

(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
2015年1月29日(29.01.2015)



(10) 国際公開番号
WO 2015/011993 A1

- (51) 国際特許分類:
B29B 9/12 (2006.01) **C08J 3/12** (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2014/064715
- (22) 国際出願日: 2014年6月3日(03.06.2014)
- (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 2013-153239 2013年7月24日(24.07.2013) JP
- (71) 出願人: 三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社(MITSUBISHI ENGINEERING-PLASTICS CORPORATION) [JP/JP]; 〒1050021 東京都港区東新橋一丁目9番2号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 松本 晋(MATSUMOTO Susumu); 〒2540016 神奈川県平塚市東八幡五丁目6番2号 三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社内 Kanagawa (JP). 安達 高広(ADACHI Takahiro); 〒2540016 神奈川県平塚市東八幡五丁目6番2号 三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社内 Kanagawa (JP). 田尻 敏之(TAJIRI Toshiyuki); 〒2540016 神奈川県平塚市東八幡五丁目6

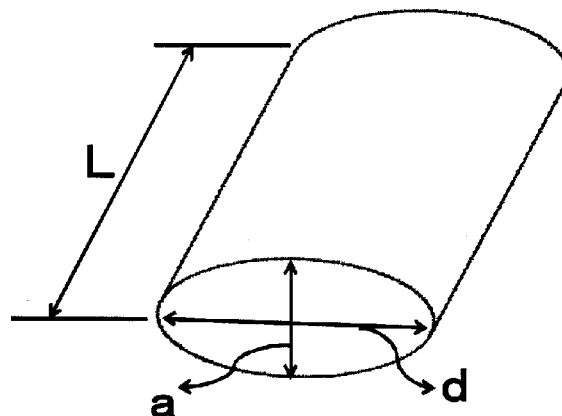
番2号 三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社内 Kanagawa (JP).

- (74) 代理人: 河備 健二(KAWABI Kenji); 〒1700013 東京都豊島区東池袋三丁目9番7号 東池袋織本ビル6階 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, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, 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, 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, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーロシヤ (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT,

[続葉有]

(54) Title: POLYCARBONATE RESIN PELLET FOR THIN OPTICAL MEMBERS AND METHOD FOR MANUFACTURING SAME

(54) 発明の名称: 薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレット及びその製造方法



(57) Abstract: Provided are a polycarbonate resin pellet for thin optical members, said polycarbonate resin pellet having excellent mechanical, thermal and electrical properties and a high weatherability and, furthermore, shows high transmittance properties and a good hue, and a method for manufacturing the same. A polycarbonate resin pellet for thin optical members, said polycarbonate resin pellet being an elliptic cylindrical pellet formed of a polycarbonate resin that has a viscosity-average molecular weight of 10,000-15,500, characterized in that the length is 2.0-5.0 mm, the ratio of major diameter to the minor diameter in a cross-sectional shape of the ellipse is 1.5-4, and the minor diameter is 1.0-3.0 mm.

(57) 要約: 機械的性質、熱的性質、電気的性質及び耐候性に優れ、更に、高透過率性及び良好な色相を有する薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレット及びその製造方法を提供する。粘度平均分子量が10,000~15,500のポリカーボネート樹脂からなる楕円柱状のペレットであって、長さが2.0~5.0mmであり、その断面楕円の長径/短径の比が1.5~4、短径が1.0~3.0mmであることを特徴とする薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレット。



WO 2015/011993 A1

WO 2015/011993 A1



NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI 添付公開書類:

(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, — 国際調査報告 (条約第 21 条(3))
MR, NE, SN, TD, TG).

明 細 書

発明の名称：

薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレット及びその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレット及びその製造方法に関し、詳しくは、機械的性質、熱的性質、電気的性質及び耐候性に優れ、更に、高透過率性及び良好な色相を有する薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレット及びその製造方法に関する。

背景技術

[0002] パーソナルコンピュータ、携帯電話、タブレットPC、スマートフォン等にて使用される液晶表示装置には、その薄型化、軽量化、省力化、高精細化の要求に対応するために、面状光源装置が組み込まれている。そして、この面状光源装置には、入光する光を液晶表示側に均一・効率的に導く役割を果たす目的で、一面が一様な傾斜面を有する楔型断面の導光板や平板形状の導光板が備えられている。また導光板の表面に凹凸パターンを形成して光散乱機能を付与するものもある。

[0003] 上記の様な導光板は、熱可塑性樹脂の射出成形によって得られ、上記の凹凸パターンは入れ子の表面に形成された凹凸部の転写によって付与される。従来、導光板はポリメチルメタクリレート（PMMA）等の樹脂材料から成形されてきたが、最近では、より鮮明な画像を映し出す表示装置が求められ、光源近傍で発生する熱によって機器装置内が高温化する傾向にあるため、より耐熱性の高いポリカーボネート樹脂光学成形材料に置き換えられつつある。

[0004] 導光体用のポリカーボネート樹脂としては、通常のポリカーボネート樹脂の成形温度より高温で薄肉成形されることから、機械的強度を犠牲にしても、粘度平均分子量を下げて、高流動化することが求められている。このように導光体用に代表される薄肉光学部材用のポリカーボネート樹脂は、従来

のポリカーボネート樹脂と比較して、機械的強度が弱い材料であることから、押出機にてペレットを製造する際、押出されたポリカーボネート樹脂のストランドは冷却時に容易に割れてしまい、安定製造が難しい問題がある。

また、工場で製造されたペレットを配送のため紙袋やフレキシブルコンテナ等に入れ、輸送しただけでも、ペレット同士の接触により一部が微粉化してしまう。このような微粉が混入したペレットを用いて、導光体等を成形すると、成形物の黄変や光学的ゆらぎが発生しやすいといった問題点がある。

微粉による問題を解決する手段としては、成形する際に微粉除去機を経由して微粉を取り除くことで解消できるが、工程が一つ余計に入り異物混入の恐れがあることから、できれば経由したくないといった要望がある。

