

(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
2017年6月15日(15.06.2017)



(10) 国際公開番号

WO 2017/098870 A1

- (51) 国際特許分類:
C09J 133/04 (2006.01) C09J 143/04 (2006.01)
C09J 7/02 (2006.01) G02B 5/30 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/083901
- (22) 国際出願日: 2016年11月16日(16.11.2016)
- (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 2015-241154 2015年12月10日(10.12.2015) JP
- (71) 出願人: 綜研化学株式会社(SOKEN CHEMICAL & ENGINEERING CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1718531 東京都豊島区高田三丁目2番5号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 黒澤 翔(KUROSAWA, Sho); 〒3501320 埼玉県狭山市広瀬東一丁目1番1号 綜研化学株式会社内 Saitama (JP). 清水 政一(SHIMIZU, Seiichi); 〒3501320 埼玉県狭山市広瀬東一丁目1番1号 綜研化学株式会社内 Saitama (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人 S S I N P A T (SSINPAT PATENT FIRM); 〒1410031 東京都品川区西五反田七丁目1番6号 五反田山崎ビル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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KW, 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), ユーラシア (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))

(54) Title: ADHESIVE COMPOSITION, METHOD FOR PRODUCING SAME, ADHESIVE SHEET, POLARIZING PLATE WITH ADHESIVE LAYER, AND LAMINATE

(54) 発明の名称: 粘着剤組成物およびその製造方法、粘着シート、粘着剤層付き偏光板ならびに積層体

(57) Abstract: [Problem] To provide an adhesive composition which is capable of forming an adhesive layer that exhibits excellent durability under high temperature high humidity conditions. [Solution] An adhesive composition which contains (A) a (meth)acrylic polymer having a glass transition temperature (T_g) of less than 0°C and (B) a (meth)acrylic oligomer having a hydrolyzable silyl group, a weight average molecular weight (M_w) of 500-30,000 and a T_g of 0°C or more.

(57) 要約: [課題] 高温かつ高湿条件下での耐久性に優れる粘着剤層を形成することが可能な粘着剤組成物を提供すること。 [解決手段] ガラス転移温度 (T_g) が0°C未満である (メタ) アクリル系ポリマー (A) と、加水分解性シリル基を有し、重量平均分子量 (M_w) が500~30,000であり、かつT_gが0°C以上である (メタ) アクリル系オリゴマー (B) とを含有する粘着剤組成物。



WO 2017/098870 A1

明 細 書

発明の名称：

粘着剤組成物およびその製造方法、粘着シート、粘着剤層付き偏光板ならびに積層体

技術分野

[0001] 本発明は、粘着剤組成物およびその製造方法、粘着シート、粘着剤層付き偏光板ならびに積層体に関する。

背景技術

[0002] 近年、液晶素子は、車両搭載用、屋外計器用またはパソコン用のディスプレイ、テレビ等への用途が拡大しており、それに伴い使用環境も非常に過酷になってきている。液晶素子は、液晶材料が2枚の基板（例：ガラス板）間に挟まれた構造を有しており、前記基板の表面には粘着剤層を介して偏光板が貼着されている。したがって、前記液晶素子を構成する粘着剤層には、過酷な使用環境に耐え得るよう、高温かつ高湿条件下での耐久性が要求される。

[0003] 粘着剤層の高温かつ高湿条件下での耐久性を向上させるためには、一般的に、シランカップリング剤を粘着剤組成物中に添加する手法が知られている。また、粘着剤層の表面強度を増すことで、高温かつ高湿条件下に置かれた後の粘着剤層のウキや剥がれを防止することが可能となる。粘着剤層の表面強度を増すためには、例えば、高いガラス転移温度（ T_g ）を有するアクリル系オリゴマー（アクリル系タッキファイヤー）を粘着剤層の表面に偏在させる手法が知られている（例えば、特許文献1等）。

[0004] しかしながら、高温かつ高湿条件下での耐久性のさらなる向上を目的として、シランカップリング剤とアクリル系タッキファイヤーとを粘着剤組成物中に添加した場合、アクリル系タッキファイヤーが、シランカップリング剤の効果を阻害し、特にガラス板を被着体としたときに、粘着剤層に十分な湿熱耐久性を付与する事ができないという問題があった。

[0005] 特許文献2には、アクリル系ポリマーと、加水分解性シリル基を有する特定の重合体からなる接着改質剤とを含有する光学用感圧接着剤組成物が開示されている。しかしながら、特許文献2の実施例に開示される重合体の重量平均分子量は55,000～97,000であり、アクリル系ポリマーとの相溶性に問題があった。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開2014-88549号公報

特許文献2：特開2014-37502号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 本発明の課題は、高温かつ高湿条件下での耐久性に優れる粘着剤層を形成することが可能な粘着剤組成物およびその製造方法、ならびに、前記粘着剤層を有する粘着シート、粘着剤層付偏光板および積層体を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明者らは上記課題を解決すべく鋭意検討した。その結果、特定の（メタ）アクリル系ポリマーと特定の（メタ）アクリル系オリゴマーとを含む粘着剤組成物によって、上記課題を解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0009] 本発明は、例えば以下の〔1〕～〔9〕である。

〔1〕 ガラス転移温度（ T_g ）が0℃未満である（メタ）アクリル系ポリマー（A）と、加水分解性シリル基を有し、重量平均分子量（ M_w ）が500～30,000であり、かつ T_g が0℃以上である（メタ）アクリル系オリゴマー（B）とを含有する粘着剤組成物。

[0010] 〔2〕 （メタ）アクリル系オリゴマー（B）の M_w が1,000～20,000である、〔1〕に記載の粘着剤組成物。

- [0011] [3] (メタ)アクリル系オリゴマー(B)が、分子の末端に加水分解性シリル基を有する、[1]または[2]に記載の粘着剤組成物。
- [0012] [4] (メタ)アクリル系オリゴマー(B)が、加水分解性シリル基含有モノマーを含むモノマー成分のオリゴマーである、[1]または[2]に記載の粘着剤組成物。
- [0013] [5] 加水分解性シリル基含有連鎖移動剤の存在下でモノマー成分を重合し、重量平均分子量(M_w)が500～30,000であり、かつガラス転移温度(T_g)が0℃以上である(メタ)アクリル系オリゴマー(B)を製造する工程を含み、T_gが0℃未満である(メタ)アクリル系ポリマー(A)、および、(メタ)アクリル系オリゴマー(B)を含有する粘着剤組成物の製造方法。
- [0014] [6] 加水分解性シリル基含有モノマーを含むモノマー成分を重合し、重量平均分子量(M_w)が500～30,000であり、かつガラス転移温度(T_g)が0℃以上である(メタ)アクリル系オリゴマー(B)を製造する工程を含み、T_gが0℃未満である(メタ)アクリル系ポリマー(A)、および、(メタ)アクリル系オリゴマー(B)を含有する粘着剤組成物の製造方法。
- [0015] [7] [1]～[4]のいずれかに記載の粘着剤組成物より形成された粘着剤層を有する偏光板用粘着シート。
- [0016] [8] 偏光板と、前記偏光板の少なくとも一方の面に、[1]～[4]のいずれかに記載の粘着剤組成物より形成された粘着剤層とを有する粘着剤層付き偏光板。
- [0017] [9] 偏光板と、[1]～[4]のいずれかに記載の粘着剤組成物より形成された粘着剤層と、ガラス基板とが、この順に積層されてなる積層体。

発明の効果

- [0018] 本発明によれば、高温かつ高湿条件下での耐久性に優れる粘着剤層を形成することが可能な粘着剤組成物およびその製造方法、ならびに、前記粘着剤層を有する粘着シート、粘着剤層付偏光板および積層体を提供することがで

きる。

発明を実施するための形態

[0019] 以下、本発明の粘着剤組成物およびその製造方法、粘着シート、粘着剤層付き偏光板ならびに積層体を説明する。

なお、本明細書において、「重合体」とは単独重合体および共重合体を包含する意味で用い、また、「重合」とは単独重合および共重合を包含する意味で用いる。

また、アクリルおよびメタクリルを総称して「(メタ)アクリル」とも記載し、アクリレートおよびメタクリレートを総称して「(メタ)アクリレート」とも記載する。

[0020] 〔粘着剤組成物〕

本発明の粘着剤組成物は、以下に説明する、(メタ)アクリル系ポリマー(A)と、(メタ)アクリル系オリゴマー(B)とを含有する。前記粘着剤組成物は、さらに、架橋剤(C)を含有することが好ましく、必要に応じて添加剤(D)を含有してもよい。

