

(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
2011 年 12 月 1 日(01.12.2011)

(10) 国際公開番号
WO 2011/148585 A1

- (51) 国際特許分類:
B29C 47/06 (2006.01) B29L 7/00 (2006.01)
B29C 47/14 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2011/002711
- (22) 国際出願日: 2011 年 5 月 16 日(16.05.2011)
- (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 2010-119395 2010 年 5 月 25 日(25.05.2010) JP
特願 2010-127789 2010 年 6 月 3 日(03.06.2010) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社クラレ(KURARAY Co., Ltd.) [JP/JP]; 〒7100801 岡山県倉敷市酒津 1 6 2 1 番地 Okayama (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 金井 詩門(KANAI, Shimon) [JP/JP]; 〒3050841 茨城県つくば市御幸が丘 4 1 番地株式会社クラレ内 Ibaraki

(JP). 善当 利行(ZENTO, Toshiyuki) [JP/JP]; 〒3050841 茨城県つくば市御幸が丘 4 1 番地株式会社クラレ内 Ibaraki (JP). 富山 浩太(TOMIYAMA, Kohta) [JP/JP]; 〒3050841 茨城県つくば市御幸が丘 4 1 番地株式会社クラレ内 Ibaraki (JP). 中田 博通(NAKATA, Hiromichi) [JP/JP]; 〒3050841 茨城県つくば市御幸が丘 4 1 番地株式会社クラレ内 Ibaraki (JP).

(74) 代理人: 家入 健(IEIRI, Takeshi); 〒2210835 神奈川県横浜市神奈川区鶴屋町三丁目 3 3 番 8 アサヒビルディング 10 階響国際特許事務所 Kanagawa (JP).

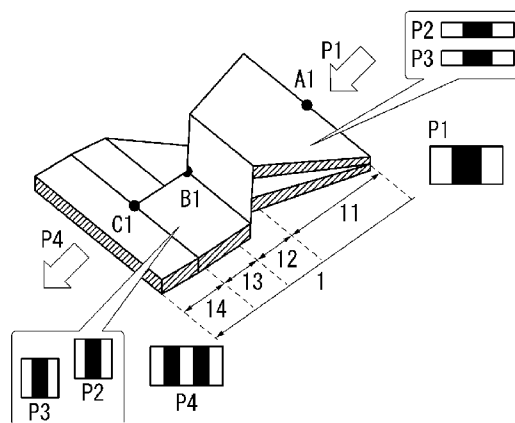
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, 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,

[続葉有]

(54) Title: MANUFACTURING METHOD FOR MULTI-LAYERED BODY, MANUFACTURING EQUIPMENT FOR SAME, AND MULTI-LAYERED BODY

(54) 発明の名称: 複積層体の製造方法及びその製造装置、複積層体

[図1]



(57) Abstract: A manufacturing method for a multi-layered body includes a step (1) (L flow path) in which a layered flow in which at least two molten resins are arranged in a longitudinal direction and are neighbored each other is divided half into upper and lower flows, the divided layered flows are guided in opposite directions toward a flow direction, and then the two flows are guided toward the center of the flow direction, neighbored in the horizontal direction, re-arranged, and joined together; and another step (2) (R flow path) in which a layered flow in which at least two molten resins are arranged in a longitudinal direction and are neighbored each other is divided half into upper and lower flows, the divided layered flows are guided in the directions opposite to the above mentioned directions toward a flow direction, and then the two flows are guided toward the center of the flow direction, neighbored in the horizontal direction, re-arranged, and joined together. The step (1) (L flow path) and the step (1) (R flow path) are alternately repeated in this order through at least three or more steps. With this method, layers at both ends are prevented from disappearing and layer thickness irregularity or longitudinal arrangement collapse is suppressed, enabling a multi-layered body more excellent in uniformity to be manufactured.

(57) 要約:

[続葉有]



WO 2011/148585 A1



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, 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 (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, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

本発明の複積層体の製造方法は、少なくとも 2 つの溶融樹脂を縦方向に配列して隣接させた積層流を上下に 2 分割し、分割した積層流を流動方向に向かって逆方向に導き、次いで、両者を流動方向の中心に向けて導き、左右方向に隣接して再配置し合流させる工程 1 (L 流路) と、少なくとも 2 つの溶融樹脂を縦方向に配列して隣接させた積層流を上下に 2 分割し、分割した積層流を流動方向に向かって上記とは逆方向に導き、次いで、両者を流動方向の中心に向けて導き、左右方向に隣接して再配置し合流させる工程 2 (R 流路) とを有し、前記工程 1 (L 流路) および前記工程 2 (R 流路) をこの順で少なくとも 3 工程以上交互に繰り返す。この方法によれば、両端部の層の消失が抑制され、層の厚みムラあるいは縦配列の崩れが抑制され、より均一性に優れた複積層体を製造することができる。

明 細 書

発明の名称：複積層体の製造方法及びその製造装置、複積層体 技術分野

[0001] 本発明は、熔融流動性と硬化性を有する高分子材料からなる複積層体、その製造方法およびその製造装置に関する。

背景技術

[0002] 近年、液晶ディスプレイの偏光板保護フィルム、光学補償フィルム等、光の制御を利用した光学フィルムを中心に、その他、バリア性能の向上を目的としたパッケージの高機能性フィルム用途への展開が行われている。

[0003] 例えば、屈折率の高い層と低い層を交互に多数積層すると、これらの層間での光干渉によって、特定波長の光を選択的に反射または透過する光学干渉フィルムとなる。このような積層フィルムは、選択的に反射または透過する光の波長領域を可視光領域とすることによって、例えば、反射型の偏光板や発色フィルム、金属光沢を有するフィルム、あるいは反射ミラーフィルム等の用途へと広がっている。さらに、近赤外を選択的にカットするようにすれば、日射カット用の窓張り用フィルムにも利用でき、複積層フィルムは、今後、多岐用途への展開が期待されている。

[0004] 上記の複積層フィルムは、複層押出成形技術を利用し、フィルムの厚み方向に横積層化することによって形成される（特許文献１、２）。この複層押出成形技術は、種々の熱可塑性材料を、様々な押出成形機から、複層マニホールドダイ、複数層フィードブロック、及びフィルムダイへと通過させ、個々の流れをフィードブロック中で融合し、そして積層してダイの中へ入れ、積層体を形成する。

[0005] 例えば、特許文献１の段落〔００１０〕には、１又は２以上の材料の別個の重畳層からなる第１の流れは分割され、複数の支流となり、これら支流は、再方向を決め、又再位置決めされて、個々に対称に拡張及び収縮され、各支流の流れに対する抵抗は独立的に調節され、支流は重畳状態に再度合流さ

れ、1又は2以上の材料の極めて多数の別個の重畳層が、所定の勾配又はその他の分布状態に配分された第2の流れが形成されることが記載されている。一方、特許文献2には、少なくとも2種類の熱可塑性樹脂層からなり、積層数が2層以上である複層積層フィルムの積層間ばらつきを小さくするために流路各部の寸法が所定の関係を満たす構造をもつ積層装置を使用する複層積層フィルムの製造方法が記載されている。

[0006] しかしながら、特許文献1及び2に係る製造方法は、横方向へ配向する層の積層であるため、層の厚みムラが生じ、層の均一化が図れないという問題点があった。

[0007] 上記の問題点を解決するために、また、複積層フィルムの用途の多様化に伴い、フィルムの厚み方向に積層化した複積層フィルムの製造方法とは異なる、新たな製造方法および製造装置が検討されている。

[0008] 例えば、特許文献3において、初期に2層以上の粘性の高分子流体を分割し、再配置させ、そして再結合することによって、縦方向に配向された複積層体の製造方法とその製造装置が提案されている。具体的には、特許文献3には、少なくとも第1の硬化性流体の第1の流れと第2の硬化性流体の第2の流れを提供すること、第1の流体と第2の流体からなる流体の複合流を供給するために第1の流れと第2の流れを複合すること、複合流を、分岐流の各々が第1の流体と第2の流体からなる複数の分岐流に分割すること、分岐流を互いに横方向に隣接するよう配置すること、そして、縦方向に配向された複層積層体を提供するために複数の横方向に隣接された流れを融合させることを含む縦方向に配向された複層積層体の製造方法が記載されている。この態様において、第1の流れを第1の流体の2つの流れに分割すること、そしてそこで第1の流れと第3の流れを提供するために第1の流体の2つの流れと第2の流れを結合することからなる第2の流れを結合することを含む方法について記載されている。

[0009] しかしながら、特許文献3に係る製造方法は、上下分割、左右配列を繰り返す配列化機構であり、装置全長の短縮のために上下分割から左右配列まで

の流路が短い機構であるため、分割と配列の回数増加に伴い、得られた縦配列品の左右両端部の層が消失することによる層の厚みムラや縦配列の崩れを生じるという問題点がある。なお、特許文献3のFIG. 7に記載された装置では、本明細書で規定する $L2/L1$ が0.58である。

- [0010] すなわち、本明細書の図4の比較例1-2～1-5、図10および図11の比較例2-1および比較例2-4に示すように、分割、分岐、再配置および合流をさせる本装置内の流路を流れる積層流に局所的な流速ムラが生じ、その結果、分割、分岐、再配置、合流を繰り返す度にそのムラの影響が大きくなり、積層断面の乱れ、層の垂直性の低下が生じるという問題点があった。上記の不良部分においては、一度積層体に生じると、分割、再配置を繰り返す度に、不良部分の割合は増え、最終的に得られる複積層体の中に含まれる不良部分の割合が非常に増加し、性能に悪影響が生じるという問題点があった。

先行技術文献

特許文献

- [0011] 特許文献1：特開平4-278324号公報
特許文献2：特開2005-349681号公報
特許文献3：WO第2010/017271号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0012] 上記の製造方法／製造装置においては、分割、分岐、再結合をさせる装置内の流路を流れる積層流に局所的な流速ムラが生じ、しかも、分割、再結合を繰り返す度に、ムラの影響が増大して積層断面の乱れが生じやすく、その結果、複積層化された複積層体には層の厚みムラあるいは層の垂直性の低下等の不良部分が発生していた。
- [0013] 本発明は、上記課題を解決するためになされたものであり、両端部の層の消失が抑制され、層の厚みムラあるいは縦配列の崩れが抑制され、より均一

性に優れた複積層体を製造することが可能な複積層体の製造方法及びその製造装置を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0014] 本発明に係る第 1 の複積層体の製造方法は、

少なくとも 2 つの溶融樹脂を縦方向に配列して隣接させた積層流を、上下に 2 分割し、分割した上部の積層流を第 1 の積層流、下部の積層流を第 2 の積層流とし、前記第 1 の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、前記第 2 の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、次いで、前記第 1 の積層流を流動方向の中心に向けて右下方向に、前記第 2 の積層流を流動方向の中心に向けて左上方向に導き、その後、前記第 1 の積層流と前記第 2 の積層流とを左右方向に隣接して再配置し合流させる工程 1（L 流路）と、

少なくとも 2 つの溶融樹脂を縦方向に配列して隣接させた積層流を、上下に 2 分割し、分割した上部の積層流を第 3 の積層流とし、下部の積層流を第 4 の積層流とし、前記第 3 の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、前記第 4 の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、次いで、前記第 3 の積層流を流動方向の中心に向けて左下方向に、前記第 4 の積層流を流動方向の中心に向けて右上方向に導き、その後、前記第 3 の積層流と前記第 4 の積層流とを左右方向に隣接して再配置し合流させる工程 2（R 流路）と、を有し、

前記工程 1（L 流路）、前記工程 2（R 流路）をこの順で、少なくとも 3 工程以上、交互に繰り返すことを特徴とするものである。

[0015] 本発明に係る第 2 の複積層体の製造方法は、

少なくとも 2 つの溶融樹脂を縦方向に配列して隣接させた積層流を、上下に 2 分割し、分割した上部の積層流を第 1 の積層流、下部の積層流を第 2 の積層流とし、前記第 1 の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、前記第 2 の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、次いで、前記第 1 の積層流を流動方向の中心に向けて左下方向に、前記第 2 の積層流を流動方向の中心に向けて右上方向に導き、その後、前記第 1 の積層流と前記第 2 の積層流と

を左右方向に隣接して再配置し合流させる工程 2（R 流路）と、

少なくとも 2 つの熔融樹脂を縦方向に配列して隣接させた積層流を、上下に 2 分割し、分割した上部の積層流を第 3 の積層流、下部の積層流を第 4 の積層流とし、前記第 3 の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、前記第 4 の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、次いで、前記第 3 の積層流を流動方向の中心に向けて右下方向に、前記第 4 の積層流を流動方向の中心に向けて左上方向に導き、その後、前記第 3 の積層流と前記第 4 の積層流とを左右方向に隣接して再配置し合流させる工程 1（L 流路）と、を有し、

前記工程 2（R 流路）、前記工程 1（L 流路）をこの順で少なくとも 3 工程以上、交互に繰り返すことを特徴とするものである。

[0016] 本発明に係る第 3 の複積層体の製造方法は、

少なくとも 2 つの熔融樹脂を縦方向に配列し隣接させて所定の幅と厚みを有する積層流を形成し、

分割点において、前記積層流を上下に 2 分割し、分割した上部の積層流を第 1 の積層流とし、下部の積層流を第 2 の積層流とし、

分岐点において、前記第 1 の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、前記第 2 の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、

中間点において、前記第 1 の積層流を流動方向の中心に向かって右下方向に、前記第 2 の積層流を流動方向の中心に向かって左上方向に導き、

合流点において、前記第 1 の積層流と前記第 2 の積層流を左右に隣接して再配置し合流させる複積層体の製造方法であって、

前記積層流の前記幅と前記厚みのうち長い方の長さを L_1 とし、前記分岐点から前記合流点までの流動進行方向の長さを L_2 としたとき、前記所定の幅と厚みを有する積層流が、 $L_2 / L_1 \geq 1.1$ の関係を満たすものである。

[0017] 本発明に係る第 4 の複積層体の製造方法は、

少なくとも 2 つの熔融樹脂を縦方向に配列し隣接させて所定の幅と厚みを有する積層流を形成し、

分割点において、前記積層流を上下に2分割し、分割した上部の積層流を第1の積層流とし、下部の積層流を第2の積層流とし、

分岐点において、前記第1の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、前記第2の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、

中間点において、前記第1の積層流を流動方向の中心に向かって左下方向に、前記第2の積層流を流動方向の中心に向かって右上方向に導き、

合流点において、前記第1の積層流と前記第2の積層流を左右に隣接して再配置し合流させる複積層体の製造方法であって、

前記積層流の前記幅と前記厚みのうち長い方の長さを L_1 とし、前記分岐点から前記合流点までの流動進行方向の長さを L_2 としたとき、前記所定の幅と厚みを有する積層流が、 $L_2 / L_1 \geq 1.1$ の関係を満たすものである。

[0018] 本発明に係る第5の複積層体の製造方法は、

少なくとも2つの溶融樹脂を縦方向に配列し隣接させて所定の幅と厚みを有する積層流を形成し、

分割点A2において、前記積層流を上下に2分割し、分割した上部の積層流を第1の積層流とし、下部の積層流を第2の積層流とし、

分岐点B2において、前記第1の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、前記第2の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、

中間点C2において、前記第1の積層流を流動方向の中心に向かって右下方向に、前記第2の積層流を流動方向の中心に向かって左上方向に導き、

合流点D2において、前記第1の積層流と前記第2の積層流を左右に隣接して再配置し合流させる第1の工程と、

分割点E2において、前記再配置合流した前記積層流を上下に2分割し、分割した上部の積層流を第3の積層流とし、下部の積層流を第4の積層流とし、

分岐点F2において、前記第3の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、前記第4の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、

