

(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
2018年9月27日(27.09.2018)



(10) 国際公開番号

WO 2018/174085 A1

(51) 国際特許分類:

C08J 5/18 (2006.01) *C09J 7/30* (2018.01)
B32B 27/30 (2006.01) *C09J 123/20* (2006.01)
B32B 27/32 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
C08F 2/44 (2006.01) *H05B 33/02* (2006.01)
C08F 255/10 (2006.01) *H05B 33/04* (2006.01)
C09J 4/02 (2006.01)

HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, KE, KG, KH,
KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY,
MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ,
NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT,
QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,
SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(21) 国際出願番号: PCT/JP2018/011170

(22) 国際出願日: 2018年3月20日(20.03.2018)

(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 2017-056044 2017年3月22日(22.03.2017) JP
特願 2017-132629 2017年7月6日(06.07.2017) JP
特願 2017-197490 2017年10月11日(11.10.2017) JP

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(71) 出願人: 三菱ケミカル株式会社(MITSUBISHI CHEMICAL CORPORATION)
[JP/JP]; 〒1008251 東京都千代田区丸の内一丁目1番1号 Tokyo (JP).

添付公開書類:

一 国際調査報告(条約第21条(3))

(72) 発明者: 田畑 大樹(TABATA Daiki); 〒1008251 東京都千代田区丸の内一丁目1番1号 三菱ケミカル株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人竹内・市澤国際特許事務所(TAKEUCHI, ICHIZAWA & ASSOCIATES); 〒1070052 東京都港区赤坂2丁目19番8号 赤坂2丁目アネックス6階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT,

(54) Title: CURABLE COMPOSITION, SHEET AND LAMINATE PRODUCED USING SAME, AND IMAGE DISPLAY DEVICE

(54) 発明の名称: 硬化性組成物、シート、それを用いた積層体、画像表示装置

(57) Abstract: Provided is a sheet which can exhibit good adhesiveness and retentivity, high transparency and water vapor barrier properties, and contains an isobutylene polymer (A) and an acrylate-based polymer (B), wherein the acrylate-based polymer (B) contains a monofunctional acrylate unit and a polyfunctional acrylate unit as structural units, at least one of maximum points of loss tangent ($\tan\delta$) in a shear measurement of the sheet at a frequency of 1 Hz falls within the range from -30°C to 30°C, and the haze of the sheet is 2.0% or less.

(57) 要約: 良好な接着力と保持力、高透明性、水蒸気バリア性を実現できるシートとして、イソブチレン重合体(A)とアクリレート系重合体(B)を含むシートであって、前記アクリレート系重合体(B)は、構造単位として、単官能アクリレート単位及び多官能アクリレート単位をそれぞれ有し、前記シートは、周波数1 Hzの剪断測定における損失正接($\tan\delta$)の少なくとも一つの極大点が-30°C~30°Cの範囲にあり、ヘーズが2.0%以下であるシートを提供する。

WO 2018/174085 A1

明 細 書

発明の名称：

硬化性組成物、シート、それを用いた積層体、画像表示装置

技術分野

[0001] 本発明は、接着力、保持力、透明性及び水蒸気バリア性を有するシート、さらにはこのシートを作製するための硬化性組成物に関する。

背景技術

[0002] 近年、有機発光ダイオード（O L E D）や量子ドット（Q D）を用いた曲面、あるいは折り曲げ可能な表示装置が開発され、広く商用化されつつある。

このような表示装置では、複数のフィルム状構成部材が、透明光学接着（O C A）シートで貼り合された構造をしている。しかし、従来から使用されているアクリル系O C Aシートには、防湿性能の不足による様々なトラブルや、金属電極の腐食やマイグレーションといった課題があり、新たな材料系のO C Aシートが求められていた。

[0003] 上記の課題を解決する可能性のある高分子材料として、イソブテンを重合成分及び共重合成分として含む重合体（「イソブチレン重合体」と称する）を挙げることができる。

イソブチレン重合体は、汎用の軟質樹脂としては水蒸気バリア性が特に高いという特長を有する一方で、樹脂組成物に適用するには凝集力が小さ過ぎるため、糊残りや、低温流動、保持力不足といった課題があった。

[0004] このような、凝集力の低いイソブチレン重合体を使いこなす方法の一つとして、アクリレート等のモノマーをイソブチレン重合体に混合した後、アクリレートを重合することで、凝集力を向上する方法が知られている。

[0005] 例えば、非特許文献1には、イソブチレン重合体と、単官能アクリレートであるポリシクロヘキシルメタクリレート（P C H M A）のネットワークからなるセミI P N構造を有する組成物が開示されており、この組成物は低温

流動が抑えられておりイソブチレン重合体本来の水蒸気バリア性も有することが開示されている。

- [0006] 特許文献1には、イソブチレン重合体のような封止樹脂、多官能アクリレート、特定のシラン化合物を含む粘着剤組成物が開示されており、この粘着剤組成物から得られる粘着フィルムは優れた水蒸気バリア性、透明性を有することが記載されている。

先行技術文献

特許文献

- [0007] 特許文献1：特表2016-527377号公報

非特許文献

- [0008] 非特許文献1：B. Davion et al. / Polymer, 51, (2010), 5323-5331

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0009] 上記特許文献1に開示されているイソブチレン重合体と多官能アクリレートからなる粘着シートは、優れた水蒸気バリア性を備えることができるものの、それだけでは、ガラス転移温度が低過ぎて十分な粘着力が得られないという問題を抱えていた。

ガラス転移温度を上昇させる方法として、石油樹脂などの粘着付与剤を多量に配合する方法が知られており、特許文献1の実施例1でも、約25質量%の水添DCPD系粘着付与剤が添加されている。しかし、このように多量の粘着付与剤を配合すると、ガラス転移温度を上昇させることができる一方、接着状態を長期間維持することができる性質としての保持力が低下するという問題を抱えていた。

- [0010] また、上記特許文献1の実施例に例示されているトリシクロデカンジメタノールジアクリレート(DCPA)を含むイソブチレン重合体/DCPA系組成物は、その硬化物の屈折率がイソブチレン重合体の屈折率に極めて近い

ことから、組成物の透明性をある程度維持することができる。しかし、このようなイソブチレン重合体／DCPA系組成物を、透過型電子顕微鏡（TEM）で観察すると、イソブチレン重合体とDCPAの相溶性が良くないため、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以上の大きさのDCPA硬化物が分散した状態にあり、保持力及び透明性に問題が生じる可能性があった。

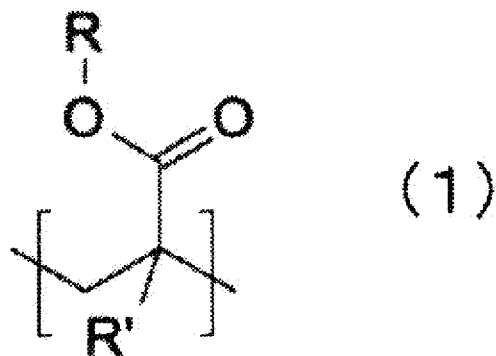
[0011] 上記非特許文献1に示される系では、イソブチレン重合体の含有比率が多い場合には、イソブチレン重合体の特性が顕著に現れ、十分な接着力や保持力を有する粘着シートを得るのは困難であった。

[0012] 本発明は、良好な接着力、良好な保持力、優れた透明性を有し、且つ、優れた水蒸気バリア性を有するシート、さらにはこのシートを作製するための硬化性組成物を提供せんとするものである。

課題を解決するための手段

[0013] 本発明は、イソブチレン重合体（A）とアクリレート系重合体（B）を含むシートであって、前記アクリレート系重合体（B）は、構造単位として、下式（1）に示す単位構造の単官能アクリレート単位、及び、多官能アクリレート単位をそれぞれ有し、前記シートは、周波数 1 Hz の剪断測定における損失正接（ $\tan\delta$ ）の少なくとも一つの極大点が $-30^{\circ}\text{C}\sim 30^{\circ}\text{C}$ の範囲にあり、ヘーズが2.0%以下であるシートを提案する。

[化1]



（式中、Rは炭化水素基、R'は水素（H）又はメチル基（ CH_3 ）をそれぞれ

れ表す)

[0014] 本発明はまた、イソブチレン重合体 (A) 100質量部に対してアクリレートモノマーを5質量部以上100質量部未満含む硬化性組成物であって、前記アクリレートモノマーとして、単官能アクリレートモノマーと多官能アクリレートモノマーをそれぞれ有し、前記多官能アクリレートを、前記硬化性組成物中に0.5質量%以上10質量%未満含有することを特徴とする硬化性組成物を提案する。

発明の効果

[0015] 本発明が提案する硬化性組成物は、硬化させることにより、本発明が提案する上記シートを作製することができる。そして、本発明が提案する当該シートは、構造単位として上式(1)に示す単位構造の単官能アクリレート単位、及び、多官能アクリレート単位を有するアクリレート系重合体(B)をそれぞれ含有するため、イソブチレン重合体(A)と当該アクリレート系重合体(B)との間でセミIPN(相互侵入高分子網目)構造を形成することができ、水蒸気バリア性及び透明性を両立することができる。さらに、周波数1Hzの剪断測定における損失正接($\tan \delta$)の少なくとも一つの極大点が -30°C ~ 30°C の範囲にあるため、優れた接着性、保持力を有するシートを得ることができるから、接着性、保持力、透明性、及び、水蒸気バリア性を高めることができる。よって、このシートを画像表示装置等の構成部材として用いることにより、画像表示装置等の薄型化に寄与することができる。

図面の簡単な説明

[0016] [図1]実施例2-1~2-3及び比較例2-1~2-2で得られたシート(サンプル)、すなわち硬化処理後のシート(サンプル)の損失正接($\tan \delta$)を示したグラフである。

[図2]実施例2-1で得られたシート(サンプル)、すなわち硬化処理後のシート(サンプル)を透過型電子顕微鏡(1000倍)で観察した写真である。

[図3]実施例2-1で得られたシート（サンプル）、すなわち硬化処理後のシート（サンプル）を透過型電子顕微鏡（5000倍）で観察した写真である。

[図4]実施例2-3で得られたシート（サンプル）、すなわち硬化処理後のシート（サンプル）を透過型電子顕微鏡（2000倍）で観察した写真である

[図5]実施例2-3で得られたシート（サンプル）、すなわち硬化処理後のシート（サンプル）を透過型電子顕微鏡（5000倍）で観察した写真である。

[図6]比較例2-1で得られたシート（サンプル）、すなわち硬化処理後のシート（サンプル）を透過型電子顕微鏡（1000倍）で観察した写真である。

[図7]比較例2-2で得られたシート（サンプル）、すなわち硬化処理後のシート（サンプル）を透過型電子顕微鏡（1000倍）で観察した写真である。

発明を実施するための形態

[0017] 以下、本発明を詳しく説明する。ただし、本発明の内容が以下に説明する実施形態に限定されるものではない。

[0018] [本シート]

本発明の実施形態の一例に係るシート（「本シート」と称する）は、イソブチレン重合体（A）とアクリレート系重合体（B）を含むシートである。

[0019] <イソブチレン重合体（A）>

本シートを構成するイソブチレン重合体（A）は、主鎖又は側鎖にイソブチレン骨格を有する重合体であり、下記式（2）の構成単位を有するものである。

[0020] [化2]



[0021] イソブチレン重合体（A）は、本シートの水蒸気バリア性を向上させる働きを有する。

[0022] イソブチレン重合体（A）として、イソブチレンの単独重合体であるイソブチレン重合体、イソブチレンとイソプレンの共重合体、イソブチレンと n -ブテンの共重合体、イソブチレンとブタジエンの共重合体、及びこれら共重合体を臭素化又は塩素化等したハロゲン化ブチルゴム等を挙げることができる。これらの重合体は一種単独、あるいは二種以上を組み合わせることができる。

[0023] これらの中でも、本シートの耐久性及び耐候性を向上させる観点、並びに水蒸気透過率を低下させる観点から、イソブチレン重合体（A）としては、イソブチレン重合体、イソブチレン・イソプレン共重合体又はこれらの組み合わせが好ましい。

[0024] 上記イソブチレン・イソプレン共重合体は、分子内に、イソブチレン由来の繰り返し単位 $[-CH_2-C(CH_3)_2-]$ と、イソプレン由来の繰り返し単位 $[-CH_2-C(CH_3)=CH-CH_2-]$ を有する合成ゴムである。

イソブチレン・イソプレン共重合体中のイソプレン由来の繰り返し単位の含有率は、通常、全繰り返し単位に対して、0.1～99モル%であり、好ましくは0.5～50モル%、さらに好ましくは1～10モル%である。

イソブチレン・イソプレン共重合体中のイソプレン由来の繰り返し単位が上記範囲であれば、防湿性に優れる本シートが得られるため好ましい。

[0025] イソブチレン・イソプレン共重合体の種類は特に限定されない。例えば再生イソブチレン・イソプレン共重合体、合成イソブチレン・イソプレン共重合体などを挙げることができる。これらの中でも、合成イソブチレン・イソプレン共重合体が好ましい。

[0026] イソブチレン重合体の合成方法としては、塩化アルミニウム、三フッ化ホウ素等のルイス酸触媒の存在下で、イソブチレン等のモノマー成分を重合する方法を挙げることができる。

また、イソブチレン重合体（A）として、市販品を使用することもできる

。市販品としては、Vistanex (Exxon Chemical Co. 製)、Hycar (Goodrich社製)、Oppanol (BASF社製)、テトラックス (JXTG社製)、日石ポリブテン (JXTG社製) 等を挙げることができる。

[0027] イソブチレン重合体 (A) の重量平均分子量 (M_w) は、1,000~2,000,000 g/mol であるのが好ましく、中でも1,500 g/mol 以上或いは1,500,000 g/mol 以下、その中でも2,000 g/mol 以上1,000,000 g/mol 以下、中でも50,000 g/mol 以上、中でも100,000 g/mol 以上、中でも120,000 g/mol 以上であるのがさらに好ましい。

イソブチレン重合体重量平均分子量 (M_w) が1,000 g/mol 以上のイソブチレン重合体 (A) であることで、本シートを形成する本硬化性組成物の流動性が適度なものとなり、シート状に成形した後に形状を保持しやすくなる。また、重量平均分子量 (M_w) が2,000,000 g/mol 以下のイソブチレン重合体 (A) であることで、均一な組織が得られやすい。

ここで、重量平均分子量 (M_w) は、テトラヒドロフランを溶媒として用いてゲルパーミエーションクロマトグラフィー法によって測定し (GPC分析)、標準ポリスチレンで換算した値である。

[0028] イソブチレン重合体 (A) は、平均分子量が異なる2種類以上のイソブチレン重合体 (A) を組み合わせて使用することもできる。例えば、重量平均分子量が100,000 g/mol 未満のイソブチレン重合体と、重量平均分子量が100,000 g/mol 以上のイソブチレン重合体とを併用することで、2峰性分子量分布のイソブチレン重合体として用いることができる。

このように元が別々の原料であったとしても、イソブチレン重合体 (A) 全体として、重量平均分子量が1,000~2,000,000 g/mol 、より好ましくは1,500~1,500,000 g/mol 、さらに好ま

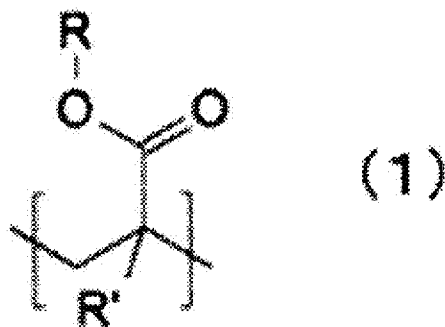
しくは2,000～1,000,000g/molであればよい。

[0029] 重量平均分子量が100,000g/mol未満の市販品としては、商品名：テトラックス（JXTG社）、商品名：日石ポリブテン（JXTG社）、商品名：ハイモール（JXTG社）が挙げられ、重量平均分子量が100,000g/mol以上の市販品としては、商品名：オパノール（BASF社）を挙げることができる。

[0030] <アクリレート重合体（B）>

本シートを構成するアクリレート重合体（B）は、構造単位として、下式（1）に示す単位構造の単官能アクリレート単位（単に「単官能アクリレート」とも称する）、及び、多官能アクリレート単位（単に「多官能アクリレート」とも称する）をそれぞれ有するものが好ましい。

[0031] [化3]



（式中、Rは炭化水素基、R'は水素（H）又はメチル基（CH₃）をそれぞれ表す）

[0032] （単官能アクリレート）

折り畳みディスプレイ用途などでは、本シートのT_gを下げるのが求められる場合がある。このような場合、前記アクリレート系重合体（B）は、少なくとも2種類の単官能アクリレートを有するのが好ましい。2種類以上の単官能アクリレートを用いることにより、側鎖の炭素数が不揃いになり、本シートのT_gは下げることができる。また、2種類以上の単官能アクリレ