[0021] 〔(メタ)アクリル系ポリマー(A)〕

(メタ)アクリル系ポリマー(A)は、ガラス転移温度(T_g)が 0°C 未満である。

[0022] (メタ)アクリル系ポリマー(A)の T_g は、例えば、実施例に記載の方法で示差走査熱量計により測定することができる。(メタ)アクリル系ポリマー(A)の T_g は、 0°C 未満であり、好ましくは $-80\sim-10^{\circ}\text{C}$ 、より好ましくは $-60\sim-30^{\circ}\text{C}$ である。 T_g が前記範囲内にあると、粘着剤層の被着体に対する密着性の観点から好ましい。また、 T_g が前記下限値以上であると、粘着剤層の凝集力に優れ、耐久性向上の観点から好ましい。

[0023] (メタ)アクリル系ポリマー(A)は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー法(GPC法)により測定される重量平均分子量(M_w)が、ポリスチレン換算値で、好ましくは15万~250万、より好ましくは20万~200万、さらに好ましくは25万~150万である。 M_w が前記範囲内に

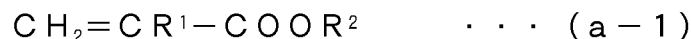
あると、粘着剤組成物に十分な凝集力が付与されるため高温条件下や高温かつ高湿条件下における耐久性向上の観点から好ましい。また、本発明では（メタ）アクリル系オリゴマー（B）の添加により、界面接着力を向上することができるため、一般的な偏光板用粘着剤組成物に用いられるポリマーよりも低い分子量を有するポリマーを用いた場合でも、優れた耐久性を発現することができる。

[0024] また、（メタ）アクリル系ポリマー（A）は、GPC法により測定される M_w/M_n が、好ましくは 1.2 以下、より好ましくは 0.9 以下、さらに好ましくは 0.6 以下である。 M_w/M_n が前記範囲内にあると、耐久性向上の観点から好ましい。

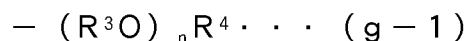
[0025] （メタ）アクリル系ポリマー（A）を形成するモノマー成分としては、以下で説明する（メタ）アクリル酸アルキルエステル、（メタ）アクリル酸アルコキシアルキルエステルおよびアルコキシポリアルキレングリコールモノ（メタ）アクリレートから選ばれる少なくとも 1 種のモノマー（a1）、架橋性基含有モノマー（a2）、その他のモノマー（a3）等が挙げられる。以下、これらを単に「モノマー（a1）～（a3）」ともいう。

[0026] 《（メタ）アクリル酸アルキルエステル、（メタ）アクリル酸アルコキシアルキルエステルおよびアルコキシポリアルキレングリコールモノ（メタ）アクリレートから選ばれる少なくとも 1 種のモノマー（a1）》

[0027] モノマー（a1）は、例えば、式（a-1）で表される。



R^1 は水素原子またはメチル基であり、 R^2 は式（g-1）で表される基である。



R^3 はアルキレン基であり、 R^4 はアルキル基であり、 n は 0 以上の整数である。アルキレン基の炭素数は、好ましくは 1～10、より好ましくは 1～5 である。アルキル基の炭素数は、好ましくは 1～24、より好ましくは 1～10 である。 n は、好ましくは 0～20、より好ましくは 0～4、さらに好

ましくは0～2である。

[0028] (メタ) アクリル酸アルキルエステルとしては、例えば、メチル (メタ) アクリレート、エチル (メタ) アクリレート、*n*-プロピル (メタ) アクリレート、イソプロピル (メタ) アクリレート、*n*-ブチル (メタ) アクリレート、イソブチル (メタ) アクリレート、*tert*-ブチル (メタ) アクリレート、*n*-ペンチル (メタ) アクリレート、*n*-ヘキシル (メタ) アクリレート、*n*-ヘプチル (メタ) アクリレート、2-エチルヘキシル (メタ) アクリレート、*n*-オクチル (メタ) アクリレート、イソオクチル (メタ) アクリレート、*n*-ノニル (メタ) アクリレート、イソノニル (メタ) アクリレート、*n*-デシル (メタ) アクリレート、イソデシル (メタ) アクリレート、ウンデシル (メタ) アクリレート、ラウリル (メタ) アクリレート、ステアリル (メタ) アクリレート、イソステアリル (メタ) アクリレートが挙げられる。

[0029] (メタ) アクリル酸アルコキシアルキルエステルとしては、例えば、メトキシメチル (メタ) アクリレート、2-メトキシエチル (メタ) アクリレート、2-エトキシエチル (メタ) アクリレート、3-メトキシプロピル (メタ) アクリレート、3-エトキシプロピル (メタ) アクリレート、4-メトキシブチル (メタ) アクリレート、4-エトキシブチル (メタ) アクリレートが挙げられる。

[0030] アルコキシポリアルキレングリコールモノ (メタ) アクリレートとしては、例えば、メトキシジエチレングリコールモノ (メタ) アクリレート、メトキシジプロピレングリコールモノ (メタ) アクリレート、エトキシトリエチレングリコールモノ (メタ) アクリレート、エトキシジエチレングリコールモノ (メタ) アクリレート、メトキシトリエチレングリコールモノ (メタ) アクリレートが挙げられる。

[0031] モノマー (a1) は1種単独で用いてもよく、2種以上を用いてもよい。

(メタ) アクリル系ポリマー (A) を形成するために用いられるモノマー成分100質量%中、モノマー (a1) の含有量は、好ましくは50質量%

以上、より好ましくは65質量%以上、さらに好ましくは70～99質量%である。モノマー(a1)の含有量が50質量%以上の場合、得られる粘着剤層の粘着力および凝集力が優れるため好ましい。

[0032] 《架橋性基含有モノマー(a2)》

モノマー(a2)は、架橋性基を少なくとも1つ有するモノマーである。架橋性基としては、例えば、水酸基、カルボキシル基が挙げられる。(メタ)アクリル系ポリマー(A)を構成するモノマー成分として、モノマー(a2)を用いることで、架橋剤(C)によって架橋され得る架橋点を(メタ)アクリル系ポリマー(A)に導入することができる。

[0033] モノマー(a2)としては、例えば、カルボキシル基含有(メタ)アクリレート、エチレン性不飽和カルボン酸、水酸基含有(メタ)アクリル系モノマーが挙げられる。

[0034] カルボキシル基含有(メタ)アクリレートとしては、例えば、(メタ)アクリル酸β-カルボキシエチル、(メタ)アクリル酸5-カルボキシペンチル、コハク酸モノ(メタ)アクリロイルオキシエチルエステル、ω-カルボキシポリカプロラクトンモノ(メタ)アクリレートが挙げられる。

[0035] エチレン性不飽和カルボン酸としては、例えば、(メタ)アクリル酸、クロトン酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、シトラコン酸が挙げられる。

[0036] 水酸基含有(メタ)アクリル系モノマーとしては、例えば、2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート、4-ヒドロキシブチル(メタ)アクリレート、6-ヒドロキシヘキシル(メタ)アクリレート、8-ヒドロキソクチル(メタ)アクリレート等の水酸基含有(メタ)アクリレートが挙げられる。

[0037] モノマー(a2)は1種単独で用いてもよく、2種以上を用いてもよい。

(メタ)アクリル系ポリマー(A)を形成するために用いられるモノマー成分100質量%中、モノマー(a2)の含有量は、後述する架橋剤(C)と適切な架橋構造を形成させる観点から、好ましくは0.1～15質量%、

より好ましくは0.3～10質量%、さらに好ましくは0.5～8質量%である。

[0038] 《その他のモノマー (a3)》

モノマー (a3) は、モノマー (a1) および (a2) 以外のモノマーである。

モノマー (a3) としては、例えば、(メタ) アクリル系モノマー、ビニル基含有モノマーが挙げられる。

[0039] (メタ) アクリル系モノマーとしては、例えば、(メタ) アクリル酸シクロアルキルエステルなどの脂環式基含有 (メタ) アクリル酸エステル、(メタ) アクリル酸アリールエステル、(メタ) アクリル酸アラルキルエステル、(メタ) アクリル酸アリールオキシアルキルエステル、(メタ) アクリル酸アミノアルキルエステルなどのアミノ基含有 (メタ) アクリル酸エステル、グリシジル基含有 (メタ) アクリル系モノマー、イソシアネート基含有 (メタ) アクリル系モノマー、アミド基含有 (メタ) アクリル系モノマー、シアノ基含有 (メタ) アクリル系モノマーが挙げられる。

