

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第3819661号
(P3819661)

(45) 発行日 平成18年9月13日(2006.9.13)

(24) 登録日 平成18年6月23日(2006.6.23)

(51) Int. Cl.

F I

C O 9 J 7/02 (2006.01)

C O 9 J 7/02 Z

C O 9 J 133/08 (2006.01)

C O 9 J 133/08

C O 9 J 133/10 (2006.01)

C O 9 J 133/10

請求項の数 4 (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願2000-52243 (P2000-52243)
 (22) 出願日 平成12年2月24日(2000.2.24)
 (65) 公開番号 特開2001-234135 (P2001-234135A)
 (43) 公開日 平成13年8月28日(2001.8.28)
 審査請求日 平成14年5月23日(2002.5.23)
 審査番号 不服2004-20185 (P2004-20185/J1)
 審査請求日 平成16年9月30日(2004.9.30)

(73) 特許権者 000003964
 日東電工株式会社
 大阪府茨木市下穂積 1 丁目 1 番 2 号
 (74) 代理人 100079153
 弁理士 祢▲ぎ▼元 邦夫
 (72) 発明者 岸岡 宏昭
 大阪府茨木市下穂積 1 丁目 1 番 2 号 日東
 電工株式会社内
 (72) 発明者 大浦 正裕
 大阪府茨木市下穂積 1 丁目 1 番 2 号 日東
 電工株式会社内
 (72) 発明者 吉川 孝雄
 大阪府茨木市下穂積 1 丁目 1 番 2 号 日東
 電工株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 感圧性接着シート類および機能性フィルムの固定方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

アクリル酸 2-エチルヘキシルおよび／またはアクリル酸 n-ブチルを主成分とするモノマーのホモポリマーまたはコポリマーからなるアクリル系ポリマーにシランカップリング剤を含ませて、架橋剤により架橋構造化した感圧性接着剤の層を有し、そのゾル分は、ゾル分率が 5～40 重量%の範囲にあり、かつゲルパーメーションクロマトグラフィー法による分子量測定において、重量平均分子量が 30 万以上、分子量 10 万以下の低分子量成分が 12 重量%以下であることを特徴とする感圧性接着シート類。

【請求項 2】

シランカップリング剤は、アクリル系ポリマー 100 重量部に対し、0.001～5 重量部である請求項 1 に記載の感圧性接着シート類。

【請求項 3】

ガラスに対する接着力が 300 g 以上／20 mm 幅である請求項 1 または 2 に記載の感圧性接着シート類。

【請求項 4】

機能性フィルムを表示装置に固定するにあたり、請求項 1～3 のいずれかに記載の感圧性接着シート類を介して接着固定することを特徴とする機能性フィルムの固定方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、主として、機能性フィルムを表示装置に固定する際に使用する、シート状やテープ状などの感圧性接着シート類に関する。

【0002】

【従来の技術】

近年、感圧性接着シート類は、接着作業性の良さから、多くの分野で利用されている。その中でも、アクリル系ポリマー、つまり（メタ）アクリル酸アルキルエステルを主成分とするモノマーのホモポリマーまたはコポリマーを主剤成分としてなるアクリル系感圧性接着シート類は、耐候性、耐熱性、耐劣化性などの耐久特性にすぐれていることから、これらの耐久性能が要求される用途分野において、とくに好まれて使用されている。

【0003】

ところで、感圧性接着シート類の用途のひとつとして、導電フィルム、防眩フィルムなどの機能性フィルムを表示装置（のガラス面）に接着固定する用途が知られている。このような感圧性接着シート類では、外観的に厳しい要求をされる表示装置という用途目的上、接着固定後の初期はもちろんのこと、夏場の自動車の中や倉庫の中のような高温ないし高温多湿下といった過酷な環境下に長時間晒されたのちにおいても、接着界面において浮きや気泡などがみられず、良好な外観を維持することが望まれる。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

この要求に対し、アクリル系ポリマーを主剤成分として、これにガラス面への密着性を向上させるためのシランカップリング剤を含ませたアクリル系感圧性接着シート類を使用することが提案されている。しかしながら、この感圧性接着シート類の使用により、ガラスへの密着性はある程度改善されるものの、夏場の自動車の中や倉庫の中のような高温ないし高温多湿下といった過酷な環境下に長時間晒されたときに接着界面に浮きや気泡などが発生する問題はいぜんとして認められ、良好な外観を維持させるにこがった。