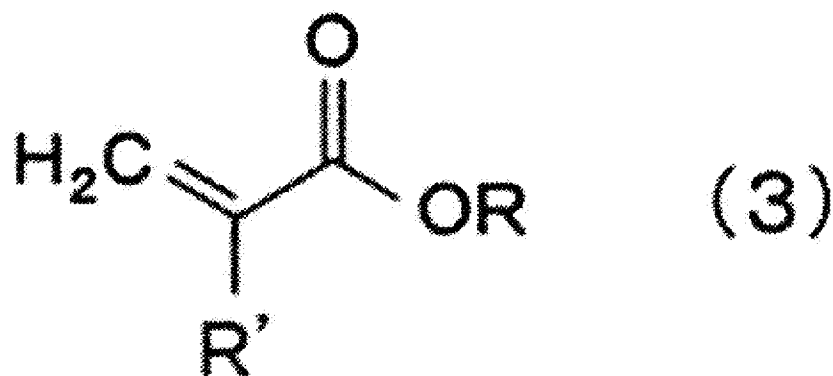
ートの配合比率の調整によって、本シートの T_g を所望の温度域に調整可能となる。

例えばある配合では、単官能アクリレートとして、イソステアリル (iso-C18) アクリレートを単独で用いた場合はシートの T_g は約 -2°C 付近になる一方、イソステアリル (iso-C18) アクリレートとセチル (n-C16) アクリレートを 1 : 1 の質量比率で配合した場合は、シートの T_g を -20°C 付近まで低減することが可能である。

[0033] 単官能アクリレートは、イソブチレン重合体 (A) との相溶性の観点から、炭素数 10 以上の長鎖アルキル鎖を有する単官能アクリレートであるのが好ましい。

炭素数 10 以上の長鎖アルキル鎖を有する単官能アクリレートとして、(メタ) アクリロイルオキシ基を 1 個有し、かつ、炭素数 10 以上の長鎖アルキル鎖を有するアクリレートである単官能性脂肪族アクリレートを挙げることができ、その構造を下式 (3) に示す。

[0034] [化4]



[0035] 上記 (3) 式中、R は炭素数 10 以上の長鎖アルキル基を表す。

上記式中、R' は水素 (H) 又はメチル基 (CH₃) である。

[0036] 炭素数 10 以上の長鎖アルキル基 (R) とは、主鎖の炭素数が 10 以上であるアルキル基である。例えばデシル基 (C₁₀)、ウンデシル基 (C₁₁)、ドデシル基 (C₁₂)、トリデシル基 (C₁₃)、テトラデシル基 (C₁₄)、ペ

ンタデシル基 (C_{15})、ヘキサデシル基 (C_{16})、ヘプタデシル基 (C_{17})、オクタデシル基 (C_{18})、ノナデシル基 (C_{19}) 等を挙げることができる。

[0037] 上記長鎖アルキル基 (R) における主鎖の炭素数は 20 以下、特に 18 以下であるのが好ましい。該炭素数が 18 以下であれば、単官能性脂肪族アクリレート同士による結晶化が起こりにくくなるため、低ヘーズ、高全光線透過率による透明性を発現しやすくなる。他方、当該主鎖の炭素数が 10 以上であれば、長鎖アルキル基 (R) は分岐アルキル基を有していてもよい。一般に分岐アルキル基の方が直鎖アルキル基と比較して常温領域で結晶化しにくく、透明性を発現しやすくなる。

[0038] また、上記長鎖アルキル基 (R) が異なる 2 種類以上の組み合わせからなるものであれば、結晶化を抑制して透明性を向上させることができる。

[0039] アクリレート系重合体 (B) は、単官能アクリレートを 60～90 質量%の範囲で含むことが好ましく、中でも 70 質量%以上或いは 90 質量%以下の範囲で含むことがさらに好ましい。このような範囲とすることで、本シートの透明性を維持しつつ、耐クリープ性も高めることができる。

[0040] 本シート全体に対する上記単官能アクリレートの含有量は 3 質量%以上であることが好ましい。3 質量%以上であることで、本シートの耐クリープ性を高めることができる。かかる観点から、本シート全体に対する単官能アクリレートの含有量は、5 質量%以上であるのがさらに好ましく、中でも 10 質量%以上であるのがさらに好ましい。一方、上限については、単官能アクリレートの含有量が 50 質量%以下であるのが好ましい。50 質量%以下であることで、本シートの水蒸気バリア性や衝撃エネルギー吸収性を高めることができる。かかる観点から、単官能アクリレートの含有量が 40 質量%以下であるのがさらに好ましく、その中でも 35 質量%以下、中でも 30 質量%以下、中でも 25 質量%以下であるのがさらに好ましい。

[0041] 前記アクリレート系重合体 (B) は、側鎖の結晶性を下げ、透明性を向上させる観点から、上式 (1) の R として、分岐アルキル基である単官能アク

リレートを、少なくとも1種類含むものが好ましい。

[0042] (H S P 距離)

上記イソブチレン重合体(A)と、アクリレート系重合体(B)の単官能アクリレートとのハンセン溶解度パラメーター(H S P)距離は5.0以下であることが好ましく、4.5以下であるのがより好ましく、さらに3.8以下であるのが特に好ましい。

イソブチレン重合体(A)と、アクリレート系重合体(B)の単官能アクリレートとのハンセン溶解度パラメーター(H S P)距離が5.0以下であれば、イソブチレン重合体(A)とアクリレート系重合体(B)の相溶性が良好となり、ブリードアウトや、分散径の増大による透明性の悪化を抑えることができる。

[0043] 単官能アクリレートのH S Pは、イソブチレン重合体(A)とのH S P距離が5.0以下の位置にあることが好ましく、4.5以下の位置にあることがより好ましい。

イソブチレン重合体(A)とのH S P距離が5.0以下である単官能アクリレートの例としては、例えばイソステアリルアクリレート、イソヘキサデシルアクリレート、ステアリルアクリレート、ヘキサデシルアクリレート、イソテトラデシルアクリレート、テトラデシルアクリレート、イソドデシルアクリレート、ドデシルアクリレート、イソデシルアクリレート等を挙げることができる。

[0044] ここで、「ハンセンの溶解度パラメーター(H S P)」は、ある物質が他のある物質にどのくらい溶けるのかという溶解性を表す指標である。

H S Pは、ヒルデブランド(H i l d e b r a n d)によって導入された溶解度パラメーターを、分散項 δD 、極性項 δP 、水素結合項 δH の3成分に分割し、三次元空間に表したものである。分散項 δD は分散力による効果、極性項 δP は双極子間力による効果、水素結合項 δH は水素結合力による効果を示し、

δD : 分子間の分散力に由来するエネルギー

δP : 分子間の極性力に由来するエネルギー

δH : 分子間の水素結合力に由来するエネルギー

と、表記される。（ここで、それぞれの単位は $\text{MPa}^{0.5}$ である。）

[0045] HSP の定義と計算は、下記の文献に記載されている。

Charles M. Hansen 著、Hansen Solubility Parameters: A Users Handbook (CRC プレス、2007 年)。

[0046] それぞれ、分散項はファンデルワールス力、極性項はダイポール・モーメント、水素結合項は水、アルコールなどによる作用を反映している。そして HSP によるベクトルが似ているもの同士は溶解性が高いと判断でき、ベクトルの類似度はハンセン溶解度パラメーターの距離（HSP 距離）で判断し得る。また、ハンセンの溶解度パラメーターは、溶解性の判断だけではなく、ある物質が他のある物質中にどの程度存在しやすいか、すなわち分散性がどの程度よいかの判断の指標ともなり得る。

[0047] 本発明において、HSP [δD 、 δP 、 δH] は、例えば、コンピュータソフトウェア Hansen Solubility Parameters in Practice (HSPiP) を用いることによって、その化学構造から簡便に推算できる。具体的には、HSPiP に実装されている、Y-MB 法により化学構造から求められるものである。また化学構造が未知である場合は、複数の溶媒を用いた溶解テストの結果から HSPiP に実装されているスフィア法により求められるものである。

[0048] HSP 距離 (R_a) は、例えば溶質（本発明ではアクリレート系重合体（B））の HSP を (δD_1 , δP_1 , δH_1) とし、溶媒（本発明ではイソブチレン重合体（A））の HSP を (δD_2 , δP_2 , δH_2) としたとき、下記式により算出することができる。

$$\text{HSP 距離 } (R_a) = \{4 \times (\delta D_1 - \delta D_2)^2 + (\delta P_1 - \delta P_2)^2 + (\delta H_1 - \delta H_2)^2\}^{0.5}$$

[0049] (多官能アクリレート)

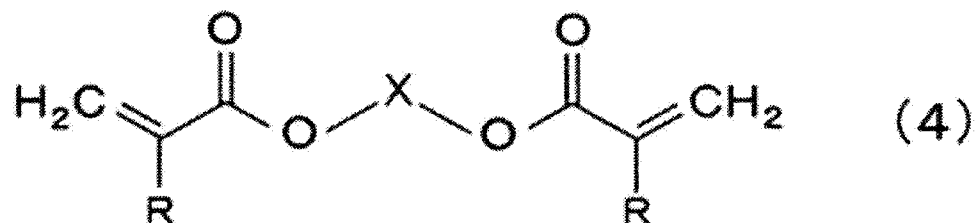
アクリレート系重合体（Ｂ）が多官能アクリレートを含有することにより、アクリレート系重合体（Ｂ）のネットワークを調整することができ、その結果、本シートのプラトー弾性率を調整することができる。プラトー弾性率を調整することで、本シートを貼りつけたときの濡れ易さや、気泡の巻き込み易さを調整することができる。

多官能アクリレートの添加量を増やすほど、プラトー弾性率を上げることができ、多官能アクリレートの分子量が大きいほど、プラトー弾性率を下げるることができる。

[0050] 多官能アクリレートとは、（メタ）アクリロイルオキシ基を２個以上有し、少なくとも（メタ）アクリロイルオキシ基同士が炭化水素基を介して結合するアクリレートである。

多官能アクリレートの一例として、２官能性脂肪族アクリレートの構造を下式（４）に示す。

[0051] [化5]



[0052] 上記式（４）中、Ｒは、水素（Ｈ）又はメチル基（ＣＨ_３）である。

Ｘは脂肪族炭化水素基、又は、脂環式炭化水素基である。

[0053] 多官能アクリレートのＨＳＰは、イソブチレン重合体（Ａ）とのＨＳＰ距離が９．０以下の位置にあることが好ましく、８．０以下の位置にあることがより好ましい。

ＨＳＰ距離を上記範囲とすることで、ブリードアウト等の透明性や接着性に関わるトラブルを抑制することができる。

[0054] 多官能アクリレート中、脂肪族炭化水素基又は脂環式炭化水素基（Ｘ）は、シートの長期安定性の観点から、多重結合を含まない炭化水素基であるこ

とが好ましい。

[0055] 多官能アクリレートとしては、例えば1, 9-ノナンジオールジアクリレート、1, 10-デカンジオールジアクリレート、水素添加ポリブタジエンアクリレート等の直鎖アルキル基を有するジアクリレート；トリシクロデカンジオールジアクリレート、トリシクロデカンジメタノールジアクリレート等の脂環式骨格を有するジアクリレートなどを挙げることができる。但し、これらに限定されるものではない。

[0056] 多官能アクリレートとして、多官能のウレタンアクリレートを用いることもできる。

イソブチレン重合体（A）との相溶性の観点から、ポリブタジエンなどの脂肪族ポリマーを骨格に有するウレタンアクリレートが好ましい。

ウレタンアクリレートの市販品としては、商品名：CN9014 NS（サートマー社）、商品名：BAC-45（大阪有機化学社製、ポリブタジエン末端ジアクリレート）等を挙げることができる。

このようなポリマーベースの多官能アクリレートは、本シートのプラトー弾性率を下げる効果があるため、本シートを構成するアクリレート系重合体（B）が多官能アクリレートを含有することにより、本シートを例えば折り畳みディスプレイや耐衝撃用途に好適に用いることができる。

[0057] 多官能アクリレートとしては、2官能アクリレートに限定されず、3、4、又は4を超える数の（メタ）アクリロイル基を有する多官能アクリレートであってもよい。但し、シートの長期安定性、アクリレートの入手のし易さの観点から、2官能性アクリレートであることが好ましい。

[0058] なお、多官能アクリレートは1種類のみであっても、2種類以上であってもよい。

[0059] 多官能アクリレートは、本シート中0.5質量%以上10質量%未満の割合で含有するのが好ましく、中でも0.7質量%以上或いは9質量%未満、その中でも1.0質量%以上或いは8.0質量%未満の割合で含有するのがさらに好ましい。多官能アクリレートの含有量を10質量%未満とすること

で、ブリードアウトを低減できる。一方、多官能アクリレートの含有量を0.5質量%以上とすることで、透明性を発現することができる。

[0060] (含有割合)

本シートにおいて、前記アクリレート系重合体(B)は、前記イソブチレン重合体(A)100質量部に対して5質量部以上100質量部未満の割合で含まれるのが好ましい。

アクリレート系重合体(B)の含有量が5質量部以上であれば、本硬化性組成物の凝集力を効果的に向上できる。また、アクリレート系重合体(B)の含有量が100質量部以下であれば、本シートにおける(B)成分の分散径を小さくでき、良好な透明性を発現し、かつ、良好な透明性を発現できる。

かかる観点から、アクリレート系重合体(B)の含有割合は、イソブチレン重合体(A)100質量部に対して5質量部以上100質量部未満であるのが好ましく、中でも8質量部以上或いは90質量部以下、その中でも10質量部以上或いは80質量部以下であるのがさらに好ましい。

[0061] <本シートの物性>

(厚み)

本シートの厚みは、特に制限されるものではない。例えば0.01mm以上、より好ましくは0.03mm以上、更に好ましくは0.05mm以上である。一方、上限としては、好ましくは1mm以下、より好ましくは0.7mm以下、更に好ましくは0.5mm以下である。

厚みが0.01mm以上であれば、ハンドリング性が良好であり、また、厚みが1mm以下であれば、積層体の薄型化に寄与することができる。

[0062] (分散性)

本シートは、このシートの縦断面切片又は横断面切片を透過型電子顕微鏡で観察した際(倍率:1000倍~5000倍)、最大径1 μ m以上の塊が観察されないことが好ましい。

このように最大径1 μ m以上の塊が観察されないということは、イソブチ

レン重合体（A）とアクリレート系重合体（B）とが高度に相溶していることを意味しており、本シートとしては水蒸気バリア性及び透明性を両立することができる。

なお、「最大径 $1\ \mu\text{m}$ 以上の塊が観察されない」とは、本シートを四酸化ルテニウム等で染色した後に、クライオミクロトーム等で凍結下にて本シートを、シート面に垂直又はシート面と平行に切断し、厚み約 $80\ \text{nm}$ の切片を作製し、その断面を透過型電子顕微鏡（TEM）で 1000 倍～ 5000 倍の倍率で観察した際、3 個の切片についてそれぞれ無作為で 10 か所観察したとき、何れの視野にも、最大径 $1\ \mu\text{m}$ 以上の塊が観察されないことを意味する。

前述したように、イソブチレン重合体（A）よりもアクリレート系重合体（B）の含有量が少ない場合、上記「最大径 $1\ \mu\text{m}$ 以上の塊」はアクリレート系重合体（B）からなる塊となる。

[0063] 上述のように、最大径 $1\ \mu\text{m}$ 以上の塊が観察されないということは、イソブチレン重合体（A）とアクリレート系重合体（B）とが高度に相溶していることを意味しており、本シートとしては、図 2～図 5 に示されるように、イソブチレン重合体（A）とアクリレート系重合体（B）と互いに均一分散した共連続構造となる。

[0064] アクリレート系重合体（B）の前駆体であるアクリレートモノマーを、イソブチレン重合体（A）に均一に混合し、混合物中のアクリレートモノマーを重合することで、本シートは上記のような共連続構造をとることができる。

[0065] ($\tan\delta$)

本シートにおいては、周波数 $1\ \text{Hz}$ の剪断における損失正接 ($\tan\delta$) の少なくとも一つの極大点が $-30\sim 30\ ^\circ\text{C}$ の範囲内にあることが好ましい。

当該損失正接 ($\tan\delta$) の極大点が $-30\sim 30\ ^\circ\text{C}$ の範囲内にあることにより、良好な接着性、保持力を有するシートとすることができる。