中間点 G 2 において、前記第 3 の積層流を流動方向の中心に向かって左下方向に、前記第 4 の積層流を流動方向の中心に向かって右上方向に導き、

合流点 H 2 において、前記第 3 の積層流と前記第 4 の積層流を左右に隣接して再配置し合流させる第 2 の工程とを備える複積層体の製造方法であって、

前記積層流の前記幅と前記厚みのうち長い方の長さを L_1 とし、前記分岐点 B 2 から前記合流点 D 2、及び／又は前記分岐点 F 2 から前記合流点 H 2 までの流動進行方向の長さを L_2 としたとき、前記所定の幅と厚みを有する積層流が、 $L_2 / L_1 \geq 1$ の関係を満たすものである。

[0019] 本発明に係る第 6 の複積層体の製造方法は、

少なくとも 2 つの溶融樹脂を縦方向に配列し隣接させて所定の幅と厚みを有する積層流を形成し、

分割点 A 2 において、前記積層流を上下に 2 分割し、分割した上部の積層流を第 1 の積層流とし、下部の積層流を第 2 の積層流とし、

分岐点 B 2 において、前記第 1 の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、前記第 2 の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、

中間点 C 2 において、前記第 1 の積層流を流動方向の中心に向かって左下方向に、前記第 2 の積層流を流動方向の中心に向かって右上方向に導き、

合流点 D 2 において、前記第 1 の積層流と前記第 2 の積層流を左右に隣接して再配置し合流させる第 1 の工程と、

分割点 E 2 において、前記再配置合流した前記積層流を上下に 2 分割し、分割した上部の積層流を第 3 の積層流とし、下部の積層流を第 4 の積層流とし、

分岐点 F 2 において、前記第 3 の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、前記第 4 の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、

中間点 G 2 において、前記第 3 の積層流を流動方向の中心に向かって右下方向に、前記第 4 の積層流を流動方向の中心に向かって左上方向に導き、

合流点 H 2 において、前記第 3 の積層流と前記第 4 の積層流を左右に隣接

して再配置し合流させる第2の工程とを備える複積層体の製造方法であって、

前記積層流の前記幅と前記厚みのうち長い方の長さを L_1 とし、前記分岐点B2から前記合流点D2、及び／又は前記分岐点F2から前記合流点H2までの流動進行方向の長さを L_2 としたとき、前記所定の幅と厚みを有する積層流が、 $L_2 / L_1 \geq 1$ の関係を満たすものである。

[0020] 本発明に係る第1の複積層体の製造装置は、

少なくとも2つの溶融樹脂を縦方向に配列して隣接させた積層流を、上下に2分割する分割プレートと、

前記分割プレートで分割された上部の積層流を左方向に導く流路と下部の積層流を右方向に導く流路と、次いで、前記上部の積層流を中心に向けて右下方向に導く流路と前記下部の積層流を中心に向けて左上方向に導く流路と、を有する配列プレート（L流路）と、

前記配列プレート（L流路）で左右方向に配列させた積層流を再配置し合流する並列プレートと、を備える1組のL流路型プレートと、

少なくとも2つの溶融樹脂を縦方向に配列して隣接させた積層流を、上下に2分割する分割プレートと、

前記分割プレートで分割された上部の積層流を右方向に導く流路と下部の積層流を左方向に導く流路と、次いで、前記上部の積層流を中心に向けて左下方向に導く流路と前記下部の積層流を中心に向けて右上方向に導く流路と、を有する配列プレート（R流路）と、

前記配列プレート（R流路）で左右方向に配列させた積層流を再配置し合流する並列プレートと、を備える1組のR流路型プレートとを、

交互に2組以上配置させることを特徴とするものである。

[0021] 本発明に係る第2の複積層体の製造装置は、

少なくとも2つの溶融樹脂を縦方向に配列し隣接させて形成した所定の幅と厚みを有する積層流を、分割点において上下に2分割する分割プレートと、

分岐点において、前記分割プレートで分割された上部の積層流を左方向に導く流路と下部の積層流を右方向に導く流路と、中間点において、前記上部の積層流を中心に向かって右下方向に導く流路と前記下部の積層流を中心に向かって左上方向に導く流路と、を有する配列プレート（L流路）と、

前記配列プレート（L流路）で左右に配列させた積層流を、合流点において、再配置し合流する並列プレートと、を備える1組のL流路型プレートであって、

前記積層流の前記幅と前記厚みのうち長い方の長さを L_1 とし、前記分岐点から前記合流点までの流動進行方向の長さを L_2 としたとき、

前記所定の幅と厚みを有する積層流が、 $L_2 / L_1 \geq 1.1$ の関係を満たすものである。

[0022] 本発明に係る第3の複積層体の製造装置は、

少なくとも2つの溶融樹脂を縦方向に配列し隣接させて形成した所定の幅と厚みを有する積層流を、分割点において上下に2分割する分割プレートと、

分岐点において、前記分割プレートで分割された上部の積層流を右方向に導く流路と下部の積層流を左方向に導く流路と、中間点において、前記上部の積層流を中心に向かって左下方向に導く流路と前記下部の積層流を中心に向かって右上方向に導く流路と、を有する配列プレート（R流路）と、

前記配列プレート（R流路）で左右に配列させた積層流を、合流点において、再配置し合流する並列プレートと、を備える1組のR流路型プレートであって、

前記積層流の前記幅と前記厚みのうち長い方の長さを L_1 とし、前記分岐点から前記合流点までの流動進行方向の長さを L_2 としたとき、前記所定の幅と厚みを有する積層流が、 $L_2 / L_1 \geq 1.1$ の関係を満たすものである。

[0023] 本発明に係る第4の複積層体の製造装置は、

少なくとも2つの溶融樹脂を縦方向に配列し隣接させて形成した所定の幅

と厚みを有する積層流を、分割点 A 2 において上下に 2 分割する分割プレートと、

分岐点 B 2 において、前記分割プレートで分割された上部の積層流を左方向に導く流路と下部の積層流を右方向に導く流路と、

中間点 C 2 において、前記上部の積層流を中心に向かって右下方向に導く流路と前記下部の積層流を中心に向かって左上方向に導く流路と、を有する配列プレート（L 流路）と、

前記配列プレート（L 流路）で左右に配列させた積層流を、合流点 D 2 において、再配置し合流する並列プレートと、を備える 1 組の L 流路型プレートと、

少なくとも 2 つの溶融樹脂を縦方向に配列し隣接させて形成した積層流を、分割点 E 2 において上下に 2 分割する分割プレートと、

分岐点 F 2 において、前記分割プレートで分割された上部の積層流を右方向に導く流路と下部の積層流を左方向に導く流路と、

中間点 G 2 において、前記上部の積層流を中心に向かって左下方向に導く流路と前記下部の積層流を中心に向かって右上方向に導く流路と、を有する配列プレート（R 流路）と、

前記配列プレート（R 流路）で左右に配列させた積層流を、合流点 H 2 において、再配置し合流する並列プレートと、を備える 1 組の R 流路型プレートとを、交互に 2 組以上配置させた複積層体の製造装置であって、

前記積層流の前記幅と前記厚みのうち長い方の長さを L_1 とし、前記分岐点 B 2 から前記合流点 D 2、及び／又は前記分岐点 F 2 から前記合流点 H 2 までの流動進行方向の長さを L_2 としたとき、前記所定の幅と厚みを有する積層流が、 $L_2 / L_1 \geq 1$ の関係を満たすものである。

[0024] 本発明に係る複積層体は、上記の本発明に係る第 1～第 6 の複積層体の製造方法のいずれかにより製造されたものである。

発明の効果

[0025] 本発明によれば、複積層体を形成させる流路内で生じる局所的な流速ムラ

が小さく、積層に乱れが生じにくくなり、その結果、両端部の層の消失が抑制され、層の厚みムラあるいは縦配列の崩れを低減することができるとともに、両端部の層幅の厚みが減少することなく、層の均一化を実現することができる。

図面の簡単な説明

- [0026] [図1]本発明の実施形態1に係る複積層体の製造装置の模式図である。
- [図2]本発明の実施形態1に係る複積層体の製造装置の模式図である。
- [図3]1組のプレート（LME）の模式図である。
- [図4]実施例1-2と比較例1-2～1-5に係る複積層体の写真である。
- [図5]実施例1-3と比較例1-6に係る複積層体の写真である。
- [図6]本発明の実施形態2に係る複積層体の製造装置の模式図である。
- [図7]本発明の実施形態2に係る複積層体の製造装置の模式図である。
- [図8]特許文献3のFIG. 7に相当する $L2/L1=0.58$ のL流路の各ポジションにおける積層流の流速分布を示す図である。
- [図9] $L2/L1=2.0$ のL流路の各ポジションにおける積層流の流速分布を示す図である。
- [図10]実施例2-1、比較例2-1に係る複積層体の断面写真である。
- [図11]実施例2-4、比較例2-4に係る複積層体の断面写真である。
- [図12]1組のプレート（LME）の模式図である。

発明を実施するための最良の形態

- [0027] 以下、本発明の実施形態について、図面を参照しながら説明する。説明の明確化のため、以下の記載および図面は、適宜、省略、及び簡略化がなされている。各図面において同一の構成または機能を有する構成要素および相当部分には、同一の符号を付し、その説明は省略する。なお、本発明における上、下、左、右、縦および横は図面の記載に基づいているが、図面に記載の態様を流動方向の周りに任意の角度で回転させて上、下、左、右、縦および横が図面の記載と異なるような態様も、本発明に包含される。

- [0028] （実施形態1）

以下、本発明の実施形態 1 に係る複積層体を製造する方法について説明する。

本発明者らは、流速ムラが小さく、層の厚みムラあるいは縦配列の崩れを低減できる複積層体について鋭意検討を行った。特に、層の配列化機構が層構造の安定化に影響することを確認し、同一方向による配列は、分割数増加に伴い、両端部の層が消失し、中央層の形状が崩れる点に着目し、層の厚みムラや配列の崩れ、両端部の層の消失を生じない複積層体について検討を重ねた。

その結果、本発明者らは、積層流を分割した後、配列を左右交互にする配列構造を見出し、本発明を完成するに至った。

[0029] 図 1 および図 2 は、本発明の実施形態 1 に係る複積層体の製造装置の模式図である。

図 1 に示す一連の工程と図 2 に示す一連の工程を経て、本実施形態に係る複積層体が製造される。

[0030] 図 1 に示すように、積層流の分割操作を分割機構 11 によって行い、積層流の分岐操作を分岐機構 12 によって行い、積層流の再配置を再配置合流機構 13 によって行い、合流操作を安定機構 14 によって行う。

[0031] 上記の分割機構 11、分岐機構 12、再配置合流機構 13、合流機構 14 のそれぞれについて詳細に説明する。

[0032] 図 1 に示すように、少なくとも 2 つの溶融樹脂、すなわち、2 層以上の流体が縦に配列された樹脂流をこの装置に通過させる。分割機構 11 においては、分割点 A1 で、積層流 P1 を縦方向に対して直交方向に、すなわち上下に 2 分割し、上部の積層流を第 1 の積層流 P2 とし、下部の積層流を第 2 の積層流 P3 とする分割操作が行われる。分割機構 11 で分割された積層流 P2、P3 は、分岐機構 12 において、樹脂分割点 A1 と流動方向の中間点 B1 を結ぶ線を基準に、積層流 P2 を流動方向に向かって左方向に導き、積層流 P3 を流動方向に向かって右方向に導くことで分岐される。これが分岐操作である。次に、分岐された積層流 P2、P3 は、再配置合流機構 13 にお

いて、積層流 P 2 を合流点 C 1 へと、流動方向の中心に向かって、右下方向に導き、積層流 P 3 を合流点 C 1 へと、流動方向の中心に向かって、左上方向に導くことで、積層流 P 2、P 3 を左右方向に隣接して再配置が行われ、積層流 P 4 が形成される。この時、積層流 P 2、P 3 は、左右方向、上下方向ともに、中心へ導かれることが好ましい。その後、再配置合流された積層流 P 4 は、安定機構 1 4 において、合流操作が行われる。

[0033] この一連の工程 1（図 1 参照）を左回転流路（以下、L 流路という。）とする。

[0034] 次に、上記の L 流路によって得られた積層流 P 4 を、図 2 のように入れ替えることによって、積層数を増やしていく。

[0035] 図 2 に示すように、図 1 の分割機構 1 1、分岐機構 1 2、および再配置合流機構 1 3 および安定機構 1 4 で作製された積層流 P 4 を導入する。

[0036] 図 2 に示す分割機構 2 1 の分割点 D 1 で、積層流 P 4 を縦方向に対して直交方向に、すなわち上下に 2 分割し、第 3 の積層流 P 5、第 4 の積層流 P 6 を形成する分割操作が行われる。分割機構 2 1 で分割された積層流 P 5、P 6 は、分岐機構 2 2 で、樹脂分割点 D 1 と流動方向の中間点 E 1 を結ぶ線を基準に、第 3 の積層流 P 5 を流動方向に向かって右方向に導き、第 4 の積層流 P 6 を流動方向に向かって左方向に導くことで分岐される。これが分岐操作である。次に、分岐された積層流 P 5、P 6 は、再配置合流機構 2 3 において、積層流 P 5 を合流点 F 1 へと、流動方向の中心に向かって、左下方向に導き、積層流 P 6 を合流点 F 1 へと、流動方向の中心に向かって、右上方向に導くことで、積層流 P 5、P 6 を左右方向に隣接して再配置が行われ、積層流 P 7 が形成される。この時、積層流 P 5、P 6 は、左右方向、上下方向ともに、中心へ導かれることが好ましい。その後、再配置合流された積層流 P 7 は、安定機構 2 4 において、合流操作が行われる。

[0037] この一連の工程 2（図 2 参照）を右回転流路（以下、R 流路という。）とする。

[0038] L 流路と R 流路を組み合わせた工程によって積層数を増やしていくことで

、従来複積層体を形成させる流路形状内で生じていた局所的な流速ムラを小さくすることが可能となり、積層に乱れが生じにくく、各層の厚みのムラが低減される。すなわち、分割・配列の操作を繰り返すことにより、さらに複層積層させることが可能となる。

[0039] 図3に、1組のプレートの模式図を示す。

分割プレートと配列プレートと並列プレートを1組した装置（以下、LMEという。）、すなわち、L流路を有する1組のプレートと、R流路を有する1組のプレートを交互に組み合わせた2組以上を配置させて複積層体の製造装置が形成される。

[0040] 図1～3を参照しつつ、LME（Layer Multiplying Element）の各プレートを用いた複積層体の製造方法について説明する。

[0041] まず、L流路を有する1組のプレートについて説明する。

分割プレートは、少なくとも2つの溶融樹脂を縦方向に配列して隣接させた積層流P1を、上下に2分割する。配列プレート（L流路）は、上記の分割プレートで分割された上部の積層流（第1の積層流：P2）を左方向に導く流路と、下部の積層流（第2の積層流：P3）を右方向に導く流路と、次いで、第1の積層流P2を中心に向けて右下方向に導く流路と、第2の積層流P3を中心に向けて左上方向に導く流路を有する。並列プレートは、上記の配列プレートで左右方向に配列させた積層流P2、P3を再配置しP4として合流する。

