

(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
2014 年 6 月 26 日(26.06.2014)



(10) 国際公開番号
WO 2014/097719 A1

- (51) 国際特許分類:
C09J 133/00 (2006.01) *C09J 11/04* (2006.01)
C09J 7/02 (2006.01) *C09J 171/02* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2013/077644
- (22) 国際出願日: 2013 年 10 月 10 日(10.10.2013)
- (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 2012-276951 2012 年 12 月 19 日(19.12.2012) JP
- (71) 出願人: 昭和電工株式会社(SHOWA DENKO K.K.)
[JP/JP]; 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目 1 3
番 9 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 中西 健一(NAKANISHI, Kenichi); 〒
3720833 群馬県伊勢崎市富塚町 1 0 1 9 昭和
電工株式会社 伊勢崎事業所内 Gunma (JP). 佐々
木 一博(SASAKI, Kazuhiro); 〒3720833 群馬県伊
勢崎市富塚町 1 0 1 9 昭和電工株式会社 伊
勢崎事業所内 Gunma (JP). 竹内 雄太(TAKEU-
CHI, Yuta); 〒3720833 群馬県伊勢崎市富塚町 1 0
1 9 昭和電工株式会社 伊勢崎事業所内
Gunma (JP).
- (74) 代理人: 曾我 道治, 外(SOGA, MICHIHARU et
al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内三丁目 1 番

1 号 国際ビルディング 8 階 曾我特許事務
所 Tokyo (JP).

- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保
護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA,
BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN,
CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES,
FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN,
IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR,
LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX,
MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH,
PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK,
SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保
護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW,
MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシ
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 FOR OPTICAL FILM AND SURFACE-PROTECTIVE FILM

(54) 発明の名称: 光学フィルム用粘着剤組成物及び表面保護フィルム

(57) Abstract: This adhesive composition for an optical film contains (A) 65-85 mass% of a (meth) acrylic resin having a weight average molecular weight of 100,000-600,000, (B) 10-30 mass% of a polyoxyalkylene polyol having a number average molecular weight of 500-1500, (C) 1.0-5.0 mass% of a polyisocyanate, (D) 0.2-1.0 mass% of an ionic compound, and (E) 0.005-0.1 mass% of a tin catalyst. This adhesive composition for an optical film has the advantage of exhibiting excellent antistatic properties and transparency, and also exhibiting low adherend contamination and corrosion.

(57) 要約: 本発明の光学フィルム用粘着剤組成物は、(A) 重量平均分子量が 10 万～60 万である(メタ)アクリル系樹脂 65～85 質量%と、(B) 数平均分子量が 500～1500 であるポリオキシアルキレンポリオール 10～30 質量%と、(C) ポリイソシアネート 1.0～5.0 質量%と、(D) イオン性化合物 0.2～1.0 質量%と、(E) スズ系触媒 0.005～0.1 質量%とを含む。本発明の光学フィルム用粘着剤組成物は、帯電防止性及び透明性に優れ、被着体に対する汚染性及び腐食性が低いという利点を有する。



WO 2014/097719 A1

明 細 書

発明の名称：光学フィルム用粘着剤組成物及び表面保護フィルム 技術分野

[0001] 本発明は、光学フィルム用粘着剤組成物及び表面保護フィルムに関するものである。

背景技術

[0002] 近年、光学部品・電子部品の分野で表面保護の目的でポリエチレン、ポリエステル、ポリプロピレン等の透明な保護シート（透明基材シート）と粘着剤とが積層された表面保護フィルムが多く用いられている。この表面保護フィルムは、粘着シートから離型フィルムを剥離する際、及び粘着シートを被着体から剥離する際に静電気が帯電してしまうと周辺のゴミが付着して光学部品・電子部品を汚してしまう問題がある。

そこで、帯電防止性を付与した粘着剤が開発されており、例えば、特許文献1及び2には、アクリル系共重合体に帯電防止剤としてポリエーテルポリオールを添加した粘着剤が開示されている。しかしながら、帯電防止剤としてポリエーテルポリオールを添加した粘着剤は、透明性に問題があり、品質保証の観点から透明性を要求される表面保護フィルムに使用できない。

また、特許文献3には、ポリエーテルポリオールをアクリルポリマーにグラフトさせることで、帯電防止性と透明性とを両立させた粘着剤が開示されている。しかしながら、この粘着剤は、酸価が高いことから、ITOフィルムのような腐食を嫌う光学部材への使用が難しいといった問題があった。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開平6－128539号公報

特許文献2：特開2005－325255号公報

特許文献3：特開2010－6980号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 本発明は、上記従来技術が有する問題に鑑み、帯電防止性及び透明性に優れ、被着体に対する汚染性及び腐食性が低い光学フィルム用粘着剤組成物、及び表面保護フィルムを提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0005] 本発明者らは、光学フィルム用粘着剤組成物が抱える前記の問題点を背景にして、鋭意検討を重ねた結果、特定重量平均分子量の（メタ）アクリル系樹脂、特定数平均分子量のポリオキシアルキレンポリオール、ポリイソシアネート、イオン性化合物及びスズ系触媒を特定の重量割合で含む光学フィルム用粘着剤組成物が、良好な帯電防止性及び透明性、被着体に対する低い汚染性及び腐食性を示すことを見出し、この知見に基づいて本発明を完成した。

