

(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
2016年12月1日(01.12.2016)



(10) 国際公開番号
WO 2016/190081 A1

- (51) 国際特許分類:
C08L 45/00 (2006.01) *C08L 65/00* (2006.01)
C08L 53/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/063847
- (22) 国際出願日: 2016年5月10日(10.05.2016)
- (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 2015-108605 2015年5月28日(28.05.2015) JP
特願 2016-089840 2016年4月27日(27.04.2016) JP
- (71) 出願人: デクセリアルズ株式会社 (DEXERIALS CORPORATION) [JP/JP]; 〒1410032 東京都品川区大崎1丁目11番2号 ゲートシティ大崎イーストタワー8階 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 細谷 健 (HOSOYA, Ken); 〒1410032 東京都品川区大崎1丁目11番2号ゲートシティ大崎イーストタワー8階デクセリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 堀井 明宏 (HORII, Akihiro); 〒1410032 東京都品川区大崎1丁目11番2号ゲートシティ大崎イーストタワー8階デクセリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 沼倉 新一 (NUMAKURA, Shinichi); 〒1410032 東京都品川区大崎

1丁目11番2号ゲートシティ大崎イーストタワー8階デクセリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 高橋 康弘 (TAKAHASHI, Yasuhiro); 〒1410032 東京都品川区大崎1丁目11番2号ゲートシティ大崎イーストタワー8階デクセリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 佐竹 由貴 (SATAKE, Yutaka); 〒1410032 東京都品川区大崎1丁目11番2号ゲートシティ大崎イーストタワー8階デクセリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 小幡 慶 (OBATA, Kei); 〒1410032 東京都品川区大崎1丁目11番2号ゲートシティ大崎イーストタワー8階デクセリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 前川 欣之 (MAEKAWA, Yoshiyuki); 〒1410032 東京都品川区大崎1丁目11番2号ゲートシティ大崎イーストタワー8階デクセリアルズ株式会社内 Tokyo (JP). 石森 拓 (ISHIMORI, Taku); 〒1410032 東京都品川区大崎1丁目11番2号ゲートシティ大崎イーストタワー8階デクセリアルズ株式会社内 Tokyo (JP).

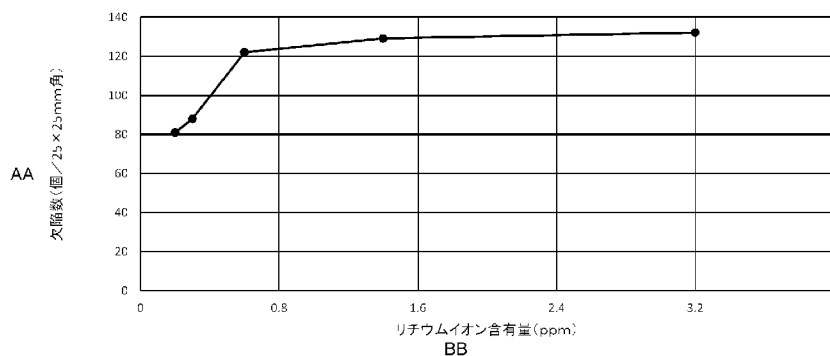
- (74) 代理人: 野口 信博 (NOGUCHI, Nobuhiro); 〒1010054 東京都千代田区神田錦町3-16-1 エルヴァージュ神田錦町2階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN,

[続葉有]

(54) Title: FILM OF CYCLOOLEFIN-BASED RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称: 環状オレフィン系樹脂組成物フィルム

[図1]



AA... NUMBER OF DEFECTS (PER 25-mm SQUARE)
BB... LITHIUM ION CONTENT (ppm)

(57) Abstract: Provided is a film of a cycloolefin-based resin composition, the film having few defects. The film of a cycloolefin-based resin composition comprises a cycloolefin-based resin and an antioxidant, the antioxidant satisfying at least one of the following requirements (1) to (3). (1) To have a lithium ion content of 0.4 ppm or less. (2) To have a cation content of 0.9 ppm or less. (3) To have a chloride ion content of 0.1 ppm or less.

(57) 要約: 欠陥が少ない環状オレフィン系樹脂組成物フィルムを提供する。環状オレフィン系樹脂組成物フィルムは、環状オレフィン系樹脂と酸化防止剤とを含有し、上記酸化防止剤が以下の(1)~(3)の条件の少なくとも1つを満たす。(1)上記酸化防止剤に含まれるリチウムイオンの含有量が0.4 ppm以下である。(2)上記酸化防止剤に含まれる陽イオンの含有量が0.9 ppm以下である。(3)上記酸化防止剤に含まれる塩化物イオンの含有量が0.1 ppm以下である。



WO 2016/190081 A1



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, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユー

ロシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：環状オレフィン系樹脂組成物フィルム

技術分野

[0001] 本発明は、環状オレフィン系樹脂と酸化防止剤とを含有する環状オレフィン系樹脂組成物フィルムに関する。本出願は、日本国において2015年5月28日に出願された日本出願番号特願2015-108605、及び日本国において2016年4月27日に出願された日本出願番号特願2016-89840を基礎として優先権を主張するものであり、これらの出願は参照されることにより、本出願に援用される。

背景技術

[0002] 環状オレフィン系樹脂は、その主鎖に環状のオレフィン骨格を持った非晶性で熱可塑性のオレフィン系樹脂であり、優れた光学特性（透明性、低複屈折性）を持ち、低吸水性とそれに基づく寸法安定性、高防湿性といった、優れた性能を有している（例えば、特許文献1～5を参照）。そのため環状オレフィン系樹脂からなるフィルムもしくはシートは、各種光学用途、例えば位相差フィルム、偏光板保護フィルム、光拡散板等や、防湿包装用途、例えば医薬品包装、食品包装等への展開が期待されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2001-139756号公報
特許文献2：特開2009-234982号公報
特許文献3：特開2004-156048号公報
特許文献4：特開2004-359819号公報
特許文献5：特開2000-86870号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 環状オレフィン系樹脂は、高ガラス転移点により、より高い温度で成形、

加工することが必要となる。このような高温条件下で成形加工を行うと、得られる成形品が着色されて無色透明性が損なわれたり、上記成形品が樹脂（環状ポリオレフィン系樹脂）及び／又は添加剤（含有成分）の熱分解に起因する焼け（黒状）が生じたりする問題がある。

