			
B-6						70		
B-7							70	
B-10								70
ガラス転移温度 (°C)	112	120	129	123	121	121	121	128
ヘーズ (%)	0.8	0.8	0.9	1.0	1.1	1.0	0.7	0.8
フィルム成形性	良	良	良	良	良	良	良	良
フィルム強度	優	優	良	優	優	優	優	良
フィルム欠陥	優	優	優	良	優	優	優	優
位相差発現性 (nm)	452	462	456	431	458	463	468	394

	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	実施例13	実施例14	実施例15	実施例16
A-1								
A-2	30							
A-3		30						
A-6								
A-9			30					
A-10				30				
A-11					30			
A-12						30		
A-13							30	
A-14								30
B-1	70	70	70	70	70	70	70	70
B-2								
B-5								
B-6								
B-7								
B-10								
ガラス転移温度 (°C)	121	121	121	110	114	119	119	118
ヘーズ (%)	0.9	0.7	0.7	1.0	0.9	0.9	0.9	0.6
フィルム成形性	良	良	良	良	良	良	良	良
フィルム強度	優	良	優	優	優	優	優	優
フィルム欠陥	良	優	優	優	優	優	優	優
位相差発現性 (nm)	466	462	460	445	332	348	459	364

[0064] [表4]

	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5
A-1	10	50			
A-4			30		
A-5				30	
A-7					30
A-8					
B-1	90	50	70	70	70
B-3					
B-4					
B-8					
B-9					
ガラス転移温度 (°C)	103	139	120	120	115
ヘーズ (%)	1.0	1.1	0.6	1.1	24.3
フィルム成形性	良	良	良	良	良
フィルム強度	優	不良	不良	優	優
フィルム欠陥	優	良	優	不良	優
位相差発現性 (nm)	302	445	457	468	476

	比較例6	比較例7	比較例8	比較例9	比較例10
A-1		30	30	30	30
A-4					
A-5					
A-7					
A-8	30				
B-1	70				
B-3		70			
B-4			70		
B-8				70	
B-9					70
ガラス転移温度 (°C)	125	119	119	120	120
ヘーズ (%)	1.1	0.3	31.2	0.7	0.9
フィルム成形性	良	良	良	良	不良
フィルム強度	良	不良	優	不良	優
フィルム欠陥	不良	優	優	優	優
位相差発現性 (nm)	446	488	422	453	469

[0065] 評価は下記の方法にて行った。

(1) ガラス転移温度

ガラス転移温度は、下記の測定条件で示差走査熱量測定 (DSC) にて測定した。

装置名：セイコーインスツルメンツ(株)社製 Robot DSC6200

昇温速度：10°C/分

ガラス転移温度が110°C以上であるものを耐熱性について合格とした。

(2) ヘーズ

ASTM D1003に基づき、ヘーズメーター（日本電色工業社製NDH-1001DP型）を用いて未延伸フィルムのヘーズ（単位：%）を測定した。

ヘーズの値が1.2%以下であるものを未延伸フィルムの透明性について合格とした。

(3) フィルム成形性

一貫してフィルムを押出成形できたものを「良」、流動性が不足して一貫しては押出成形できなかったものを「不良」とし、「良」を合格とした。

(4) フィルム強度

未延伸フィルムについて耐折強度の測定を以下の条件にて行い、下記基準にて判断した。「優」、「良」を合格とした。

測定条件

測定器：MIT-D FOLDING ENDURANCE TESTER（東洋精機社製）

荷重（張力）：500 g 重

折り曲げ速度：175回／分

折り曲げ角度：左右各45度

折り曲げ装置先端半径：0.38 mm

試験幅：15 mm

折り曲げ方向：フィルム押出方向

強度判断基準

「優」：折り曲げ回数150回以上

「良」：折り曲げ回数100回以上150回未満

「不良」：折り曲げ回数100回未満

(5) フィルム欠陥

未延伸フィルムについて、画像処理解析装置（ニレコ社製：LUZEX SE）を用いて観測し、下記基準にて良否を判断した。「優」、「良」を合格とした。

「優」：長さ50 μm 以上のフィルム欠陥が0個/ m^2

「良」：長さ50 μm 以上のフィルム欠陥が1～4個/ m^2

「不良」：長さ50 μm 以上のフィルム欠陥が5個/ m^2 以上

(6) 位相差発現性

位相差測定装置（王子計測社製：KOBRA-WR）を用いて延伸フィルムのリタレーション（以下「Re」，単位： μm ）を測定し、300 nm以上を合格とした。また、位相差顕微鏡で観察することで、配向複屈折の符号は、実施例と比較例中の全てのサンプルが負であることを確認した。

[0066] 上記表 3 に示されるとおり、実施例 1 ～ 16 の樹脂組成物は、透明性、耐熱性、フィルム成形性、フィルム強度にすぐれており、特に光学フィルムに最適な特性を備えていることがわかる。また、フィルム欠陥が少なく、延伸配向による位相差発現性が良好で、且つ負の配向複屈折性を示すため、位相差フィルムに最適な特性を備えていることがわかる。