[0005] 特許文献1には、光ディスクのシルバーストリークの発生防止のために、ペレットの長さの平均値が2.5～3.5mmの範囲にあり、その70%以上が長さの平均値プラスマイナス0.1mmの範囲に含まれる光ディスク用ポリカーボネート樹脂ペレットが提案されている。同文献では、このように微粉の少ないペレット集合体が可塑化時のエアの巻き込みがなく、シルバーストリークの発生がない光ディスク基板が得られることが記載されているが、そのペレットの形状については記載されていない。

[0006] また、特許文献2には、光ディスク基板の成形サイクルの短縮化を図るべく、ペレットの長さの平均値2.5～3.5mm、断面楕円の長径の平均値2.60～3.2mm、ペレットの70%以上が長さの平均値±0.08mmの範囲及び長径の平均値±0.12mmの範囲に含有されることを特徴とする光ディスク基板用ポリカーボネート成形材料が提案されている。同文献では、ペレットの長さ及び長径を上記の範囲にすることにより、長さと長径の比が約0.7～1.5のバランスのとれた立体形状となり、しかもその分布は一定の狭い範囲内に存するので、非常に均一な形状から構成され、その結果、形状がディスク用射出成型機のシリンダーとスクリュウの構造により適合していること、可塑化時の溶融効率が高められて可塑化時間が短縮され、成形サイクルの短い、所謂ハイサイクル成形による光ディスク基板の製造

を可能にすることが記載されている。特許文献2もまた、ペレット集合体が均一形状であることを特徴としているが、その個々のペレットの楕円形状の詳細については記載はなく、またそのペレットの具体的な製造方法としては単にストランドをカットして製造することしか記載されていない。

[0007] そして、これら特許文献1～2に記載の発明のように、ペレット集合体中の微粉を極力少なくすることは、導光体等の薄肉光学部材用にとっても重要なことではあるが、それだけでは、黄変や光学的ゆらぎが発生し難い薄肉光学部材用のポリカーボネート樹脂ペレットとしては充分ではない。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献1：特開平07-52272号公報

特許文献2：特開平11-035692号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] 本発明は、上記実情に鑑みなされたものであり、その目的（課題）は、機械的強度が弱い低分子量のポリカーボネート樹脂から、ペレット同士が接触しても比較的微粉発生量が少ない形状に加工し、これを用いて導光体を成形することを可能とすることで、結果として、成形物の黄変、光学的ゆらぎが発生し難い導光体を提供することにある。また、このようなペレットを安定して製造する方法を提供することである。

課題を解決するための手段

[0010] 本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意検討を行った結果、このようなポリカーボネート樹脂からペレットを製造する際、押出時のストランド断面形状を扁平化させることにより、ストランドに弾性を持たせ、冷却時に割れにくくすることで、薄肉光学部材用のペレットを安定して製造することを可能とした。

また、ペレタイズ後のペレット形状を特定の扁平形状とすることで、ペレ

ット同士の接触でも微粉化しにくいことを見出し、結果として、成形物の黄変、光学的ゆらぎが発生し難い導光体等の薄肉光学部材用のペレットとして極めて優れていることを見出し、本発明に至った。

本発明は、以下の薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレット、その製造方法、薄肉光学部材および導光体を提供する。

[0011] [1] 粘度平均分子量が10,000～15,500のポリカーボネート樹脂からなる楕円柱状のペレットであって、長さが2.0～5.0mmであり、その楕円断面の長径／短径の比が1.5～4、短径が1.0～3.0mmであることを特徴とする薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレット。

[2] 粘度平均分子量が11,500～15,000である上記[1]に記載の薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレット。

[3] 前記ポリカーボネート樹脂ペレットは、ポリカーボネート樹脂ペレット500gを収容した外径125mm、全高233mmの容量2リットルのポリエチレン製密閉容器を50リットルのタンブラーに入れて固定し、30rpmの回転数で20分間回転させた後に発生する粒径1mm以下の微粉の量が50ppm以下である上記[1]または[2]に記載の薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレット。

[4] ペレットの断面楕円の長径／短径の比が1.8～4である上記[1]～[3]のいずれかに記載の薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレット。

[0012] [5] 上記[1]～[4]のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂ペレットを製造する方法であって、粘度平均分子量が10,000～15,500のポリカーボネート樹脂を、押出機の先端部に設けた楕円状のダイス穴を有する吐出ノズルから、断面楕円の長径部を略水平状態にしてストランドとして押出し、これを冷却水槽中で冷却固化し、ストランドカッターによってカットすることを特徴とする薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレットの製造方法。

[6] ストランドの引取速度が100mm/secにおけるストランドを支

えるサポートの高低差が290mmであるとき、1時間以上の連続運転でストランドが折れない、同じ高さにあるサポートの間隔が300mm以下である上記〔5〕に記載の薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレットの製造方法。

〔7〕上記〔1〕～〔4〕のいずれかに記載の薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレットから成形された薄肉光学部材。

〔8〕上記〔1〕～〔4〕のいずれかに記載の薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレットから成形された導光体。

発明の効果

[0013] 本発明のポリカーボネート樹脂ペレットは、粘度平均分子量が10,000～15,500と低いにも係わらず、ペレット同士の接触で微粉化しにくく、結果として、成形物の黄変、光学的ゆらぎが発生し難い導光体等の薄肉光学部材用のペレットとして極めて優れている。また、ペレットを製造する際、押出時のストランド断面形状を扁平化させることにより、ストランドに弾性を持たせ、冷却時に割れにくくすることで、薄肉光学部材用のペレットを安定して製造することができる。

図面の簡単な説明

[0014] [図1]図1は、本発明の薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレットの模式図である。

[図2]図2は、ポリカーボネート樹脂ペレットを押出機からストランドを押出して製造する工程及び限界強度評価方法の概念図である。

[図3]図3は、限界強度評価方法の詳細を示す概念図である。

発明を実施するための形態

[0015] 以下、本発明について実施形態および例示物を示して詳細に説明するが、本発明は当該実施形態及び例示物等に限定して解釈されるものではない。

なお、本願明細書において、「～」とは、特に断りのない限り、その前後に記載される数値を下限値および上限値として含む意味で使用される。

[0016] 本発明の薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレットは、粘度平均分子

量が10,000～15,500のポリカーボネート樹脂からなる楕円柱状のペレットであって、長さが2.0～5.0mmの範囲にあり、その断面楕円の長径／短径の比が1.5～4、短径が1.0～3.0mmの範囲にあることを特徴とする。