[0005] 例えば、環状オレフィン系樹脂を用いてフィルムを溶融成形する場合、樹脂間のせん断によるゲルが発生しやすく、成形温度を高くする（例えば280～360℃）ことが必要であり、焼け（黒状）が発生することがある。透明導電性フィルムの基材のような薄膜品においては、僅かな焼けでも品質上問題となる。

[0006] そこで、環状ポリオレフィン系樹脂が有する優れた光学特性（レタデーション、ヘイズ）と靱性を保持しつつ、高温条件下で成形加工して得られる成形品に欠陥（例えば、酸化劣化による着色や、熱分解による焼け（黒状）など）を発生させないことが求められている。

[0007] 本発明は、このような従来の実情の鑑みてなされたものであり、欠陥が少ない環状オレフィン系樹脂組成物フィルムを提供する。

課題を解決するための手段

[0008] 本願発明者らは、鋭意検討の結果、酸化防止剤に含まれる特定イオンの含有量を所定値以下とすることにより、上記課題を解決できることを見出した。

[0009] すなわち、本発明に係る環状オレフィン系樹脂組成物フィルムは、環状オレフィン系樹脂と酸化防止剤とを含有し、上記酸化防止剤が以下の（１）～（３）の条件の少なくとも１つを満たす。

（１）上記酸化防止剤に含まれるリチウムイオンの含有量が0.4 ppm以下である。

（２）上記酸化防止剤に含まれる陽イオンの含有量が0.9 ppm以下である。

（３）上記酸化防止剤に含まれる塩化物イオンの含有量が0.1 ppm以下である。

発明の効果

[0010] 本発明によれば、酸化防止剤が上記（１）～（３）の条件の少なくとも１つを満たすことにより、環状オレフィン樹脂組成物フィルムの欠陥を抑制することができる。

図面の簡単な説明

[0011] [図1]図１は、酸化防止剤に含まれるリチウムイオンの含有量と欠陥数との関係を示すグラフである。

[図2]図２は、酸化防止剤に含まれる陽イオンの含有量と欠陥数との関係を示すグラフである。

[図3]図３は、酸化防止剤に含まれる塩化物イオンの含有量と欠陥数との関係を示すグラフである。

発明を実施するための形態

[0012] 以下、本発明の実施の形態について、図面を参照しながら下記順序にて詳細に説明する。

- １．環状オレフィン系樹脂組成物フィルム
- ２．実施例

[0013] ＜１．環状オレフィン系樹脂組成物フィルム＞

本実施の形態に係る環状オレフィン系樹脂組成物フィルムは、環状オレフィン系樹脂と酸化防止剤とを含有し、酸化防止剤が以下の（１）～（３）の条件の少なくとも１つを満たす。

（１）酸化防止剤に含まれるリチウムイオンの含有量が０．４ppm以下である。

（２）酸化防止剤に含まれる陽イオンの含有量が０．９ppm以下である。

（３）酸化防止剤に含まれる塩化物イオンの含有量が０．１ppm以下である。

[0014] 本実施の形態に係る環状オレフィン系樹脂組成物フィルムによれば、欠陥を抑制することができる。また、光学特性（レタデーション、ヘイズ）と靱性を良好にすることができる。

[0015] 環状オレフィン系樹脂組成物フィルムに用いられる環状オレフィン系樹脂組成物中において、酸化防止剤に含まれる上記各イオンが、酸化防止剤の近傍に過剰に存在していると、上記各イオンが酸化防止剤に作用して酸化防止剤の機能を低下させやすい。その結果、環状オレフィン系樹脂組成物を用いてフィルムを熔融成形する際に、欠陥が発生しやすくなる傾向にある。酸化防止剤に含まれる上記各イオンとしては、酸化防止剤の製造過程に起因するものが挙げられる。例えば、リチウム触媒を用いて得られるフェノール系酸化防止剤を用いる場合、酸化防止剤にはリチウムが過剰に含まれやすい。

[0016] 一方、環状オレフィン系樹脂組成物中において、環状オレフィン樹脂に由来する上記各イオンは、酸化防止剤の近傍には存在しにくいため、酸化防止剤の機能の低下には寄与しにくいと考えられる。

[0017] 本実施の形態に係る環状オレフィン系樹脂組成物フィルムは、フィルム又はシート状である。環状オレフィン系樹脂組成物フィルムは、厚みが0.1 μm ~ 2 mmであることが好ましく、1 μm ~ 1 mmであることがより好ましい。以下、環状オレフィン系樹脂組成物フィルムに用いられる環状オレフィン系樹脂、酸化防止剤等について、詳細に説明する。

[0018] [環状オレフィン系樹脂]

環状オレフィン系樹脂は、主鎖が炭素-炭素結合からなり、主鎖の少なくとも一部に環状炭化水素構造を有する高分子化合物である。この環状炭化水素構造は、ノルボルネンやテトラシクロドデセンに代表されるような、環状炭化水素構造中に少なくとも一つのオレフィン性二重結合を有する化合物（環状オレフィン）を単量体として用いることで導入される。

[0019] 環状オレフィン系樹脂は、環状オレフィンの付加（共）重合体又はその水素添加物（A）、環状オレフィンと α -オレフィンの付加共重合体又はその水素添加物（B）、環状オレフィンの開環（共）重合体又はその水素添加物（C）に分類される。

[0020] 環状オレフィンの具体例としては、シクロペンテン、シクロヘキセン、シクロオクテン；シクロペンタジエン、1,3-シクロヘキサジエン等の1環

の環状オレフィン；ビシクロ〔2. 2. 1〕ヘプター-2-エン（慣用名：ノルボルネン）、5-メチルビシクロ〔2. 2. 1〕ヘプター-2-エン、5, 5-ジメチルビシクロ〔2. 2. 1〕ヘプター-2-エン、5-エチルビシクロ〔2. 2. 1〕ヘプター-2-エン、5-ブチルビシクロ〔2. 2. 1〕ヘプター-2-エン、5-エチリデンビシクロ〔2. 2. 1〕ヘプター-2-エン、5-ヘキシルビシクロ〔2. 2. 1〕ヘプター-2-エン、5-オクチルビシクロ〔2. 2. 1〕ヘプター-2-エン、5-オクタデシルビシクロ〔2. 2. 1〕ヘプター-2-エン、5-メチリデンビシクロ〔2. 2. 1〕ヘプター-2-エン、5-ビニルビシクロ〔2. 2. 1〕ヘプター-2-エン、5-プロペニルビシクロ〔2. 2. 1〕ヘプター-2-エン等の2環の環状オレフィン；