[0006] 本発明は、以下の（１）～（１０）で示される。

（１）（Ａ）（メタ）アクリル系樹脂 ６５～８５質量％と、（Ｂ）ポリオキシアルキレンポリオール １０～３０質量％と、（Ｃ）ポリイソシアネート １．０～５．０質量％と、（Ｄ）イオン性化合物 ０．２～１．０質量％と、（Ｅ）スズ系触媒 ０．００５～０．１質量％とを含む光学フィルム用粘着剤組成物であって、（Ａ）（メタ）アクリル系樹脂の重量平均分子量が１０万～６０万であり、且つ（Ｂ）ポリオキシアルキレンポリオールの数平均分子量が５００～１５００であることを特徴とする光学フィルム用粘着剤組成物。

（２）前記（Ａ）（メタ）アクリル系樹脂が、共重合成分として水酸基含有（メタ）アクリル系モノマーを０．５～１０ｍｏｌ％含むことを特徴とする（１）に記載の光学フィルム用粘着剤組成物。

（３）前記水酸基含有（メタ）アクリル系モノマーが、２－ヒドロキシエチル（メタ）アクリレートであることを特徴とする（２）に記載の光学フィルム用粘着剤組成物。

（４）前記（Ａ）（メタ）アクリル系樹脂が、共重合成分としてメチル（

メタ) アクリレートを含むことを特徴とする (1) ~ (3) の何れか一項に記載の光学フィルム用粘着剤組成物。

(5) 酸価が $0 \sim 5 \text{ mg KOH/g}$ であることを特徴とする (1) ~ (4) の何れか一項に記載の光学フィルム用粘着剤組成物。

(6) 前記 (D) イオン性化合物が、アルカリ金属塩であることを特徴とする (1) ~ (5) の何れか一項に記載の光学フィルム用粘着剤組成物。

(7) 前記 (E) スズ系触媒が、ジオクチル錫ジラウレートであることを特徴とする (1) ~ (6) の何れか一項に記載の光学フィルム用粘着剤組成物。

(8) 透明基材上の片面に、(1) ~ (7) の何れか一項に記載の光学フィルム用粘着剤組成物を硬化させて得られる粘着剤層が形成されていることを特徴とする表面保護フィルム。

(9) 表面固有抵抗値が、 $1.0 \times 10^{10} \Omega/\square$ 以下であり且つヘイズが 1.2 以下であることを特徴とする (8) に記載の表面保護フィルム。

(10) 前記透明基材が、厚さ $5 \sim 200 \mu\text{m}$ の、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリイミド、ポリビニルアルコール、ポリ塩化ビニル又はセルロースであることを特徴とする (8) 又は (9) に記載の表面保護フィルム。

発明の効果

[0007] 本発明によれば、帯電防止性及び透明性に優れ、被着体に対する汚染性及び腐食性が低い光学フィルム用粘着剤組成物、及び表面保護フィルムを提供することができる。

発明を実施するための形態

[0008] 以下、本発明を詳細に説明する。

本発明の光学フィルム用粘着剤組成物は、(A) (メタ) アクリル系樹脂と、(B) ポリオキシアルキレンポリオールと、(C) ポリイソシアネートと、(D) イオン性化合物と、(E) スズ系触媒とを含むものである。

本発明における (メタ) アクリル系樹脂とは、アクリル系樹脂又はメタク

リル系樹脂をいい、また、(メタ)アクリレートとは、アクリレート又はメタクリレートをいう。なお、(メタ)アクリレート系樹脂は、全構成モノマーの80mol%以上が(メタ)アクリレート系モノマーであるポリマーを指す。

[0009] (A) (メタ)アクリル系樹脂

本発明における(A)(メタ)アクリル系樹脂の重合に使用される(メタ)アクリル系モノマーとしては、特に限定はないが、カルボキシル基(化学式： $-\text{COOH}$)を含有しないものが好ましい。(メタ)アクリル系モノマーの例としては、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、*tert*-ブチル(メタ)アクリレート、イソブチル(メタ)アクリレート、*n*-ヘキシル(メタ)アクリレート、2-エチルヘキシル(メタ)アクリレート、イソオクチル(メタ)アクリレート、ラウリル(メタ)アクリレート、イソデシル(メタ)アクリレート、ステアリル(メタ)アクリレート、トリデシル(メタ)アクリレート、イソステアリル(メタ)アクリレート等のアルキル(メタ)アクリレート、シクロヘキシル(メタ)アクリレート、ノルボルニル(メタ)アクリレート、イソボルニル(メタ)アクリレート、ノルボルナニル(メタ)アクリレート、ジシクロペンテニル(メタ)アクリレート、ジシクロペンテニルオキシエチル(メタ)アクリレート、ジシクロペンタニル(メタ)アクリレート、ジシクロペンタニルオキシエチル(メタ)アクリレート、トリシクロデカンジメチロールジ(メタ)アクリレート等の環状アルキル(メタ)アクリレート、メトキシエチル(メタ)アクリレート、エトキシエチル(メタ)アクリレート、ブトキシエチル(メタ)アクリレート、2-メトキシエトキシエチル(メタ)アクリレート、2-エトキシエトキシエチル(メタ)アクリレート等のアルコキシアリル(メタ)アクリレート、メトキシジエチレングリコール(メタ)アクリレート、エトキシジエチレングリコール(メタ)アクリレート、メトキシジプロピレングリコール(メタ)アクリレート等のアル