【0005】

本発明は、上記の事情に照らし、主として、機能性フィルムを表示装置に接着固定するための感圧性接着シート類として、夏場の自動車の中や倉庫の中のような高温ないし高温多湿下といった過酷な環境下に長時間晒されたときでも、接着界面において浮きや気泡などが発生することのない、したがって、良好な外観を長期間にわたり維持させることのできる、耐候性にすぐれた感圧性接着シート類を提供することを目的としている。

【0006】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記の目的に対し、鋭意検討した結果、アクリル系ポリマーにシランカップリング剤を含ませ、これを架橋剤により架橋構造化したときのゾル分率が特定の範囲となるようにするとともに、そのゾル分が、低分子量成分の少ない特定の分子量分布を有する構成としたときに、耐候性にすぐれた感圧性接着シート類が得られ、これを用いて機能性フィルムを表示装置に接着固定すると、耐候性試験下でも接着界面で浮きや気泡などが発生せず、良好な外観を長期間にわたり維持できることを知り、本発明を完成した。

【0007】

すなわち、本発明は、アクリル酸 2-エチルヘキシルおよび／またはアクリル酸 n-ブチルを主成分とするモノマーのホモポリマーまたはコポリマーからなるアクリル系ポリマーにシランカップリング剤を含ませて、架橋剤により架橋構造化した感圧性接着剤の層を有し、そのゾル分は、ゾル分率が 5～40 重量%の範囲にあり、かつゲルパーメーションクロマトグラフィー法による分子量測定において、重量平均分子量が 30 万以上、分子量 10 万以下の低分子量成分が 1.2 重量%以下であることを特徴とする感圧性接着シート類に係るものである。また、本発明は、機能性フィルムを表示装置に固定するにあたり、上記構成の感圧性接着シート類を介して接着固定することを特徴とする機能性フィルムの固定方法に係るものである。

【0008】

なお、この明細書において、架橋剤により架橋構造化した感圧性接着剤の層のゾル分は、

10

20

30

40

50

上記層の所定量M_o（約0.5g）を、無数の孔（直径0.2μm）を有するフッ素樹脂膜で包み、これを酢酸エチル中に20℃で240時間浸漬したときに、酢酸エチルに溶解した溶解性ポリマーをゾル分としたものである。また、そのゾル分率は、上記ゾル分の量M_tを測定し、これと浸漬前の初期の重量M_oとより、 $(M_t/M_o) \times 100$ （重量%）として、算出される。

【0009】

また、上記の溶解性ポリマー（ゾル分）を用いて、ゲルパーメーションクロマトグラフィー法（以下、GPC法という）による分子量重量分布曲線から、ゾル分の重量平均分子量と、分子量10万以下の低分子量成分の割合（重量百分率）を求めた。GPC法による分子量重量分布曲線の測定条件は、試料濃度1mg/ml、試料導入力500mg、カラム温度40℃、流速1.0ml/分とした。

10

【0010】

さらに、この明細書において、「感圧性接着シート類」とは、感圧性接着シート、感圧性接着テープおよびこれらと類似の形状を有する各種の接着製品（感圧性接着ラベルなど）を総称したものである。

【0011】

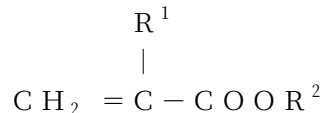
【発明の実施の形態】

本発明においてベースポリマーとして用いるアクリル系ポリマーは、（メタ）アクリル酸アルキルエステルを主成分とするモノマーのホモポリマーまたはコポリマーであり、モノマーは、上記の（メタ）アクリル酸アルキルエステルのほかに、これと共重合可能な他のモノマーを併用することができる。

20

【0012】

（メタ）アクリル酸アルキルエステルとは、つぎの一般式；



（式中、R¹ は水素原子またはメチル基、R² は炭素数1～18のアルキル基である）で表されるモノマーであり、具体的には、（メタ）アクリル酸メチル、（メタ）アクリル酸エチル、（メタ）アクリル酸プロピル、（メタ）アクリル酸ブチル、（メタ）アクリル酸2-エチルヘキシル、（メタ）アクリル酸オクチル、（メタ）アクリル酸ノニル、（メタ）アクリル酸ラウリルなどが挙げられる。