アクリレート系重合体（B）の主成分として炭素数10以上の長鎖アルキル鎖を有するアクリレートを選択し、イソブチレン重合体の種類、これらの量比を選択することにより、 $-30\sim 30^{\circ}\text{C}$ の範囲内に損失正接（ $\tan \delta$ ）の極大点を調整することができる。また、後述する粘着性付与剤を加えることでも、損失正接の極大点を $-30\sim 30^{\circ}\text{C}$ の範囲内に調整することができる。ただし、このような方法に限定するものではない。

[0066] また、本シートは、周波数1 Hzの剪断における損失正接（ $\tan \delta$ ）の極大点については、 $-30\sim 30^{\circ}\text{C}$ の範囲で、周波数1 Hzの剪断における損失正接の極大値が0.5以上であることが、接着性担保の点より好ましく、中でも0.55以上、さらには0.6以上であるのがより一層好ましい。

[0067] 本シートの 100°C の損失正接（ $\tan \delta$ ）は、0.6以下であるのが好ましく、0.5以下であるのが更に好ましい。当該損失正接（ $\tan \delta$ ）が0.6以下であると、十分な高温保持力を発現することが可能となる。

[0068] 本シートの 100°C の $\tan \delta$ を上記のように0.6以下にするためには、アクリレート系重合体に多官能アクリレートを配合して十分に重合すればよい。但し、この方法に限定されるものではない。

[0069] （ガラス転移温度）

本シートは、ガラス転移温度（ T_g ）が単一であることが好ましい。

少なくとも（A）成分と（B）成分からなる多成分系で、単一の材料の様にガラス転移温度（ T_g ）が単一となることは稀である。しかし、本シートでは、（A）成分と（B）成分の相溶性が良好であるため、ガラス転移温度（ T_g ）を単一にすることが可能である。ガラス転移温度が単一であることで、本シートの透明性を高めることが可能となる。

ここで「ガラス転移温度」とは、損失正接（ $\tan \delta$ ）の主分散のピークが現れる温度をいう。よって、周波数1 Hzの剪断における損失正接（ $\tan \delta$ ）の極大点が1点のみ観察される場合、ガラス転移温度（ T_g ）が単一であるとみなすことができる。

[0070] （全光線透過率及びヘーズ）

本シートは、全光線透過率が85%以上であることが好ましく、88%以上であることがさらに好ましく、90%以上であることがさらに好ましい。また、本シートは、ヘーズが2.0%以下であるのが好ましく、中でも1.0%未満であることがさらに好ましく、特に0.9%未満であることが好ましい。そのヘーズが2.0%以下であることにより、用途によっては表示装置用に使用できるシートとなる。

[0071] (水蒸気透過率)

本シートは、発光素子の水による劣化を抑え、表示装置の寿命を向上させるために、水蒸気透過率はできるだけ低いことが求められる。

かかる観点から、本シートの厚み100 μ m換算（厚みを100 μ mとしたとき）の温度40℃、相対湿度90%RHの環境下における水蒸気透過率は、20g/m²・24h以下であることが好ましく、15g/m²・24h以下であることがさらに好ましく、特に10g/m²・24h以下であることが好ましい。また下限については特に制限はないが、一般的には0.5g/m²・24h以上である。

当該水蒸気透過率が20g/m²・24h以下であることにより、外部からの水蒸気が、封止対象物に到達することが防止・抑制され、水蒸気バリア性が良好となる。

水蒸気透過率を上記範囲にするには、本シートとしてイソブチレン重合体(A)が適切な量で含有されていることが好ましい。

[0072] ここで、水蒸気透過率は、JIS K7129Bに準じて測定することができる。

100 μ m換算の水蒸気透過率は、例えば、厚みがA μ mで、水蒸気透過率がB g/(m²・day)の場合、厚み100 μ m換算の水蒸気透過率は、 $B \times A / 100$ という式に当てはめて求めることができる。

[0073] <本シートの製造方法>

次に、本シートの製造方法について説明する。但し、以下の説明は、本シートを製造する方法の一例であり、本シートはかかる製造方法により製造さ

れるものに限定されるものではない。

[0074] 本シートは、後述する本硬化性組成物からなる未硬化シートを硬化して得ることができる。

[0075] 本硬化性組成物を未硬化シートへ成形する方法としては、公知の方法、例えばドライラミネート、Tダイを用いる押出キャスト法、押出ラミネート法、カレンダー法やインフレーション法等を採用することができる。中でも、ハンドリング性や生産性等の面から、溶融成形をする方法、例えば押出キャスト法及び押出ラミネート法が好適である。

[0076] 溶剤を使用しない溶融成形を選択する場合、溶融成形をするための本硬化性組成物としては、未硬化状態での周波数1 Hzの剪断における貯蔵弾性率(G')が、20℃で1,000 Pa以上、特に50,000 Pa以上、160℃で10,000 Pa以下であることが好ましい。

20℃での G' が上記範囲であれば、成形後に常温で形状を維持できる。また、160℃での G' が上記範囲であれば、気泡を巻き込むことなく成形することができる。

[0077] 種々の温度における弾性率(貯蔵弾性率) G' と粘性率(損失弾性率) G'' 及び $\tan \delta = G'' / G'$ はひずみレオメーターを用いて測定することができる。

[0078] 溶融成形時の成形温度は、流動特性や製膜性等によって適宜調整するのが好ましい。中でも0～230℃であるのが好ましく、中でも80℃以上、その中でも90℃以上或いは160℃以下であるのがさらに好ましい。

溶融成形の場合、シートの厚みはTダイのリップギャップ、シートの引き取り速度等により適宜調整することができる。

[0079] 本硬化性組成物に対して、熱及び／又は活性エネルギー線を照射し硬化させることにより、硬化物を製造することができる。特に、本硬化性組成物をシート成形したものに、熱及び／又は活性エネルギー線を照射することにより、本シートを製造することができる。

ここで、照射する活性エネルギー線としては、 α 線、 β 線、 γ 線、中性子

線、電子線などの電離性放射線、紫外線、可視光線などが挙げられ、中でも光学装置構成部材へのダメージ抑制や反応制御の観点から紫外線が好適である。

また、活性エネルギー線の照射エネルギー、照射時間、照射方法などに関しては特に限定されず、重合開始剤を活性化させてアクリレート成分を重合できればよい。

[0080] また、本シートの製造方法の別の実施態様として、後述する本硬化性組成物を適切な溶剤に溶解させ、各種コーティング手法を用いて実施することもできる。但し、この実施形態では、溶剤回収など、製造コストの点で考慮が必要である。

コーティング手法を用いた場合、上記の活性エネルギー線照射硬化の他、熱硬化させることにより本シートを得ることもできる。

[0081] コーティング手法による成形を選択する場合、活性エネルギー線硬化の他に、熱硬化により硬化組成物が得られやすく、熱硬化性組成物とする場合は、溶剤の乾燥温度よりも高い分解温度を持つ、重合開始剤が選択される。

[0082] コーティングの場合、シートの厚みは塗工厚みと塗工液の固形分濃度によって調整できる。

[0083] なお、ブロッキング防止や異物付着防止の観点から、本シートの少なくとも片面に、離型フィルムが積層されてなる積層体とすることが好ましい。

後述するように、この積層体を、熱及び／又は活性エネルギー線を照射して硬化処理することにより、本シートの少なくとも片面に、離型フィルムが積層されてなる構成の積層体を得ることができる。

必要に応じて、エンボス加工や種々の凹凸（円錐や角錐形状や半球形状など）加工を行ってもよい。また、各種被着部材への接着性を向上させる目的で、表面にコロナ処理、プラズマ処理およびプライマー処理などの各種表面処理を行ってもよい。

[0084] <本硬化性組成物>

本発明の実施形態の一例に係る硬化性組成物（「本硬化性組成物」と称す

る)として、イソブチレン重合体(A)と、アクリレートモノマーとを含む硬化性組成物を挙げることができる。

なお、「硬化性組成物」とは、硬化させることができる性質を備えた組成物の意味である。

上述のように、本硬化性組成物をシート状に成形して硬化させることにより、本シートを作製することができる。但し、本シートの作製方法を当該方法に限定するものではない。

[0085] 本硬化性組成物を構成する上記イソブチレン重合体(A)は、本シートで説明したイソブチレン重合体(A)であればよい。

[0086] 本硬化性組成物を構成する上記アクリレートモノマーは、本シートと同様の観点から、単官能アクリレートモノマー(「単官能アクリレート」とも称する)と多官能アクリレートモノマー(「多官能アクリレート」とも称する)をそれぞれ有するのが好ましい。

[0087] 上記アクリレートモノマーにおける単官能アクリレートモノマー及び多官能アクリレートモノマーはそれぞれ、本シートで説明した単官能アクリレート及び多官能アクリレートであればよい。

[0088] 上記アクリレートモノマーは、硬化後のT_gを制御する観点や結晶化を抑制する観点から、前記単官能アクリレートを2種類以上含むのが好ましい。

[0089] 上記アクリレートモノマーは、炭素数10以上の長鎖アルキル鎖を有する単官能性アクリレートを含むのが好ましい。

上記アクリレートモノマーが、炭素数10以上の長鎖アルキル鎖を有する単官能性アクリレートを選択して含有することにより、イソブチレン重合体(A)とアクリレート系重合体(B)との間の絡み合いがより強くなり、その結果、優れた接着性、保持力を有する硬化性組成物及びシートを得ることができる。

また、本硬化性組成物は、炭素数10以上の長鎖アルキルアクリレートを選択的に含有することにより、本硬化性組成物の高次構造に大きく影響を与え、2成分系の硬化性組成物としては極めて良好な透明性を発現することが

できる。

[0090] 前記多官能アクリレートは、本硬化性組成物中に0.5質量%以上10質量%未満含有するのが好ましく、中でも0.7質量%以上或いは9質量%未満、その中でも1.0質量%以上或いは8.0質量%未満の範囲で含有するのがさらに好ましい。

多官能アクリレートの含有量を10質量%未満とすることで、ブリードアウトを低減できる。一方、多官能アクリレートの含有量を0.5質量%以上とすることで、透明性を発現することができる。

[0091] イソブチレン重合体(A)100質量部に対してアクリレートモノマーを5質量部以上100質量部未満含むのが好ましい。

アクリレートモノマーの当該含有量が5質量部以上であれば、本硬化性組成物の凝集力を効果的に向上できる。また、アクリレートモノマーの当該含有量が100質量部以下であれば、本硬化性組成物におけるアクリレート系重合体(B)の分散径を小さくでき、良好な透明性を発現し、かつ、良好な透明性を発現できる。

かかる観点から、アクリレートモノマーの含有割合は、イソブチレン重合体(A)100質量部に対して5質量部以上100質量部未満であるのが好ましく、中でも8質量部以上或いは90質量部以下、その中でも10質量部以上或いは80質量部以下であるのがさらに好ましい。

[0092] 以上の点より、好ましい本硬化性組成物として、イソブチレン重合体(A)100質量部に対してアクリレートモノマーを5質量部以上100質量部未満含む硬化性組成物であって、前記アクリレートモノマーとして、単官能アクリレートモノマーと多官能アクリレートモノマーをそれぞれ有し、前記多官能アクリレートを、前記硬化性組成物中に0.5質量%以上10質量%未満含有することを特徴とする硬化性組成物を挙げることができる。

[0093] (重合開始剤)

本硬化性組成物は、硬化性を得るために、重合開始剤を含むのが好ましい。

重合開始剤としては、アクリレートの重合反応に利用できる重合開始剤であれば特に限定されない。例えば、熱により活性化するもの、活性エネルギー線により活性化するもの、いずれも使用できる。また、ラジカルを発生し、ラジカル反応を引き起こすもの、カチオンやアニオンを発生し、付加反応を引き起こすものいずれも使用することができる。

[0094] 好ましい重合開始剤としては、光重合開始剤であり、一般に光重合開始剤の選択は、硬化性組成物で用いられる具体的な成分、及び所望の硬化速度に少なくとも部分的に依存する。

[0095] 光重合開始剤の例としては、フェニル又はジフェニルホスフィンオキシド、ケトン、及びアクリジン等のアセトフェノン、ベンゾイン、ベンゾフェノン、ベンゾイル化合物、アントラキノン、チオキサントン、ホスフィンオキシド等を挙げることができる。

具体的には、商品名DAROCUR (Ciba Specialty Chemicals)、IRGACURE (Ciba Specialty Chemicals) 及びLUCIRIN TPOとして入手可能なエチル-2, 4, 6-トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィネート等のLUCIRIN (BASF) として入手可能な光重合開始剤を挙げることができる。

[0096] 光重合開始剤としては、400nm以上に励起波長域を有するものを選択して用いることもできる。具体的な光重合開始剤としては、例えばカンファキノン、1-フェニル-1, 2-プロパンジオンなどの α -ジケトン類；2, 4, 6-トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキシド、ビス(2, 4, 6-トリメチルベンゾイル)-フェニルホスフィンオキシドなどのアシルホスフィンオキシド類；2-ベンジル-2-ジメチルアミノ-1-(4-モルフォリノフェニル)-ブタノン-1、2-メチル-1-(4-メチルチオフェニル)-2-モルフォリノプロパン-1-オンなどの α -アミノアルキルフェノン類；またはビス(η^5 -2, 4-シクロペンタジエン-1-イル)-ビス(2, 6-ジフルオロ-3-(1H-ピロール-1-

イル) フェニル) チタニウムなどのチタノセン化合物などのチタノセン類などを挙げることができる。これらの中でも、重合活性の良さ、生体への為害性の少なさなどの観点から、 α -ジケトン類やアシルホスフィンオキサイド類が好ましく、カンファーキノン、2, 4, 6-トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキサイドがより好ましい。

[0097] 一方、架橋構造形成には、光重合開始剤以外にも熱重合開始剤を使用することができる。

熱重合開始剤の例としては、アゾ化合物、キニーネ、ニトロ化合物、アシルハロゲン化物、ヒドラゾン、メルカプト化合物、ピリリウム化合物、イミダゾール、クロロトリアジン、ベンゾイン、ベンゾインアルキルエーテル、ジケトン、フェノン、並びにジラウロイルペルオキシド及びNOF C o. からPERHEXA TMHとして入手可能な1, 1-ジ(t-ヘキシルペルオキシ)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン等の有機ペルオキシドを挙げることができる。

[0098] 重合開始剤は、本硬化性組成物の総質量に基づいて約0. 01~約10質量%、中でも約0. 01~約5質量%の濃度で用いられることが多い。重合開始剤の混合物を用いてもよい。

[0099] (粘着付与剤)

本硬化性組成物は、接着性を高めるために粘着付与剤をさらに含んでもよい。

一般に、イソブチレン系樹脂組成物は粘着付与剤を多量に含有する。しかし、粘着付与剤の添加に起因する高温凝集力の低下や、黄変などの課題を防止するために、粘着付与剤の含有量が10質量%未満であることが好ましい。この範囲にすることで、高温凝集力に優れた本硬化性組成物とすることができる。粘着付与剤は、本硬化性組成物の接着性を高める任意の化合物又は化合物の混合物であってもよい。

[0100] 粘着付与剤としては、例えば、テルペン系粘着付与剤に代表される脂肪族炭化水素系粘着付与剤、フェノール系粘着付与剤に代表される芳香族炭化水

素系粘着付与剤、ロジン系粘着付与剤に代表される脂環族炭化水素系粘着付与剤、これらの炭化水素系共重合体からなる粘着付与剤、エポキシ系粘着付与剤、ポリアミド系粘着付与剤、ケトン系粘着付与剤、及び、これらの水素添加物などが挙げられる。これらのうちでも、相溶性の観点から、脂肪族炭化水素系粘着付与剤、芳香族炭化水素系粘着付与剤、脂環族炭化水素系粘着付与剤、これらの炭化水素系共重合体からなる粘着付与剤が好ましい。特に脂肪族炭化水素系粘着付与剤が好ましい。

またこれらの粘着付与剤は 1 種または 2 種以上を組み合わせで使用できる。

[0101] (その他)

本硬化性組成物は、柔軟化剤を含有してもよい。

柔軟化剤は、例えば、加工性を向上させるために組成物の粘度を調節することができる。

[0102] 使用可能な柔軟化剤の例として、例えば芳香族型、パラフィン型、及びナフテン型などの石油系炭化水素、ワセリン、石油系アスファルトなどを挙げることができる。但し、これらに限定するものではない。

柔軟化剤を使用する実施形態において、1 種類の柔軟化剤又は複数の柔軟化剤の組み合わせを使用することができる。

なお、本硬化性組成物において、液状イソブチレン重合体はイソブチレン重合体 (A) として扱うものとする。

[0103] 本硬化性組成物は、その他、充填剤、防錆剤、アクリルアミド、硬化促進剤、充填剤、シランカップリング剤、紫外線吸収剤、紫外線安定剤、酸化防止剤、安定剤、又はこれらの幾つかの組み合わせを硬化性組成物に添加してもよい。