[0040] 脂環式基含有 (メタ) アクリル酸エステル、(メタ) アクリル酸アリールエステルおよび (メタ) アクリル酸アラルキルエステルとしては、例えば、シクロヘキシル (メタ) アクリレート、4-tert-ブチルシクロヘキシル (メタ) アクリレート、イソボルニル (メタ) アクリレート、フェニル (メタ) アクリレート、ベンジル (メタ) アクリレートが挙げられる。

[0041] (メタ) アクリル酸アリールオキシアルキルエステルとしては、例えば、フェノキシメチル (メタ) アクリレート、2-フェノキシエチル (メタ) アクリレート、2-トリルオキシエチル (メタ) アクリレート、キシリルオキシメチル (メタ) アクリレート、ナフチルオキシメチル (メタ) アクリレートが挙げられる。

[0042] アミノ基含有 (メタ) アクリル酸エステルとしては、例えば、ジメチルアミノエチル (メタ) アクリレート、ジエチルアミノエチル (メタ) アクリレートが挙げられる。

[0043] グリシジル基含有（メタ）アクリル系モノマーおよびイソシアネート基含有（メタ）アクリル系モノマーとしては、例えば、グリシジル（メタ）アクリレート、2-イソシアネートエチル（メタ）アクリレート、が挙げられる。

[0044] アミド基含有（メタ）アクリル系モノマーとしては、例えば、（メタ）アクリルアミド、N-メチル（メタ）アクリルアミド、N-エチル（メタ）アクリルアミド、N-プロピル（メタ）アクリルアミド、N-ヘキシル（メタ）アクリルアミドが挙げられる。

シアノ基含有（メタ）アクリル系モノマーとしては、例えば、アルキルシアノアクリレート、（メタ）アクリロニトリルが挙げられる。

[0045] ビニル基含有モノマーとしては、例えば、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル等のビニルエステル；エチレン、プロピレン、イソブチレン等のオレフィン；塩化ビニル、塩化ビニリデン等のハロゲン化オレフィン；スチレン、 α -メチルスチレン等のスチレン系モノマー；ブタジエン、イソプレン、クロロプレン等のジエン系モノマーが挙げられる。

モノマー（a3）は1種単独で用いてもよく、2種以上を用いてもよい。

[0046] [(メタ)アクリル系オリゴマー(B)]

（メタ）アクリル系オリゴマー（B）は、加水分解性シリル基を有し、 M_w が500～30,000であり、かつ T_g が0℃以上である。

[0047] （メタ）アクリル系オリゴマー（B）は比較的高い T_g を有しているため、前記（B）を含む粘着剤組成物から形成された粘着剤層の表面強度を増すことができ、高温かつ高湿条件下に置かれた後の粘着剤層の被着体からのウキや剥がれを防止することが可能となる。また、加水分解性シリル基により、特にガラス板を被着体としたときの粘着剤層の高温かつ高湿条件下での耐久性を向上させることができる。粘着剤組成物中にシランカップリング剤を添加させる従来の手法と異なり、加水分解性シリル基による耐久性向上の効果が高い T_g を有する重合体によって阻害されることはないため、高温かつ高湿条件下での耐久性に優れた粘着剤層が得られると考えられる。

[0048] また、(メタ)アクリル系オリゴマー(B)は、粘着付与剤として使用することもできる。前記(B)からなる粘着付与剤は、粘着剤組成物に配合することで、高温かつ高湿条件下での耐久性に優れる粘着剤層を形成することができる。

[0049] 前記(B)が有する加水分解性シリル基としては、例えば、式(B-1)で表わされる基が挙げられる。

[0050]
$$* - Si(R^5)_n(O(R^6O)_mR^7)_{3-n} \cdots (B-1)$$

式(B-1)中、 R^5 は炭素数1~12のアルキル基であり、 R^6 は炭素数1~4のアルキレン基であり、 R^7 は炭素数1~12のアルキル基である。 R^5 、 R^6 および R^7 をそれぞれ複数有する場合、これらはそれぞれ同一でもよく、異なってもよい。 n は、0~2の整数であり、 m は、0~4の整数である。 $*$ は結合手を表わす。

[0051] 式(B-1)で表わされる基としては、例えば、トリメトキシシリル基、トリエトキシシリル基、メチルジメトキシシリル基、メチルジエトキシシリル基、トリス(2-メトキシエトキシ)シリル基が挙げられる。

[0052] (メタ)アクリル系オリゴマー(B)は、GPC法により測定される M_w が、ポリスチレン換算値で、500~30,000であり、好ましくは1,000~20,000、より好ましくは1,500~10,000である。 M_w が前記範囲内にあると、(メタ)アクリル系ポリマー(A)との相溶性の観点から好ましい。また、 M_w が前記下限値以上であると十分な高さの T_g が得られやすく、また、 M_w が前記上限値以下であると(メタ)アクリル系ポリマー(A)と相溶しやすく、ヘイズの発生や耐久性の悪化などの不具合を引き起こしにくくなる。 M_w が500未満であると、十分な高さの T_g が得られない。

[0053] また、(メタ)アクリル系オリゴマー(B)は、GPC法により測定される M_w/M_n が、好ましくは7以下、より好ましくは5以下、さらに好ましくは3以下である。 M_w/M_n が前記範囲内にあると、(メタ)アクリル系ポリマー(A)との相溶性および粘着剤層の耐久性向上の観点から好ましい

。

[0054] (メタ) アクリル系オリゴマー (B) の T_g は、例えば、示差走査熱量計により実施例に記載の方法で測定することができる。(メタ) アクリル系オリゴマー (B) の T_g は、0℃以上であり、好ましくは 10～120℃、より好ましくは 20～100℃である。T_g が前記範囲内にあると、粘着剤組成物から得られる粘着剤層が高温かつ高湿条件下での耐久性に優れるため好ましい。

[0055] 本発明の粘着剤組成物において、(メタ) アクリル系オリゴマー (B) の含有量は、上記 (メタ) アクリル系ポリマー (A) 100 質量部に対して、好ましくは 0.5～20 質量部、より好ましくは 1～15 質量部、さらに好ましくは 2～10 質量部である。前記 (B) の含有量が前記下限値以上であると粘着剤層に耐久性向上効果を付与することができ、前記上限値以下であると粘着剤層の白濁化や、粘着剤層の T_g が高くなりすぎて粘着力が低下するといった不具合を生じにくい。

[0056] (メタ) アクリル系オリゴマー (B) としては、例えば、分子の末端に加水分解性シリル基を有する (メタ) アクリル系オリゴマー (B1) (以下「オリゴマー (B1)」ともいう。) と、加水分解性シリル基含有モノマーを含むモノマー成分のオリゴマーである (メタ) アクリル系オリゴマー (B2) (以下「オリゴマー (B2)」ともいう。) とが挙げられる。

[0057] ＜オリゴマー (B1)＞

オリゴマー (B1) は、分子の末端に加水分解性シリル基を有する。

オリゴマー (B1) は、加水分解性シリル基含有連鎖移動剤の存在下でモノマー成分を重合して製造することが好ましい。前記連鎖移動剤を使用することによって、分子の末端に加水分解性シリル基を有するオリゴマー (B1) が得られる。オリゴマー (B1) を含む粘着剤組成物から形成される粘着剤層は、高温かつ高湿条件下での耐久性に非常に優れる。また、前記粘着剤層は、粘着力が良好であり、特に高温かつ高湿条件下に静置後の粘着力が大きい。ため好ましい。

- [0058] オリゴマー（B1）のT_gは0℃以上であることが好ましく、このため、モノマー成分として、ホモポリマーのT_gが0℃以上であるモノマーを少なくとも使用することが好ましい。
- [0059] ホモポリマーのT_gが0℃以上であるモノマーとしては、例えば、T_gが0℃以上の、（メタ）アクリル酸アルキルエステル、（メタ）アクリル酸アルコキシアルキルエステル、脂環式基含有（メタ）アクリル酸エステル、アリール基含有（メタ）アクリル酸エステル、カルボキシル基含有（メタ）アクリレート、エチレン性不飽和カルボン酸、アミノ基含有（メタ）アクリル酸エステル、アミド基含有（メタ）アクリル系モノマー、シアノ基含有（メタ）アクリル系モノマー、ビニル基含有モノマーが挙げられる。
- [0060] 具体的には、メチル（メタ）アクリレート、エチルメタクリレート、*n*-プロピル（メタ）アクリレート、イソプロピルメタクリレート、*n*-ブチルメタクリレート、イソブチルメタクリレート、*tert*-ブチル（メタ）アクリレート、ペンチルアクリレート、テトラデシルアクリレート、ヘキサデシル（メタ）アクリレート等の（メタ）アクリル酸アルキルエステル；エトキシエチルメタクリレート等の（メタ）アクリル酸アルコキシアルキルエステル；シクロヘキシル（メタ）アクリレート、4-*tert*-ブチルシクロヘキシル（メタ）アクリレート、イソボルニル（メタ）アクリレート等の脂環式基含有（メタ）アクリル酸エステル；ベンジル（メタ）アクリレート、2-ナフチルアクリレート、フェノキシエチルメタクリレート等のアリール基含有（メタ）アクリル酸エステル；カルボキシエチルアクリレート等のカルボキシル基含有（メタ）アクリレート；（メタ）アクリル酸、マレイン酸、イタコン酸等のエチレン性不飽和カルボン酸；ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート等のアミノ基含有（メタ）アクリル酸エステル；アクリルアミド、ジメチルアクリルアミド等のアミド基含有（メタ）アクリル系モノマー；アクリロニトリル等のシアノ基含有（メタ）アクリル系モノマー；酢酸ビニル、スチレン等のビニル基含有モノマー等が挙げられる。
- [0061] 中でも、M_wが30,000以下で高いT_gを有するオリゴマー（B）が