[0017] [ポリカーボネート樹脂]

本発明に使用するポリカーボネート樹脂は、芳香族ポリカーボネート樹脂、脂肪族ポリカーボネート樹脂、芳香族－脂肪族ポリカーボネート樹脂が挙げられ、好ましくは、芳香族ポリカーボネート樹脂であり、具体的には、芳香族ジヒドロキシ化合物をホスゲン又は炭酸のジエステルと反応させることによって得られる熱可塑性芳香族ポリカーボネート重合体又は共重合体を用いられる。

[0018] 芳香族ジヒドロキシ化合物としては、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン(ビスフェノールA)、テトラメチルビスフェノールA、 α , α' -ビス(4-ヒドロキシフェニル)-p-ジイソプロピルベンゼン、ハイドロキノン、レゾルシノール、4,4'-ジヒドロキシジフェニルなどが挙げられる。また、ジヒドロキシ化合物の一部として、上記の芳香族ジヒドロキシ化合物にスルホン酸テトラアルキルホスホニウムが1個以上結合した化合物、又はシロキサン構造を有する両末端フェノール性OH基含有のポリマーもしくはオリゴマー等を併用すると、難燃性の高いポリカーボネート樹脂を得ることができる。

本発明で用いるポリカーボネート樹脂の好ましい例としては、ジヒドロキシ化合物として2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、又は2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンと他の芳香族ジヒドロキシ化合物とを併用したポリカーボネート樹脂が挙げられる。

[0019] ポリカーボネート樹脂の製造方法は、特に制限はないが、通常、界面重合法(ホスゲン法)または熔融法(エステル交換法)の方法で製造される。

[0020] 界面重合法における重合反応は、反応に不活性な有機溶媒、アルカリ水溶液の存在下で、通常pHを9以上に保ち、芳香族ジヒドロキシ化合物、なら

びに、必要に応じて分子量調整剤（末端停止剤）および芳香族ジヒドロキシ化合物の酸化防止のための酸化防止剤を用い、ホスゲンと反応させた後、第三級アミンまたは第四級アンモニウム塩等の重合触媒を添加し、界面重合を行うことによってポリカーボネート樹脂を得る。分子量調節剤の添加は、ホスゲン化時から重合反応開始時までの間であれば特に限定されない。なお、反応温度は、例えば、0～40℃で、反応時間は、例えば、数分（例えば、10分）～数時間（例えば、6時間）である。

[0021] ここで、反応に不活性な有機溶媒としては、ジクロロメタン、1,2-ジクロロエタン、クロロホルム、モノクロロベンゼン、ジクロロベンゼン等の塩素化炭化水素などが挙げられる。また、アルカリ水溶液に用いられるアルカリ化合物としては、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等のアルカリ金属の水酸化物が挙げられる。

[0022] 分子量調節剤としては、一価のフェノール性水酸基を有する化合物が挙げられ、m-メチルフェノール、p-メチルフェノール、m-プロピルフェノール、p-プロピルフェノール、p-tert-ブチルフェノールおよびp-長鎖アルキル置換フェノールなどが好ましく挙げられる。分子量調節剤の使用量は、芳香族ジヒドロキシ化合物100モルに対して、好ましくは50～0.5モル、より好ましくは30～1モルである。

[0023] 重合触媒としては、トリメチルアミン、トリエチルアミン、トリブチルアミン、トリプロピルアミン、トリヘキシルアミン、ピリジン等の第三級アミン類、トリメチルベンジルアンモニウムクロライド、テトラメチルアンモニウムクロライド、トリエチルベンジルアンモニウムクロライド等の第四級アンモニウム塩などが挙げられる。

[0024] 溶融法について説明すると、この製造方法における重合反応は、例えば、炭酸ジエステルと芳香族ジヒドロキシ化合物とのエステル交換反応である。炭酸ジエステルとしては、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、ジ-tert-ブチルカーボネート等の炭酸ジアルキル化合物、ジフェニルカーボネートおよびジトリルカーボネート等の置換ジフェニルカーボネート

等が例示される。炭酸ジエステルは、好ましくはジフェニルカーボネートまたは置換ジフェニルカーボネートであり、より好ましくはジフェニルカーボネートである。

[0025] 溶融エステル交換反応においては、通常、炭酸ジエステルと芳香族ジヒドロキシ化合物との混合比率や、エステル交換反応時の減圧度を調整して、所望の分子量および末端水酸基量を調整した芳香族ポリカーボネート樹脂を得ることができる。通常、溶融エステル交換反応においては、芳香族ジヒドロキシ化合物 1 モルに対して、炭酸ジエステルを等モル量以上用い、中でも 1.001～1.3 モル、特に 1.01～1.2 モル用いることが好ましい。また、より積極的な調整方法としては、反応時に別途、末端停止剤を添加する方法が挙げられ、この際の末端停止剤としては、一価フェノール類、一価カルボン酸類、炭酸ジエステル類が挙げられる。

[0026] 本発明で使用するポリカーボネート樹脂は、上記界面重合法および溶融重合法のいずれで製造されたものでもよい。

[0027] 本発明で用いるポリカーボネート樹脂は、粘度平均分子量 $[M_v]$ が 10,000～15,500 のものを対象にする。粘度平均分子量 $[M_v]$ がこの範囲であることで、流動性がよく、残留応力の少ない成形品が得られるので薄肉光学部材用として好ましい。粘度平均分子量 $[M_v]$ が 10,000 を下回ると成形品の強度が著しく低下し、15,500 を超えると流動性が不十分となり、薄肉光学部材の成形が困難となる。粘度平均分子量 $[M_v]$ は、好ましくは 10,500 以上であり、より好ましくは 11,000 以上、さらに好ましくは 11,500 以上であり、また好ましくは 15,000 以下である。