コキシ（ポリ）アルキレングリコール（メタ）アクリレート、オクタフルオロペンチル（メタ）アクリレート等のフッ素化アルキル（メタ）アクリレート、N，N－ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート、N，N－ジエチルアミノエチル（メタ）アクリレート等のジアルキルアミノアルキル（メタ）アクリレート、（メタ）アクリルアミド、ダイアセトン（メタ）アクリルアミド等のアミド基含有（メタ）アクリレート、グリシジル（メタ）アクリレート等のエポキシ基含有（メタ）アクリレート、シリコーン変性（メタ）アクリレート、ポリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ジエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、トリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、トリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート等の多官能性（メタ）アクリレート等が挙げられる。これらは、単独で使用してもよいし、2種類以上を組み合わせ使用してもよい。

（A）（メタ）アクリル系樹脂と（B）ポリオキシアルキレンポリオールとの相溶性、すなわち光学フィルム用粘着剤組成物を硬化させて得られる粘着剤層の透明性を考慮すると、（A）（メタ）アクリル系樹脂の共重合成分としてメチルアクリレート又はメチルメタクリレートが15～50mol%含まれることが好ましく、25～45mol%含まれることがより好ましい。

[0010] また、本発明における（A）（メタ）アクリル系樹脂は、ポリイソシアネートを介してポリオキシアルキレンポリオールと反応させ一体化させることができる（透明性が向上する）という観点から、共重合成分として水酸基含有（メタ）アクリル系モノマーを含むことが好ましい。水酸基含有（メタ）アクリル系モノマーの例としては、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、1，3－ブタンジオール（メタ）アクリレート、1，4－ブタンジオール（メタ）アクリレート、1，6－ヘキサンジオール（メタ）アクリレート、3－メチルペンタンジオール（メタ）アクリレート等の水酸基含有（メタ）アクリレート等が挙げられる。中でも、共重合性及

び反応性の点で、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレートが好ましい。水酸基含有（メタ）アクリル系モノマーは、（A）（メタ）アクリル系樹脂の共重合成分として0.5～10mol%含まれることが好ましく、0.6～8.0mol%含まれることがより好ましい。

[0011] また、本発明における（A）（メタ）アクリル系樹脂には、重合性を損なわない範囲で、共重合成分としてその他の重合性モノマーを使用することができる。そのような重合性モノマーの例としては、アクリロニトリル、メタクリロニトリル、スチレン、 α -メチルスチレン、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、ステアリン酸ビニル、塩化ビニル、塩化ビニリデン、アルキルビニルエーテル、ビニルトルエン、ビニルピリジン、ビニルピロリドン、イタコン酸ジアルキルエステル、フマル酸ジアルキルエステル、アリルアルコール、アクリルクロライド、メチルビニルケトン、N-アクリルアミドメチルトリメチルアンモニウムクロライド、アリルトリメチルアンモニウムクロライド、ジメチルアリルビニルケトン等が挙げられる。

[0012] 本発明における（A）（メタ）アクリル系樹脂は、重量平均分子量が10万～60万であることが必要であり、好ましくは15万～50万、より好ましくは20万～40万である。重量平均分子量が10万より小さい場合には、凝集力が小さくなることにより、糊残りを生じる。一方、重量平均分子量が60万より大きい場合には、（A）（メタ）アクリル系樹脂と（B）ポリオキシアルキレンポリオールとの相溶性が悪くなり、得られる粘着剤層の透明性が悪くなる。

ここで重量平均分子量は、ゲル・パーミエーション・クロマトグラフィー（昭和電気株式会社製、ショウデックス（登録商標）GPC-101）を用いて、下記条件にて常温で測定し、ポリスチレン換算にて算出されるものである。

カラム：昭和電気株式会社製、ショウデックス（登録商標）LF-804

カラム温度：40℃

試料：共重合体の0.2質量%テトラヒドロフラン溶液

流量：1 ml / 分

溶離液：テトラヒドロフラン

[0013] また、本発明における（A）（メタ）アクリル系樹脂のガラス転移温度（ T_g ）は、 $-80\sim 0^\circ\text{C}$ であることが好ましく、より好ましくは、 $-70\sim -10^\circ\text{C}$ である。 T_g が 0°C より高い場合には、被着体への濡れが悪くなり好ましくない。一方、 T_g が -80°C より低い場合には、凝集力が小さくなることにより、糊残りを生じる可能性があり好ましくない。なお、（A）（メタ）アクリル系樹脂の T_g は、用いるモノマー成分や組成比を適宜変えることにより調整することができる。

ここで、 T_g は、以下の方法から求められたものを指す。（A）（メタ）アクリル系樹脂から10mgの試料を採取して、示差走査熱量計（DSC）を用いて、 $10^\circ\text{C}/\text{分}$ の昇温速度で -80°C から 200°C まで温度を変化させて示差走査熱量測定を行い、ガラス転移による吸熱開始温度を T_g とする。なお、 T_g が2つ観察された場合には、2つの T_g の平均値をとることとする。

[0014] 本発明における（A）（メタ）アクリル系樹脂の重合方法は特に制限されるものではなく、溶液重合、乳化重合、塊状重合、懸濁重合、交互共重合などの公知の方法により重合できる。中でも、溶液重合が特に好適である。