[0021] トリシクロ〔4. 3. 0. 1^{2, 5}〕デカー-3, 7-ジエン（慣用名：ジシクロペンタジエン）、トリシクロ〔4. 3. 0. 1^{2, 5}〕デカー-3-エン；トリシクロ〔4. 4. 0. 1^{2, 5}〕ウンデカー-3, 7-ジエン若しくはトリシクロ〔4. 4. 0. 1^{2, 5}〕ウンデカー-3, 8-ジエン又はこれらの部分水素添加物（又はシクロペンタジエンとシクロヘキセンの付加物）であるトリシクロ〔4. 4. 0. 1^{2, 5}〕ウンデカー-3-エン；

5-シクロペンチルビシクロ〔2. 2. 1〕ヘプター-2-エン、5-シクロヘキシルビシクロ〔2. 2. 1〕ヘプター-2-エン、5-シクロヘキセニルビシクロ〔2. 2. 1〕ヘプター-2-エン、5-フェニルビシクロ〔2. 2. 1〕ヘプター-2-エンといった3環の環状オレフィン；

[0022] テトラシクロ〔4. 4. 0. 1^{2, 5}. 1^{7, 10}〕ドデカー-3-エン（単にテトラシクロドデセンともいう）、8-メチルテトラシクロ〔4. 4. 0. 1^{2, 5}. 1^{7, 10}〕ドデカー-3-エン、8-エチルテトラシクロ〔4. 4. 0. 1^{2, 5}. 1^{7, 10}〕ドデカー-3-エン、8-メチリデンテトラシクロ〔4. 4. 0. 1^{2, 5}. 1^{7, 10}〕ドデカー-3-エン、8-エチリデンテトラシクロ〔4. 4. 0. 1^{2, 5}. 1^{7, 10}〕ドデカー-3-エン、8-ビニルテトラシクロ〔4. 4. 0. 1^{2, 5}. 1^{7, 10}〕ドデカー-3-エン、8-プロペニルテトラ

シクロ [4. 4. 0. 1^{2, 5}. 1^{7, 10}] ドデカ-3-エンといった4環の環状オレフィン;

[0023] 8-シクロペンチル-テトラシクロ [4. 4. 0. 1^{2, 5}. 1^{7, 10}] ドデカ-3-エン、8-シクロヘキシル-テトラシクロ [4. 4. 0. 1^{2, 5}. 1^{7, 10}] ドデカ-3-エン、8-シクロヘキセニル-テトラシクロ [4. 4. 0. 1^{2, 5}. 1^{7, 10}] ドデカ-3-エン、8-フェニル-シクロペンチル-テトラシクロ [4. 4. 0. 1^{2, 5}. 1^{7, 10}] ドデカ-3-エン; テトラシクロ [7. 4. 1^{3, 6}. 0^{1, 9}. 0^{2, 7}] テトラデカ-4, 9, 11, 13-テトラエン (1, 4-メタノ-1, 4, 4a, 9a-テトラヒドロフルオレンともいう)、テトラシクロ [8. 4. 1^{4, 7}. 0^{1, 10}. 0^{3, 8}] ペンタデカ-5, 10, 12, 14-テトラエン (1, 4-メタノ-1, 4, 4a, 5, 10, 10a-ヘキサヒドロアントラセンともいう); ペンタシクロ [6. 6. 1. 1^{3, 6}. 0^{2, 7}. 0^{9, 14}] -4-ヘキサデセン、ペンタシクロ [6. 5. 1. 1^{3, 6}. 0^{2, 7}. 0^{9, 13}] -4-ペンタデセン、ペンタシクロ [7. 4. 0. 0^{2, 7}. 1^{3, 6}. 1^{10, 13}] -4-ペンタデセン; ヘプタシクロ [8. 7. 0. 1^{2, 9}. 1^{4, 7}. 1^{11, 17}. 0^{3, 8}. 0^{12, 16}] -5-エイコセン、ヘプタシクロ [8. 7. 0. 1^{2, 9}. 0^{3, 8}. 1^{4, 7}. 0^{12, 17}. 1^{13, 16}] -14-エイコセン; シクロペンタジエンの4量体などの多環の環状オレフィンが挙げられる。これらの環状オレフィン、それぞれ単独であるいは2種以上組み合わせて用いることができる。

[0024] 環状オレフィンと共重合可能な α -オレフィンの具体例としては、エチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、3-エチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ヘキセン、4, 4-ジメチル-1-ヘキセン、4, 4-ジメチル-1-ペンテン、4-エチル-1-ヘキセン、3-エチル-1-ヘキセン、1-オクテン、1-デセン、1-ドデセン、1-テトラデセン、1-ヘキサデセン、1-オクタデセン、1-エイコセンなどの炭素数2~20、好ましくは炭素数2~8の α -オレフィンなどが挙

げられる。これらの α -オレフィン、それぞれ単独で、あるいは2種以上を組み合わせて使用することができる。これらの α -オレフィン、環状ポリオレフィンに対して、5～200%の範囲で含有されたものを使用することができる。

[0025] 環状オレフィン又は環状オレフィンと α -オレフィンとの重合方法及び得られた重合体の水素添加方法に、格別な制限はなく、公知の方法に従って行うことができる。

[0026] 環状オレフィン系樹脂として、本実施の形態では、エチレンとノルボルネンの付加共重合体が好ましく用いられる。

[0027] 環状オレフィン系樹脂の構造には、特に制限はなく、鎖状でも、分岐状でも、架橋状でもよいが、好ましくは直鎖状である。

[0028] 環状オレフィン系樹脂の分子量は、GPC法による数平均分子量が5000～30万、好ましくは1万～15万、さらに好ましくは1.5万～10万である。数平均分子量が低すぎると機械的強度が低下し、大きすぎると成形性が悪くなる。

[0029] また、環状オレフィン系樹脂には、前述の環状オレフィン系樹脂(A)～(C)に極性基(例えば、カルボキシル基、酸無水物基、エポキシ基、アミド基、エステル基、ヒドロキシル基など)を有する不飽和化合物(u)をグラフト及び／又は共重合したもの(D)を含めることができる。上記環状オレフィン系樹脂(A)～(D)は、二種以上混合して使用してもよい。