得られやすい観点から、脂環式基含有（メタ）アクリル酸エステルが好ましい。

[0062] ホモポリマーの T_g は、Polymer Handbook Fourth Edition (Wiley-Interscience 2003) や、メーカーのカatalogに記載の値を用いることができる。

[0063] ホモポリマーの T_g が 0°C 以上であるモノマーの含有量は、オリゴマー（B1）を形成するために用いられるモノマー成分100質量%中、オリゴマー（B1）の T_g を上記範囲にする観点から、好ましくは10質量%以上、より好ましくは30質量%以上、さらに好ましくは50質量%以上である。

[0064] オリゴマー（B1）を形成するために用いられるモノマー成分としては、上記のホモポリマーの T_g が 0°C 以上であるモノマー以外に、例えば、上述の《（メタ）アクリル酸アルキルエステル、（メタ）アクリル酸アルコキシアルキルエステルおよびアルコキシポリアルキレングリコールモノ（メタ）アクリレートから選ばれる少なくとも1種のモノマー（a1）》、《架橋性基含有モノマー（a2）》および《その他のモノマー（a3）》の欄で挙げたモノマーを使用することもできる。また、＜オリゴマー（B2）＞の欄に記載の加水分解性シリル基含有モノマーを使用することもできる。

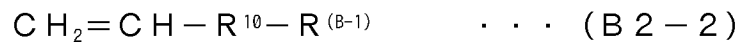
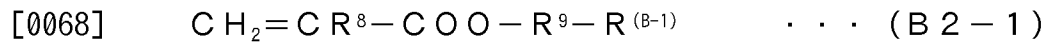
[0065] 加水分解性シリル基含有連鎖移動剤の種類および使用量等については、《（メタ）アクリル系ポリマー（A）および（メタ）アクリル系オリゴマー（B）の製造条件》の欄で後述する。

[0066] ＜オリゴマー（B2）＞

オリゴマー（B2）は、加水分解性シリル基含有モノマーを含むモノマー成分の重合体である。オリゴマー（B2）は、加水分解性シリル基含有モノマーに由来する構造単位を有するため、オリゴマー（B2）を含む粘着剤組成物から形成される粘着剤層は、高温かつ高湿条件下での耐久性が良好である。

[0067] 加水分解性シリル基含有モノマーとしては、例えば、式（B2-1）で表

わされる加水分解性シリル基含有（メタ）アクリル系モノマー、式（B 2 - 2）で表される加水分解性シリル基含有ビニルモノマーが挙げられる。



式（B 2 - 1）中、 R^8 は水素原子またはメチル基であり、 R^9 は炭素数 1 ～ 12 のアルキレン基であり、 $\text{R}^{(B-1)}$ は、前記式（B - 1）で表わされる基である。

[0069] 式（B 2 - 2）中、 R^{10} は直接結合または炭素数 1 ～ 12 のアルキレン基であり、 $\text{R}^{(B-1)}$ は、前記式（B - 1）で表わされる基である。

[0070] 加水分解性シリル基含有（メタ）アクリル系モノマーとしては、例えば、3 - （メタ）アクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、3 - （メタ）アクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、3 - （メタ）アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3 - （メタ）アクリロキシプロピルトリエトキシシラン、3 - （メタ）アクリロキシオクチルトリメトキシシランが挙げられる。

[0071] 加水分解性シリル基含有ビニルモノマーとしては、例えば、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、オクテニルトリメトキシシラン、ビニルトリス（2 - メトキシエトキシ）シランが挙げられる。

加水分解性シリル基含有モノマーは 1 種単独で用いてもよく、2 種以上を用いてもよい。

[0072] 加水分解性シリル基含有モノマーの含有量は、オリゴマー（B 2）を形成するために用いられるモノマー成分 100 質量%中、好ましくは 1 ～ 90 質量%、より好ましくは 3 ～ 50 質量%、さらに好ましくは 4 ～ 30 質量%である。加水分解性シリル基含有モノマーの含有量が前記範囲内であると相溶性および高温かつ高湿条件下での耐久性に優れるため好ましい。

[0073] オリゴマー（B 2）の T_g は 0°C 以上であることが好ましく、このため、モノマー成分として、ホモポリマーの T_g が 0°C 以上であるモノマーを少なくとも使用することが好ましい。

[0074] ホモポリマーのT_gが0℃以上であるモノマーとしては、例えば、＜オリゴマー（B1）＞の欄に記載のモノマーが挙げられる。

[0075] ホモポリマーのT_gが0℃以上であるモノマーの含有量は、オリゴマー（B2）を形成するために用いられるモノマー成分100質量%中、オリゴマー（B2）のT_gを上記範囲内にする観点から、好ましくは10質量%以上、より好ましくは30質量%以上、さらに好ましくは50質量%以上である。

[0076] オリゴマー（B2）を形成するために用いられるモノマー成分としては、上記の加水分解性シリル基含有モノマーおよびホモポリマーのT_gが0℃以上であるモノマー以外に、例えば、上述の《（メタ）アクリル酸アルキルエステル、（メタ）アクリル酸アルコキシアルキルエステルおよびアルコキシポリアルキレングリコールモノ（メタ）アクリレートから選ばれる少なくとも1種のモノマー（a1）》、《架橋性基含有モノマー（a2）》および《その他のモノマー（a3）》の欄で挙げたモノマーを使用することもできる。

[0077] 《（メタ）アクリル系ポリマー（A）および（メタ）アクリル系オリゴマー（B）の製造条件》

（メタ）アクリル系ポリマー（A）および（メタ）アクリル系オリゴマー（B）は、例えば、溶液重合法、塊状重合法、乳化重合法、懸濁重合法等の従来公知の重合法により製造することができ、これらの中でも溶液重合法が好ましい。

[0078] 具体的には、反応容器内にモノマー成分および必要に応じて連鎖移動剤、重合溶媒等を仕込み、例えば、窒素ガス等の不活性ガス雰囲気下で、重合開始剤を添加し、反応開始温度を通常40～100℃、好ましくは50～80℃に設定し、通常50～90℃、好ましくは60～90℃の温度に反応系を維持して、2～20時間反応させる。

[0079] 連鎖移動剤としては、加水分解性シリル基含有連鎖移動剤と、その他の連鎖移動剤とが挙げられる。前記オリゴマー（B1）の製造においては、加水

分解性シリル基含有連鎖移動剤を使用することが好ましい。

[0080] 加水分解性シリル基含有連鎖移動剤は、例えば、式 (B 1-1) で表される。



式 (B 1-1) 中、 R^{11} は炭素数 1 ~ 12 のアルキレン基であり、 $\text{R}^{(B-1)}$ は、前記式 (B-1) で表わされる基である。

式 (B 1-1) で表わされる連鎖移動剤としては、例えば、3-メルカプトプロピルトリメトキシシラン、3-メルカプトプロピルメチルジメトキシシランが挙げられる。

[0081] その他の連鎖移動剤としては、例えば、 n -ドデシルメルカプタン等の単官能性チオール、ペンタエリスリトールテトラキス (3-メルカプトプロピオネート) 等の多官能性チオール、 α -メチルスチレンダイマー (2, 4-ジフェニル-4-メチル-1-ペンテン) 等のスチレンダイマー、キノエクスターが挙げられる。「キノエクスター」は川崎化成工業株式会社の商品名である。

[0082] 連鎖移動剤は、1 種単独で用いてもよく、2 種以上を用いてもよい。

連鎖移動剤は、オリゴマー (B) を形成するために用いられるモノマー成分 100 質量部に対して、好ましくは 0.1 ~ 40 質量部、より好ましくは 1 ~ 20 質量部、さらに好ましくは 5 ~ 15 質量部の範囲内の量で使用される。

