

(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
2023年11月2日(02.11.2023)



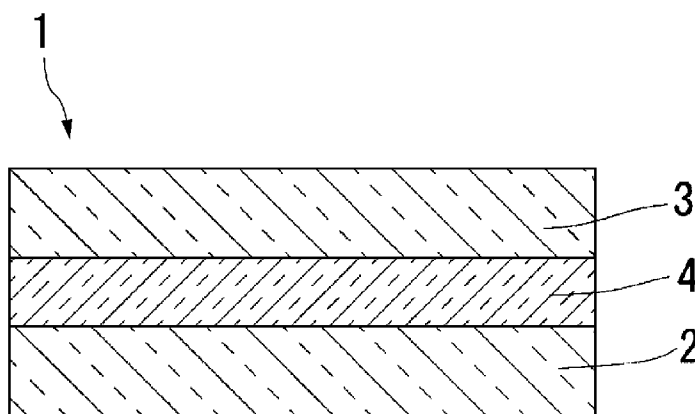
(10) 国際公開番号

WO 2023/210447 A1

- (51) 国際特許分類:
G02B 5/23 (2006.01) *G02C 7/02* (2006.01)
B32B 7/12 (2006.01) *G02C 7/12* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2023/015505
- (22) 国際出願日: 2023年4月18日(18.04.2023)
- (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 2022-071502 2022年4月25日(25.04.2022) JP
- (71) 出願人: 株式会社トクヤマ (**TOKUYAMA CORPORATION**) [JP/JP]; 〒7458648 山口県周南市御影町1番1号 Yamaguchi (JP).
- (72) 発明者: 服部 有輝(**HATTORI Yuki**); 〒7458648 山口県周南市御影町1番1号 株式会社トクヤマ内 Yamaguchi (JP). 清水 康智(**SHIMIZU Yasutomo**); 〒7458648 山口県周南市御影町
- 1番1号 株式会社トクヤマ内 Yamaguchi (JP). 森力宏(**MORI Katsuhiko**); 〒7458648 山口県周南市御影町1番1号 株式会社トクヤマ内 Yamaguchi (JP).
- (74) 代理人: 加藤 竜太, 外 (**KATO Ryuta et al.**); 〒1000005 東京都千代田区丸の内1-7-12 サピアタワー 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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, 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,

(54) **Title:** METHOD FOR MANUFACTURING OPTICAL LAYERED SHEET AND METHOD FOR MANUFACTURING OPTICAL ARTICLE

(54) 発明の名称: 光学積層シートの製造方法及び光学物品の製造方法



(57) **Abstract:** The purpose of the present invention is to provide a method for manufacturing an optical layered sheet having excellent appearance, and a method for manufacturing an optical article that includes the optical layered sheet. According to an embodiment of the present invention, there is provided a first method for manufacturing an optical layered sheet. The optical layered sheet includes a first optical sheet, a second optical sheet, and an adhesive layer. The first optical sheet and/or the second optical sheet is an unstretched polyvinyl alcohol film. This manufacturing method includes providing a first coating film of an adhesive composition including a functional pigment and an iso(thio)cyanate compound on at least one main surface of the first optical sheet, layering the second optical sheet on the first coating film to obtain a first layered body, and heat treating the first layered body at atmospheric pressure at a temperature of 80-200°C.



WO 2023/210447 A1

SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, 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, ME, 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))

(57) 要約: 本発明の目的は、外観に優れた光学積層シートの製造方法と、この光学積層シートを含む光学物品の製造方法とを提供することにある。実施形態によると、光学積層シートの第1の製造方法が提供される。光学積層シートは、第1光学シートと、第2光学シートと、接着層とを含む。第1光学シート及び第2光学シートの少なくとも一方は無延伸ポリビニルアルコールフィルムである。この製造方法は、第1光学シートの少なくとも一方の主面上に機能性色素及びイソ(チオ)シアネート化合物を含む接着性組成物の第1塗膜を設けることと、第1塗膜上に第2光学シートを積層させて第1積層体を得ることと、第1積層体を大気圧下で80℃以上200℃以下の温度で加熱処理することを含む。

明 細 書

発明の名称：光学積層シートの製造方法及び光学物品の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、光学積層シートの製造方法及び光学物品の製造方法に関する。

背景技術

[0002] プラスチック眼鏡は、レンズにプラスチック製のレンズを用いた眼鏡である。プラスチックレンズは、例えば、半完成品であるセミフィニッシュドレンズに様々な加工を施すことにより製造される。セミフィニッシュドレンズの凸面である表面には、ハードコート層や反射防止膜等の機能層が設けられる。また、セミフィニッシュドレンズの凹面である裏面には、切削及び研磨加工が施される。

[0003] 近年、紫外線の量により色調が変化するフォトクロミック性を有する調光レンズが注目を集めている。調光レンズは、フォトクロミック化合物をプラスチックレンズに付与することにより得られる。フォトクロミック化合物は、光の作用により、互いに異なる光吸収スペクトルを有する2以上の異性体を可逆的に生成可能な化合物である。

[0004] フォトクロミックレンズの製造方法としては、従来、セミフィニッシュドレンズのマトリックスにフォトクロミック化合物を分散させる練り込み法、及び、セミフィニッシュドレンズの表面にフォトクロミック化合物を含む層を設ける積層法等が用いられてきた。

[0005] バインダーシート法は、フォトクロミック化合物を含む樹脂層を2枚の光学シートで挟んだバインダーシートをレンズ基材と一体化させてセミフィニッシュドレンズを製造する方法である。バインダーシート法によると、フォトクロミック化合物を含む自立した物品を用いてセミフィニッシュドレンズを製造できるため、練り込み法及び積層法と比較して、生産効率が高まり、大量生産が容易となる傾向にある。

先行技術文献

特許文献

- [0006] 特許文献1：特開2021-179629号公報
特許文献2：国際公開第2019/163728号
特許文献3：特開2016-161838号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0007] 本発明の目的は、外観に優れた光学積層シートの製造方法と、この光学積層シートを含む光学物品の製造方法とを提供することにある。

課題を解決するための手段

- [0008] 実施形態によると、光学積層シートの第1の製造方法が提供される。光学積層シートは、第1光学シートと、第2光学シートと、接着層とを含む。接着層は、第1光学シート及び第2光学シートの間に位置する。接着層は、ウレタン樹脂、ウレタンウレア樹脂、チオウレタン樹脂、及びチオウレタンウレア樹脂からなる群より選択される少なくとも1種の樹脂及び機能性色素を含む。第1光学シート及び第2光学シートの少なくとも一方は無延伸ポリビニルアルコールフィルムである。この製造方法は、第1光学シートの少なくとも一方の主面上に機能性色素及びイソ（チオ）シアネート化合物を含む接着性組成物の第1塗膜を設けることと、第1塗膜上に第2光学シートを積層させて第1積層体を得ることと、第1積層体を大気圧下で80℃以上200℃以下の温度で加熱処理することを含む。

- [0009] 実施形態によると、光学積層シートの第2の製造方法が提供される。光学積層シートは、第1光学シートと、第2光学シートと、接着層とを含む。接着層は、第1光学シート及び第2光学シートの間に位置する。接着層は、ウレタン樹脂、ウレタンウレア樹脂、チオウレタン樹脂、及びチオウレタンウレア樹脂からなる群より選択される少なくとも1種の樹脂及び機能性色素を含む。第1光学シート及び第2光学シートは、延伸ポリビニルアルコールフィルムである。この製造方法は、第1光学シートの少なくとも一方の主面上

に機能性色素及びイソ（チオ）シアネート化合物を含む接着性組成物の第1塗膜を設けることと、第1塗膜上に第2光学シートを積層させて第1積層体を得ることと、第1積層体に加湿処理を施すことと、加湿処理後の第1積層体を大気圧下で80℃以上200℃以下の温度で加熱処理することを含む。

[0010] 実施形態によると、光学物品の製造方法が提供される。この製造方法は、実施形態に係る方法で得られた光学積層シートの第1光学シート及び第2光学シートの少なくとも一方の表面を光学素子基材で被覆することを含む。

発明の効果

[0011] 本発明によると、外観に優れた光学積層シートの製造方法と、この光学積層シートを含む光学物品の製造方法とが提供される。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]光学積層シートの一例を概略的に示す断面図。

[図2]光学物品の一例を概略的に示す断面図。

[図3]光学物品を含む眼鏡の一例を概略的に示す斜視図。

発明を実施するための形態

[0013] [光学積層シートの第1の製造方法]

実施形態によると、光学積層シートの第1の製造方法が提供される。光学積層シートは、第1光学シートと、第2光学シートと、接着層とを含む。接着層は、第1光学シート及び第2光学シートの間に位置する。接着層は、ウレタン樹脂、ウレタンウレア樹脂、チオウレタン樹脂、及びチオウレタンウレア樹脂からなる群より選択される少なくとも1種の樹脂及び機能性色素を含む。第1光学シート及び第2光学シートの少なくとも一方は無延伸ポリビニルアルコールフィルムである。この製造方法は、第1光学シートの少なくとも一方の主面上に機能性色素及びイソ（チオ）シアネート化合物を含む接着性組成物の第1塗膜を設けることと、第1塗膜上に第2光学シートを積層させて第1積層体を得ることと、第1積層体を大気圧下で80℃以上200℃以下の温度で加熱処理することを含む。

[0014] 実施形態に係る製造方法によると、外観に優れた光学積層シートを得られる。この理由は、以下のとおりであると本発明者らは考えている。まず、光学積層シートの製造工程において、第1積層体には、気泡が発生することがある。気泡は、光学積層シートの外観性を損なうため、取り除かれることが望ましい。そこで、例えば、真空若しくは減圧下で第1積層体を加熱し、脱気処理を行うことがある。しかしながら、この脱気処理を施しても、第1積層体から十分な気泡が取り除かれないことがある。本発明者らが鋭意研究したところ、第1積層体について大気圧下で比較的高温で加熱処理を行うことにより、気泡が少ない外観性に優れた光学積層シートが得られることを見出した。すなわち、第1積層体に含まれる気泡には、外気から取り込まれた空気に加えて、第1塗膜から発生するガスが含まれ得ることを本発明者らは見出した。このガスは、例えば、以下の過程で発生すると考えられる。まず、第1塗膜に含まれるイソ（チオ）シアネート化合物のイソ（チオ）シアネート基と、ポリビニルアルコールフィルムの表面に存在する水酸基とが反応し、（チオ）ウレタン結合が生成する。これにより、接着層とポリビニルアルコールフィルムとの密着性が高まる。しかしながら、このイソ（チオ）シアネート基は、空気、第1塗膜、及びポリビニルアルコールに含まれる水と反応して、アミン及び二酸化炭素を生成し得る。第1積層体の内部において、イソシアネート基と水との反応により二酸化炭素を含むガスが生じ、これが気泡として現れると考えられる。真空若しくは減圧下においては、第1塗膜に含まれるイソ（チオ）シアネート化合物のイソ（チオ）シアネート基とポリビニルアルコールフィルムの表面に存在する水酸基との反応よりも、イソ（チオ）シアネート基と水との反応による二酸化炭素の生成が優先的に生じ続けるため、十分に脱気されないと考えられる。更に、ポリビニルアルコールフィルムは、ガスバリア性が高いため、第1積層体内部で生じた気泡は、脱気処理を行っても十分に脱気されにくいと考えられる。実施形態に係る方法においては、大気圧下、80℃以上200℃以下という比較的高温環境下において、第1積層体の加熱処理を行う。このような環境下であると、第1

積層体内部において、二酸化炭素の生成によるガスの発生を抑制しながら、加熱によりポリビニルアルコールフィルムの剛性を低下させることにより外気から取り込まれた空気も含めて脱気できると考えられる。それゆえ、実施形態に係る方法によると、気泡の少ない外観性に優れた光学積層シートが得られる。

[0015] 以下、実施形態に係る光学積層シートの第1の製造方法について、詳細に説明する。

[0016] (光学積層シート)

光学積層シートは、第1光学シートと、第2光学シートと、これらの間に位置する接着層とを含む。光学積層シートは、第1光学シート及び第2光学シートと透明支持体と第1接着層及び第2接着層とを含んでいてもよい。第1光学シート及び透明支持体は、第1接着層により接着されている。透明支持体及び第2光学シートは、第2接着層により接着されている。

[0017] 光学積層シートの厚みは、90 μm 以上であることが好ましく、110 μm 以上であることがより好ましく、130 μm 以上であることが更に好ましい。光学積層シートの厚みが厚いと、光学積層シートの強度が高まり、歩留まりが高まる傾向にある。光学積層シートの厚みに上限は特にはないが、一例によると、1000 μm 以下であり、他の例によると、500 μm 以下である。

[0018] 図1は、光学積層シートの一例を概略的に示す断面図である。図1に示す光学積層シート1は、第1光学シート2と、第2光学シート3と、これらの間に介在する接着層4とを含む。接着層4は、第1光学シート2の一方の主面全体と、第2光学シート3の一方の主面全体とを被覆している。接着層4は、第1光学シート2の両方の主面全体と、第2光学シート3の両方の主面全体とを被覆していてもよく、各主面の一部のみを被覆していてもよい。

[0019] (第1及び第2光学シート)

第1及び第2光学シートの少なくとも一方は、無延伸ポリビニルアルコールフィルムである。第1及び第2光学シートの両方が無延伸ポリビニルアル

コールフィルムであってもよい。一方は延伸ポリビニルアルコールフィルムであってもよく、ポリビニルアルコール以外の樹脂からなるフィルムであってもよい。

[0020] ポリビニルアルコールフィルムは、ポリビニルアルコール（PVA）樹脂を含む。ポリビニルアルコールフィルムは、PVA樹脂のみから構成されていてもよく、その他の樹脂を含んでいてもよい。その他の樹脂としては、アルデヒド類で変性されたポリビニルホルマール、ポリビニルアセタール、ポリビニルブチラール等が挙げられる。

[0021] 無延伸ポリビニルアルコールフィルムの水分量は、1質量%以上であることが好ましく、3質量%以上であることがより好ましい。水分量が多いと、接着層との密着性が高まり、また、フィルムの柔軟性が高まる傾向にある。一方、水分量が過剰に多いと、フィルムの硬度が低下し、生産効率が低下し得る。したがって、無延伸ポリビニルアルコールフィルムの水分量は、20質量%以下であることが好ましく、15質量%以下であることがより好ましく、10質量%以下であることが更に好ましい。

[0022] 水分量は、例えば、以下の方法で測定できる。まず、ポリビニルアルコールフィルムを切断して、試料を得る。試料の質量は、例えば、5gとする。この試料を、水分計の皿にのせ、120℃まで昇温する。30秒間の水分変化率が0.02%となるまで120℃で保温し、30秒間の水分変化率が0.02%に達した試料の質量を測定する。乾燥前の試料の質量と乾燥後の試料の質量から、乾燥前の試料の質量に対する蒸発した水分の質量が占める割合、すなわちポリビニルアルコールフィルムの水分率を求める。水分計としては、例えば、株式会社島津製作所製の水分計MOC63uを用いる。

[0023] PVA樹脂の平均重合度は、例えば、100以上10000以下であり、好ましくは、1500以上8000以下であり、より好ましくは、2000以上5000以下である。PVA樹脂の平均重合度は、日本工業規格（JIS）K6726；1994に準拠した方法で求められる。