[0030] 上記不飽和化合物(u)としては、(メタ)アクリル酸、マレイン酸、無水マレイン酸、無水イタコン酸、グリシジル(メタ)アクリレート、(メタ)アクリル酸アルキル(炭素数1～10)エステル、マレイン酸アルキル(炭素数1～10)エステル、(メタ)アクリルアミド、(メタ)アクリル酸-2-ヒドロキシエチル等が挙げられる。

[0031] 極性基を有する不飽和化合物(u)をグラフト及び／又は共重合した変性環状オレフィン系樹脂(D)を用いることにより金属や極性樹脂との親和性を高めることができるので、蒸着、スパッタ、コーティング、接着等、各種

二次加工の強度を高めることができ、二次加工が必要な場合に好適である。しかし、極性基の存在は環状オレフィン系樹脂の吸水率を高めてしまう欠点がある。そのため極性基（例えば、カルボキシル基、酸無水物基、エポキシ基、アミド基、エステル基、ヒドロキシル基など）の含有量は、環状オレフィン系樹脂 1 k g 当り 0 ~ 1 m o l / k g であることが好ましい。

[0032] [酸化防止剤]

酸化防止剤は、樹脂材料又はゴム材料の分野において通常使用されるものであり、上述した（１）～（３）の条件、すなわちイオン含有量の条件の少なくとも１つを満たす。

[0033] （１）酸化防止剤に含まれるリチウムイオンの含有量は、0.4 p p m 以下であり、0.3 p p m 以下であることが好ましく、0.2 p p m 以下であることがより好ましい。リチウムイオンの含有量が0.4 p p m を超えると、酸化防止剤による効果（熱安定性改良効果）が小さくなってしまう結果、欠陥を抑制することが困難となる。

[0034] （２）酸化防止剤に含まれる陽イオンの含有量は、0.9 p p m 以下であり、0.7 p p m 以下であることが好ましく、0.6 p p m 以下であることがより好ましい。陽イオンの含有量には、上記リチウムイオンの含有量が含まれる。陽イオンの含有量が0.9 p p m を超えると、酸化防止剤による効果（熱安定性改良効果）が小さくなってしまう結果、欠陥を抑制することが困難となる。

[0035] （３）酸化防止剤に含まれる塩化物イオンの含有量は、0.1 p p m 以下であり、0.095 p p m 以下であることが好ましく、0.080 p p m 以下であることがより好ましく、0.050 p p m 以下であることがさらに好ましい。塩化物イオンの含有量が0.1 p p m を超えると、酸化防止剤による効果（熱安定性改良効果）が小さくなってしまう結果、欠陥を抑制することが困難となる。

[0036] 特に、酸化防止剤は、少なくとも上記（１）又は（３）の条件、すなわち、酸化防止剤に含まれるリチウムイオンの含有量が0.4 p p m 以下である

こと、及び、酸化防止剤に含まれる塩化物イオンの含有量が0.1 ppm以下であることのいずれか一方を満たすことが好ましく、上記(1)～(3)の条件を全て満たすことがより好ましい。

[0037] 上記各イオンの含有量と熱安定性の作用機構は定かではないが、例えば組成物中に過剰にリチウムイオンが存在すると、押出加工時にリチウムイオンが酸化防止剤に作用し、酸化防止剤の効果を抑制してしまうと考えられる。特に、環状オレフィン系樹脂は、熔融温度が高いため、酸化防止剤の効果の抑制が顕著となる。

[0038] 酸化防止剤の具体例としては、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤等が挙げられ、欠陥数をより効果的に抑制する観点から、フェノール系酸化防止剤が好ましい。フェノール系酸化防止剤の具体例としては、ビタミンE、テトラキスー(メチレンー3-(3', 5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオネート)メタン、2, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキノン、2, 6-ジ-*t*-ブチル-*p*-クレゾール、4, 4'-チオビスー(6-*t*-ブチルフェノール)、2, 2'-メチレンビスー(4-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、オクタデシルー3-(3', 5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、4, 4'-チオビスー(6-*t*-ブチルフェノール)、2-*t*-ブチル-6-(3-*t*-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート、ペンタエリスリトールテトラキス(3-ラウリルチオプロピオネート)、ペンタエリスリトールテトラキス[3-(3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、2, 6-ジ-(*t*-ブチル)-4-メチルフェノール、2, 2'-メチレンビスー(6-*t*-ブチル-*p*-クレゾール)、1, 3, 5-トリス(3, 5-*t*-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-*t*-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)フェノール等を挙げることができる。フェノール系酸化防止剤の市販品としては、IRGANO

X1010 (BASFジャパン(株)社製)、アデカスタブAO-60((株)ADEKA社製)等を用いることができる。

[0039] リン系酸化防止剤の具体例としては、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、トリス(2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル)ホスファイト、トリフェニルホスファイト、トリス(ノニルフェニル)ホスファイト、トリス(2-エチルヘキシル)ホスファイト、トリスデシルホスファイト、トリス(トリデシル)ホスファイト、ジフェニルモノ(2-エチルヘキシル)ホスファイト、ジフェニルモノデシルホスファイト、ジデシルモノフェニルホスファイト、ジフェニルモノ(トリデシル)ホスファイト、ジラウリルハイドロジェンホスファイト、ジフェニルハイドロゲンホスファイト、テトラフェニルジプロピレングリコールジホスファイト、テトラフェニルテトラ(トリデシル)ペンタエリスリトールテトラホスファイト、テトラ(トリデシル)-4, 4'-イソプロピリデンジフェニルジホスファイト、ビス(ノニルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、ジステアリルペンタエリスリトールジホスファイト、水添ビスフェノールA・ペンタエリスリトールホスファイトポリマー、ビス(2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス(2, 4-ジ-tert-ブチル-3-メチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト等が挙げられる。