これら添加剤の量は、典型的には、本硬化性組成物の硬化に悪影響を与えないように、又は本硬化性組成物の物理的特性に悪影響を与えないように選択するのが好ましい。

[0104] (状態及び形態)

本硬化性組成物の状態及び形態は任意である。例えば、液状、ゲル状、固体状であってもよいし、その他の状態であってもよい。

[0105] 本硬化性組成物は、例えばシート状、棒状、中空状、その他の形状など様々な形態とすることもできる。中でも、例えば粘着シートなどとして用いる未延伸シートを挙げることができる。

[0106] 本硬化性組成物がシート状を呈する場合、その厚みは特に制限されるものではない。例えば0.01 mm以上、より好ましくは0.03 mm以上、更に好ましくは0.05 mm以上である。一方、上限としては、好ましくは1 mm以下、より好ましくは0.7 mm以下、更に好ましくは0.5 mm以下である。

本硬化性組成物がシート状を呈する場合の厚みが0.01 mm以上であれば、ハンドリング性が良好であり、また、厚みが1 mm以下であれば、積層体の薄型化に寄与することができる。

[0107] (本硬化性組成物の製造方法)

以下、本硬化性組成物の製造方法について説明する。但し、以下の説明は、本硬化性組成物を製造する方法の一例であり、本硬化性組成物はかかる製造方法により製造されるものに限定されるものではない。

[0108] 本硬化性組成物は、例えば、イソブチレン重合体(A) (「(A)成分」とも称する)と、単官能アクリレートを含むアクリレートモノマー (「(B)成分」とも称する)とを含む硬化性組成物を調製し、前記単官能アクリレートを用いて前記(B)成分を重合させて前記硬化性組成物を硬化させ、必要に応じて適宜加工を施すことにより本硬化性組成物を調製することができる。但し、このような製造方法に限定するものではない。

[0109] 例えば、前記(A)成分、単官能アクリレートを含むアクリレートモノマー、重合開始剤および任意成分を、温度調節可能な混練機(例えば、一軸押出機、二軸押出機、プラネタリーミキサー、二軸ミキサー、加圧ニーダー等)を用いて混練することにより、本硬化性組成物の前駆体である硬化性組成物を調製することができる。

種々の原料樹脂を混合して硬化性組成物を得る際に、シランカップリング剤、酸化防止剤等の各種添加剤は、予め樹脂とともにブレンドしてから押出機に供給してもよいし、予め全ての材料を溶融混合してから供給してもよいし、添加剤のみを予め樹脂に濃縮したマスターバッチを作製し供給してもよい。

[0110] (シート成形方法)

上記本硬化性組成物をシート状へ成形する方法としては、公知の方法、例えばTダイを用いる押出キャスト法、押出ラミネート法、カレンダー法やインフレーション法等を採用することができる。中でも、ハンドリング性や生産性等の面から、溶融成形をする方法、例えば押出キャスト法及び押出ラミネート法が好適である。

[0111] 溶剤を使用しない溶融成形を選択する場合、溶融成形をするための本硬化性組成物としては、未硬化状態での周波数1 Hzの剪断における貯蔵弾性率(G')が、20℃で50,000 Pa以上、160℃で10,000 Pa以下であることが好ましい。

20℃での G' が上記範囲であれば、成形後に常温で形状を維持できる。また、160℃での G' が上記範囲であれば、気泡を巻き込むことなく成形することができる。

[0112] 種々の温度における弾性率(貯蔵弾性率) G' と粘性率(損失弾性率) G'' 及び $\tan \delta = G'' / G'$ はひずみレオメーターを用いて測定することができる。

[0113] 溶融成形時の成形温度は、流動特性や製膜性等によって適宜調整されるが、好ましくは80～230℃、より好ましくは90～160℃である。

溶融成形の場合、シートの厚みはTダイのリップギャップ、シートの引き取り速度等により適宜調整することができる。

[0114] ブロッキング防止や異物付着防止の観点から、上記のように製造した本硬化性組成物をシート成形したシートの少なくとも片面に、離型フィルムが積層されてなる積層体とすることが好ましい。

必要に応じて、当該シートの少なくとも片面に、エンボス加工や種々の凹凸（円錐や角錐形状や半球形状など）加工を行ってもよい。また、各種被着部材への接着性を向上させる目的で、表面にコロナ処理、プラズマ処理およびプライマー処理などの各種表面処理を行ってもよい。

[0115] 上記のように製造した本硬化性組成物をシート成形したものに、熱及び／又は活性エネルギー線を照射することにより、本シートを製造することができる。

ここで、照射する活性エネルギー線としては、 α 線、 β 線、 γ 線、中性子線、電子線などの電離性放射線、紫外線、可視光線などが挙げられ、中でも光学装置構成部材へのダメージ抑制や反応制御の観点から紫外線が好適である。また、活性エネルギー線の照射エネルギー、照射時間、照射方法などに関しては特に限定されず、重合開始剤を活性化させてアクリレートを重ね合えばよい。

[0116] また、柔軟化剤としてパラフィンやイソパラフィンを添加した結果、硬化性組成物の粘度が十分に低い場合は、ダイコーターやコンマコーターを用いて、フィルム上に無溶剤コーティングすることで、硬化性組成物を得てもよい。

[0117] （コーティング）

また、本硬化性組成物の製造方法の別の実施態様として、上記硬化性組成物を適切な溶剤に溶解させ、各種コーティング手法を用いて実施することもできる。但し、この実施形態では、溶剤回収など、製造コストの点で考慮が必要である。

コーティング手法を用いた場合、上記の活性エネルギー線照射硬化の他、熱硬化させることにより本硬化性組成物を得ることもできる。

[0118] コーティング手法による成形を選択する場合、硬化組成物としては、活性エネルギー線硬化の他に、熱硬化である硬化組成物が得られやすく、熱硬化性組成物とする場合は、溶剤の乾燥温度よりも高い分解温度を持つ、重合開始剤が選択される。

[0119] コーティングの場合、シートの厚みは塗工厚みと塗工液の固形分濃度によって調整できる。

[0120] <本フォルダブルシート>

次に、本シートの中でも特にフォルダブル性を有するシート（「本フォルダブルシート」と称する）について説明する。

[0121] 近年、折り畳み可能（フォルダブル）なディスプレイ向けの光学粘接着剤（OCA）の需要が高まりつつある。ディスプレイの使用者が折り畳みをした際に、ガラス転移温度（ T_g ）が 0°C 付近にある従来のアクリル系接着剤では、接着界面で座屈が起こるというトラブルを生じる。これには、人間が折り曲げる周波数域での接着剤の動的粘弾性が影響している。よって、接着剤のガラス転移温度（ T_g ）をさらに低下させ、低温域の弾性率を下げるのが好ましい。

かかる観点から、本フォルダブルシートのガラス転移温度（ T_g ）は -15°C 以下が好ましく、中でも -20°C 以下がさらに好ましい。

また、常温付近での接着力の観点から、本フォルダブルシートのガラス転移温度（ T_g ）のガラス転移温度（ T_g ）は -30°C 以上であるのが好ましい。

[0122] 本フォルダブルシートにおいては、周波数 1 Hz の剪断における損失正接（ $\tan \delta$ ）の少なくとも一つの極大点が $-30^{\circ}\text{C} \sim -15^{\circ}\text{C}$ の範囲にあることが好ましい。

このように当該損失正接（ $\tan \delta$ ）の極大点が $-30 \sim -15^{\circ}\text{C}$ の範囲内にあることにより、良好な接着性、保持力を有するシートとすることができる。

[0123] 後述するように、アクリレート系重合体（B）が、上記式（1）におけるRが異なる少なくとも2種類の単官能アクリレート成分を有することにより、損失正接（ $\tan \delta$ ）の極大点を $-30^{\circ}\text{C} \sim -15^{\circ}\text{C}$ の範囲にすることが容易となる。

また、イソブチレン重合体（A）、及び、アクリレート系重合体（B）を

構成するアクリレートの種類とその構成比を選択することにより、損失正接（ $\tan \delta$ ）の極大点を適宜調整することができる。

さらにまた、後述する粘着性付与剤を加えることでも、損失正接の極大点を $-30 \sim -15^{\circ}\text{C}$ の範囲内に調整することができる。ただし、このような方法に限定するものではない。

[0124] 本フォルダブルシートにおいて、アクリレート系重合体（B）は、イソブチレン重合体（A）との相溶性の観点から、炭素数が多い（例えば炭素数12以上）エステル部を有するアクリレート単位構造からなるアクリレート系重合体であるのが好ましい。

そのため、上記本硬化性組成物のアクリレートモノマーとして、炭素数12以上の炭化水素基を有する単官能アクリレートを含む本硬化性組成物及び本フォルダブルシートであるのが好ましい。当該単官能アクリレートは、そのガラス転移温度（ T_g ）が、一般の単官能アクリレートよりも比較的高いという特徴があり、本硬化性組成物及び本フォルダブルシートの T_g を高くすることができる。

[0125] ここで具体的に、市販の炭素数12以上の炭化水素基を有する単官能アクリレートのホモポリマーの T_g を示す。炭素数が大きくなるほど T_g は高く、何れも T_g が -15°C 超であることがわかる。このように、その成分からなるホモポリマーの T_g を「ポリマー T_g 」として以下に示す。

- ・ラウリルアクリレート（C12直鎖、ポリマー T_g ： -3°C ）
- ・ヘキサデシルアクリレート（C16直鎖、ポリマー T_g ： 35°C ）
- ・ステアリルアクリレート（C18直鎖、ポリマー T_g ： 30°C ）
- ・ベヘニルアクリレート（C22直鎖、ポリマー T_g ： 50°C ）

[0126] また、炭化水素基に分岐を導入したものは、同炭素数の直鎖のものと比較すると、ホモポリマーの T_g が低下するが、それでも、下記に示した市販の分岐アルキルアクリレートの T_g は -15°C 超である。

- ・イソステアリルアクリレート（C18分岐、ポリマー T_g ： 15°C （DMA））

[0127] これら、炭素数 12 以上の炭化水素基を有する単官能アクリレートに加えて、架橋のために多官能アクリレート等を、本硬化性組成物又は本フォルダブルシートに加えることもできる。

多官能アクリレートに関しても、イソブチレン重合体 (A) との相溶性の観点から、下記の様な炭化水素基を有するアクリレートが選択され、得られる硬化性組成物の T_g は更に上昇することになる。

- ・ 1, 9-ノナンジオールジアクリレート (C9 直鎖 2 官能、ポリマー T_g : 68°C)
- ・ 1, 10-デカンジオールジアクリレート (C10 直鎖 2 官能、ポリマー T_g : 91°C)
- ・ トリシクロデカンジメタノールジアクリレート (C12 脂環式 2 官能、ポリマー T_g : 190°C)

[0128] アクリレート系共重合体 (B) の T_g は、以下の FOX の式を用いて求められることが知られている。

$$\text{FOX の式: } 1/T_g = W_1/T_1 + W_2/T_2 + \dots + W_n/T_n$$

式中、 T_g : 理論ガラス転移温度 (K) であり、 W_1 、 W_2 ... W_n は各モノマーの質量分率であり、 T_1 、 T_2 ... T_n は各モノマーの実測ガラス転移温度 (K) である。

[0129] つまり、ポリマー T_g が比較的低いイソステアリルアクリレートを主な構造単位に含んだアクリレート系重合体であっても、多官能アクリレート等のマイナー成分の T_g や、イソブチレン重合体との相互作用の影響を受けた結果、実際の硬化性組成物の T_g は -15°C 以下には下がらないという課題があった。

この様に、従来、相溶性の良好なイソブチレン重合体及びアクリレート系重合体からなる硬化性組成物を得ようとした場合、その硬化性組成物の周波数 1 Hz の剪断における損失正接の極大点は -15°C 超となるのが実情であり、これを -15°C 以下に調整することは、困難であった。

[0130] 本フォルダブルシートでは、アクリレート系重合体 (B) が少なくとも 2

種類の単官能アクリレートを含むことで、本硬化性組成物の T_g を劇的に低下させることができる。これは、アクリレート系重合体（B）の長鎖炭化水素基からなる側鎖間の相互作用の変化によるものだと考えられる。この結果、上記FOXの式から予測される T_g よりも大幅に低い T_g を示す特殊な現象とすることができる。

このようにして、周波数1 Hzの剪断における損失正接（ $\tan \delta$ ）の少なくとも一つの極大点が $-30^{\circ}\text{C} \sim -15^{\circ}\text{C}$ の範囲にある本硬化性組成物を作製することができ、折り曲げによって座屈することなく追従する本フォルダブルシートの具現化を可能とし、接着力、保持力、水蒸気バリア性に優れた硬化性組成物を得ることができる。

[0131] （アクリレート系重合体（B））

本フォルダブルシートにおけるアクリレート系重合体（B）は、単官能アクリレートを、アクリレート系重合体（B）100質量部に対して60質量部以上の割合で含有するのが好ましく、中でも70質量部以上の割合、その中でも80質量部以上の割合で含有するのがさらに好ましい。

単官能アクリレートが60質量部以上であることで、本シートの凝集力を効果的に向上し、本硬化性組成物の良好な接着力、保持力を発現する。

[0132] 本フォルダブルシートにおいては、アクリレート系重合体（B）の上記式（1）中、Rは特に制限はない。但し、当該Rは、制限炭素数12～30の炭化水素基であることが接着性、保持力の点から好ましい。また、当該Rは、二重結合、三重結合、又は芳香環を含んでいてもよく、長期安定性の観点から二重結合、三重結合、又は芳香環を含まない炭化水素基であることが好ましい。

当該Rの具体例としては、例えばデシル基（ C_{10} ）、ウンデシル基（ C_{11} ）、ドデシル基（ C_{12} ）、トリデシル基（ C_{13} ）、テトラデシル基（ C_{14} ）、ペンタデシル基（ C_{15} ）、ヘキサデシル基（ C_{16} ）、ヘプタデシル基（ C_{17} ）、オクタデシル基（ C_{18} ）、ノナデシル基（ C_{19} ）等を挙げることができる。

[0133] ここで、アクリレート系重合体（B）は、上記式（1）において、異なる炭素数のRを有する前記単官能アクリレート成分を、少なくとも2種類含むことが好ましい。

異なる炭素数のRを有する前記単官能アクリレート成分を少なくとも2種類含むことにより、損失正接（ $\tan \delta$ ）の極大点を $-30^{\circ}\text{C} \sim -15^{\circ}\text{C}$ の範囲にすることが容易となり、後述するように折り畳み可能（フォルダブル）なディスプレイ向けの光学粘着剤とすることができる。

アクリレート系重合体（B）は、上記式（1）におけるRが異なるアクリレートを2種類含んでいるのが好ましく、3種類以上含んでもよい。

[0134] 本シートを構成するアクリレート系重合体（B）は、上記式（1）のRとして、分岐アルキル基である単官能アクリエート成分を、少なくとも1種類含むのが好ましい。

[0135] 上記式（1）のRが分岐アルキル基である単官能アクリレート成分を、少なくとも1種類含むことで、本フォルダブルシートの損失正接（ $\tan \delta$ ）の極大点を $-30^{\circ}\text{C} \sim -15^{\circ}\text{C}$ の範囲にすることが容易となり、後述するように折り畳み可能（フォルダブル）なディスプレイ向けの光学粘着剤とすることができる。さらに、常温領域で結晶化しにくく、透明性を発現しやすくなるという利点も有する。

分岐アルキル基であれば特に制限はない。例えばイソデシル基（ C_{10} ）、イソウンデシル基（ C_{11} ）、イソドデシル基（ C_{12} ）、イソトリデシル基（ C_{13} ）、イソテトラデシル基（ C_{14} ）、イソペンタデシル基（ C_{15} ）、イソヘキサデシル基（ C_{16} ）、イソヘプタデシル基（ C_{17} ）、イソオクタデシル（イソステアリル）基（ C_{18} ）、イソノナデシル基（ C_{19} ）などの分岐アルキル基を好ましく例示できる。

また、分岐アルキル基はセカンダリー又はターシャリーの何れでもよく、分岐の位置、分岐の数も、化学的に安定に存在し得る範囲において、特に制限はない。

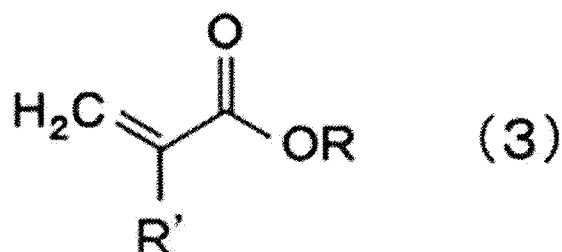
[0136] 上記式（1）のRが分岐アルキル基である単官能アクリレート成分の含有

