

(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 7 月 22 日(22.07.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/082397 A1

- (51) 国際特許分類:
C08J 5/18 (2006.01) C08L 33/04 (2006.01)
C08L 1/08 (2006.01) G02B 5/30 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/069179
- (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 2009-008651 2009 年 1 月 19 日(19.01.2009) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): コニカミノルタオプト株式会社 (Konica Minolta Opto, Inc.) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町 2 9 7 0 番地 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 齋藤 浩一 (SAITO Koichi) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町 2 9 7 0 番地コニカミノルタオプト株式会社内 Tokyo (JP). 山田 るみ子 (YAMADA Rumiko) [JP/JP]; 〒1928505 東京都八王子市石川町 2 9 7 0 番地コニカミノルタオプト株式会社内 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: OPTICAL FILM, POLARIZER, AND LIQUID-CRYSTAL DISPLAY DEVICE

(54) 発明の名称: 光学フィルム、偏光板及び液晶表示装置

(57) Abstract: An optical film produced by a melt film formation method, the film being transparent, having resistance to high temperatures and high humidities, and having significantly reduced brittleness; and a polarizer and a liquid-crystal display device which include the optical film. The optical film produced by a melt film formation method comprises an acrylic resin (A) and a cellulose ester resin (B) in a ratio of from 95:5 to 30:70 by mass, and is characterized by having a haze of 0.5% or lower and an elongation at break of 30-250% after having undergone a 120-hour high-temperature high-humidity treatment at 80°C and 90%RH.

(57) 要約: 透明で、対高温高湿性があり、脆性を著しく改善した、熔融製膜法で作製した光学フィルムの提供と該光学フィルムを用いた偏光板及び液晶表示装置を提供する。本発明の光学フィルムは、アクリル樹脂 (A) とセルロースエステル樹脂 (B) を 95 : 5 乃至 30 : 70 の質量比で含有し、熔融製膜法によって作製された光学フィルムであって、80℃90%RHで120時間の高温高湿処理をした後のヘイズが0.5%以下であり、かつ破断点伸度が30%以上250%以下であることを特徴とする。

WO 2010/082397 A1

明 細 書

発明の名称： 光学フィルム、偏光板及び液晶表示装置

技術分野

[0001] 本発明は溶融製膜法によって作製された光学フィルムに関し、より詳しくは、透明性が良好で、耐高温高湿性があり、脆性を著しく改善した溶融製膜法によって作製された光学フィルムに関する。

背景技術

[0002] 液晶表示装置は、液晶テレビやパソコンの液晶ディスプレイ等の用途で需要が拡大している。通常、液晶表示装置は、透明電極、液晶層、カラーフィルター等をガラス板で挟み込んだ液晶セルと、その両側に設けられた2枚の偏光板で構成されており、それぞれの偏光板は、偏光子（偏光膜、偏光フィルムともいう）を2枚の光学フィルム（偏光板保護フィルム）で挟まれた構成となっている。この偏光板保護フィルムとしては、通常、セルローストリアセテートフィルムが用いられている。

[0003] 一方、近年の技術の進歩により、液晶表示装置の大型化が加速するとともに、液晶表示装置の用途が多様化している。例えば、街頭や店頭に設置される大型ディスプレイとしての利用や、デジタルサイネージと呼ばれる表示機器を用いた公共の場における広告用ディスプレイへの利用等が挙げられる。

[0004] このような用途においては、屋外での利用が想定されるため、偏光フィルムの高温高湿による劣化が問題になり、偏光板保護フィルムにはより高い耐高温高湿性が求められている。しかしながら、従来用いられているセルローストリアセテートフィルム等のセルロースエステルフィルムでは十分な耐高温高湿性を得ることは困難であった。

[0005] 一方、アクリル樹脂の代表であるポリメチルメタクリレート（以下、PMMAと略す）は、低吸湿性に加え、優れた透明性や寸法安定性を示すことから、光学フィルムに好適に用いられていた。

[0006] しかし、PMMAフィルムは、耐熱性に乏しく高温下での使用、長期的な

使用などにおいて、形状が変わるという問題が発生した。また、アクリル樹脂フィルムは、セルロースエステルフィルム等と比較した場合、割れやすく脆い性質があり、取扱いが困難で、特に大型の液晶表示装置用の光学フィルムを安定して製造することが困難であった。

- [0007] 上述の問題に対し、耐湿性及び耐熱性を改善するためにアクリル樹脂にポリカーボネート（以下、「PC」と略す。）を添加する方法が提案されたが、使用できる溶媒に制限があること、樹脂同士の相溶性が不十分であることから、白濁し易く光学フィルムとしての使用は困難であった（例えば、特許文献1、2参照）。

先行技術文献

特許文献

- [0008] 特許文献1：特開平5－306344号公報
特許文献2：特開2008－88417号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0009] 従来の課題に対し、アクリル樹脂とセルロースエステル樹脂を混合し、溶液流延法で光学フィルムを作製すると、透明性が良好で、高温高湿下の耐久性を持ち、脆性に優れた光学フィルムが得られる事が我々の検討で明らかになった。
- [0010] 一方、従来偏光板保護フィルムに用いられてきたセルロースエステルフィルムは溶液製膜法によって製膜されるのが一般的だったが、近年、熔融製膜法による製膜検討が進められている。前記、アクリル樹脂とセルロースエステル樹脂を混合して熔融製膜法で製膜した光学フィルムは、白濁が発生する事が分かった。
- [0011] 検討の結果、アクリル樹脂の分子量を小さくする事で白濁が良化する事が分かったが、この方法では脆性が劣化し、透明性と脆性を両立する事が出来ない。

[0012] 従って、本発明は上記課題に鑑み成されたものであり、その目的は、透明で、対高温高湿性があり、脆性を著しく改善した、熔融製膜法で作製した光学フィルムを提供することにある。

[0013] 特に、大型の液晶表示装置や、屋外用途の液晶表示装置における偏光板保護フィルムとして好適に用いられる光学フィルムを提供することにある。

課題を解決するための手段

[0014] 本発明の上記目的は、以下の構成により達成することができる。

[0015] 1. アクリル樹脂（A）とセルロースエステル樹脂（B）を95：5乃至30：70の質量比で含有し、熔融製膜法によって作製された光学フィルムであって、80℃90%RHで120時間の高温高湿処理をした後のヘイズが0.5%以下であり、かつ破断点伸度が30%以上250%以下であることを特徴とする光学フィルム。

[0016] 2. エステルワックス類、又は多価アルコール脂肪酸エステル類の少なくとも1種を0.05～2.0質量%含有することを特徴とする前記1に記載の光学フィルム。

[0017] 3. 前記エステルワックス類、又は多価アルコール脂肪酸エステル類がグリセリン脂肪酸エステル、ジグリセリン脂肪酸エステル、及びソルビタン脂肪酸エステルから選ばれる少なくとも一種であることを特徴とする前記2に記載の光学フィルム。

[0018] 4. 前記アクリル樹脂（A）の重量平均分子量 M_w が110000～1,000,000であり、前記セルロースエステル樹脂（B）のアシル基の総置換度（T）が2.0乃至3.0、炭素数が3乃至7のアシル基の置換度が1.2乃至3.0であることを特徴とする前記1～3のいずれか一項に記載の光学フィルム。

[0019] 5. アクリル粒子（C）を0.1～2.0質量%含有することを特徴とする前記1～4のいずれか一項に記載の光学フィルム。

[0020] 6. 前記1～5のいずれか一項に記載の光学フィルムを使用したことを特徴とする偏光板。

[0021] 7. 前記6に記載の偏光板を使用したことを特徴とする液晶表示装置。

発明の効果

[0022] 本発明により、透明で、耐高温高湿性があり、脆性を著しく改善した光学フィルムを提供することができる。

[0023] 特に、大型の液晶表示装置や、デジタルサイネージ用液晶表示装置に用いられる偏光板保護フィルムとして好適に用いられる光学フィルムを提供することができる。

発明を実施するための形態

[0024] 以下、本発明を実施するための最良の形態について詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0025] 〔光学フィルム〕

〈アクリル樹脂（A）〉

本発明に用いられるアクリル樹脂には、メタクリル樹脂も含まれる。樹脂としては特に制限されるものではないが、メチルメタクリレート単位50～99質量%、およびこれと共重合可能な他の単量体単位1～50質量%からなるものが好ましい。

[0026] 共重合可能な他の単量体としては、アルキル数の炭素数が2～18のアルキルメタクリレート、アルキル数の炭素数が1～18のアルキルアクリレート、アクリル酸、メタクリル酸等の α 、 β -不飽和酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸等の不飽和基含有二価カルボン酸、スチレン、 α -メチルスチレン等の芳香族ビニル化合物、アクリロニトリル、メタクリロニトリル等の α 、 β -不飽和ニトリル、無水マレイン酸、マレイミド、N-置換マレイミド、グルタル酸無水物等、アクリロイルモルフォリン等のアクリルアミド誘導体等、N-ビニルピロリドン等が挙げられ、これらは1種または2種以上の単量体を併用して用いることができる。

[0027] これらの中でも、共重合体の耐熱分解性や流動性の観点から、メチルアクリレート、エチルアクリレート、n-プロピルアクリレート、n-ブチルアクリレート、s-ブチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート等

が好ましく、メチルアクリレートやn-ブチルアクリレートが特に好ましく用いられる。

[0028] 本発明の光学フィルムに用いられるアクリル樹脂（A）の重量平均分子量（ M_w ）は、110,000～1,000,000の範囲内であることが好ましく、140,000～600,000の範囲内であることがより好ましく、200,000～400,000の範囲であることが特に好ましい。アクリル樹脂（A）の重量平均分子量（ M_w ）が小さ過ぎると十分な脆性の改善が得られず、大き過ぎると透明性（ヘイズ）の劣化や溶融粘度の上昇による生産性の低下が発生する。

[0029] 本発明に係るアクリル樹脂の重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィーにより測定することができる。測定条件は以下の通りである。

[0030] 溶媒： メチレンクロライド
カラム： Shodex K806、K805、K803G（昭和電工（株）製を3本接続して使用した）
カラム温度： 25℃
試料濃度： 0.1質量％
検出器： RI Model 504（GLサイエンス社製）
ポンプ： L6000（日立製作所（株）製）
流量： 1.0ml/min
校正曲線： 標準ポリスチレンSTK standard ポリスチレン（東ソー（株）製） $M_w=2,800,000\sim500$ 迄の13サンプルによる校正曲線を使用した。13サンプルは、ほぼ等間隔に用いることが好ましい。

[0031] 本発明におけるアクリル樹脂（A）の製造方法としては、特に制限は無く、懸濁重合、乳化重合、塊状重合、あるいは溶液重合等の公知の方法のいずれを用いても良い。ここで、重合開始剤としては、通常のパーオキサイド系、アゾ系、レドックス系のものを用いることができる。重合温度については

、懸濁または乳化重合では30～100℃、塊状または溶液重合では80～160℃で実施しうる。得られた共重合体の還元粘度を制御するために、アルキルメルカプタン等を連鎖移動剤として用いて重合を実施することもできる。

[0032] 本発明に係るアクリル樹脂としては、市販のものも使用することができる。例えば、デルペット60N、80N（旭化成ケミカルズ（株）製）、ダイヤナールBR52、BR80、BR83、BR85、BR88（三菱レイヨン（株）製）、KT75（電気化学工業（株）製）等が挙げられる。アクリル樹脂は2種以上を併用することもできる。

[0033] 〈セルロースエステル樹脂（B）〉

本発明に係るセルロースエステル樹脂（B）は、特に脆性の改善やアクリル樹脂（A）と相溶させたときの透明性の観点から、アシル基の総置換度（T）が2.0～3.0、炭素数が3～7のアシル基の置換度が1.2～3.0である事が好ましく、より好ましくはアシル基の総置換度が2.5～3.0、炭素数3～7のアシル基の置換度は2.0～3.0である。

[0034] セルロースエステル樹脂（B）のアシル基の総置換度が2.0を下回る場合には、アクリル樹脂（A）とセルロースエステル樹脂（B）が十分に相溶せず光学フィルムとして用いる場合にヘイズが問題となる事がある。また、アシル基の総置換度が2.0以上であっても、炭素数が3～7のアシル基の置換度が1.2を下回る場合は、やはり十分な相溶性が得られないか、脆性が低下することとなる。

[0035] 本発明において前記アシル基は、脂肪族アシル基であっても、芳香族アシル基であってもよい。脂肪族アシル基の場合は、直鎖であっても分岐していても良く、さらに置換基を有してもよい。アシル基で置換されていない部分は通常水酸基として存在しているものである。これらは公知の方法で合成することが出来る。

[0036] 本発明に係るセルロースエステル樹脂（B）としては、特にセルロースアセートプロピオネート、セルロースアセートブチレート、セルロースア

セテートベンゾエート、セルロースプロピオネート、セルロースブチレートから選ばれる少なくとも一種であることが好ましい。これらの中で特に好ましいセルロースエステル樹脂は、セルロースアセテートプロピオネート、セルロースプロピオネートである。

[0037] なお、アセチル基の置換度や他のアシル基の置換度は、ASTM-D 817-96に規定の方法により求めたものである。

[0038] 本発明に係るセルロースエステル樹脂の重量平均分子量（M_w）は、特にアクリル樹脂（A）との相溶性、脆性の改善の観点から75,000以上である事が好ましく、75,000～240,000の範囲であることがより好ましく、100,000～240,000の範囲内であることが更に好ましく、160,000～240,000のものが特に好ましい。セルロースエステル樹脂の重量平均分子量（M_w）が小さすぎる場合は、耐熱性や脆性の改善効果が十分ではなく、大き過ぎる場合は透明性や面品質が劣化し、本発明の効果が得られない。本発明では2種以上のセルロース樹脂を混合して用いることもできる。