30

これらの中でも、後記の実施例に示すように、アクリル酸2-エチルヘキシルおよび/またはアクリル酸n-ブチルが、特に好ましく用いられる。

【0013】

共重合可能な他のモノマーとしては、酢酸ビニル、スチレン、（メタ）アクリロニトリル、（メタ）アクリルアミド、（メタ）アクリル酸、2-ヒドロキシエチル（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、グリシジル（メタ）アクリレート、N, N-ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレートなど、アクリル系感圧性接着剤の改質用モノマーとして知られる各種モノマーをいずれも使用可能である。これら共重合可能な他のモノマーは、（メタ）アクリル酸アルキルエステルとの合計量中、通常50重量%以下の割合で用いられる。

40

【0014】

このようなアクリル系ポリマーは、これにシランカップリング剤を含ませて、架橋剤により架橋構造化したのちに、そのゾル分が、GPC法による分子量測定で、重量平均分子量が30万以上、好ましくは50万以上（通常500万まで）で、分子量10万以下の低分子量成分が12重量%以下、好ましくは10重量%以下となるように、架橋構造化前において適宜の分子量分布、とくに上記低分子量成分が通常より少ない分子量分布を示すポリマー構成にされていることが望まれる。このようなポリマー構成としたものに適宜の架橋処理を施すことにより、架橋後の分子量構成を上記範囲に容易に設定できる。

【0015】

50

架橋構造化前において、上記ポリマー構成とするには、たとえば、アゾ系化合物や過酸化物などの重合開始剤を使用した溶液重合法、エマルション重合法、塊状重合法などにより、また光重合開始剤を用いて光を照射して光重合させたり、放射線を照射して重合させるなどして、アクリル系ポリマーを得たのち、これに低分子量成分のみを溶解する有機溶媒を加えて低分子量成分のみを分別除去するか、上記のポリマーに所要の配合剤を加えてテープ状などの形態としたのちに、上記同様の有機溶媒で処理して低分子量成分を溶出させればよい。

【0016】

また、上記ポリマー構成とする別の方法として、溶液重合法において重合溶媒として連鎖移動係数の小さいものを用い、またモノマー濃度を高くしてできるだけ低温で重合させるか、あるいは光重合開始剤を用いた光重合法の採用により、つまり重合時の操作条件を適宜選択することにより、低分子量成分の少ないアクリル系ポリマーを得ることができる。このような重合操作の選択と前記重合後の低分子量成分の除去操作とを、適宜組み合わせるようにしてもよい。

10

【0017】

本発明において、上記のアクリル系ポリマーに含ませるシランカップリング剤としては、たとえば、ビニルトリクロルシラン、ビニルトリス（ β -メトキシエトキシ）シラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、 γ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、 β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、N- β -(アミノエチル)- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N- β -(アミノエチル)- γ -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N-フェニル- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -クロロプロピルトリメトキシシランなどを挙げることができる。

20

【0018】

これらのシランカップリング剤の使用量は、アクリル系ポリマー100重量部に対して、通常0.001~5重量部、好ましくは0.01~1重量部の割合とするのがよい。シランカップリング剤の使用量が少なすぎると、表示装置（ガラス）に対する密着性を十分に改善できず、また多くなりすぎると、接着特性などに悪影響を及ぼすおそれがあり、好ましくない。

30

【0019】

本発明において、上記のアクリル系ポリマーに上記のシランカップリング剤を含ませて、架橋剤により架橋構造化する際には、架橋構造化後のゾル分率、つまり溶解性ポリマーの割合が通常5~40重量%、好ましくは10~40重量%となり、またこの架橋構造化後のゾル分に関し、GPC法による分子量測定で求められる重量平均分子量、分子量10万以下の低分子量成分の割合が前記範囲となるように、架橋剤の種類や使用量などが適宜選択される。

【0020】

架橋剤には、従来公知のものが広く含まれるが、とくに多官能性メラミン化合物および／または多官能性エポキシ化合物が好ましい。具体的には、メチル化メチロールメラミン、ブチル化ヘキサメチロールメラミン、ジグリシジルアニリン、グリセリンジグリシジルエーテルなどが挙げられる。これら架橋剤の使用量としては、アクリル系ポリマー100重量部に対して、通常0.001~10重量部、好ましくは0.01~5重量部の範囲とするのがよい。

40

【0021】

また、多官能性イソシアネート化合物の使用も好ましく、このような化合物としては、たとえば、トリ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、ポリメチレンポリフェニルイソシアネート、ジフェニルメタ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、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などが挙げられる。これら化合物の使用量は、前記のアクリル系ポリマー10