量に関しては、アクリレート系重合体（B）100質量部に対して、Rが分岐アルキル基である単官能アクリレート成分が30質量部～80質量部であるのが好ましく、中でも35質量部以上或いは75質量部以下であるのがさらに好ましい。当該含有量が30質量部以上であれば、本フォルダブルシートの透明性を発現することが容易となる。一方、80質量部以下であれば、本フォルダブルシートの損失正接（ $\tan \delta$ ）の極大点を $-30^{\circ}\text{C} \sim -15^{\circ}\text{C}$ の範囲にすることが容易となる。

[0137] 以下、アクリレート系重合体（B）を構成するモノマーであるアクリレートモノマーについて説明する。

[0138] 硬化反応によりアクリレート系重合体（B）となる単官能アクリレートを下式（3）に示す。

[0139] [化6]



（式中、Rは炭化水素基、R'は水素（H）又はメチル基（CH₃）をそれぞれ表す）

[0140] 前述したように、単官能アクリレートのHSPは、イソブチレン重合体（A）とのHSP距離が5.0以下の位置にあることが好ましく、4.5以下の位置にあることがより好ましい。

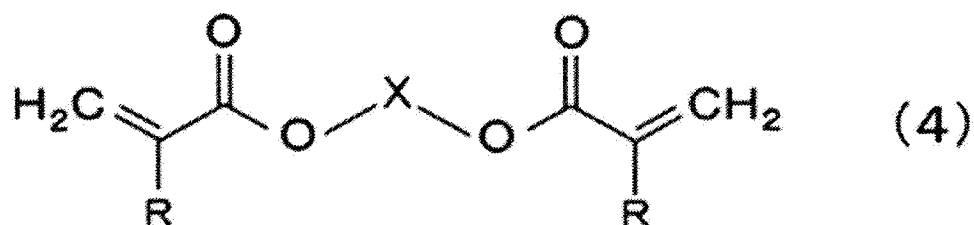
イソブチレン重合体（A）とのHSP距離が5.0以下である単官能アクリレートの例としては、イソステアリルアクリレート、イソヘキサデシルアクリレート、ステアリルアクリレート、ヘキサデシルアクリレート、イソテトラデシルアクリレート、テトラデシルアクリレート、イソドデシルアクリレート、ドデシルアクリレート、イソデシルアクリレート等を挙げることができる。

[0141] また、式（３）中のRは、少なくとも１種類が分岐アルキル基であることが好ましい。Rが分岐アルキル基である単官能アクリレート成分を、少なくとも１種類含むことで、本フォルダブルシートの損失正接（ $\tan \delta$ ）の極大点を -30°C ～ -15°C の範囲にすることが容易となり、後述するように折り畳み可能（フォルダブル）なディスプレイ向けの光学粘着剤とすることができる。さらに、常温領域で結晶化しにくく、透明性を発現しやすくなるという利点も有する。分岐アルキル基はセカンダリー、ターシャリー何れでも良く、分岐の位置、分岐の数も、化学的に安定に存在し得る範囲において、特に制限はない。

[0142] 本フォルダブルシートに関しては、硬化前の前駆体組成物（以下「硬化性組成物」と称する）において、アクリレート１００重量部に対して、前記（３）式の単位構造を有する単官能アクリレートが６０質量部以上含まれるのが好ましく、中でも７０質量部以上、その中でも８０質量部以上含まれるのがさらに好ましい。

[0143] 多官能アクリレートとは、アクリロイルオキシ基を２個以上有し少なくともアクリロイルオキシ基同士が炭化水素基を介して結合するアクリレートである。多官能アクリレートモノマーの例として２官能性脂肪族アクリレートモノマーの構造を下式（４）に示す。

[0144] [化7]



[0145] 上式（４）中、Rは水素（H）又はメチル基（ CH_3 ）である。

[0146] 多官能アクリレートの含有量は、本フォルダブルシートに対して０．５質量％以上１０質量％未満であるのが好ましく、中でも１質量％以上或いは９質量％未満、その中でも２質量％以上或いは８質量％未満であるのが更に好

ましい。

多官能アクリレートの含有量を0.5質量%以上とすることで、本フォルダブルシートの透明性や凝集力を向上することが可能である一方、10質量%未満とすることで接着性と保持力を発現することができる。

[0147] 本フォルダブルシートに用いる多官能アクリレートのHSPは、イソブチレン重合体(A)とのHSP距離が9.0以下の位置にあることが好ましく、8.0以下の位置にあることがより好ましい。

HSP距離を上記範囲とすることで、ブリードアウト等の透明性や接着性に関わるトラブルを抑制することができる。

[0148] 上式(4)中、Xは、脂肪族炭化水素基、又は、脂環式炭化水素基であることが好ましい。

[0149] また、本フォルダブルシートに用いられる多官能アクリレートとしては、1,9-ノナンジオールジアクリレート、1,10-デカンジオールジアクリレート、水素添加ポリブタジエンアクリレート等の直鎖アルキル基を有するジアクリレート；トリシクロデカンジオールジアクリレート、トリシクロデカンジメタノールジアクリレート等の脂環式骨格を有するジアクリレート、を挙げることができるが、これらに限定されない。

[0150] 一方、上式(4)中、Xは多重結合を含んだ炭化水素基であってもよい。このような多官能アクリレートとしては、商品名：BAC-45（大阪有機化学社製、ポリブタジエン末端ジアクリレート）等が挙げられる。

[0151] また、多官能アクリレートとして、多官能のウレタンアクリレートを用いることもできる。(A)成分との相溶性の観点から、ポリブタジエンなどの脂肪族ポリマーを骨格に有するウレタンアクリレートが好ましい。市販品としては、商品名：CN9014 NS（サートマー社）等を挙げることができる。

[0152] このように、上式(4)中、Xについては特に制限はない。透明性等の観点より、Xは単結合からなる炭化水素基であることが好ましい。

[0153] 多官能アクリレートとしては、2官能アクリレートに限定されず、3、4

、又は4を超える数の（メタ）アクリロイル基を有する多官能アクリレートを使用してもよい。中でも、シートの長期安定性、硬化性組成物の低T_g化のし易さの観点から、2官能アクリレートであることが好ましい。

[0154] なお、多官能アクリレートは1種類のみを用いても、数種類を併用してもよい。

[0155] <画像表示装置構成用積層体、画像表示装置>

本シートの少なくとも片面に画像表示装置構成部材を積層させることで、画像表示装置構成用積層体を形成することができ、当該画像表示装置構成用積層体を用いて画像表示装置を構成することができる。

[0156] 本シートの少なくとも片面に、タッチパネル、画像表示パネル、表面保護パネル、位相差フィルム、偏光フィルム、カラーフィルター、及びフレキシブル基板からなる群のうちの何れか1種類以上が積層されてなる構成を備えた画像表示装置用積層体とすることができる。

これらいずれか1種類又は2種以上の組み合わせからなる前記画像表示装置構成用積層体を用いて画像表示装置を構成することができる。

[0157] また、本シートが、前記画像表示装置構成部材として、表示面側及び／又は非表示面側に設けられた画像表示装置とすることもできる。例えばトップエミッション方式のフレキシブルOLEDディスプレイでは、ポリイミドなどの樹脂基板上に発光層が形成され、発光層側が表示面となるが、樹脂基板の非表示面側に本封止材を配置することで、非表示面側からの水の浸入や、ポリイミドの吸湿を防止することができ、OLEDの長寿命化に寄与することができる。また、表示面の変形や外力の影響を抑えることができる。

[0158] 本フォルダブルシートは、折り曲げ可能な画像表示装置の構成部材として好適に用いることができる。

[0159] <語句の説明>

本明細書において「X～Y」（X、Yは任意の数字）と表現する場合、特にことわらない限り「X以上Y以下」の意と共に、「好ましくはXより大きい」或いは「好ましくはYより小さい」の意も包含する。

また、「X以上」（Xは任意の数字）或いは「Y以下」（Yは任意の数字）と表現した場合、「Xより大きいことが好ましい」或いは「Y未満であることが好ましい」旨の意図も包含する。

[0160] 本発明において「アクリレート」と表現した場合、特にことわらない限り、アクリレートと同義であり、メタクリレートを包含する。

実施例

[0161] 本発明は、以下の実施例により更に説明する。但し、実施例はいかなる方法でも本発明を限定することを意図するものではない。

[0162] <実施例 1>

先ず実施例 1-1～1-2 及び比較例 1-1～比較例 1-4 で用いた化合物や材料を以下に示し、次に各実施例及び比較例における製造方法を示し、次に評価方法について説明する。

[0163] [イソブチレン重合体 (A)]

・オパノール N50 (BASF 社製、イソブチレン重合体、 M_w : 56.5 万 g/mol、(HSP δD : 15.1, δP : 0, δH : 0))

・テトラックス 3T (JX エネルギー株式会社製、イソブチレン重合体、 M_w : 4.9 万 g/mol、(HSP δD : 15.1, δP : 0, δH : 0))

・ポリブテン (iso-ブテン 96 質量%、n-ブテン 4 質量%、 M_w : 3,720 M_n : 1,660 (HSP δD : 15.1, δP : 0, δH : 0))

[0164] [アクリレート (B)]

(i) 単官能性脂肪族アクリレート (b-1))

・S-1800ACL (新中村化学工業株式会社製、イソステアリルアクリレート、炭素数 18 の分岐アルキルに 1 個のアクリロイルオキシ基が付加したもの、(A) 成分からの HSP 距離: 3.74)

・ブレンマー CA (日油社製、セチルアクリレート、(HSP δD : 16.1, δP : 2.2, δH : 2.8、A 成分からの HSP 距離: 4.08))

)

[0165] (i i) 多官能性脂肪族アクリレート (b-2))

・ A-D C P (新中村化学工業株式会社製、トリシクロデカンジメタノールジアクリレート、(A)成分からのH S P距離: 7. 77)

・ A-N O D-N (新中村化学工業株式会社製、1, 9-ノナンジオールジアクリレート、(A)成分からのH S P距離: 7. 00)

・ N KエステルA-D O D-N (新中村化学社製、1, 10-デカンジオールジアクリレート、(H S P δD : 16. 3, δP : 3. 8, δH : 4. 9、A成分からのH S P距離: 6. 64))

・ C N 9 0 1 4 N S (サートマー社製、水素添加ポリブタジエンの2官能ウレタンアクリレート)

[0166] [粘着付与剤]

・ クイントンC X 4 9 5 : ゼオン社製、石油樹脂

[酸化防止剤]

・ I r g a n o x 1 0 7 6 : B A S F社製、ヒンダードフェノール系酸化防止剤

[重合開始剤]

・ O m n i r a d T P O-G : B A S F社製、アシルフォスフィンオキシド系光重合開始剤

・ イルガキュア184 (B A S F社製、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン)

[0167] <未硬化シート製造方法>

表2に記載した配合でイソブチレン重合体(A)、単官能性脂肪族アクリレート(b-1)、多官能性脂肪族アクリレート(b-2)、重合開始剤をラボプラストミル(東洋精機製作所製)にて110℃、60rpmで混練し、硬化性組成物を得た。

続けて、離型処理されたポリエチレンテレフタレートフィルム(三菱樹脂株式会社製、ダイアホイルMRF38、厚さ: 38 μ m)2枚の間に、溶融

した硬化性組成物を供給し、2本の加熱ロールの間を通すことで、サンドイッチラミネートを行い、両面に離型フィルムを備え、硬化性組成物層の厚さが約100 μ mの未硬化シートを得た。

このとき、加熱ロールの温度は160℃であり、速度は100mm/分であった。

[0168] <硬化性組成物及び未硬化シートの評価試験>

(HSP、HSP距離(Ra))

HSPは、HSP統合ソフトであるHSPiP(商品名)に実装されている、Y-MB法により化学構造から求めた。

HSP距離(Ra)は、アクリレート(B)のHSPを(δD_1 , δP_1 , δH_1)とし、イソブチレン重合体(A)のHSPを(δD_2 , δP_2 , δH_2)としたとき、下記の式により算出した。

$$\text{HSP距離(Ra)} = \{4 \times (\delta D_1 - \delta D_2)^2 + (\delta P_1 - \delta P_2)^2 + (\delta H_1 - \delta H_2)^2\}^{0.5}$$

[0169] 表1に、いくつかの(b-1)成分及び、(b-2)成分のY-MB法によって求めたHSPと、代表的なイソブチレン重合体(A)との距離を示す。

[0170] [表1]

物質		HSP			Ra ターゲットポリマーとのHSP距離
		δD [(Mpa) ^{0.5}]	δP [(Mpa) ^{0.5}]	δH [(Mpa) ^{0.5}]	
ターゲットポリマー	ポリイソブチレン	15.1	0	0	—
単官能 脂肪酸族アクリレート	Iso-C18 イソステアリアルアクリレート	16.2	1.7	2.5	3.74
	Iso-C16 イソヘキサデシルアクリレート	16.1	2	2.7	3.91
	n-C18 ステアリアルアクリレート	16.1	2.1	2.7	3.96
	n-C16 ヘキサデシルアクリレート	16.1	2.2	2.8	4.08
	Iso-C14 イソテトラデシルアクリレート	16.1	2.3	3.1	4.35
	n-C14 テトラデシルアクリレート	16.1	2.5	3.2	4.53
	Iso-C12 イソドデシルアクリレート	16.1	2.3	3.4	4.57
	n-C12 ドデシルアクリレート	16.1	2.6	3.4	4.72
	Iso-C10 イソデシルアクリレート	16.1	2.4	3.6	4.77
	Iso-C8 イソオクチルアクリレート	15.9	2.7	3.7	4.85
	n-C10 デシルアクリレート	16.1	3	3.9	5.31
	n-C8 オクチルアクリレート	16	3.2	4.2	5.58
多官能脂肪酸族 アクリレート	脂環族 トリシクロデカンジメタノールジアクリレート	17.6	4	4.4	7.77
	n-C9 1,9-ノナンジオールジアクリレート	16.4	3.9	5.2	7.00

[0171] (全光線透過率、ヘーズ)

また、全光線透過率とヘーズは、片面の離型フィルムを剥がしたものを測

定孔に貼り付け、もう片方の離型フィルムも剥がし、ヘーズメーター（日本電色工業株式会社製、NDH5000）を用いてJIS K7361-1に準じて全光線透過率を、JIS K7136に準じてヘーズをそれぞれ測定した。

[0172] （動的粘弾性）

組成物から得られたシートの両面の離型フィルムを剥がし、複数枚重ねることで、厚みが約2mmのシートを作製し、直径20mmの円形に打ち抜いたものを、レオメータ（英弘精機株式会社製、MARS）を用いて、粘着治具：Φ20mm平行プレート、歪み：0.1%、周波数：1Hz、温度：-70～200℃、昇温速度：3℃/minの条件で測定することで、未硬化状態の貯蔵弾性率（ G' ）、損失弾性率（ G'' ）、損失正接（ $\tan \delta$ ）を得た。

[0173] ＜硬化シート製造方法＞

得られた未硬化シートを剥離フィルムを積層した状態で、高圧水銀ランプを用いて紫外線を365nmの積算光量が2000mJ/cm²となるよう照射して未硬化シートを硬化し、23℃50%RHで15時間以上養生することで、硬化シートを得た。

[0174] ＜硬化シートの評価試験＞

（全光線透過率、ヘーズ）

得られた硬化シートを用いて、未硬化シートと同様に測定を行った。結果を表2に示す。

（動的粘弾性）

得られた硬化シートを用いて、未硬化シートと同様に測定を行うことで硬化状態の貯蔵弾性率（ G' ）、損失弾性率（ G'' ）、損失正接（ $\tan \delta$ ）を得た。

[0175] （水蒸気バリア性）

得られた硬化シートの厚みを測定後、両面の離型PETを剥がし、代わりにPET不織布を貼り付け、JIS K7129B法にて40℃、90%R

hの水蒸気透過率を測定し、下記評価基準で評価した。

良好：100 μm 換算の水蒸気透過率が20 g 以下のもの

不良：100 μm 換算の水蒸気透過率が20 g 超のもの

なお、厚みがわずかに違うもの同士を比較するために、硬化シートの厚みがA μm で、水蒸気透過率がB (g / $\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h}$) の硬化シートの場合、 $A \times B / 100$ という式に当てはめて、100 μm 換算の値を求めた。

[0176] [表2]