[0039] 本発明の光学フィルムにおいて、アクリル樹脂（A）とセルロースエステル樹脂（B）は、95：5～30：70の質量比で用いられるが、好ましくは90：10～50：50であり、更に好ましくは90：10～60：40である。

[0040] アクリル樹脂（A）とセルロースエステル樹脂（B）の質量比が、95：5よりもアクリル樹脂（A）が多くなると、セルロースエステル樹脂（B）による効果が十分に得られず、同質量比が30：70よりもアクリル樹脂が少なくなると、耐高温高湿性が不十分となる。

[0041] 本発明の光学フィルムにおいては、アクリル樹脂（A）とセルロースエステル樹脂（B）が相溶状態で含有される必要がある。光学フィルムとして必要とされる物性や品質を、異なる樹脂を相溶させることで相互に補うことにより達成している。

[0042] アクリル樹脂（A）とセルロースエステル樹脂（B）が相溶状態となって

いるかどうかは、例えばガラス転移温度 T_g により判断することが可能である。

[0043] 例えば、両者の樹脂のガラス転移温度が異なる場合、両者の樹脂を混合したときは、各々の樹脂のガラス転移温度が存在するため混合物のガラス転移温度は2つ以上存在するが、両者の樹脂が相溶したときは、各々の樹脂固有のガラス転移温度が消失し、1つのガラス転移温度となって相溶した樹脂のガラス転移温度となる。

[0044] 尚、ここでいうガラス転移温度とは、示差走査熱量測定器（P e r k i n E l m e r 社製 D S C - 7 型）を用いて、昇温速度 $20^{\circ}\text{C}/\text{分}$ で測定し、J I S K 7 1 2 1（1987）に従い求めた中間点ガラス転移温度（ $T_m g$ ）とする。

[0045] 本発明の光学フィルムには、本発明の効果を損なわない範囲でアクリル樹脂（A）、セルロースエステル樹脂（B）以外の樹脂や添加剤を含有しても良い。

[0046] 本発明の光学フィルムにおけるアクリル樹脂（A）とセルロースエステル樹脂（B）の総質量は、光学フィルムの55質量%以上であることが好ましく、更に好ましくは60質量%以上であり、特に好ましくは、70質量%以上である。

[0047] 〈アクリル粒子（C）〉

本発明の光学フィルムは、アクリル粒子（C）を含有することが好ましい。

[0048] 本発明に係るアクリル粒子（C）とは、前記アクリル樹脂（A）及びセルロースエステル樹脂（B）を含有する光学フィルム中に粒子の状態（非相溶状態ともいう）で存在するアクリル成分を表す。

[0049] 本発明に用いられるアクリル粒子（C）は特に限定されるものではないが、2層以上の多層構造を有するアクリル粒子であることが好ましく、特に下記多層構造アクリル系粒状複合体であることが好ましい。

[0050] 多層構造アクリル系粒状複合体とは、中心部から外周部に向かって最内硬

質層重合体、ゴム弾性を示す架橋軟質層重合体、および最外硬質層重合体が、層状に重ね合わされてなる構造を有する粒子状のアクリル系重合体を言う。

[0051] 本発明に係るアクリル系樹脂組成物に用いられる多層構造アクリル系粒状複合体の好ましい態様としては、以下の様なものが挙げられる。(a) メチルメタクリレート80～98.9質量%、アルキル基の炭素数が1～8のアルキルアクリレート1～20質量%、および多官能性グラフト剤0.01～0.3質量%からなる単量体の混合物を重合して得られる最内硬質層重合体、(b) 上記最内硬質層重合体の存在下に、アルキル基の炭素数が4～8のアルキルアクリレート75～98.5質量%、多官能性架橋剤0.01～5質量%および多官能性グラフト剤0.5～5質量%からなる単量体の混合物を重合して得られる架橋軟質層重合体、(c) 上記最内硬質層および架橋軟質層からなる重合体の存在下に、メチルメタクリレート80～99質量%とアルキル基の炭素数が1～8であるアルキルアクリレート1～20質量%とからなる単量体の混合物を重合して得られる最外硬層重合体、よりなる3層構造を有し、かつ得られた3層構造重合体が最内硬質層重合体(a)5～40質量%、軟質層重合体(b)30～60質量%、および最外硬質層重合体(c)20～50質量%からなり、アセトンで分別したときに不溶部があり、その不溶部のメチルエチルケトン膨潤度が1.5～4.0であるアクリル系粒状複合体、が挙げられる。

[0052] なお、特公昭60-17406号あるいは特公平3-39095号において開示されている様に、多層構造アクリル系粒状複合体の各層の組成や粒子径を規定しただけでなく、多層構造アクリル系粒状複合体の引張り弾性率やアセトン不溶部のメチルエチルケトン膨潤度を特定範囲内に設定することにより、さらに十分な耐衝撃性と耐応力白化性のバランスを実現することが可能となる。

[0053] ここで、多層構造アクリル系粒状複合体を構成する最内硬質層重合体(a)は、メチルメタクリレート80～98.9質量%、アルキル基の炭素数が

1～8のアルキルアクリレート1～20質量%および多官能性グラフト剤0.01～0.3質量%からなる単量体の混合物を重合して得られるものが好ましい。

[0054] ここで、アルキル基の炭素数が1～8のアルキルアクリレートとしては、メチルアクリレート、エチルアクリレート、*n*-プロピルアクリレート、*n*-ブチルアクリレート、*s*-ブチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート等が挙げられ、メチルアクリレートや*n*-ブチルアクリレートが好ましく用いられる。

[0055] アルキルアクリレート単位が1質量%未満では、重合体の熱分解性が大きくなり、一方、該単位が20質量%を越えると、最内硬質層重合体(a)のガラス転移温度が低くなり、3層構造アクリル系粒状複合体の耐衝撃性付与効果が低下するので、いずれも好ましくない。

[0056] 多官能性グラフト剤としては、異なる重合可能な官能基を有する多官能性単量体、例えば、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、フマル酸のアリルエステル等が挙げられ、アリルメタクリレートが好ましく用いられる。多官能性グラフト剤は、最内硬質層重合体と軟質層重合体を化学的に結合するために用いられ、その最内硬質層重合時に用いる割合は0.01～0.3質量%である。

[0057] アクリル系粒状複合体を構成する架橋軟質層重合体(b)は、上記最内硬質層重合体(a)の存在下に、アルキル基の炭素数が1～8のアルキルアクリレート75～98.5質量%、多官能性架橋剤0.01～5質量%および多官能性グラフト剤0.5～5質量%からなる単量体の混合物を重合して得られるものが好ましい。

[0058] ここで、アルキル基の炭素数が4～8のアルキルアクリレートとしては、*n*-ブチルアクリレートや2-エチルヘキシルアクリレートが好ましく用いられる。

[0059] また、これらの重合性単量体と共に、25質量%以下の共重合可能な他の単官能性単量体を共重合させることも可能である。

- [0060] 共重合可能な他の単官能性単量体としては、スチレンおよび置換スチレン誘導体が挙げられる。アルキル基の炭素数が4～8のアルキルアクリレートとスチレンとの比率は、前者が多いほど重合体（b）のガラス転移温度が低下し、即ち軟質化できる。一方、樹脂組生物の透明性の観点からは、軟質層重合体（b）の常温での屈折率を最内硬質層重合体（a）、および最外硬質層重合体（c）に近づけるほうが有利であり、これらを勘案して両者の比率を選定する。
- [0061] 多官能性グラフト剤としては、前記の最内層硬質重合体（a）の項で挙げたものを用いることができる。ここで用いる多官能性グラフト剤は、軟質層重合体（b）と最外硬質層重合体（c）を化学的に結合するために用いられ、その最内硬質層重合時に用いる割合は耐衝撃性付与効果の観点から0.5～5質量%が好ましい。
- [0062] 多官能性架橋剤としては、ジビニル化合物、ジアリル化合物、ジアクリル化合物、ジメタクリル化合物などの一般に知られている架橋剤が使用できるが、ポリエチレングリコールジアクリレート（分子量200～600）が好ましく用いられる。
- [0063] ここで用いる多官能性架橋剤は、軟質層（b）の重合時に架橋構造を生成し、耐衝撃性付与の効果を発現させるために用いられる。ただし、先の多官能性グラフト剤を軟質層の重合時に用いれば、ある程度は軟質層（b）の架橋構造を生成するので、多官能性架橋剤は必須成分ではないが、多官能性架橋剤を軟質層重合時に用いる割合は耐衝撃性付与効果の観点から0.01～5質量%が好ましい。
- [0064] 多層構造アクリル系粒状複合体を構成する最外硬質層重合体（c）は、上記最内硬質層重合体（a）および軟質層重合体（b）の存在下に、メチルメタクリレート80～99質量%およびアルキル基の炭素数が1～8であるアルキルアクリレート1～20質量%からなる単量体の混合物を重合して得られるものが好ましい。
- [0065] ここで、アクリルアルキレートとしては、前述したものが用いられるが、

メチルアクリレートやエチルアクリレートが好ましく用いられる。最外硬質層（c）におけるアルキルアクリレート単位の割合は、1～20質量%が好ましい。

[0066] また、最外硬質層（c）の重合時に、アクリル樹脂（A）との相溶性向上を目的として、分子量を調節するためアルキルメルカプタン等を連鎖移動剤として用い、実施することも可能である。

[0067] とりわけ、最外硬質層に、分子量が内側から外側へ向かって次第に小さくなるような勾配を設けることは、伸びと耐衝撃性のバランスを改良するうえで好ましい。具体的な方法としては、最外硬質層を形成するための単量体の混合物を2つ以上に分割し、各回ごとに添加する連鎖移動剤量を順次増加するような手法によって、最外硬質層を形成する重合体の分子量を多層構造アクリル系粒状複合体の内側から外側へ向かって小さくすることが可能である。

[0068] この際に形成される分子量は、各回に用いられる単量体の混合物をそれぞれ単独で同条件にて重合し、得られた重合体の分子量を測定することによって調べることができる。

[0069] 本発明に好ましく用いられるアクリル粒子（C）の粒子径については、特に限定されるものではないが、10nm以上、1000nm以下であることが好ましく、さらに、20nm以上、500nm以下であることがより好ましく、特に50nm以上、400nm以下であることが最も好ましい。

[0070] 本発明に好ましく用いられる多層構造重合体であるアクリル系粒状複合体において、コアとシェルの質量比は、特に限定されるものではないが、多層構造重合体全体を100質量部としたときに、コア層が50質量部以上、90質量部以下であることが好ましく、さらに、60質量部以上、80質量部以下であることがより好ましい。なお、ここでいうコア層とは、最内硬質層のことである。

[0071] このような多層構造アクリル系粒状複合体の市販品の例としては、例えば、三菱レイヨン社製“メタブレン”、鐘淵化学工業社製“カネエース”、呉

羽化学工業社製“パラロイド”、ロームアンドハース社製“アクリロイド”、ガンツ化成工業社製“スタフィロイド”およびクラレ社製“パラペット S A”などが挙げられ、これらは、単独ないし2種以上を用いることができる。特に好ましいアクリル粒子(C)としては、例えば、メタブレンW-341(C2)(三菱レイヨン(株)製)を、ケミスノーMR-2G(C3)、MS-300X(C4)(綜研化学(株)製)等を挙げることができる。

[0072] また、本発明の光学フィルムにアクリル粒子(C)を添加する場合は、アクリル樹脂(A)とセルロースエステル樹脂(B)との混合物の屈折率とアクリル粒子(C)の屈折率が近いことが、透明性が高いフィルムを得る点では好ましい。具体的には、アクリル粒子(C)とアクリル樹脂(A)の屈折率差が0.05以下であることが好ましく、より好ましくは0.02以下、とりわけ0.01以下であることが好ましい。

[0073] このような屈折率条件を満たすためには、アクリル樹脂(A)の各単量体単位組成比を調整する方法、および／またはアクリル粒子(C)に使用されるゴム質重合体あるいは単量体の組成比を調整する方法などにより、屈折率差を小さくすることができ、透明性に優れた光学フィルムを得ることができる。

[0074] 尚、ここで言う屈折率差とは、アクリル樹脂(A)が可溶性溶媒に、本発明の光学フィルムを適当な条件で十分に溶解させ白濁溶液とし、これを遠心分離等の操作により、溶媒可溶部分と不溶部分に分離し、この可溶部分(アクリル樹脂(A))と不溶部分(アクリル粒子(C))をそれぞれ精製した後、測定した屈折率(23℃、測定波長:550nm)の差を示す。

[0075] 本発明においてアクリル樹脂(A)に、アクリル粒子(C)を配合する方法には、特に制限はなく、アクリル樹脂(A)とその他の任意成分を予めブレンドした後、通常200～350℃において、アクリル粒子(C)を添加しながら一軸または二軸押出機により均一に熔融混練する方法が好ましく用いられる。

[0076] 本発明の光学フィルムにおいて、該フィルムを構成する樹脂の総質量に対

して、0.5～30質量%のアクリル粒子（C）を含有することが好ましく、1.0～15質量%の範囲で含有することが更に好ましい。

[0077] <エステルワックス類、多価アルコール脂肪酸エステル類>

本発明の光学フィルムにエステルワックス類、多価アルコール脂肪酸エステル類を添加する事によって、透明性や面品質を改善する事が出来る。これは、エステルワックス類、多価アルコール脂肪酸エステル類が滑剤のような働きをして、押出し機、流延ダイ内などの滞留を改善し、また、アクリル樹脂（A）とセルロースエステル樹脂（B）の溶融粘度を低下させる事で混練性を向上させるためと考えられる。

[0078] 本発明に用いられるエステルワックス類、多価アルコール脂肪酸エステル類を構成する脂肪酸としては、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、ベヘニン酸、12-ヒドロキシステアリン酸、オレイン酸、リノール酸、エルシン酸、12-ヒドロキシオレイン酸などの、炭素数が12～22の脂肪族脂肪酸から選ばれた一種または二種以上の混合物を主成分とするものが上げられる。これらの内、ステアリン酸である事が特に好ましい。