[0042] 次に、R流路を有する1組のプレートについて説明する。

分割プレートは、少なくとも2つの溶融樹脂を縦方向に配列して隣接させた積層流P4を、上下に2分割する。配列プレート（R流路）は、上記の分割プレートで分割された上部の積層流（第3の積層流：P5）を右方向に導く流路と、下部の積層流（第4の積層流：P6）を左方向に導く流路と、次いで、第3の積層流P5を中心に向けて左下方向に導く流路と、第4の積層流P6を中心に向けて右上方向に導く流路を有する。並列プレートは、上記

の配列プレートで左右方向に配列させた積層流 P 5、P 6 を P 7 として再配置し合流する。

[0043] この L 流路を有する 1 組のプレートと、R 流路を有する 1 組のプレートを交互に組み合わせた 2 組以上を配置させて複積層体の製造装置を形成する。

[0044] ここで、分割プレート、配列プレート、並列プレートを 1 組とした装置の組数と配列数の関係は下記式 (1) となる。

$$\text{層配列数} = 2^{n+1} + 1 \quad (1)$$

(ここで、n は LME の組数を示す。)

[0045] 次に、図 3 を参照しつつ、LME の各プレートについて説明する。

図 3 に示すように、分割プレート 25 は、少なくとも 2 つの溶融樹脂を縦方向に配列して隣接させた積層流が導入される側の面に、断面形状が矩形の 1 つの開口部を有するとともに、分割プレートの上記反対側の面 (流出面) に、上下方向に所定間隔おいて配列して形成した断面形状が矩形の 2 つの開口部 28 を有する。また、配列プレート 26 は、上記の分割プレートに隣接する側の面に、分割プレートの流出面と同一形状の 2 つの開口部を有するとともに、上記の分割プレートに隣接する側とは反対側の面 (流出面) に、左右方向に所定間隔をおいて配列して形成した断面形状が矩形の 2 つの開口部 29 を有する。さらに、並列プレート 27 は、上記の配列プレートに隣接する側の面に、配列プレートの流出面と同一形状の 2 つの開口部を有するとともに、上記の配列プレートに隣接する側とは反対側の面 (流出面) に、断面形状が矩形の 1 つの開口部 30 を有する。

[0046] なお、これらのプレートの形状、プレートに形成される開口部の形状、大きさは特に限定されるものではない。

[0047] このような構成にすることにより、厚みムラによる不良部分が低減されることから、分割、再結合を繰り返す度に発生しはじめる層の消失が低減される。このため、交互に配置された良質な積層の数を従来と比べて 2 倍、4 倍と増やすことが可能となる。また、本実施形態の L 流路と R 流路を有する複積層体の製造装置を用いることにより、層の厚みのバラつき度合を小さくし

た積層構造体を製造することができる。

[0048] ここで、積層を増やしていく工程の組み合わせとしては、L流路とR流路を少なくとも3組以上交互に組み合わせて積層を増やしていく工程であり、好ましくはL流路、R流路をL流路／R流路／L流路／R流路／・・・、もしくはR流路／L流路／R流路／L流路／・・・と順序良く交互に組み合わせる工程である。このような構成を採用することにより、層のバラツキを防止し、層の厚みを均一化することができるという効果が得られる。

[0049] (実施形態2)

以下、本発明の実施形態2に係る複積層体を製造する方法について説明する。

本発明者らは、流速ムラが小さく積層に乱れが生じにくく、層の傾きが低減できる複積層体について鋭意検討を行った。特に、短流路かつ急激な湾曲の流路を有している配列部分で樹脂の流速が速くなっていると同時に、層の傾斜が生じる点に着目し、流路内の積層流の流れをスムーズにするために分割後の配列部分の流路の長路化による層の垂直性向上への影響について検討を重ねた。

その結果、本発明者らは、長流路配列では同一方向配列に比べて、縦配列の重要要素となる層の垂直性が飛躍的に向上することを見出し、本発明を完成するに至った。

[0050] 図6および図7は、本発明の実施形態2に係る複積層体の製造装置の模式図である。

図6に示す一連の工程によって、本実施形態に係る複積層体を製造する。すなわち、図6に示すように、積層流の分割操作を分割機構11によって行い、積層流の分岐操作を分岐機構12によって行い、積層流の再配置を再配置合流機構13によって行い、合流操作を安定機構14によって行う。

[0051] 上記の分割機構11、分岐機構12、再配置合流機構13、合流機構14のそれぞれについて詳細に説明する。

[0052] 図6に示すように、少なくとも2つの熔融樹脂、すなわち、2層以上の流

体が縦に配列された積層流を本実施形態の製造装置に通過させる。分割機構 11 においては、分割点 A2 で、積層流 P1 を上下方向に 2 分割し、上部の積層流を第 1 の積層流 P2 とし、下部の積層流を第 2 の積層流 P3 とする分割操作が行われる。分割機構 11 で分割された積層流 P2、P3 は、分岐機構 12 において、分岐点 B2 で、分割点 A2 と流動方向の中間点 C2 を結ぶ線を基準に、積層流 P2 を流動方向に向かって左方向に導き、積層流 P3 を流動方向に向かって右方向に導くことで分岐される。これが分岐操作である。次に、分岐された積層流 P2、P3 は、再配置合流機構 13 において、中間点 C2 で、積層流 P2 を合流点 D2 へと、流動方向の中心に向かって、右方向に導き、積層流 P3 を合流点 D2 へと、流動方向の中心に向かって、左方向に導くことで、積層流 P2、P3 を左右に隣接しての再配置が行われ、積層流 P4 が形成される。この時、積層流 P2、P3 は、左右方向、上下方向ともに、中心へ導かれることが好ましい。その後、再配置合流された積層流 P4 は、合流点 D2 で、安定機構 14 において、合流操作が行われる。

[0053] この一連の工程 10（図 6 参照）を左回転流路（以下、L 流路という。）とすると、L 流路を繰り返し行うことで、積層数を増やしていくことができる。

[0054] 一方、図 7 に示すように、少なくとも 2 つの溶融樹脂、すなわち、2 層以上の流体が縦に配列された積層流を本実施形態の製造装置に通過させる。分割機構 21 においては、分割点 E2 で、積層流 P4 を上下方向に 2 分割し、上部の積層流を第 1 の積層流 P5 とし、下部の積層流を第 2 の積層流 P6 とする分割操作が行われる。分割機構 21 で分割された積層流 P5、P6 は、分岐機構 22 において、分岐点 F2 で、分割点 E2 と流動方向の中間点 G2 を結ぶ線を基準に、積層流 P5 を流動方向に向かって右方向に導き、積層流 P6 を流動方向に向かって左方向に導くことで分岐される。これが分岐操作である。次に、分岐された積層流 P5、P6 は、再配置合流機構 23 において、中間点 G2 で、積層流 P5 を合流点 H2 へと、流動方向の中心に向かって、左方向に導き、積層流 P6 を合流点 H2 へと、流動方向の中心に向かっ

て、右方向に導くことで、積層流 P 5、P 6 を左右に隣接しての再配置が行われ、積層流 P 7 が形成される。この時、積層流 P 5、P 6 は、左右方向、上下方向ともに、中心へ導かれることが好ましい。その後、再配置合流された積層流 P 7 は、合流点 H 2 で、安定機構 1 4 において、合流操作が行われる。

この一連の工程 2 0（図 7 参照）を右回転流路（以下、R 流路という。）とする。

[0055] また、分岐機構 1 2 から再配置機構 1 3、または分岐機構 2 2 から再配置機構 2 3 に係る流路形状は、屈曲した形状を用いているが、その他、湾曲形状を用いてもよく、その形状は、特に限定されるものではない。

[0056] L 流路と R 流路を組み合わせた工程によって積層数を増やしていくことで、従来複積層体を形成させる流路形状内で生じていた局所的な流速ムラを小さくすることが可能となり、積層に乱れが生じにくく、各層の厚みのムラが低減される。すなわち、分割・配列の操作を繰り返すことにより、さらに複層積層させることが可能となる。

[0057] 本実施形態の複積層体の製造方法は、導入された積層流の矩形断面形状の幅 W、厚み H 2、および分岐点 B 2、合流点 D 2 の位置関係が、下記式（2）を満たす L 流路形状、または R 流路形状で形成される。

[0058]
$$L 2 / L 1 \geq 1.1 \quad (2)$$

（L 1 は、前記幅 W と前記厚み H 2 のうち長い方（矩形以外の場合は長径または長軸）の長さであり、L 2 は、前記分岐点 B 2 又は F 2 から前記合流点 D 2 又は H 2 までの流動進行方向における長さである。）

[0059] 本実施形態では、L 1 と L 2 の関係が、 $L 2 / L 1 \geq 1.1$ のときに流路内の流速分布差が小さくなることから、垂直性の低下を防ぐことができる。

1.1 未満であると流路内の流速分布差が大きくなることから層流が乱れ、積層状態が崩れるため好ましくない。また装置の大型化に伴いコスト高となるため、 $1.1 \leq L 2 / L 1 \leq 5$ であるのが好ましい。L 1、L 2 の大きさは理論的には無限であるが、使用する押出機の仕様、性能、使用する流路形

状金型の切削加工限界等によって、 L_1 、 L_2 は、任意の大きさ、限界値が与えられる。

[0060] さらに、分岐機構 12 から再配置機構 13、もしくは分岐機構 22 から再配置機構 23 に係る流路形状は屈曲した形状となるが、その屈曲角度 R は樹脂流動方向の上面から見て 40° 以下であるのが好ましい。ここで、屈曲角度が 40° 以下であると、流速分布の最大流速が装置の内側に偏ることが緩和される。

[0061] 次に、1組のプレートについて説明する。図 12 に 1組のプレートの模式図を示す。

1組のプレートとは、分割プレートと配列プレートと並列プレートを 1組とした装置 [以下、LME (Layer Multiplying Element) という。] をいう。

L 流路を有する 1組のプレートと、 R 流路を有する 1組のプレートを単独もしくは組み合わせ配置させて複積層体の製造装置を形成する。

[0062] まず、 L 流路を有する 1組のプレートについて説明する。分割プレートは、少なくとも 2つの溶融樹脂を縦方向に配列し隣接させて形成した積層流 P_1 を、縦方向に対して垂直方向、すなわち上下に 2分割する。配列プレート (L 流路) は、上記の分割プレートで分割された上部の積層流 (第 1の積層流: P_2) を左方向に導く流路と下部の積層流 (第 2の積層流: P_3) を右方向に導く流路と、次いで、第 1の積層流 P_2 を中心に向かって右方向に導く流路と第 2の積層流 P_3 を中心に向かって左方向に導く流路を有する。並列プレートは、上記の配列プレートで左右に配列させた積層流 P_2 、 P_3 を再配置し P_4 として合流する。

[0063] 次に、 R 流路を有する 1組のプレートについて説明する。

分割プレートは、少なくとも 2つの溶融樹脂を縦方向に配列し隣接させて形成した積層流 P_4 を、縦方向に対して垂直方向、すなわち上下に 2分割する。配列プレート (R 流路) は、上記の分割プレートで分割された上部の積層流 (第 3の積層流: P_5) を右方向に導く流路と下部の積層流 (第 4の積

層流：P 6）を左方向に導く流路と、次いで、第 3 の積層流 P 5 を中心に向かって左方向に導く流路と第 4 の積層流 P 6 を中心に向かって右方向に導く流路を有する。並列プレートは、上記の配列プレートで左右に配列させた積層流 P 5、P 6 を再配置し P 7 として合流する。

[0064] 上記の L 流路を有する 1 組のプレートもしくは R 流路を有する 1 組のプレートを単独で用いて、複積層体の製造装置を形成する。また、L 流路を有する 1 組のプレートと、R 流路を有する 1 組のプレートを交互に組み合わせた 2 組以上を配置させて複積層体の製造装置を形成することも可能である。

[0065] ここで、分割プレート、配列プレート、並行プレートを 1 組とした装置の組数と配列数の関係は下記式（3）となる。

[0066] 層配列数 = $2^{n+1} + 1$ （3）

（ここで、n は LME の組数を示す。）

[0067] 次いで、図 12 を参照しつつ、LME の各プレートについてさらに具体的に説明する。

図 12 に示すように、分割プレート 25 は、少なくとも 2 つの溶融樹脂を縦方向に配列し隣接させて形成した積層流が導入される側の面に、断面形状が矩形の 1 つの開口部を有するとともに、分割プレートの上記反対側の面（流出面）に、上下方向に所定間隔おいて配列して形成した断面形状が矩形の 2 つの開口部 28 を有する。また、配列プレート 26 は、上記の分割プレートに隣接する側の面に、分割プレートの流出面と同一形状の 2 つの開口部を有するとともに、上記の分割プレートに隣接する側とは反対側の面（流出面）に、左右方向に所定間隔おいて配列して形成した断面形状が矩形の 2 つの開口部 29 を有する。さらに、並列プレート 27 は、上記の配列プレートに隣接する側の面に、配列プレートの流出面と同一形状の 2 つの開口部を有するとともに、上記の配列プレートに隣接する側とは反対側の面（流出面）に、断面形状が矩形の 1 つの開口部 30 を有する。

[0068] なお、これらのプレートの形状、プレートに形成される開口部の形状、大きさは特に限定されるものではない。

[0069] 次に、L 流路内における積層流の流速分布について説明する。

図 8 は、分割機構 1 1、分岐機構 1 2、再配置機構 1 3、安定機構 1 4 の各ポジションにおいて、機構入り口における積層流 P 2、P 3 の流速分布を表すイメージ図である。

[0070] 積層流 P 1 は分割機構 1 1 の分割点 A 2 で上下に分割され、そのうちの一つである積層流 P 2 は上方へ流れることから、分割直後のポジション 1 では、粘性の影響により金型（プレート）壁面上側と下側との間に速度差を生じる。

[0071] このため、積層流の流速分布は中心部分に最大流速があるが、積層流 P 2 は上方へ移動しながら幅方向に圧縮し厚み方向に広がる形状となり、分岐機構 1 2 により左方向へと屈曲する。従って、分岐機構 1 2 に導入される時には、ポジション 2 で表すように、積層流の流速分布は左右の中心からずれ、流路の湾曲側に速い流速分布が偏ることになる。

[0072] また、積層流 P 2 は、分岐機構 1 2 で分岐点 B 2 より、樹脂分割点 A 2 と流動方向の中間点 C 2 を結ぶ線を基準に、積層流 P 2 を流動方向に向かって左方向に導かれ、再配置機構 1 3 へと右下方向へと屈曲する。このため、断面内の流速分布に大きく影響を及ぼし、積層流 P 2 は再配置機構 1 3 に導入される時には、ポジション 3 で表すように、積層流の流速分布の最大流速は装置の内側に偏ることになる。

[0073] 分岐された積層流 P 2 は、再配置機構 1 3 で、流動方向の中間点 C 2 と合流点 D 2 を結ぶ線を基準に、合流点 D 2 へと右下方向に導かれることから、断面内の流速分布に大きく影響を及ぼす。その結果、積層流 P 2 は、合流機構に導入されるポジション 4 で表すような流速分布となる。

[0074] この時、各ポジションでの流速分布が矩形断面形状の左右で変化が大きく、局所的に流速が速い分布をとると、形成される縦方向に配向された積層体の層の垂直性は大きく低下する。例えば、特許文献 3 に記載の流路形状は、記載図より L 1 と L 2 の関係が $L 2 / L 1 = 0.58$ であるため、流路形状では流速分布差が大きくなり、層の垂直性が悪くなる現象が起こる。

[0075] しかしながら、本実施形態において、 L_1 と L_2 の関係が、 $L_2/L_1 = 2.0$ の場合、図9に示す流速分布図となる。図9は、 $L_2/L_1 = 2.0$ の L 流路の各ポジションにおける積層流の流速分布を示す図である。