[0040] 酸化防止剤の含有量は、環状オレフィン系樹脂及びエラストマーの合計100質量部に対し、通常、0.05~5質量部が好ましく、0.1~3質量部がより好ましい。酸化防止剤の含有量を0.05質量部以上とすることにより、酸化防止剤の機能(酸化防止効果)をより効果的に奏することができる。また、酸化防止剤の含有量を5質量部以下とすることにより、環状オレフィン系樹脂組成物の機械的強度やガラス転移温度などの品質の低下や、環状オレフィン系樹脂組成物の揮発時における揮発成分の増加をより効果的に抑制することができる。酸化防止剤は、単独で使用しても、2種以上を組み合わせ使用してもよい。2種以上の酸化防止剤を用いる場合、その合計量

が上記数値範囲を満たすことが好ましい。

[0041] 環状オレフィン系樹脂組成物フィルムは、その特性を損なわない範囲で、必要に応じて各種配合剤を含有していてもよい。各種配合剤としては、熱可塑性樹脂組成物で通常用いられているものであれば格別な制限はなく、例えば、エラストマー、紫外線吸収剤、光安定剤、可塑剤、滑剤、帯電防止剤、難燃剤、染料や顔料などの着色剤、近赤外線吸収剤、蛍光増白剤などの配合剤、充填剤等が挙げられる。

[0042] エラストマーとしては、スチレン系エラストマーが好ましい。スチレン系エラストマーを含有することにより、フィルムの靱性をより向上させることができる。以下、スチレン系エラストマーについて説明する。

[0043] [スチレン系エラストマー]

スチレン系エラストマーは、スチレンとブタジエンもしくはイソプレン等の共役ジエンの共重合体、及び／又は、その水素添加物である。スチレン系エラストマーは、スチレンをハードセグメント、共役ジエンをソフトセグメントとしたブロック共重合体であり、加硫工程が不要であり、好適に用いられる。また、水素添加をしたもののほうが、熱安定性が高く、さらに好適である。

[0044] スチレン系エラストマーの例としては、スチレン／ブタジエン／スチレンブロック共重合体、スチレン／イソプレン／スチレンブロック共重合体、スチレン／エチレン／ブチレン／スチレンブロック共重合体、スチレン／エチレン／プロピレン／スチレンブロック共重合体、スチレン／ブタジエンブロック共重合体などが挙げられる。

[0045] また、水素添加により共役ジエン成分の二重結合をなくした、スチレン／エチレン／ブチレン／スチレンブロック共重合体、スチレン／エチレン／プロピレン／スチレンブロック共重合体、スチレン／ブタジエンブロック共重合体（水素添加されたスチレン系エラストマーともいう。）などを用いてもよい。水素添加されたスチレン系エラストマーは、高い引裂き強度と環境保存後のヘイズ上昇が小さいため好ましい。

[0046] スチレン系エラストマーの分子量は、GPC法による数平均分子量が50000～30万、好ましくは1万～15万、さらに好ましくは2万～10万である。数平均分子量が低すぎると機械的強度が低下し、大きすぎると成形性が悪くなる。

[0047] スチレン系エラストマーを含有する場合、環状オレフィン樹脂とスチレン系エラストマーとの重量比（環状オレフィン樹脂：スチレン系エラストマー）は、60：40～95：5であることが好ましく、85：15～95：5であることがより好ましい。このような範囲とすることにより、得られるフィルムの靱性をより向上させることができる。

[0048] [環状オレフィン系樹脂組成物フィルムの特性]

環状オレフィン系樹脂組成物フィルムは、リタレーションが10.0nm以下であることが好ましく、7.0nm以下であることがより好ましく、5.0nm以下であることがさらに好ましい。リタレーションの値は、フィルムの面内リタレーションR0について、光学材料検査装置（大塚電子株式会社製、商品名：RETS-100）を用いて測定した値をいう。リタレーションが上記範囲を満たすことにより、目的とする光学特性をより満足しやすくなる。

[0049] 環状オレフィン系樹脂組成物フィルムは、ヘイズが2.0%以下であることが好ましく、1.5%以下であることがより好ましい。ヘイズの値は、厚み50μmのフィルムについて、ヘイズメーター（製品名：HM150、（株）村上色彩技術研究所製）を用いて測定した値をいう。ヘイズの値が上記範囲を満たすことにより、使用上、初期設定からの特性を維持し、目的とする光学特性をより満足しやすくなる。

[0050] 環状オレフィン系樹脂組成物フィルムは、引裂き強度が50N/mm以上であることが好ましく、60N/mm以上であることがより好ましく、70N/mm以上であることがさらに好ましい。引裂き強度が上記範囲を満たすことにより、製造時や使用時におけるフィルムの破壊をより効果的に防ぐことができる。

[0051] <環状オレフィン系樹脂組成物フィルムの製造方法>

環状オレフィン系樹脂組成物フィルムは、上述した環状オレフィン系樹脂と酸化防止剤とを含有する環状オレフィン系樹脂組成物を用いて形成することができる。例えば、上記環状オレフィン系樹脂組成物を210～300℃の範囲の温度で溶融し、溶融された環状オレフィン系樹脂組成物をフィルム状に押出すことにより得ることができる。環状オレフィン系樹脂組成物フィルムは、無延伸のものでも、一軸延伸のものでも、二軸延伸のものでもよい。フィルムの製法は、特に限定されず、押出法が好ましい。

[0052] 環状オレフィン系樹脂組成物フィルムは、各種光学用途、例えば位相差フィルム、偏光板保護フィルム、光拡散板等、特にプリズムシート、液晶セル基板の用途に好適である。

実施例

[0053] <3. 実施例>

以下、本発明の実施例について説明する。本実施例では、環状オレフィン系樹脂組成物フィルムを作製し、得られたフィルムの欠陥数、リタデーションRO、引き裂き強度及びヘイズを評価した。なお、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0054] [欠陥数]

25mm角のフィルムについて、目視と光学顕微鏡（500倍）にて、大きさが5μm以上の欠陥（酸化劣化による着色、熱分解による焼け（黒状））の数をカウントした。欠陥数が100個以下のものを「○」と評価し、欠陥数が100個を超えるものを「×」と評価した。欠陥数が100個以下であることにより、実際の製造ラインにおいて発生する欠陥数を大きく削減することができる。

[0055] [リタデーション]

リタデーションの測定は、フィルムの面内リタデーションROについて、光学材料検査装置（大塚電子株式会社製、商品名：RETS-100）を用いて測定した。

[0056] [引裂き強度（直角形引き裂き）]