[0024] PVA樹脂は、ホウ酸を含んでいてもよい。ホウ酸は、PVA同士を架橋

させる架橋剤として用いられる。PVA樹脂のホウ酸含有率は、例えば、0.1質量%以上20質量%以下であり、好ましくは、0.5質量%以上15質量%以下であり、より好ましくは、1質量%以上10質量%以下である。このホウ酸含有量は、誘導結合プラズマ (Inductively Coupled Plasma; IPC) 発光分析により算出できる。具体的には、先ず、光学シートを硝酸水溶液に溶解させて溶液を得る。この溶液を用いてIPC分析を行い、ホウ素含有量を算出する。このホウ素含有量からホウ酸含有率に換算する。

[0025] 光学シートは、染料を含んでいてもよい。染料は、2色性物質を含む。2色性物質は、ヨウ素及び2色性染料を含む。2色性染料は、アゾ系であってもよく、アントラキノン系であってもよい。2色性染料の具体例は、クロランチンファストレッド (C. I. 28160)、コンゴレッド (C. I. 22120)、ブリリアントブルーB (C. I. 24410)、ベンゾパープリン (C. I. 23500)、クロラゾールブラックBH (C. I. 22590)、ダイレクトブルー2B (C. I. 22610)、ジアミンググリーン (C. I. 30295)、クリソフェニン (C. I. 24895)、シリウスイエロー (C. I. 29000)、ダイレクトファーストレッド (C. I. 23630)、アシドブラック (C. I. 20470)、ダイレクトスカイブルー (C. I. 24400)、ソロフェニルブルー4GL (C. I. 34200)、ダイレクトコッパーブルー2B (C. I. 24185)、及び、ニッポンブリリアントヴァイオレットBK conc (C. I. 27885)を含む。

[0026] 無延伸ポリビニルアルコールフィルムの厚みは、例えば、10 μ m以上であり、30 μ m以上であることが好ましく、50 μ m以上であることが更に好ましい。厚いフィルムを用いると、生産効率が向上する傾向にある。無延伸ポリビニルアルコールフィルムの厚みに上限値は特にはないが、一例によると、100 μ m以下であり、他の例によると、80 μ m以下である。第1及び第2光学シートの厚みは、互いに同一でもよく、異なってもよい。

- [0027] 延伸ポリビニルアルコールフィルムの延伸方法は、1軸延伸、又は2軸延伸のいずれであってもよい。延伸方向は、未延伸フィルムの機械流れ方向（MD）、これに直交する方向（TD）、機械流れ方向に斜交する方向の何れでもよい。ここで、1軸延伸シートとは、上記方向のうちいずれかの一方向に未延伸シートを延伸したものである。2軸延伸シートは、上述の延伸方向のうち2方向に延伸したものであり、同時に延伸する同時二軸延伸シートであっても、所定の方向に延伸した後で他の方向に延伸する逐次2軸延伸シートであってもよい。2軸延伸シートの場合、通常、MD、TDに延伸したものが好ましい。延伸倍率は、1.5～8倍であることが好ましく、2～6倍であることがより好ましい。
- [0028] 延伸ポリビニルアルコールフィルムの水分量は、1質量%以上であることが好ましく、3質量%以上であることがより好ましく、5質量%以上であることが更に好ましい。水分量が多いと、接着層との密着性が高まり、また、フィルムの柔軟性が高まる傾向にある。一方、水分量が過剰に多いと、フィルムの硬度が低下し、生産効率が低下し得る。したがって、延伸ポリビニルアルコールフィルムの水分量は、20質量%以下であることが好ましく、15質量%以下であることがより好ましい。水分量は、無延伸ポリビニルアルコールフィルムと同様の方法で測定できる。
- [0029] 延伸ポリビニルアルコールフィルムは、偏光性を有する偏光フィルムであってもよい。偏光性を有する光学シートは、視感透過率が10%以上80%以下であり、偏光度が30%以上99.9%以下であることが好ましい。偏光性を有する延伸ポリビニルアルコールフィルムは、上述した2色性物質を含む。
- [0030] 延伸ポリビニルアルコールフィルムの厚みは、例えば、10 μ m以上100 μ m以下である。
- [0031] ポリビニルアルコールフィルム以外の樹脂フィルムとしては、光透過性を有する様々な樹脂フィルムを使用できる。樹脂としては、例えば、ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリアミド樹脂、ポリエ

ステル樹脂、セルロース樹脂、（メタ）アクリル樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリウレタンウレア樹脂、ポリイミド樹脂、エポキシ樹脂、及びポリオレフィン樹脂からなる群より選ばれる少なくとも1種を用いる。ポリアミド樹脂としては、脂環族ポリアミド樹脂を用いてもよく、半芳香族ポリアミド樹脂を用いてもよく、芳香族ポリアミド樹脂を用いてもよい。セルロース樹脂としては、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アセチルセルロースを用いてもよく、トリプロピルセルロース、ジプロピルセルロース等のプロピルセルロース等を用いてもよい。

[0032] PVA以外の樹脂フィルムは、その表面に表面改質領域を備えることが好ましい。表面改質領域は、反応性官能基を有する。反応性官能基は、例えば、水酸基、チオール基、カルボキシ基、アミノ基、スルホ基、イソ（チオ）シアネート基、アリル基、（メタ）アクリロイル基、ビニル基、エポキシ基、オキセタン基、チオエポキシ基、及びシラノール基からなる群より選ばれる少なくとも1種を含む。表面改質領域を有する樹脂フィルムを用いると、接着層と第1及び第2光学シートとの密着性、並びに光学物品の光学素子基材との密着性が高まる傾向にある。表面改質領域は、シランカップリング剤の塗布、プラズマ処理、コロナ放電処理、及びエッチング処理からなる群より選ばれる少なくとも1種の方法により設けられる。表面改質層に含まれる反応性官能基の種類及び量は、例えば、X線光電子分光（XPS）分析、フーリエ変換赤外分光（FT-IR）分析、及びラマン分光分析等を組み合わせることにより確認できる。

[0033] （接着層）

接着層は、ポリウレタン樹脂、ポリウレタンウレア樹脂、ポリチオウレタン樹脂、及びポリチオウレタンウレア樹脂からなる群より選ばれる少なくとも1種を含み得る。接着層は、フォトクロミック化合物等の機能性色素を含んでいてもよい。接着層は、後述する接着性組成物の硬化体を含んでいてもよい。

[0034] 接着層の厚みは、例えば、0.1 μm 以上100 μm 以下である。接着層

の厚みは、第1及び第2光学シートの厚みよりも薄くてもよく、より厚くてもよい。

[0035] (接着性組成物)

接着性組成物は、機能性色素と重合成分とを含む。重合成分は、接着層のマトリックスとなる。重合成分は、第2プレポリマー又は第1ポリマー及び第2プレポリマー若しくは第3プレポリマーを含む。言い換えると、接着性組成物は、第2プレポリマーを含む重合成分と機能性色素との第1の組み合わせ、第1ポリマー及び第2プレポリマーを含む重合成分と機能性色素との第2の組み合わせ、第1ポリマー及び第3プレポリマーを含む重合成分と機能性色素との第3の組み合わせ、並びに、第1ポリマー、第2プレポリマー、及び第3プレポリマーを含む重合成分と機能性色素との第4の組み合わせを含み得る。

[0036] (機能性色素)

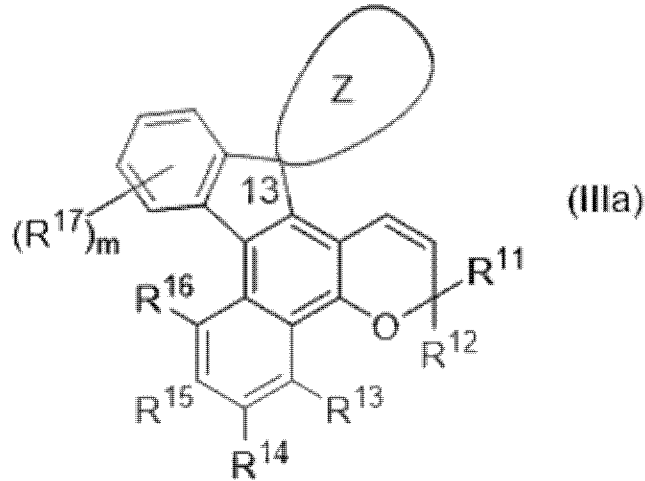
機能性色素は、例えば、フォトクロミック化合物、紫外線吸収剤、青色光吸収剤、赤外線吸収剤、及びエレクトロミック化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種を含む。

[0037] フォトクロミック化合物としては、例えば、クロメン化合物、フルギド化合物、及びスピロオキサジン化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種を用いる。フォトクロミック化合物としては、クロメン化合物を用いることが好ましい。クロメン化合物は、1-ベンゾピラン骨格を有する化合物、スピロピラン骨格を含むスピロピラン化合物、及び、ナフトピラン骨格を有するナフトピラン化合物を含む。ナフトピラン化合物には、インデノナフトピラン骨格を有するインデノナフトピラン化合物が含まれる。クロメン化合物は、インデノ〔2, 1-f〕ナフト〔1, 2-b〕ピラン骨格を有するインデノナフトピラン化合物を含むことが好ましい。インデノ〔2, 1-f〕ナフト〔1, 2-b〕ピラン骨格を有するクロメン化合物を含む硬化体は、耐久性に優れる傾向にある。

[0038] インデノナフトピラン化合物は、下記式 (I I I a) に示す化合物を含む

ことが好ましい。

[0039] [化1]



[0040] 式(IIIa)において、Z環は、13位の炭素原子をスピロ原子とする置換若しくは非置換のスピロ環である。Z環は、13位の炭素原子と共に、脂肪族環を形成していてもよく、縮合多環を形成していてもよく、複素環を形成していてもよく、複素環式芳香族環を形成していてもよい。Z環は、環員炭素数が5～16の脂肪族環であることが好ましい。脂肪族環は、置換基として、炭素数1～3のアルキル基を有することが更に好ましい。

[0041] 式(IIIa)において、R¹¹、R¹²、R¹³、R¹⁴、R¹⁵、R¹⁶、及びR¹⁷は、それぞれ独立に、水素原子、ヒドロキシル基、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、アルキル基、シクロアルキル基、ハロアルキル基、アルコキシ基、アミノ基、置換アミノ基、置換基を有してもよい複素環基、ハロゲン原子、アルキルチオ基、置換基を有してもよいアリアルチオ基、ニトロ基、ホルミル基、ヒドロキシカルボニル基、アルキルカルボニル基、アルコキシカルボニル基、置換基を有してもよいアラルキル基、置換基を有してもよいアラルコキシ基、置換基を有してもよいアリアルコキシ基、置換基を有してもよいアリアル基、置換基を有してもよいヘテロアリアル基、チオール基、アルコシアルキルチオ基、ハロアルキルチオ基、置換基を有してもよいシクロアルキルチオ基、又は、オリゴマー基である。

mは、0以上4以下の整数である。mが2以上4以下である場合、複数のR¹⁷は互いに同一の構造を有していてもよく、異なる構造を有していてもよい。

- [0042] アルキル基の炭素数は1～10であることが好ましい。アルキル基の例としては、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、及びヘキシル基が挙げられる。
- [0043] ハロアルキル基の炭素数は1～10であることが好ましい。ハロアルキル基としては、フッ素原子、塩素原子もしくは臭素原子で置換されたアルキル基が好ましい。好適なハロアルキル基の例としては、トリフルオロメチル基、テトラフルオロエチル基、クロロメチル基、2-クロロエチル基、及びブromoメチル基が挙げられる。
- [0044] シクロアルキル基の環員炭素数は、3～8であることが好ましい。シクロアルキル基の例としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、及びシクロヘキシル基等が挙げられる。なお、シクロアルキル基は、置換基を有してもよいが、炭素数の数（炭素数3～8）には、置換基の炭素数は含まれないものとする。
- [0045] アルコキシ基の炭素数は1～10であることが好ましく、1～6であることがより好ましい。好適なアルコキシ基の例としては、メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、イソプロポキシ基、n-ブトキシ基、sec-ブトキシ基、及びtert-ブトキシ基が挙げられる。
- [0046] アミノ基は、1級アミノ基（-NH₂）であり、置換アミノ基は、1つまたは2つの水素原子が置換された2級または3級アミノ基である。置換アミノ基が有する置換基としては、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のハロアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数3～7のシクロアルキル基、炭素数6～14のアリール基、炭素数4～14のヘテロアリール基等が挙げられる。好適なアミノ基の例としては、アミノ基、メチルアミノ基、ジメチルアミノ基、エチルアミノ基、ジエチルアミノ基、フェニルアミノ基

、ジフェニルアミノ基等を挙げるができる。

- [0047] 複素環基の原子数は3～10であることが好ましい。複素環基は、脂肪族複素環基であってもよく、芳香族複素環基であってもよい。脂肪族複素環基の具体例には、モルホリノ基、ピペリジノ基、ピロリジニル基、ピペラジノ基、N-メチルピペラジノ基が挙げられる。芳香族複素環基の具体例にはインドリニル基が挙げられる。複素環基は、置換基を有していてもよい。好ましい置換基としては、炭素数1～10のアルキル基が挙げられる。置換基を有する好適な複素環基としては、例えば2,6-ジメチルモルホリノ基、2,6-ジメチルピペリジノ基および2,2,6,6-テトラメチルピペリジノ基等が挙げられる。
- [0048] ハロゲン原子としては、例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、及びヨウ素原子が挙げられる。
- [0049] アルキルチオ基の炭素数は1～10であることが好ましい。アルキルチオ基の例としては、メチルチオ基、エチルチオ基、n-プロピルチオ基、イソプロピルチオ基、n-ブチルチオ基、sec-ブチルチオ基、及びt-ブチルチオ基が挙げられる。
- [0050] アリールチオ基の炭素数は6～10であることが好ましい。アリールチオ基の例としては、フェニルチオ基、1-ナフチルチオ基、及び2-ナフチルチオ基が挙げられる。
- [0051] アルキルカルボニル基の炭素数は2～10であることが好ましい。アルキルカルボニル基の例としては、アセチル基及びエチルカルボニル基が挙げられる。
- [0052] アルコキシカルボニル基の炭素数は2～10であることが好ましい。アルコキシカルボニル基としては、メトキシカルボニル基及びエトキシカルボニル基が挙げられる。
- [0053] アラルキル基の炭素数は7～11であることが好ましい。アラルキル基の例としては、ベンジル基、フェニルエチル基、フェニルプロピル基、フェニルブチル基、及びナフチルメチル基が挙げられる。