[0079] 本発明に用いられるエステルワックス類、多価アルコール脂肪酸エステル類を構成するアルコールとしては、アドニトール、アラビトール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、1,2-プロパンジオール、1,3-プロパンジオール、ジプロピレングリコール、トリプロピレングリコール、1,2-ブタンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、ジブチレングリコール、1,2,4-ブタントリオール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、1,2,3-ヘキサントリオール、1,2,6-ヘキサントリオール、グリセリン、ジグリセリン、ガラクトール、イノシトール、マンニトール、3-メチルペンタン-1,3,5-トリオール、ピナコール、ソルビトール、トリメチロールプロパン、トリメチロールエタン、ペンタエリスリトール、ジペンタエリスリトール、キシリトールなどから選

ばれた一種または二種以上の混合物を主成分とするものが上げられる。

[0080] これらの内、エステルワックス類としては、ペンタエリスリトールテトラ脂肪酸エステル、ジペンタエリスリトールヘキサ脂肪酸エステル、グリセリントリ脂肪酸エステルである事が好ましい。なお、本願において、「エステルワックス類」とは、上記のようなアルコール類の全てのヒドロキシル基を上記のような脂肪酸でエステル化したものをいう。

[0081] 多価アルコール脂肪酸エステル類としては、グリセリンまたはジグリセリンの脂肪酸モノエステルまたはジエステル、ソルビトールの脂肪酸モノエステル、ジエステル及びトリエステルのいずれかを主成分とすることが好ましい。また、脂肪酸でエステル化されていないヒドロキシル基はヒドロキシル基のままでも良いし、酢酸でエステル化しても良い。

[0082] エステルワックス類は押出し機内などでの金属と溶融樹脂の摩擦を低減させ、せん断発熱を抑える効果に優れるが、アクリル樹脂（A）、セルロースエステル樹脂（B）との相溶性が悪いためブリードアウトし易く、溶融粘度を下げる効果も小さい。多価アルコール脂肪酸エステル類は金属と溶融樹脂の摩擦を低減させる効果はエステルワックス類ほどではないが、溶融粘度を下げる効果が大きいため、せん断発熱を抑える事ができる。また、アクリル樹脂（A）、セルロースエステル樹脂（B）との相溶性が良かったためブリードアウトも良好である。これらの事から、本発明においては多価アルコール脂肪酸エステル類を用いる事が好ましい。また、多価アルコール脂肪酸エステル類の中でもグリセリン脂肪酸エステル、ジグリセリン脂肪酸エステル、ソルビタン脂肪酸エステルのうちいずれかである事がより好ましく、グリセリン脂肪酸モノエステルである事が特に好ましい。

[0083] なお、加熱時の揮発性による製造加工装置の汚染或いは環境の汚染防止、セルロースエステルとの相溶性等の観点から、エステルワックス類、多価アルコール脂肪酸エステル類に用いられる脂肪酸の炭素数は、12～22である事が好ましい。また、保存時の防臭、変色防止等の観点から、不飽和脂肪酸より飽和脂肪酸のエステルが好ましい。

- [0084] エステルワックス類、多価アルコール脂肪酸エステル類の添加量は、0.05質量%～2.0質量%であるが、0.1質量%～1.0質量%であることがより好ましい。添加量が少なすぎると必要な効果が得られず、添加量が多すぎると耐高温高湿性が劣化し、高温高湿処理後のヘイズが劣化する。
- [0085] エステルワックス類、多価アルコール脂肪酸エステル類のエステル化反応は牛脂、豚脂、鶏脂、魚油、大豆油、コーン油、ナタネ油、パーム油、ヒマワリ油、サフラワー油、ヒマシ油或いはそれらの水素添加油の一種または二種以上の混合物とグリセリン、ジグリセリン、ソルビトールとのエステル交換反応によって得られた反応物を分子蒸留、溶剤分別、再結晶、カラムクロマトグラフィー、超臨界ガス抽出などの方法により分別して得られるが、一般的には分子蒸留が製造の簡便さ、品質および価格などの面から適当である。
- [0086] 〈可塑剤〉
- 本発明に係る光学フィルムの製造においては、フィルム形成材料中に可塑剤を含有させても良い。
- [0087] 用いることのできる可塑剤としては、特に限定されないが、例えば、多価アルコールエステル系可塑剤、ポリエステル系可塑剤、3価以上の芳香族多価カルボン酸エステル系可塑剤、グリコレート系可塑剤、リン酸エステル系可塑剤、フタル酸エステル系可塑剤、脂肪酸エステル系可塑剤、糖エステル系化合物、アクリル系ポリマーなどを用いることが出来る。特に好ましくは、多価アルコール系可塑剤である。また、リン酸エステル系可塑剤の添加量は偏光度の耐久性の観点から6質量%以下とすることが好ましい。
- [0088] 可塑剤は1%減量温度（Td1）が250℃以上であることが好ましく、より好ましくは280℃以上であり、特に好ましくは300℃以上である。
- [0089] 多価アルコールエステルは、2価以上の脂肪族多価アルコールとモノカルボン酸のエステルよりなり、分子内に芳香環またはシクロアルキル環を有することが好ましい。
- [0090] 多価アルコールエステルに用いられる多価アルコールは、次の一般式（1

) で表される。

[0091] 一般式 (1) : $R_1 - (OH)_n$

式中、 R_1 は n 価の有機基、 n は2以上の正の整数、OH基はアルコール性水酸基またはフェノール性水酸基を表す。

[0092] 好ましい多価アルコールの例としては、以下のようなものを挙げることができるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0093] アドニトール、アラビトール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、1, 2-プロパンジオール、1, 3-プロパンジオール、ジプロピレングリコール、トリプロピレングリコール、1, 2-ブタンジオール、1, 3-ブタンジオール、1, 4-ブタンジオール、ジブチレングリコール、1, 2, 4-ブタントリオール、1, 5-ペンタンジオール、1, 6-ヘキサンジオール、1, 2, 3-ヘキサントリオール、1, 2, 6-ヘキサントリオール、グリセリン、ジグリセリン、ガラクトール、イノシトール、マンニトール、3-メチルペンタン-1, 3, 5-トリオール、ピナコール、ソルビトール、トリメチロールプロパン、トリメチロールエタン、ペンタエリスリトール、ジペンタエリスリトール、キシリトールなどを挙げることができる。中でもグリセリン、トリメチロールエタン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトールが好ましい。

[0094] 本発明に係る多価アルコールエステルに用いられるモノカルボン酸としては、特に制限はなく、公知の脂肪族モノカルボン酸、脂環族モノカルボン酸、芳香族モノカルボン酸などを用いることが出来る。脂環族モノカルボン酸、芳香族モノカルボン酸を用いると、透湿性、保留性を向上させる点で好ましい。好ましいモノカルボン酸の例としては、以下のようなものを挙げることが出来るが、本発明はこれに限定されるものではない。

[0095] 脂肪族モノカルボン酸としては、炭素数1~32の直鎖または側鎖を持った脂肪酸を好ましく用いることが出来る。炭素数1~20であることが更に好ましく、炭素数1~10であることが特に好ましい。酢酸を用いるとセル

ロースエステルとの相溶性が増すため好ましく、酢酸と他のモノカルボン酸を混合して用いることも好ましい。

[0096] 好ましい脂肪族モノカルボン酸としては、酢酸、プロピオン酸、酪酸、吉草酸、カプロン酸、エナント酸、カプリル酸、ペラルゴン酸、カプリン酸、2-エチルーヘキサンカルボン酸、ウンデシル酸、ラウリン酸、トリデシル酸、ミリスチン酸、ペンタデシル酸、パルミチン酸、ヘプタデシル酸、ステアリン酸、ノナデカン酸、アラキン酸、ベヘン酸、リグノセリン酸、セロチン酸、ヘプタコサン酸、モンタン酸、メリシン酸、ラクセル酸などの飽和脂肪酸、ウンデシレン酸、オレイン酸、ソルビン酸、リノール酸、リノレン酸、アラキドン酸などの不飽和脂肪酸などを挙げる事が出来る。

[0097] 好ましい脂環族モノカルボン酸としては炭素数3～8のシクロアルキル基が好ましく、具体的にはシクロペンタンカルボン酸、シクロヘキサンカルボン酸、シクロオクタンカルボン酸などが挙げられる。

[0098] 好ましい芳香族モノカルボン酸の例としては、安息香酸、トルイル酸などの安息香酸のベンゼン環にアルキル基を導入したもの、ビフェニルカルボン酸、ナフタリンカルボン酸、テトラリンカルボン酸などのベンゼン環を2個以上持つ芳香族モノカルボン酸を挙げる事ができる。特に、安息香酸が好ましい。

[0099] これらの脂環族モノカルボン酸および芳香族モノカルボン酸は置換されていてもよく、好ましい置換基としては、ハロゲン原子、例えば、塩素原子、臭素原子、フッ素原子等、ヒドロキシ基、アルキル基、アルコキシ基、シクロアルコキシ基、アラルキル基（このフェニル基にはアルキル基またはハロゲン原子等によってさらに置換されていてもよい）、ビニル基、アリル基等のアルケニル基、フェニル基（このフェニル基にはアルキル基またはハロゲン原子等によってさらに置換されていてもよい。）、フェノキシ基（このフェニル基にはアルキル基またはハロゲン原子等によってさらに置換されていてもよい。）、アセチル基、プロピオニル基等の炭素数2～8のアシル基、またアセチルオキシ基、プロピオニルオキシ基等の炭素数2～8の無置換

のカルボニルオキシ基等が挙げられる。

[0100] 多価アルコールエステルの分子量は特に制限はないが、揮発性、相溶性等の観点から、分子量300～1500の範囲であることが好ましく、400～1000の範囲であることが更に好ましい。

[0101] 多価アルコールエステルに用いられるモノカルボン酸は一種類でもよいし、二種以上の混合であってもよい。また、多価アルコール中のOH基は全てエステル化してもよいし、一部をOH基のままで残してもよい。

[0102] 多価アルコールエステルは、公知の方法により合成できる。前記モノカルボン酸と、前記多価アルコールを例えば、酸の存在下縮合させエステル化する方法、また、有機酸を予め酸クロライドあるいは酸無水物としておき、多価アルコールと反応させる方法、有機酸のフェニルエステルと多価アルコールを反応させる方法等があり、目的とするエステル化合物により、適宜、収率のよい方法を選択することが好ましい。

[0103] ポリエステル系可塑剤としては、分子内に芳香環またはシクロアルキル環を有するポリエステル系可塑剤を用いることが好ましい。好ましいポリエステル系可塑剤としては、特に限定されないが、例えば、下記一般式(i)で表させる。

[0104] 一般式(i) : $B - (G - A)_{n-1} - G - B$

(式中、Bはベンゼンモノカルボン酸残基、Gは炭素数2～12のアルキレングリコール残基または炭素数6～12のアリールグリコール残基または炭素数が4～12のオキシアルキレングリコール残基、Aは炭素数2～12のアルキレンジカルボン酸残基または炭素数6～12のアリールジカルボン酸残基を表し、またn-1は1以上の整数を表す。)

一般式(i)中、Bで示されるベンゼンモノカルボン酸残基とGで示されるアルキレングリコール残基またはオキシアルキレングリコール残基またはアリールグリコール残基、Aで示されるアルキレンジカルボン酸残基またはアリールジカルボン酸残基とから構成されるものであり、通常のポリエステル系可塑剤と同様の反応により得られる。

- [0105] 本発明で使用されるポリエステル系可塑剤のベンゼンモノカルボン酸成分としては、例えば、安息香酸、パラターシャリブチル安息香酸、オルソトルイル酸、メタトルイル酸、パラトルイル酸、ジメチル安息香酸、エチル安息香酸、ノルマルプロピル安息香酸、アミノ安息香酸、アセトキシ安息香酸等があり、これらはそれぞれ一種または二種以上の混合物として使用することができる。
- [0106] ポリエステル系可塑剤の炭素数 2 ～ 12 のアルキレングリコール成分としては、エチレングリコール、1, 2-プロピレングリコール、1, 3-プロピレングリコール、1, 2-ブタンジオール、1, 3-ブタンジオール、2-メチル 1, 3-プロパンジオール、1, 4-ブタンジオール、1, 5-ペンタンジオール、2, 2-ジメチル-1, 3-プロパンジオール（ネオペンチルグリコール）、2, 2-ジエチル-1, 3-プロパンジオール（3, 3-ジメチロールペンタン）、2-n-ブチル-2-エチル-1, 3-プロパンジオール（3, 3-ジメチロールヘプタン）、3-メチル-1, 5-ペンタンジオール、1, 6-ヘキサンジオール、2, 2, 4-トリメチル 1, 3-ペンタンジオール、2-エチル 1, 3-ヘキサンジオール、2-メチル 1, 8-オクタンジオール、1, 9-ノナンジオール、1, 10-デカンジオール、1, 12-オクタデカンジオール等があり、これらのグリコールは、一種または二種以上の混合物として使用される。
- [0107] また、芳香族末端エステルの炭素数 4 ～ 12 のオキシアルキレングリコール成分としては、例えば、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、ジプロピレングリコール、トリプロピレングリコール等があり、これらのグリコールは、1 種または 2 種以上の混合物として使用できる。
- [0108] 当該芳香族末端エステルの炭素数 4 ～ 12 のアルキレンジカルボン酸成分としては、例えば、コハク酸、マレイン酸、フマル酸、グルタル酸、アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカンジカルボン酸等があり、これらは、それぞれ一種または二種以上の混合物として使用される。炭素数 6 ～ 1

2のアリーレンジカルボン酸成分としては、フタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、1, 5-ナフタレンジカルボン酸、1, 4-ナフタレンジカルボン酸等がある。