引裂き強度は、厚み50 μ mのフィルムをJISK7128に従い測定した。試験片として3号形試験片を用い、引張試験機（AG-X、島津製作所（株）製）を用いて試験速度200mm/分で測定した。

[0057] [ヘイズ]

ヘイズは、厚み50 μ mのフィルムについて、ヘイズメーター（製品名：HM150、（株）村上色彩技術研究所製）を用いて測定した。

[0058] [環状オレフィン系樹脂]

環状オレフィン系樹脂としては、TOPAS6013-S04（ポリプラスチックス（株）製、化学名：エチレンとノルボルネンの付加共重合体）を用いた。

[0059] [スチレン系エラストマー]

スチレン系エラストマーとしては、タフテックH1041（スチレン／エチレン／ブチレン／スチレンブロック共重合体、旭化成ケミカルズ（株）製）を用いた。

[0060] [酸化防止剤]

以下の酸化防止剤A～Fのいずれかを用いた。以下の各イオン濃度は、イオンクロマトグラム（DIONE X製、製品名：DX-320）で分析、測定を行った。G1-1000約0.2gを10mLの超純水とともにPP容器（50mL）に入れ、100℃オーブンに10時間放置し測定試料とした。

[0061] <酸化防止剤A>

IRGANOX1010（BASFジャパン（株）社製、ロット番号A1、陽イオン含有量：0.5ppm、リチウムイオン含有量：0.2ppm、塩化物イオン含有量：0.048ppm）

[0062] <酸化防止剤B>

IRGANOX1010（BASFジャパン（株）社製、ロット番号B1、陽イオン含有量：0.6ppm、リチウムイオン含有量：0.3ppm、

塩化物イオン含有量：0.075 ppm)

[0063] <酸化防止剤C>

IRGANOX 1010 (BASF ジャパン (株) 社製、ロット番号 C 1、陽イオン含有量：1.3 ppm、リチウムイオン含有量：0.6 ppm、塩化物イオン含有量：0.105 ppm)

[0064] <酸化防止剤D>

アデカスタブ AO-60 ((株) ADEKA 社製、ロット番号 D 1、陽イオン含有量：1.9 ppm、リチウムイオン含有量：1.4 ppm、塩化物イオン含有量：0.117 ppm)

[0065] <酸化防止剤E>

IRGANOX 1010 (BASF ジャパン (株) 社製、ロット番号 E 1、陽イオン含有量：4.2 ppm、リチウムイオン含有量：3.2 ppm、塩化物イオン含有量：0.142 ppm)

[0066] [実施例 1]

環状オレフィン系樹脂 100 質量部と、酸化防止剤 A を 0.2 質量部とを配合した。上記配合物を、先端にダイを取り付けた二軸押出機（仕様：直径 25 mm、長さ：26 D、T ダイ幅：160 mm）を用いて、210～300℃の温度範囲の所定温度で混練した後、環状オレフィン系樹脂組成物を 250 g/min の速さで押し出し、厚さが 50 mm のフィルムをロールに巻き取った。表 1 に示すように、得られたフィルムの欠陥数は 81 個/25 mm 角であった。また、得られたフィルムのリタレーション RO は 0.4 nm であり、引裂き強度は 55 N/mm であり、ヘイズは 0.2% であった。

[0067] [実施例 2]

環状オレフィン系樹脂 90 質量部と、スチレン系エラストマー 10 質量部とを配合し、この配合物に酸化防止剤 A を 0.2 質量部配合し、二軸押出機を用いて混練したこと以外は、実施例 1 と同様にしてフィルムを作製した。表 1 に示すように、得られたフィルムの欠陥数は 81 個/25 mm 角であった。また、得られたフィルムのリタレーション RO は 2.0 nm であり、引

裂き強度は90N/mmであり、ヘイズは1.4%であった。

[0068] [実施例3]

環状オレフィン系樹脂90質量部と、スチレン系エラストマー10質量部とを配合し、この配合物に酸化防止剤Bを0.2質量部配合し、二軸押出機を用いて混錬したこと以外は、実施例1と同様にしてフィルムを作製した。表1に示すように、得られたフィルムの欠陥数は88個/25mm角であった。また、得られたフィルムのリタレーションROは2.0nmであり、引裂き強度は90N/mmであり、ヘイズは1.4%であった。

[0069] [比較例1]

環状オレフィン系樹脂90質量部と、スチレン系エラストマー10質量部とを配合し、この配合物に酸化防止剤Cを0.2質量部配合し、二軸押出機を用いて混錬したこと以外は、実施例1と同様にしてフィルムを作製した。表1に示すように、得られたフィルムの欠陥数は122個/25mm角であった。また、得られたフィルムのリタレーションROは2.0nmであり、引裂き強度は90N/mmであり、ヘイズは1.4%であった。

[0070] [比較例2]

環状オレフィン系樹脂90質量部と、スチレン系エラストマー10質量部とを配合し、この配合物に酸化防止剤Dを0.2質量部配合し、二軸押出機を用いて混錬したこと以外は、実施例1と同様にしてフィルムを作製した。表1に示すように、得られたフィルムの欠陥数は129個/25mm角であった。また、得られたフィルムのリタレーションROは2.0nmであり、引裂き強度は90N/mmであり、ヘイズは1.4%であった。

[0071] [比較例3]

環状オレフィン系樹脂90質量部と、スチレン系エラストマー10質量部とを配合し、この配合物に酸化防止剤Eを0.2質量部配合し、二軸押出機を用いて混錬したこと以外は、実施例1と同様にしてフィルムを作製した。表1に示すように、得られたフィルムの欠陥数は132個/25mm角であった。また、得られたフィルムのリタレーションROは2.0nmであり、

引裂き強度は90N/mmであり、ヘイズは1.4%であった。

[0072]

[表1]

	スチレン系 エラストマー	酸化防止剤					欠陥数 (個/25×25mm角)	リタデーションRO (nm)	引裂き強度 (N/mm)	ヘイズ (%)
		種類	品名	ロット	陽イオン 含有量 (ppm)	リチウムイオン 含有量 (ppm)	塩化物イオン 含有量 (ppm)			
実施例1	—	酸化防止剤A	IRGANOX1010	A1	0.5	0.2	0.048	0.4	55	0.2
実施例2	タフテックH1041	酸化防止剤A	IRGANOX1010	A1	0.5	0.2	0.048	2.0	90	1.4
実施例3	タフテックH1041	酸化防止剤B	IRGANOX1010	B1	0.6	0.3	0.075	2.0	90	1.4
比較例1	タフテックH1041	酸化防止剤C	IRGANOX1010	C1	1.3	0.6	0.105	2.0	90	1.4
比較例2	タフテックH1041	酸化防止剤D	AO-60	D1	1.9	1.4	0.117	2.0	90	1.4
比較例3	タフテックH1041	酸化防止剤E	IRGANOX1010	E1	4.2	3.2	0.142	2.0	90	1.4