[0083] 重合開始剤としては、例えば、アゾ系開始剤、過酸化物系重合開始剤が挙げられる。

アゾ系開始剤としては、例えば、2, 2'-アゾビスイソブチロニトリル、2, 2'-アゾビス (4-メトキシ-2, 4-ジメチルバレロニトリル)、2, 2'-アゾビス (2-シクロプロピルプロピオニトリル)、2, 2'-アゾビス (2, 4-ジメチルバレロニトリル)、2, 2'-アゾビス (2-メチルブチロニトリル)、1, 1'-アゾビス (シクロヘキサン-1-カルボニトリル)、2- (カルバモイルアゾ) イソブチロニトリル、2-フェニルアゾ-

4-メトキシ-2, 4-ジメチルバレロニトリル、2, 2'-アゾビス(2-アミジノプロパン)ジヒドロクロリド、2, 2'-アゾビス(N, N'-ジメチレンイソブチルアミジン)、2, 2'-アゾビス[2-メチル-N-(2-ヒドロキシエチル)-プロピオンアミド]、2, 2'-アゾビス(イソブチルアミド)ジヒドレート、4, 4'-アゾビス(4-シアノペンタン酸)、2, 2'-アゾビス(2-シアノプロパノール)、ジメチル-2, 2'-アゾビス(2-メチルプロピオネート)等のアゾ化合物が挙げられる。

[0084] 過酸化物系重合開始剤としては、例えば、t-ブチルヒドロパーオキシド、クメンヒドロオキシド、ジクミルパーオキシド、ベンゾイルパーオキシド、ラウロイルパーオキシド、カプロイルパーオキシド、ジ-*i*-プロピルパーオキシジカーボネート、ジ-2-エチルヘキシルパーオキシジカーボネート、t-ブチルパーオキシビバレート、2, 2-ビス(4, 4-ジ-t-ブチルパーオキシシクロヘキシル)プロパン、2, 2-ビス(4, 4-ジ-t-アミルパーオキシシクロヘキシル)プロパン、2, 2-ビス(4, 4-ジ-t-オクチルパーオキシシクロヘキシル)プロパン、2, 2-ビス(4, 4-ジ- α -クミルパーオキシシクロヘキシル)プロパン、2, 2-ビス(4, 4-ジ-t-ブチルパーオキシシクロヘキシル)ブタン、2, 2-ビス(4, 4-ジ-t-オクチルパーオキシシクロヘキシル)ブタンが挙げられる。

[0085] 重合開始剤は1種単独で用いてもよく、2種以上を用いてもよい。

(メタ)アクリル系ポリマー(A)の製造においては、重合開始剤は、前記(A)を形成するために用いられるモノマー成分100質量部に対して、通常0.001~5質量部、好ましくは0.005~3質量部の範囲内の量で使用される。

(メタ)アクリル系オリゴマー(B)の製造においては、重合開始剤は、前記(B)を形成するために用いられるモノマー成分100質量部に対して、好ましくは0.1~2.0質量部、より好ましくは0.2~1.0質量部の範囲内の量で使用される。

[0086] 溶液重合に用いる重合溶媒としては、例えば、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；*n*-ペンタン、*n*-ヘキサン、*n*-ヘプタン、*n*-オクタン等の脂肪族炭化水素；シクロペンタン、シクロヘキサン、シクロヘプタン、シクロオクタン等の脂環式炭化水素；ジエチルエーテル、ジイソプロピルエーテル、1, 2-ジメトキシエタン、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、アニソール、フェニルエチルエーテル、ジフェニルエーテル等のエーテル；クロロホルム、四塩化炭素、1, 2-ジクロロエタン、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素；酢酸エチル、酢酸プロピル、酢酸ブチル、プロピオン酸メチル等のエステル；アセトン、メチルエチルケトン、ジエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン；*N*, *N*-ジメチルホルムアミド、*N*, *N*-ジメチルアセタミド、*N*-メチルピロリドン等のアミド；アセトニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル；ジメチルスルホキシド、スルホラン等のスルホキシド等が挙げられる。

[0087] 重合溶媒は1種単独で用いてもよく、2種以上を用いてもよい。

また、重合反応中に、重合開始剤、連鎖移動剤、モノマー成分、重合溶媒を適宜追加添加してもよい。

[0088] 〔架橋剤（C）〕

本発明の粘着剤組成物は、架橋剤（C）を含有することが好ましい。架橋剤（C）は（メタ）アクリル系ポリマー（A）に導入され得る架橋性基によって適宜選択され、例えば、イソシアネート化合物、エポキシ化合物、金属キレート化合物を用いることができる。

[0089] 架橋剤（C）により、（メタ）アクリル系ポリマー（A）を架橋することで、架橋体（ネットワークポリマー）を形成することができ、耐熱性に優れた粘着剤層を得ることができる。

架橋剤（C）は1種単独で用いてもよく、2種以上を用いてもよい。

[0090] 本発明の粘着剤組成物において、架橋剤（C）の含有量は、上記（メタ）アクリル系ポリマー（A）100質量部に対して、好ましくは0.1～20

質量部、より好ましくは0.1～1.2質量部、さらに好ましくは0.2～4質量部である。

[0091] イソシアネート化合物としては、1分子中のイソシアネート基数が2以上のイソシアネート化合物が通常用いられ、好ましくは2～8であり、より好ましくは3～6である。イソシアネート基数が前記範囲にあると、(メタ)アクリル系ポリマー(A)とイソシアネート化合物との架橋反応効率の点、および、粘着剤層の柔軟性を保つ点で好ましい。

[0092] 1分子中のイソシアネート基数が2のジイソシアネート化合物としては、例えば、脂肪族ジイソシアネート、脂環族ジイソシアネート、芳香族ジイソシアネートが挙げられる。脂肪族ジイソシアネートとしては、エチレンジイソシアネート、テトラメチレンジイソシアネート、ペンタメチレンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、2-メチル-1,5-ペンタレンジイソシアネート、3-メチル-1,5-ペンタレンジイソシアネート、2,2,4-トリメチル-1,6-ヘキサメチレンジイソシアネート等の炭素数4～30の脂肪族ジイソシアネートが挙げられる。脂環族ジイソシアネートとしては、イソホロレンジイソシアネート、シクロペンチルジイソシアネート、シクロヘキシルジイソシアネート、水素添加キシリレンジイソシアネート、水素添加トリレンジイソシアネート、水素添加ジフェニルメタンジイソシアネート、水素添加テトラメチルキシレンジイソシアネート等の炭素数7～30の脂環族ジイソシアネートが挙げられる。芳香族ジイソシアネートとしては、例えば、フェレンジイソシアネート、トリレンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、ナフチレンジイソシアネート、ジフェニルエーテルジイソシアネート、ジフェニルメタンジイソシアネート、ジフェニルプロパンジイソシアネート等の炭素数8～30の芳香族ジイソシアネートが挙げられる。

[0093] 1分子中のイソシアネート基数が3以上のイソシアネート化合物としては、例えば、芳香族ポリイソシアネート、脂肪族ポリイソシアネート、脂環族ポリイソシアネートが挙げられる。具体的には、2,4,6-トリイソシア

ネートトルエン、1, 3, 5-トリイソシアネートベンゼン、4, 4', 4''-トリフェニルメタントリイソシアネートが挙げられる。

[0094] また、イソシアネート化合物としては、例えば、イソシアネート基数が2または3以上の上記イソシアネート化合物の、多量体（例えば2量体または3量体、ビウレット体、イソシアヌレート体）、誘導体（例えば、多価アルコールと2分子以上のジイソシアネート化合物との付加反応生成物）、重合物が挙げられる。前記誘導体における多価アルコールとしては、低分子量多価アルコールとして、例えば、トリメチロールプロパン、グリセリン、ペンタエリトリール等の3価以上のアルコールが挙げられ；高分子量多価アルコールとして、例えば、ポリエーテルポリオール、ポリエステルポリオール、アクリルポリオール、ポリブタジエンポリオール、ポリイソプレンポリオールが挙げられる。

[0095] このようなイソシアネート化合物としては、例えば、ジフェニルメタンジイソシアネートの3量体、ポリメチレンポリフェニルポリイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネートまたはトリレンジイソシアネートのビウレット体またはイソシアヌレート体、トリメチロールプロパンとトリレンジイソシアネートまたはキシリレンジイソシアネートとの反応生成物（例えばトリレンジイソシアネートまたはキシリレンジイソシアネートの3分子付加物）、トリメチロールプロパンとヘキサメチレンジイソシアネートとの反応生成物（例えばヘキサメチレンジイソシアネートの3分子付加物）、ポリエーテルポリイソシアネート、ポリエステルポリイソシアネートが挙げられる。