- [0054] アラルコキシ基の炭素数は7～11であることが好ましい。アラルコキシ基の例としては、ベンジロキシ基及びナフチルメトキシ基が挙げられる。
- [0055] アリール基の炭素数は6～12であることが好ましい。アリール基の例としては、フェニル基、1-ナフチル基、及び2-ナフチル基が挙げられる。
- [0056] アリールオキシ基の炭素数は6～12であることが好ましい。アリールオキシ基の例としては、フェニルオキシ基及びナフチルオキシ基が挙げられる。
- [0057] ヘテロアリール基の炭素数は3～12であることが好ましい。ヘテロアリール基の例としては、チエニル基、フリル基、ピロリニル基、ピリジル基、ベンゾチエニル基、ベンゾフラニル基、及びベンゾピロリニル基が挙げられる。
- [0058] アルコキシアルキルチオ基の炭素数は2～10であることが好ましい。アルコキシアルキルチオ基の例としては、メトキシメチルチオ基、メトキシエチルチオ基、メトキシn-プロピルチオ基、メトキシn-ブチルチオ基、エトキシエチルチオ基、及びn-プロポキシプロピルチオ基等が挙げられる。
- [0059] ハロアルキルチオ基の炭素数は1～10であることが好ましい。ハロアルキルチオ基の例としては、トリフルオロメチルチオ基、テトラフルオロエチルチオ基、クロロメチルチオ基、2-クロロエチルチオ基、及びブromoメチルチオ基が挙げられる。
- [0060] シクロアルキルチオ基の炭素数は3～8であることが好ましい。シクロアルキルチオ基の例としては、シクロプロピルチオ基、シクロブチルチオ基、シクロペンチルチオ基、及びシクロヘキシルチオ基が挙げられる。なお、シクロアルキルチオ基は、置換基を有してもよいが、炭素数の数（炭素数3～8）には、置換基の炭素数は含まれないものとする。
- [0061] 上述したシクロアルキル基、アリールチオ基、アラルキル基、アラルコキシ基、アリールオキシ基、アリール基、ヘテロアリール基、およびシクロアルキルチオ基は、非置換であってもよく、置換基を有していてもよい。
- [0062] シクロアルキル基、アリールチオ基、アラルキル基、アラルコキシ基、ア

リールオキシ基、アリール基、ヘテロアリール基、およびシクロアルキルチオ基が有し得る置換基は、第1級アミノ基、第2級アミノ基、第3級アミノ基、炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のハロアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数1～10のハロアルコキシ基、炭素数1～10のアルキルチオ基、ヒドロキシル基、炭素数3～8のシクロアルキル基、炭素数6～12のアリール基、炭素数1～20のアルキルアリール基、1～5のヘテロ原子を含む炭素数1～8のヘテロシクロアルキル基、1～5のヘテロ原子を含む、炭素数1～8のヘテロアリール基、炭素数6～12のアリールオキシ基、炭素数6～12のアリールチオ基、シアノ基、ニトロ基、及び、ハロゲン原子からなる置換基群から選択され得る。置換基の数は、1つであってもよく、2以上であってもよい。

[0063] R^{13} 及び R^{14} 、 R^{14} 及び R^{15} 、並びに R^{15} 及び R^{16} は、互いに結合して、炭素数2～5の脂肪族環、1以上3以下のヘテロ原子を含む炭素数1～4の脂肪族複素環、炭素数4～12の芳香族環、又は、1～6のヘテロ原子を含む炭素数3～11の芳香族複素環を形成していてもよい。脂肪族環、脂肪族複素環、芳香族環、及び、芳香族複素環は、非置換でもよく、上記の置換基群から選択される少なくとも1種の置換基を有していてもよい。

[0064] 紫外線吸収剤は、400 nm以下の紫外線（UV）領域において吸収波長を有する。紫外線吸収剤は、330 nm以上380 nm以下の領域に最大吸収波長を有してもよく、250 nm以上330 nm未満の領域に最大吸収波長を有してもよい。紫外線吸収剤としては、有機化合物を用い得る。紫外線吸収剤としては、例えば、ベンゾフェノン誘導体、メトキシケイ皮酸エチルヘキシル、ベンゾトリアゾール誘導体、及びトリアジン誘導体からなる群より選ばれる少なくとも1種を用いる。紫外線吸収剤は、ベンゾフェノン誘導体、メトキシケイ皮酸エチルヘキシル、及び、ベンゾトリアゾール誘導体からなる群より選ばれる少なくとも1種を含むことが好ましい。

[0065] 青色光吸収剤としては、吸収スペクトルにおいて、400 nmより高く450 nm以下の波長領域に吸収ピークを有する化合物を用い得る。このよう

な化合物としては、例えば、ペリレン系化合物、ポルフィリン系化合物、カロテノイド系化合物、及び、シアニン系化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種である。青色光吸収剤としては、ポルフィリン系化合物を用いることが好ましく、テトラアザポルフィリン化合物を用いることがより好ましい。

[0066] 高エネルギー可視光線吸収剤は、400nm以上420nm以下の波長領域に吸収ピークを有する青色光吸収剤である。高エネルギー可視光線吸収剤としては、青色光吸収剤と同様のものを用い得る。

[0067] 染料は、吸収スペクトルにおいて、540nm以上650nm以下の波長領域に吸収ピークを有する化合物を含むことが好ましく、550nm以上600nm以下の波長領域に吸収ピークを有する化合物を含むことがより好ましい。このような化合物を含むと、硬化体の防眩性を高められる。このような化合物としては、ニトロ系化合物、アゾ系化合物、アントラキノン系化合物、スレン系化合物、ポルフィリン系化合物、希土類金属化合物等が挙げられる。このような化合物としては、テトラアザポルフィリン化合物及びネオジム化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種を用いることが好ましい。

[0068] エレクトロミック化合物としては、ビオロゲン等の有機物、エレクトロミック性を有するポリマー、d原子を有する金属塩錯体等が挙げられる。

[0069] 接着性組成物の固形分において、機能性色素が占める割合は、例えば、0.1質量%以上10質量%以下であり、好ましくは、1質量%以上5質量%以下である。

[0070] (第2プレポリマー)

第2プレポリマーは、第1多官能活性水素化合物と第1イソ(チオ)シアネート化合物とを反応させて得られる第1プレポリマーと、鎖延長剤である第2多官能活性水素化合物とを反応させて得られる。第2プレポリマーは、2以上のイソ(チオ)シアネート基を有する。第2プレポリマーは、主鎖の両末端にイソ(チオ)シアネート基を有することが好ましい。第2プレポリ

マーは、ウレタンプレポリマー、ウレアプレポリマー、ウレタンウレアプレポリマー、チオウレタンプレポリマー、チオウレアプレポリマー、及びチオウレタンウレアプレポリマーからなる群より選ばれる少なくとも1種を含む。第2プレポリマーは、大気中の水及び第1及び第2光学シートの表面上の水酸基と化学結合して、(チオ)ウレタン樹脂、(チオ)ウレア樹脂、及び(チオ)ウレタンウレア樹脂からなる群より選ばれる少なくとも1種を生成する。

[0071] 第2プレポリマーの数平均分子量は、5000以上であることが好ましく、10000以上であることがより好ましく、13000以上であることが更に好ましい。数平均分子量が大きい第2プレポリマーを用いると、光学積層シートの剥離強度が高まる傾向にある。すなわち、数平均分子量が大きい第2プレポリマーは、互いに絡み合い易いため、凝集力が高まり、それゆえ、接着力が高まると考えられる。

[0072] 第2プレポリマーの数平均分子量は、50000以下であることが好ましく、40000以下であることがより好ましく、30000以下であることが更に好ましい。第2プレポリマーの数平均分子量が過剰に大きいと、光学積層シートの剥離強度が低まる傾向にある。すなわち、数平均分子量が大きい第2プレポリマーは、単位質量あたりに含まれるイソ(チオ)シアネート基の量が少なく、それゆえ、接着力が弱まる傾向にある。

[0073] 第2プレポリマーの数平均分子量は、ゲル・パーミエーション・クロマトグラフ(GPC)により測定できる。測定に際しては、カラム:Shodex KD-806M(昭和電工株式会社製)を2本直列接続、溶離液:LiBr(10mmol/L)/DMF溶液、流速:1ml/min、検出器:RI検出器、第2プレポリマー試料溶液:1.0%ジメチルホルムアミド(DMF)溶液の条件にて測定する。解析ソフトとしては、日本ウォーターズ株式会社製GPC解析ソフト『Empower Personal GPC Option』を用いる。

[0074] 第2プレポリマーの軟化点は、90℃以上であることが好ましく、100

℃以上であることがより好ましく、110℃以上であることが更に好ましい。第2プレポリマーの軟化点が高いと、光学積層シートの耐熱性が向上し、密着性がより高まる傾向にある。第2プレポリマーの軟化点に上限は特にないが、一例によると、200℃以下であり、他の例によると、160℃以下である。

[0075] 第2プレポリマーの軟化点は、例えば、以下の方法で測定する。まず、第2プレポリマーを有機溶剤に溶解させて溶液を得る。溶液中の第2プレポリマーの濃度は、例えば、34質量%とする。この溶液をステンレスの容器に流し込み、40℃で10時間、60℃で10時間、さらに真空乾燥機にて60℃で12時間にわたって乾燥させて、厚み1mmの試験片を作製する。得られた試験片について、熱機械測定装置（セイコーインスツル社製、TMA 120C）を用いて分析を行い、軟化点を得る。測定条件は、昇温速度を10℃/分とし、測定温度範囲を30～200℃とし、先端径0.5mmの針入プローブを用いる。

[0076] 接着性組成物の固形分において、第2プレポリマーは主成分を占め得る。接着性組成物の固形分において第2プレポリマーが占める割合は、例えば、90質量%以上99質量%以下である。なお、接着性組成物が、第1ポリマー及び第2プレポリマーを含む重合成分とフォトクロミック化合物との第2若しくは第4の組み合わせの場合、接着性組成物の固形分において第2プレポリマーが占める割合は、例えば、5質量%以上50質量%以下であり、好ましくは、10質量%以上40質量%以下である。

[0077] （第1プレポリマー）

第1プレポリマーは、第1多官能活性水素化合物と第1イソ（チオ）シアネート化合物とを反応させて得られる。第1プレポリマーは、2以上のイソ（チオ）シアネート基を有する。第1プレポリマーは、主鎖の両末端にイソ（チオ）シアネート基を有することが好ましい。第1プレポリマーは、ウレタンプレポリマー、ウレアプレポリマー、チオウレタンプレポリマー、及びチオウレアプレポリマーからなる群より選ばれる少なくとも1種を含む。第

1 プレポリマーは、第2プレポリマーの原料となる。

[0078] 第1プレポリマーの数平均分子量は、500以上10000以下であることが好ましく、1000以上5000以下であることがより好ましい。第1プレポリマーの数平均分子量は、第2プレポリマーと同様の方法で測定できる。

[0079] (第1イソ(チオ)シアネート化合物)

第1イソ(チオ)シアネート化合物は、2以上のイソ(チオ)シアネート基を有する。第1イソ(チオ)シアネート化合物は、2つのイソ(チオ)シアネート基を有することが好ましい。第1イソ(チオ)シアネート化合物は、2つのイソシアネート基を含むジイソシアネート化合物であることがより好ましい。

[0080] 第1イソ(チオ)シアネート化合物のモル質量は、好ましくは、100以上500以下である。この範囲内の第1イソ(チオ)シアネート化合物を用いると、所望の数平均分子量の第2プレポリマー及び第1ポリマーを得られる傾向にある。第1イソ(チオ)シアネート化合物のモル質量は、より好ましくは、150以上300以下である。

[0081] 第1イソ(チオ)シアネート化合物は、脂肪族イソ(チオ)シアネート化合物、脂環族イソ(チオ)シアネート化合物、及び芳香族イソ(チオ)シアネート化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種を含む。第1イソ(チオ)シアネート化合物は、脂環族イソ(チオ)シアネート化合物であることが好ましい。第1イソ(チオ)シアネート化合物としては、単一種類を用いてもよく、複数種類を混合して用いてもよい。

[0082] 脂肪族イソシアネート化合物の例には、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、ヘプタメチレンジイソシアネート、オクタメチレンジイソシアネート、2, 4, 4, -トリメチルヘキサンメチレンジイソシアネート、1, 2-ビス(2-イソシアナトエチルチオ)エタン等が挙げられる。

[0083] 脂環式イソシアネート化合物の例には、イソホロンジイソシアネート、1

、3-ビス（イソシアナトメチル）シクロヘキサン、1, 4-ビス（イソシアナトメチル）シクロヘキサン、ジシクロヘキシルメタン-4, 4'-ジイソシアネート（水添ジフェニルメタンジイソシアネート）、ノルボルナンジイソシアネート、2, 5-ビス（イソシアネートメチル）-ビスシクロ〔2, 2, 1〕-ヘプタン、2, 6-ビス（イソシアネートメチル）-ビスシクロ〔2, 2, 1〕-ヘプタン等が挙げられる。

[0084] 芳香族イソシアネート化合物の例には、キシレンジイソシアネート（o-, m-, p-）、トルエン-2, 4-ジイソシアネート、トルエン-2, 6-ジイソシアネート、1, 3-ビス（イソシアナトメチル）シクロヘキサン、1, 4-ビス（イソシアナトメチル）シクロヘキサン、4, 4'-ジフェニルメタンジイソシアネート等が挙げられる。

[0085] 脂肪族イソチオシアネート化合物の例としては、ヘキサメチレンジイソチアシネート、1, 2-ジイソチオシアネートエタン、1, 3-ジイソチオシアネートプロパン、1, 4-ジイソチオシアネートブタン、1, 6-ジイソチオシアネートヘキサン、2, 4, 4, -トリメチルヘキサンメチレンジイソチアシネート、チオビス（3-イソチオシアネートプロパン）、チオビス（2-イソチオシアネートエタン）、ジチオビス（2-イソチオシアネートエタン）等が挙げられる。

[0086] 脂環式イソチオシアネート化合物の例には、イソホロンジイソチオシアネート、シクロヘキサンジイソチオシアネート、2, 4-ビス（イソチオシアナトメチル）ノルボルナン、2, 5-ビス（イソチオシアナトメチル）ノルボルナン、2, 6-ビス（イソチオシアナトメチル）ノルボルナン、3, 5-ビス（イソチオシアナトメチル）ノルボルナン、ノルボルナンジイソチアネート等が挙げられる。

[0087] 芳香族イソチオシアネート化合物の例には、p-フェニレンジイソプロピリデンジイソチオシアネート、1, 2-ジイソチオシアネートベンゼン、1, 3-ジイソチオシアネートベンゼン、1, 4-ジイソチオシアネートベンゼン、2, 4-ジイソチオシアネートトルエン、キシレンジイソチオシアネ

ート（*o*-、*m*-、*p*-）、2，4-トリレンジイソチオシアネート、2，6-トリレンジイソチオシアネート、1，1'-メチレンビス（4-イソチオシアネートベンゼン）、1，1'-メチレンビス（4-イソチオシアネート2-メチルベンゼン）、1，1'-メチレンビス（4-イソチオシアネート3-メチルベンゼン）等が挙げられる。

[0088] （第1多官能活性水素化合物）

第1多官能活性水素化合物は、2以上の活性水素基を有する。第1多官能活性水素化合物は、2つの活性水素基を有することが好ましい。活性水素基は、水酸基、アミノ基、カルボキシ基、及びチオール基からなる群より選ばれる少なくとも1種を含む。第1多官能活性水素化合物は、例えば、2以上の水酸基を含むポリオール化合物、2以上のアミノ基を含むポリアミン化合物、2つのカルボキシ基を含むジカルボン酸、及び2以上のチオール基を含むポリチオール化合物からなる群より選択される少なくとも1種を含む。第1多官能活性水素化合物としては、単一種類を用いてもよく、複数種類を混合して用いてもよい。

[0089] 第1多官能活性水素化合物は、ポリオール化合物を含むことが好ましい。ポリオール化合物を用いると、（チオ）ウレタン結合を有する第1プレポリマーが得られる。ポリオール化合物の繰り返し構造部分は、接着層において、フォトクロミック化合物の構造変化を妨げにくいマトリックスを提供することに寄与し得る。ポリオール化合物を用いると、光学積層シートのフォトクロミック性が高まる傾向にある。