[0073] 図1は、酸化防止剤に含まれるリチウムイオンの含有量と欠陥数との関係を示すグラフである。図2は、酸化防止剤に含まれる陽イオンの含有量と欠陥数との関係を示すグラフである。図3は、酸化防止剤に含まれる塩化物イオンの含有量と欠陥数との関係を示すグラフである。図1～図3に示すように、リチウムイオンの含有量、陽イオンの含有量又は塩化物イオンの含有量に比例して、欠陥数が増加する傾向にあることが分かった。

[0074] 実施例1～3のように、酸化防止剤が上述した(1)～(3)の条件、すなわち、酸化防止剤に含まれるリチウムイオンの含有量が0.4ppm以下である、酸化防止剤に含まれる陽イオンの含有量が0.9ppm以下である、及び、酸化防止剤に含まれる塩化物イオンの含有量が0.1ppm以下であることの少なくとも1つを満たす環状オレフィン系樹脂組成物フィルムは、欠陥が抑制されていることが分かった。

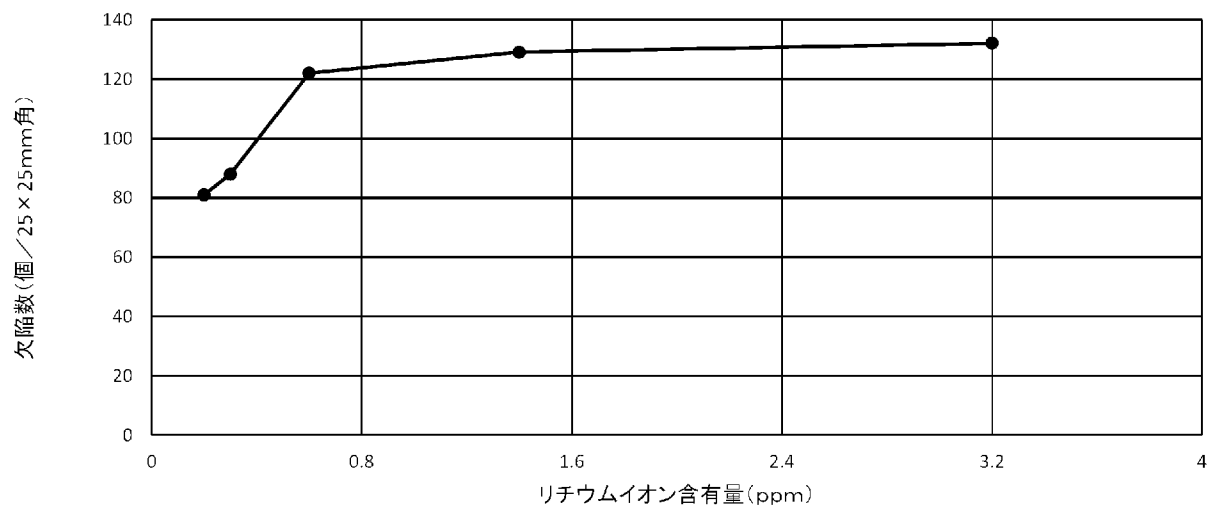
[0075] 特に、酸化防止剤が上述した(1)～(3)の条件をすべて満たす環状オレフィン系樹脂組成物フィルムは、欠陥がより効果的に抑制されていることが分かった。また、実施例2、3のように、スチレン系エラストマーを含有する環状オレフィン系樹脂組成物フィルムは、光学特性（リタデーション、ヘイズ）と靱性（引裂き強度）がより良好であることが分かった。

[0076] 一方、比較例1～3のように、酸化防止剤が上述した(1)～(3)の条件のいずれも満たさない環状オレフィン系樹脂組成物フィルムは、欠陥を抑制するのが困難であることが分かった。