また、得られる共重合体は、ランダム共重合体、ブロック共重合体など何れでもよい。

（A）（メタ）アクリル系樹脂の重合に際して用いられる重合開始剤は、特に限定されず、公知のものの中から適宜選択して使用することができる。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, 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, 2'-アゾビス（2, 4, 4-トリメチルペンタン）、ジメチル

ー2, 2'-アゾビス(2-メチルプロピオネート)等のアゾ系重合開始剤; ベンゾイルパーオキサイド、*t*-ブチルヒドロパーオキサイド、ジ-*t*-ブチルパーオキサイド、*t*-ブチルパーオキシベンゾエート、ジクミルパーオキサイド、1, 1-ビス(*t*-ブチルパーオキシ)3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、1, 1-ビス(*t*-ブチルパーオキシ)シクロドデカン等の過酸化物系重合開始剤などの油溶性重合開始剤が好ましく例示される。これらの重合開始剤は、単独で使用してもよいし、2種以上を組み合わせ使用してもよい。重合開始剤の使用量は、通常の使用量であればよく、例えば、モノマー100質量部に対して0.01~5質量部程度の範囲から選択することができ、0.02~4質量部の範囲であることが好ましく、0.03~3質量部であることがより好ましい。

[0015] なお、溶液重合では、各種の一般的な溶剤を用いることができる。このような溶剤としては、酢酸エチル、酢酸*n*-プロピル、酢酸*n*-ブチル等のエステル類、トルエン、ベンゼン等の芳香族炭化水素類、*n*-ヘキサン、*n*-ヘプタン等の脂肪族炭化水素類、シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン等の脂環式炭化水素類、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類などの有機溶剤が挙げられる。これらの溶剤は、単独で使用してもよいし、2種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0016] また、本発明における(A)(メタ)アクリル系樹脂の配合量としては、65~85質量%であることが必要であり、より好ましくは70~85質量%である。配合量が65質量%より少ない場合には、被着体を汚染し、一方、配合量が85質量%を超える場合には、十分な帯電特性が得られない。

[0017] (B) ポリオキシアルキレンポリオール

本発明における(B)ポリオキシアルキレンポリオールとしては、エーテル基を有すポリマーポリオールであれば特に限定されず、公知のポリマーポリオールが適宜使用できる。(B)ポリオキシアルキレンポリオールの例としては、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリテトラメチレンエーテルグリコール及びこれらの誘導体又は共重合体等が挙げられ

る。中でも、（メタ）アクリル系樹脂との相溶性を調整しやすいという理由で、ポリプロピレングリコールが好ましい。これらは、単独で使用してもよいし、２種以上を混合して使用してもよい。

[0018] 本発明における（Ｂ）ポリオキシアルキレンポリオールは、数平均分子量が５００～１５００であることが必要であり、好ましくは８００～１２００である。数平均分子量が１５００を超える場合には、粘着剤層の透明性が悪くなる。一方、数平均分子量が５００より小さい場合には、糊残りを生じる可能性があり好ましくない。数平均分子量はＧＰＣ（ゲル・パーミエーション・クロマトグラフィー）により測定して得られたものをいう。

[0019] また、本発明における（Ｂ）ポリオキシアルキレンポリオールの配合量としては、１０～３０質量％であることが必要であり、より好ましくは１５～２５質量％である。配合量が１０質量％より少ない場合には、十分な帯電特性が得られず、一方、配合量が３０質量％を超える場合には、被着体を汚染する。

[0020] （Ｃ）ポリイソシアネート

本発明における（Ｃ）ポリイソシアネートとしては、芳香族系、脂肪族系、脂環式系等のポリイソシアネートが挙げられる。（Ｃ）ポリイソシアネートの例としては、１，４－テトラメチレンジイソシアネート、１，６－ヘキサメチレンジイソシアネート（ＨＤＩ）、２－メチルー１，５－ペンタンジイソシアネート、３－メチルー１，５－ペンタンジイソシアネート、トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、シクロヘキシルジイソシアネート、トリレンジイソシアネート（ＴＤＩ）、水素添加トリレンジイソシアネート、ジフェニルメタ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、ポリフェニルメタンポリイソシアネート、キシレンジイソシアネート、水素添加キシレンジイソシアネート、テトラメチルキシリレンジイソシアネート、ノルボルネンジイソシアネート、ナフタレンジイソシアネート、トリメチロールプロパン／トリレンジイソシアネート３量体付加物、トリメチロールプロパン／ヘキサメチレンジイソ

シアネート 3 量体付加物、ヘキサメチレンジイソシアネートのイソシアヌレート体などのイソシアネート付加物、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等が挙げられる。これらは、単独で使用してもよいし、2 種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0021] また、本発明における (C) ポリイソシアネートの配合量としては、1.0～5.0 質量%であることが必要であり、より好ましくは2.0～4.0 質量%である。配合量が1.0 質量%より少ない場合には、十分な凝集力が得られず、一方、配合量が5.0 質量%を超える場合には粘着層が固くなりすぎて被着体への濡れ性が悪くなる。

[0022] (D) イオン性化合物

本発明に用いられる (D) イオン性化合物としては、アニオンとカチオンとからなる、25℃で液体状、又は固体状のイオン性化合物が挙げられる。具体的には、アルカリ金属塩、イオン性液体 (25℃で液体状)、界面活性剤等が挙げられる。中でも、被着体を汚染しにくいという理由で、アルカリ金属塩が好ましい。