[0090] ポリオール化合物の数平均分子量は、500以上3000以下であることが好ましい。この範囲内の数平均分子量を含むポリオール化合物を用いると、所望の数平均分子量の第2プレポリマー及び第1ポリマーを得られる傾向にある。ポリオール化合物の数平均分子量は、800以上2000以下であることがより好ましい。

[0091] ポリオール化合物は、ポリエーテルポリオール、ポリエステルポリオール、ポリカーボネートポリオール、及びポリカプロラクトンポリオールからな

る群から選ばれる少なくとも1種を含み得る。ポリオール化合物は、ポリカーボネートポリオールを含むことが好ましい。ポリカーボネートポリオールを用いると、光学積層シートの密着性が高まる傾向にある。

[0092] ポリカーボネートポリオールは、例えば、低分子ポリオール類の1ホスゲン化、あるいは、エチレンカーボネート、ジエチルカーボネート、及びジフェニルカーボネート等のエステル交換法により得られる。低分子ポリオールの例としては、エチレングリコール、1, 2-プロパンジオール、1, 3-プロパンジオール、2-メチル-1, 3-プロパンジオール、1, 2-ブタンジオール、1, 3-ブタンジオール、1, 4-ブタンジオール、1, 5-ペンタンジオール、1, 6-ヘキサンジオール、1, 8-オクタンジオール、1, 9-ノナンジオール、1, 10-デカンジオール、3-メチル-1, 5-ペンタンジオール、2-エチル-4-ブチル-1, 3-プロパンジオール、ジエチレングリコール、ジプロピレングリコール、ネオペンチルグリコール、シクロヘキサン-1, 4-ジオール、シクロヘキサン-1, 4-ジメタノール、ダイマー酸ジオール、ビスフェノールAのエチレンオキサイドやプロピレンオキサイド付加物、ビス(β -ヒドロキシエチル)ベンゼン、キシリレングリコール、グリセリン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール等が挙げられる。

[0093] ポリカーボネートポリオールとしては、旭化成株式会社製「デュラノール(登録商標)」シリーズ、株式会社クラレ製「クラレポリオール(登録商標)」シリーズ、株式会社ダイセル製「プラクセル(登録商標)」シリーズ、東ソー株式会社製「ニッポラン(登録商標)」シリーズ、UBE株式会社製「ETERNACOLL(登録商標)」シリーズなどを用い得る。

[0094] ポリカプロラクトンポリオールは、例えば、 ϵ -カプロラクトンの開環重合により得られる。ポリカプロラクトンポリオールとしては、株式会社ダイセル製「プラクセル(登録商標)」シリーズなどを用い得る。

[0095] ポリエーテルポリオールは、例えば、分子中に活性水素基を2個以上有する化合物とアルキレンオキサイドとの反応により得られる。活性水素含有基

を2個以上有する化合物としては、水、エチレングリコール、プロピレングリコール、ブタンジオール、グリセリン、トリメチロールプロパン、ヘキサントリオール、トリエタノールアミン、ジグリセリン、ペンタエリスリトール、トリメチロールプロパン、ヘキサントリオールなどが挙げられる。アルキレンオキサイドとしては、エチレンオキサイド、プロピレンオキサイド、テトラヒドロフラン等の環状エーテル化合物が挙げられる。

[0096] ポリエーテルポリオールとしては、A G C株式会社製「エクセノール（登録商標）」シリーズ及び「エマルスター（登録商標）」シリーズ、株式会社 A D E K A 製「アデカポリエーテル」シリーズなどが挙げられる。

[0097] ポリエステルポリオールは、例えば、多価アルコールと多塩基酸との縮合反応により得られる。多価アルコールとしては、エチレングリコール、1, 2-プロパンジオール、1, 3-ブタンジオール、1, 4-ブタンジオール、3-メチル-1, 5-ペンタンジオール、1, 6-ヘキサジオール、3, 3'-ジメチロールヘプタン、1, 4-シクロヘキサジメタノール、ネオペンチルグリコール、3, 3-ビス（ヒドロキシメチル）ヘプタン、ジエチレングリコール、ジプロピレングリコール、グリセリン、トリメチロールプロパンなどが挙げられる。多塩基酸としては、コハク酸、アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカンジカルボン酸、シクロペンタンジカルボン酸、シクロヘキサジカルボン酸、オルトフタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、ナフタレンジカルボン酸などが挙げられる。

[0098] ポリエステルポリオールとしては、D I C株式会社製「ポリライト（登録商標）」シリーズ、東ソー株式会社製「ニッポラン（登録商標）」シリーズ、エア・ウォーター・パフォーマンスケミカル株式会社製「マキシモール（登録商標）」シリーズなどを用い得る。

[0099] ポリチオール化合物は、脂肪族ポリチオール、芳香族ポリチオール、及びメルカプト基以外に硫黄原子を含有するポリチオールからなる群より選択される少なくとも1種を含み得る。

[0100] 脂肪族ポリチオールの例には、メタンジチオール、1, 2-エタンジチオ

ール、1, 1-プロパンジチオール、1, 2-プロパンジチオール、1, 3-プロパンジチオール、2, 2-プロパンジチオール、1, 6-ヘキサジチオール、1, 2, 3-プロパントリチオール、テトラキス(メルカプトメチル)メタン、1, 1-シクロヘキサジチオール、1, 2-シクロヘキサジチオール、2, 2-ジメチルプロパン-1, 3-ジチオール、3, 4-ジメトキシブタン-1, 2-ジチオール、2-メチルシクロヘキサン-2, 3-ジチオール、1, 1-ビス(メルカプトメチル)シクロヘキサン、チオリンゴ酸ビス(2-メルカプトエチルエステル)、2, 3-ジメルカプトコハク酸(2-メルカプトエチルエステル)、2, 3-ジメルカプト-1-プロパノール(2-メルカプトアセテート)、2, 3-ジメルカプト-1-プロパノール(3-メルカプトアセテート)、ジエチレングリコールビス(2-メルカプトアセテート)、ジエチレングリコールビス(3-メルカプトプロピオネート)、1, 2-ジメルカプトプロピルメチルエーテル、2, 3-ジメルカプトプロピルメチルエーテル、2, 2-ビス(メルカプトメチル)-1, 3-プロパンジチオール等が含まれる。

[0101] 芳香族ポリチオールの例には、1, 2-ジメルカプトベンゼン、1, 3-ジメルカプトベンゼン、1, 4-ジメルカプトベンゼン、1, 2-ビス(メルカプトメチル)ベンゼン、1, 3-ビス(メルカプトメチル)ベンゼン、1, 4-ビス(メルカプトメチル)ベンゼン、1, 3-ビス(メルカプトエチル)ベンゼン、1, 4-ビス(メルカプトエチル)ベンゼン、1, 2-ビス(メルカプトメトキシ)ベンゼン、1, 3-ビス(メルカプトメトキシ)ベンゼン、1, 4-ビス(メルカプトメトキシ)ベンゼン、1, 2-ビス(メルカプトエトキシ)ベンゼン、1, 3-ビス(メルカプトエトキシ)ベンゼン、1, 4-ビス(メルカプトエトキシ)ベンゼン、1, 2, 3-トリメルカプトベンゼン、1, 2, 4-トリメルカプトベンゼン、1, 3, 5-トリメルカプトベンゼン、1, 2, 3-トリス(メルカプトメチル)ベンゼン、1, 2, 4-トリス(メルカプトメチル)ベンゼン、1, 3, 5-トリス(メルカプトメチル)ベンゼン、1, 2, 3-トリス(メルカプトエチル)

ベンゼン、1, 2, 4-トリス(メルカプトエチル)ベンゼン、1, 3, 5-トリス(メルカプトエチル)ベンゼン、1, 2, 3-トリス(メルカプトメトキシ)ベンゼン、1, 2, 4-トリス(メルカプトメトキシ)ベンゼン、1, 3, 5-トリス(メルカプトメトキシ)ベンゼン、1, 2, 3-トリス(メルカプトエトキシ)ベンゼン、1, 2, 4-トリス(メルカプトエトキシ)ベンゼン、1, 3, 5-トリス(メルカプトエトキシ)ベンゼン、1, 2, 3, 4-テトラメルカプトベンゼン、1, 2, 3, 5-テトラメルカプトベンゼン、1, 2, 4, 5-テトラメルカプトベンゼン、1, 2, 3, 4-テトラキス(メルカプトメチル)ベンゼン等が含まれる。

[0102] メルカプト基以外に硫黄原子を含有するポリチオールの場合には、ビス(メルカプトメチル)スルフィド、ビス(メルカプトエチル)スルフィド、ビス(メルカプトプロピル)スルフィド、ビス(メルカプトメチルチオ)メタン、ビス(2-メルカプトエチルチオ)メタン、ビス(3-メルカプトプロピルチオ)メタン、1, 2-ビス(メルカプトメチルチオ)エタン、1, 2-ビス(2-メルカプトエチルチオ)エタン、1, 2-ビス(3-メルカプトプロピルチオ)エタン、1, 3-ビス(メルカプトメチルチオ)プロパン、1, 3-ビス(2-メルカプトエチルチオ)プロパン、1, 3-ビス(3-メルカプトプロピルチオ)プロパン、1, 2-ビス(2-メルカプトエチルチオ)-3-メルカプトプロパン、2-メルカプトエチルチオ-1, 3-プロパンジチオール、1, 2, 3-トリス(メルカプトメチルチオ)プロパン、1, 2, 3-トリス(2-メルカプトエチルチオ)プロパン等が含まれる。

[0103] 第1多官能活性水素化合物の量は、第1多官能活性水素化合物に含まれる活性水素基のモル量M11と、第1イソ(チオ)シアネート化合物に含まれるイソ(チオ)シアネート基のモル量M12との比M11/M12が、0.1以上0.5以下となるように調整されることが好ましい。比M11/M12が上記の範囲内にあると、第1プレポリマーに十分な量のウレタン結合及びウレア結合の少なくとも一方が形成され、かつ、フォトクロミック化合物

の構造変化を阻害しにくい柔軟な接着層を形成できる。比M11/M12は、0.30以上0.50以下であることが好ましく、0.5であることがより好ましい。

[0104] 第1多官能活性水素化合物の質量S1と、第1イソ（チオ）シアネート化合物の質量S2との比S1/S2は、0.1以上1.0以下であることが好ましい。比S1/S2が上記の範囲内にあると、単位質量当たりには十分な量のイソシアネート基を有する第2プレポリマーが得られる。比S1/S2は、0.8以上5以下であることが好ましく、1以上3以下であることがより好ましい。

[0105] (第2多官能活性水素化合物)

第2多官能活性水素化合物は、2以上の活性水素基を有する。第2多官能活性水素化合物は、第1プレポリマーと反応し、第2プレポリマーを生成する。第2多官能活性水素化合物は、第1プレポリマー同士を連結する鎖延長剤として機能する。第2多官能活性水素化合物は、2つの活性水素基を有することが好ましい。第2多官能活性水素化合物としては、第1多官能活性水素化合物で挙げた化合物を用い得る。

[0106] 第2多官能活性水素化合物は、ポリアミンを含むことが好ましい。ポリアミンを用いると、（チオ）ウレタンウレア結合を有する第2プレポリマーが得られる。このような第2プレポリマーを用いると、光学積層シートの密着性が高まる傾向にある。ポリアミンのモル質量は、50以上500以下であることが好ましい。モル質量がこの範囲内にあるポリアミンを用いると、所望の数平均分子量の第2プレポリマーを得られる傾向にある。ポリアミンのモル質量は、50以上300以下であることがより好ましい。ポリアミンは、ジアミン及びトリアミンを含み、ジアミンを含むことが好ましい。

[0107] ポリアミンとしては、イソホロンジアミン、エチレンジアミン、1,2-ジアミノプロパン、1,3-ジアミノプロパン、1,2-ジアミノブタン、1,3-ジアミノブタン、1,4-ジアミノブタン、1,5-ジアミノペンタン、1,6-ジアミノヘキサン、ピペラジン、N,N-ビス（2-アミ

ノエチル) ピペラジン、ビス(4-アミノシクロヘキシル)メタン、ビス(4-アミノ-3-ブチルシクロヘキシル)メタン、1, 2-, 1, 3-及び1, 4-ジアミノシクロヘキサン、ノルボルナンジアミン、ヒドラジン、アジピン酸ジヒドラジン、フェニレンジアミン、4, 4'-ジフェニルメタンジアミン、N, N'-ジエチルエチレンジアミン、N, N'-ジメチルエチレンジアミン、N, N'-ジプロピルエチレンジアミン、N, N'-ジブチルエチレンジアミン、N-メチルエチレンジアミン、N-エチルエチレンジアミン、ビス(ヘキサメチレン)トリアミン、1, 2, 5-ペンタントリアミン等が挙げられる。

[0108] ポリアミンは、イソホロンジアミン、エチレンジアミン、ビス(4-アミノシクロヘキシル)メタン、及び1, 6-ジアミノヘキサンからなる群より選ばれる少なくとも1種を含むことが好ましい。

[0109] 第2多官能活性水素化合物の量は、第2多官能活性水素化合物に含まれる活性水素基のモル量M13と、第1プレポリマーに含まれるイソ(チオ)シアネート基のモル量M14との比M13/M14が、0.21以上0.50以下となるように調整されることが好ましい。比M13/M14が上記の範囲内にあると、十分な量の第2プレポリマーが生成される。

[0110] 第2多官能活性水素化合物の質量S3と、第1プレポリマーの質量S4との比S3/S4は、0.01以上0.5以下であることが好ましい。比S3/S4が上記の範囲内にあると、単位質量当たりには十分な量のイソシアネート基を有する第2プレポリマーが得られる。比S3/S4は、0.08以上0.3以下であることがより好ましい。

[0111] (第1ポリマー)

第1ポリマーは、第2プレポリマーと1つの活性水素基を有する単官能活性水素化合物とを反応させて得られる。第1ポリマーは、典型的には、イソ(チオ)シアネート基を有さない。第1ポリマーの末端は、非反応性の官能基で修飾されている。第1ポリマーは、ウレタンポリマー、ウレアポリマー、ウレタンウレアポリマー、チオウレタンポリマー、チオウレアポリマー、

及びチオウレタンウレアポリマーからなる群より選ばれる少なくとも1種を含む。

[0112] 第1ポリマーは、高温下で、第2プレポリマー及び／又は第3プレポリマー、並びに第1及び第2光学シートの表面上の水酸基と化学結合して、(チオ)ウレタン樹脂、(チオ)ウレア樹脂、及び(チオ)ウレタンウレア樹脂からなる群より選ばれる少なくとも1種を生成する。

[0113] 第1ポリマーの数平均分子量は、5000以上であることが好ましく、10000以上であることがより好ましく、13000以上であることが更に好ましい。数平均分子量が大きい第1ポリマーを用いると、光学積層シートの剥離強度が高まる傾向にある。第1ポリマーの数平均分子量は、5000以下であることが好ましく、40000以下であることがより好ましく、30000以下であることが更に好ましい。第1ポリマーの数平均分子量が過剰に大きいと、光学積層シートの剥離強度が低まる傾向にある。この数平均分子量は、第2プレポリマーと同様の方法で測定できる。

[0114] 第1ポリマーの軟化点は、90℃以上であることが好ましく、100℃以上であることがより好ましく、110℃以上であることが更に好ましい。第1ポリマーの軟化点が高いと、光学積層シートの耐熱性が向上し、密着性がより高まる傾向にある。第1ポリマーの軟化点に上限は特にはないが、一例によると、200℃以下であり、他の例によると、160℃以下である。混合物の軟化点は、第2プレポリマーと同様の方法で測定できる。