[0028] ここで、粘度平均分子量 $[M_v]$ とは、溶媒としてメチレンクロライドを使用し、ウベローデ粘度計を用いて温度 20℃での極限粘度 $[\eta]$ (単位 dl/g) を求め、Schneilの粘度式、すなわち、 $\eta = 1.23 \times 10^{-4} M_v^{0.83}$ から算出される値を意味する。また極限粘度 $[\eta]$ とは、各溶液濃度 $[C]$ (g/dl) での比粘度 $[\eta_{sp}]$ を測定し、下記式により算出し

た値である。

[数1]

$$\eta = \lim_{c \rightarrow 0} \eta_{sp} / c$$

[0029] なお、ポリカーボネート樹脂は、2種以上のポリカーボネート樹脂を併用しても良く、また、粘度平均分子量 $[M_v]$ が10,000～15,500の範囲を外れるものを併用して、全体として10,000～15,500の分子量に調整したものを用いてもよい。

[0030] また、ポリカーボネート樹脂は、熱安定剤、酸化防止剤、離型剤、紫外線吸収剤、蛍光増白剤、顔料、染料、他のポリマー、難燃剤、耐衝撃改良剤、帯電防止剤、可塑剤、相溶化剤などの添加剤を含有することができる。これらの添加剤は一種または二種以上を配合してもよい。これらのうち、特に、熱安定剤と酸化防止剤を用いることが好ましい。

[0031] 熱安定剤としては、特に制限はないが、例えばリン系化合物が好ましく挙げられる。リン系化合物としては、公知の任意のものを使用できる。具体例を挙げると、リン酸、ホスホン酸、亜リン酸、ホスフィン酸、ポリリン酸などのリンのオキソ酸、酸性ピロリン酸ナトリウム、酸性ピロリン酸カリウム、酸性ピロリン酸カルシウムなどの酸性ピロリン酸金属塩、リン酸カリウム、リン酸ナトリウム、リン酸セシウム、リン酸亜鉛など第1族または第10族金属のリン酸塩、有機ホスフェート化合物、有機ホスファイト化合物、有機ホスホナイト化合物などが挙げられる。

[0032] なかでも、トリフェニルホスファイト、トリス（モノニルフェニル）ホスファイト、トリス（モノニル／ジニル・フェニル）ホスファイト、トリス（2,4-ジ-tert-ブチルフェニル）ホスファイト、モノオクチルジフェニルホスファイト、ジオクチルモノフェニルホスファイト、モノデシルジフェニルホスファイト、ジデシルモノフェニルホスファイト、トリデシルホスファイト、トリラウリルホスファイト、トリステアリルホスファイト、2,2-メチレンビス（4,6-ジ-tert-ブチルフェニル）オク

チルホスファイト等の有機ホスファイトが好ましい。

[0033] 熱安定剤の含有量は、ポリカーボネート樹脂 100 質量部に対して、通常 0.001 質量部以上、好ましくは 0.01 質量部以上、より好ましくは 0.03 質量部以上であり、また、通常 1 質量部以下、好ましくは 0.7 質量部以下、より好ましくは 0.5 質量部以下である。熱安定剤が少なすぎると熱安定効果が不十分となる可能性があり、熱安定剤が多すぎると効果が頭打ちとなり経済的でなくなる可能性がある。

[0034] また、酸化防止剤としては、例えばヒンダードフェノール系酸化防止剤が好ましく挙げられる。その具体例としては、ペンタエリスリトールテトラキス [3- (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネート]、オクタデシル-3- (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネート、チオジエチレンビス [3- (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネート]、N, N'-ヘキサ-1, 6-ジイルビス [3- (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオナミド]、2, 4-ジメチル-6- (1-メチルペンタデシル) フェノール、ジエチル [[3, 5-ビス (1, 1-ジメチルエチル) -4-ヒドロキシフェニル] メチル] ホスフォエート、3, 3', 3'', 5, 5', 5''-ヘキサ-tert-ブチル-a, a', a''- (メシチレン-2, 4, 6-トリイル) トリーp-クレゾール、4, 6-ビス (オクチルチオメチル) -o-クレゾール、エチレンビス (オキシエチレン) ビス [3- (5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-m-トリル) プロピオネート]、ヘキサメチレンビス [3- (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネート]、1, 3, 5-トリス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル) -1, 3, 5-トリアジン-2, 4, 6 (1H, 3H, 5H) -トリオン、2, 6-ジ-tert-ブチル-4- (4, 6-ビス (オクチルチオ) -1, 3, 5-トリアジン-2-イルアミノ) フェノール等が挙げられる。

[0035] なかでも、ペンタエリスリトールテトラキス [3- (3, 5-ジ-tert-

t-ブチルー4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、オクタデシル-3-(3,5-ジ-tert-ブチルー4-ヒドロキシフェニル)プロピオネートが好ましい。このようなフェノール系酸化防止剤としては、具体的には、例えば、BASF社製「イルガノックス1010」(登録商標、以下同じ)、「イルガノックス1076」、ADEKA社製「アデカスタブAO-50」、「アデカスタブAO-60」等が挙げられる。

なお、酸化防止剤は、1種が含有されていてもよく、2種以上が任意の組み合わせ及び比率で含有されていても良い。

[0036] 酸化防止剤の含有量は、ポリカーボネート樹脂100質量部に対して、通常0.001質量部以上、好ましくは0.01質量部以上であり、また、通常1質量部以下、好ましくは0.5質量部以下である。酸化防止剤の含有量が前記範囲の下限值未満の場合は、酸化防止剤としての効果が不十分となる可能性があり、酸化防止剤の含有量が前記範囲の上限値を超える場合は、効果が頭打ちとなり経済的でなくなる可能性がある。

[0037] さらに、本発明におけるポリカーボネート樹脂は、バージン原料だけでなく、使用済みの製品から再生されたポリカーボネート樹脂、いわゆるマテリアルリサイクルされたポリカーボネート樹脂を使用してもよく、また、製品の不適合品、スプルー、ランナー等から得られた粉碎品またはそれらを溶融して得た粉粒体等も使用可能である。再生されたポリカーボネート樹脂は、再生品ではない粉粒体形状のポリカーボネート樹脂に混合して用いられ、混合量としては、全ポリカーボネート樹脂成分の80質量%以下であることが好ましく、より好ましくは50質量%以下、特には30質量%である。

[0038] [ポリカーボネート樹脂ペレット]

本発明のポリカーボネート樹脂ペレットは、楕円柱状の形状を有する。図1は、本発明の薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレットの模式図である。

本発明のポリカーボネート樹脂ペレットは、長さLが2.0~5.0mmの範囲にあり、ペレットの楕円断面の長径dと短径aの比(d/a)が1.