[0076] このとき、流速の分布のスケールは図8を基準とし、図9においては、図8の流速分布と比べ、ポジション2、ポジション3から明らかなように、流路内の流速分布差が小さくなるので、垂直性の低下を防ぐことができる。また、 L_1 、 L_2 の大きさは理論的には無限であるが、使用する押出機の仕様、性能、使用する流路形状金型の切削加工限界によって、任意の大きさ、限界値が与えられる。装置の大型化に伴い莫大な投資が必要、コスト高となるため、好ましくは、 L_2/L_1 は、 $L_2/L_1 \leq 5$ である。

[0077] (樹脂)

本発明において使用される樹脂は、溶融流動性があり、硬化性がある高分子材料を用いることができるが、その種類は特に限定されるものではない。高分子材料としては、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレンのようなポリオレフィン；ポリスチレンのようなポリ芳香族ビニル；ポリメチルメタクリレートのようなアクリル樹脂；ポリビニルアルコール；塩化ビニル樹脂；ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレン-2,6-ナフタレート、ポリブチレンテレフタレートのようなポリエステル；ナイロン6、ナイロン66のようなポリアミド；ポリビスフェノールAカーボネートのようなポリカーボネート；ポリオキシメチレン；ポリスルホン；シクロオレフィン系樹脂；フッ素樹脂；ポリジメチルシロキサン等のシリコーン系樹脂等の熱可塑性樹脂等の単独重合体あるいはこれらの共重合体、例えば、アクリル・スチレン系共重合体、エチレン・ビニルアルコール共重合体を主成分とする樹脂等を挙げることができる。また、これらを2種以上組み合わせた混合物であってもよい。

[0078] ポリエステル共重合体を使用する場合、その共重合成分はジカルボン酸成分であってもグリコール成分であってもよく、ジカルボン酸成分としては、例えばイソフタル酸、フタル酸、ナフタレンジカルボン酸等のような芳香族

ジカルボン酸；アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、デカンジカルボン酸等のような脂肪族ジカルボン酸；シクロヘキサンジカルボン酸のような脂環族ジカルボン酸等を挙げることができ、グリコール成分としては、例えば、ブタンジオール、ヘキサジオール等のような脂肪族ジオール；シクロヘキサンジメタノールのような脂環族ジオール等を挙げることができる。

[0079] また、エラストマーとしては、天然ゴム、イソプレンゴム、ポリアミド系・オレフィン系・スチレン系・ウレタン系等の熱可塑性エラストマー、あるいは、これらの組合せが挙げられる。

[0080] さらに、エポキシ系樹脂、フェノール系樹脂、ウレタン系樹脂、不飽和ポリエステル系樹脂等の熱硬化性樹脂、多官能アクリル系樹脂等の光硬化性樹脂を挙げることができる。

上記の樹脂の中でも、樹脂間に溶融粘度差による影響の少ないものが好ましい。

[0081] また、これらの樹脂は必要に応じて、例えば、可塑剤、プロセスオイル、液体、滑剤、光安定剤、難燃剤、膠着防止剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤、発泡剤、光開始剤、防曇剤、顔料、帯電防止剤、ブロッキング剤などの有機あるいは無機の添加剤を、単独でも、あるいは、2種以上を組み合わせ含有することができる。

[0082] (複積層体)

上述したように、本発明の製造方法／製造装置を用いることにより、縦方向に配列された層の垂直性に優れる複積層体を製造することができる。

実施例

[0083] 本発明を以下に示す実施例により具体的に説明する。ただし、これは本発明を何ら限定するものではない。

[0084] 以下、本発明に係る各種測定方法について説明する。

<積層数・積層の厚み>

積層体の層構成は、精密低速切断機（11-1180：ビューラー社製）を用いて、積層構造が断面に表出するように断片（幅方向－厚み方向断面）

を切り出し、ミクロトーム（REM-700：ダイワ光機工業社製）を用いて、切り出した断片の表面の平坦化を行った。そして、切り出したサンプルは、偏光顕微鏡（BX50：オリンパス社製）及びカラーレーザー顕微鏡（VK-9500：キーエンス社製）により光学顕微鏡観察を行った。

[0085] <層の厚みのバラつき度合>

押出機から押し出された樹脂A、Bの吐出量が同一である場合、層の厚みのバラつき度合は、各層の厚みを測定し、その全層における厚みのバラつきを百分率で表した。

[0086] 層の厚みのバラつき度合は、下記式（4）で算出した。

$$\text{層の厚みのバラつき度合} = \text{全体の層の標準偏差} / \text{層の平均厚み} \quad (4)$$

上記式（4）において、層の平均厚みとは、積層体の各層の中央部で、少なくとも3ヶ所以上において測定した、同じ樹脂からなる各層の厚みの平均値をいう。端部の層は、理論的に端部以外の層の半分の厚みとなることから、両端部の層は、2倍した値を用いる。

[0087] 層の平均厚みは、下記式（5）で算出した。

$$\text{層の平均厚み} = (d_1 \times 2 + d_2 + \dots + d_{(N-1)} + d_N) / N \quad (5)$$

（ここで、Nは3以上の整数であり、 d_N はN番目の層の平均厚みを示す。）

また、全体の層の標準偏差とは、積層構造体の各層 d_1 から d_N の厚みと層の平均厚みの値を平均としてもとめた標準偏差の値をいう。

[0088] <層の垂直性>

層の角度とは、各層の上下表面の中点を結んだ線と、各層の上下表面一方の面において、中点を結んだ線の交点の角度をいう。

層の角度が90度に近いほど、その積層体の垂直性が保たれていることを表している。垂直性の効果確認は、流動方向に対して積層体の右端部層より3層目から3層までの平均値、積層体の中央3層の平均値、流動方向に対して積層体の左端部層より3層目から3層までの平均値によって決定した。

[0089] (実施例 1-1)

複積層体に使用する樹脂材料として、ポリメチルメタクリレート（PMM A、パラペットGF：クラレ社製）を樹脂Aとし、群青のポリメチルメタクリレート（PMMA、パラペットGF：クラレ社製）を樹脂Bとした。樹脂Aおよび樹脂Bは、一昼夜80℃で乾燥した後、押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）に供給した。

[0090] 樹脂Aおよび樹脂Bをそれぞれ押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）にて、温度235℃の熔融状態とし、ギヤポンプによって、吐出比が樹脂A／樹脂B＝1／1になるように計量しながら、積層流入り口から、L2／L1＝0.58のL流路とL2／L1＝0.58のR流路とを交互に、すなわち、L流路／R流路／L流路と組み合わせた金型（プレート）を用いた複積層押出成形機に導入した。

これにより、幅3mm×長さ30mmの樹脂構造体の中に、幅方向に樹脂Aの層と樹脂Bの層が、交互に17層積層された積層構造体を作製した。

[0091] 上記の積層構造体は、断面を切り出し各層の幅を測定した。その測定値を表1に示す。

[0092] [表1]

	組み合わせ	層のバラつき度合	層数
実施例1-1	L/R/L	7.7%	17
比較例1-1	L/L/L	19.8%	17

[0093] (実施例 1-2)

複積層体に使用する樹脂材料として、ポリメチルメタクリレート（PMM A、パラペットGF：クラレ社製）を樹脂Aとし、群青のポリメチルメタクリレート（PMMA、パラペットGF：クラレ社製）を樹脂Bとした。樹脂Aおよび樹脂Bは、一昼夜80℃で乾燥した後、押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）に供給した。

[0094] 樹脂Aおよび樹脂Bをそれぞれ押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）にて、温度235℃の熔融状態とし、ギヤポンプによって、吐出比が樹

脂A／樹脂B＝1／1になるように計量しながら、積層流入り口から、 $L2/L1=0.58$ のL流路と $L2/L1=0.58$ のR流路とを交互に、すなわち、L流路／R流路／L流路／R流路と組み合わせた金型（プレート）を用いた複積層押出成形機に導入した。

これにより、幅3mm×長さ30mmの樹脂構造体の中に、幅方向に樹脂Aの層と樹脂Bの層が、交互に33層積層された積層構造体を作製した。

[0095] 上記の積層構造体は、断面を切り出し各層の幅を測定した。その測定値を表2に示す。

[0096] [表2]

	組み合わせ	層のバラつき度合	層数
実施例1-2	L/R/L/R	9.8%	33
比較例1-2	L/L/L/L	36.0%	33
比較例1-3	L/R/R/L	14.2%	33
比較例1-4	L/L/R/R	19.6%	33
比較例1-5	L/L/L/R	22.4%	33

[0097] (実施例1-3)

複積層体に使用する樹脂材料として、ポリメチルメタクリレート（PMM A、パラペットGF：クラレ社製）を樹脂Aとし、群青のポリメチルメタクリレート（PMMA、パラペットGF：クラレ社製）を樹脂Bとした。樹脂Aおよび樹脂Bは、一昼夜80℃で乾燥した後、押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）に供給した。

[0098] 樹脂Aおよび樹脂Bをそれぞれ押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）にて、温度235℃の熔融状態とし、ギヤポンプによって、吐出比が樹脂A／樹脂B＝1／1になるように計量しながら、積層流入り口から、 $L2/L1=0.58$ のL流路と $L2/L1=0.58$ のR流路を交互に、すなわち、L流路／R流路／L流路／R流路／L流路／R流路と組み合わせたプレートを用いた複積層押出成形機に導入した。

これにより、幅3mm×長さ30mmの樹脂構造体の中に、幅方向に樹脂Aの層と樹脂Bの層が、交互に129層積層された構造体を作製した。

[0099] 上記の構造体は断面の観察を行った。その測定値を表3に示す。

[0100] [表3]

	組み合わせ	層のバラつき 度合	測定層数／成形理論層数
実施例 1-3	L／R／L／R／L／R	18.0%	129層／129層
比較例 1-6	L／L／L／L／L／L	34.2%	125層／129層

[0101] (比較例 1-1)

複積層体に使用する樹脂材料として、ポリメチルメタクリレート（PMM A、パラペットGF：クラレ社製）を樹脂Aとし、群青のポリメチルメタクリレート（PMMA、パラペットGF：クラレ社製）を樹脂Bとした。樹脂Aおよび樹脂Bは、一昼夜80℃で乾燥した後、押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）に供給した。

[0102] 樹脂Aおよび樹脂Bをそれぞれ押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）にて、温度235℃の溶融状態とし、ギヤポンプによって、吐出比が樹脂A／樹脂B＝1／1になるように計量しながら、積層流入り口から、L2／L1＝0.58のL流路とL2／L1＝0.58のR流路とを交互に、すなわち、L流路／L流路／L流路と組み合わせた金型（プレート）を用いた複積層押出成形機に導入した。

これにより、幅3mm×長さ30mmの樹脂構造体の中に、幅方向に樹脂Aの層と樹脂Bの層が、交互に17層積層された積層構造体を作製した。

[0103] 上記の積層構造体は、断面を切り出し各層の幅を測定した。その測定値を表1に示す。

(比較例 1-2)

複積層体に使用する樹脂材料として、ポリメチルメタクリレート（PMM A、パラペットGF：クラレ社製）を樹脂Aとし、群青のポリメチルメタクリレート（PMMA、パラペットGF：クラレ社製）を樹脂Bとした。樹脂Aおよび樹脂Bは、一昼夜80℃で乾燥した後、押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）に供給した。

[0104] 樹脂Aおよび樹脂Bをそれぞれ押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）にて、温度235℃の溶融状態とし、ギヤポンプによって、吐出比が樹

脂A／樹脂B＝1／1になるように計量しながら、積層流入り口から、 $L2/L1=0.58$ のL流路のみを、すなわち、L流路／L流路／L流路／L流路と組み合わせたプレートを用いた複積層押出成形機に導入した。

これにより、幅3mm×長さ30mmの樹脂構造体の中に、幅方向に樹脂Aの層と樹脂Bの層が、交互に33層積層された構造体を作製した。

[0105] 上記の積層構造体は、断面を切り出し各層の幅を測定した。このとき得られた測定値を表2に示す。

本比較例は、従来の同一方向配列方式の組み合わせによるものである。

[0106] (比較例1－3)

複積層体に使用する樹脂材料として、ポリメチルメタクリレート(PMMA、パラペットGF：クラレ社製)を樹脂Aとし、群青のポリメチルメタクリレート(PMMA、パラペットGF：クラレ社製)を樹脂Bとした。樹脂Aおよび樹脂Bは、一昼夜80℃で乾燥した後、押出機(PSV型22mm：プラエンジ社製)に供給した。

[0107] 樹脂Aおよび樹脂Bをそれぞれ押出機(PSV型22mm プラエンジ社製)にて、温度235℃の熔融状態とし、ギヤポンプによって、吐出比が樹脂A／樹脂B＝1／1になるように計量しながら、積層流入り口から、 $L2/L1=0.58$ のL流路と $L2/L1=0.58$ のR流路とを、L流路／R流路／R流路／L流路と組み合わせたプレートを用いた複積層押出成形機に導入した。

これにより、幅3mm×長さ30mmの樹脂構造体の中に、幅方向に樹脂Aの層と樹脂Bの層が、交互に33層積層された構造体を作製した。

[0108] 上記の積層構造体は、断面を切り出し各層の幅を測定した。その測定値を表2に示す。

[0109] (比較例1－4)

複積層体に使用する樹脂材料として、ポリメチルメタクリレート(PMMA、パラペットGF：クラレ社製)を樹脂Aとし、群青のポリメチルメタクリレート(PMMA、パラペットGF：クラレ社製)を樹脂Bとした。樹脂

Aおよび樹脂Bは、一昼夜80℃で乾燥した後、押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）に供給した。

- [0110] 樹脂Aおよび樹脂Bをそれぞれ押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）にて、温度235℃の熔融状態とし、ギヤポンプによって、吐出比が樹脂A／樹脂B＝1／1になるように計量しながら、積層流入り口から、L2／L1＝0.58のL流路とL2／L1＝0.58のR流路とを、L流路／L流路／R流路／R流路と組み合わせたプレートを用いた複積層押出成形機に導入した。

これにより、幅3mm×長さ30mmの樹脂構造体の中に、幅方向に樹脂Aの層と樹脂Bの層が、交互に33層積層された構造体を作製した。

- [0111] 上記の積層構造体は、断面を切り出し各層の幅を測定した。その測定値を表2に示す。

- [0112] （比較例1－5）

複積層体に使用する材料として、ポリメチルメタクリレート（PMMA、パラペットGF：クラレ社製）を樹脂Aとし、群青のポリメチルメタクリレート（PMMA、パラペットGF：クラレ社製）を樹脂Bとした。樹脂Aおよび樹脂Bは、一昼夜80℃で乾燥した後、押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）に供給した。

- [0113] 樹脂Aおよび樹脂Bをそれぞれ押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）にて、温度235℃の熔融状態とし、ギヤポンプによって、吐出比が樹脂A／樹脂B＝1／1になるように計量しながら、積層流入り口から、L2／L1＝0.58のL流路とL2／L1＝0.58のR流路とを、L流路／L流路／L流路／R流路と組み合わせた金型（プレート）を用いた複積層押出成形機に導入した。

これにより、幅3mm×長さ30mmの樹脂構造体の中に、幅方向に樹脂Aの層と樹脂Bの層が、交互に33層積層された構造体を作製した。

- [0114] 上記の積層構造体は、断面を切り出し各層の幅を測定した。その測定値を表2に示す。

[0115] (比較例 1-6)