[0115] 第1ポリマーは、第2プレポリマーとの混合物として存在し得る。第1ポリマーと第2プレポリマーとの混合物は、単官能活性水素化合物の量を調整することにより得られる。すなわち、第2プレポリマーに含まれるイソ(チオ)シアネート基のモル量M6と、単官能活性水素化合物に含まれる活性水素基のモル量M5との比M5/M6が、1を下回るように調整されることにより、第2プレポリマーと、第2プレポリマーのイソ(チオ)シアネート基が単官能活性水素化合物で保護された第1ポリマーとの混合物が生成される。比M5/M6は、0.75以上0.95以下であることが好ましい。

- [0116] この混合物の数平均分子量は、5000以上であることが好ましく、10000以上であることがより好ましく、13000以上であることが更に好ましい。数平均分子量が大きい混合物を用いると、光学積層シートの剥離強度が高まる傾向にある。混合物の数平均分子量は、50000以下であることが好ましく、40000以下であることがより好ましく、30000以下であることが更に好ましい。混合物の数平均分子量が過剰に大きいと、光学積層シートの剥離強度が低まる傾向にある。この数平均分子量は、第2プレポリマーと同様の方法で測定できる。
- [0117] この混合物の軟化点は、90℃以上であることが好ましく、100℃以上であることがより好ましく、110℃以上であることが更に好ましい。混合物の軟化点が高いと、光学積層シートの耐熱性が向上し、密着性がより高まる傾向にある。混合物の軟化点に上限は特にないが、一例によると、200℃以下であり、他の例によると、160℃以下である。混合物の軟化点は、第2プレポリマーと同様の方法で測定できる。
- [0118] 接着性組成物の固形分において、第1ポリマーが占める割合は、例えば、75質量%以上95質量%以下である。
- [0119] 第1ポリマーと第2プレポリマーとの混合物は、第4プレポリマーを含み得る。第4プレポリマーは、第2プレポリマーのイソ（チオ）シアネート基の一部が単官能活性水素化合物で保護され、残部が保護されていない化合物である。第4プレポリマーは、1つのイソ（チオ）シアネート基と、1つの単官能活性水素化合物保護基とを含み得る。第4プレポリマーは、イソ（チオ）シアネート基を有しているため、第2プレポリマーと同様に光学積層シートの密着性を高め得る。
- [0120] 第1ポリマー、第2プレポリマー、及び第4プレポリマーの混合物において、第1ポリマーが占める割合は、一例によると、1質量%以上40質量%以下であり、他の例によると、10質量%以上30質量%以下である。上記混合物において、第2プレポリマーが占める割合は、一例によると、1質量%以上40質量%以下であり、他の例によると、10質量%以上30質量%

以下である。上記混合物において、第4プレポリマーが占める割合は、一例によると、1質量%以上80質量%以下であり、他の例によると、40質量%以上80質量%以下である。

[0121] 接着層は、第1ポリマー、第2プレポリマー、及び第4プレポリマーを含む接着性組成物の硬化体であってもよく、第1ポリマー、及び第4プレポリマーを含む接着性組成物の硬化体であってもよい。

[0122] (単官能活性水素化合物)

単官能活性水素化合物は、1つの活性水素基を有する。単官能活性水素化合物は、第2プレポリマーのイソ(チオ)シアネート基と反応し、第1ポリマーを生成して、更なる反応を停止させる。活性水素基は、水酸基、アミノ基、カルボキシル基、及びチオール基からなる群より選ばれる少なくとも1種を含む。

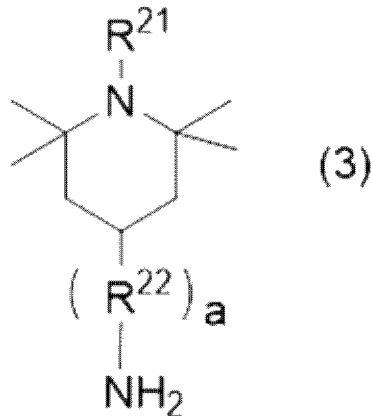
[0123] 単官能活性水素化合物は、例えば、1つの水酸基を含むモノオール化合物、1つのアミノ基を含むモノアミン化合物、1つのカルボキシル基を含むカルボン酸、及び1つのチオール基を含むモノチオール化合物からなる群より選択される少なくとも1種を含む。単官能活性水素化合物としては、単一種類を用いてもよく、複数種類を混合して用いてもよい。

[0124] 単官能活性水素化合物は、モノアミン化合物であることが好ましい。モノアミン化合物を用いると、(チオ)ウレア結合を有する第1ポリマーが得られる。

[0125] 単官能活性水素化合物は、下記式(3)に表されるように、2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル部位を有するアミンを含むことが好ましい。2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル部位を有するアミンは、ヒンダードアミンとして機能し得るため、光学積層シートの光安定性を高められる。

[0126]

[化2]



[0127] 式(3)において、 R^{21} は、水素原子又は炭素数1～3のアルキル基である。 R^{22} は、炭素数1～3のアルキレン基である。 a は、0又は1である。

[0128] 単官能活性水素化合物は、 R^{21} がメチル基であり、 a が0である1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-アミノピペリジンであることが好ましい。

[0129] 単官能活性水素化合物の質量 $S5$ と、第2プレポリマーの質量 $S6$ との比 $S5/S6$ は、0.001以上0.100以下であることが好ましい。比 $S5/S6$ が上記の範囲内にあると、単位質量あたりに十分な量のイソシアネート基を有する第1ポリマーが得られる。比 $S5/S6$ は、0.010以上0.030以下であることがより好ましい。

[0130] (第3プレポリマー)

第3プレポリマーは、第1多官能活性水素化合物と第1イソ(チオ)シアネート化合物とを反応させて得られる2以上のイソ(チオ)シアネート基を有する化合物である。すなわち、第3プレポリマーは、第1プレポリマーと同様の化合物である。第3プレポリマーは、高温下で、第1プレポリマー及び第1及び第2基光学シートの表面上の水酸基と化学結合して、(チオ)ウレタン樹脂、(チオ)ウレア樹脂、及び(チオ)ウレタンウレア樹脂からなる群より選ばれる少なくとも1種を生成する。

[0131] 接着性組成物が、第1ポリマー及び第3プレポリマーを含む重合成分とフォトクロミック化合物との第3若しくは第4の組み合わせの場合、接着性組

成物の固形分において第3プレポリマーが占める割合は、例えば、5質量%以上20質量%以下である。

[0132] (添加剤)

接着性組成物は、例えば、重合触媒、重合開始剤、帯電防止剤、内部離型剤、酸化防止剤、光安定剤、着色防止剤、蛍光染料、染料、顔料、香料、溶剤、レベリング剤、及び樹脂改質剤からなる群より選択される少なくとも1種の添加剤を含んでいてもよい。接着性組成物は、酸化防止剤及びレベリング剤の少なくとも一方を含むことが好ましい。

[0133] 酸化防止剤としては、2, 6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノール、BASFジャパン株式会社製IRGANOX 245:エチレンビス(オキシエチレン)ビス[3, 5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-m-トルイル]プロピオネート]、BASFジャパン株式会社製IRGANOX 1076:オクタデシル-3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、BASFジャパン株式会社製IRGANOX 1010:ペンタエリスリトールテトラキス[3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、BASFジャパン株式会社製のIRGANOX 1035、1075、104、3790、5057、565等を用い得る。

[0134] レベリング剤としては、シリコーン界面活性剤、フッ素含有界面活性剤等を用い得る。具体的には、ダウ・東レ株式会社製L-7001、L-7002、L-7604、FZ-2123、DIC株式会社製メガファックF-470、メガファックF-1405、メガファックF-479、スリーエムジャパン株式会社製フローラッドFC-430等を用い得る。

[0135] 光安定剤としては、2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル骨格を有するヒンダートアミン系の化合物を使用することが好ましく、市販のものを使用できる。例えば、ビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル)セバケート、ビス(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル)セバケート、ビス(1-オクチルオキシ-2, 2, 6, 6-テトラ

メチル-4-ピペリジル)セバケート、1-[2-{3-(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオニルオキシ}エチル]-4-{3-(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオニルオキシ}-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン、4-ベンゾイルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン、メチル(1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル)セバケート、1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジニルメタクリレート、2-[[3,5-ビス(1,1-ジメチルエチル)-4-ヒドロキシフェニル]メチル]-2-ブチルプロパン二酸[1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジニル]、ポリ[{6-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)アミノ-1,3,5-トリアジン-2,4-ジイル} { (2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)イミノ}ヘキサメチレン { (2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)イミノ}]、1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジニルメタクリレート等が挙げられる。商品名としては、株式会社ADEKA製アデカスタブ(登録商標)LAシリーズ(LA-52, LA-57, LA-63P, LA-68, LA-72, LA-77Y, LA-81, LA-82など)、BASFジャパン株式会社製のTINUVIN(登録商標)シリーズ(TINUVIN123, TINUVIN171, TINUVIN249, TINUVIN292, TINUVIN765, TINUVIN622SFなど)、Chimassorb(登録商標)シリーズ(Chimassorb2020FDL, Chimassorb944FDL)等が挙げられる。

[0136] 接着性組成物の固形分において、添加剤が占める割合は、例えば、0.1質量%以上1質量%以下である。

[0137] (有機溶媒)

接着性組成物は、その粘度を調整するために、有機溶媒を含んでいてもよい。有機溶媒は、テトラヒドロフラン、ジエチルケトン、*t*-ブチルアルコール、イソプロピルアルコール、プロピレングリコールモノメチルエーテル

、トルエン、酢酸エチル、及びシクロヘキサノンからなる群より選ばれる少なくとも1種を含み得る。

[0138] 接着性組成物において、有機溶媒が占める割合は、例えば、30質量%以上80質量%以下である。

[0139] (接着性組成物の製造方法)

接着性組成物は、例えば、下記第1乃至第4の製造方法により得られる。

[0140] 接着性組成物の第1の製造方法は、第1多官能活性水素化合物と第1イソ(チオ)シアネート化合物とを反応させて第1プレポリマーを得ることと、第1プレポリマーと第2多官能活性水素化合物とを反応させて第2プレポリマーを得ることと、第2プレポリマーとフォトクロミック化合物と任意の添加剤とを混合することを含む。

[0141] 接着性組成物の第2の製造方法は、第1多官能活性水素化合物と第1イソ(チオ)シアネート化合物とを反応させて第1プレポリマーを得ることと、第1プレポリマーと第2多官能活性水素化合物とを反応させて第2プレポリマーを得ることと、第2プレポリマーと単官能活性水素化合物とを反応させて第1ポリマー及び第2プレポリマーの混合物を得ることと、第1ポリマー、第2プレポリマー、フォトクロミック化合物及び任意の添加剤を混合することを含む。

[0142] 接着性組成物の第3の製造方法は、第1多官能活性水素化合物と第1イソ(チオ)シアネート化合物とを反応させて第1プレポリマー及び第3プレポリマーを得ることと、第1プレポリマーと第2多官能活性水素化合物とを反応させて第2プレポリマーを得ることと、第2プレポリマーと単官能活性水素化合物とを反応させて第1ポリマーを得ることと、第1ポリマー、第3プレポリマー、フォトクロミック化合物及び任意の添加剤を混合することを含む。

[0143] 接着性組成物の第4の製造方法は、第1多官能活性水素化合物と第1イソ(チオ)シアネート化合物とを反応させて第1プレポリマーを得ることと、第1プレポリマーと第2多官能活性水素化合物とを反応させて第2プレポリ

マーを得ることと、第2プレポリマーと単官能活性水素化合物とを反応させて第1ポリマー、第2プレポリマー及び第4プレポリマーの混合物を得ることと、第1ポリマー、第2プレポリマー、第4プレポリマー、フォトクロミック化合物及び任意の添加剤を混合することを含む。

[0144] 第1多官能活性水素化合物と第1イソ（チオ）シアネート化合物との反応は、有機溶媒存在下で行われることが好ましい。有機溶媒としては上述したものをを用い得る。この反応は、窒素雰囲気下で行われることが好ましい。また、この反応は、例えば、60℃以上150℃以下の反応温度で、3時間以上10時間以下にわたって行われる。この反応は、イソシアネート基の逆滴定法により、終点を確認されるまで行われることが好ましい。

[0145] 第1プレポリマーと第2多官能活性水素化合物との反応は、有機溶媒存在下で行われることが好ましい。有機溶媒としては上述したものをを用い得る。この反応は、窒素雰囲気下で行われることが好ましい。また、この反応は、例えば、10℃以上30℃以下の反応温度で、0.1時間以上5時間にわたって行われる。

[0146] 第2プレポリマーと単官能活性水素化合物との反応は、有機溶媒存在下で行われることが好ましい。有機溶媒としては上述したものをを用い得る。この反応は、窒素雰囲気下で行われることが好ましい。また、この反応は、例えば、-10℃以上10℃以下の反応温度で、0.1時間以上5時間以下にわたって行われる。

[0147] （透明支持体）

透明支持体は、例えば、光学積層シートの強度を向上可能な自立膜である。透明支持体は、光学的に透明であればよい。透明支持体は、無色透明であってもよく、白色透明であってもよく、有色透明であってもよい。透明支持体の視感透過率は、30%以上であることが好ましい。透明支持体の視感透過率は、UV-Vis分光光度計により測定できる。

[0148] 透明支持体の材質は特に限定されない。透明支持体は、例えば、樹脂フィルム、又は、セラミックフィルムである。透明支持体は、ポリエチレンテレ

フタレート、トリアセチルセルロース、ポリアミド、ポリカーボネートシート、セルロースアセテートブチレート、及び、(メタ)アクリルからなる群より選択される少なくとも1種の樹脂を含むことが好ましく、ポリエチレンテレフタレート、トリアセチルセルロース、ポリアミド、及びポリカーボネートシートからなる群より選択される少なくとも1種の樹脂を含むことがより好ましい。

[0149] 透明支持体の厚みは、第1及び第2光学シートの厚みよりも厚いことが好ましい。透明支持体の厚みは、50 μ m以上であることが好ましく、100 μ m以上であることが好ましく、200 μ m以上であることがより好ましい。透明支持体の厚みが厚いと、光学積層シートの強度がより高まる傾向にある。透明支持体の厚みに上限は特にはないが、一例によると、1000 μ m以下であり、他の例によると、500 μ m以下である。透明支持体の厚みは、例えば、PVAシートの厚みと同様の方法で測定できる。

[0150] 透明支持体は、上述したその他の樹脂フィルムと同様に、その表面に表面改質領域を備えることが好ましい。表面改質領域を有する透明支持体を用いると、第1及び第2接着層との密着性が高まる傾向にある。表面改質領域は、透明支持体の両方の主面上に設けられていることが好ましい。

[0151] (第1及び第2接着層)

第1及び第2接着層は、上述した接着層と同様の構造を有し得る。

第2接着層は、フォトクロミック化合物等の機能性色素を含んでもよく、含まなくてもよい。第2接着層が機能性色素を含む場合、その構造は、第1接着層に含まれる機能性色素と同一であってもよく、異なってもよい。