5～4の範囲にあり、かつ楕円短径 a が1.0～3.0mmの範囲にあることを特徴とする。

[0039] 長さ L が2.0～5.0mmの範囲にないとペレットが容易に砕けやすくなり、微粉の発生量が多くなり、長径 d と短径 a の比(d/a)が1.5～4の範囲から外れると樹脂のストランドの強度が低下し、押出によるペレットの生産が不安定となり、楕円短径 a が1.0～3.0mmの範囲にないとペレットが容易に砕けやすくなり、微粉の発生量が多くなりやすい。

長径 d と短径 a の比(d/a)は、好ましくは1.6以上であり、より好ましくは1.7以上、さらに好ましくは1.8以上であり、また好ましくは3.5以下であり、より好ましくは3.0以下である。

[0040] 本発明のポリカーボネート樹脂ペレットは、このような形状を有することで、ペレットを紙袋やフレキシブルコンテナ等に収容し、これを輸送配送する際に振動や荷重を受けても微粉を発生しにくいという特徴を有する。ペレットの楕円断面の長径方向が水平になって、荷重を受け止めるので、微粉化しにくいものと考えられる。

本発明のポリカーボネート樹脂ペレットの微粉発生量は、樹脂ペレット500gを外径125mm、全高233mmの容量2リットルのポリエチレン製密閉容器に収容し、それを50リットルのタンブラーに入れて固定し、30rpmの回転数で20分間回転させた後に発生する粒径が1mm以下の微粉の量が好ましくは50ppm以下である。

[0041] [ポリカーボネート樹脂ペレットの製造]

本発明のポリカーボネート樹脂ペレットを製造する方法としては、各種の方法が適用可能であるが、以下にその好適な態様を説明する。

[0042] 前記した粘度平均分子量を有するポリカーボネート樹脂は、原料供給機に貯蔵され、そこからフィーダー（定量供給機）によって、押出機上に設置されたホッパーより押出機に供給される。なお、ポリカーボネート樹脂はペレットでもパウダー状でも構わない。

ポリカーボネート樹脂以外の他の成分を配合する場合には、その混合は押

出機に投入される前の任意の段階で配合することができる。例えば、タンブラー、ヘンシェルミキサー、ブレンダーによって全成分を配合したのち、必要に応じてフィーダーを介してホッパーシュートに投入し、押出機に供給してもよい。押出機には一軸押出機、二軸押出機などが使用出来る。また、ポリカーボネート樹脂とは別経路でホッパーシュートに供給してもよい。

[0043] 押出機としては、一軸押出機でも二軸押出機でよいが、二軸押出機が好ましい。押出機のスクリューの L/D としては、 $10 \sim 80$ が好ましく、より好ましくは $15 \sim 70$ 、より好ましくは $20 \sim 60$ である。スクリューは短すぎると脱気が不足しやすく、長すぎると色調が悪化しやすい。

[0044] 次に、ポリカーボネート樹脂は、押出機の先端部の吐出ノズルからストランド状に押出されるが、吐出ノズルのダイスとしては、楕円状のダイス穴を有するダイスを用いることが好ましい。吐出ノズルの楕円状のダイス穴の扁平率を変えることによりペレットの扁平率を変えることができる。

[0045] 吐出ノズルのダイスは、楕円状のダイス穴の長径を略水平状態に取り付け、押出される断面が楕円状のストランドがその長径を略水平状になるように取り付けて、押出することが好ましい。押出された直後のポリカーボネート樹脂の温度は、通常 300°C 程度である。

楕円断面状のストランドは、その長径を略水平にして引き取りローラーによって引き取られ、冷却水槽に溜められた水中を搬送されるようにして、冷却される。樹脂の劣化を少なくするために、ストランドがダイから押し出されてから水に入るまでの時間は短い方がよい。通常は、ダイから押し出されてから1秒以内に水中に入るのがよい。

[0046] 冷却されたストランドは、引き取りローラーによりペレタイザーに送られ、ペレット長さ $2.0 \sim 5.0 \text{ mm}$ にカッティングされて、ペレットとされる。

[0047] 図2はポリカーボネート樹脂ペレットを押出機からストランドを押出して製造する工程を示す概念図、図3は限界強度評価方法の詳細を示す概念図である。

ポリカーボネート樹脂ペレットを押出機の吐出ノズル2から押出されたストランド1は、冷却水槽3に導入して冷却された後、引き取りローラーのサポートC、B、Aに順に支持されながら引き取られ、ペレタイザー4に送られる。この際、ストランドの引取速度（ V_x ）が 100 mm/sec で、ストランド1を支える同じ高さにあるサポートC及びAとC-A間にあるサポートBの高低差が 290 mm であるとき、1時間以上の連続運転でストランドが折れないサポートCとサポートAの間隔として定義される間隔（ $X\text{ mm}$ 、以下「限界間隔」ともいう。）が、 300 mm 以下であることが好ましい。

[0048] [薄肉光学部材]

本発明によって得られたポリカーボネート樹脂ペレットは、任意の形状に成形して薄肉光学部材として用いられる。

ここで薄肉とは、薄肉部の厚さとして、通常 1 mm 以下、好ましくは 0.8 mm 以下、より好ましくは 0.6 mm 以下、特には 0.5 mm 以下をいい、また、その下限は通常 0.1 mm 以上、好ましくは 0.2 mm 以上である。薄肉部を有する成形体としては、少なくとも一部にこのような薄肉部を有していればよく、その形状、寸法などに制限はない。