			単位	実施例1-1	実施例1-2	実施例1-3	比較例1-1	比較例1-2	比較例1-3	比較例1-4
イソブチレン系 重合体(A)	オパノールN50 Mw: 56.5万		質量%	50	50		50	50	75	50
	テトラックス3T Mw: 4.9万			25	25		25			25
	ポリブテン Mw: 3.720 Mn: 1.660					45.5				
単官能 (メタ)アクリレート	イソステアリアルアクリレート	18		21	19.7	24	49	24		
	セチルアクリレート				15.8					
アクリレート系 重合体(B) のモノマー	多官能 (メタ)アクリレート	トリシクロデカンジメタノール		6						24
		1,9-ノナンジオールジアクリレート			3					
		1,10-デカンジオールジアクリレート				0.8				
		CN9014NS(2官能ウレタンアクリレー				7.1				
粘着付与剤		クイントンCX495				9.8				
酸化防止剤		Irganox 1076			0.5					
重合開始剤		Omnirad TPO			0.8					
		Irgacure184		1	1		1	1	1	1
(A)100質量部に対する(B)の質量割合			質量部	32	32	95.4	32	98	32	32
(B)100質量部に対する単官能アクリレートの含有量			質量%	75	87.5	81.8	100	100	100	0
硬化性組成物における多官能アクリレートの含有量			質量%	6	3	7.9	0	0	0	24
硬化性組成物	20℃の貯蔵弾性率		Pa	61570	71000		75000	44000	96300	82800
	160℃の貯蔵弾性率			5078	9600		10500	3100	18400	9370
未硬化シート	全光線透過率		%	92.6	92.8		91.7	92.3	91.8	89.2
	ヘイズ		100μm	1.6	1.0		2.9	3.0	2.7	14.5
	160℃の損失正接			1.62	1.56		1.39	1.76	1.17	1.30
	全光線透過率		%	92.8	93.0	91.2	90.8	84.4	91.2	88.9
硬化シート	ヘイズ		100μm	1.4	0.7	0.38	11.4	38.3	10.6	52.1
			50μm	0.83	0.42					
			25μm	0.51	0.34					
	160℃の損失正接			0.55	0.62	0.01	0.85	0.27	0.51	0.54
	損失正接(tanδ)の 極大点(1)	温度	℃	18	2.6	-20	-26	-3	18	18
		極大値		0.53	0.74	1.59	1.03	0.8	1.04	0.53
	損失正接(tanδ)の 極大点(2)	温度	℃	-35	-38	-	-	-38	-41	-34
		極大値		0.3	0.4	-	-	0.03	0.07	0.29

[0177] 実施例1-1、1-2で得られる未硬化シートは、低ヘイズ、高全光線透過率であり優れた透明性を有していた。またこれらの未硬化シートを硬化して得られた硬化シートも、低ヘイズ、高全光線透過率であり優れた透明性を有していた。さらに実施例1-3で得られた硬化シートも、低ヘイズ、高全光線透過率であり、優れた透明性を有していた。

実施例1-1の硬化シートは、周波数1 Hzの剪断における損失正接(tan δ)の極大値0.3のピークが-35℃に存在するため、高速変形時の衝撃エネルギー吸収性にも優れる。また、100 μm 換算の水蒸気透過率も20 g / $\text{m}^2 \cdot 24 \text{ h}$ 以下と良好であった。

実施例1-2の硬化シートは、周波数1 Hzの剪断における損失正接(tan δ)の極大値0.4のピークが-38℃に存在するため、高速変形時の

衝撃エネルギー吸収性にも優れる。また、 $100\mu\text{m}$ 換算の水蒸気透過率も $20\text{g}/\text{m}^2 \cdot 24\text{h}$ 以下と良好であった。

[0178] アクリレートとして単官能性脂肪族アクリレート（b-1）のみを用いた比較例1-1～1-3の硬化シート、は高ヘーズであり透明性が不良であった。単官能のアクリレートのみで重合が進むことにより、生成されるポリマーとイソブチレン重合体とが、マイクロメートルオーダーに相分離したためであると考えられる。

アクリレートとして多官能性脂環族アクリレート（b-2）のみを用いた比較例1-4の硬化シートは、未硬化状態でブリードアウトが確認され、未硬化シートにおいてヘーズが好ましくなかった。また、この未硬化シートを硬化させた硬化シートもやはり透明性が悪化した。

[0179] <実施例2>

実施例2-1～2-3及び比較例2-1～比較例2-3で用いた化合物や材料を以下に示し、次に各実施例及び比較例における製造方法を示し、次に評価方法について説明する。

[0180] [イソブチレン重合体（A）]

- ・（A）-1：オパノールN50SF（BASF社製、イソブチレン重合体、 M_w ：56.5万 g/mol 、（HSP δD ：15.1， δP ：0， δH ：0））
- ・（A）-2：テトラックス3T（JXTG社製、イソブチレン重合体、 M_w ：4.9万 g/mol 、（HSP δD ：15.1， δP ：0， δH ：0））
- ・（A）-3：IPソルベント2835（出光社製、イソブチレン重合体）

[0181] [アクリレート系重合体（B）のモノマー]

（i）単官能性脂肪族アクリレート

- ・（B）-1：S-1800ACL（新中村化学工業株式会社製、イソステアリルアクリレート、炭素数18の分岐アルキルに1個のアクリロイルオキシ基が付加したアクリレート。（A）成分からのHSP距離：3.74）

- ・ (B) - 2 : ブレンマーCA (日油社製、ヘキサデシルアクリレート、炭素数16の直鎖アルキルに1個のアクリロイルオキシ基が付加したアクリレート。(A)成分からのHSP距離: 4.08)

[0182] (ii) 多官能アクリレート

- ・ (B) - 3 : ADCP (新中村化学工業株式会社製、トリシクロデカンジメタノールジアクリレート、(A)成分からのHSP距離: 7.77)
- ・ (B) - 4 : ANOD-N (新中村化学工業株式会社製、1.9-ノンジオールジアクリレート、(A)成分からのHSP距離: 7.00)
- ・ (B) - 5 : CD595 (サートマー社製、1.10-デカンジオールジアクリレート、(A)成分からのHSP距離: 6.65)

[0183] [粘着付与剤]

- ・ (C) - 1 : YSレジンPX800 (ヤスハラケミカル社製、テルペン樹脂)

[0184] [重合開始剤]

- ・ (D) - 1 : ダロキュアTPO (BASF社製、2,4,6-トリメチルベンゾイル-ジフェニル-フォスフィンオキサイド)

[0185] <製造方法: 実施例2-1~2-3及び比較例2-1~比較例2-2>

表3に記載した配合にてイソブチレン重合体、単官能性脂肪族アクリレート、多官能アクリレート、粘着付与剤、及び、重合開始剤をラボプラストミル(東洋精機製作所製)にて110℃、60rpmで混練し、前駆体である硬化性組成物を得た。

続けて、離型処理されたポリエチレンテレフタレートフィルム(三菱ケミカル株式会社製、ダイアホイルMRF38、厚さ: 38μm)2枚の間に、溶融した硬化性組成物を供給し、2本の加熱ロールの間を通すことで、サンドイッチラミネートを行い、両面に離型フィルムを備え、硬化性組成物層の厚さが約100μmのシート状の硬化性組成物を得た。

このとき、加熱ロールの温度は160℃であり、速度は100mm/分であった。

[0186] 次に、得られたシート状の硬化性組成物を剥離フィルムを積層した状態で、高圧水銀ランプを用いて紫外線を365nmの積算光量が2000mJ/cm²となるよう照射し、23℃50%RHで15時間以上養生することで、硬化性組成物を含むシート（サンプル）を中間層に備えた積層体を得た。

[0187] <硬化性組成物及び未硬化シートの評価試験>

（HSP、HSP距離（Ra））

HSPは、HSP統合ソフトであるHSPiP（商品名）に実装されている、Y-MB法により化学構造から求めた。

HSP距離（Ra）は、アクリレートモノマーのHSPを（ δD_1 , δP_1 , δH_1 ）とし、イソブチレン重合体（A）のHSPを（ δD_2 , δP_2 , δH_2 ）としたとき、下記の式により算出した。

$$\text{HSP 距離 (Ra)} = \{4 \times (\delta D_1 - \delta D_2)^2 + (\delta P_1 - \delta P_2)^2 + (\delta H_1 - \delta H_2)^2\}^{0.5}$$

[0188] （動的粘弾性）

得られた積層体の両面の離型フィルムを剥がし、シート（サンプル）を複数枚重ねることで、厚みが約2mmのシートを作製し、直径20mmの円形に打ち抜いたものを、レオメータ（英弘精機株式会社製、MARS）を用いて、粘着治具：Φ20mm平行プレート、歪み：0.1%、周波数：1Hz、温度：-50～150℃、昇温速度：3℃/minの条件で測定することで、シート（サンプル）の貯蔵弾性率（G'）、損失弾性率（G''）、損失正接（tanδ）を得た。

特にtanδの結果を図1に示す。

[0189] （TEM観察）

得られたシート（サンプル）を四酸化ルテニウムにより染色し、ライカ製ミクロトームEM UC7を用いて、シート面に垂直に凍結切削して、厚み約80nmの切片を複数作製し、得られた複数の切片の中から任意に3個の切片の抽出し、日立製透過電子顕微鏡「H-7650」を用いて、加速電圧100kVで1000倍～5000倍の倍率で、各切片の断面を無作為で1

0 か所観察を行い、分散状態を確認した。

この際、観察した3個の切片についてそれぞれ無作為で10か所の視野で観察し、何れの視野にも「最大径1 μm 以上の塊」が観察されなかった場合「なし」と判断し、何れかの視野に「最大径1 μm 以上の塊」が観察された場合「あり」と判断した。

実施例2-1で得られたシート（サンプル）の電子顕微鏡写真を図2、3、実施例2-3で得られたシート（サンプル）の電子顕微鏡写真を図4、5で示し、比較例2-1、2-2で得られたシート（サンプル）の電子顕微鏡写真をそれぞれ図6、7に示す。

[0190]（接着力試験）

得られたシート（サンプル）の一方の離型フィルムを剥がし、裏打ちフィルムとして50 μm のポリエチレンテレフタレートフィルム（三菱樹脂社製、ダイアホイルT100、厚さ50 μm ）を貼合して積層品を作成した。

当該積層品を長さ150 mm、巾10 mmに裁断した後、残る離型フィルムを剥がして露出した接着面をソーダライムガラスにロール圧着した。貼合品にオートクレーブ処理（60℃、ゲージ圧0.2 MPa、20分）を施して仕上げ貼着し、接着力測定用サンプルを作製した。

[0191] 上記剥離力測定サンプルを、剥離角180°、剥離速度60 mm/分で引き剥がしたときのガラスとの接着力（N/cm）を測定し、下記の基準で評価した。

○：接着力が1 N/cm以上のもの

×：接着力が1 N/cm未満のもの

それぞれ得られた硬化性組成物についての結果を表3に示す。

[0192]（保持力試験）

実施例及び比較例で作製した厚さ100 μm のシート（サンプル）を40 mm×50 mmに裁断し、片面の離型フィルムを剥がし、裏打用のポリエチレンテレフタレートフィルム（三菱樹脂株式会社製、ダイアホイルS-100、厚さ38 μm ）をハンドローラで背貼りした後、これを巾25 mm×長

さ100mmの短冊状に裁断して試験片とした。

次に、残る離型フィルムを剥がして、SUS板（120mm×50mm×厚さ1.2mm）に、貼着面積が25mm×25mmとなるようハンドローラで貼着した。

[0193] その後、試験片を40℃の雰囲気下で15分養生させた後、試験片に1kgfの錘を垂直方向に取り付けて掛けて静置した後、錘の落下時間（分）を測定し、下記の基準で評価した。

○：30分以内に落下しなかったもの

×：30分以内に落下したもの

それぞれ得られた硬化性組成物についての結果を表3に示す。

[0194] （ヘーズ）

ヘーズは、シート（サンプル）の両面にガラスを貼り合せた状態で、ヘーズメーター（日本電色工業株式会社製、NDH5000）を用いてJIS K7361-1に準じて全光線透過率を、JIS K7136に準じてヘーズをそれぞれ測定した。それぞれ得られた硬化性組成物についての結果を表3に示す。

[0195] （防湿性）

得られたシート（サンプル）のの厚みを測定後、両面の離型PETを剥がし、代わりにPET不織布を貼り付け、JIS K7129B法にて40℃、90%Rhの水蒸気透過率を測定し、下記評価基準で評価した。

○：100μm換算の水蒸気透過率が20g/m²・24h以下のもの

×：100μm換算の水蒸気透過率が20g/m²・24h超のもの

[0196] なお、厚みがわずかに違うもの同士を比較するために、硬化シートの厚みがAμmで、水蒸気透過率がB（g/m²・24h）の硬化シートの場合、A×B／100という式に当てはめて、100μm換算の値を求めた。それぞれ得られた硬化性組成物についての結果を表3に示す。

[0197]

[表3]

		単位	実施例2-1	実施例2-2	実施例2-3	比較例2-1	比較例2-2
イソブチレン系 重合体(A)	(A)-1	質量%	32.00	50.00	32.00	32.00	32.00
	(A)-2		22.00	24.00	16.50	22.00	22.00
	(A)-3		11.00		16.50	11.00	11.00
アクリレート系 重合体(B) のモノマー	単官能 (メタ)アクリレー		28.00	18.75	20.00		
	(B)-2				8.00		
	多官能 (メタ)アクリレー		6.00		6.00		
	(B)-4						34.00
	(B)-5			6.25		34.00	
粘着付与剤(C)		(C)-1	0.08	0.08	0.08	0.08	0.08
重合開始剤		(D)-1	0.92	0.92	0.92	0.92	0.92
(B)中の単官能アクリレート構造単位の割合		質量%	82.3	75.0	82.4	0	0
(A)100質量部に対する(B)の質量割合		質量部	52.3	33.8	52.3	52.3	52.3
tan δ の 極大点(1)	温度	°C	1	20	-20	-30	-32
	極大値		0.63	0.53	0.96	0.71	0.82
tan δ の 極大点(2)	温度	°C	—	-33	—	—	—
	極大値		—	0.30	—	—	—
最大径1 μm以上の塊の有無			なし	なし	なし	あり	あり
接着力		N/cm	12 (○)	5 (○)	8 (○)	<0.1 (×)	<0.1 (×)
保持力試験			○	○	○	×	×
ヘイズ	100 μm	%	1.03	1.66	0.38	32.3	10.5
	50 μm		0.69	1.11	測定なし	測定なし	測定なし
	25 μm		0.51	0.72	測定なし	測定なし	測定なし
防湿性評価			○	○	○	○	○

[0198] 実施例2-1、2-3で得られた硬化性組成物すなわちシート（サンプル）は、図2～5に示したように、イソブチレン重合体（A）とアクリレート系重合体が高度に相溶しており、最大径1 μm以上の塊、言い換えればアクリレート系重合体（B）からなる最大径1 μm以上の分散相は認められなかった。実施例2-2で得られる硬化性組成物すなわちシート（サンプル）においても、最大径1 μm以上の塊すなわち分散相が認められなかった。

[0199] 実施例2-1～2-3で得られた硬化性組成物すなわちシート（サンプル）は、表3、図1の結果からわかるように、良好な接着力を有し、良好な保持力、高透明性を有し、及び、水蒸気バリア性に優れていた。

比較例2-1、2-2で得られる硬化性組成物すなわちシート（サンプル）は、周波数1 Hzの剪断における損失正接の極大点が-20～20℃の範囲にない。したがって、シートにした際の接着力に劣っていた。

さらに比較例2-1、2-2で得られる硬化性組成物すなわちシート（サンプル）は、図6、7に示したように、最大径1 μm以上の塊すなわちアクリレート系重合体（B）からなる最大径1 μm以上の分散相が認められた。したがって、透明性に劣っていた。

[0200] 実施例 2-1～2-3 は、イソブチレン重合体 (A) の含有量がアクリレート系重合体 (B) に対して多いにも関わらず、イソブチレン重合体由来の大きな $\tan \delta$ ピークは見られず、非特許文献 1 に記載されている PCHMA を用いた系とは異なっている。これは、炭素数 10 以上の長鎖アルキル鎖を有する単官能性アクリレートを主成分とするアクリレート系重合体 (B) を用いた時に見られる現象であり、従来のイソブチレン重合体系 IPN (相互侵入網目構造) には見られない現象である。

(B) 成分の長鎖アルキル側鎖が、イソブチレン重合体 (A) との分子の絡み合いを高めた結果、単一の材料の様な粘弾性挙動を示すものと推察される。

[0201] <実施例 3>

実施例 3-1～3-6 及び比較例 3-1～比較例 3-5 で用いた化合物や材料を以下に示し、次に各実施例及び比較例における製造方法を示し、次に評価方法について説明する。

[0202] [イソブチレン重合体 (A)]