[0096] イソシアネート化合物の中でも、難黄変性の点で、キシリレンジイソシアネート系およびトリレンジイソシアネート系の架橋剤が好ましい。

[0097] エポキシ化合物としては、分子中に2個以上のエポキシ基を有する化合物が挙げられ、例えば、エチレングリコールジグリシジルエーテル、ポリエチレングリコールジグリシジルエーテル、グリセリンジグリシジルエーテル、グリセリントリグリシジルエーテル、1, 6-ヘキサジオールジグリシジルエーテル、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル、ジグリシジ

ルアニリン、ジアミングリシジルアミン、N，N，N'，N'－テトラグリシジル－m－キシリレンジアミン、1，3－ビス（N，N'－ジアミングリシジルアミノメチル）が挙げられる。

[0098] 金属キレート化合物としては、例えば、アルミニウム、鉄、銅、亜鉛、スズ、チタン、ニッケル、アンチモン、マグネシウム、バナジウム、クロム、ジルコニウム等の多価金属に、アルコキシド、アセチルアセトン、アセト酢酸エチル等が配位した化合物が挙げられる。具体的には、アルミニウムイソプロピレート、アルミニウムセカンダリーブチレート、アルミニウムエチルアセトアセテート・ジイソプロピレート、アルミニウムトリスエチルアセトアセテート、アルミニウムトリスアセチルアセトネートが挙げられる。

[0099] 〔添加剤（D）〕

本発明の粘着剤組成物は、上記成分のほか、本発明の効果を損なわない範囲で、シランカップリング剤、帯電防止剤、酸化防止剤、光安定剤、金属腐食防止剤、前記（B）以外の粘着付与剤、可塑剤、架橋促進剤、界面活性剤、前記（A）および（B）以外の（メタ）アクリル系ポリマーおよびリワーク剤から選択される1種または2種以上の添加剤を含有してもよい。

[0100] 〔有機溶媒（E）〕

本発明の粘着剤組成物は、その塗布性を調整するため、有機溶媒（E）を含有することが好ましい。有機溶媒（E）としては、例えば、《（メタ）アクリル系ポリマー（A）および（メタ）アクリル系オリゴマー（B）の製造条件》の欄で説明した重合溶媒が挙げられる。本発明の粘着剤組成物において、有機溶媒の含有量は、通常30～90質量%、好ましくは40～90質量%である。

[0101] なお、本明細書において「固形分」とは、粘着剤組成物中の含有成分のうち上記有機溶媒（E）を除いた全成分をいい、「固形分濃度」とは、粘着剤組成物100質量%に対する前記固形分の割合をいう。

本発明の粘着剤組成物において、（メタ）アクリル系ポリマー（A）および（メタ）アクリル系オリゴマー（B）の合計量は、固形分100質量%中

、通常80質量%以上、好ましくは90質量%以上、より好ましくは95質量%以上である。前記合計量の上限値は、架橋剤（C）等の他の成分の量によって適宜決定することができる。

[0102] 〔粘着剤組成物の調製〕

本発明の粘着剤組成物は、例えば、（メタ）アクリル系ポリマー（A）と、（メタ）アクリル系オリゴマー（B）と、必要に応じて他の成分とを、従来公知の方法により混合することで調製することができる。例えば、（メタ）アクリル系ポリマー（A）を合成する際に得られた（メタ）アクリル系ポリマー（A）を含む溶液と、（メタ）アクリル系オリゴマー（B）を合成する際に得られた（メタ）アクリル系オリゴマー（B）を含む溶液と、必要に応じて他の成分とを混合することにより粘着剤組成物を調製することができる。

[0103] また、（メタ）アクリル系オリゴマー（B）を含む溶液に、（メタ）アクリル系ポリマー（A）を形成するモノマー成分を添加し、重合反応を行い、必要に応じて他の成分を添加することにより粘着剤組成物を調製することもできる。

[0104] 〔粘着剤層〕

粘着剤層は、上述の粘着剤組成物から形成される。例えば、上述の粘着剤組成物中の架橋反応を進めることにより、具体的には（メタ）アクリル系ポリマー（A）を架橋剤（C）で架橋することにより、前記粘着剤層が得られる。

[0105] 粘着剤層の形成条件は、例えば以下のとおりである。本発明の粘着剤組成物を支持体上に塗布し、溶媒の種類によっても異なるが、通常50～150℃、好ましくは60～100℃で、通常1～10分間、好ましくは2～7分間乾燥して溶媒を除去し、塗膜を形成する。乾燥塗膜の膜厚は、通常5～75μm、好ましくは10～50μmである。

[0106] 粘着剤層は、以下の条件で形成することが好ましい。本発明の粘着剤組成物を支持体上に塗布し、上記条件で形成された塗膜上にカバーフィルムを貼

付した後、通常3日以上、好ましくは7～10日間、通常5～60℃、好ましくは15～40℃、通常30～70%RH、好ましくは40～70%RHの環境下で養生する。上記のような熟成条件で架橋を行うと、効率よく架橋体（ネットワークポリマー）の形成が可能である。

[0107] 粘着剤組成物の塗布方法としては、公知の方法、例えばスピンコート法、ナイフコート法、ロールコート法、バーコート法、ブレードコート法、ダイコート法、グラビアコート法により、所定の厚さになるように塗布・乾燥する方法を用いることができる。

[0108] 支持体およびカバーフィルムとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）等のポリエステルフィルム；ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-酢酸ビニル共重合体等のポリオレフィンフィルムなどのプラスチックフィルムが挙げられる。

[0109] 本発明の粘着剤組成物より形成された粘着剤層は、偏光板の歪み抑制、凝集力、接着力、再剥離性の観点から、ゲル分率が、好ましくは60～100質量%、より好ましくは65～95質量%、さらに好ましくは70～90質量%である。

本発明の粘着剤組成物から形成される粘着剤層は、高温かつ高湿条件下での耐久性に優れる。

[0110] 〔偏光板用粘着シート〕

本発明の偏光板用粘着シートは、上述の粘着剤組成物より形成された粘着剤層を有する。粘着シートとしては、例えば、上記粘着剤層のみを有する両面粘着シート、基材と、基材の両面に形成された上記粘着剤層とを有する両面粘着シート、基材と、基材の一方の面に形成された上記粘着剤層を有する片面粘着シート、およびそれら粘着シートの粘着剤層の基材と接していない面に剥離処理されたカバーフィルムが貼付された粘着シートが挙げられる。

[0111] 基材およびカバーフィルムとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）等のポリエステルフィルム；ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-酢酸ビニル共重合体等のポリオレフィンフィルムなどのプラスチ

ックフィルムが挙げられる。

[0112] 粘着剤層の形成条件やゲル分率は、〔粘着剤層〕の欄に記載した条件と同様である。

粘着剤層の膜厚は、粘着性能維持の観点から、通常5～75 μm 、好ましくは10～50 μm である。基材およびカバーフィルムの膜厚は、特に限定されないが、通常10～125 μm 、好ましくは25～75 μm である。

[0113] 〔粘着剤層付き偏光板および積層体〕

粘着剤層付き偏光板は、偏光板と、前記偏光板の少なくとも一方の面に、本発明の粘着剤組成物より形成された粘着剤層とを有する。なお、本明細書では、「偏光板」は「偏光フィルム」を包含する意味で用いる。

[0114] 偏光板としては、従来公知の偏光板を使用することができ、例えば、偏光子と、前記偏光子の片面または両面上に配置された偏光子保護膜とを有する偏光板が挙げられる。

[0115] 偏光子としては、例えば、ポリビニルアルコール系樹脂からなるフィルムに偏光成分を含有させて延伸することにより得られる延伸フィルムが挙げられる。ポリビニルアルコール系樹脂としては、例えば、ポリビニルアルコール、ポリビニルホルマール、ポリビニルアセタール、エチレン・酢酸ビニル共重合体の鹼化物が挙げられる。偏光成分としては、例えば、ヨウ素または二色性染料が挙げられる。

[0116] 偏光子保護膜としては、例えば、トリアセチルセルロース、ジアセチルセルロース等のセルロースからなるフィルム、ポリカーボネートフィルム、ポリエーテルスルホンフィルムが挙げられる。本発明では、偏光子保護膜としてセルロースフィルムを用い、当該セルロースフィルムに粘着剤層が接して形成された場合においても、長期信頼性、具体的には耐湿熱性に優れる。