[0109] 本発明で使用されるポリエステル系可塑剤は数平均分子量が400～2000である事が好ましく、より好ましくは500～1500である。また、その酸価は0.5mg KOH/g以下、かつ水酸基価は25mg KOH/g以下であることが好ましく、より好ましくは酸価0.3mg KOH/g以下、かつ水酸基価は15mg KOH/g以下のものが好適である。

[0110] 3価以上の芳香族多価カルボン酸エステル系可塑剤としてはトリメシン酸エステル、トリメリット酸エステルまたはピロメリット酸エステルであることが好ましい。芳香族多価カルボン酸とエステルを形成するアルコールは炭素数1～8のアルコールであることが好ましい。

[0111] 特に好ましい3価以上の芳香族多価カルボン酸エステル系可塑剤の例としては、トリメシン酸トリブチル、トリメシン酸トリヘキシル、トリメシン酸トリ2-エチルヘキシル、トリメシン酸トリシクロヘキシル、トリメリット酸トリブチル、トリメリット酸トリヘキシル、トリメリット酸トリ2-エチルヘキシル、トリメリット酸トリシクロヘキシル、ピロメリット酸テトラブチル、ピロメリット酸テトラヘキシル、ピロメリット酸テトラ2-エチルヘキシル、ピロメリット酸テトラシクロヘキシル、などが上げられるが本発明はこれらに限定されるものではない。

[0112] グリコレート系可塑剤としては、エチルフタリルエチルグリコレート、ブチルフタリルブチルグリコレート、リン酸エステル系可塑剤では、トリフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェート、クレジルジフェニルホスフェート、オクチルジフェニルホスフェート、ジフェニルビフェニルホスフェート、トリオクチルホスフェート、トリブチルホスフェート、1, 3-フェニレンビス（ジキシレニルホスフェート）、1, 3-フェニレンビス（ジフェニルホスフェート）等、フタル酸エステル系可塑剤では、ジエチルフタレート、ジメトキシエチルフタレート、ジメチルフタレート、ジオクチルフタ

レート、ジブチルフタレート、ブチルベンジルフタレート、ジ-2-エチルヘキシルフタレート等を用いることができる。この他、アセチルトリブチルシトレートなどのクエン酸エステル系可塑剤、エポキシ化オイル系可塑剤なども使用することができる。

[0113] 《酸化防止剤、熱劣化防止剤》

本発明では、酸化防止剤、熱劣化防止剤としては、通常知られている劣化防止剤（酸化防止剤、過酸化物分解剤、ラジカル禁止剤、金属不活性化剤、酸捕獲剤、アミンなど）を使用することができる。特に、ラクトン系、イオウ系、フェノール系、二重結合系、ヒンダードアミン系、リン系化合物のものを好ましく用いることができる。劣化防止剤については、特開平3-199201号公報、特開平5-194789号公報、特開平5-271471号公報、特開平6-107854号公報に記載がある。

[0114] 上記フェノール系化合物としては、2, 6-ジアルキルフェノール構造を有するものが好ましく、例えば、チバ・ジャパン（株）から、Irganox 1076、Irganox 1010という商品名で市販されているものが好ましい。

[0115] 上記リン系化合物は、例えば、住友化学（株）から、Sumilizer-GP、ADEKA（株）からADK STAB PEP-24G、ADK STAB PEP-36及びADK STAB 3010、チバ・ジャパン（株）からIRGAFOS P-EPQ、堺化学（株）からGSY-P101という商品名で市販されているものが好ましい。

[0116] 上記ヒンダードアミン系化合物は、例えば、チバ・ジャパン（株）から、Tinuvin 144及びTinuvin 770、ADEKA（株）からADK STAB LA-52という商品名で市販されているものが好ましい。

[0117] 上記イオウ系化合物は、例えば、住友化学（株）から、Sumilizer TPL-R及びSumilizer TP-Dという商品名で市販されているものが好ましい。

[0118] 上記二重結合系化合物は、住友化学（株）から、Sumilizer-GM及びSumilizer-GSという商品名で市販されているものが好ましい。

[0119] さらに、酸捕捉剤として米国特許第4,137,201号明細書に記載されているようなエポキシ基を有する化合物を含有させることも可能である。

[0120] これらの酸化防止剤等は、再生使用される際の工程に合わせて適宜添加する量が決められるが、一般には、フィルムの主原料である樹脂に対して、0.05～5質量%の範囲で添加される。

[0121] これらの酸化防止剤、熱劣化防止剤は、一種のみを用いるよりも数種の異なった系の化合物を併用することで相乗効果を得ることができる。例えば、ラクトン系、リン系、フェノール系および二重結合系化合物の併用は好ましい。

[0122] 《着色剤》

本発明においては、着色剤を使用しても良い。通常、着色剤とは染料や顔料を意味するが、本発明では、液晶画面の色調を青色調にする効果またはイエローインデックス（黄色度）の調整、ヘイズの低減効果を有するものを指す。

[0123] 着色剤としては各種の染料、顔料が使用可能だが、アントラキノン染料、アゾ染料、フタロシアニン顔料などが有効である。

[0124] 《紫外線吸収剤》

本発明に用いられる紫外線吸収剤は特に限定されないが、例えばオキシベンゾフェノン系化合物、ベンゾトリアゾール系化合物、サリチル酸エステル系化合物、ベンゾフェノン系化合物、シアノアクリレート系化合物、トリアジン系化合物、ニッケル錯塩系化合物、無機粉体などが挙げられる。高分子型の紫外線吸収剤としてもよい。本発明で好ましく用いられる紫外線吸収剤は、透明性が高く、偏光板や液晶素子の劣化を防ぐ効果に優れたベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤やベンゾフェノン系紫外線吸収剤が好ましく、不要な着色がより少ないベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤が特に好ましい。本

発明に用いられる紫外線吸収剤の具体例として、例えばチバ・ジャパン（株）製のTINUVIN109、TINUVIN171、TINUVIN326、TINUVIN327、TINUVIN328、TINUVIN900、TINUVIN928、ADEKA（株）製のLA-31等を好ましく用いることが出来るが、本発明はこれらに限定されるものではない。また、紫外線吸収剤としては高分子紫外線吸収剤も好ましく用いることができ、特に特開平6-148430号記載のポリマータイプの紫外線吸収剤が好ましく用いられる。紫外線吸収剤は単独で用いても良いし、二種以上の混合物であっても良い。

[0125] 紫外線吸収剤の使用量は化合物の種類、使用条件などにより一様ではないが、セルロースエステルフィルムの乾燥膜厚が30～200 μ mの場合は、セルロースエステルフィルムに対して0.5～4.0質量%が好ましく、0.6～3.5質量%がさらに好ましい。

[0126] 《マット剤》

本発明には必要に応じてマット剤として無機微粒子を添加しても良い。無機化合物の例として、二酸化珪素（シリカ）、二酸化チタン、酸化アルミニウム、酸化ジルコニウム、炭酸カルシウム、炭酸カルシウム、タルク、クレイ、焼成カオリン、焼成ケイ酸カルシウム、水和ケイ酸カルシウム、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸マグネシウム及びリン酸カルシウムを挙げることができる。中でも、二酸化珪素であることがヘイズを低くする点で好ましい。

[0127] また、マット剤微粒子は有機物によって表面処理されていることが、フィルムのヘイズを低下できるため好ましい。表面処理で好ましい有機物としては、ハロシラン類、アルコキシシラン類、シラザン、シロキサンなどがあげられる。

[0128] 微粒子の平均径が大きい方がマット効果は大きい、平均径の小さい方が透明性に優れるため、本発明においては、微粒子の一次粒子の平均粒径は5～50nmが好ましく、更に好ましいのは7～20nmである。これらは主に粒径0.05～0.3 μ mの2次凝集体として含有されることが好ましい

。

[0129] セルロースエステルフィルム中のこれらの微粒子の含有量は0.05～1質量%であることが好ましく、特に0.1～0.8質量%が好ましい。共流延法による多層構成のセルロースエステルフィルムの場合は、表面層にこの添加量の微粒子を含有することが好ましい。

[0130] 二酸化珪素の微粒子は、例えば、商品名がアエロジルR972、R972V、R974、R812、200、200V、300、R202、OX50、TT600、NAX50（以上日本アエロジル（株）製）、シーホスターKEP10、KEP30、KEP50、KEP100（以上日本触媒（株）製）などを使用することができる。

[0131] 酸化ジルコニウムの微粒子は、例えば、アエロジルR976及びR811（以上日本アエロジル（株）製）の商品名で市販されており、使用することができる。

[0132] ポリマーの例として、シリコーン樹脂、フッ素樹脂及びアクリル樹脂を挙げることができる。シリコーン樹脂が好ましく、特に三次元の網状構造を有するものが好ましく、例えば、トスパール103、同105、同108、同120、同145、同3120及び同240（以上東芝シリコーン（株）製）の商品名で市販されており、使用することができる。

[0133] これらの中でもアエロジルR972V、NAX50、シーホスターKEP30がセルロースエステルフィルムの濁度を低く保ちながら、摩擦係数を下げる効果が大きいため特に好ましく用いられる。

[0134] <溶融製膜方法>

本発明の光学フィルムは溶融流延によって形成される。本願において溶融製膜とは、アクリル樹脂、セルロースエステル樹脂及びその他添加剤を含む組成物を、流動性を示す温度まで加熱溶融し、溶融物を流延して製膜する事と定義する。

[0135] 溶融製膜法による光学フィルムの成形法は、溶融押出し成形法、プレス成形法、インフレーション法、射出成形法、ブロー成形法、延伸成形法などに

分類できる。これらの中で、機械的強度及び表面精度などに優れる光学フィルムを得るためには、溶融押出し成形法が優れている。

[0136] 以下、溶融押出し成形法を例にとり、本発明の光学フィルムの製造方法について説明する。光学フィルムの製造方法において、溶融押出しの条件は一般的な熱可塑性樹脂に用いられる条件と同様にして行うことができる。

[0137] 《ペレット製造工程》

溶融押出しに用いる複数の原材料は、あらかじめ混練してペレット化しておくことが好ましい。

[0138] ペレット化は公知の方法でよく、例えば、乾燥したアクリル樹脂、セルロースエステル樹脂や添加剤をフィーダーで押出機に供給し一軸や二軸の押出機を用いて混練し、ダイからストランド状に押出し、水冷または空冷し、カッティングすることで出来る。

[0139] 紫外線吸収剤やマツト剤などは、高濃度のマスターペレットを作製して、フィルム製膜時に押出し機中でメインのペレットと混合してもよい。

[0140] 原材料は、押出しする前に乾燥しておくことが原材料の分解を防止する上で重要である。特にセルロースエステル樹脂は吸湿しやすいので、除湿熱風乾燥機や真空乾燥機で70～140℃で3時間以上乾燥し、水分率を200ppm以下、更に100ppm以下にしておくことが好ましい。

[0141] 添加剤は、押出し機に供給する前に混合しておいてもよいし、それぞれ個別のフィーダーで供給してもよい。酸化防止剤等少量の添加剤は、均一に混合するため、事前に混合しておくことが好ましい。

[0142] 真空ナウターミキサーなどが乾燥と混合を同時にできるので好ましい。また、フィーダー部やダイからの出口など空気と触れる箇所は、除湿空気や除湿した窒素ガスなどの雰囲気下にすることが好ましい。

[0143] また、押出し機への供給ホッパー等は保温しておくことで吸湿防止できるので好ましい。

[0144] 押出し機は、せん断力を抑え、樹脂が劣化（分子量低下、着色、ゲル生成等）しないようになるべく低温で加工することが好ましいため、例えば、二

軸押し機の場合、深溝タイプのスクリーを用いて同方向に回転させることが好ましい。混練の均一性から、噛み合いタイプが好ましい。ニーダーディスクは混練性を向上できるが、せん断発熱に注意が必要である。

[0145] ベント孔からの吸引は必要に応じて行えばよい。低温であれば揮発成分はほとんど発生しないのでベント孔なしでもよい。

[0146] ペレットの色は、黄味の指標である b^* 値が $-5 \sim 10$ の範囲にあることが好ましく、 $-1 \sim 8$ の範囲にあることがさらに好ましく、 $-1 \sim 5$ の範囲にあることがより好ましい。 b^* 値は分光測色計CM-3700d（コニカミノルタセンシング（株）製）で、光源はD65（色温度6504K）を用い、視野角 10° で測定することができる。

[0147] 以上のようにして得られたペレットを用いてフィルム製膜を行うことが好ましいが、ペレット化せずに、原材料の粉末をそのままフィーダーで押し機に供給してフィルム製膜することも可能である。

[0148] 《溶融物押し工程》

ペレットなどの材料は予め乾燥させておくことが好ましい。真空または減圧乾燥機や除湿熱風乾燥機等で水分を200ppm以下、好ましくは100ppm以下に乾燥させることが望ましい。

[0149] 除湿熱風や真空または減圧下で乾燥したポリマーを一軸や二軸タイプの押し機を用いて溶融し、リーフディスクタイプのフィルターなどでろ過して異物を除去した後、流延ダイからフィルム状に流延し、冷却ロール上で固化させる。

[0150] 押し機は、市販の押し機を使用可能であるが、溶融混練押し機が好ましく、単軸押し機でも二軸押し機でもよい。

[0151] 供給ホッパーから押し機へ導入する部位、および押し機内は窒素ガス等の不活性ガスで置換するか、あるいは減圧すると、酸素の濃度を下げることによって酸化分解を抑制する事が出来るため好ましい。

[0152] 押し機内の光学フィルム構成材料を溶融させる温度は、光学フィルム構成材料の粘度や吐出量、製造するシートの厚み等によって好ましい条件が異

なるが、 $150\sim 300^{\circ}\text{C}$ が好ましく、 $180\sim 270^{\circ}\text{C}$ がより好ましく、 $200\sim 260^{\circ}\text{C}$ がさらに好ましい。温度が低すぎると溶解不良や熔融粘度の上昇が発生し、温度が高すぎると材料の熱劣化が起こる。