複積層体に使用する材料として、ポリメチルメタクリレート (PMMA、パラペット GF: クラレ社製) を樹脂 A とし、群青のポリメチルメタクリレート (PMMA、パラペット GF: クラレ社製) を樹脂 B とした。樹脂 A および樹脂 B は、一昼夜 80℃ で乾燥した後、押出機 (PSV 型 22mm: プラエンジ社製) に供給した。

[0116] 樹脂 A および樹脂 B をそれぞれ押出機 (PSV 型 22mm: プラエンジ社製) にて、温度 235℃ の熔融状態とし、ギヤポンプによって、吐出比が樹脂 A/樹脂 B = 1/1 になるように計量しながら、積層流入り口から、L2/L1 = 0.58 の L 流路のみを、すなわち、L 流路/L 流路/L 流路/L 流路/L 流路/L 流路/L 流路と組み合わせた金型 (プレート) を用いた複積層押出成形機に導入した。

これにより、幅 3mm × 長さ 30mm の樹脂構造体の中に、幅方向に樹脂 A の層と樹脂 B の層が交互に 125 層積層された構造体を作製した。

[0117] 上記の積層構造体は、断面の観察を行った。この結果、得られた層数を表 3 に示す。

[0118] 以上の結果から、LME を組み合わせて 17 層積層した積層構造体について、L 流路/R 流路/L 流路と、交互に組み合わせた実施例 1-1 と、L 流路/L 流路/L 流路と、L 流路のみを組み合わせた比較例を検討すると、表 1 に示すように、実施例 1-1 では層のバラツキ度合が非常に低くなっている。

[0119] 次に、LME の組み合わせ方法を変えて 33 層積層された積層構造体について、実施例 1-2 と比較例 1-2 ~ 1-5 を検討する。

[0120] 図 4 に、LME の組み合わせ方法を変えた実施例 1-2、比較例 1-2 ~ 1-5 に係る複積層体の写真を示す。

従来の同一方式配列の組み合わせである比較例 1-2 と、L 流路と R 流路を組み合わせた実施例 1-2、比較例 1-3 ~ 1-5 と比べると、後者はいずれも、最外層の層がはっきりと存在していることがわかった。

- [0121] また、実施例 1-2 と比較例 1-3 ~ 1-5 とを比べると、図 4 にみられるように、比較例 1-4 や比較例 1-5 では局所的に層が薄くなっているのを確認した。図 4 の比較例 1-5 の中心部の層が非常に薄くなっている箇所は、LME 3 組目通過後に形成された層配列の乱れ（最外層の消失現象）が 4 組目の LME での分割・配列で配列品内部に組み込まれたために生じたと考えられる。
- [0122] また、比較例 1-4 では、左から 9 層目、24 層目の層が薄くなっていることから、LME 2 組目通過後に形成された層の乱れが 3 組目、4 組目の LME 通過で配列品内部に取り込まれたと考えられる。この層の乱れたと考えられる箇所を組み合わせ順と比較して考えると、比較例 1-5 では、L 流路／L 流路／L 流路／R 流路、比較例 1-3 では、L 流路／L 流路／R 流路／R 流路と流れてきた箇所で生じていることがわかる。
- [0123] これらは、連続して同一方向に配列されていた層流を、次に交互を組み配列方向が逆の方向に流れた際に生じており、この現象を比較例 1-2、比較例 1-5 を用いて考えると、以下のように推定できる。すなわち、同一方向に樹脂が流れるごとに、樹脂の消失箇所は大きくなることから、一度、端部層の上下の表層幅が偏った構造が形成されると、さらに分割・配列を繰り返すと以下の現象が生じることがわかる。すなわち、比較例 1-2 では、両端部の層の消失が増加し、一方、比較例 1-5 では、中央部に薄い層ができてしまうことから、配列状態への崩れが生じてしまうと考えられる。
- [0124] また、図 4 に示すように、比較例 1-3 では、13 層目の下部、21 層目の上部の層が薄くなっている箇所が存在することがわかる。比較例 1-3 で見られる層が薄くなっている箇所は、発生箇所について組数を戻りながら検討すると、1 組通過後に生じたとわかる。この箇所は、LME 1 組通過後に見られる、層流が右に傾くことで生じる端部の上下層の幅の違い箇所と一致し、幅が狭くなっている箇所がそれぞれの 4 組目で層が薄くなっている。そして、1 組目での配列状態の影響より 4 組目で薄い層が少し存在してしまうことがわかる。

- [0125] これらの結果より、実施例 1－2 の組み合わせが両端部の層の消失低減に最も有利な効果を有する組み合わせだと考えられる。
- [0126] 次に、実施例 1－2、実施例 1－3 における交互配列の結果についてみると、L 流路と R 流路を交互に組み合わせることによって、分割・配列後における端部層の上下の層幅の偏りが平均化されることで、両端部の層の消失低減効果が得られたと推定できる。
- [0127] その結果、両端部の層の消失をおさえ、かつ層幅の均一性を維持するためには、LME 内の層流の傾きをより緩和させることが重要となることから、LME の構成は、実施例 1－2、実施例 1－3 のように、L 流路と R 流路を交互に組み合わせることが好ましい。
- [0128] 以上の結果から、比較例 1－2～1－6 のような配列方式による製造方法においては、両端部の層が減少し、LME の組数が増加するとともに、端部および中央部の層が消失した。また、比較例 1－6 では、成形理論層数 129 層のうち、125 層しか確認できなかった。
- [0129] これに対し、実施例 1－2～1－3 のような L 流路と R 流路を交互に配列する交互配列方式による製造方法においては、LME の組数を増加させても、最外層の層がはっきりと確認でき、最端部、中央部の層の消失を全く確認することができなかった。
- [0130] 以上の結果から、比較例 1－2～1－6 の配列方式による製造方法においては、層流の傾きによって生じる両端部の上下表層にみられる層幅の違いが、最端部、中央部の層の消失原因であると推定できる。これに対して、実施例 1－2～1－3 の交互配列方式による製造方法においては、層流の傾きによって生じる両端部の上下表層にみられる層幅の違いが緩和され、極端に端部の層が少なくなることなく層幅が平均化さえることで、分割・配列を繰り返しても最端部の層消失が起こりにくいという効果が得られていると考えられる。
- [0131] 以上説明したように、実施例 1－1～1－3 の複積層体の製造方法および製造装置においては、流路形状内で生じる局所的な流速ムラを小さくするこ

とができ、積層に乱れが生じにくく、各層の厚みのムラを低減することができる。さらに、厚みムラによる不良部分が低減されることから、分割、分岐、再配置合流を繰り返す度に発生する層の消失が低減され、良質な交互に配置された積層の層数を、従来と比較して2倍、4倍と増やすことが可能となる。

[0132] (実施例2-1)

複積層体に使用する樹脂材料として、ポリメチルメタクリレート（PMM A、パラペットGF：クラレ社製）を樹脂Aとし、群青のポリメチルメタクリレート（PMMA、パラペットGF：クラレ社製）を樹脂Bとした。樹脂Aおよび樹脂Bは、一昼夜80℃で乾燥した後、押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）に供給した。

[0133] 樹脂Aおよび樹脂Bをそれぞれ押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）にて、温度235℃の熔融状態とし、ギヤポンプによって、吐出比が樹脂A／樹脂B＝1／1になるように計量しながら、積層流入り口から、L2／L1＝2.0のL流路をL流路／L流路／L流路と組み合わせた金型（プレート）を用いて、複積層押出成形機に導入した。

これにより、厚み3mm×幅30mmの押出成形体の中に、幅方向に樹脂Aの層と樹脂Bの層が、交互に17層積層された複積層体を作製した。

[0134] 上記の複積層体は、断面を切り出し各層の幅を測定した。その測定値を表4に示す。

[0135] [表4]

	L流路装置 (組)	L2／L1	位置(垂直性)			層数
			右側	センター	左側	
実施例2-1	3	2.0	87.8	87.2	87.6	17
比較例2-1	3	0.58	72.2	72.1	73.2	17

[0136] (実施例2-2)

複積層体に使用する樹脂材料として、ポリメチルメタクリレート（PMM A、パラペットGF：クラレ社製）のせん断速度依存の粘度を樹脂A、樹脂Bともに用いた。

樹脂Aおよび樹脂Bは、それぞれ温度235℃の溶融状態とし、吐出比が樹脂A／樹脂B＝1／1になるように設定し、積層流入り口からL2／L1＝2.0のL流路を用いてシミュレーション〔流動解析ソフト「POLYFLOW」（アンセス・ジャパン社製）〕による流動解析を実施した。

[0137] 上記のシミュレーションより得られた結果より、各層の垂直性を上記記載方法にて測定した。シミュレーションは流路の対称性から片側のみの垂直性を測定し、得られた測定値は同条件の実測値である実施例2-1と良く一致した。結果を表5に示す。

[0138] （実施例2-3）

複積層体に使用する樹脂材料として、ポリメチルメタクリレート（PMM A、パラペットGF：クラレ社製）のせん断速度依存の粘度を樹脂A、樹脂Bともに用いた。

[0139] 樹脂Aおよび樹脂Bは、それぞれ温度235℃の溶融状態とし、吐出比が樹脂A／樹脂B＝1／1になるように設定し、積層流入り口からL2／L1＝1.32のL流路を用いてシミュレーションによる流動解析を実施した。

[0140] 上記のシミュレーションより得られた結果より、各層の垂直性を上記記載方法にて測定した。シミュレーションは流路の対称性から片側のみの垂直性を測定し、得られた測定値を表5に示す。

[0141] [表5]

	L2／L1	位置(垂直性)	
		右側	センター
実施例2-2	2.0	88.2	87.0
実施例2-3	1.32	86.8	86.1
比較例2-2	0.98	84.2	83.6
比較例2-3	0.49	74.2	71.5

[0142] （実施例2-4）

複積層体に使用する材料としてポリメチルメタクリレート（PMMA、パラペットGF：クラレ社製）を樹脂Aとし、群青のポリメチルメタクリレート（PMMA、パラペットGF：クラレ社製）を樹脂Bとした。樹脂Aおよ

び樹脂Bは、一昼夜80℃で乾燥した後、樹脂Aおよび樹脂Bを押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）に供給した。

- [0143] 樹脂Aおよび樹脂Bは、それぞれ押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）にて温度235℃の熔融状態とし、ギヤポンプにて吐出比が樹脂A／樹脂B＝1／1になるように計量しながら、積層流入り口からL2／L1＝2.0のL流路をL流路／R流路／L流路／R流路／L流路／R流路と組み合わせた金型（プレート）を用いて、複積層押出成形機に導入した。

これにより、厚み3mm×幅30mmの押出成形体の中に、幅方向に樹脂Aの層と樹脂Bの層が交互に129層積層された複積層体を作製した。

- [0144] 上記の複積層体から切り出して得られた断面図を図11に示す。

- [0145] （比較例2－1）

複積層体に使用する樹脂材料として、ポリメチルメタクリレート（PMM A、パラペットGF：クラレ社製）を樹脂Aとし、群青のポリメチルメタクリレート（PMMA、パラペットGF：クラレ社製）を樹脂Bとした。樹脂Aおよび樹脂Bは、一昼夜80℃で乾燥した後、押出機（PSV型22mm：プラエンジ社製）に供給した。

- [0146] 樹脂Aおよび樹脂Bをそれぞれ押出機にて、温度235℃の熔融状態とし、ギヤポンプによって、吐出比が樹脂A／樹脂B＝1／1になるように計量しながら、積層流入り口からL2／L1＝0.58のL流路を、L流路／L流路／L流路と組み合わせた金型（プレート）を用いた複積層押出成形機に導入した。

これにより、厚み3mm×幅30mmの押出成形体の中に、幅方向に樹脂Aの層と樹脂Bの層が、交互に17層積層された複積層体を作製した。

- [0147] 上記の複積層体は、断面を切り出し各層の垂直性を測定した。測定値を表4に示す。

- [0148] （比較例2－2）

複積層体に使用する樹脂材料としてポリメチルメタクリレート（PMMA、パラペットGF：クラレ社製）のせん断速度依存の粘度を樹脂A、樹脂B

ともに用いた。

[0149] 樹脂Aおよび樹脂Bは、それぞれ温度235℃の溶融状態とし、吐出比が樹脂A／樹脂B＝1／1になるように設定し、積層流入り口からL2／L1＝0.98のL流路を用いてシミュレーションによる流動解析を実施した。

[0150] 上記のシミュレーションより得られた結果より、各層の垂直性を上記記載方法にて測定した。シミュレーションは流路の対称性から片側のみの垂直性を測定し、得られた測定値を表5に示す。

[0151] (比較例2-3)

複積層体に使用する樹脂材料としてポリメチルメタクリレート(PMMA、パラペットGF：クラレ社製)のせん断速度依存の粘度を樹脂A、樹脂Bともに用いた。

[0152] 樹脂AおよびBは、それぞれ温度235℃の溶融状態とし、吐出比が樹脂A／樹脂B＝1／1になるように設定し、積層流入り口からL2／L1＝0.49のL流路を用いてシミュレーションによる流動解析を実施した。

[0153] 上記のシミュレーションより得られた結果より、各層の垂直性を上記記載方法にて測定した。シミュレーションは流路の対称性から片側のみの垂直性を測定し、得られた測定値を表5に示す。

[0154] (比較例2-4)

複積層体に使用する樹脂材料としてポリメチルメタクリレート(PMMA、パラペットGF：クラレ社製)を樹脂Aとし、群青のポリメチルメタクリレート(PMMA、パラペットGF：クラレ社製)を樹脂Bとした。樹脂A、樹脂Bは、一昼夜80℃で乾燥した後、樹脂Aおよび樹脂Bを押出機(PSV型22mm：プラエンジ社製)に供給した。

[0155] 樹脂Aおよび樹脂Bは、それぞれ押出機(PSV型22mm：プラエンジ社製)にて温度235℃の溶融状態とし、ギャポンにて吐出比が樹脂A／樹脂B＝1／1になるように計量しながら、積層流入り口からL2／L1＝0.58のL流路を、L流路／L流路／L流路／L流路／L流路／L流路と組み合わせた金型(プレート)を用いた複積層押出成形機に導入した。

これにより、厚み 3 mm × 幅 30 mm の押出成形体の中に、幅方向に樹脂 A の層と樹脂 B の層が交互に積層された複積層体を作製した。

[0156] 上記の複積層体から切り出した断面図を図 11 に示す。

[0157] 以上の結果から、図 8 の流路と図 9 の長流路とを比較すると、上下に分割された樹脂は、配列プレート湾曲部（図 6 の B 2 点、図 7 の E 2 点）までは、ほぼ縦配列の層を保たれるような状態で流動することがわかる。

[0158] 配列プレート湾曲部（図 6 の B 2 点、図 7 の E 2 点）以降は、図 8 の流路では、縦配列の層が傾きを持つような流動へと変化しているのに対して、図 9 の流路では、縦配列の層の傾きに大きな変化は見られないことがわかる。

[0159] さらに、図 8 の流路および図 9 の流路ともに配列プレート部において流速が早くなる傾向にあるが、図 8 の流路は急激に流速が増大していることがわかる。

[0160] 以上の結果より、配列プレート部の流路長を延長化することにより、流速の変化が緩やかになり流速の不均一が抑えられていると考えられる。

[0161] 図 12 に示す 1 組のプレート（LME）を組み合わせたプレートにおいて、配列状態を比較すると、図 9 の長流路配列方式では、図 8 の配列方式に比べ、配列の垂直性が向上した。また、両端部層については、図 8 の流路と図 9 の流路では、ほとんど差異がなく両端部層が消失する傾向にあった。