[0117] 偏光板の厚さは、好ましくは30～250 μm 、より好ましくは50～200 μm である。

偏光板表面に粘着剤層を形成する方法に特に制限はなく、偏光板表面に直接バーコーター等を用いて上記粘着剤組成物を塗布し乾燥および熟成させる

方法、本発明の偏光板用粘着シートが有する粘着剤層を偏光板表面に転写し熟成させる方法が挙げられる。乾燥および熟成の条件やゲル分率等は、〔粘着剤層〕の欄に記載した条件と同様である。

[0118] 偏光板上に形成される粘着剤層の厚さは、乾燥膜厚で好ましくは $5 \sim 75 \mu\text{m}$ 、より好ましくは $10 \sim 50 \mu\text{m}$ である。なお、粘着剤層は、偏光板の少なくとも一方の面に形成されていればよく、偏光板の片面のみに粘着剤層が形成される態様、偏光板の両面に粘着剤層が形成される態様が挙げられる。

[0119] また、上記偏光板には、例えば、防眩層、位相差層、視野角向上層等の他の機能を有する層が積層されていてもよい。

上記のようにして得られる本発明の粘着剤層付き偏光板を液晶セルの基板表面に設けることにより液晶素子が製造される。ここで液晶セルは、液晶層が2枚の基板間に挟まれた構造を有している。

[0120] 偏光板と、本発明の粘着剤組成物より形成された粘着剤層と、ガラス基板とが、この順に積層されてなる積層体を製造することもできる。

液晶セルが有する基板としては、例えば、アルカリガラス板等のガラス板が挙げられる。基板の厚さとしては、好ましくは 5 mm 以下、より好ましくは $0.05 \sim 2 \text{ mm}$ である。

実施例

[0121] 以下、本発明を実施例に基づいて更に具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されない。以下の実施例等の記載において、特に言及しない限り、「部」は「質量部」を示す。

[0122] 物性の測定方法は、以下のとおりである。

〔GPC〕

(メタ)アクリル系ポリマーおよび(メタ)アクリル系オリゴマーについて、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー法(GPC法)により、下記条件で重量平均分子量(M_w)および数平均分子量(M_n)を求めた。

・測定装置：HLC-8320GPC(東ソー(株)製)

- ・ GPCカラム構成：以下の4連カラム（すべて東ソー（株）製）
 - (1) TSK gel HxL-H（ガードカラム）
 - (2) TSK gel GMHxL
 - (3) TSK gel GMHxL
 - (4) TSK gel G2500HxL
- ・ 流速：1.0 mL/min
- ・ カラム温度：40℃
- ・ サンプル濃度：1.5% (w/v)（テトラヒドロフランで希釈）
- ・ 移動相溶媒：テトラヒドロフラン
- ・ 標準ポリスチレン換算

[0123] 〔ガラス転移温度 (T_g)〕

（メタ）アクリル系ポリマーまたは（メタ）アクリル系オリゴマーを簡易密閉パンに封入し、示差走査熱量計（DSC）を用いて、測定を行った。測定は、窒素気流下、-100℃から200℃まで10℃/min. で昇温して熱変化を測定して、「吸発熱量」と「温度」とのグラフを描き、このとき観測される特徴的な変曲をT_gとした。なお、T_gは、DSC曲線からミッドポイント法によって得た値を使用した。

[0124] 〔合成例A-1〕

攪拌装置、窒素ガス導入管、温度計および還流冷却管を備えたフラスコに、n-ブチルアクリレート95部、2-ヒドロキシエチルアクリレート4部、アクリル酸1部、メチルエチルケトン80部および酢酸エチル25部を仕込み、フラスコ内に窒素ガスを導入しながらフラスコの内容物を70℃に加熱した。次いで、2, 2'-アゾビスイソブチロニトリル（以下「AIBN」ともいう。）0.05部を攪拌下フラスコ内に添加した。フラスコ内の内容物の温度が70℃に維持できるように、加熱および冷却を2時間半行った。温度を80℃に昇温した後、2時間還流反応を行い、（メタ）アクリル系ポリマー（A-1）を得た。反応終了後、メチルエチルケトンおよび酢酸エチルの混合液（80部：25部）にて希釈し、（メタ）アクリル系ポリマー（

A-1)を含む、固形分濃度45質量%のポリマー溶液を調製した。得られた(A-1)についてGPCにより測定したMwは30万、分散指数(Mw/Mn)は3.6であった。また、Tgは-50℃であった。

[0125] [合成例B-1]

攪拌装置、窒素ガス導入管、温度計および還流冷却管を備えたフラスコに、イソボルニルメタクリレート100部、3-メルカプトプロピルトリメトキシシラン(信越化学工業社製、商品名:KBM-803)10部および酢酸エチル200部を仕込みフラスコ内に窒素ガスを導入しながらフラスコの内容物を75℃に加熱した。

[0126] 十分にフラスコ内の窒素ガス置換を行った後、AIBNO.2部を攪拌下フラスコ内に添加した。30分後、AIBNO.2部を更に添加し、80℃に昇温した。更に30分後、AIBNO.2部を添加し4時間還流反応を行い(メタ)アクリル系オリゴマー(B-1)を得た。反応終了後、酢酸エチルにて希釈し、(メタ)アクリル系オリゴマー(B-1)を含む、固形分濃度35質量%のオリゴマー溶液を調製した。得られた(B-1)についてGPCにより測定したMwは3,000、Mw/Mnは1.7であった。また、Tgは60℃であった。

[0127] [合成例B-2～B-10]

表1に示す通りの原料を使用した以外は、合成例B-1と同様の方法で(メタ)アクリル系オリゴマー(B-2)～(B-10)を製造した。

[0128]

[表1]

[表1]		合成例 B-1	合成例 B-2	合成例 B-3	合成例 B-4	合成例 B-5	合成例 B-6	合成例 B-7	合成例 B-8	合成例 B-9	合成例 B-10
モノマー 成分	n-ブチルアクリレート						100	100			
	イソボルニルメタクリレート	100			100	100				100	100
	イソボルニルアクリレート		100								
	メタクリル酸4-tert-ブチルシクロヘキシル			100							
	KBM-503				5	10		10			
連鎖移動剤	KBM-803	10	10	10			10				0.4
	n-ドデシルメルカプタン				10	10		10	10	10	
物性	Mw	3000	3200	3700	3000	3000	5000	4800	5100	3100	31000
	Mw/Mn	1.7	1.9	1.6	1.6	1.6	2.1	2.0	2.1	1.6	2.2
	ガラス転移温度 (°C)	60	23	36	27	22	-71	-69	-75	21	135

*モノマー成分および連鎖移動剤の数値は、質量部を表わす。

KBM-503: 3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン(信越化学工業社製、商品名)
KBM-803: 3-メルカプトプロピルトリメトキシシラン(信越化学工業社製、商品名)

[0129] 〔実施例 1〕

(1) 粘着剤組成物の調製

合成例 A-1 で得られたポリマー溶液（固形分濃度 45 質量％）と、合成例 B-1 で得られたオリゴマー溶液（固形分濃度 35 質量％）と、架橋剤として TD-75（綜研化学社製：キシレンジイソシアネート系架橋剤、固形分濃度 75 質量％）とを、それぞれ固形分比が、（A-1）100 部、（B-1）4 部、（TD-75）0.8 部となる量で混合して、粘着剤組成物を得た。

[0130] (2) 粘着剤付き偏光板の作製

剥離処理されたポリエチレンテレフタレートフィルム（PET フィルム）上に、上記（1）で得られた粘着剤組成物を、泡抜け後、ドクターブレードを用いて液温 25℃ で塗布し、90℃ で 3 分間乾燥して、乾燥膜厚 20 μm の塗膜を有する粘着シートを得た。前記シートと偏光板（厚さ：110 μm、層構成：トリアセチルセルロースフィルム／ポリビニルアルコールフィルム／トリアセチルセルロースフィルム）とを、前記塗膜と偏光板とが接するように貼り合わせ、23℃／50%RH の条件で 7 日間静置して熟成させて、PET フィルムと厚さ 20 μm の粘着剤層と偏光板とを有する粘着剤層付き偏光板を得た。