50

0重量部に対し、通常0.01～20重量部、好ましくは0.05～15重量部の範囲とするのがよい。

【0022】

本発明の感圧性接着シート類は、このように架橋剤により架橋構造化してなる厚さが通常5～500 μm 、好ましくは10～100 μm の感圧性接着剤の層を有するものであり、この層はプラスチックフィルムなどからなる厚さが通常10～1,000 μm の透明基材の片面または両面に設けられて、シート状やテープ状などの形態とされたものであつてもよいし、適宜の剥離ライナ上に設けられて上記同様の形態とされた基材レスの構成とされたものであつてもよい。

【0023】

この感圧性接着シート類は、ガラスに対する接着力が300g以上/20mm幅、好ましくは400g以上/20mm幅（通常、2,000gまで/20mm幅）となるものであり、機能性フィルム、たとえば、導電フィルム、防眩フィルム、熱線遮断フィルム、反射防止フィルムなどの厚さが通常50～200 μm 程度の各種機能を持った複合フィルムを、表示装置（のガラス面）に固定するための接着固定材料として、とくに好ましく用いられる。

【0024】

本発明において、上記の機能性フィルムを表示装置に固定するには、上記の感圧性接着シート類を介して両者を接着固定すればよく、通常は、上記の機能性フィルムに上記の感圧性接着シート類を貼り付け、これを表示装置（のガラス面）に貼り付ければよい。これにより、接着当初はもちろん、夏場の自動車の中や倉庫の中のような高温ないし高温多湿下といった過酷な環境下に長時間晒されたときでも、接着界面において浮きや気泡などが発生することなく、良好な接着強度で固定でき、上記浮きや気泡などの発生がみられないため、良好な外観を長期間にわたり維持することができる。

【0025】

なお、このような効果が奏される理由は、必ずしも明らかではない。本発明者らの推測では、シランカップリング剤の配合に基づく被着体（表示装置：ガラスなど）に対する密着性の向上に加えて、架橋剤により架橋構造化したのちのゾル分中の低分子量成分が少なくなるポリマー構成としたことにより、感圧性接着シート類中やさらに機能性フィルムなどから発生するガス分が接着界面において気泡や浮きの原因となるのを抑制する作用を示すためではないかと思われる。

【0026】

【実施例】

つぎに、本発明の実施例を記載して、より具体的に説明する。なお以下、部とあるのは重量部を意味する。また、以下の実施例および比較例で用いたアクリル系ポリマー溶液A～Cは、下記の方法で調製したものである。

【0027】

<アクリル系ポリマー溶液A>

アクリル酸2-エチルヘキシル70部、アクリル酸n-ブチル25部、アクリル酸5部、アクリル酸3-ヒドロキシプロピル0.06部および重合溶媒として酢酸エチル45部を、三口フラスコに投入し、窒素ガスを導入しながら2時間攪拌した。このように重合系内の酸素を除去したのち、過酸化ベンゾイル0.2部を加え、60℃に昇温して10時間反応させ、さらに75℃に昇温して2時間反応させた。その反応液に、酢酸エチルを加え、固形分濃度45重量%のアクリル系ポリマー溶液Aを得た。

【0028】

<アクリル系ポリマー溶液B>

上記のアクリル系ポリマー溶液Aの100部にn-ヘプタン120部を攪拌しながら6時間かけて滴下し、24時間静置後、上澄み液を分離した。その後、上澄み液が分離されたポリマー溶液にトルエンを加えて溶解させたのち、n-ヘプタン120部を上記同様に加えて上澄み液を分離する操作をさらに5回繰り返した。このようにして得た最終のポリマー溶液にトルエン80部を加えたのち、濃縮して、ポリマー濃度が25重量%のアクリル

10

20

30

40

50

系ポリマー溶液Bを得た。

【0029】

＜アクリル系ポリマー溶液C＞

上記のアクリル系ポリマー溶液Aと上記のアクリル系ポリマー溶液Bとを、重量比1：1となるように混合して、ポリマー濃度が35重量%のアクリル系ポリマー溶液Cを得た。

【0030】

実施例1

アクリル系ポリマー溶液Bの100部に、トリレンジイソシアネート1.5部、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン0.09部を加えて、感圧性接着剤溶液を調製した。この溶液を、厚さが188 μ mのポリエチレンテレフタレートフィルムからなる基材上に、乾燥後の厚さが25 μ mとなるように、流延塗布し、130℃で3分間加熱乾燥し、さらに50℃で72時間エージングを行い、架橋構造化した感圧性接着剤の層を有する接着力測定用の感圧性接着シートを作製した。また、上記と同様にして、厚さが38 μ mのポリエチレンテレフタレートフィルムからなる剥離ライナ上に架橋構造化した厚さが25 μ mの感圧性接着剤の層を有する耐候性測定用の感圧性接着シートを作製した。