[0153] 押出し時の熔融粘度は、 $1\sim 10000\text{Pa}\cdot\text{s}$ 、好ましくは $10\sim 1000\text{Pa}\cdot\text{s}$ である。熔融粘度が高すぎると圧力の上昇によって、押出し機内での滞留時間が長くなる。押出し機内での光学フィルム構成材料の滞留時間は短い方が好ましく、5分以内、好ましくは3分以内、より好ましくは2分以内である。

[0154] 滞留時間は、押出し機の種類、押出す条件にも左右されるが、材料の供給量や L/D 、スクリー回転数、スクリーの溝の深さ等を調整することにより短縮することが可能である。

[0155] 押出し機のスクリーの形状や回転数等は、光学フィルム構成材料の粘度や吐出量等により適宜選択される。本発明において押出し機でのせん断速度は、 $1/\text{秒}\sim 10000/\text{秒}$ 、好ましくは $5/\text{秒}\sim 1000/\text{秒}$ 、より好ましくは $10/\text{秒}\sim 100/\text{秒}$ である。

[0156] 押出し機から押出された熔融樹脂は、流延ダイに送られ、流延ダイのスリットから光学フィルム状に押出される。流延ダイはシートや光学フィルムを製造するために用いられるものであれば特に限定はされない。

[0157] 流延ダイの材質としては、ハードクロム、炭化クロム、窒化クロム、炭化チタン、炭窒化チタン、窒化チタン、超鋼、セラミック（タングステンカーバイド、酸化アルミ、酸化クロム）等を溶射もしくはメッキし、表面加工としてバフ、 $\#1000$ 番手以降の砥石を用いるラッピング、 $\#1000$ 番手以上のダイヤモンド砥石を用いる平面切削（切削方向は樹脂の流れ方向に垂直な方向）、電解研磨、電解複合研磨等の加工を施したもの等が挙げられる。流延ダイのリップ部の好ましい材質は、流延ダイと同様である。またリップ部の表面精度は 0.5S 以下が好ましく、 0.2S 以下がより好ましい。

[0158] この流延ダイのスリットは、そのギャップが調整可能なように構成されている。

- [0159] 流延ダイのスリットを形成する一対のリップのうち、一方は剛性の低い変形しやすいフレキシブルリップであり、他方は固定リップである事がギャップ調整のし易さの点で好ましい。
- [0160] ギャップ調整のため、多数のヒートボルトが流延ダイの幅方向に一定ピッチで配列されている。各ヒートボルトには、埋め込み電気ヒーターと冷却媒体通路とを具えたブロックが設けられ、各ヒートボルトが各ブロックを縦に貫通している。
- [0161] ヒートボルトの基部はダイ本体に固定され、先端はフレキシブルリップの外面に当接している。そしてブロックを常時空冷しながら、埋め込み電気ヒーターの入力を増減してブロックの温度を上下させ、これによりヒートボルトを熱伸縮させて、フレキシブルリップを変位させて光学フィルムの厚さを調整する。
- [0162] ダイ後流の所要箇所に厚さ計を設け、これによって検出されたウェブ厚さ情報を制御装置にフィードバックし、この厚さ情報を制御装置で設定厚み情報と比較し、同装置から来る補正制御量の信号によってヒートボルトの発熱体の電力またはオン率を制御するようにすることもできる。
- [0163] ヒートボルトは、好ましくは、長さ20～40cm、直径7～14mmを有し、複数（例えば数十本）のヒートボルトがピッチ20～40mmで配列されている事が好ましい。
- [0164] ヒートボルトの代わりに、手動で軸方向に前後動させることによりスリットギャップを調節するボルトを主体とするギャップ調節部材を設けてもよい。
- [0165] ギャップ調節部材によって調節されたスリットギャップは、通常200～2000 μ m、好ましくは300～1000 μ m、より好ましくは400～800 μ mである。
- [0166] 押出し流量は、ギヤポンプを導入するなどして安定に行うことが好ましい。また、異物の除去に用いるフィルターは、ステンレス繊維焼結フィルターが好ましく用いられる。

[0167] ステンレス繊維焼結フィルターは、ステンレス繊維体を複雑に絡み合った状態を作り出した上で圧縮し接触箇所を焼結し一体化したもので、その繊維の太さと圧縮量により密度を変え、ろ過精度を調整できる。

[0168] フィルターはろ過精度の異なるろ過材を組み合わせで多層体としたものが好ましい。また、ろ過精度を順次上げていく構成としたり、ろ過精度の粗、密を繰り返したりする方法をとることで、フィルターのろ過寿命が延び、異物やゲルなどの補足精度も向上できるので好ましい。

[0169] ダイに傷や異物が付着するとスジ状の欠陥が発生する場合がある。このような欠陥のことをダイラインと呼ぶが、ダイライン等の表面の欠陥を小さくするためには、ダイの内部やリップにキズ等が極力無いものを使用し、押出し機からダイまでの配管には樹脂の滞留部が極力少なくなるような構造にすることが好ましい。

[0170] 押出し機やダイなどの熔融樹脂と接触する内面は、表面粗さを小さくしたり、表面エネルギーの低い材質を用いるなどして、熔融樹脂が付着し難い表面加工が施されていることが好ましい。具体的には、ハードクロムメッキやセラミック溶射したものを表面粗さ0.2 S以下となるように研磨したものが挙げられる。

[0171] 可塑剤などの添加剤は、あらかじめ樹脂と混合しておいてもよいし、押出し機の途中で練り込んでもよい。均一に添加するために、スタチックミキサーなどの混合装置を用いることが好ましい。

[0172] 《冷却ロール》

本発明において、冷却ロールには特に制限はないが、高剛性の金属ロールで内部に温度制御可能な熱媒体または冷媒体が流れるような構造を備えるロールであり、大きさは熔融押出しされたフィルムを冷却するのに十分な大きさであればよく、通常冷却ロールの直径は100mmから1m程度である。

[0173] 冷却ロールの表面材質は、炭素鋼、ステンレス、アルミニウム、チタンなどが挙げられる。更に表面の硬度をあげたり、樹脂との剥離性を改良したりするため、ハードクロムメッキや、ニッケルメッキ、非晶質クロムメッキな

どや、セラミック溶射等の表面処理を施すことが好ましい。

[0174] 冷却ロールは、肉厚が20～30mm程度のシームレスな鋼管製で、表面が鏡面に仕上げられている。

[0175] 冷却ロール表面の表面粗さは、 R_a で $0.1\mu\text{m}$ 以下とすることが好ましく、更に $0.05\mu\text{m}$ 以下とすることが好ましい。ロール表面が平滑であるほど、得られるフィルムの表面も平滑にできる。

[0176] 冷却ロールは少なくとも一つであり、二つ以上有しているのが好ましい。一つしかない場合、冷却ロールの表面温度 T_r は、 $T_g - 50 \leq T_r \leq T_g$ に設定される。二つ以上の場合、第1冷却ロールの表面温度 T_{r1} と第2冷却ロールの表面温度 T_{r2} は、 $T_g - 50 \leq T_{r1} \leq T_g$ 、 $T_g - 50 \leq T_{r2} \leq T_g$ に設定される。

[0177] 好ましくは、 $T_{r2} > T_{r1}$ であり、 $0 < T_{r2} - T_{r1} < 50$ である。

[0178] このことにより、冷却ロール上への添加剤の凝結量がコントロールされ、さらにセルロースフィルムに再溶融されることになる。

[0179] セルロースエステルフィルムと第1および第2冷却ロールとの接触時間によっても再溶解を促進することができるが、本発明においては1.0秒以上、3.0秒以下が好ましい。

[0180] なお、接触時間は、フィルムとローラとが接しはじめる接点と剥離されはじめる接点との円周の距離と、フィルムの搬送速度から算出した秒数で表した。

[0181] 第2冷却ロールの周速度 R_2 は第1冷却ロールの周速度 R_1 よりも大きいことが好ましい。つまりこの2つのロール間のフィルムに張力が働き、フィルムと第1ロールとの密着性が高まる。この周速度の比は $1.00 \sim 1.05$ の範囲が好ましく、 1.05 を超えるとフィルムが破断する危険性がある。同様に、第3以降のロール周速度がその直前の冷却ロールの周速度より大きいことが好ましい。

[0182] 《弾性タッチロール》

冷却ロールに当接するタッチロールは、表面が弾性を有し、冷却ロールへ

の押圧力によって冷却ロールの表面に沿って変形し、冷却ロールとの間にニップを形成することができる、弾性タッチロールであることが好ましい。

[0183] 弾性タッチロールとしては、特許第3194904号、特許第3422798号、特開平03-124425号、特開平08-224772号、特開平07-100960号、特開平10-272676号公報、WO97/028950号パンフレット、特開平11-235747号、特開2002-36332号、特開2002-36333号、特開2005-172940号や特開2005-280217号公報に記載されているような弾性タッチロールを使用することができる。

[0184] 本発明で用いる弾性タッチロールは、金属製外筒と内筒との2重構造になっており、その間に冷却流体を流せるように空間を有しているものである。

[0185] 更に、金属製外筒は弾性を有していることにより、タッチロール表面の温度を精度よく制御でき、かつ適度に弾性変形する性質を利用して、長手方向にフィルムを押圧する距離が稼げるとの効果を有することにより、液晶表示装置で画像を表示したときに、明暗のスジや斑点むらがないという本発明の効果が得られるのである。

[0186] 金属製外筒の肉厚の範囲は、 $0.003 \leq (\text{金属製外筒の肉厚}) / (\text{タッチロール半径}) \leq 0.03$ であれば、適度な弾性となり好ましい。タッチロールの半径が大きければ金属外筒の肉厚が厚くても適度に撓むことが出来る。金属製外筒の肉厚があまり薄すぎると強度が不足し、破損の懸念がある。一方、厚すぎると、ロール質量が重くなりすぎ、回転むらの懸念がある。従って、金属外筒の肉厚は、0.1～5mmであることが好ましい。

[0187] 弾性タッチロールの直径は100mm～600mm、ロール有効幅 $L = 500 \sim 1600$ mmで、 $r/L < 1$ で横長の形状が好ましい。

[0188] 金属外筒表面の表面粗さは、算術平均粗さ R_a で $0.1 \mu m$ 以下とすることが好ましく、更に $0.05 \mu m$ 以下とすることが好ましい。ロール表面が平滑であるほど、得られるフィルムの表面も平滑にできるのである。

[0189] 金属外筒の材質は、平滑で適度な弾性があり、耐久性があることが求めら

れる。このため、炭素鋼、ステンレス、チタン、電鍍法で製造されたニッケルなどが好ましく用いることができる。更にその表面の硬度をあげたり、樹脂との剥離性を改良したりするため、ハードクロムメッキや、ニッケルメッキ、非晶質クロムメッキなどや、セラミック溶射等の表面処理を施すことが好ましい。表面加工した表面は更に研磨し上述した表面粗さとすることが好ましい。

[0190] 内筒は、炭素鋼、ステンレス、アルミニウム、チタンなどの軽量で剛性のある金属製内筒であることが好ましい。内筒に剛性をもたせることで、ロールの回転ぶれを抑えることができる。内筒の肉厚は、外筒の2～10倍とすることで十分な剛性が得られる。

[0191] 内筒には更にシリコン、フッ素ゴムなどの樹脂製弾性材料が被覆されていてもよい。

[0192] 冷却流体を流す空間の構造は、ロール表面の温度を均一に制御できるものであればよく、例えば、巾方向に行きと戻りが交互に流れるようにしたり、スパイラル状に流れるようにしたりすることでロール表面の温度分布の小さい温度制御ができる。

[0193] 冷却流体は、特に制限はなく、使用する温度域に合わせて、水やオイルを使用できる。

[0194] 弾性タッチロールの表面温度 (T_{rO}) は、フィルムのガラス転移温度 (T_g) より低いことが好ましい。 T_g より高いと、フィルムとロールとの剥離性が劣る場合がある。 $T_g - 50^{\circ}\text{C} \sim T_g$ であることが更に好ましい。

[0195] 本発明で用いる弾性タッチロールは、巾方向の中央部が端部より径が大きいクラウンロールの形状とすることが好ましい。

[0196] タッチロールは、その両端部を加圧手段でフィルムに押圧するのが一般的であるが、この場合、タッチロールが撓むため、端部にいくほど強く押圧されてしまう現象がある。ロールをクラウン形状にすることで高度に均一な押圧が可能となる。

[0197] 本発明で用いる弾性タッチロールの幅は、フィルム幅よりも広くするとフ

ィルム全体を冷却ロールに密着できるので好ましいが、ドロワー比が大きくなると、フィルムの両端部がネックイン現象により耳高（端部の膜厚が厚くなる）になる場合があり、この場合は、耳高部を逃げるように、金属製外筒の幅をフィルム幅より狭くしてもよい。あるいは、金属製外筒の外径を小さくして耳高部を逃げてよい。

[0198] 弾性タッチロールの撓みを防止するため、冷却ロールに対してタッチロールの反対側にサポートロールを配してもよい。

[0199] 弾性タッチロールの汚れを清掃する装置を配してもよい。清掃装置としては、例えば、ロール表面を必要により溶剤を浸透させた不織布などの部材をロールに押し当てる方法、液体中にロールを接触させる方法、コロナ放電やグロー放電などのプラズマ放電によりロール表面の汚れを揮発させる方法などが好ましく用いることができる。

[0200] 弾性タッチロールの表面温度を均一にするため、タッチロールに温調ロールを接触させたり、温度制御された空気を吹き付けたり、液体などの熱媒体を接触させてもよい。