薄肉光学部材の形状、模様、色彩、寸法などに制限はなく、その用途に応じて任意に設定すればよい。

[0049] 薄肉光学部材の製造方法は、特に限定されず、ポリカーボネート樹脂組成物について一般に採用されている成形法を任意に採用できる。その例を挙げると、射出成形法、超高速射出成形法、射出圧縮成形法、二色成形法、ガスアシスト等の中空成形法、断熱金型を使用した成形法、急速加熱金型を使用した成形法、発泡成形（超臨界流体も含む）、インサート成形、IMC（インモールドコーティング成形）成形法、押出成形法、シート成形法、熱成形法、回転成形法、積層成形法、プレス成形法などが挙げられる。また、ホットランナー方式を使用した成形法を用いることも出来る。

[0050] 薄肉光学部材としては、導光板等の導光体をその代表として挙げるこ

できる。導光板は、液晶バックライトユニットや各種の表示装置、照明装置の中で、LED等の光源の光を伝えるためのものであり、側面または裏面等からから入れた光を、通常表面に設けられた凹凸により拡散させ、均一の光を出す。その形状は、通常平板状であり、表面には凹凸を有していても有していなくてもよい。

導光板の成形は、通常、好ましくは射出成形法、超高速射出成形法、射出圧縮成形法などにより行われる。

本発明の樹脂ペレットを用いて成形した薄肉成形体は、黄変あるいは白点不良や真空ボイドの発生の問題がなく、導光板を初めとして各種の薄肉光学部材として、好ましく使用することができる。

[0051] 薄肉光学部材としては、携帯電話、モバイルノート、ネットブック、スレートPC、タブレットPC、スマートホン、タブレット型端末等の携帯端末、カメラ、時計、ノートパソコン、各種ディスプレイ、照明機器等の用いる各種の薄肉の光学部材が挙げられる。

実施例

[0052] 以下、本発明を実施例によりさらに詳しく説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0053] (実施例1)

粘度平均分子量(M_v)が13,000のビスフェノールAを出発原料とする芳香族ポリカーボネート樹脂(三菱エンジニアリングプラスチックス社製、商品名「ユーピロン(登録商標)」)を、ベント式二軸押出機(日本製鋼所社製「TEX44αII」)のホッパーから押出機に連続的に供給し、押出機内で熔融混合し、シリンダー温度240℃、吐出量150kg/h、スクリー回転数250rpmの押出条件にて、表1に記載の楕円状のダイス穴を有するダイスを、その長径を水平にして設けた押出ノズルから、ストランド状にその楕円断面の長径を略水平にして押出し、冷却水槽に導入して、表1に記載したストランドの引取速度、カッター刃の回転速度にて、ペレタイザーで切断してポリカーボネート樹脂のペレットを得た。

[0054] (1) ペレット楕円断面の長径／短径比

得られたポリカーボネート樹脂ペレットの長径と短径、長さを測定し、それぞれ100個の平均値を示した。長径／短径の平均値の比をペレット扁平率とした。

[0055] (2) スtrandの安定性

ダイスから出てくるstrandは、押出の方向が定まらずに蛇行することを防ぐため、strandにサポートを押し付けて一定の負荷をかけることにより、strandが真直ぐに押出されるようにしている。

この状態で、1時間当たりのstrandが切れた回数をカウントし、押出の安定性を評価した。

[0056] (3) strandの限界強度

また、strandの限界強度を以下の方法で評価した。

図2に示すように、得られたポリカーボネート樹脂ペレットを押出機から押出されたstrandは、サポートCからサポートB、サポートAに支えながらペレタイザーに送られる。strandの限界強度は、図3に詳細に示すとおり、strandの引取速度(V_x)が100mm/secで、strandを支える同じ高さにあるサポートC及びAとサポートBの高低差が290mmであるとき、1時間以上の連続運転でstrandが折れないサポートCとサポートAの間隔(X mm)として評価した。限界間隔は300mm以下であることが好ましい。

[0057] (4) 振動試験による微粉発生量の測定

得られたポリカーボネート樹脂ペレット500gを外径125mm、全高233mmの容量2リットルのポリエチレン製密閉容器に収容し、それを50リットルのタンブラー（誠和鉄工所社製「SKD-50」）に入れて固定し、30rpmの回転数で20分間回転させ、ペレット同士が擦れて微粉が発生する状況にした。

微粉量の測定は、水とエチルアルコールを1：1で混合した液体1リットル中に振動試験後のペレット500gを入れて十分に攪拌した後、濾紙を用

いてペレットの微粉を含む上澄み液を濾過した後の濾紙を120℃のオーブンで2時間乾燥した後の質量を測定し、濾紙質量の純増量から付着微粉量（質量ppm）を算出し、それを微粉発生量とした。本測定における微粉の粒径は1mm以下である（粒径が1mmを超えるとその重さでペレットと共に沈殿するため、上澄み液には含まれず、濾紙に残る微粉は1mm以下になると考えられる。）。

[0058] (5) YI（イエローインデックス）

得られたポリカーボネート樹脂ペレットを用い、射出成形機（東芝機械社製「EC100SX-2A」）により、340℃の温度で成形した長光路成形品（300mm×7mm×4mm）を用いて、光路長が300mmでのYIの測定を行った。YIの測定には長光路分光透過色計（日本電色工業社製「ASA1」）を使用した。

[0059] (6) 白点不良

得られたポリカーボネート樹脂ペレットを用い、射出成形機（東芝機械社製「EC100SX-2A」）により、340℃の温度で、100mm×100mm×0.4mm厚の薄肉平板を成形し、10枚当たりの白点不良を生じた枚数をカウントした。

[0060] (7) 真空ボイド

得られたポリカーボネート樹脂ペレット100個について、目視観察を行い、真空ボイドが存在するペレットの数をカウントした。

[0061] 以上の評価結果を表1に示す。

[0062] (実施例2～3)

実施例1において、ダイスを表1に記載のダイス穴の長径と短径のものに変更した以外は同様にして、ポリカーボネート樹脂ペレットを得た。

結果を表1に示す。

[0063] (実施例4)