[0152] 第2接着層の厚みは、第1接着層と同一でもよく、厚くてもよく、薄くてもよい。第2接着層の厚みは、例えば、0.1 μ m以上100 μ m以下であり、好ましくは、10 μ m以上50 μ m以下である。第2接着層の厚みは、第1及び第2光学シートの厚みよりも薄くてもよく、厚くてもよい。

[0153] (第1の製造方法)

以下、光学積層シートの第1の製造方法について詳細に説明する。

先ず、第1及び第2光学シートを準備する。

[0154] 次に、第1光学シートの少なくとも一方の主面上に接着性組成物を塗布して第1塗膜を得る。接着性組成物を塗布方法は、特に限定されない。接着性組成物の塗布方法としては、バーコーター等の器具を用いる方法、スピコート法、刷毛塗り、浸漬法等が挙げられる。第1塗膜は、例えば、60℃以上150℃以下の温度で1分間以上1時間以下にわたって乾燥させられることが好ましい。

[0155] 次に、第1塗膜上に第2光学シートを、例えば、正対するように積層させて第1積層体を得る。第1積層体について、ラミネートロール等を用いて張り合わせてもよい。

[0156] なお、第1積層体は、以下の方法により得てもよい。先ず、ポリエチレンテレフタレート等の第1及び第2光学シート以外の樹脂フィルムに、接着性組成物を塗布して第1塗膜を形成する。この第1塗膜を、第1光学シートの少なくとも一方の面に積層させる。この第1塗膜上に第2光学シートを積層させる。得られた積層体をラミネートロールで処理してもよい。

[0157] 次に、第1積層体を大気圧下で80℃以上200℃以下の温度で加熱処理する。これにより、第1塗膜に含まれるイソ（チオ）シアネート化合物のイソ（チオ）シアネート基と、PVAフィルムの表面の水酸基とが架橋し、第1光学シートと第2光学シートとが接合されると考えられる。加熱温度は、90℃以上150℃以下であることが好ましく、100℃以上130℃以下であることがより好ましい。加熱処理時間は、1時間以上10時間以下であることが好ましく、2時間以上8時間以下であることがより好ましく、3時間以上7時間以下であることが更に好ましい。

[0158] なお、第1積層体を得てから12時間以内に加熱処理に供することが好ましい。第1積層体を常温乃至80℃未満の環境下で長時間静置すると、第1塗膜内部において二酸化炭素が生成され、気泡が発生する恐れがある。したがって、第1積層体を得た直後に、より好ましくは10時間以内に、更に好ましくは6時間以内に加熱処理に供することが好ましい。また、第1塗膜を

形成してから20時間以内に第1積層体を加熱処理に供することが好ましい。加熱処理後の構造体を、室温で一週間以上静置してもよい。また、第1積層体を得た後、脱気処理を施さずに、加熱処理に供することが好ましい。脱気処理は、例えば、30℃以上80℃以下の温度下で、5000Pa~5000Pa以下の真空若しくは減圧下に5時間以上、第1積層体が静置されることにより行われる。第1積層体に脱気処理を施すと、気泡の発生により外観が低下するおそれがある。

[0159] 第1及び第2光学シートの厚みが薄い場合には、透明支持体を用いてもよい。すなわち、第1及び第2光学シートの少なくとも一方に透明支持体を貼り付け、第1積層体を得てから、各光学シートから透明支持体を取り外してもよい。また、第1塗膜上に透明支持体を積層させた後、透明支持体上に接着性組成物を塗布し、第2塗膜を形成し、この第2塗膜上に第2光学シートを積層させて、これを第1積層体としてもよい。

[0160] このようにして得られた光学積層シートは、第1塗膜から気泡が発生しにくいため、外観に優れている。

[0161] [光学積層シートの第2の製造方法]

光学積層シートの第2の製造方法において、第1光学シート及び第2光学シートは、延伸ポリビニルアルコールフィルムである。この製造方法は、第1光学シートの少なくとも一方の主面上に機能性色素及びイソ（チオ）シアネート化合物を含む接着性組成物を塗布し、第1塗膜を得ることと、第1塗膜上に第2光学シートを積層させて第1積層体を得ることと、第1積層体に加湿処理を施すことと、加湿処理後の第1積層体を大気圧下で80℃以上200℃以下の温度で加熱処理することを含む。

[0162] 光学積層シートの第2の製造方法は、第1光学シート及び第2光学シートとして無延伸ポリビニルアルコールフィルムではなく、延伸ポリビニルアルコールフィルムを用いること、及び、第1積層体に加湿処理を施した後に加熱処理に供すること以外は、第1の製造方法と同様である。

[0163] すなわち、本発明者らは鋭意研究した結果、延伸ポリビニルアルコールフ

ィルムを第1及び第2光学シートに用いる場合、第1積層体に加湿処理を施すことにより、気泡の少ない外観性に優れた光学積層シートを製造できることを見出した。この理由は、延伸ポリビニルアルコールフィルムのガスバリア性が、無延伸ポリビニルアルコールフィルムのガスバリア性よりも高いことに起因すると考えられる。すなわち、ガスバリア性が過剰に高い延伸ポリビニルアルコールフィルムを用いると、第1塗膜から生成し得るガスが外部へと放出されにくい。また、光学積層シートにしわが付き易いため、外観不良を生じ得る。このような延伸ポリビニルアルコールフィルムを用いた第1積層体を、加熱処理に供する前に加湿処理に供することにより、延伸ポリビニルアルコールフィルムのガスバリア性を一時的に低減させることができるため、脱気を十分に行うことができる。したがって、加湿処理後の第1積層体に加熱処理を施すことにより、気泡やしわが少ない外観性に優れた光学積層シートを得られる。

[0164] 加湿処理の温度は、70℃以上100℃以下であることが好ましい。この温度範囲で加湿処理を施すことにより、より気泡が生じにくくなる。加湿処理の温度は、75℃以上95℃以下であることがより好ましく、80℃以上90℃以下であることが更に好ましい。

[0165] 加湿処理の相対湿度は、70%RH以上90%RH以下であることが好ましい。この相対湿度範囲で加湿処理を施すことにより、より気泡が生じにくくなる。加湿処理の相対湿度は、75%RH以上85%RH以下であることがより好ましい。

[0166] 加湿処理時間は、30分以上3時間以下であることが好ましい。この時間内で加湿処理を施すことにより、第1塗膜内での二酸化炭素の生成を抑制しつつ、延伸ポリビニルアルコールフィルムに十分に吸湿させることができる。加湿処理時間は、1時間以上2.5時間以下であることが好ましく、1.5時間以上2.5時間以下であることがより好ましい。

[0167] なお、第1積層体を得てから6時間以内に加湿処理に供することが好ましく、4時間以内に加湿処理に供することがより好ましい。また、加湿処理後

の第1積層体を、3時間以内に加熱処理に供することが好ましく、2時間以内に加熱処理に供することがより好ましい。また、第1塗膜を形成してから20時間以内に第1積層体を加湿処理に供することが好ましく、24時間以内に第1積層体を加熱処理に供することが好ましい。また、第1積層体を得た後、脱気処理を施さずに、加熱処理に供することが好ましい。

[0168] [光学物品]

光学物品は、実施形態に係る第1又は第2の製造方法で得られた光学積層シートを含む。光学物品としては、レンズ、家屋や自動車の窓ガラス、液晶ディスプレイ、サンバイザー、時計等が挙げられる。レンズは、セミフィニッシュドレンズ及びフィニッシュドレンズを含む。

[0169] 図2は、光学物品の一例を概略的に示す断面図である。図2に示す光学物品10は、第1光学素子基材11と、第2光学素子基材12と、これらの中に介在する光学積層シート1とを含む。光学物品10は、凹凸レンズ形状を有している。光学積層シート1は、レンズの形状に沿った曲面を有している。第1光学素子基材11は凹面側に位置し、第2光学素子基材12は凸面側に位置している。第1光学素子基材11は、光学積層シート1の図示しない第1光学シートの表面全体を被覆している。第2光学素子基材12は、光学積層シート1の図示しない第2光学シートの表面全体を被覆している。光学積層シート1の側面は、第1及び第2光学素子基材により被覆されていない。光学積層シート1の側面は、第1及び第2光学素子基材により被覆されていてもよい。

[0170] 図3は、光学物品を含む眼鏡の一例を概略的に示す斜視図である。図3に示す眼鏡100は、レンズ101と、このレンズ101を支持するフレーム102とを含む。レンズ101は、図2に示す光学物品を含む。

[0171] [光学物品の製造方法]

光学物品の製造方法は、実施形態に係る方法で得られた光学積層シートの第1光学シート及び第2光学シートの少なくとも一方の表面を光学素子基材で被覆することを含む。

[0172] 光学素子基材は、樹脂を含み得る。樹脂は、ポリエステル樹脂、ポリアミド樹脂、アリル樹脂、アクリル樹脂、メタクリル樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリウレタンウレア樹脂、ポリチオウレタン樹脂、ポリチオウレタンウレア樹脂、ポリチオエポキシ樹脂、及びポリカーボネート樹脂よりなる群から選ばれる少なくとも1種を含み得る。

[0173] 光学物品のより具体的な製造方法を以下に説明する。

先ず、鋳型及びガスケットを準備する。鋳型は、上型と下型とを含む。上型と下型とを組み合わせるにより、内部に中空部が形成される。ガスケットは、この上型と下型との境界面に設置される。ガスケットの内側には、光学積層シートを固定するための切込みが設けられている。ガスケットの内側には、切込みの代わりに、凸部又は凹部が設けられていてもよい。鋳型及びガスケットは、例えば、公知のプラスチックレンズ成型用のものである。

[0174] 次に、ガスケットの切込みに光学積層シートの端部を差し込み固定する。このガスケットを、鋳型の境界面に設置する。これにより、鋳型の中空部内にまたがるように光学積層シートが設置される。次に、この鋳型の中空部内に、光学素子基材を形成可能な硬化性組成物を充填する。硬化性組成物充填後の鋳型を、熱処理して、硬化性組成物を硬化させる。熱処理に際しては、例えば、常温から硬化温度まで徐々に昇温し、硬化温度に達した後、一定時間保持する。硬化温度は、硬化性組成物の種類によって異なる。硬化温度は、例えば、60℃以上100℃以下である。昇温速度は、例えば、1℃/時間以上10℃/時間以下である。硬化温度での保持時間は、例えば、1時間以上30時間以下である。

[0175] 熱処理終了後、鋳型から硬化体を取り出す。取り出した硬化体を、60℃以上150℃以下の範囲内で更に1時間以上10時間以下にわたって加熱する。このようにして、光学積層シートの第1及び第2光学シートの表面が、光学素子基材により被覆された光学物品が得られる。

[0176] 光学物品は、以下の方法により得てもよい。先ず、上記の鋳型の下型に、硬化性組成物の一部を充填する。充填後の硬化性組成物の表面に、光学積層

シートを設置する。次に、下型と向き合うように上型を設置して中空部を形成する。この中空部内に硬化性組成物の残りを充填する。得られた鋳型を上記と同様の方法で加熱し、硬化体を得る。このようにして、光学積層シートの主面及び側面の全面が、光学素子基材により被覆された実施形態に係る光学物品が得られる。

[0177] また、光学積層シートは、以下の方法により得てもよい。まず、鋳型の上面に沿うように光学積層シートを設置する。光学積層シートの鋳型の上面と接しない面、すなわち、裏面側に向けて硬化性組成物を充填し、上記と同様の条件で熱処理し、第1光学素子基材を得る。この第1光学素子基材を、鋳型内に設置する。光学積層シートの第1光学素子基材により被覆されていない表面に向けて硬化性組成物を充填し、上記と同様の条件で熱処理し、第2光学素子基材を得る。このようにして、光学積層シートの主面と任意に側面とが、光学素子基材により被覆された積層体を得られる。

[0178] 光学素子基材形成用の硬化性組成物について詳細に記述する。

アリル系樹脂用の硬化性組成物は、アリル基を有するアリルモノマーと重合開始剤とを含む。アリルモノマーは、例えば、ジエチレングリコールビスアリルカーボネート、ジアリルイソフタレート、及びジアリルテレフタレートからなる群より選ばれる少なくとも1種を含む。重合開始剤は、例えば、ジイソプロピルパーオキシカーボネートを含む。

[0179] (メタ)アクリル系樹脂用の硬化性組成物は、(メタ)アクリレート基を有する(メタ)アクリルモノマーと重合開始剤とを含む。

[0180] ウレタンウレア系樹脂用の硬化性組成物は、ポリイソシアネート化合物とポリオール化合物とのプレポリマー、及び、ジアミン化合物とを含む。ポリイソシアネート化合物、ポリオール化合物、及びジアミン化合物としては、それぞれ、接着性組成物において上述したものをを用い得る。

[0181] チオウレタン系樹脂用の硬化性組成物は、ポリイソシアネート化合物とポリチオール化合物と重合触媒とを含む。ポリイソシアネート化合物としては、接着性組成物において上述したものをを用い得る。

[0182] チオエポキシ系樹脂用の硬化性組成物は、チオエポキシ基を有するモノマーと硬化剤と重合触媒とを含む。

実施例

[0183] <例1>

(第1プレポリマーFPP1の製造)

2Lの反応容器に、100gの第1イソシアネート化合物F11、315gの第1多官能活性水素化合物FA1、及び40gの有機溶媒OS1を投入して混合物を得た。第1イソシアネート化合物F11としては、イソホロンジイソシアネートを用いた。第1多官能活性水素化合物FA1としては、数平均分子量1000のポリカーボネートジオールを用いた。有機溶媒OS1としては、ジエチルケトンを用いた。窒素雰囲気下、100℃で5時間にわたってこの混合物を150rpmで攪拌して、第1プレポリマーを含む反応液を得た。以下、この第1プレポリマーを、第1プレポリマーFPP1とも称する。反応の終点は、イソシアネート基の逆滴定法により確認した。

[0184] (第2プレポリマーSPP1の製造)

第1プレポリマーFPP1を含む10℃の反応液に、560gの有機溶媒OS1と150gの有機溶媒OS2を加えた後、液温を15℃に保持した。有機溶媒OS2としては、tert-ブチルアルコールを用いた。この反応液に、21.3gの第2多官能活性水素化合物SA1を滴下し、15℃で1時間反応させることにより、第2プレポリマーを含む反応液を得た。この第2多官能活性水素化合物SA1としては、ビス-(4-アミノシクロヘキシル)メタンを用いた。以下、この第2プレポリマーを、第2プレポリマーSPP1とも称する。なお、第2プレポリマーSPP1を含む反応液において、固形分濃度は37.6質量%であった。

[0185] 第2プレポリマーSPP1の数平均分子量を測定したところ、13000であった。また、軟化点は98℃であった。

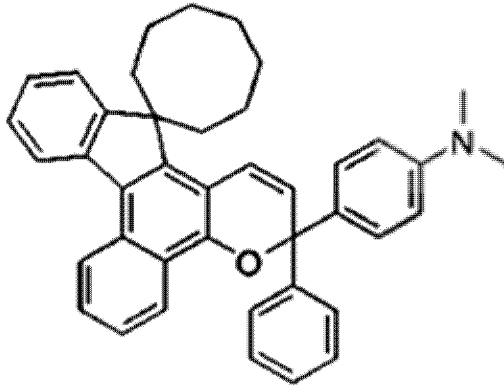
[0186] (接着性組成物AC1の調製)