[0201] 本発明では、更に弾性タッチロール押圧時のタッチロール線圧を 9.8 N/cm 以上、 147 N/cm 以下にすることが好ましい。線圧がこの範囲よりも小さいと、ダイラインを十分に解消することができなくなる。

[0202] 線圧とは、弾性タッチロールがフィルムを押圧する力を押圧時のフィルム幅で除した値である。線圧を上記の範囲にする方法は、特に限定はなく、例えば、エアーシリンダーや油圧シリンダーなどでロール両端を押圧することができる。

[0203] サポートロールにより弾性タッチロールを押圧することで、間接的にフィルムを押圧してもよい。

[0204] タッチロールによってダイラインを良好に解消するためには、タッチロールが光学フィルムを挟圧するときの光学フィルムの粘度が適切な範囲であることが重要となる。

[0205] また、セルロースエステルは温度による粘度の変化が比較的大きいことが

知られている。

[0206] 光学フィルムのガラス転移温度を T_g としたとき、押出されたフィルムがタッチロールに挟圧される直前のタッチロール側フィルム表面温度 T_t を、 $T_g < T_t < T_g + 110^\circ\text{C}$ とすることが好ましい。

[0207] 即ち、タッチロールに挟圧される直前のフィルムの温度 T_t が上記の範囲にすると、フィルムを挟圧するときのフィルムの粘度を適切な範囲に設定することができ、ダイラインの矯正が可能となり、また、フィルム表面とロールが均一に接着し、ダイラインの矯正が可能となる。

[0208] 好ましくは $T_g + 10^\circ\text{C} < T_t < T_g + 90^\circ\text{C}$ 、さらに好ましくは $T_g + 20^\circ\text{C} < T_t < T_g + 70^\circ\text{C}$ である。

[0209] 押圧時のフィルム温度を上記範囲にする方法は特に限定はないが、例えば、ダイと冷却ロール間の距離を近づけて、ダイと冷却ロール間での冷却を抑制する方法やダイと冷却ロール間を断熱材で囲って保温したり、あるいは熱風や赤外線ヒーターやマイクロ波加熱等により加温したりする方法が挙げられる。

[0210] フィルム表面温度およびロール表面温度は非接触式の赤外温度計で測定できる。具体的には、非接触ハンディ温度計（IT2-80、（株）キーエンス製）を用いてフィルムの幅手方向に10箇所を被測定物から0.5mの距離で測定する。

[0211] 弾性タッチロール側フィルム表面温度 T_t は、搬送されているフィルムをタッチロールをはずした状態でタッチロール側から非接触式の赤外温度計で測定したフィルム表面温度のことをさす。

[0212] 《流延工程》

本発明においては、流延ダイの開口部（リップ）から冷却ロールまでの部分を70kPa以下に減圧させることにより、上記、ダイラインの矯正効果がより大きく発現する。

[0213] 好ましくは減圧は50～70kPaである。流延ダイの開口部（リップ）から冷却ロールまでの部分の圧力を70kPa以下に保つ方法としては、特

に制限はないが、流延ダイからロール周辺を耐圧部材で覆って減圧する方法などがある。

[0214] このとき、吸引装置は、装置自体が昇華物の付着場所にならないようヒーターで加熱する等の処置を施すことが好ましい。本発明では、吸引圧が小さすぎると昇華物を効果的に吸引できないため、適当な吸引圧とする必要がある。

[0215] 本発明では、セルロースエステルを含む溶融物をダイからフィルム状に押し出し、ドロー比5以上30以下として得られたフィルムを、弾性タッチロールで冷却ロールに押圧しながら搬送する。ドロー比とは、ダイのリップクリアランスを冷却ロール上で固化したフィルムの平均膜厚で除した値である。ドロー比をこの範囲とすることで、液晶表示装置で画像を表示したときに、明暗のスジや斑点状むらがなく、生産性の良好な偏光板保護フィルムが得られる。

[0216] ドロー比は、ダイリップクリアランスと冷却ロールの引き取り速度により調整できる。ダイリップクリアランスは、900 μm 以上が好ましく、更に1 mm以上2 mm以下が好ましい。大きすぎても、小さすぎても斑点状むらが改善されない場合がある。

[0217] 冷却ロールと弾性タッチロールでフィルムをニップする際のタッチロール側のフィルム温度をフィルムの T_g 以上 $T_g + 110^\circ\text{C}$ 以下にすることは、フィルム表面の写像性を調整するために好ましい。このような目的で使用する弾性体表面を有するロールは、公知のロールが使用できる。

[0218] 冷却ロールからフィルムを剥離する際は、張力を制御してフィルムの変形を防止することが好ましい。

[0219] 《ロール清掃設備》

本発明においては、製造装置には、ドラムおよびロールを清掃する装置を付加させることが好ましい。清掃装置については特に限定はないが、例えば、ブラシ・ロール、吸水ロール、粘着ロール、ふき取りロール等をニップする方式、清浄エアーを吹き掛けるエアブロー方式、レーザーによる焼却装

置、或いはこれらの組み合わせなどがある。

[0220] 清掃用ロールをニップする方式の場合、ベルト線速度とローラ線速度を変えると清掃効果が大きい。

[0221] 《延伸工程》

本発明では、上記のようにして得られたフィルムは冷却ロールに接する工程を通過後、少なくとも1方向に1.01～3.0倍延伸することが好ましい。延伸によりスジの改良などの面品質の向上、リターデーションの調整などを行うことができる。

[0222] 延伸する方法は、公知のロール延伸機やテンターなどを用いることができる。

[0223] 通常、延伸倍率は縦（フィルム搬送方向）、横（巾方向）両方向にそれぞれ1.01～3.0倍、好ましくは1.1～2.0倍であり、延伸温度は、通常、フィルムを構成する樹脂の $T_g \sim T_g + 50^\circ\text{C}$ 、好ましくは $T_g \sim T_g + 40^\circ\text{C}$ の温度範囲で行われる。

[0224] 延伸倍率が小さすぎるとスジの改良が十分でなく、大きすぎると破断してしまう場合がある。延伸温度が低すぎると破断してしまう場合があり、高すぎるとスジの改良が十分にできない場合がある。

[0225] 延伸は、幅手方向で制御された均一な温度分布下で行うことが好ましい。好ましくは $\pm 2^\circ\text{C}$ 以内、さらに好ましくは $\pm 1^\circ\text{C}$ 以内、特に好ましくは $\pm 0.5^\circ\text{C}$ 以内である。

[0226] また延伸工程には公知の熱固定条件、冷却、緩和処理を行ってもよく、目的とするフィルムに要求される特性を有するように適宜調整することができる。

[0227] 上記の方法で作製した光学フィルムのリターデーション調整や寸法変化率を低減する目的で、フィルムを長手方向や幅手方向に収縮させてもよい。

[0228] 長手方向に収縮するには、例えば、巾延伸を一時クリップアウトさせて長手方向に弛緩させる、または横延伸機の隣り合うクリップの間隔を徐々に狭くすることによりフィルムを収縮させるという方法がある。

- [0229] 後者の方法は一般の同時二軸延伸機を用いて、縦方向の隣り合うクリップの間隔を、例えばパンタグラフ方式やリニアドライブ方式でクリップ部分を駆動して滑らかに徐々に狭くする方法によって行うことができる。必要により任意の方向（斜め方向）の延伸と組み合わせてもよい。長手方向、巾手方向とも0.5%から10%収縮させることで光学フィルムの寸法変化率を小さくすることができる。
- [0230] また、延伸によってフィルムの弾性率を上げることができるため、延伸は溶融製膜した光学フィルムの弾性率の低さを補う手段として有効である。
- [0231] 延伸は、例えば光学フィルムの長手方向及びそれと光学フィルム面内で直交する方向、即ち幅方向に対して、逐次または同時に行うことができる。
- [0232] 互いに直行する二軸方向に延伸することにより、得られる光学フィルムの膜厚変動が減少できる。光学フィルムの膜厚変動が大き過ぎると位相差のムラとなり、液晶ディスプレイに用いたとき着色等のムラが問題となることがある。
- [0233] 光学フィルムの膜厚変動は、±3%である事が好ましく、±1%の範囲とすることがさらに好ましい。
- [0234] 延伸後、光学フィルムの端部をスリッターにより製品となる幅にスリットして裁ち落とした後、エンボスリング及びバックロールよりなるナール加工装置によりナール加工（エンボッシング加工）を光学フィルム両端部に施し、巻取り機によって巻き取ることにより、光学フィルム（元巻き）中の貼り付きや、すり傷の発生を防止する。ナール加工の方法は、凸凹のパターンを側面に有する金属リングを加熱や加圧により加工することができる。
- [0235] なお、スリッターにより切除した光学フィルムの両端部は、原料として再利用してもよい。
- [0236] 次に、光学フィルムの巻取り工程は、円筒形巻き光学フィルムの外周面とこれの直前の移動式搬送ロールの外周面との間の最短距離を一定に保持しながら光学フィルムを巻取りロールに巻き取るものである。かつ巻取りロールの手前には、光学フィルムの表面電位を除去または低減する除電ブロー等の

手段が設けられている。

- [0237] 本発明の光学フィルムの製造に係わる巻き取り機は一般的に使用されているものでよく、定テンション法、定トルク法、テーパテンション法、内部応力一定のプログラムテンションコントロール法等の巻き取り方法で巻き取ることができる。なお、光学フィルムの巻き取り時の初期巻き取り張力が $90.2 \sim 300.8 \text{ N/m}$ である事が好ましい。
- [0238] 本発明に係る方法における光学フィルムの巻き取り工程では、温度 $20 \sim 30^\circ\text{C}$ 、湿度 $20 \sim 60\% \text{ RH}$ の環境条件にて、光学フィルムを巻き取ることが好ましい。巻き取り工程における温度が $20 \sim 30^\circ\text{C}$ の範囲であれば、シワの発生がなく、光学フィルム巻品質劣化もない。また、光学フィルムの巻き取り工程における湿度が $20 \sim 60\% \text{ RH}$ であれば、吸湿による光学フィルム巻品質劣化も削減され、巻品質に優れ、貼り付き故障もなく、搬送性の劣化もない。
- [0239] 光学フィルムをロール状に巻き取る際の巻きコアとしては、円筒上のコアであればどのような材質のものであってもよいが、好ましくは中空プラスチックコアである。プラスチック材料としては加熱処理温度にも耐える耐熱性プラスチックであればどのようなものであってもよく、フェノール樹脂、キシレン樹脂、メラミン樹脂、ポリエステル樹脂、エポキシ樹脂等の樹脂が挙げられる。
- [0240] またガラス繊維等の充填材により強化した熱硬化性樹脂が好ましい。例えば、中空プラスチックコア：FRP製の外径6インチ（以下、1インチは 2.54 cm である。）、内径5インチの巻きコアが用いられる。
- [0241] 本発明の光学フィルムの製造において、ロール長さは、生産性と運搬性を考慮すると、長さは $10 \sim 5000 \text{ m}$ が好ましく、より好ましくは $50 \sim 4500 \text{ m}$ である。
- [0242] このときの光学フィルムの幅は、偏光子の幅や製造ラインに適した幅を選択することができるが、 $0.5 \sim 4.0 \text{ m}$ 、好ましくは $1.0 \sim 3.0 \text{ m}$ の幅で光学フィルムを製造してロール状に巻き取ることが好ましい。

- [0243] 本発明における光学フィルムの透明性を判断する指標としては、ヘイズ値（濁度）を用いる。特に屋外で用いられる液晶表示装置においては、明るい場所でも十分な輝度や高いコントラストが得られることが求められる為、ヘイズ値は0.5%以下であることが必要とされ、0.35%以下であることが更に好ましい。
- [0244] 本発明の光学フィルムは、その全光線透過率が90%以上であることが好ましく、より好ましくは92%以上である。かかる全光線透過率にて表される優れた透明性を達成するには、可視光を吸収する添加剤や共重合成分を導入しないようにすることや、ポリマー中の異物を高精度濾過により除去し、フィルム内部の光の拡散や吸収を低減させることが有効である。
- [0245] また、製膜時のフィルム接触部（冷却ロール、カレンダーロール、ドラム、ベルト、溶液製膜における塗布基材、搬送ロールなど）の表面粗さを小さくしてフィルム表面の表面粗さを小さくすることや、アクリル樹脂の屈折率を小さくすることによりフィルム表面の光の拡散や反射を低減させることが有効である。
- [0246] また、本発明の光学フィルムは、JIS-K7127-1999に準拠した測定において、少なくとも一方向の破断点伸度が30%以上であり、より好ましくは50%以上である。本発明においては、脆性の尺度として破断点伸度を用いている。脆性の尺度としては他に引裂き強度や折り曲げによる割れ易さなどが知られているが、引裂き強度は膜厚が厚いほど良く、折り曲げによる割れ易さは膜厚が薄いほど良いなど、光学フィルムの膜厚の影響が大きいため、本発明においては膜厚の影響を受けない破断点伸度を指標として用いている。破断点伸度の上限は特に限定されるものではないが、現実的には250%程度である。破断伸度を大きくするには異物や発泡に起因するフィルム中の欠点を抑制することが有効である。
- [0247] 本発明に係るセルロースエステルフィルムは、隣接する山の頂点から谷の底点までの高さが300nm以上であり、傾きが300nm/mm以上の長手方向に連続するスジがないことが好ましい。

[0248] スジの形状は、表面粗さ計を用いて測定したもので、具体的には、ミットヨ製SV-3100S4を使用して、先端形状が円錐 60° 、先端曲率半径 $2\mu\text{m}$ の触針（ダイヤモンド針）に測定力 0.75mN の加重をかけながら、測定速度 1.0mm/sec でフィルムの巾方向に走査し、Z軸（厚み方向）分解能 $0.001\mu\text{m}$ として断面曲線を測定する。