アルカリ金属塩としては、リチウム、ナトリウム、カリウム等のアルカリ金属カチオンと、アニオンとからなる化合物が挙げられ、具体的には、塩化ナトリウム、塩化カリウム、塩化リチウム、過塩素酸リチウム、塩素酸カリウム、硝酸カリウム、硝酸ナトリウム、炭酸ナトリウム、チオシアン酸ナトリウム、 LiBr 、 LiI 、 LiBF_4 、 LiPF_6 、 LiSCN 、酢酸ナトリウム、アルギン酸ナトリウム、リグニンスルホン酸ナトリウム、トルエンスルホン酸ナトリウム、 LiCF_3SO_3 、 $\text{Li}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{N}$ 、 $\text{Li}(\text{C}_2\text{F}_5\text{SO}_2)_2\text{N}$ 、 $\text{Li}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3\text{C}$ 等が挙げられる。これらのアルカリ金属塩は、単独で使用してもよいし、2 種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0023] また、本発明における (D) イオン性化合物の配合量としては、0.2～1.0 質量%であることが必要であり、より好ましくは0.3～0.8 質量%である。配合量が0.2 質量%より少ない場合には、十分な帯電特性が得られず、一方、配合量が1.0 質量%を超える場合には、被着体を汚染する

。

[0024] (E) スズ系触媒

本発明における (E) スズ系触媒としては、ジブチル錫ジラウレート、ジブチル錫ジエチルヘキソエート、ジオクチル錫ジラウレート等が挙げられる。中でも、(C) ポリイソシアネートの硬化性が良好で且つ安全性が高いという理由で、ジオクチル錫ジラウレートが好ましい。

[0025] また、本発明における (E) スズ系触媒の配合量としては、0.005～0.1 質量%であることが必要であり、より好ましくは0.01～0.05 質量%である。配合量が0.005 質量%より少ない場合には、十分な凝集力が得られず、一方、配合量が0.1 質量%を超える場合には、(メタ) アクリル系樹脂の安定性が悪くなりポットライフが短くなる。

[0026] 本発明の光学フィルム用粘着剤組成物は、酸価が0～5 mg KOH/g であることが好ましく、0～1 mg KOH/g であることがより好ましく、0～0.3 mg KOH/g であることが更により好ましく、0～0.1 mg KOH/g であることが最も好ましい。酸価が5 mg KOH/g より高いと、ITO フィルム等の腐食を嫌う材料に対して使用が困難になる。なお、組成物の酸価は JIS K0070 に準拠して測定した値である。例えば、以下のように測定する。

精密天秤で100 ml 三角フラスコに試料約2 g 程度を精秤し、これにエタノール/ジエチルエーテル=1/1 (質量比) の混合溶媒10 ml を加えて溶解する。更に、この容器に指示薬としてフェノールフタレインエタノール溶液を1～3 滴添加し、試料が均一になるまで充分に攪拌する。これを、0.1 N 水酸化カリウム-エタノール溶液で滴定し、指示薬のうすい紅色が30 秒間続いたときを、中和の終点とする。その結果から下記の一般式 (1) を用いて得た値を、組成物の酸価とする。

[0027] [数1]

$$\text{酸価 (mg KOH/g)} = [B \times f \times 5.611] / S \quad (1)$$

[0028] 上式中、B は、0.1 N 水酸化カリウム-エタノール溶液の使用量 (ml

）であり、 f は、 0.1 N 水酸化カリウム－エタノール溶液のファクターであり、 S は、試料の採取量（ g ）である。

[0029] また、本発明の光学フィルム用粘着剤組成物には、透明性を損なわない範囲で、公知の各種添加剤を必要に応じて添加してもよい。添加剤としては、可塑剤、表面潤滑剤、レベリング剤、軟化剤、酸化防止剤、老化防止剤、光安定剤、紫外線吸収剤、重合禁止剤、ベンゾトリアゾール系等の光安定剤、リン酸エステル系及びその他の難燃剤、界面活性剤のような帯電防止剤等が挙げられる。

[0030] また、本発明の光学フィルム用粘着剤組成物は、塗工時の粘度調整を目的として有機溶媒を用いて希釈してもよい。使用できる有機溶媒としては、例えば、メチルエチルケトン、アセトン、酢酸エチル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、シクロヘキサノン、 n -ヘキサン、トルエン、キシレン、 n -プロパノール、イソプロパノール、酢酸 n -プロピル等が挙げられる。これらの有機溶媒は、単独で使用してもよいし、2種以上を混合して使用してもよい。

[0031] 本発明の表面保護フィルムは、透明基材上の片面に、上記した光学フィルム用粘着剤組成物を硬化させて得られる粘着剤層が形成されているものである。粘着剤層の厚みは、通常、 $3\sim 100\mu\text{m}$ であり、好ましくは $5\sim 50\mu\text{m}$ である。

透明基材としては、例えば、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリイミド、ポリビニルアルコール、ポリ塩化ビニル、セルロース等を挙げることができる。透明基材の厚みは、通常、 $5\sim 200\mu\text{m}$ 、好ましくは $10\sim 100\mu\text{m}$ 程度である。

なお、透明基材の片面には、必要に応じて、シリコン系、フッ素系、長鎖アルキル系等の離型剤による離型処理及び防汚処理、酸処理、アルカリ処理、プライマー処理、コロナ処理、プラズマ処理、紫外線処理等の易接着処理を施すこともできる。