第2プレポリマーSPP1を含む100gの反応液、1.02gのフォト

クロミック化合物PC1、0.34gのエチレンビス（オキシエチレン）ビス[3-（5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-m-トリル）プロピオネート]、及び0.05gのDOW CORNING TORAY L-7001を混合し、室温で攪拌して接着性組成物を得た。以下、この接着性組成物を接着性組成物AC1とも称する。

[0187] フォトクロミック化合物PC1としては、下記式で示される化合物を用いた。

[0188] [化3]



[0189] （光学積層シートOL1の作製）

接着性組成物AC1を、バーコーターを用いて、無延伸ポリビニルアルコールフィルムPVF1上に塗工して第1塗膜を形成した。無延伸ポリビニルアルコールフィルムPVF1の厚みは、75 μ mであり、ホウ酸含有量は、0質量%であり、水分量は、5質量%であった。この第1塗膜を100 $^{\circ}$ Cの温度で5分間乾燥させた。乾燥後の第1塗膜の膜厚は、30 μ mであった。乾燥後の第1塗膜上に無延伸ポリビニルアルコールフィルムPVF1をラミネートロールを用いて貼り合わせて第1積層体を得た。なお、第1積層体は長方形の短冊状であった。第1積層体の長辺方向の一方の端部には、接着性組成物を塗工せず、未塗工部分とした。

[0190] この第1積層体を得てから3時間後に、収縮しないように四方を抑えながら、大気圧下で100 $^{\circ}$ Cで1時間加熱して光学積層シートを得た。以下、この光学積層シートを光学積層シートOL1とも称する。

[0191] <例 2 ~ 7 及び 9 >

表 2 に示すように、加熱処理の条件を変更したこと以外は、例 1 と同様の方法で光学積層シートを得た。

[0192] <例 8 >

第 1 光学シートとして、延伸ポリビニルアルコールフィルム P V F 2 を用いたこと以外は、例 3 と同様の方法で光学積層シートを得た。延伸ポリビニルアルコールフィルム P V F 2 の厚みは、30 μ m であり、ホウ酸濃度は 5 . 4 質量% であり、水分量は 10 質量% であった。なお、延伸ポリビニルアルコールフィルムは、延伸ポリビニルアルコールフィルム P V F 2 の第 1 塗膜が設けられる主面の反対側の主面に、70 μ m の保護フィルムを貼り付けた積層体の状態で用いた。

[0193] <例 10 >

第 1 積層体を真空下、40 $^{\circ}$ C の温度で 40 時間にわたって脱気処理を行った後に加熱処理を行ったこと以外は、例 1 と同様の方法で光学積層シートを得た。

[0194] <例 11 >

第 1 積層体を真空下、40 $^{\circ}$ C の温度で 75 時間にわたって脱気処理を行い、加熱処理を省略したこと以外は、例 1 と同様の方法で光学積層シートを得た。

[0195] <例 12 >

第 1 積層体を大気圧下、40 $^{\circ}$ C の温度で 24 時間にわたって加熱処理を行った後、真空下、60 $^{\circ}$ C の温度で 51 時間にわたって脱気処理を行ったこと以外は、実施例 1 と同様の方法で光学積層シートを得た。

[0196] <例 13 >

第 1 積層体を真空下、100 $^{\circ}$ C の温度で 6 時間にわたって脱気処理を行い、大気圧下での加熱処理を省略したこと以外は、例 1 と同様の方法で光学積層シートを得た。

[0197] <例 14 >

第1及び第2光学シートとしては、4倍延伸ポリビニルアルコールフィルムPVF2を用いたこと、加熱処理の前に加湿処理を行ったこと以外は、例1と同様の方法で光学積層シートを得た。なお、4倍延伸ポリビニルアルコールフィルムPVF2は、4倍延伸ポリビニルアルコールフィルムPVF2の第1塗膜が設けられる主面の反対側の主面に、70 μ mの保護フィルムを貼り付けた積層体の状態で用いた。

[0198] 加湿処理に際しては、温度80 $^{\circ}$ C、相対湿度80%RHに設定した恒温槽内に、第1積層体を1時間にわたって静置した。なお、第1積層体を得てから3時間以内に加湿処理に供した。また、加湿処理後の第1積層体を、1時間以内に加熱処理に供した。

[0199] <例15及び例16>

表4に示すように加湿処理の条件を変更したこと以外は、例14と同様の方法で光学積層シートを得た。

[0200] <例17>

第1積層体を、25 $^{\circ}$ Cの水に30秒間浸漬させた後に加熱処理に供したこと以外は、例14と同様の方法で光学積層シートを得た。

[0201] <例18>

第2光学シートとして、無延伸ポリビニルアルコールフィルムPVF1を用いたこと以外は、例14と同様の方法で光学積層シートを得た。

[0202] <例19>

加湿処理温度を60 $^{\circ}$ Cに変更したこと以外は、例18と同様の方法で光学積層シートを得た。

[0203] <例20>

第1積層体の加湿処理及び大気圧下での加熱処理を省略したこと、第1積層体を真空下、40 $^{\circ}$ Cの温度で75時間にわたって脱気処理を行ったこと以外は、例14と同様の方法で光学積層シートを得た。

[0204] <例21>

第1積層体の加湿処理を省略したこと、第1積層体を大気圧下、40 $^{\circ}$ Cの

温度で24時間にわたって加熱処理を行った後、真空下、60℃の温度で51時間にわたって脱気処理を行ったこと以外は、例14と同様の方法で光学積層シートを得た。

[0205] <例22>

第1積層体の加湿処理を省略したこと以外は、例14と同様の方法で光学積層シートを得た。

[0206] <例23>

第1及び第2光学シートとして、4倍延伸ポリビニルアルコールフィルムPVF4を用いたこと以外は、例22と同様の方法で光学積層シートを得た。4倍延伸ポリビニルアルコールフィルムPVF4の厚みは、30μmであり、ホウ酸濃度は10.7質量%であり、水分量は10質量%であった。

[0207] <例24>

加熱処理を真空下で行ったこと以外は、例23と同様の方法で光学積層シートを得た。

[0208] <例25>

加熱処理時間を1時間に短縮したこと以外は、例22と同様の方法で光学積層シートを得た。

[0209] <例26>

加熱処理温度を120℃に変更したこと、及び、加熱処理時間を1時間に短縮したこと以外は、例23と同様の方法で光学積層シートを得た。

[0210] <評価試験>

(光学積層シートのフォトクロミック耐久性の測定)

例3、例5、及び例8で得られた光学積層シートについて、フォトクロミック化合物の耐久性を測定した。耐久性は、96時間劣化試験前後のフォトクロミック化合物の発色濃度の割合、すなわち、フォトクロミック性残存率を指標とした。

[0211] 具体的には、まず、96時間劣化試験前の光学積層シートの極大吸収波長と、極大吸収波長における吸光度とを、大塚電子株式会社製の分光光度計（

瞬間マルチチャンネルフォトディテクターMCPD3000)により得た。この吸光度を吸光度 $\varepsilon(0)$ とした。次に、 $23^{\circ}\text{C}\pm 1^{\circ}\text{C}$ の環境下で、5000ルクスの照度で900秒間にわたってキセノンランプを照射して、フォトクロミック化合物を発色させた。光源としては、浜松ホトニクス製のキセノンランプL-2480(300W)SHL-100を用いた。このキセノンランプは、国際標準化機構(ISO)8980-3で規定された放射照度値を有していた。キセノンランプ照射後の極大吸収波長における吸光度を、上記と同様の方法により求め、発色後の吸光度 $\varepsilon(900)$ を得た。吸光度 $\varepsilon(900)$ から、吸光度 $\varepsilon(0)$ を減じた値を、96時間劣化試験前の発色濃度(A0)とした。

[0212] 次に、スガ試験機株式会社製キセノンウェザーメーターX25により、光学積層シートの96時間劣化促進試験を行った。劣化試験後の光学積層シートの発色濃度を、上記と同様の方法で求めて、96時間劣化試験後の発色濃度(A96)とした。発色濃度(A96)を、発色濃度(A0)で除することにより、フォトクロミック性残存率(%)を算出した。

[0213] その結果、例3、例5、及び例8のすべての光学積層シートにおいて、フォトクロミック性残存率は100%であった。

[0214] (光学積層シートの剥離強度の測定)

例1～例3及び例5で得られた光学積層シートについて、剥離強度を測定した。具体的には、光学積層シートを、 $25\text{mm}\times 100\text{mm}$ の短冊状となるように切り出して試験片を得た。この際、接着性組成物の塗膜を含まない、一方の長辺端部を含むように切り出した。この試験片の第1光学シート及び第2光学シートの接着性組成物が塗工されていない部分を、それぞれ上部治具及び下部治具に挟み、試験機：オートグラフAGS-500NX、島津製作所製に設置した。クロスヘッドスピード $100\text{mm}/\text{min}$ で、上部治具を引張り、最大剥離力を測定した。

[0215] その結果、例1、例2、例3、及び例5の光学積層シートの剥離強度は、それぞれ、 $15\text{N}/25\text{mm}$ 、 $50\text{N}/25\text{mm}$ 、 $50\text{N}/25\text{mm}$ 、及び

、65 N / 25 mmであった。

[0216] (光学積層シートの外観評価)

以下の方法により、光学積層シートについて、外観評価を行った。

まず、光学積層シートを目視で観察し、気泡の数を測定した。気泡が2個以下であった場合には、気泡は「無し」と判断し、3個以上の気泡があった場合には、気泡は「有り」と判断した。

[0217] また、光学積層シートを目視で観察し、しわの本数を測定した。しわが1本以下であった場合には、しわは「無し」と判断し、2本以上のしわがあった場合には、しわは「有り」と判断した。この結果を表2及び4に示す。

[0218] 以下、表1～表4に、実施例の結果をまとめる。

[0219]

[表1]

表1

	第1光学シート			第2光学シート			接着層
	延伸／ 無延伸	ホウ酸濃度 (mass%)	水分量 (mass%)	延伸／ 無延伸	ホウ酸濃度 (mass%)	水分量 (mass%)	種類
例1	無延伸	0	5	無延伸	0	5	AC1
例2	無延伸	0	5	無延伸	0	5	AC1
例3	無延伸	0	5	無延伸	0	5	AC1
例4	無延伸	0	5	無延伸	0	5	AC1
例5	無延伸	0	5	無延伸	0	5	AC1
例6	無延伸	0	5	無延伸	0	5	AC1
例7	無延伸	0	5	無延伸	0	5	AC1
例8	4倍延伸	5.4	10	無延伸	0	10	AC1
例9	無延伸	0	5	無延伸	0	5	AC1
例10	無延伸	0	5	無延伸	0	5	AC1
例11	無延伸	0	5	無延伸	0	5	AC1
例12	無延伸	0	5	無延伸	0	5	AC1
例13	無延伸	0	5	無延伸	0	5	AC1

[0220]

[表2]

表2

	第1光学シート			第2光学シート			接着層
	延伸／ 無延伸	ホウ酸濃度 (mass%)	水分量 (mass%)	延伸／ 無延伸	ホウ酸濃度 (mass%)	水分量 (mass%)	種類
例14	4倍延伸	5.4	10	4倍延伸	5.4	10	AC1
例15	4倍延伸	5.4	10	4倍延伸	5.4	10	AC1
例16	4倍延伸	5.4	10	4倍延伸	5.4	10	AC1
例17	4倍延伸	5.4	10	4倍延伸	5.4	10	AC1
例18	4倍延伸	5.4	10	無延伸	0	10	AC1
例19	4倍延伸	5.4	10	無延伸	0	10	AC1
例20	4倍延伸	5.4	10	4倍延伸	5.4	10	AC1
例21	4倍延伸	5.4	10	4倍延伸	5.4	10	AC1
例22	4倍延伸	5.4	10	4倍延伸	5.4	10	AC1
例23	4倍延伸	10.7	10	4倍延伸	10.7	10	AC1
例24	4倍延伸	10.7	10	4倍延伸	10.7	10	AC1
例25	4倍延伸	5.4	10	4倍延伸	5.4	10	AC1
例26	4倍延伸	10.7	10	4倍延伸	10.7	10	AC1

[0221]

[表3]

表3

	加熱処理			評価	
	条件	温度 (°C)	時間 (h)	気泡	シワ
例1	大気圧	100	1	無	無
例2	大気圧	100	4	無	無
例3	大気圧	100	6	無	無
例4	大気圧	110	6	無	無
例5	大気圧	120	6	無	無
例6	大気圧	150	6	無	無
例7	大気圧	100	10	無	無
例8	大気圧	100	6	無	無
例9	大気圧	70	8	有	無
例10	真空 大気圧	40 100	40 1	有	無
例11	真空	40	75	有	無
例12	大気圧 真空	40 60	24 51	有	無
例13	真空	100	6	有	無

[0222]

[表4]

表4

	加湿処理			加熱処理			評価	
	温度 (°C)	相対湿度 (%RH)	時間 (h/sec)	条件	温度 (°C)	時間 (h)	気泡	シワ
例14	80	80	1h	大気圧	100	6	無	無
例15	80	80	2h	大気圧	100	6	無	無
例16	80	85	1.5h	大気圧	100	6	無	無
例17	25	水浸漬	30 sec	大気圧	100	6	有	有
例18	80	80	2h	大気圧	100	6	有	無
例19	80	60	2h	大気圧	100	6	有	無
例20	-	-	-	真空	40	75	有	無
例21	-	-	-	大気圧 真空	40 60	24 51	有	無
例22	-	-	-	大気圧	100	6	有	無
例23	-	-	-	大気圧	100	6	有	無
例24	-	-	-	真空	100	6	有	無
例25	-	-	-	大気圧	100	1	有	無
例26				大気圧	120	1	有	無

[0223] 以下に発明の好ましい形態を付記する。

[0224] [1] 第1光学シートと、第2光学シートと、前記第1光学シート及び前記第2光学シートの上に位置し、ウレタン樹脂、ウレタンウレア樹脂、チオウレタン樹脂、及びチオウレタンウレア樹脂からなる群より選択される少なくとも1種の樹脂及び機能性色素を含む接着層とを含み、前記第1光学シート及び前記第2光学シートの少なくとも一方は、無延伸ポリビニルアルコールフィルムである光学積層シートの製造方法であって、

前記第1光学シートの少なくとも一方の主面上に機能性色素及びイソ（チ

オ) シアネート化合物を含む接着性組成物の第1塗膜を設けることと、
前記第1塗膜上に前記第2光学シートを積層させて第1積層体を得ること
と、
前記第1積層体を大気圧下で80℃以上200℃以下の温度で加熱処理す
ることと
を含む光学積層シートの製造方法。

[0225] [2] 前記加熱処理時間は、1時間以上10時間以下である[1]に記載の光学積層シートの製造方法。

[0226] [3] 前記第1積層体を、12時間以内に前記加熱処理に供することを
含む[1]又は[2]に記載の光学積層シートの製造方法。

[0227] [4] 前記無延伸ポリビニルアルコールフィルムの水分量は、15質量
%以下である[1]乃至[3]の何れかに記載の光学積層シートの製造方法
。

[0228] [5] 前記機能性色素は、フォトクロミック化合物を含む[1]乃至[4]
の何れかに記載の光学積層シートの製造方法。

[0229] [6] [1]乃至[4]の何れかに記載の方法で得られた光学積層シー
トの前記第1光学シート及び前記第2光学シートの少なくとも一方の表面を
光学素子基材で被覆することを含む、光学物品の製造方法。