[0249] この曲線から、スジの高さは、山の頂点から谷の底点までの垂直距離（H）を読み取る。スジの傾きは、山の頂点から谷の底点までの水平距離（L）を読み取り、垂直距離（H）を水平距離（L）で除して求める。

[0250] 本発明の光学フィルムの膜厚に特に制限はないが、後述する偏光板保護フィルムに使用する場合は $20\sim200\mu\text{m}$ であることが好ましく、 $25\sim100\mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $30\sim80\mu\text{m}$ であることが特に好ましい。

[0251] 本発明の光学フィルムは、熔融流延製膜方法によって作製することから、ロール状フィルムとして巻き取った時点で、含有している溶媒量が 0.01 質量%以下である。含有溶媒量は、下記の方法によって測定することができる。

[0252] 各試料を 20ml の密閉ガラス容器に入れ、下記ヘッドスペース加熱条件にて処理したあと、下記ガスクロマトグラフィーにて予め使用した溶媒について検量線を作成し測定を行った。含有溶媒量は、光学フィルムの全体の質量に対する質量部で表した。

機器：HP社 5890SERIES II

カラム：J&W社 DB-WAX（内径 0.32mm 、長さ 30m ）

検出：FID

GC昇温条件： 40°C で5分間保持したあと、 $80^{\circ}\text{C}/\text{分}$ で 100°C まで昇温

ヘッドスペース加熱条件： 120°C で 20min

本発明の光学フィルムは、上記のような物性を満たしていれば、大型の液晶表示装置や屋外用途の液晶表示装置用の偏光板保護フィルムとして特に好

ましく用いることができる。

[0253] 〔偏光板〕

本発明の光学フィルムを偏光板用保護フィルムとして用いる場合、偏光板は一般的な方法で作製することが出来る。本発明の光学フィルムの裏面側に粘着層を設け、沃素溶液中に浸漬延伸して作製した偏光子の少なくとも一方の面に、貼り合わせることが好ましい。

[0254] もう一方の面には本発明の光学フィルムを用いても、別の偏光板保護フィルムを用いてもよい。例えば、市販のセルロースエステルフィルム（例えば、コニカミノルタタック KC8UX、KC4UX、KC5UX、KC8UY、KC4UY、KC12UR、KC8UCR-3、KC8UCR-4、KC8UCR-5、KC8UE、KC4UE、KC4FR-3、KC4FR-4、KC4HR-1、KC8UY-HA、KC8UX-RHA、以上コニカミノルタオプト（株）製）等が好ましく用いられる。

[0255] 偏光板の主たる構成要素である偏光子とは、一定方向の偏波面の光だけを通す素子であり、現在知られている代表的な偏光膜は、ポリビニルアルコール系偏光フィルムで、これはポリビニルアルコール系フィルムにヨウ素を染色させたものと二色性染料を染色させたものがある。

[0256] 偏光子は、ポリビニルアルコール水溶液を製膜し、これを一軸延伸させて染色するか、染色した後一軸延伸してから、ホウ素化合物などで耐久性処理を行ったものが用いられている。

[0257] 上記粘着層に用いられる粘着剤としては、粘着層の少なくとも一部分において25℃での貯蔵弾性率が $1.0 \times 10^4 \sim 1.0 \times 10^9 \text{ Pa}$ の範囲である粘着剤が用いられていることが好ましく、粘着剤を塗布し、貼り合わせた後に種々の化学反応により高分子量体または架橋構造を形成する硬化型粘着剤が好適に用いられる。

[0258] 具体例としては、例えば、ウレタン系粘着剤、エポキシ系粘着剤、水性高分子ーイソシアネート系粘着剤、熱硬化型アクリル粘着剤等の硬化型粘着剤、湿気硬化ウレタン粘着剤、ポリエーテルメタクリレート型、エステル系メ

タクリレート型、酸化型ポリエーテルメタクリレート等の嫌気性粘着剤、シアノアクリレート系の瞬間粘着剤、アクリレートとペルオキシド系の２液型瞬間粘着剤等が挙げられる。

[0259] 上記粘着剤としては１液型であっても良いし、使用前に２液以上を混合して使用する型であっても良い。

[0260] また上記粘着剤は有機溶剤を媒体とする溶剤系であってもよいし、水を主成分とする媒体であるエマルジョン型、コロイド分散液型、水溶液型などの水系であってもよいし、無溶剤型であってもよい。上記粘着剤液の濃度は、粘着後の膜厚、塗布方法、塗布条件等により適宜決定されれば良く、通常は０．１～５０質量％である。

[0261] 〔液晶表示装置〕

本発明の光学フィルムを貼合した偏光板を液晶表示装置に組み込むことによって、種々の視認性に優れた液晶表示装置を作製することが出来るが、特に大型の液晶表示装置やデジタルサイネージ等の屋外用途の液晶表示装置に好ましく用いられる。本発明に係る偏光板は、前記粘着層等を介して液晶セルに貼合する。

[0262] 本発明に係る偏光板は反射型、透過型、半透過型ＬＣＤまたはＴＮ型、ＳＴＮ型、ＯＣＢ型、ＨＡＮ型、ＶＡ型（ＰＶＡ型、ＭＶＡ型）、ＩＰＳ型（ＦＦＳ方式も含む）等の各種駆動方式のＬＣＤで好ましく用いられる。特に画面が３０型以上、特に３０型～５４型の大画面の表示装置では、画面周辺部での白抜け等もなく、その効果が長期間維持される。

[0263] また、色ムラ、ギラツキや波打ちムラが少なく、長時間の鑑賞でも目が疲れないという効果があった。

実施例

[0264] 以下に実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0265] 実施例１

〔光学フィルムの作製〕

(サンプル 1-1 の作製)

下記の組成物 1 を用いて、熔融流延法によりサンプル 1-1 を作製した。

[0266] 組成物 1

アクリル樹脂 (ダイナール BR 85 (三菱レイヨン (株) 製) $M_w = 28$ 万) 70 質量部

セルロースエステル (セルロースアセテートプロピオネート (総置換度 2.75、プロピオニル基置換度 2.56、分子量 $M_n = 86,000$ 、 $M_w / M_n = 2.5$)) 30 質量部

IRGANOX-1010 (チバ・ジャパン (株) 製) 0.5 質量部

PEP-36 (ADEKA (株) 製) 0.1 質量部

Sumilizer-GS (住友化学 (株) 製) 0.3 質量部

グリセリンモノステアレート 0.5 質量部

LA-31 (ADEKA (株) 製) 1.5 質量部

シーホスター KEP-30 (日本触媒 (株) 製) 0.1 質量部

メタブレン W-341 (三菱レイヨン (株) 製) 1.0 質量部

上記組成物を 80℃ で 6 時間乾燥して水分率 200 ppm 以下にし、真空ナウターミキサーで 80℃、1 Torr (約 133 Pa) で 3 時間混合しながら更に乾燥して水分率 50 ppm にした。

[0267] 得られた混合物を二軸式押し出し機を用いて 235℃ で熔融混合しペレット化した。この際、混練時のせん断による発熱を抑えるためニーディングディスクは用いずオールスクリュウタイプのスクリュウを用いた。

[0268] また、ベント孔から真空引きを行い、混練中に発生する揮発成分を吸引除去した。なお、押出機に供給するフィーダーやホッパー、押出機ダイから冷却槽間は、乾燥窒素ガス雰囲気として、樹脂への水分の吸湿の防止や酸素の除去を行った。

[0269] 第 1 冷却ロール及び第 2 冷却ロールは直径 40 cm のステンレス製とし、表面にハードクロムメッキを施した。又、内部には温度調整用のオイル (冷却用流体) を循環させて、ロール表面温度を 130℃ に制御した。

- [0270] 弾性タッチロールは、直径20cmとし、内筒と外筒はステンレス製とし、外筒の表面にはハードクロムメッキを施した。外筒の肉厚は2mmとし、内筒と外筒との間の空間に温度調整用のオイル（冷却用流体）を循環させて弾性タッチロールの表面温度を130℃に制御した。
- [0271] 上記ペレットを用いて窒素雰囲気下、250℃にて熔融して流延ダイから第1冷却ロール上に押し出し、第1冷却ロールと弾性タッチロールとの間に押出した熔融物を挟圧して膜厚80μmのフィルムを成形し、次いでロール周速差を利用した延伸機によって155℃で搬送方向に1.3倍に延伸した。次に予熱ゾーン、延伸ゾーン、保持ゾーン、冷却ゾーン（各ゾーン間には各ゾーン間の断熱を確実にするためのニュートラルゾーンも有する）を有するテンターに導入し、巾方向に155℃で1.5倍延伸した後、巾方向に2%緩和しながら30℃まで冷却し、その後クリップから開放し、クリップ把持部を裁ち落として、膜厚40μmのサンプル1-1を得た。膜厚は押出量と引取り速度を調整することによって制御した。
- [0272] この際、Tダイのリップクリアランス1.5mm、リップ部平均表面粗さRa0.01μmのTダイを用いた。また、第1冷却ロール上でフィルムを2mm厚の金属表面を有する弾性タッチロールを線圧10kg/cmで押圧した。
- [0273] 押圧時のタッチロール側のフィルム温度は、180℃±1℃であった（ここでいう押圧時のタッチロール側のフィルム温度は、第1ロール（冷却ロール）上のタッチロールが接する位置のフィルムの温度を、非接触温度計を用いて、タッチロールを後退させてタッチロールがない状態で50cm離れた位置から幅方向に10点測定したフィルム表面温度の平均値を指す。）。
- [0274] アクリル樹脂とセルロースエステルの添加比率を表1のように変更した以外はサンプル1-1と同様にして、サンプル1-2～1-9を得た。
- [0275] 得られたサンプル1-1～1-9を用いて、耐熱試験後のヘイズ、破断伸度、について評価した。結果を表1に示す。
- [0276] 《評価方法》

《高温高湿後のヘイズ》

サンプル 1-1～1-9 を 80℃ 90%RH の条件で高温高湿処理を 120 時間行った後、JIS K 7136 に記載の方法に従って高温高湿後のヘイズを測定した。測定は日本電色工業（株）製濁度計 NDH2000 を使用した。

[0277] 高温高湿後のヘイズは値が小さい方が好ましく、0.5%以下であれば実用上問題ないが、特に0.35%以下であることが好ましい。

[0278] 《破断点伸度》

サンプル 1-1～1-9 を JIS K 7127 に記載の方法に従って破断点伸度（引張破壊伸びともいう）を測定した。測定はテンシロン試験機（ORIENTEC 社製、RTC-1225A）を用いて行った。

[0279] [表1]

サンプル No.	アクリル樹脂 添加量 質量%	セルロースエステル 添加量 質量%	耐久試験後 ヘイズ %	破断点 伸度 %	備 考
1-1	70	30	0.24	62	本発明
1-2	100	0	0.52	8	比較例
1-3	95	5	0.48	31	本発明
1-4	90	10	0.28	51	本発明
1-5	60	40	0.27	55	本発明
1-6	50	50	0.33	45	本発明
1-7	30	70	0.45	33	本発明
1-8	20	80	0.85	11	比較例
1-9	0	100	0.24	20	比較例

[0280] 表 1 から本発明の試料は、高温高湿後のヘイズが低く、破断点伸度が高いことが判る。

[0281] 実施例 2

サンプル 1-1 のグリセリンモノステアレートを表 2 に記載のように変更した以外はサンプル 1-1 と同様にしてサンプル 2-1～2-26 を作製した。

[0282] 得られたサンプル 2-1～2-26 を用いて、耐熱試験後のヘイズ、面品質（スジ）、について評価した。結果を表 2 に示す。

[0283] (面品質：スジ)

作製した光学フィルムに関して、フィルムの面品質を3波長蛍光灯、グリーンランプ（フナテック（株）製 表面検査ランプFY-100R）の光をフィルムに当てて、その反射光を用いて外観観察した。また、点光源の光をフィルムに当てて、その透過させた像をスクリーンに映して外観を目視で評価し、以下の基準に従って評価した。Cランク以上であれば実用上問題ないレベルであるが、Bランク以上であることが好ましい。

[0284] A：3波長蛍光灯、グリーンランプ、点光源のいずれにおいてもスジが観察されない

B：3波長蛍光灯でスジが観察されず、グリーンランプ、点光源のいずれかで弱いスジが観察される

C：3波長蛍光灯でスジが観察されず、グリーンランプ、点光源の両方でスジが確認できる

D：3波長蛍光灯ではっきりとスジが確認できる。

[0285] (ブリードアウト)

サンプルを80℃ 90%RHの条件で高温高湿処理を120時間行った後、フィルムのブリードアウト（添加剤のしみ出し）を3波長蛍光灯、グリーンランプ（フナテック（株）製 表面検査ランプFY-100R）の光をフィルムに当てて、その反射光を用いて外観観察し、以下の基準に従って評価した。Cランク以上であれば実用上問題ないレベルであるが、Bランク以上であることが好ましい。

[0286] A：3波長蛍光灯、グリーンランプ、のいずれにおいてもブリードアウトが観察されない

B：3波長蛍光灯でブリードアウトが観察されず、グリーンランプで弱いブリードアウトが部分的に観察される

C：3波長蛍光灯でブリードアウトが観察されず、グリーンランプで弱いブリードアウトが確認できる

D：3波長蛍光灯ではっきりとブリードアウトが確認できる。

[0287] [表2]