[0131] 〔実施例 2～5 および比較例 1～6〕

実施例 1 において、配合組成を表 2 に記載したとおりに変更したこと以外は実施例 1 と同様にして、粘着剤組成物、粘着シートおよび粘着剤層付き偏光板を得た。

[0132] 〔評価〕〔外観〕

実施例および比較例で得られた粘着剤層付き偏光板の粘着剤層の外観を、以下の基準で目視観察して評価した。

AA：白濁および異物が確認されなかった

CC：白濁または異物が確認された

[0133] 〔耐久性試験〕

実施例および比較例で得られた粘着剤層付き偏光板（PETフィルム／粘着剤層／偏光板からなる積層体）を150mm×250mmの大きさに裁断して試験片を作成した。試験片からPETフィルムを剥離し、ラミネーターロールを用いて、粘着剤層／偏光板からなる積層体を厚さ2mmのアルカリガラス板の片面に、粘着剤層とアルカリガラス板とが接するように貼着した。得られた積層体を、50℃／5気圧に調整されたオートクレーブ中に20分間保持して、試験板を作成した。前記試験板を、60℃／90％RHの環境下に500時間放置した。前記試験板の粘着剤層からの発泡、前記試験板の亀裂、粘着剤層の剥がれ等の外観欠陥を以下の基準で目視観察して評価した。

[0134] （基準）

- ・ AA：外観欠陥発生面積0％
- ・ BB：外観欠陥発生面積0％を超えて3％未満
- ・ CC：外観欠陥発生面積3％以上5％未満
- ・ DD：外観欠陥発生面積5％以上

[0135] 〔粘着力試験〕

実施例および比較例で得られた粘着剤層付き偏光板（PETフィルム／粘着剤層／偏光板からなる積層体）を25mm×70mmの大きさに裁断して試験片を作成した。試験片からPETフィルムを剥離し、ラミネーターロールを用いて、粘着剤層／偏光板からなる積層体を厚さ2mmのアルカリガラス板の片面に、粘着剤層とアルカリガラス板とが接するように貼着した。得られた積層体を、50℃／5気圧に調整されたオートクレーブ中に20分間保持して、試験板を作成した。同様の試験板を各粘着剤層付き偏光板につき2枚ずつ作成した。

[0136] 一方の試験板を23℃／50％RH雰囲気下で30分静置した。その後、引張試験器にて剥離速度300mm／min、90°剥離にて剥離試験を行い、得られた接着力数値を初期粘着力とした。

[0137] もう一方の試験板を60℃／95％RH雰囲気下で100時間保管してから23℃／50％RH雰囲気下に48時間静置した。その後、引張試験器にて剥離速度300mm／min、90°剥離にて剥離試験を行い、得られた接着力数値を耐湿熱後粘着力とした。

[0138]

[表2]

[表2]		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6
粘着剤組成物	(メタ)アクリル系ポリマー	A-1	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
		B-1	4									
		B-2		4								
		B-3			4							
		B-4			4							
	(メタ)アクリル系オリゴマー	B-5				4						
		B-6					4					
		B-7						4				
		B-8							4			
		B-9								4		
架橋剤	TD-75	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8
	A-50								0.2	0.2		0.2
外観		AA	AA	AA	AA	AA	AA	AA	AA	AA	CC	AA
評価	粘着力試験	初期(N/25mm)	6.3	5.3	7.8	8.0	3.8	5.8	5.9	5.5	-	5.8
	耐久性試験	耐湿熱後(N/25mm)	10.1	10.0	6.0	6.2	0.1	7.4	8.7	6.9	-	6.9
* 粘着剤組成物の数値は、質量部を表わす。評価の「-」は未測定を表わす。		AA	AA	AA	BB	BB	DD	DD	CC	DD	-	CC

TD-75: キシレンジイソシアネート系架橋剤(綜研化学社製、商品名)
A-50: シランカップリング(SiC)剤(綜研化学社製、商品名)

[0139] 表 2 に記載の各成分は以下に示すとおりである。

T D - 7 5 : キシレンジイソシアネート系架橋剤

(綜研化学社製、商品名)

A - 5 0 : シランカップリング (SiC) 剤 (綜研化学社製、商品名)

請求の範囲

- [請求項1] ガラス転移温度（ T_g ）が 0°C 未満である（メタ）アクリル系ポリマー（A）と、
- 加水分解性シリル基を有し、重量平均分子量（ M_w ）が $500\sim 30,000$ であり、かつ T_g が 0°C 以上である（メタ）アクリル系オリゴマー（B）と
- を含有する粘着剤組成物。
- [請求項2] （メタ）アクリル系オリゴマー（B）の M_w が $1,000\sim 20,000$ である、請求項1に記載の粘着剤組成物。
- [請求項3] （メタ）アクリル系オリゴマー（B）が、分子の末端に加水分解性シリル基を有する、請求項1または2に記載の粘着剤組成物。
- [請求項4] （メタ）アクリル系オリゴマー（B）が、加水分解性シリル基含有モノマーを含むモノマー成分のオリゴマーである、請求項1または2に記載の粘着剤組成物。
- [請求項5] 加水分解性シリル基含有連鎖移動剤の存在下でモノマー成分を重合し、重量平均分子量（ M_w ）が $500\sim 30,000$ であり、かつガラス転移温度（ T_g ）が 0°C 以上である（メタ）アクリル系オリゴマー（B）を製造する工程を含み、
- T_g が 0°C 未満である（メタ）アクリル系ポリマー（A）、および、（メタ）アクリル系オリゴマー（B）を含有する粘着剤組成物の製造方法。
- [請求項6] 加水分解性シリル基含有モノマーを含むモノマー成分を重合し、重量平均分子量（ M_w ）が $500\sim 30,000$ であり、かつガラス転移温度（ T_g ）が 0°C 以上である（メタ）アクリル系オリゴマー（B）を製造する工程を含み、
- T_g が 0°C 未満である（メタ）アクリル系ポリマー（A）、および、（メタ）アクリル系オリゴマー（B）を含有する粘着剤組成物の製造方法。

- [請求項7] 請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載の粘着剤組成物より形成された粘着剤層を有する偏光板用粘着シート。
- [請求項8] 偏光板と、前記偏光板の少なくとも一方の面に、請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載の粘着剤組成物より形成された粘着剤層とを有する粘着剤層付き偏光板。
- [請求項9] 偏光板と、請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載の粘着剤組成物より形成された粘着剤層と、ガラス基板とが、この順に積層されてなる積層体。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/083901

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C09J133/04(2006.01)i, C09J7/02(2006.01)i, C09J143/04(2006.01)i, G02B5/30(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C09J1/00-201/10, G02B5/30

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

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 06-192642 A (Mitsui Toatsu Chemicals, Inc.), 12 July 1994 (12.07.1994), examples 2, 5; claims (Family: none)	1-2, 4, 6 3, 5, 7-9
A	JP 2008-101168 A (Saiden Chemical Industry Co., Ltd.), 01 May 2008 (01.05.2008), claims; examples (Family: none)	1-9
A	JP 05-230428 A (Nitto Denko Corp.), 07 September 1993 (07.09.1993), claims; examples (Family: none)	1-9

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
11 January 2017 (11.01.17)

Date of mailing of the international search report
24 January 2017 (24.01.17)

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/JP2016/083901

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 2005-082750 A (Cemedine Co., Ltd.), 31 March 2005 (31.03.2005), claims; examples (Family: none)	1-9
A	JP 2006-249251 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 21 September 2006 (21.09.2006), claims; examples (Family: none)	1-9
A	WO 2009/008470 A1 (Soken Chemical & Engineering Co., Ltd.), 15 January 2009 (15.01.2009), claims; examples & US 2010/0208343 A1 claims; examples & EP 2175001 A1 & CN 101688098 A & KR 10-2010-0039274 A	1-9
A	JP 2014-145023 A (Nitto Denko Corp.), 14 August 2014 (14.08.2014), claims; examples (Family: none)	1-9

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C09J133/04(2006.01)i, C09J7/02(2006.01)i, C09J143/04(2006.01)i, G02B5/30(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C09J1/00-201/10, G02B5/30

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017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 06-192642 A（三井東圧化学株式会社） 1994.07.12 実施例2,5、特許請求の範囲 （ファミリーなし）	1-2, 4, 6 3, 5, 7-9
A	JP 2008-101168 A（サイデン化学株式会社） 2008.05.01 特許請求の範囲、実施例 （ファミリーなし）	1-9

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

11.01.2017

国際調査報告の発送日

24.01.2017

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）

牟田 博一

4Z

3343

電話番号 03-3581-1101 内線 3480

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 05-230428 A (日東電工株式会社) 1993.09.07 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2005-082750 A (セメダイン株式会社) 2005.03.31 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2006-249251 A (積水化学工業株式会社) 2006.09.21 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-9
A	WO 2009/008470 A1 (綜研化学株式会社) 2009.01.15 請求の範囲、実施例 & US 2010/0208343 A1, Claims, Examples & EP 2175001 A1 & CN 101688098 A & KR 10-2010-0039274 A	1-9
A	JP 2014-145023 A (日東電工株式会社) 2014.08.14 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-9