10

【0031】

実施例2

アクリル系ポリマー溶液Cの100部に、ジフェニルメタンジイソシアネート3部、 γ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン0.12部を加えて、感圧性接着剤溶液を調製した。この溶液を使用して、実施例1と同様にして、接着力測定用および耐候性測定用の感圧性接着シートを作製した。

20

【0032】

比較例1

アクリル系ポリマー溶液Aの100部に、トリメチロールプロパントリレンジイソシアネート0.8部、 β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン0.15部を加えて、感圧性接着剤溶液を調製した。この感圧性接着剤溶液を使用して、実施例1と同様にして、接着力測定用および耐候性測定用の感圧性接着シートを作製した。

【0033】

比較例2

アクリル系ポリマー溶液Bの100部に、トリメチロールプロパントリレンジイソシアネート3部を加えて、感圧性接着剤溶液を調製した。これを用いて、実施例1と同様にして、接着力測定用および耐候性測定用の感圧性接着シートを作製した。

30

【0034】

以上の実施例1, 2および比較例1, 2の各接着力測定用および耐候性測定用の感圧性接着シートについて、以下の方法により、接着力試験および耐候性試験を行った。これらの結果は、表1に示されるとおりであつた。なお、表1には、参考のため、感圧性接着剤溶液中のシランカップリング剤の有無と、架橋構造化した感圧性接着剤の層のゾル分に関し、そのゾル分率、GPC法による重量平均分子量および分子量10万以下の低分子量成分の割合を併記した。

【0035】

40

＜接着力試験＞

接着力測定用の感圧性接着シートから、幅20mm、長さ120mmの試験片を作製した。この試験片を、ガラス板上に、23℃の雰囲気下、2Kgローラ1往復にて貼り合わせたのち、同温度で、テンシロン型剥離試験機により、300mm/分の剥離速度で、剥離接着力を測定した。

【0036】

＜耐候性試験＞

耐候性測定用の感圧性接着シートを、厚さが125 μ mのポリエチレンテレフタレートフィルムにラミネートしたのち、これをガラスに固定し、サンプル片を作製した。このサンプル片を、80℃および60℃、95%RHにそれぞれ500時間投入して、耐候性試験

50

を行つた。この耐候性試験後、目視により、接着界面に外観欠落となる気泡や浮きなどが全くみられないものを○、上記気泡や浮きなどがわずかでもみられるものを×、と評価した。

【0037】

表1

		実施例1	実施例2	比較例1	比較例2
シランカップリング剤		あり	あり	あり	なし
ゾル分	ゾル分率 (重量%)	15	10	15	29
	重量平均分子量 (万)	58	47	49	58
	低分子量成分 (重量%)	6	12	25	6
接着力試験 (g/20mm幅)		550	590	620	500
耐候性試験		○	○	×	×

【0038】

上記表1から明らかなように、本発明の実施例1、2の感圧性接着シートは、架橋構造化した感圧性接着剤の層におけるゾル分の分子量構成などに応じた良好な接着力を示すとともに、耐候性試験後に接着界面に気泡や浮きなどが全くみられない、すぐれた耐候性を示すものであることがわかる。これに対して、上記ゾル分の分子量構成が本発明の範囲外となる比較例1の感圧性接着シートや、上記ゾル分の分子量構成は本発明の範囲内であるがシランカップリング剤を含まない比較例2の感圧性接着シートでは、耐候性に劣っている。

【0039】

【発明の効果】

以上のように、本発明は、アクリル系ポリマーにシランカップリング剤を含ませて、これを架橋剤により架橋構造化したときのゾル分率が特定範囲となるようにするとともに、そのゾル分が、低分子量成分の少ない特定の分子量分布を有する構成としたことにより、耐候性にすぐれた感圧性接着シート類を提供することができ、これを用いて機能性フィルムを表示装置に接着固定することにより、耐候性試験下でも接着界面で浮きや気泡などが発生せず、良好な外観を長期間にわたり維持させることができる。

フロントページの続き

合議体

審判長 西川 和子

審判官 原田 隆興

審判官 木村 敏康

- (56)参考文献 特開平10-46126号公報(JP, A)
特開平10-46125号公報(JP, A)
特開平7-3221号公報(JP, A)
特開平5-105857号公報(JP, A)
特開平1-178567号公報(JP, A)
特開平11-199832号公報(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C09J7/02

C09J133/08

C09J133/10