サンプル No.	エステルワックス類 多価アルコール脂肪酸エステル類		耐久試験後 ヘイズ(%)	面品質(スジ) ランク	ブリード アウト	備考
	種類	添加量(%)				
2-1	グリセリン モノステアレート	0.50	0.24	A	A	本発明
2-2	グリセリン モノステアレート	0.01	0.43	B	A	本発明
2-3	グリセリン モノステアレート	0.05	0.34	B	A	本発明
2-4	グリセリン モノステアレート	0.10	0.32	A	A	本発明
2-5	グリセリン モノステアレート	1.00	0.30	A	A	本発明
2-6	グリセリン モノステアレート	2.00	0.42	A	A	本発明
2-7	グリセリン モノステアレート	3.00	0.48	A	B	本発明
2-8	ジグリセリン モノステアレート	0.50	0.30	A	A	本発明
2-9	ジグリセリン モノステアレート	0.01	0.48	C	A	本発明
2-10	ジグリセリン モノステアレート	0.05	0.39	B	A	本発明
2-11	ジグリセリン モノステアレート	0.10	0.34	A	A	本発明
2-12	ジグリセリン モノステアレート	1.00	0.34	A	A	本発明
2-13	ジグリセリン モノステアレート	2.00	0.45	A	A	本発明
2-14	ジグリセリン モノステアレート	3.00	0.49	A	B	本発明
2-15	ソルビタン モノステアレート	0.50	0.28	A	A	本発明
2-16	ソルビタン モノステアレート	0.01	0.46	C	A	本発明
2-17	ソルビタン モノステアレート	0.05	0.38	B	A	本発明
2-18	ソルビタン モノステアレート	0.10	0.34	A	A	本発明
2-19	ソルビタン モノステアレート	1.00	0.32	A	A	本発明
2-20	ソルビタン モノステアレート	2.00	0.44	A	A	本発明
2-21	ソルビタン モノステアレート	3.00	0.50	A	B	本発明
2-22	グリセリン モノラウレート	0.50	0.43	A	A	本発明
2-23	グリセリン ジアセトモノラウレート	0.50	0.48	B	C	本発明
2-24	グリセリン ジステアレート	0.50	0.47	B	B	本発明
2-25	ソルビタン トリスステアレート	0.50	0.45	B	B	本発明
2-25	ペンタエリスリトール テトラステアレート	0.50	0.43	A	C	本発明
2-25	ジペンタエリスリトール ヘキサステアレート	0.50	0.47	A	C	本発明
2-26	なし		0.00	C	A	本発明

[0288] 表2からエステルワックス類、多価アルコール脂肪酸エステル類を添加することで面品質が向上することが分かる。

[0289] 実施例3

サンプル1-1のアクリル樹脂(A)、セルロースエステル樹脂(B)を表3に記載のように変更した以外はサンプル1-1と同様にしてサンプル3-1~3-22を作製した。

[0290] 得られたサンプル 3-1 ~ 3-22 を用いて、耐熱試験後のヘイズ、破断点伸度、について評価した。結果を表 3 に示す。

[0291] [表3]

サンプル No.	アクリル樹脂(A)		セルロースエステル樹脂(B)							耐久試験後 ヘイズ %	破断点 伸度 %	備考			
			置換度				分子量								
			種類	Mw	ac	p	b	bz	ph				総	Mw	
3-1		BR-85	280000	0.19	2.56					2.75	200000	0.24		62	本発明
3-2		BR-83	40000	0.19	2.56					2.75	200000	0.19		33	本発明
3-3		デルベット80N	100000	0.19	2.56					2.75	200000	0.21		46	本発明
3-4		アクリベットV	105000	0.19	2.56					2.75	200000	0.21		51	本発明
3-5		アクリベットVH-4	140000	0.19	2.56					2.75	200000	0.24		55	本発明
3-6		BR-88	480000	0.19	2.56					2.75	200000	0.36		74	本発明
3-7		BR-85	280000	0.30	1.50					1.80	130000	0.33		44	本発明
3-8		BR-85	280000	1.00	1.50					2.50	150000	0.25		48	本発明
3-9		BR-85	280000	1.08	1.84					2.92	200000	0.28		51	本発明
3-10		BR-85	280000	2.00	0.50					2.50	220000	0.46		35	本発明
3-11		BR-85	280000	0.07	2.50					2.57	150000	0.22		52	本発明
3-12		BR-85	280000	1.00		1.50				2.50	40000	0.29		33	本発明
3-13		BR-85	280000	1.00		1.50				2.50	150000	0.34		42	本発明
3-14		BR-85	280000	1.08		1.84				2.92	230000	0.35		48	本発明
3-15		BR-85	280000	1.20				1.30		2.50	120000	0.37		38	本発明
3-16		BR-85	280000	1.20					1.30	2.50	110000	0.38		36	本発明
3-17		BR-85	280000	2.90						2.90	200000	0.48		31	本発明
3-18		BR-85	280000	0.19	2.56					2.75	70000	0.23		34	本発明
3-19		BR-85	280000	0.19	2.56					2.75	80000	0.23		40	本発明
3-20		BR-85	280000	0.19	2.56					2.75	240000	0.26		51	本発明
3-21		BR-85	280000	0.19	2.56					2.75	250000	0.30		53	本発明
3-22		BR-85	280000	0.19	2.56					2.75	280000	0.37		55	本発明

[0292] 表 3 からアクリル樹脂 (A)、セルロースエステル樹脂 (B) の種類を適切に選択することで耐久試験後ヘイズ、及び破断点伸度をより好ましい範囲にする事が出来る。

[0293] 実施例 4

アクリル粒子（C）の種類と量を表 4 に記載のように変更した以外はサンプル 1-1 と同様にしてサンプル 4-1 ～ 4-7 を作製した。

[0294] 得られたサンプル 4-1 ～ 4-7 を用いて、耐熱試験後のヘイズ、破断点伸度、について評価した。結果を表 4 に示す。

[0295] [表 4]

サンプル No.	アクリル微粒子(C)		耐久試験後 ヘイズ %	破断点 伸度 %	備 考
	種類	添加量(%)			
4-1	なし	0.00	0.17	32	本発明
4-2	メタブレンW-341	1.00	0.24	62	本発明
4-3	ケミスノーMR-26	1.00	0.25	52	本発明
4-4	ケミスノーMS-300X	1.00	0.25	55	本発明
4-5	メタブレンW-341	0.50	0.22	46	本発明
4-6	メタブレンW-341	2.00	0.33	65	本発明
4-7	メタブレンW-341	3.00	0.46	75	本発明

[0296] 表 4 からアクリル微粒子（C）を添加することで耐久試験後ヘイズ、及び破断点伸度をより好ましい範囲にする事が出来る。

[0297] 実施例 5

（液晶表示装置としての特性評価）

実施例 1 で作製したサンプル 1-1 ～ 1-9 について、カッティング性を調べた。結果を表 5 に示す。

[0298] （カッティング性）

軽荷重引き裂き試験機（東洋精機（株）製）を用いて各サンプルを引き裂き、以下のように評価した。

[0299] ○：引き裂き面が非常に滑らかで、かつ、真っ直ぐに裂けている

△：引き裂き面にややバリがあるが、真っ直ぐに裂けている

×：引き裂き面にバリがかなりあり、真っ直ぐに裂けていない。

[0300] カッティング性は光学フィルムの加工のし易さを表し、工程での破断やスリットのし易さに関連する。また、偏光板が液晶セルにうまく貼合出来なかった時に再び剥がす事があるが、この時の剥がし易さ（リワーク性）とも関

連する。カッティング性は○レベルが好ましいが、△レベル以上であれば実用上問題ない。

[0301] 〈偏光板の作製〉

さらに、各光学フィルムを偏光板保護フィルムとした偏光板を、以下のようにして作製した。

[0302] 厚さ $120\mu\text{m}$ の長尺ロールポリビニルアルコールフィルムを、沃素 1 質量部、ホウ酸 4 質量部を含む水溶液 100 質量部に浸漬し、 50°C で 5 倍に搬送方向に延伸して偏光膜を作製した。

[0303] 次に、この偏光膜の片面にアクリル接着剤を用いて、実施例 1 で作製したサンプル 1-1 にコロナ処理を施したのち、貼合した。

[0304] 更に偏光膜のもう一方の面に位相差フィルムであるコニカミノルタオプト社製 KC4FR-3 をアルカリケン化処理してから貼り合わせ、乾燥して偏光板 P1 を作製した。同様にしてサンプル 1-2 ~ 1-9 を用いて偏光板 P2 ~ P9 を作製した。

[0305] 〈液晶表示装置の作製〉

上記作製した各偏光板を使用して、表示特性評価を行った。

[0306] シャープ（株）製 32 型テレビ AQ-32AD5 の予め貼合されていた両面の偏光板を剥がして、上記作製した偏光板をそれぞれ KC4FR が液晶セルのガラス面側になるように、かつ、予め貼合されていた偏光板と同一の方向に吸収軸が向くように貼合し、液晶表示装置を各々作製した。

[0307] 以上のようにして作製した液晶表示装置 1 ~ 9 を用いて視野角変動の評価を行った。結果を表 5 に示す。

[0308] 〈視野角変動〉

23°C 、 $55\%\text{RH}$ の環境で、ELDIM 社製 EZ-Contrast 160D を用いて液晶表示装置の視野角測定を行った。続いて上記偏光板を 60°C 、 $90\%\text{RH}$ で 1000 時間処理したものを同様に測定し、下記基準で 3 段階評価した。視野角変動は偏光板保護フィルムとしての耐熱・耐湿性を表し、○レベルが好ましいが、△レベル以上であれば実用上問題ない。

- [0309] ○：視野角変動が全くない
 △：視野角変動が僅かに認められる
 ×：視野角変動が大きい

[0310] [表5]

サンプル No.	アクリル樹脂 添加量 質量%	セルロースエステル 添加量 質量%	サンプルの カッティング性		視野角 変動	備 考
1-1	70	30	○	液晶表示装置 1	○	本発明
1-2	100	0	×	液晶表示装置 2	×	比較例
1-3	95	5	△	液晶表示装置 3	△	本発明
1-4	90	10	○	液晶表示装置 4	○	本発明
1-5	60	40	○	液晶表示装置 5	○	本発明
1-6	50	50	○	液晶表示装置 6	○	本発明
1-7	30	70	△	液晶表示装置 7	△	本発明
1-8	20	80	×	液晶表示装置 8	×	比較例
1-9	0	100	×	液晶表示装置 9	○	比較例

- [0311] 表5から本発明の光学フィルムを用いるとカッティング性に優れ、また液晶表示装置の視野角変動も良好であることが分かる。

請求の範囲

- [請求項1] アクリル樹脂（A）とセルロースエステル樹脂（B）を95：5乃至30：70の質量比で含有し、熔融製膜法によって作製された光学フィルムであって、80℃90％RHで120時間の高温高湿処理をした後のヘイズが0.5％以下であり、かつ破断点伸度が30％以上250％以下であることを特徴とする光学フィルム。
- [請求項2] エステルワックス類、又は多価アルコール脂肪酸エステル類の少なくとも1種を0.05～2.0質量％含有することを特徴とする請求項1に記載の光学フィルム。
- [請求項3] 前記エステルワックス類、又は多価アルコール脂肪酸エステル類がグリセリン脂肪酸エステル、ジグリセリン脂肪酸エステル、及びソルビタン脂肪酸エステルから選ばれる少なくとも一種であることを特徴とする請求項2に記載の光学フィルム。
- [請求項4] 前記アクリル樹脂（A）の重量平均分子量 M_w が110000～1,000,000であり、前記セルロースエステル樹脂（B）のアシル基の総置換度（T）が2.0乃至3.0、炭素数が3乃至7のアシル基の置換度が1.2乃至3.0であることを特徴とする請求項1～3のいずれか一項に記載の光学フィルム。
- [請求項5] アクリル粒子（C）を0.1～2.0質量％含有することを特徴とする請求項1～4のいずれか一項に記載の光学フィルム。
- [請求項6] 請求項1～5のいずれか一項に記載の光学フィルムを使用したことを特徴とする偏光板。
- [請求項7] 請求項6に記載の偏光板を使用したことを特徴とする液晶表示装置。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/069179

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08J5/18(2006.01)i, C08L1/08(2006.01)i, C08L33/04(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)

C08J5/18, C08L1/00-101/16, C08K3/00-13/08

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 1996-2010

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2010 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2010

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 2008-88417 A (Japan Advanced Institute of Science and Technology), 17 April 2008 (17.04.2008), claims; paragraphs [0001], [0042] to [0043], [0048] to [0053]; examples (Family: none)	1-7
E, X	JP 2009-286930 A (Konica Minolta Opto, Inc.), 10 December 2009 (10.12.2009), claims; paragraphs [0075] to [0104], [0134] to [0286]; examples (Family: none)	1-7

☒ 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
12 January, 2010 (12.01.10)Date of mailing of the international search report
26 January, 2010 (26.01.10)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/069179

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
E, X	JP 2009-299075 A (Konica Minolta Opto, Inc.), 24 December 2009 (24.12.2009), claims; paragraphs [0124] to [0131], [0168]; examples & JP 4379547 B2 & US 2009/0099308 A1 & WO 2009/047924 A1	1-7

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C08J5/18(2006.01)i, C08L1/08(2006.01)i, C08L33/04(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. C08J5/18, C08L1/00-101/16, C08K3/00-13/08

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 1 0 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 0 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 0 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 2008-88417 A（国立大学法人北陸先端科学技術大学院大学） 2008.04.17 特許請求の範囲，【0001】，【0042】－【0043】， 【0048】－【0053】，実施例 （ファミリーなし）	1-7
EX	JP 2009-286930 A（コニカミノルタオプト株式会社）2009.12.10 特許請求の範囲，【0075】－【0104】， 【0134】－【0286】，実施例	1-7

☒ 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

1 2 . 0 1 . 2 0 1 0

国際調査報告の発送日

2 6 . 0 1 . 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）

大熊 幸治

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

4 J

9 0 4 2

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
EX	(ファミリーなし) JP 2009-299075 A (コニカミノルタオプト株式会社) 2009.12.24 特許請求の範囲, 【0 1 2 4】－【0 1 3 1】, 【0 1 6 8】, 実施例 &JP 4379547 B2 &US 2009/0099308 A1 &W0 2009/047924 A1	1-7