実施例1において、ポリカーボネート樹脂を粘度平均分子量（ M_v ）が12,000のビスフェノールAを出発原料とする芳香族ポリカーボネート樹

脂（三菱エンジニアリングプラスチックス社製、商品名「ユーピロン（登録商標）」）に変更した以外は同様にして、ポリカーボネート樹脂ペレットを得た。

結果を表 1 に示す。

（実施例 5）

実施例 1 において、ポリカーボネート樹脂を粘度平均分子量（ M_v ）が 14,500 のビスフェノール A を出発原料とする芳香族ポリカーボネート樹脂（三菱エンジニアリングプラスチックス社製、商品名「ユーピロン（登録商標）」）に変更した以外は同様にして、ポリカーボネート樹脂ペレットを得た。

結果を表 1 に示す。

[0064]（比較例 1～4）

実施例 1 において、ダイスを表 1 に記載のダイス穴の長径と短径ものに変更した以外は同様にして、ポリカーボネート樹脂ペレットを得た。

結果を表 2 に示す。

（比較例 5～6）

実施例 1 において、カッター刃の回転数を表 2 に記載のとおりに変更し、ペレットの長径、短径の寸法と長径／短径比を保持したままペレットの長さを変化させて、ポリカーボネート樹脂ペレットを得た。

結果を表 2 に示す。

[0065]

[表1]

	実 施 例				
	1	2	3	4	5
粘度平均分子量	13000	13000	13000	12000	14500
ダイス穴のサイズ (長径×短径 mm)	6.5× 3.5	6.5× 2.8	10.0× 3.5	6.5× 3.5	6.5× 3.5
ストランドの引取速度 (m/m i n)	40	40	40	40	40
カッター刃の回転数 (r p m)	600	600	600	600	600
ペレットの長径(mm)	2.9	2.9	4.3	2.9	2.9
ペレットの短径(mm)	1.5	1.2	1.5	1.5	1.5
ペレットの長さ(mm)	2.9	3.2	3.5	2.9	2.9
長径／短径比	1.9	2.4	2.9	1.9	1.9
ストランド安定性: 切れ回数／1時間	0	0	0	0	0
ストランドの限界強度: サポート限界間隔(mm)	280	250	200	290	250
微粉発生量(質量 p p m)	40	35	35	40	35
300mm Y I	19	20	20	19	20
薄肉平板の白点不良	0	0	0	0	0
ペレットの真空ボイド	0	0	0	0	0

[0066]

[表2]

	比 較 例					
	1	2	3	4	5	6
粘度平均分子量	13000	13000	13000	13000	13000	13000
ダイス穴のサイズ (長径×短径 mm)	5.9× 4.7	15.6× 3.5	4.1× 2.5	14.0× 7.2	6.5× 3.5	6.5× 3.5
ストランドの引取速度 (m/min)	40	40	40	40	40	40
カッター刃の回転数 (rpm)	600	600	600	600	1200	300
ペレットの長径(mm)	2.7	6.7	1.5	6.3	2.9	2.9
ペレットの短径(mm)	2.1	1.5	0.9	3.2	1.5	1.5
ペレットの長さ(mm)	2.6	2.0	2.5	3.2	1.3	6.2
長径／短径比	1.3	4.5	1.7	2.0	1.9	1.9
ストランド安定性: 切れ回数／1時間	12	30	7	4	0	0
ストランドの限界強度: サポート限界間隔(mm)	380	430	280	320	280	290
微粉発生量(質量 ppm)	95	115	60	60	65	70
300mm YI	25	26	24	28	25	24
薄肉平板の白点不良	3	4	2	2	3	2
ペレットの真空ボイド	9	0	0	5	0	0

産業上の利用可能性

[0067] 本発明の薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレットは、機械的性質、熱的性質、電氣的性質及び耐候性に優れ、更に、高透過率性及び良好な色相を有する薄肉成形品を提供できるので、薄肉光学部材として好適に適用でき、産業上の利用性は非常に高い。

請求の範囲

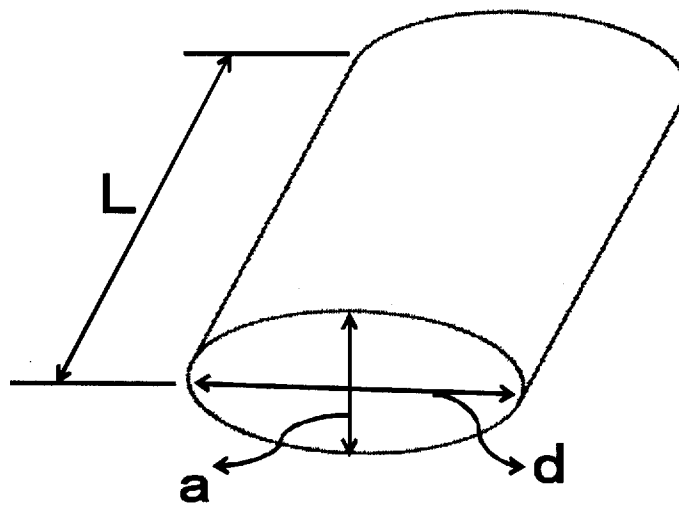
- [請求項1] 粘度平均分子量が10,000～15,500のポリカーボネート樹脂からなる楕円柱状のペレットであって、長さが2.0～5.0mmであり、その楕円断面の長径／短径の比が1.5～4、短径が1.0～3.0mmであることを特徴とする薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレット。
- [請求項2] 粘度平均分子量が11,500～15,000である請求項1に記載の薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレット。
- [請求項3] 前記ポリカーボネート樹脂ペレットは、ポリカーボネート樹脂ペレット500gを収容した外径125mm、全高233mmの容量2リットルのポリエチレン製密閉容器を50リットルのタンブラーに入れて固定し、30rpmの回転数で20分間回転させた後に発生する粒径1mm以下の微粉の量が50ppm以下である請求項1または2に記載の薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレット。
- [請求項4] ペレットの断面楕円の長径／短径の比が1.8～4である請求項1～3のいずれか1項に記載の薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレット。
- [請求項5] 請求項1～4のいずれか1項に記載のポリカーボネート樹脂ペレットを製造する方法であって、粘度平均分子量が10,000～15,500のポリカーボネート樹脂を、押出機の先端部に設けた楕円状のダイス穴を有する吐出ノズルから、断面楕円の長径部を略水平状態にしてストランドとして押出し、これを冷却水槽中で冷却固化し、ストランドカッターによってカットすることを特徴とする薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレットの製造方法。
- [請求項6] ストランドの引取速度が100mm/secにおけるストランドを支えるサポートの高低差が290mmであるとき、1時間以上の連続運転でストランドが折れない、同じ高さにあるサポートの間隔が300mm以下である請求項5に記載の薄肉光学部材用ポリカーボネート