一方、上記表 4 に示されるとおり、比較例 1 ～ 10 の樹脂組成物は、透明性、耐熱性、フィルム成形性、フィルム強度、フィルム欠陥、位相差発現性のいずれかにおいて、光学フィルムとして良好な値を示さなかった。

[0067] 以上、本発明を実施例に基づいて説明した。この実施例はあくまで例示であり、種々の変形例が可能なこと、またそうした変形例も本発明の範囲にあることは当業者に理解されるところである。

請求の範囲

- [請求項1] (i) スチレン系単量体単位 35～55 質量%、マレイミド系単量体単位 30～60 質量%、不飽和ジカルボン酸無水物単量体単位 0～15 質量%、アクリロニトリル系単量体単位 0～15 質量%からなり、重量平均分子量 (Mw) が 100,000～145,000 であるスチレンーマレイミド系共重合体 (A) 20～40 質量%と、
- (ii) スチレン系単量体単位 65～70 質量%、アクリロニトリル系単量体単位 30～35 質量%からなり、重量平均分子量 (Mw) が 150,000～250,000 であるスチレンーアクリロニトリル系共重合体 (B) 60～80 質量%と
- を含有してなる光学フィルム用樹脂組成物であって、厚み 100 μm の未延伸フィルムに成形した場合に長さ 50 μm 以上のフィルム欠陥が 5 個/ m^2 未満である光学フィルム用樹脂組成物。
- [請求項2] スチレンーマレイミド系共重合体 (A) が溶液重合もしくは塊状重合により得られることを特徴とする請求項 1 記載の光学フィルム用樹脂組成物。
- [請求項3] スチレンーアクリロニトリル系共重合体 (B) が塊状重合もしくは溶液重合により得られることを特徴とする請求項 1 又は 2 記載の光学フィルム用樹脂組成物。
- [請求項4] ガラス転移温度が 110～150℃である請求項 1～3 のいずれか 1 項に記載の光学フィルム用樹脂組成物。
- [請求項5] 請求項 1～4 のいずれか 1 項に記載の光学フィルム用樹脂組成物からなる光学フィルム。
- [請求項6] 延伸して配向させると負の配向複屈折性を示す請求項 5 記載の光学フィルム。
- [請求項7] 溶融押出フィルムであって、さらに延伸して配向させると負の配向複屈折性を示す請求項 5 記載の光学フィルム。
- [請求項8] 延伸フィルムであることを特徴とする請求項 6 又は 7 記載の光学フィ

ルム。

[請求項9] 位相差フィルムであることを特徴とする請求項 8 記載の光学フィルム
。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/069183

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L25/12(2006.01)i, C08J5/18(2006.01)i, C08L35/06(2006.01)i, G02B5/30(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C08L25/00, C08J5/18, C08L35/06, G02B5/30

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2009	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2009

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 2008-094912 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 24 April 2008 (24.04.2008), claims; paragraphs [0009], [0012] (Family: none)	1-9
A	JP 2007-046059 A (Tosoh Corp.), 22 February 2007 (22.02.2007), claims (Family: none)	1-9
A	JP 2006-259622 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 28 September 2006 (28.09.2006), claims (Family: none)	1-9

☒ 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
01 February, 2010 (01.02.10)

Date of mailing of the international search report
09 February, 2010 (09.02.10)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/069183

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 2004-107371 A (Kaneka Corp.), 08 April 2004 (08.04.2004), claims (Family: none)	1-9
E,X	JP 2009-276420 A (Asahi Kasei Chemicals Corp.), 26 November 2009 (26.11.2009), claims 1 to 3, 9; paragraphs [0022], [0024], [0042], [0044], [0068] (Family: none)	1-9
E,X	WO 2009/151102 A1 (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 17 December 2009 (17.12.2009), claims (Family: none)	1-9

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C08L25/12(2006.01)i, C08J5/18(2006.01)i, C08L35/06(2006.01)i, G02B5/30(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C08L25/00, C08J5/18, C08L35/06, 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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 0 9 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 0 9 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 0 9 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 2008-094912 A（電気化学工業株式会社）2008.04.24, 【特許請求の範囲】、【0009】、【0012】（ファミリーなし）	1 - 9
A	JP 2007-046059 A（東ソー株式会社）2007.02.22, 【特許請求の範囲】（ファミリーなし）	1 - 9
A	JP 2006-259622 A（積水化学工業株式会社）2006.09.28, 【特許請求の範囲】（ファミリーなし）	1 - 9

☒ 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

0 1 . 0 2 . 2 0 1 0

国際調査報告の発送日

0 9 . 0 2 . 2 0 1 0

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

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）

川上 智昭

4 J

3 7 6 6

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 5 7

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 2004-107371 A (鐘淵化学工業株式会社) 2004. 04. 08, 【特許請求の範囲】 (ファミリーなし)	1 - 9
E, X	JP 2009-276420 A (旭化成ケミカルズ株式会社) 2009. 11. 26, 【請求項 1】 ~ 【請求項 3】、【請求項 9】、【0022】、【0024】、【0042】、【0044】、【0068】 (ファミリーなし)	1 - 9
E, X	WO 2009/151102 A1 (電気化学工業株式会社) 2009. 12. 17, 請求の範囲 (ファミリーなし)	1 - 9