[0230] [7] 第1光学シートと、第2光学シートと、前記第1光学シート及び
前記第2光学シートの上に位置し、ウレタン樹脂、ウレタンウレア樹脂、チ
オウレタン樹脂、及びチオウレタンウレア樹脂からなる群より選択される少
なくとも1種の樹脂及び機能性色素を含む接着層とを含み、前記第1光学シ
ート及び前記第2光学シートは、延伸ポリビニルアルコールフィルムである
光学積層シートの製造方法であって、

前記第1光学シートの少なくとも一方の主面上に機能性色素及びイソ（チ
オ）シアネート化合物を含む接着性組成物の第1塗膜を設けることと、
前記第1塗膜上に前記第2光学シートを積層させて第1積層体を得ること
と、

前記第1積層体に加湿処理を施すことと、

前記加湿処理後の前記第1積層体を大気圧下で80℃以上200℃以下の温度で加熱処理することと

を含む光学積層シートの製造方法。

[0231] [8] 前記加湿処理は、70℃以上100℃以下の温度範囲で行うことを含む[7]に記載の光学積層シートの製造方法。

[0232] [9] 前記加湿処理は、70%RH以上90%RH以下の相対湿度範囲で行うことを含む[7]又は[8]に記載の光学積層シートの製造方法。

[0233] [10] 前記加湿処理は、30分以上3時間以下にわたって行われることを含む[7]乃至[9]の何れかに記載の光学積層シートの製造方法。

[0234] [11] 前記加熱処理時間は、1時間以上10時間以下である[7]乃至[10]の何れかに記載の光学積層シートの製造方法。

[0235] [12] 前記機能性色素は、フォトクロミック化合物を含む[7]乃至[11]の何れかに記載の光学積層シートの製造方法。

[0236] [13] [7]乃至[12]の何れかに記載の方法で得られた光学積層シートの前記第1光学シート及び前記第2光学シートの少なくとも一方の表面を光学素子基材で被覆することを含む、光学物品の製造方法。

[0237] [14] 前記第1積層体を、脱気処理を行わずに前記加熱処理に供することを含む[1]乃至[5]の何れかに記載の光学積層シートの製造方法。

[0238] [15] 前記第1積層体を、脱気処理を行わずに前記加熱処理に供することを含む[7]乃至[12]の何れかに記載の光学積層シートの製造方法

。

請求の範囲

- [請求項1] 第1光学シートと、第2光学シートと、前記第1光学シート及び前記第2光学シートの上に位置し、ウレタン樹脂、ウレタンウレア樹脂、チオウレタン樹脂、及びチオウレタンウレア樹脂からなる群より選択される少なくとも1種の樹脂及び機能性色素を含む接着層とを含み、前記第1光学シート及び前記第2光学シートの少なくとも一方は、無延伸ポリビニルアルコールフィルムである光学積層シートの製造方法であって、
- 前記第1光学シートの少なくとも一方の主面上に機能性色素及びイソ（チオ）シアネート化合物を含む接着性組成物の第1塗膜を設けることと、
- 前記第1塗膜上に前記第2光学シートを積層させて第1積層体を得ることと、
- 前記第1積層体を大気圧下で80℃以上200℃以下の温度で加熱処理することと
- を含む光学積層シートの製造方法。
- [請求項2] 前記加熱処理時間は、1時間以上10時間以下である請求項1に記載の光学積層シートの製造方法。
- [請求項3] 前記第1積層体を、12時間以内に前記加熱処理に供することを含む請求項1又は2に記載の光学積層シートの製造方法。
- [請求項4] 前記第1積層体を、脱気処理を行わずに前記加熱処理に供することを含む請求項1又は2に記載の光学積層シートの製造方法。
- [請求項5] 前記無延伸ポリビニルアルコールフィルムの水分量は、15質量%以下である請求項1又は2に記載の光学積層シートの製造方法。
- [請求項6] 前記機能性色素は、フォトクロミック化合物を含む請求項1又は2に記載の光学積層シートの製造方法。
- [請求項7] 請求項1又は2に記載の方法で得られた光学積層シートの前記第1光学シート及び前記第2光学シートの少なくとも一方の表面を光学素

子基材で被覆することを含む、光学物品の製造方法。

[請求項8] 第1光学シートと、第2光学シートと、前記第1光学シート及び前記第2光学シートの間に位置し、ウレタン樹脂、ウレタンウレア樹脂、チオウレタン樹脂、及びチオウレタンウレア樹脂からなる群より選択される少なくとも1種の樹脂及び機能性色素を含む接着層とを含み、前記第1光学シート及び前記第2光学シートは、延伸ポリビニルアルコールフィルムである光学積層シートの製造方法であって、

前記第1光学シートの少なくとも一方の主面上に機能性色素及びイソ（チオ）シアネート化合物を含む接着性組成物の第1塗膜を設けることと、

前記第1塗膜上に前記第2光学シートを積層させて第1積層体を得ることと、

前記第1積層体に加湿処理を施すことと、

前記加湿処理後の前記第1積層体を大気圧下で80℃以上200℃以下の温度で加熱処理することと

を含む光学積層シートの製造方法。

[請求項9] 前記加湿処理は、70℃以上100℃以下の温度範囲で行うことを含む請求項8に記載の光学積層シートの製造方法。

[請求項10] 前記加湿処理は、70%RH以上90%RH以下の相対湿度範囲で行うことを含む請求項8又は9に記載の光学積層シートの製造方法。

[請求項11] 前記加湿処理は、30分以上3時間以下にわたって行われることを含む請求項8又は9に記載の光学積層シートの製造方法。

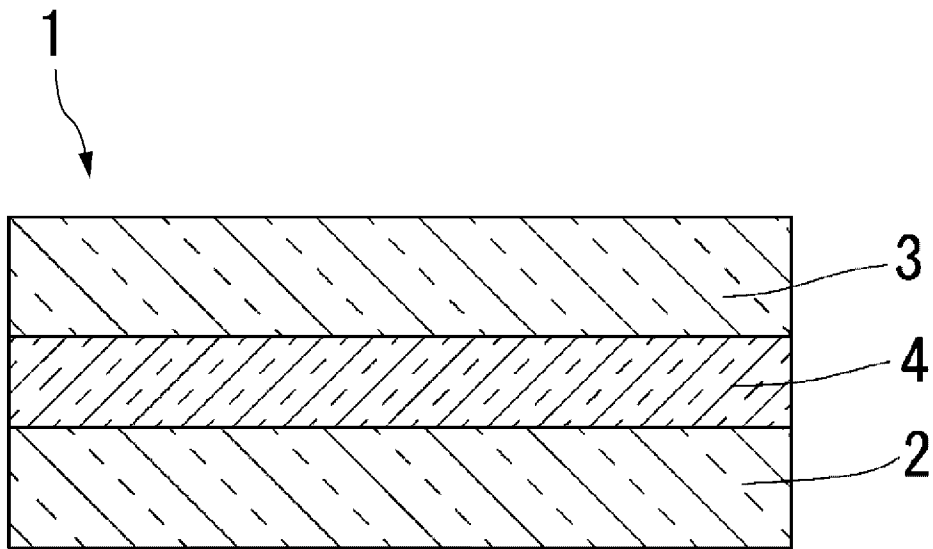
[請求項12] 前記加熱処理時間は、1時間以上10時間以下である請求項8又は9に記載の光学積層シートの製造方法。

[請求項13] 前記第1積層体を、脱気処理を行わずに前記加熱処理に供することを含む請求項8又は9に記載の光学積層シートの製造方法。

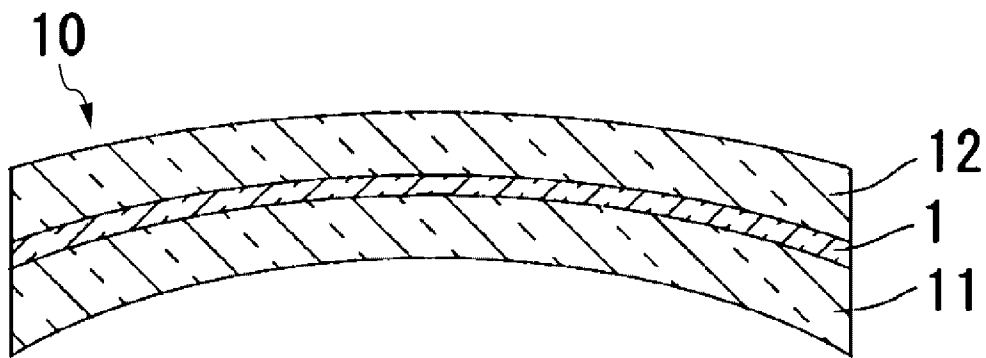
[請求項14] 前記機能性色素は、フォトクロミック化合物を含む請求項8又は9に記載の光学積層シートの製造方法。

[請求項15] 請求項8又は9に記載の方法で得られた光学積層シートの前記第1光学シート及び前記第2光学シートの少なくとも一方の表面を光学素子基材で被覆することを含む、光学物品の製造方法。

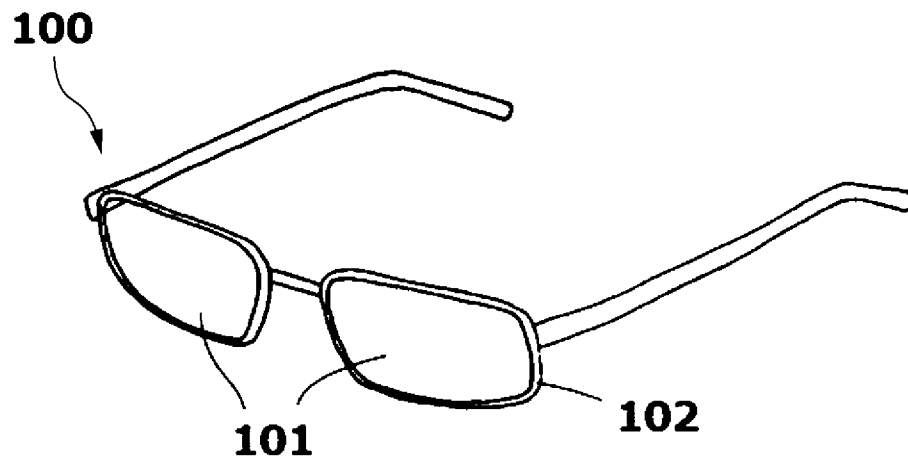
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/015505

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<i>G02B 5/23</i> (2006.01)i; <i>B32B 7/12</i> (2006.01)i; <i>G02C 7/02</i> (2006.01)i; <i>G02C 7/12</i> (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) G02B5/23; B32B7/12; G02C7/02; G02C7/12		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2023 Registered utility model specifications of Japan 1996-2023 Published registered utility model applications of Japan 1994-2023		
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	WO 2019/163728 A1 (TOKUYAMA CORP.) 29 August 2019 (2019-08-29) paragraphs [0006], [0015], [0022], [0038], [0096], [0100], [0108], [0187]-[0191], [0236], [0237], [0247], [0249]	1-15
X	JP 2016-161838 A (TOKUYAMA CORP.) 05 September 2016 (2016-09-05) paragraphs [0002], [0010], [0018], [0083], [0127]	1-15
A	JP 2016-168720 A (KK HOPUNIKKU KENKYUSHO) 23 September 2016 (2016-09-23) paragraphs [0012], [0056], [0078]	1-15
A	JP 2012-230317 A (TOKUYAMA CORP.) 22 November 2012 (2012-11-22) paragraphs [0003], [0004], [0013], [0046], [0047], [0057], [0151]-[0153]	1-15
A	JP 2012-242718 A (TOKUYAMA CORP.) 10 December 2012 (2012-12-10) paragraphs [0014], [0046], [0123], [0126]-[0132]	1-15
A	JP 2003-191404 A (TOKUYAMA CORP.) 08 July 2003 (2003-07-08) paragraphs [0044], [0084], [0119]	1-15
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> 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 25 May 2023		Date of mailing of the international search report 06 June 2023
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2023/015505

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO	2019/163728	A1	29 August 2019	US 2020/0386915 A1 paragraphs [0006], [0029], [0041], [0076], [0137], [0141], [0151], [0159]-[0162], [0341], [0342], [0351], [0354] EP 3757663 A1 CN 111727402 A KR 10-2020-0124667 A MX 2020008644 A TW 201941954 A	
JP	2016-161838	A	05 September 2016	(Family: none)	
JP	2016-168720	A	23 September 2016	US 2018/0050507 A1 paragraphs [0054], [0151], [0219] WO 2016/143379 A1 EP 3269525 A1 KR 10-2017-0118200 A CN 107428040 A BR 112017019046 A	
JP	2012-230317	A	22 November 2012	(Family: none)	
JP	2012-242718	A	10 December 2012	(Family: none)	
JP	2003-191404	A	08 July 2003	US 2004/0253463 A1 paragraphs [0018], [0099], [0165] WO 2003/024714 A1 EP 1428657 A1 TW 229036 B CN 1617797 A KR 10-2004-0037065 A	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） G02B 5/23(2006.01)i; B32B 7/12(2006.01)i; G02C 7/02(2006.01)i; G02C 7/12(2006.01)i		
B. 調査を行った分野		
調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） G02B5/23; B32B7/12; G02C7/02; G02C7/12		
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	1971-2023年	
日本国実用新案登録公報	1996-2023年	
日本国登録実用新案公報	1994-2023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	WO 2019/163728 A1 (株式会社トクヤマ) 29.08.2019 (2019-08-29) [0006][0015][0022][0038][0096][0100][0108][0187]-[0191][0236]-[0237] [0247][0249]	1-15
X	JP 2016-161838 A (株式会社トクヤマ) 05.09.2016 (2016-09-05) [0002][0010][0018][0083][0127]	1-15
A	JP 2016-168720 A (株式会社ホブニツク研究所) 23.09.2016 (2016-09-23) [0012][0056][0078]	1-15
A	JP 2012-230317 A (株式会社トクヤマ) 22.11.2012 (2012-11-22) [0003]-[0004][0013][0046]-[0047][0057][0151]-[0153]	1-15
A	JP 2012-242718 A (株式会社トクヤマ) 10.12.2012 (2012-12-10) [0014][0046][0123][0126]-[0132]	1-15
A	JP 2003-191404 A (株式会社トクヤマ) 08.07.2003 (2003-07-08) [0044][0084][0119]	1-15
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> 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、一般的な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抵触するものではなく、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 25.05.2023	国際調査報告の発送日 06.06.2023	
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 内村 駿介 20 1948 電話番号 03-3581-1101 内線 3271	

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2023/015505

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO	2019/163728	A1	29.08.2019	US 2020/0386915 A1 [0006][0029][0041][0076] [0137][0141][0151][0159]- [0162][0341]-[0342][0351] [0354] EP 3757663 A1 CN 111727402 A KR 10-2020-0124667 A MX 2020008644 A TW 201941954 A	
JP	2016-161838	A	05.09.2016	(ファミリーなし)	
JP	2016-168720	A	23.09.2016	US 2018/0050507 A1 [0054][0151][0219] WO 2016/143379 A1 EP 3269525 A1 KR 10-2017-0118200 A CN 107428040 A BR 112017019046 A	
JP	2012-230317	A	22.11.2012	(ファミリーなし)	
JP	2012-242718	A	10.12.2012	(ファミリーなし)	
JP	2003-191404	A	08.07.2003	US 2004/0253463 A1 [0018][0099][0165] WO 2003/024714 A1 EP 1428657 A1 TW 229036 B CN 1617797 A KR 10-2004-0037065 A	