[0162] これらの結果より、各層の傾きが生じる現象は、配列プレート部の形状が影響していると推定できる。従って、層の垂直性を保つためには層流を急激に変化させないような流路の設計が重要であることが明らかとなった。

[0163] 実施例 2-4 と比較例 2-4 の複積層体の断面写真より、実施例 2-4 の交互長流路配列方式では、垂直性が向上し、ほぼ配列が整っていることがわかる。すなわち、層の垂直性を保持したまま両端部の層の消失を抑える効果が得られる。

[0164] 以上述べたように、図 6 および図 7 に示すように流路長を延長させることにより、図 8 の流路と比較し、配列プレート部における急激な流速の変化が低減でき、層の傾斜をおさえ、縦配列の垂直性を向上させることができる。

[0165] また、複積層体を形成させる流路形状内で生じる局所的な流速ムラ、圧力分布が小さくなり、積層に乱れが生じにくく、各層の傾きが低減され、縦方向に配向された層の垂直性を保持した複積層体を得ることが可能となる。

[0166] さらに、層の垂直性低下による不良部分が低減されることから、分割、分岐再配置、合流を繰り返す度に発生しはじめる層の消失が低減され、垂直性を保持しながら良質な交互に配置された積層の層数を、従来と比較して2倍、4倍と増やすことが可能となる。

[0167] この出願は、2010年5月25日に提出された日本出願特願2010-119395号、および2010年6月3日に提出された日本出願特願2010-127789号を基礎とする優先権を主張し、その開示の全てをここに取り込む。

産業上の利用可能性

[0168] 本発明の複積層体の製造方法及びその製造装置は、液晶ディスプレイの偏光板保護フィルム及び光学補償フィルム等の光の制御を利用した光学フィルム等の高機能性フィルム等の製造に好ましく適用することができる。

符号の説明

- [0169] 1 L 流路の全工程
- 1 1 L 流路の分割機構
- 1 2 L 流路の分岐機構
- 1 3 L 流路の再配置合流機構
- 1 4 L 流路の安定機構
- A 1 L 流路の分割機構の分割点
- B 1 L 流路の流動方向の中間点
- C 1 L 流路の再配置合流機構の合流点
- A 2 L 流路の分割機構の分割点
- B 2 L 流路の流動方向の分岐点
- C 2 L 流路の流動方向の中間点
- D 2 L 流路の再配置合流機構の合流点

- P 1 積層流
- P 2 L 流路の分割機構で上方向に分割された積層流
- P 3 L 流路の分割機構で下方向に分割された積層流
- P 4 L 流路の再配置合流機構で合流した積層流
- 2 R 流路の全工程
- 2 1 R 流路の分割機構
- 2 2 R 流路の分岐機構
- 2 3 R 流路の再配置合流機構
- 2 4 R 流路の積層流安定機構
- 2 5 分割プレート
- 2 6 配列プレート
- 2 7 並行プレート
- 2 8 開口部
- 2 9 開口部
- 3 0 開口部
- D 1 R 流路の分割機構の分割点
- E 1 R 流路の流動方向の中間点
- F 1 R 流路の再配置合流機構の合流点
- D 2 R 流路の分割機構の分割点
- E 2 R 流路の流動方向の分岐点
- F 2 R 流路の流動方向の中間点
- G 2 R 流路の再配置合流機構の合流点
- P 5 R 流路の分割機構で上方向に分割された積層流
- P 6 R 流路の分割機構で下方向に分割された積層流
- P 7 R 流路の再配置合流機構で合流した積層流

請求の範囲

[請求項1]

少なくとも2つの溶融樹脂を縦方向に配列して隣接させた積層流を、上下に2分割し、分割した上部の積層流を第1の積層流、下部の積層流を第2の積層流とし、前記第1の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、前記第2の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、次いで、前記第1の積層流を流動方向の中心に向けて右下方向に、前記第2の積層流を流動方向の中心に向けて左上方向に導き、その後、前記第1の積層流と前記第2の積層流とを左右方向に隣接して再配置し合流させる工程1（L流路）と、

少なくとも2つの溶融樹脂を縦方向に配列して隣接させた積層流を、上下に2分割し、分割した上部の積層流を第3の積層流とし、下部の積層流を第4の積層流とし、前記第3の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、前記第4の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、次いで、前記第3の積層流を流動方向の中心に向けて左下方向に、前記第4の積層流を流動方向の中心に向けて右上方向に導き、その後、前記第3の積層流と前記第4の積層流とを左右方向に隣接して再配置し合流させる工程2（R流路）と、を有し、

前記工程1（L流路）、前記工程2（R流路）をこの順で、少なくとも3工程以上、交互に繰り返すことを特徴とする複積層体の製造方法。

[請求項2]

少なくとも2つの溶融樹脂を縦方向に配列して隣接させた積層流を、上下に2分割し、分割した上部の積層流を第1の積層流、下部の積層流を第2の積層流とし、前記第1の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、前記第2の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、次いで、前記第1の積層流を流動方向の中心に向けて左下方向に、前記第2の積層流を流動方向の中心に向けて右上方向に導き、その後、前記第1の積層流と前記第2の積層流とを左右方向に隣接して再配置し合流させる工程2（R流路）と、

少なくとも2つの熔融樹脂を縦方向に配列して隣接させた積層流を、上下に2分割し、分割した上部の積層流を第3の積層流、下部の積層流を第4の積層流とし、前記第3の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、前記第4の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、次いで、前記第3の積層流を流動方向の中心に向けて右下方向に、前記第4の積層流を流動方向の中心に向けて左上方向に導き、その後、前記第3の積層流と前記第4の積層流とを左右方向に隣接して再配置し合流させる工程1（L流路）と、を有し、

前記工程2（R流路）、前記工程1（L流路）をこの順で少なくとも3工程以上、交互に繰り返すことを特徴とする複積層体の製造方法。

[請求項3] 前記積層流の断面形状が矩形であることを特徴とする請求項1または2に記載の複積層体の製造方法。

[請求項4] 少なくとも2つの熔融樹脂を縦方向に配列し隣接させて所定の幅と厚みを有する積層流を形成し、

分割点において、前記積層流を上下に2分割し、分割した上部の積層流を第1の積層流とし、下部の積層流を第2の積層流とし、

分岐点において、前記第1の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、前記第2の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、

中間点において、前記第1の積層流を流動方向の中心に向かって右下方向に、前記第2の積層流を流動方向の中心に向かって左上方向に導き、

合流点において、前記第1の積層流と前記第2の積層流を左右に隣接して再配置し合流させる複積層体の製造方法であって、

前記積層流の前記幅と前記厚みのうち長い方の長さを L_1 とし、前記分岐点から前記合流点までの流動進行方向の長さを L_2 としたとき、前記所定の幅と厚みを有する積層流が、 $L_2 / L_1 \geq 1.1$ の関係を満たす複積層体の製造方法。

[請求項5] 少なくとも2つの熔融樹脂を縦方向に配列し隣接させて所定の幅と厚みを有する積層流を形成し、

分割点において、前記積層流を上下に2分割し、分割した上部の積層流を第1の積層流とし、下部の積層流を第2の積層流とし、

分岐点において、前記第1の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、前記第2の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、

中間点において、前記第1の積層流を流動方向の中心に向かって左下方向に、前記第2の積層流を流動方向の中心に向かって右上方向に導き、

合流点において、前記第1の積層流と前記第2の積層流を左右に隣接して再配置し合流させる複積層体の製造方法であって、

前記積層流の前記幅と前記厚みのうち長い方の長さを L_1 とし、前記分岐点から前記合流点までの流動進行方向の長さを L_2 としたとき、前記所定の幅と厚みを有する積層流が、 $L_2 / L_1 \geq 1.1$ の関係を満たす複積層体の製造方法。

[請求項6] 少なくとも2つの熔融樹脂を縦方向に配列し隣接させて所定の幅と厚みを有する積層流を形成し、

分割点A2において、前記積層流を上下に2分割し、分割した上部の積層流を第1の積層流とし、下部の積層流を第2の積層流とし、

分岐点B2において、前記第1の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、前記第2の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、

中間点C2において、前記第1の積層流を流動方向の中心に向かって右下方向に、前記第2の積層流を流動方向の中心に向かって左上方向に導き、

合流点D2において、前記第1の積層流と前記第2の積層流を左右に隣接して再配置し合流させる第1の工程と、

分割点E2において、前記再配置合流した前記積層流を上下に2分割し、分割した上部の積層流を第3の積層流とし、下部の積層流を第

4の積層流とし、

分岐点F₂において、前記第3の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、前記第4の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、

中間点G₂において、前記第3の積層流を流動方向の中心に向かって左下方向に、前記第4の積層流を流動方向の中心に向かって右上方向に導き、

合流点H₂において、前記第3の積層流と前記第4の積層流を左右に隣接して再配置し合流させる第2の工程とを備える複積層体の製造方法であって、

前記積層流の前記幅と前記厚みのうち長い方の長さを L_1 とし、前記分岐点B₂から前記合流点D₂、及び／又は前記分岐点F₂から前記合流点H₂までの流動進行方向の長さを L_2 としたとき、前記所定の幅と厚みを有する積層流が、 $L_2 / L_1 \geq 1$ の関係を満たす複積層体の製造方法。

[請求項7]

少なくとも2つの溶融樹脂を縦方向に配列し隣接させて所定の幅と厚みを有する積層流を形成し、

分割点A₂において、前記積層流を上下に2分割し、分割した上部の積層流を第1の積層流とし、下部の積層流を第2の積層流とし、

分岐点B₂において、前記第1の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、前記第2の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、

中間点C₂において、前記第1の積層流を流動方向の中心に向かって左下方向に、前記第2の積層流を流動方向の中心に向かって右上方向に導き、

合流点D₂において、前記第1の積層流と前記第2の積層流を左右に隣接して再配置し合流させる第1の工程と、

分割点E₂において、前記再配置合流した前記積層流を上下に2分割し、分割した上部の積層流を第3の積層流とし、下部の積層流を第4の積層流とし、

分岐点 F 2 において、前記第 3 の積層流を流動方向に向かって左方向に導き、前記第 4 の積層流を流動方向に向かって右方向に導き、

中間点 G 2 において、前記第 3 の積層流を流動方向の中心に向かって右下方向に、前記第 4 の積層流を流動方向の中心に向かって左上方向に導き、

合流点 H 2 において、前記第 3 の積層流と前記第 4 の積層流を左右に隣接して再配置し合流させる第 2 の工程とを備える複積層体の製造方法であって、

前記積層流の前記幅と前記厚みのうち長い方の長さを L_1 とし、前記分岐点 B 2 から前記合流点 D 2、及び／又は前記分岐点 F 2 から前記合流点 H 2 までの流動進行方向の長さを L_2 としたとき、前記所定の幅と厚みを有する積層流が、 $L_2 / L_1 \geq 1.1$ の関係を満たす複積層体の製造方法。

[請求項 8] 前記第 1 の工程と前記第 2 の工程を交互に繰り返すことを特徴とする請求項 6 または 7 に記載の複積層体の製造方法。

[請求項 9] 前記 L_2 / L_1 が、 $1.1 \leq L_2 / L_1 \leq 5$ であることを特徴とする請求項 4 乃至 8 のいずれか 1 項に記載の複積層体の製造方法。

[請求項 10] 少なくとも 2 つの溶融樹脂を縦方向に配列して隣接させた積層流を、上下に 2 分割する分割プレートと、

前記分割プレートで分割された上部の積層流を左方向に導く流路と下部の積層流を右方向に導く流路と、次いで、前記上部の積層流を中心に向けて右下方向に導く流路と前記下部の積層流を中心に向けて左上方向に導く流路と、を有する配列プレート（L 流路）と、

前記配列プレート（L 流路）で左右方向に配列させた積層流を再配置し合流する並列プレートと、を備える 1 組の L 流路型プレートと、

少なくとも 2 つの溶融樹脂を縦方向に配列して隣接させた積層流を、上下に 2 分割する分割プレートと、

前記分割プレートで分割された上部の積層流を右方向に導く流路と

下部の積層流を左方向に導く流路と、次いで、前記上部の積層流を中心に向けて左下方向に導く流路と前記下部の積層流を中心に向けて右上方向に導く流路と、を有する配列プレート（R流路）と、

前記配列プレート（R流路）で左右方向に配列させた積層流を再配置し合流する並列プレートと、を備える1組のR流路型プレートとを、

交互に2組以上配置させることを特徴とする複積層体の製造装置。

[請求項11] 前記積層流の断面形状が矩形であることを特徴とする請求項10項に記載の複積層体の製造装置。

[請求項12] 少なくとも2つの熔融樹脂を縦方向に配列し隣接させて形成した所定の幅と厚みを有する積層流を、分割点において上下に2分割する分割プレートと、

分岐点において、前記分割プレートで分割された上部の積層流を左方向に導く流路と下部の積層流を右方向に導く流路と、中間点において、前記上部の積層流を中心に向かって右下方向に導く流路と前記下部の積層流を中心に向かって左上方向に導く流路と、を有する配列プレート（L流路）と、

前記配列プレート（L流路）で左右に配列させた積層流を、合流点において、再配置し合流する並列プレートと、を備える1組のL流路型プレートであって、

前記積層流の前記幅と前記厚みのうち長い方の長さを L_1 とし、前記分岐点から前記合流点までの流動進行方向の長さを L_2 としたとき、

前記所定の幅と厚みを有する積層流が、 $L_2 / L_1 \geq 1.1$ の関係を満たす複積層体の製造装置。

[請求項13] 少なくとも2つの熔融樹脂を縦方向に配列し隣接させて形成した所定の幅と厚みを有する積層流を、分割点において上下に2分割する分割プレートと、

分岐点において、前記分割プレートで分割された上部の積層流を右方向に導く流路と下部の積層流を左方向に導く流路と、中間点において、前記上部の積層流を中心に向かって左下方向に導く流路と前記下部の積層流を中心に向かって右上方向に導く流路と、を有する配列プレート（R流路）と、

前記配列プレート（R流路）で左右に配列させた積層流を、合流点において、再配置し合流する並列プレートと、を備える1組のR流路型プレートであって、

前記積層流の前記幅と前記厚みのうち長い方の長さを L_1 とし、前記分岐点から前記合流点までの流動進行方向の長さを L_2 としたとき、前記所定の幅と厚みを有する積層流が、 $L_2 / L_1 \geq 1.1$ の関係を満たす複積層体の製造装置。

[請求項14]