- ・ (A) - 1 : オパノール N50SF (BASF 社製、イソブチレン重合体、 $M_w : 56.5 \text{ 万 g/mol}$ 、(HSP $\delta D : 15.1$, $\delta P : 0$, $\delta H : 0$))
- ・ (A) - 2 : テトラックス 3T (JXTG 社製、イソブチレン重合体、 $M_w : 4.9 \text{ 万 g/mol}$ 、(HSP $\delta D : 15.1$, $\delta P : 0$, $\delta H : 0$))
- ・ (A) - 3 : IP ソルベント 2835 (出光社製、イソブチレン重合体)

[0203] [アクリレート系重合体 (B) のモノマー]

(i) 単官能アクリレート

- ・ (B) - 1 : S-1800ALC (新中村化学工業株式会社製、イソステアリルアクリレート、炭素数 18 の分岐アルキルに 1 個のアクリロイルオキシ基が付加したアクリレート。(A) 成分からの HSP 距離 : 3.74)
- ・ (B) - 2 : プレンマー CA (日油社製、ヘキサデシルアクリレート、炭

素数 16 の直鎖アルキルに 1 個のアクリロイルオキシ基が付加したアクリレート。(A) 成分からの HSP 距離 : 4.08)

・ (B) - 3 : ブレンマー V A (日油社製、ベヘニルアクリレート、炭素数 22 の直鎖アルキルに 1 個のアクリロイルオキシ基が付加したアクリレート。(A) 成分からの HSP 距離 : 3.61)

[0204] (ii) 多官能アクリレート

・ (B) - 4 : CD595 (サートマー社製、1,10-デカンジオールジアクリレート、(A) 成分からの HSP 距離 : 6.65)

・ (B) - 5 : ADCP (新中村化学工業株式会社製、トリシクロデカンジメタノールジアクリレート、(A) 成分からの HSP 距離 : 7.77)

・ (B) - 6 : CN9014NS (サートマー社製、ポリブタジエン系の 2 官能ウレタンアクリレート)

[0205] [粘着付与剤 (C)]

・ (C) - 1 : YS レジン PX800 (ヤスハラケミカル社製、テルペン樹脂)

[0206] [重合開始剤]

・ (D) - 1 : ダロキュア TPO (BASF 社製、2,4,6-トリメチルベンゾイル-ジフェニル-フォスフィンオキサイド)

[0207] <シート状硬化性組成物の作製方法>

表 4、表 5 に記載した配合にてイソブチレン重合体、単官能アクリレート、多官能アクリレート、粘着付与剤、及び、重合開始剤を均一になるまで混合し、本発明の硬化性組成物の前駆体である硬化性組成物を得た。

続けて、離型処理されたポリエチレンテレフタレートフィルム (三菱ケミカル株式会社製、ダイアホイル MRF38、厚さ : 38 μm) 2 枚の間に、硬化性組成物を展開し、両面に離型フィルムを備え、硬化性組成物層の厚さが約 100 μm のシート状の硬化性組成物を得た。

[0208] 次に、得られたシート状の硬化性組成物を剥離フィルムを積層した状態で、高圧水銀ランプを用いて紫外線を 365 nm の積算光量が 2000 mJ /

c m²となるよう照射し、23℃50%RHで15時間以上養生することで、硬化性組成物を含むシート（サンプル）を中間層に備えた積層体を得た。

[0209] <硬化性組成物及び未硬化シートの評価試験>

(HSP、HSP距離(Ra))

HSPは、HSP統合ソフトであるHSPiP（商品名）に実装されている、Y-MB法により化学構造から求めた。

HSP距離(Ra)は、アクリレートモノマーのHSPを(δD_1 , δP_1 , δH_1)とし、イソブチレン重合体(A)のHSPを(δD_2 , δP_2 , δH_2)としたとき、下記の式により算出した。

$$\text{HSP距離(Ra)} = \{4 \times (\delta D_1 - \delta D_2)^2 + (\delta P_1 - \delta P_2)^2 + (\delta H_1 - \delta H_2)^2\}^{0.5}$$

[0210] (動的粘弾性)

得られた積層体の両面の離型フィルムを剥がし、シート（サンプル）を複数枚重ねることで、厚みが約2mmのシートを作製し、直径20mmの円形に打ち抜いたものを、レオメータ（英弘精機株式会社製、MARS）を用いて、粘着治具：Φ20mm平行プレート、歪み：0.1%、周波数：1Hz、温度：-70～150℃、昇温速度：3℃/minの条件で測定することで、シート（サンプル）の貯蔵弾性率(G')、損失弾性率(G'')、損失正接($\tan \delta$)を得た。

[0211] (折り曲げ性評価)

得られた積層体の両面の離型フィルムを剥がし、厚み100μmのPETフィルムと、厚み50μmのPETフィルムを両面に貼り合せ、貼合品にオートクレーブ処理（60℃、ゲージ圧0.2MPa、20分）を施して仕上げ貼着し、評価用サンプルを作製した。

評価用サンプルをユアサシステム社製、DLDM-LH-FSを用いて、IEC 63715に準拠して、厚み50μmのPET側を内側にしてU字曲げを繰り返し行った。試験条件は20℃、周波数1Hz、R=3mm、10万回であり、下記基準で折り曲げ性を評価した。

○：１０万回折り曲げ後に、座屈、流動跡がみられない。

×：１０万回折り曲げ後に、座屈、流動跡の何れかがみられる。

[0212] （接着力試験）

得られたシート（サンプル）の一方の離型フィルムを剥がし、裏打ちフィルムとして $50\mu\text{m}$ のポリエチレンテレフタレートフィルム（三菱樹脂社製、ダイアホイルT100、厚さ $50\mu\text{m}$ ）を貼合して積層品を作成した。

当該積層品を長さ 150mm 、巾 10mm に裁断した後、残る離型フィルムを剥がして露出した接着面をソーダライムガラスにロール圧着した。貼合品にオートクレーブ処理（ 60°C ，ゲージ圧 0.2MPa ， 20分 ）を施して仕上げ貼着し、接着力測定用サンプルを作製した。

[0213] 上記剥離力測定サンプルを、剥離角 180° 、剥離速度 $60\text{mm}/\text{分}$ で引き剥がしたときのガラスとの接着力（ N/cm ）を測定し、下記の基準で評価した。

○：接着力が $1\text{N}/\text{cm}$ 以上のもの

×：接着力が $1\text{N}/\text{cm}$ 未満のもの

それぞれ得られた硬化性組成物についての結果を表6及び表7に示す。

[0214] （保持力試験）

実施例及び比較例で作製した厚さ $100\mu\text{m}$ のシート（サンプル）を $40\text{mm}\times 50\text{mm}$ に裁断し、片面の離型フィルムを剥がし、裏打用のポリエチレンテレフタレートフィルム（三菱樹脂株式会社製、ダイアホイルS-100、厚さ $38\mu\text{m}$ ）をハンドローラで背貼りした後、これを巾 $25\text{mm}\times$ 長さ 100mm の短冊状に裁断して試験片とした。

次に、残る離型フィルムを剥がして、SUS板（ $120\text{mm}\times 50\text{mm}\times$ 厚さ 1.2mm ）に、貼着面積が $25\text{mm}\times 25\text{mm}$ となるようハンドローラで貼着した。

[0215] その後、試験片を 40°C の雰囲気下で 15分 養生させた後、試験片に 1kgf の錘を垂直方向に取り付けて掛けて静置した後、錘の落下時間（分）を測定し、下記の基準で評価した。

○：３０分以内に落下しなかったもの

△：１０分超、３０分以内に落下したもの（実用範囲内）

×：１０分以内に落下したもの

それぞれ得られた硬化性組成物についての結果を表６及び表７に示す。

[0216] （ヘイズ）

ヘイズは、シート（サンプル）の両面にガラスを貼り合せた状態で、ヘイズメーター（日本電色工業株式会社製、NDH5000）を用いてJIS K7361-1に準じて全光線透過率を、JIS K7136に準じてヘイズをそれぞれ測定した。それぞれ得られた硬化性組成物についての結果を表６及び表７に示す。

[0217] （防湿性）

得られたシート（サンプル）のの厚みを測定後、両面の離型PETを剥がし、代わりにPET不織布を貼り付け、JIS K7129B法にて40℃、90%Rhの水蒸気透過率を測定し、下記評価基準で評価した。

○：100μm換算の水蒸気透過率が20g/m²・24h以下のもの

×：100μm換算の水蒸気透過率が20g/m²・24h超のもの

[0218] なお、厚みがわずかに違うもの同士を比較するために、硬化シートの厚みがAμmで、水蒸気透過率がB（g/m²・24h）の硬化シートの場合、A×B／100という式に当てはめて、100μm換算の値を求めた。それぞれ得られた硬化性組成物についての結果を表６及び表７に示す。

[0219] [表4]

			実施例3-1	実施例3-2	実施例3-3	実施例3-4	実施例3-5	実施例3-6
イソブチレン系 重合体	A-1	質量比	32.1	32.3	32.3	31.6	32.3	32.3
	A-2		16.6	16.7	16.7	23.1	16.7	16.7
	A-3		14.1	16.7	16.7	13.7	16.7	16.7
単官能アクリレート 成分	B-1		15.5	14.1	10	17	10	12
	B-2		14.7	13.5	17.6		17.6	21.1
	B-3					4.4		
多官能アクリレート 成分	B-4		6	5.5	5.5	9.1		
	B-5							
	B-6						5.5	
粘着付与剤		C-1	0.08		0.08	0.08		
重合開始剤		—	1	1	1	1	1	1

[0220]

[表5]

			比較例3-1	比較例3-2	比較例3-3	比較例3-4	比較例3-5
イソブチレン系 重合体	A-1	質量比	32.1	32.3	32.1	32	32.3
	A-2		16.5	16.7	16.6	22	16.7
	A-3		10.2	16.7	14.1	11	16.7
単官能アクリレート 成分	B-1		32.1	27.6	30.1		33.1
	B-2						
	B-3						
多官能アクリレート 成分	B-4		8	5.6	6		
	B-5					34	
	B-6						
粘着付与剤	C-1		0.1	0.08	0.08	0.08	
重合開始剤	—		1	1	1	0.92	1

[0221] [表6]

			実施例3-1	実施例3-2	実施例3-3	実施例3-4	実施例3-5	実施例3-6
アクリレート系重合体100質量部に対する 単官能アクリレート成分の割合	質量部		83.4	83.4	83.4	70.2	83.4	100.0
			42.8	42.6	30.2	55.1	30.2	36.3
			57.6	50.4	50.4	44.6	50.4	50.4
tan δ の極大点(1)	温度	°C	-21	-24	-22	-18	-25	-21
	極大値		0.68	0.72	0.93	1.08	0.98	1.32
tan δ の極大点(2)	温度	°C	—	2	—	-47	—	—
	極大値		—	0.36	—	0.07	—	—
ガラスに対する接着力	N/cm		3.5	6	3.5	12	6.5	5
	評価		○	○	○	○	○	○
保持力	評価		○	○	○	○	○	△
ヘイズ	%		0.72	0.80	0.76	0.77	5.71	8.73
防湿性	評価		○	○	○	○	○	○
折り曲げ性	評価		○	○	○	○	○	○

[0222] [表7]

			比較例3-1	比較例3-2	比較例3-3	比較例3-4	比較例3-5
アクリレート系重合体100質量部に対する 単官能アクリレート成分の割合	質量部		80.0	83.1	83.4	0	100.0
			80.0	83.1	83.4	0	100.0
			68.2	50.5	57.5	52.3	50.4
tan δ の極大点(1)	温度	°C	-2	-9	-10	-30	15
	極大値		0.82	1.00	0.87	0.71	1.32
tan δ の極大点(2)	温度	°C	—	—	-44	—	—
	極大値		—	—	0.04	—	—
ガラスに対する接着力	N/cm		14	6	8	<0.1	6
	評価		○	○	○	x	○
保持力	評価		○	○	○	x	x
ヘイズ	%		0.74	0.78	0.62	32.3	65.1
防湿性	評価		○	○	○	○	○
折り曲げ性	評価		x	x	x	x	x
			(座屈)	(座屈)	(座屈)	(流動)	(座屈)

[0223] <溶剤を用いた製造例>

表4に記載した実施例3-1配合にて、イソブチレン重合体、単官能アクリレート、多官能アクリレート、粘着付与剤、及び、重合開始剤を均一に混合し、前駆体である硬化性組成物を得た。

得られた硬化性組成物100質量部を遮光容器に移し替え、ヘプタン200質量部を加えて溶解することで、均一な塗工液を得た。

続けて、離型処理されたポリエチレンテレフタレートフィルム（三菱ケミカル株式会社製、ダイアホイルMRF38、厚さ：38 μ m）の離型面側に、アプリケーションを用いて塗工液を展開し、120℃の乾燥機で15分乾燥後、もう一枚の離型処理されたPETフィルムを、ハンドローラーを用いて積層し、両面に離型フィルムを備え、硬化性組成物層の厚さが約100 μ mのシート状の硬化性組成物を得た。

次に、得られたシート状の硬化性組成物を剥離フィルムを積層した状態で、高圧水銀ランプを用いて紫外線を365nmの積算光量が2000mJ/cm²となるよう照射し、23℃50%RHで15時間以上養生することで、硬化性組成物を含むシート（サンプル）を中間層に備えた積層体を得た。溶剤を用いない製造方法と比較しても、各種物性及び評価項目に差異はなかった。

[0224] 実施例3-1～3-6で得られたシートは、いずれも周波数1Hzの剪断における損失正接（ $\tan \delta$ ）の極大点を-30℃～-15℃の範囲に有しており、優れた接着力、保持力、折り曲げ性及び水蒸気バリア性を有している。

なお、実施例3-1～3-5は、実施例3-6と比較して、保持力に関してさらに有意であった。また、実施例3-1～3-4は、実施例3-5と比較して、ヘイズ（透明性）の点よりさらに有意であった。ただし実施例3-5のヘイズであっても実用性はある。

比較例3-1～3-3、及び、比較例3-5で得られたシートは、周波数1Hzの剪断における損失正接（ $\tan \delta$ ）の極大点を-30℃～-15℃の範囲に有しておらず、折り曲げ性評価時にいずれも座屈が観察された。

多官能アクリレートのみから構成されるアクリレート系重合体を用いた比較例3-4は、接着力、保持力に劣り、折り曲げ性評価時に流動後が観察された。

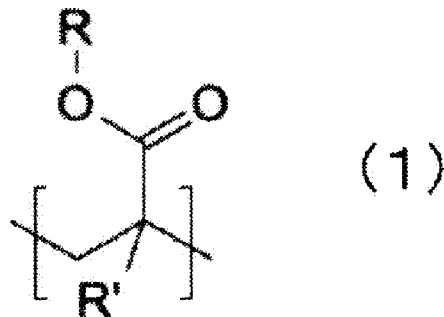
請求の範囲

[請求項1] イソブチレン重合体（A）とアクリレート系重合体（B）を含むシートであって、

前記アクリレート系重合体（B）は、構造単位として、下式（1）に示す単位構造の単官能アクリレート単位、及び、多官能アクリレート単位をそれぞれ有し、

前記シートは、周波数 1 Hz の剪断測定における損失正接（ $\tan \delta$ ）の少なくとも一つの極大点が $-30^{\circ}\text{C} \sim 30^{\circ}\text{C}$ の範囲にあり、ヘーズが 2.0 % 以下であるシート。

[化1]



（式中、Rは炭化水素基、R'は水素（H）又はメチル基（ CH_3 ）をそれぞれ表す）

[請求項2] ヘーズが 1.0 % 未満である請求項 1 に記載のシート。

[請求項3] アクリレート系重合体（B）は、単官能アクリレート単位を 60 質量%～90 質量%含むものである請求項 1 または 2 に記載のシート。

[請求項4] シート縦断面又は横断面を、透過型電子顕微鏡で観察した際（倍率：1000倍～5000倍）、最大径 $1 \mu\text{m}$ 以上の塊が観察されないことを特徴とする請求項 1～3 のいずれかに記載のシート。

[請求項5] 前記イソブチレン重合体（A）100質量部に対して、前記アクリレート系重合体（B）を 5質量部以上100質量部未満含む請求項 1

～4のいずれかに記載のシート。

[請求項6] 前記アクリレート系重合体（B）は多官能アクリレートを含有し、且つ、該多官能アクリレートの前記シート中の含有量が0.5質量%以上10質量%未満である請求項1～5のいずれかに記載のシート。

[請求項7] 周波数1Hzの剪断における損失正接（ $\tan \delta$ ）の少なくとも一つの極大点が -30°C ～ -15°C の範囲にある請求項1～6のいずれかに記載のシート。

[請求項8] 前記アクリレート系重合体（B）が少なくとも2種類の単官能アクリレート成分を有する請求項7に記載のシート。

[請求項9] 前記アクリレート系重合体（B）は、上式（1）のRとして、分岐アルキル基である単官能アクリレート成分を、少なくとも1種類含む請求項7又は8に記載のシート。