また、透明基材としては、帯電防止処理されているものがより好ましく用

いられる。透明基材に施される帯電防止処理としては特に限定されないが、一般的に用いられる透明基材の少なくとも片面に帯電防止層を設ける方法や透明基材に帯電防止剤を練り込む方法を用いることができる。

[0032] なお、本発明の表面保護フィルムにおける粘着剤層の形成には、公知のコーティング法（塗工法）を用いることが可能であり、慣用のコーター、例えば、グラビヤロールコーター、リバーシロールコーター、キスロールコーター、ディップロールコーター、バーコーター、ナイフコーター、スプレーコーター、コンマコーター、ダイレクトコーター等を用いてコーティングすることができる。

[0033] 本発明の表面保護フィルムには、必要に応じて粘着面を保護する目的で粘着剤層表面にセパレーターを貼り合わせることが可能である。セパレーターを構成する基材としては紙やプラスチックフィルムがあるが、表面平滑性に優れる点からプラスチックフィルムが好適に用いられる。そのフィルムとしては、上記した粘着剤層を保護し得るフィルムであれば特に限定されず、例えば、ポリエチレンフィルム、ポリプロピレンフィルム、ポリエチレンテレフタレートフィルム、ポリブテンフィルム等が挙げられる。

[0034] 上記のように構成した本発明の表面保護フィルムは、粘着面の表面固有抵抗値が $1.0 \times 10^{10} \Omega/\square$ 以下で且つヘイズが1.2以下であるので、静電気が発生しやすいプラスチック製品などに用いられる。中でも、液晶ディスプレイなどに用いられる偏光板、波長板、位相差板、光学補償フィルム、反射シート、輝度向上フィルムなどの光学部材表面を保護する目的で用いられる表面保護フィルムとして好適に用いることができる。

実施例

[0035] 以下に実施例及び比較例により本発明をより具体的に説明するが、本発明は、これらの例によって何ら限定されるものではない。

[0036] <（メタ）アクリル系樹脂（A-1）～（A-3）の合成>

冷却管、窒素導入管、温度計及び攪拌装置を備えた反応容器に、酢酸n-プロピル 500質量部、2-エチルヘキシルアクリレート 265質量部

(0.53 mol)、イソボルニルアクリレート 41質量部(0.07 mol)、メチルメタクリレート 105質量部(0.39 mol)、2-ヒドロキシエチルアクリレート 2質量部(0.007 mol)及び2,2'-アゾビス(イソブチロニトリル) 0.4質量部を入れ、窒素気流中で95℃にて8時間重合を行い、ガラス転移温度-30℃、重量平均分子量25万の(メタ)アクリル系樹脂(A-1)を得た。なお、(メタ)アクリル系樹脂のガラス転移温度及び重量平均分子量の測定は、先に述べた方法により行った。

また、(メタ)アクリル系樹脂(A-2)及び(メタ)アクリル系樹脂(A-3)は、使用するモノマーを表1のように変更した以外は(メタ)アクリル系樹脂(A-1)と同様にして合成した。(メタ)アクリル系樹脂(A-2)～(A-3)についても、ガラス転移温度及び重量平均分子量の測定を行った。結果を表1に示す。

[0037] <実施例1～2及び比較例1～7>

表2に示す組成で(メタ)アクリル系樹脂、ポリオキシアルキレンポリオール、ポリイソシアネート、イオン性化合物及びスズ系触媒を配合し、更に、酢酸エチルで固形分濃度を50質量%に調節し、室温下でディスパーを用いて混合することで光学フィルム用粘着剤組成物溶液を得た。この溶液を、厚さ38μmのポリエチレンテレフタレート(PET)フィルムの片面に剥離処理が施されてなるセパレーターの剥離処理面上に、乾燥後の厚さが50μmとなるように流延塗布し、50℃で5分間及び110℃で3分間、加熱乾燥させ、更に厚さ50μmのPETフィルムを貼り合せ、粘着シートを製作した。

[0038] <酸価>

前記の方法で各組成物の酸価を測定した。結果を表2に示す。

[0039] <表面固有抵抗値>

得られた粘着シートを40×40mmの大きさに切断した後、これを温度23℃及び相対湿度65%の環境下に3時間放置し調湿した後、セパレータ

ーを剥がして J I S K 6 9 1 1 に記載の方法で粘着面の表面固有抵抗を測定した。結果を表 2 に示す。なお、表面固有抵抗値が小さいほど帯電防止性能が高いことを意味する。

[0040] <透明性>

得られた粘着シートを 3 0 m m × 3 0 m m の大きさに切り取り、粘着シートのセパレーターを剥がし、ガラス板に貼り合わせたものを測定用サンプルとした。測定用サンプルについて、株式会社村上色彩技術研究所製「H R - 1 0 0 型」を使用し、ヘイズメーター N M - 1 5 0 (株式会社村上色彩技術研究所製) を用いてヘイズの測定を行った。ヘイズ (%) は拡散透過率を全光線透過率で除し、1 0 0 を乗じて算出した。なお、n 数は 3 回とし、その平均値を採用した。全光線透過率 (%) を測定した。結果を表 2 に示す。なお、ヘイズ値は値が小さいほど透明性が高いことを意味する。