少なくとも2つの溶融樹脂を縦方向に配列し隣接させて形成した所定の幅と厚みを有する積層流を、分割点A2において上下に2分割する分割プレートと、

分岐点B2において、前記分割プレートで分割された上部の積層流を左方向に導く流路と下部の積層流を右方向に導く流路と、

中間点C2において、前記上部の積層流を中心に向かって右下方向に導く流路と前記下部の積層流を中心に向かって左上方向に導く流路と、を有する配列プレート（L流路）と、

前記配列プレート（L流路）で左右に配列させた積層流を、合流点D2において、再配置し合流する並列プレートと、を備える1組のL流路型プレートと、

少なくとも2つの溶融樹脂を縦方向に配列し隣接させて形成した積層流を、分割点E2において上下に2分割する分割プレートと、

分岐点F2において、前記分割プレートで分割された上部の積層流を右方向に導く流路と下部の積層流を左方向に導く流路と、

中間点G2において、前記上部の積層流を中心に向かって左下方向

に導く流路と前記下部の積層流を中心に向かって右上方向に導く流路と、を有する配列プレート（Ｒ流路）と、

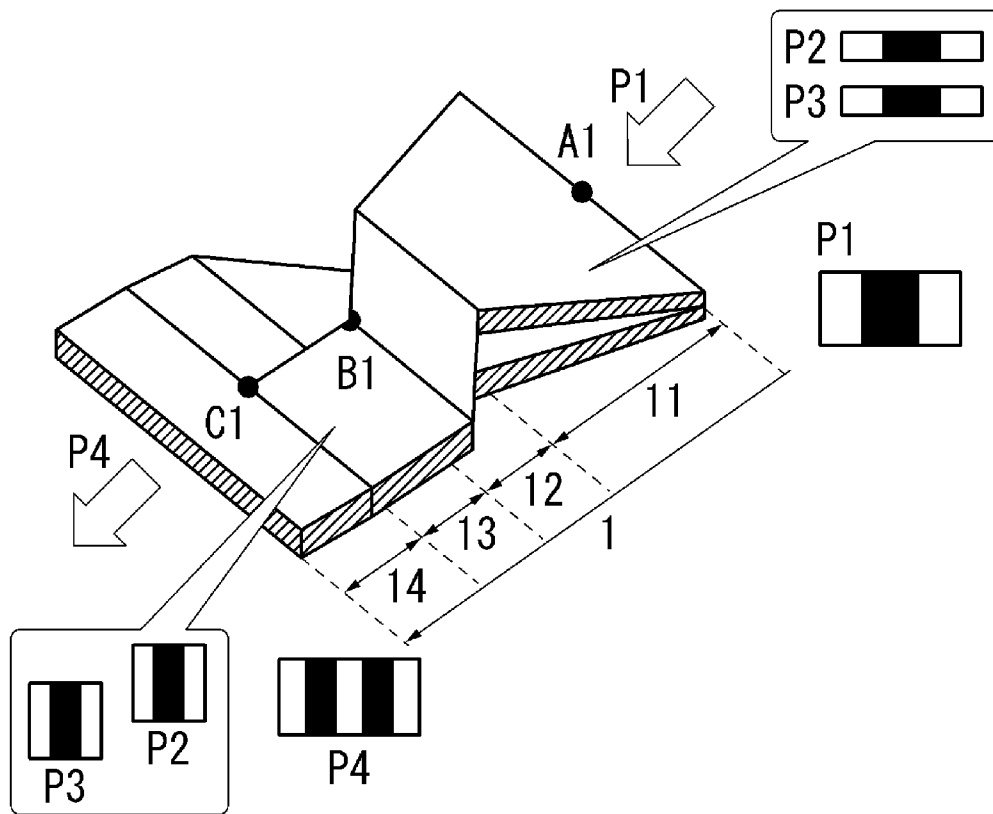
前記配列プレート（Ｒ流路）で左右に配列させた積層流を、合流点Ｈ２において、再配置し合流する並列プレートと、を備える１組のＲ流路型プレートとを、交互に２組以上配置させた複積層体の製造装置であって、

前記積層流の前記幅と前記厚みのうち長い方の長さを L_1 とし、前記分岐点Ｂ２から前記合流点Ｄ２、及び／又は前記分岐点Ｆ２から前記合流点Ｈ２までの流動進行方向の長さを L_2 としたとき、前記所定の幅と厚みを有する積層流が、 $L_2 / L_1 \geq 1.1$ の関係を満たす複積層体の製造装置。

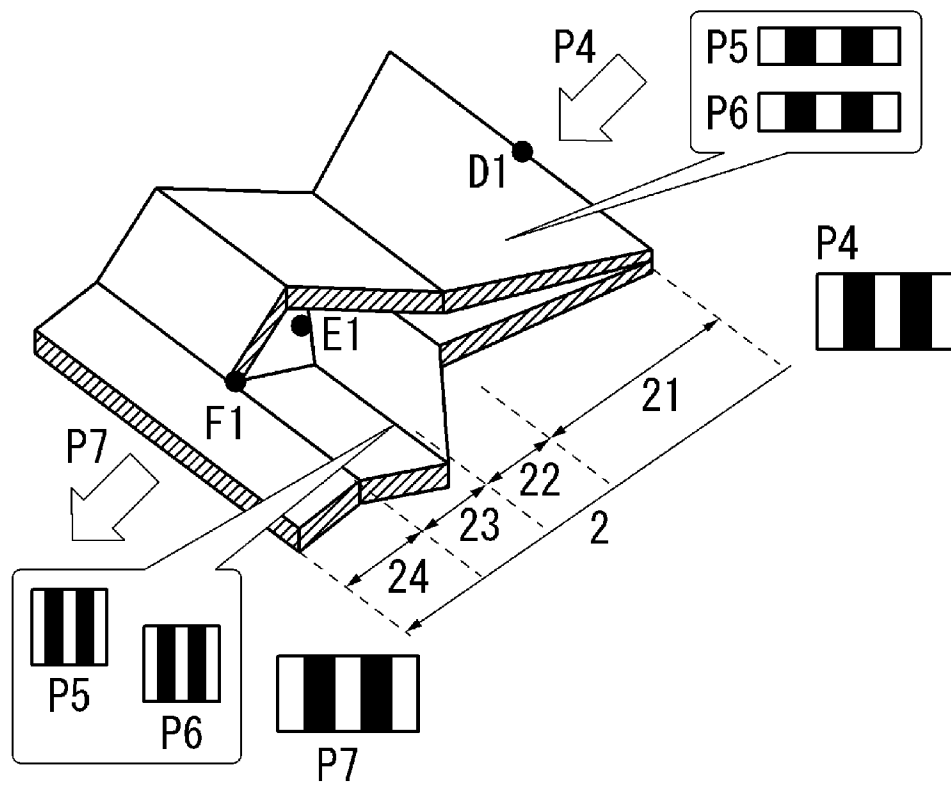
[請求項15] 前記 L_2 / L_1 が、 $1.1 \leq L_2 / L_1 \leq 5$ であることを特徴とする請求項１２乃至１４のいずれか１項に記載の複積層体の製造装置。

[請求項16] 請求項１乃至９のいずれか１項に記載の複積層体の製造方法により製造されたものである複積層体。

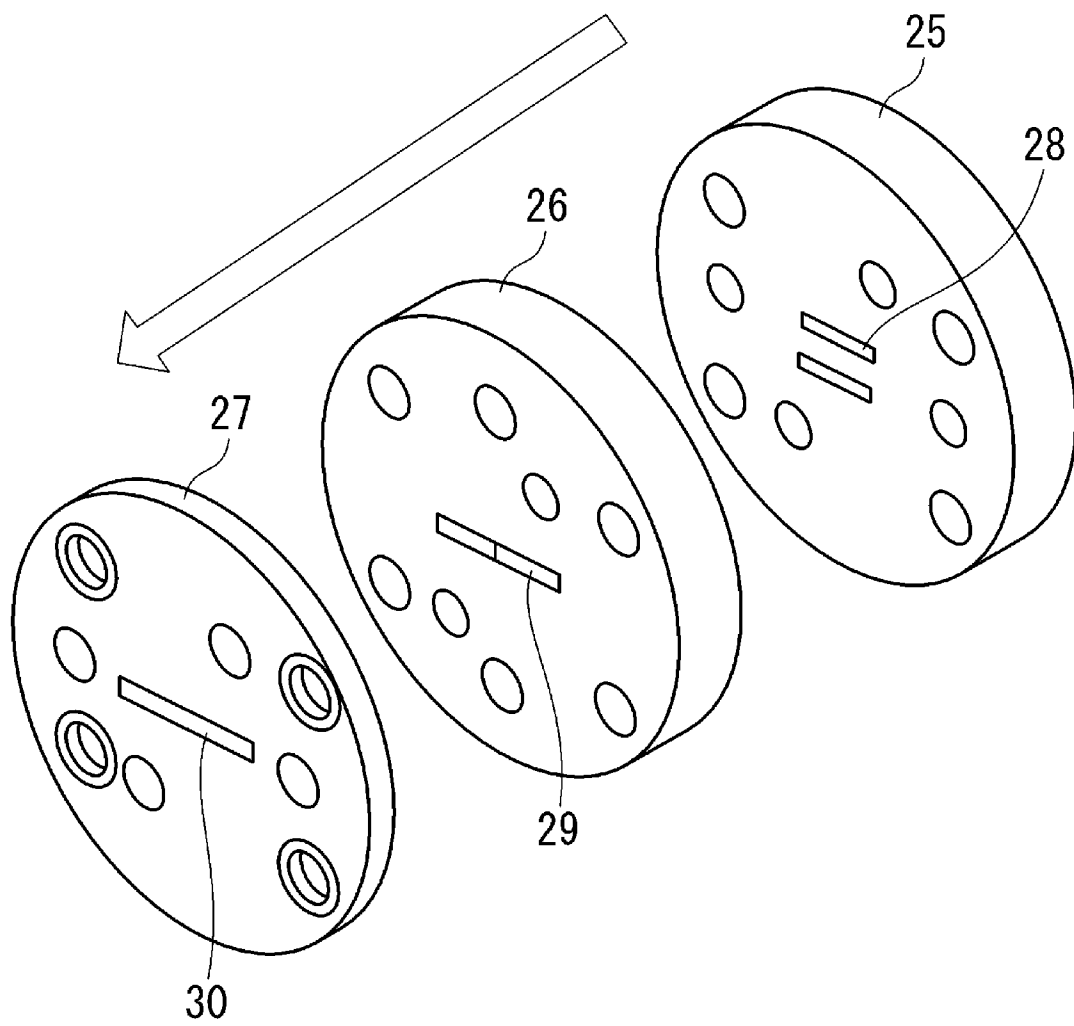
[図1]



[図2]



[図3]



[図4]

実施例 1 - 2 (L/R/L/R)



比較例 1 - 2 (L/L/L/L)



比較例 1 - 3 (L/R/R/L)



比較例 1 - 4 (L/L/R/R)

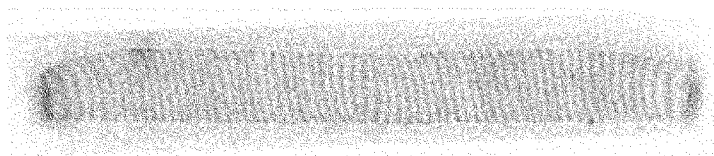


比較例 1 - 5 (L/L/L/R)

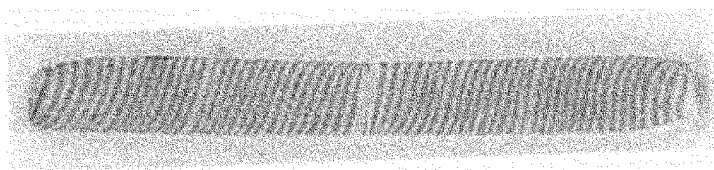


[図5]

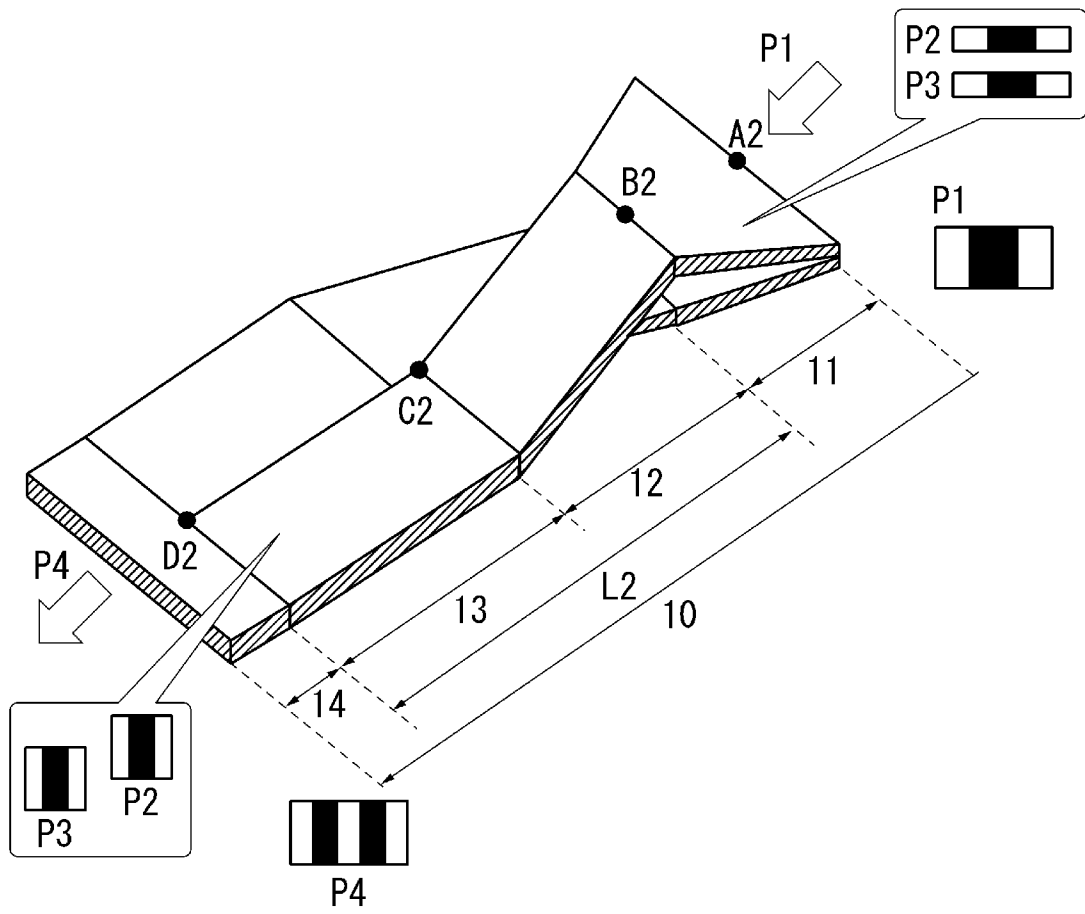
実施例 1 - 3 (L/R/L/R/L/R)



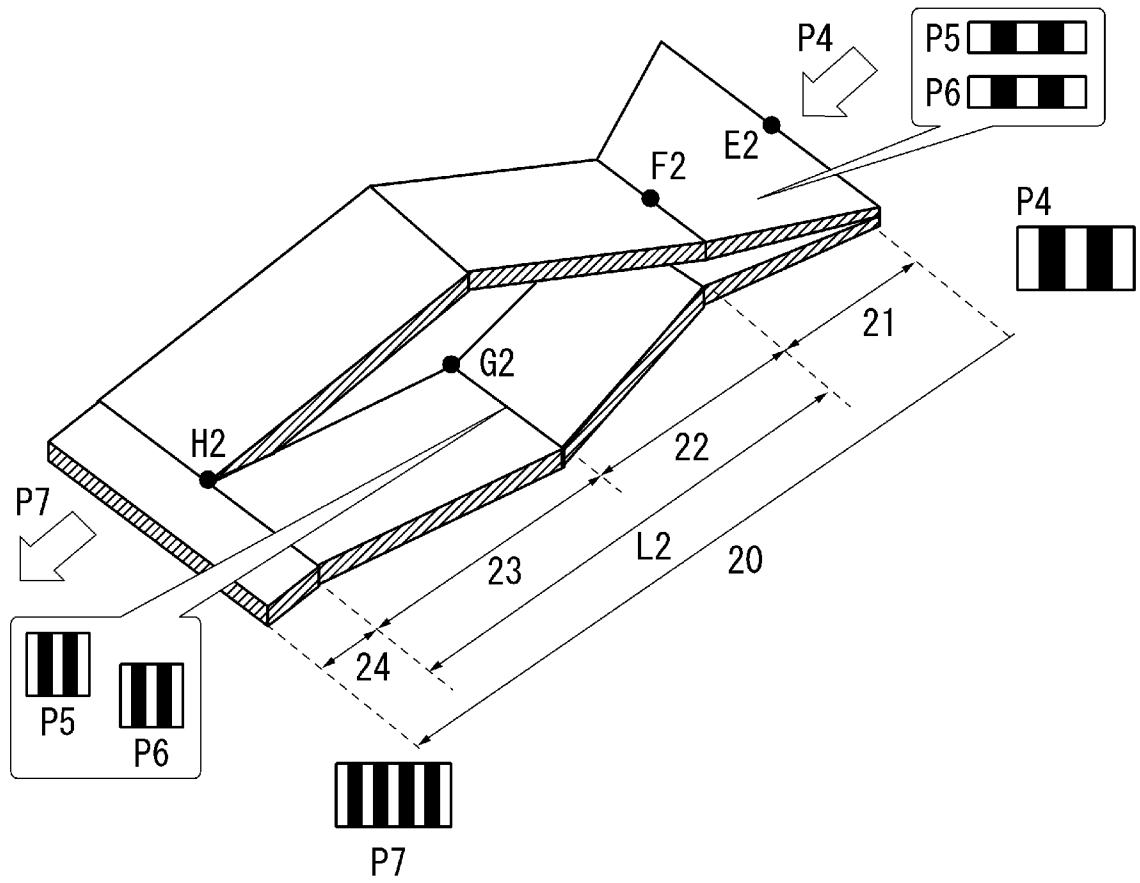
比較例 1 - 6 (L/L/L/L/L/L)