樹脂ペレットの製造方法。

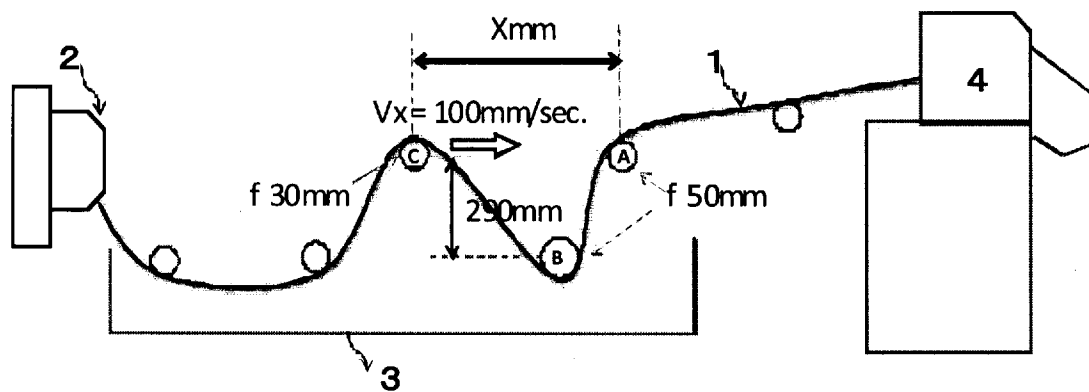
[請求項7] 請求項1～4のいずれか1項に記載の薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレットから成形された薄肉光学部材。

[請求項8] 請求項1～4のいずれか1項に記載の薄肉光学部材用ポリカーボネート樹脂ペレットから成形された導光体。

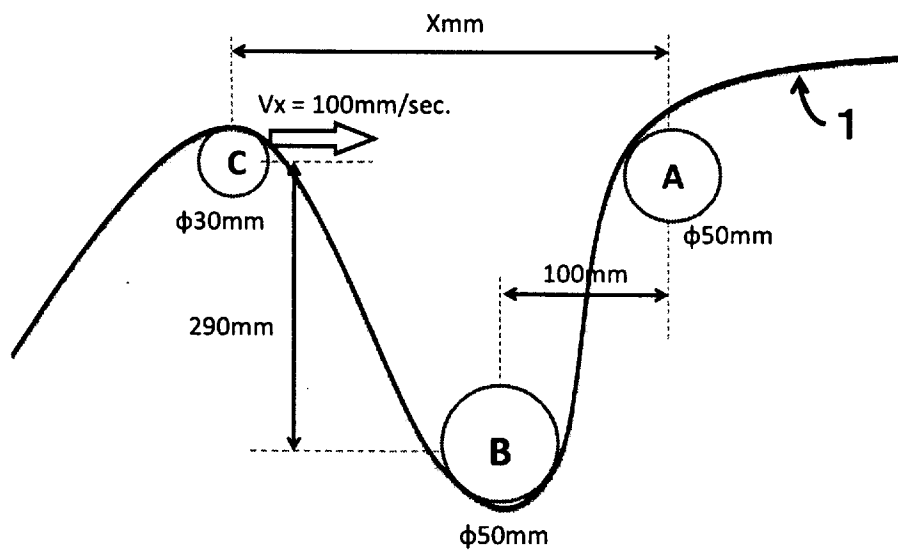
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/064715

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B29B9/12(2006.01)i, C08J3/12(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)

B29B9/00-9/16, C08J3/12, C08L69/00

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	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

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 A	JP 2000-234052 A (Mitsubishi Engineering-Plastics Corp.), 29 August 2000 (29.08.2000), claims; paragraphs [0016], [0017] (Family: none)	5 1-4, 6-8
X A	JP 11-35692 A (Mitsubishi Engineering-Plastics Corp.), 09 February 1999 (09.02.1999), claims; paragraph [0014] & US 6066398 A	5 1-4, 6-8
A	JP 2005-41075 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 17 February 2005 (17.02.2005), claims; examples (Family: none)	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
03 July, 2014 (03.07.14)

Date of mailing of the international search report
15 July, 2014 (15.07.14)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/064715

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 2002-265623 A (Teijin Chemicals Ltd.), 18 September 2002 (18.09.2002), claims; paragraph [0014] & US 2003/0119999 A1 & TW 584647 B	1-8
A	JP 62-160210 A (Mitsubishi Gas Chemical Co., Inc.), 16 July 1987 (16.07.1987), entire text (Family: none)	1-8

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. B29B9/12(2006.01)i, C08J3/12(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. B29B9/00-9/16, C08J3/12, C08L69/00

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 4 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 4 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 4 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 A	JP 2000-234052 A（三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社） 2000.08.29, 【特許請求の範囲】、【0016】、【0017】（ファミリーなし）	5 1-4, 6-8
X A	JP 11-35692 A（三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社） 1999.02.09, 【特許請求の範囲】、【0014】 & US 6066398 A	5 1-4, 6-8
A	JP 2005-41075 A（三菱化学株式会社）2005.02.17, 【特許請求の範囲】、【実施例】（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

0 3 . 0 7 . 2 0 1 4

国際調査報告の発送日

1 5 . 0 7 . 2 0 1 4

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）

鏡 宣宏

4 R

9 3 4 1

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

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 2002-265623 A (帝人化成株式会社) 2002. 09. 18, 【特許請求の 範囲】, 【0 0 1 4】 & US 2003/0119999 A1 & TW 584647 B	1-8
A	JP 62-160210 A (三菱瓦斯化学株式会社) 1987. 07. 16, 文献全体 (フ ァミリーなし)	1-8