[0041] <粘着シートの粘着力測定>

得られた粘着シートを 2 5 m m × 1 0 0 m m の大きさに切り取り、粘着シートのセパレーターを剥がし、粘着面 (測定面) を試験板に貼付して、2 k g のゴムローラー (幅 : 約 5 0 m m) を 1 往復させて、測定用サンプルを作製した。試験板としてガラス板を用いた。得られた測定用サンプルを、温度 2 3 ° C 及び相対湿度 5 0 % の環境下に 2 4 時間放置した後、J I S Z 0 2 3 7 に準じて、剥離速度 3 0 0 m m / 分 で 1 8 0 ° 方向の引張試験を行い、粘着シートのガラス板に対する粘着力 (N / 2 5 m m) を測定した。得られた測定値を粘着力とした。結果を表 2 に示す。

[0042] <被着体への汚染性>

上で得られた粘着シートを 5 0 m m × 5 0 m m の大きさに切り取り、セパレーターを剥がしガラス板に張り合わせた。このサンプルを 7 0 ° C で 5 日間放置した後、粘着シートを剥がしガラス表面への汚染性を目視で確認し、下記基準で評価した。結果を表 2 に示す。

○ : 貼り合せ前のガラス表面と比較して変化なし。

× : ガラス表面に糊残りが確認される。

[0043] [表1]

(メタ) アクリル系樹脂		A-1	A-2	A-3
モノマー (mol)	MMA* ¹	0.39	—	0.46
	I BOA* ²	0.07	0.46	—
	2 EHA* ³	0.53	0.53	0.53
	HEA* ⁴	0.007	0.007	0.007
ガラス転移温度 (°C)		-30	-12	-35
重量平均分子量 (Mw)		25万	22万	63万

* 1 ; メチルメタクリレート

* 2 ; イソボルニルアクリレート

* 3 ; 2-エチルヘキシルアクリレート

* 4 ; 2-ヒドロキシエチルアクリレート

[0044]

[表2]

【表2】

	実施例 1	実施例 2	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6	比較例 7
(メタ) アクリル系樹脂	A-1	—	—	80	80	94	60	80	78.5
	A-2	80	—	—	—	—	—	—	—
	A-3	—	80	—	—	—	—	—	—
ポリオキシアリキレン ポリオール	PPG1000 ^{*5}	16	16	—	—	4.4	34.5	16	16
	ニューポール PP-400 ^{*6}	—	—	14.5	—	—	—	—	—
	PPG4000 ^{*7}	—	—	—	16	—	—	—	—
ポリイソシアネート	コロネートHX ^{*8}	3.5	3.5	3.5	5.0	1.1	5.0	3.5	3.5
イオン性化合物	過塩素酸リチウム・2水和物	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0	2
スズ系触媒	ジオクチル錫ジラウレート	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05
酸価 (mg KOH/g)	—	0.1未満	0.1未満	0.1未満	0.1未満	0.1未満	0.1未満	0.1未満	0.1未満
表面固有抵抗値 ($\Omega/\square$)	—	6.5×10 ⁹	9.0×10 ⁹	5.1×10 ⁹	4.7×10 ⁹	3.1×10 ¹¹	2.0×10 ⁹	5.5×10 ¹³	4.5×10 ⁸
ヘイズ (%)	—	0.4	1.1	1.9	0.4	0.4	0.8	0.4	0.8
粘着力 (N/25mm)	—	5.0	8.0	3.5	5.0	7.3	4.3	5.2	4.5
耐汚染性	○	○	○	×	○	○	×	○	×

*5：三井化学製 ポリプロピレングリコール 数平均分子量1000 (水酸基価 110mg KOH/g)

*6：三洋化成製 ポリプロピレングリコール 数平均分子量400 (水酸基価 280mg KOH/g)

*7：三井化学製 ポリプロピレングリコール 数平均分子量4000 (水酸基価 30mg KOH/g)

*8：日本ポリウレタン工業製 ヘキサメチレンジイソシアネートのイソシアネート体

請求の範囲

- [請求項1] (A) (メタ) アクリル系樹脂 65～85質量%と、
(B) ポリオキシアルキレンポリオール 10～30質量%と、
(C) ポリイソシアネート 1.0～5.0質量%と、
(D) イオン性化合物 0.2～1.0質量%と、
(E) スズ系触媒 0.005～0.1質量%と
を含む光学フィルム用粘着剤組成物であって、
(A) (メタ) アクリル系樹脂の重量平均分子量が10万～60万
であり、且つ (B) ポリオキシアルキレンポリオールの数平均分子量
が500～1500であることを特徴とする光学フィルム用粘着剤組
成物。
- [請求項2] 前記 (A) (メタ) アクリル系樹脂が、共重合成分として水酸基含
有 (メタ) アクリル系モノマーを0.5～10mol%含むことを特
徴とする請求項1に記載の光学フィルム用粘着剤組成物。
- [請求項3] 前記水酸基含有 (メタ) アクリル系モノマーが、2-ヒドロキシエ
チル (メタ) アクリレートであることを特徴とする請求項2に記載の
光学フィルム用粘着剤組成物。
- [請求項4] 前記 (A) (メタ) アクリル系樹脂が、共重合成分としてメチル (メ
タ) アクリレートを15～50mol%含むことを特徴とする請求
項1～3の何れか一項に記載の光学フィルム用粘着剤組成物。
- [請求項5] 酸価が0～5mg KOH/gであることを特徴とする請求項1～4
の何れか一項に記載の光学フィルム用粘着剤組成物。
- [請求項6] 前記 (D) イオン性化合物が、アルカリ金属塩であることを特徴と
する請求項1～5の何れか一項に記載の光学フィルム用粘着剤組成物
。
- [請求項7] 前記 (E) スズ系触媒が、ジオクチル錫ジラウレートであることを
特徴とする請求項1～6の何れか一項に記載の光学フィルム用粘着剤
組成物。