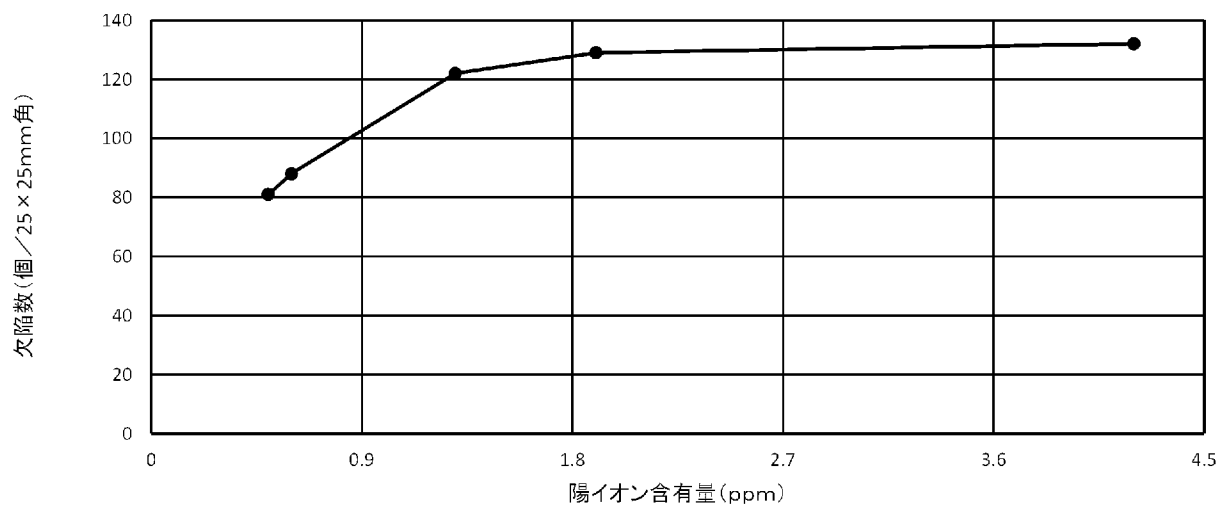
請求の範囲

- [請求項1] 環状オレフィン系樹脂と酸化防止剤とを含有し、上記酸化防止剤が以下の（１）～（３）の条件の少なくとも１つを満たす、環状オレフィン系樹脂組成物フィルム。
- （１）上記酸化防止剤に含まれるリチウムイオンの含有量が０．４ ppm以下である。
- （２）上記酸化防止剤に含まれる陽イオンの含有量が０．９ ppm以下である。
- （３）上記酸化防止剤に含まれる塩化物イオンの含有量が０．１ ppm以下である。
- [請求項2] 上記（１）の条件を少なくとも満たす、請求項１記載の環状オレフィン系樹脂組成物フィルム。
- [請求項3] 上記（３）の条件を少なくとも満たす、請求項１記載の環状オレフィン系樹脂組成物フィルム。
- [請求項4] 上記（１）～（３）の条件を全て満たす、請求項１記載の環状オレフィン系樹脂組成物フィルム。
- [請求項5] 上記酸化防止剤がフェノール系酸化防止剤である、請求項１乃至４のいずれか１項に記載の環状オレフィン系樹脂組成物フィルム。
- [請求項6] スチレン系エラストマーをさらに含有する、請求項１乃至５のいずれか１項に記載の環状オレフィン系樹脂組成物フィルム。
- [請求項7] 上記環状オレフィン系樹脂が、エチレンとノルボルネンの付加共重合体である、請求項１乃至６のいずれか１項に記載の環状オレフィン系樹脂組成物フィルム。

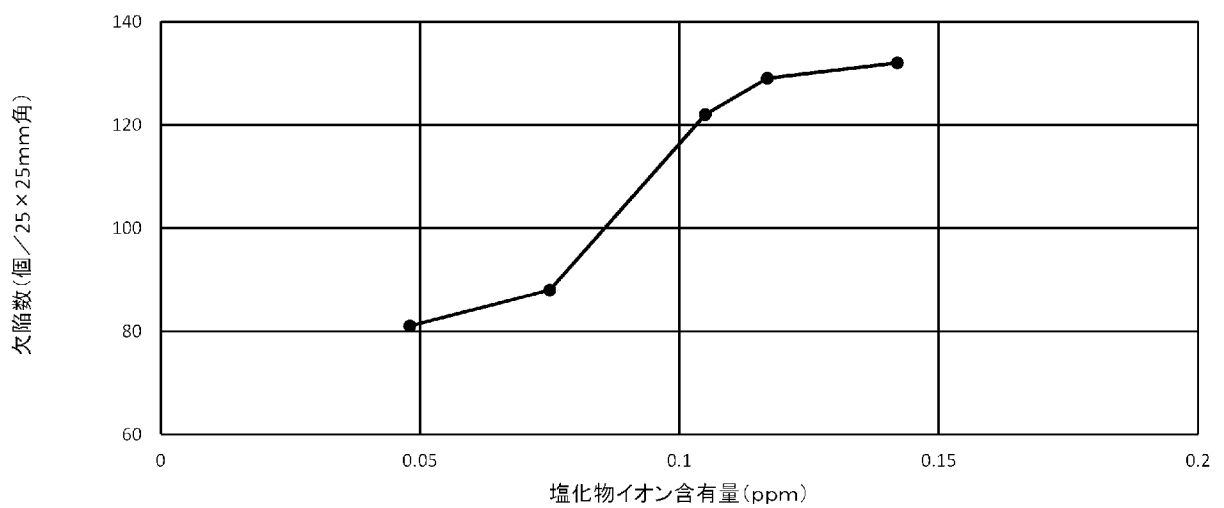
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/063847

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L45/00(2006.01)i, C08L53/02(2006.01)i, C08L65/00(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)

C08L1/00-101/14

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	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAPLUS (STN), REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2001-294615 A (Fuji Electric Co., Ltd.), 23 October 2001 (23.10.2001), claims 1 to 10; paragraphs [0085] to [0109] & US 2001/0056051 A1 claims 1 to 22; paragraphs [0090] to [0106] & US 2003/0204048 A1 & US 2003/0208017 A1	1-7
A	WO 2007/034653 A1 (Nippon Zeon Co., Ltd.), 29 March 2007 (29.03.2007), claims 1 to 18; paragraphs [0056], [0057] & US 2009/0269601 A1 claims 1 to 18; paragraphs [0098], [0100]	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
05 July 2016 (05.07.16)

Date of mailing of the international search report
12 July 2016 (12.07.16)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/063847

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 2005-145855 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 09 June 2005 (09.06.2005), claims 1 to 11; paragraphs [0057] to [0059] & US 2005/0131182 A1 claims 1 to 6; paragraph [0082]	1-7
A	US 6436476 B1 (Owens Corning Fiberglas Technology, Inc.), 20 August 2002 (20.08.2002), claims 1 to 25; column 12, line 40 to column 15, line 26 & WO 2001/060903 A1	1-7

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C08L45/00(2006.01)i, C08L53/02(2006.01)i, C08L65/00(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C08L 1/00-101/14

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2016年
日本国実用新案登録公報	1996-2016年
日本国登録実用新案公報	1994-2016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）

CAplus (STN), REGISTRY (STN)

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 2001-294615 A（富士電機株式会社） 2001.10.23, 請求項1-10, [0085]-[0109] & US 2001/0056051 A1, 請求の範囲1-22, [0090]-[0106] & US 2003/0204048 A1 & US 2003/0208017 A1	1-7
A	WO 2007/034653 A1（日本ゼオン株式会社） 2007.03.29, 請求の範囲1-18, [0056], [0057] & US 2009/0269601 A1, 請求の範囲1-18, [0098], [0100]	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

05.07.2016

国際調査報告の発送日

12.07.2016

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/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）

久保田 英樹

4 J

3776

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

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 2005-145855 A (三井化学株式会社) 2005.06.09, 請求項 1 - 1 1, [0 0 5 7] - [0 0 5 9] & US 2005/0131182 A1, 請求の範囲 1-6, [0082]	1-7
A	US 6436476 B1 (Owens Corning Fiberglas Technology, Inc.) 2002.08.20, 請求の範囲 1 - 2 5, 第 1 2 欄第 4 0 行 - 第 1 5 欄第 2 6 行 & WO 2001/060903 A1	1-7