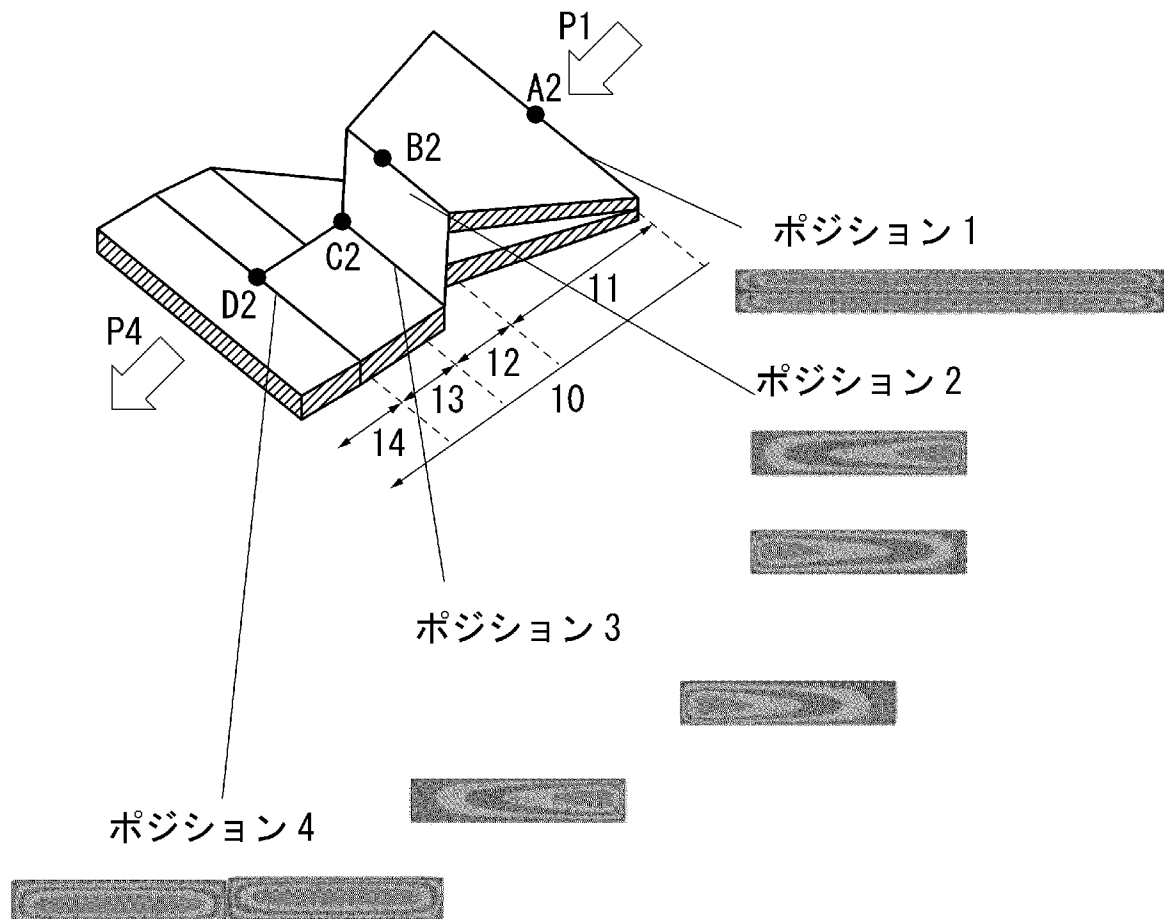
[図6]



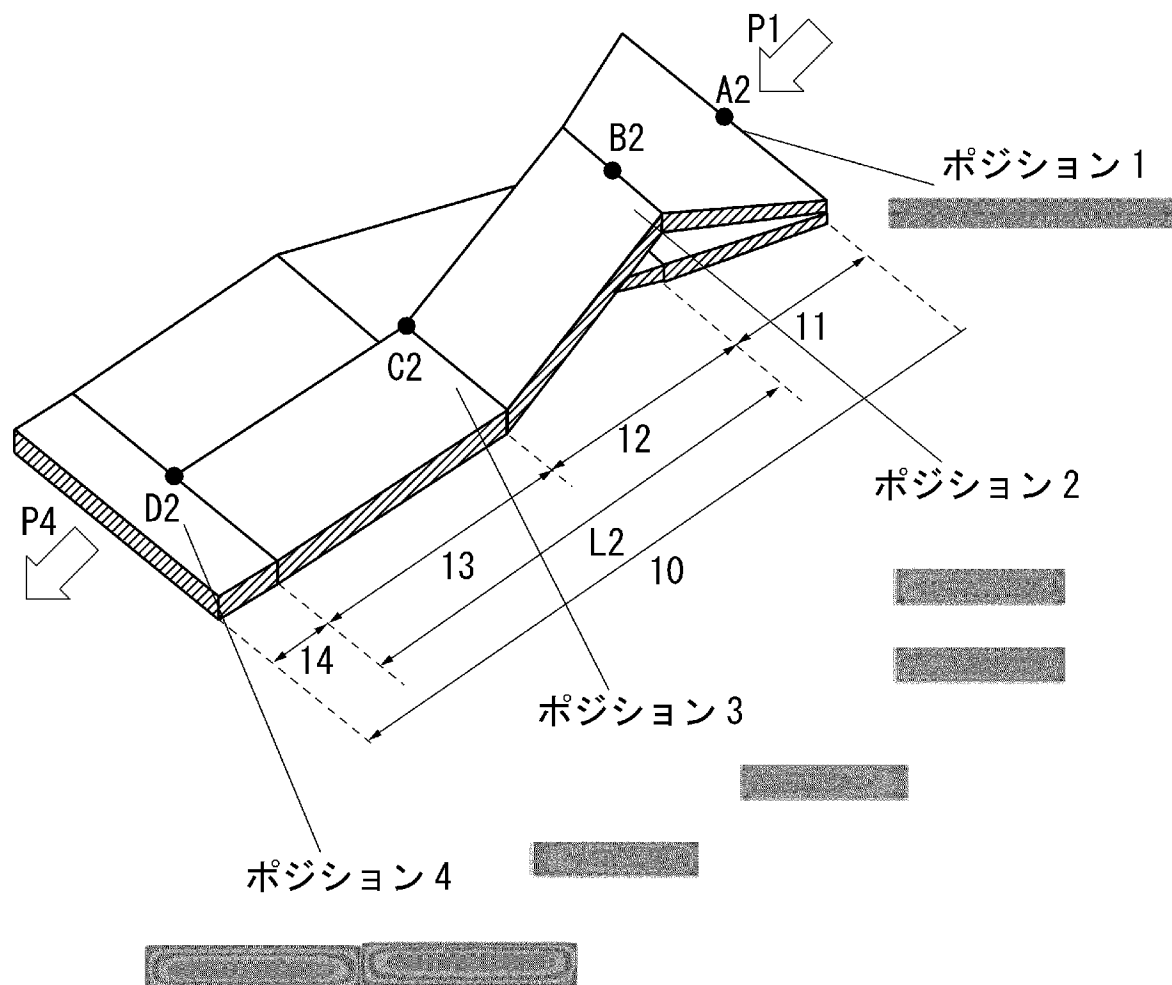
[図7]



[図8]

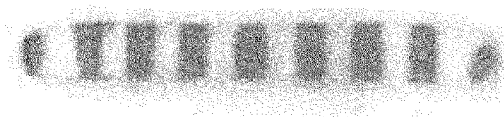


[図9]



[図10]

実施例 2-1



比較例 2-1

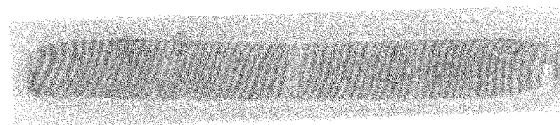


[図11]

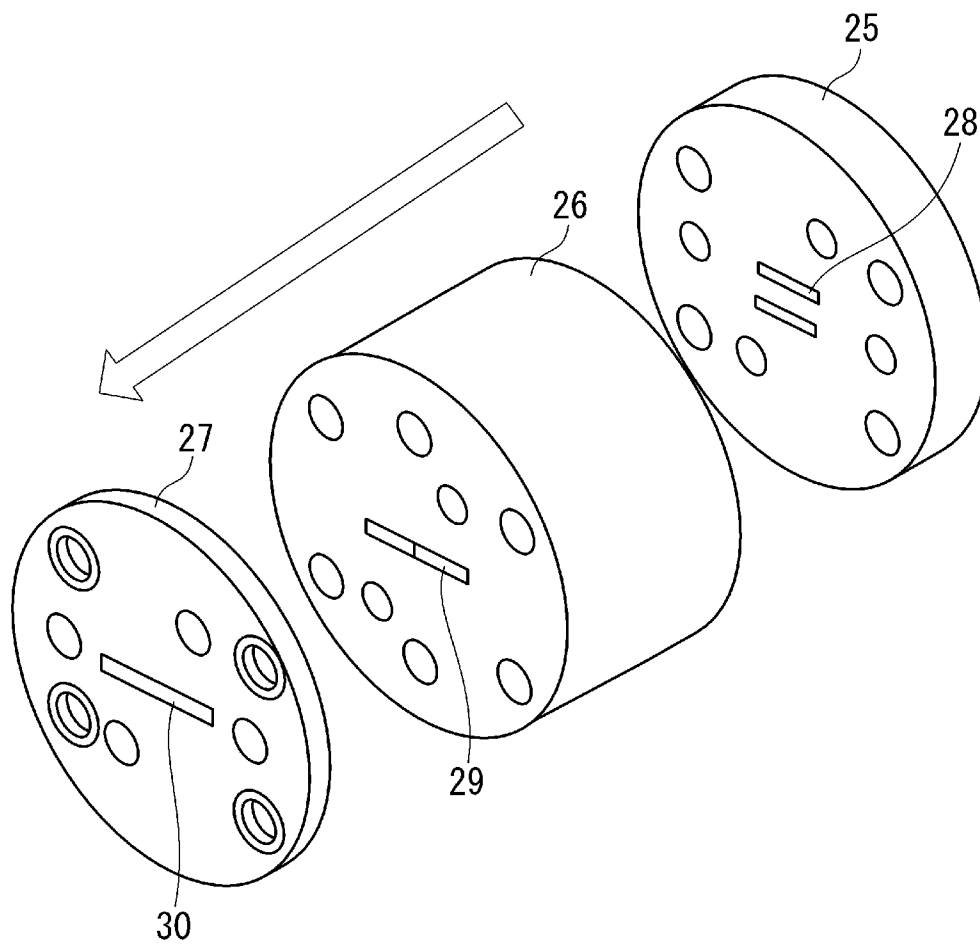
実施例 2-4



比較例 2-4



[図12]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/002711

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B29C47/06(2006.01)i, B29C47/14(2006.01)i, B29L7/00(2006.01)n

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)

B29C47/06, B29C47/14, B29L7/00

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 1996-2011

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2011 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2011

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2010/017271 A1 (UNIVERSITY OF MASSACHUSETTS LOWELL), 11 February 2010 (11.02.2010), entire text (Family: none)	1-16
A	JP 5-502631 A (The Dow Chemical Co.), 13 May 1993 (13.05.1993), entire text & US 5380479 A & US 5540878 A & US 5628950 A & US 5202074 A & EP 506872 A & WO 1991/009719 A1 & DE 69028212 C & AU 7078191 A & CA 2069502 A & AU 657904 B & CA 2069502 A1	1-16



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

27 May, 2011 (27.05.11)

Date of mailing of the international search report

07 June, 2011 (07.06.11)

Name and mailing address of the ISA/

Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/002711

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 2006-326891 A (Teijin DuPont Films Japan Ltd.), 07 December 2006 (07.12.2006), entire text (Family: none)	1-16
A	JP 4-278324 A (The Dow Chemical Co.), 02 October 1992 (02.10.1992), entire text & US 5094788 A & EP 492890 A1 & DE 69112195 C & NO 914568 A & AT 126476 T & CA 2055770 A & MX 9102522 A & FI 915471 A0	1-16
A	JP 2005-349681 A (Toray Industries, Inc.), 22 December 2005 (22.12.2005), entire text (Family: none)	1-16
A	JP 9-286051 A (Maeda Corp.), 04 November 1997 (04.11.1997), entire text & US 5843350 A & EP 802034 A1 & DE 69710510 D & AT 213452 T & CN 1170544 A	1-16

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. B29C47/06(2006.01)i, B29C47/14(2006.01)i, B29L7/00(2006.01)n

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. B29C47/06, B29C47/14, B29L7/00

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 1 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 1 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 1 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*	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	WO 2010/017271 A1 (UNIVERSITY OF MASSACHUSETTS LOWELL) 2010.02.11, 文献全体（ファミリーなし）	1-16
A	JP 5-502631 A（ザ・ダウ・ケミカル・カンパニー）1993.05.13, 文 献全体 & US 5380479 A & US 5540878 A & US 5628950 A & US 5202074 A & EP 506872 A & WO 1991/009719 A1 & DE 69028212 C & AU 7078191 A & CA 2069502 A & AU 657904 B & CA 2069502 A1	1-16

☒ 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

「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

2 7 . 0 5 . 2 0 1 1

国際調査報告の発送日

0 7 . 0 6 . 2 0 1 1

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

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

4 F

9 3 4 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 2006-326891 A (帝人デュポンフィルム株式会社) 2006. 12. 07, 文献全体 (ファミリーなし)	1-16
A	JP 4-278324 A (ザ ダウ ケミカル カンパニー) 1992. 10. 02, 文献全体 & US 5094788 A & EP 492890 A1 & DE 69112195 C & NO 914568 A & AT 126476 T & CA 2055770 A & MX 9102522 A & FI 915471 A0	1-16
A	JP 2005-349681 A (東レ株式会社) 2005. 12. 22, 文献全体 (ファミリーなし)	1-16
A	JP 9-286051 A (前田建設工業株式会社) 1997. 11. 04, 文献全体 & US 5843350 A & EP 802034 A1 & DE 69710510 D & AT 213452 T & CN 1170544 A	1-16