- [請求項8] 透明基材上の片面に、請求項1～7の何れか一項に記載の光学フィルム用粘着剤組成物を硬化させて得られる粘着剤層が形成されていることを特徴とする表面保護フィルム。
- [請求項9] 表面固有抵抗値が、 $1.0 \times 10^{10} \Omega/\square$ 以下であり且つヘイズが1.2以下であることを特徴とする請求項8に記載の表面保護フィルム。
- [請求項10] 前記透明基材が、厚さ5～200 μm のポリエチレンテレフタレート、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリイミド、ポリビニルアルコール、ポリ塩化ビニル又はセルロースであることを特徴とする請求項8又は9に記載の表面保護フィルム。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/077644

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C09J133/00(2006.01)i, C09J7/02(2006.01)i, C09J11/04(2006.01)i, C09J171/02(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

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	1996-2013
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2013	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2013

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 6-128539 A (Nitto Denko Corp.), 10 May 1994 (10.05.1994), claims; paragraphs [0007] to [0010], [0017] to [0019], [0023], [0024] (Family: none)	1-10
A	JP 2010-037355 A (Vigtequnos Corp.), 18 February 2010 (18.02.2010), claims; paragraphs [0008], [0027], [0028], [0036], [0037], [0043] to [0045] (Family: none)	1-10

☒ 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
25 December, 2013 (25.12.13)

Date of mailing of the international search report
14 January, 2014 (14.01.14)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/077644

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 2005-325255 A (Nitto Denko Corp.), 24 November 2005 (24.11.2005), claims; paragraphs [0023], [0024], [0037], [0043], [0051], [0107] to [0122] & US 2005/0256251 A1 & EP 1595929 A1 & DE 602005000905 D & KR 10-2006-0047825 A & CN 1696230 A & KR 10-2010-0138855 A & TWB 00I332025	1-10
A	JP 2010-053192 A (Nitto Denko Corp.), 11 March 2010 (11.03.2010), claims; paragraphs [0020], [0022] to [0025], [0048] to [0061] & US 2011/0151252 A1 & WO 2010/024174 A1 & CN 102131878 A & TW 201026808 A	1-10
A	WO 2012/160996 A1 (Nitto Denko Corp.), 29 November 2012 (29.11.2012), claims; paragraphs [0041], [0044] to [0053], [0061]; examples 3 to 6 (paragraphs [0123] to [0126]); page 28, table 1 & TW 201313867 A & JP 2012-241154 A	1-10
A	JP 2010-222565 A (Nitto Denko Corp.), 07 October 2010 (07.10.2010), claims; paragraphs [0020] to [0022], [0036], [0039] to [0041], [0081], [0082]; page 21, table 1 & US 2012/0064339 A1 & EP 2402408 A1 & WO 2010/098291 A1 & TW 201038694 A & CN 102333834 A & KR 10-2011-0132345 A	1-10

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C09J133/00(2006.01)i, C09J7/02(2006.01)i, C09J11/04(2006.01)i, C09J171/02(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C09J1/00-201/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 3 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 3 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 3 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
A	JP 6-128539 A（日東電工株式会社）1994. 05. 10, 特許請求の範囲、【0007】 - 【0010】 【0017】 - 【0019】 【0023】 【0024】 （ファミリーなし）	1-10
A	JP 2010-037355 A（ビッグテクノス株式会社）2010. 02. 18, 特許請求の範囲、【0008】 【0027】 【0028】 【0036】 【0037】 【0043】 - 【0045】 （ファミリーなし）	1-10

☒ 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

2 5 . 1 2 . 2 0 1 3

国際調査報告の発送日

1 4 . 0 1 . 2 0 1 4

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

澤村 茂実

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

4 Z

9 1 5 8

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2005-325255 A (日東電工株式会社) 2005. 11. 24, 特許請求の範囲、【0023】【0024】【0037】【0043】【0051】【0107】-【0122】 &US 2005/0256251 A1 &EP 1595929 A1 &DE 602005000905 D &KR 10-2006-0047825 A &CN 1696230 A &KR 10-2010-0138855 A &TWB 00I332025	1-10
A	JP 2010-053192 A (日東電工株式会社) 2010. 03. 11, 特許請求の範囲、【0020】【0022】-【0025】【0048】-【0061】 &US 2011/0151252 A1 &WO 2010/024174 A1 &CN 102131878 A &TW 201026808 A	1-10
A	WO 2012/160996 A1 (日東電工株式会社) 2012. 11. 29, 請求の範囲、[0041][0044]-[0053][0061]、 実施例 3-6 ([0123]-[0126])、第 28 頁[表 1] &TW 201313867 A &JP 2012-241154 A	1-10
A	JP 2010-222565 A (日東電工株式会社) 2010. 10. 07, 特許請求の範囲、【0020】-【0022】【0036】【0039】-【0041】【0081】 【0082】、第 21 頁表 1 &US 2012/0064339 A1 &EP 2402408 A1 &WO 2010/098291 A1 &TW 201038694 A &CN 102333834 A &KR 10-2011-0132345 A	1-10