[請求項10] イソブチレン重合体（A）100質量部に対してアクリレートモノマーを5質量部以上100質量部未満含む硬化性組成物であって、
前記アクリレートモノマーとして、単官能アクリレートモノマーと多官能アクリレートモノマーをそれぞれ有し、

前記多官能アクリレートを、前記硬化性組成物中に0.5質量%以上10質量%未満の割合で含有することを特徴とする硬化性組成物。

[請求項11] 前記単官能アクリレートを少なくとも2種類含む、請求項10に記載の硬化性組成物。

[請求項12] 請求項10又は11に記載の硬化性組成物からなる未硬化シート。

[請求項13] 請求項12に記載の未硬化シートを硬化してなるシート。

[請求項14] 請求項1～9のいずれかに記載のシート、又は、請求項13に記載のシートの少なくとも片面に、離形フィルムが積層されてなる積層体。

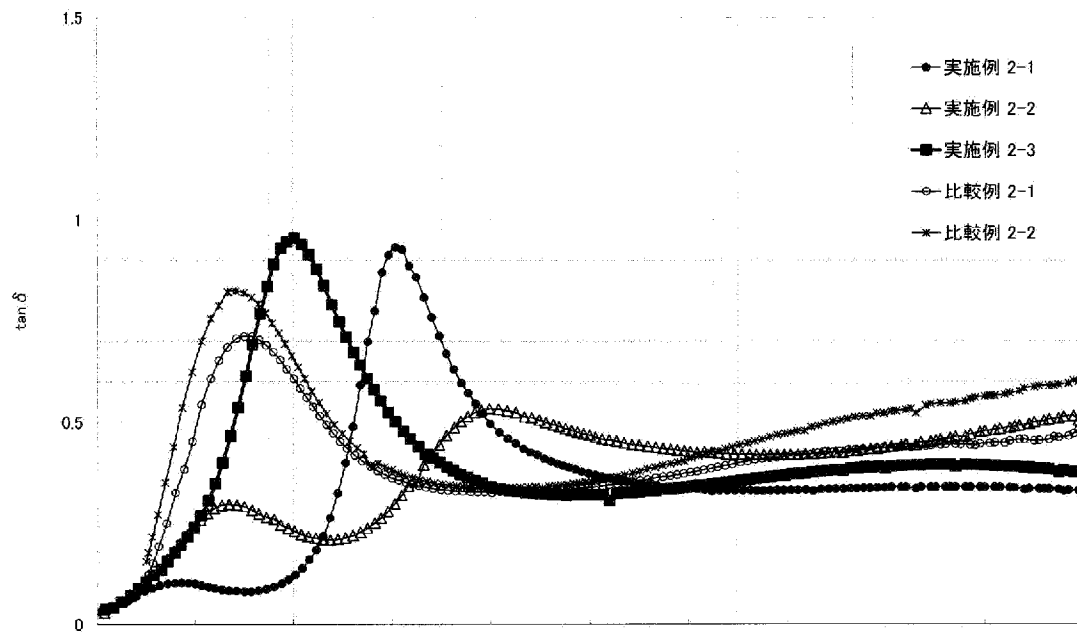
[請求項15] 請求項1～9のいずれかに記載のシート、又は、請求項13に記載のシートの少なくとも片面に、タッチパネル、画像表示パネル、表面保護パネル、位相差フィルム、偏光フィルム、カラーフィルター、及

びフレキシブル基板からなる群のうちの何れか 1 種類以上が積層されてなる構成を備えた画像表示装置用積層体。

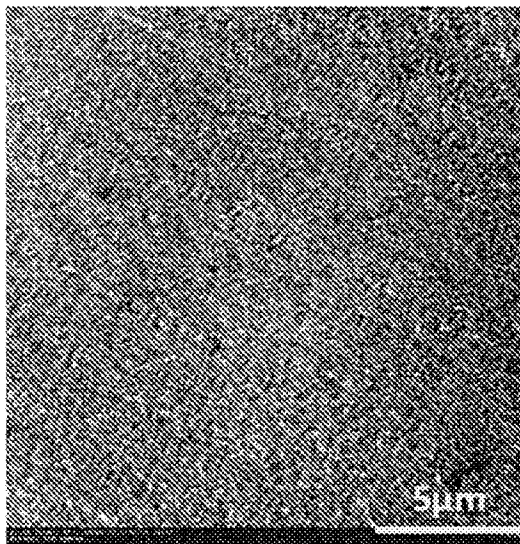
[請求項16] 請求項 1 ～ 9 のいずれか、又は、請求項 1 3 に記載のシートが設けられた画像表示装置。

[請求項17] 請求項 7 ～ 9 のいずれかに、又は、請求項 1 3 に記載のシートが設けられた、折り曲げが可能である画像表示装置。

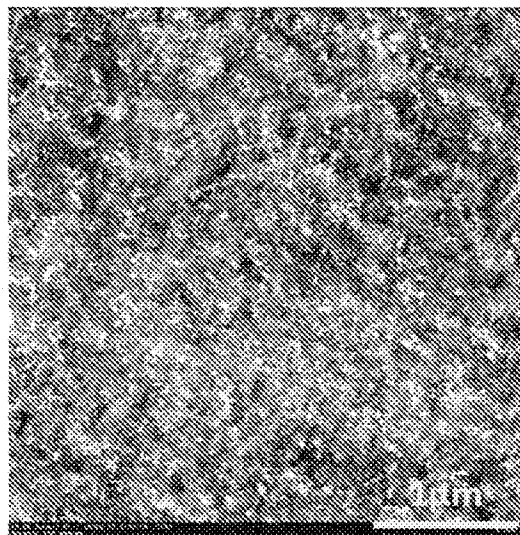
[図1]



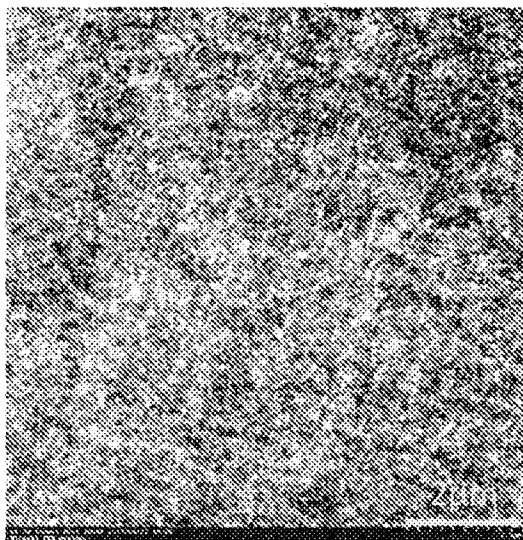
[図2]



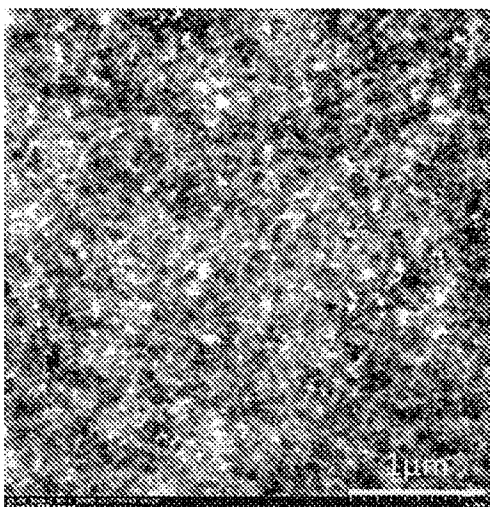
[図3]



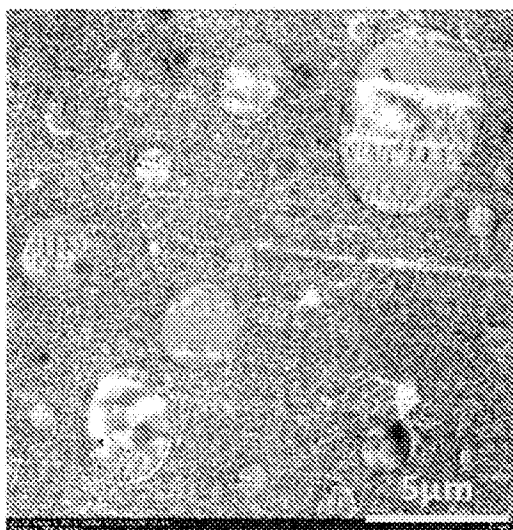
[図4]



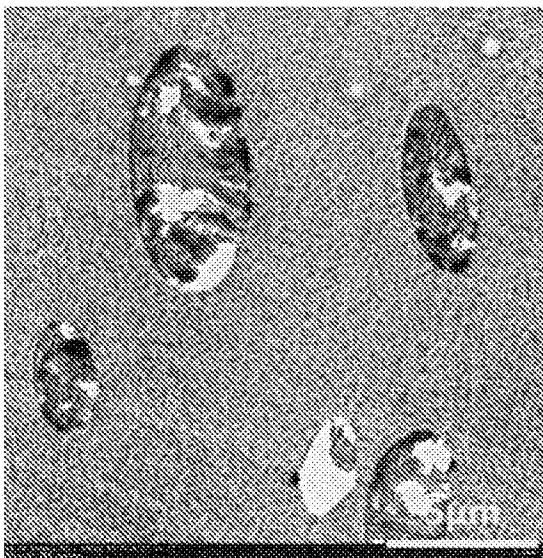
[図5]



[図6]



[図7]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/011170

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C08J5/18 (2006.01) i, B32B27/30 (2006.01) i, B32B27/32 (2006.01) i,
C08F2/44 (2006.01) i, C08F255/10 (2006.01) i, C09J4/02 (2006.01) i,
C09J7/30 (2018.01) i, C09J123/20 (2006.01) i, H01L51/50 (2006.01) i,
H05B33/02 (2006.01) i, H05B33/04 (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)

Int.Cl. C08J5/00-C08J5/02, C08J5/12-C08J5/22, B32B1/00-B32B43/00,
C08F2/44, C08F255/10, C09J4/02, C09J7/30, C09J123/20, H01L51/50,
H05B33/02, H05B33/04

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	1971-2018
Registered utility model specifications of Japan	1996-2018
Published registered utility model applications of Japan	1994-2018

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 Y	JP 2012-511605 A (BASF AG.) 24 May 2012, claims, paragraphs [0002], [0008]-[0017], [0022]-[0030], [0036]-[0037], [0042]-[0044], [0046], [0073], [0077], [0079], [0092]-[0105], fig. 2 & US 2011/0230621 A1, claims, paragraphs [0002], [0008]-[0017], [0022]-[0030], [0035]-[0036], [0041]-[0042], [0044], [0071]-[0083], [0087]-[0114], fig. 2 & EP 2376552 A1 & CN 102245656 A	1-6, 8-14 15-17

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.	☐ See patent family annex.
--	---

* Special categories of cited documents:	"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search 06 June 2018 (06.06.2018)	Date of mailing of the international search report 19 June 2018 (19.06.2018)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/011170

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2015-34254 A (NITTO DENKO CORP.) 19 February 2015, claims, paragraphs [0004], [0013]-[0020],	1-2, 4, 6-9, 14-17
Y	[0024]-[0026], [0037]-[0043], [0064]-[0066], [0080], [0087], [0098]-[0108], [0118], table 1 & CN 104342041 A & KR 10-2015-0018429 A	15-17
A	JP 2011-513502 A (BASF AG.) 28 April 2011, entire text & US 2010/0170636 A1, entire text & EP 2160443 A1 & CN 101688037 A	1-17
A	JP 53-43742 A (THE YOKOHAMA RUBBER CO., LTD.) 20 April 1978, entire text (Family: none)	1-17
A	JP 2006-8819 A (THREEBOND CO., LTD.) 12 January 2006, entire text & KR 10-2007-0039880 A	1-17

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/011170

The invention in claim 1 of the present application discloses a sheet comprising an isobutylene polymer (A) and an acrylate polymer (B), and having a haze of 2.0% or less.

However, with regard to a method for producing a sheet comprising an isobutylene polymer (A) and an acrylate polymer (B), and having a haze of 2.0% or less, the present specification only mentions that a semi-IPN structure is formed between an acrylate polymer (B), having a monofunctional acrylate unit and a polyfunctional acrylate unit having a unit structure shown in formula (1) as structural units, and an isobutylene polymer (A).

In addition, as disclosed in Comparative Examples 1-1 to 1-3 of the present specification, it is considered to have been common technical knowledge at the time of filing that the compatibility between the isobutylene polymer (A) and the acrylate polymer (B) is insufficient even if the alkyl chain of the acrylic acid ester moiety is made of a long chain carbon chain to increase hydrophobicity, and that it is difficult to achieve the haze value specified in claim 1 of the present application.

Then, even considering the disclosure in the present specification and common general knowledge at the time of filing, a person skilled in the art could not understand how to produce a sheet comprising an isobutylene polymer (A) and an acrylate polymer (B), and having a haze of 2.0% or less by a method other than the method that involves forming the semi-IPN structure disclosed in the present specification.

Thus, in the present specification, the invention in claim 1 is not described clearly or sufficiently enough for a person skilled in the art to carry out the invention in claim 1, and thus the present specification does not comply with the requirements for evidence under PCT Article 5.

In addition, based on the same reasoning, each of the inventions in claims 2-17 of the present application does not comply with the requirements for evidence under PCT Article 5.

Accordingly, meaningful searches for sheets other than the sheet in which "a semi-IPN structure is formed between an acrylate polymer (B) having a monofunctional acrylate unit and a polyfunctional acrylate unit having a unit structure shown in formula (1) as structural units, and an isobutylene polymer (A)" in the inventions in claims 1-17 of the present application cannot be carried out, and thus searches were not carried out for such sheets.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C08J5/18(2006.01)i, B32B27/30(2006.01)i, B32B27/32(2006.01)i, C08F2/44(2006.01)i, C08F255/10(2006.01)i, C09J4/02(2006.01)i, C09J7/30(2018.01)i, C09J123/20(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/02(2006.01)i, H05B33/04(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C08J5/00- C08J5/02, C08J5/12- C08J5/22, B32B1/00-B32B43/00, C08F2/44, C08F255/10, C09J4/02, C09J7/30, C09J123/20, H01L51/50, H05B33/02, H05B33/04

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	1971-2018年
日本国実用新案登録公報	1996-2018年
日本国登録実用新案公報	1994-2018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 Y	JP 2012-511605 A (ビーエーエスエフ ソシエタス・ヨーロッパ) 2012.05.24, 特許請求の範囲, 段落[0002], [0008]-[0017], [0022]-[0030], [0036]-[0037], [0042]-[0044], [0046], [0073], [0077], [0079], [0092]-[0105], [図2] & US 2011/0230621 A1, 特許請求の範囲, 段落[0002], [0008]-[0017], [0022]-[0030], [0035]-[0036], [0041]-[0042], [0044], [0071]-[0083], [0087]-[0114], [図2] & EP 2376552 A1 & CN 102245656 A	1-6, 8-14 15-17

☑ 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

06.06.2018

国際調査報告の発送日

19.06.2018

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

飛弾 浩一

4 F

5815

電話番号 03-3581-1101 内線 3430

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
X	JP 2015-34254 A (日東電工株式会社) 2015.02.19, 特許請求の範囲, 段落[0004], [0013]-[0020],	1-2, 4, 6-9, 14
Y	[0024]-[0026], [0037]-[0043], [0064]-[0066], [0080], [0087], [0098]-[0108], [0118], [表 1] & CN 104342041 A & KR 10-2015-0018429 A	-17 15-17
A	JP 2011-513502 A (ビーエーエスエフ ソシエタス・ヨーロピア) 2011.04.28, 全文 & US 2010/0170636 A1, 全文 & EP 2160443 A1 & CN 101688037 A	1-17
A	JP 53-43742 A (横浜ゴム株式会社) 1978.04.20, 全文 (ファミリーなし)	1-17
A	JP 2006-8819 A (株式会社スリーボンド) 2006.01.12, 全文 & KR 10-2007-0039880 A	1-17

本願請求項 1 に係る発明は、イソブチレン重合体 (A) とアクリレート系重合体 (B) を含み、ヘーズが 2.0 % 以下であるシートが記載されている。

しかしながら、本願明細書には、イソブチレン重合体 (A) とアクリレート系重合体 (B) を含み、ヘーズが 2.0 % 以下であるシートを製造する方法として、構造単位として式 (1) に示される単位構造の単官能アクリレート単位、及び、多官能アクリレート単位を有するアクリレート系重合体 (B) とイソブチレン重合体 (A) との間でセミ I P N 構造を形成すること以外に記載されていない。

さらに、本願明細書の比較例 1-1 ~ 1-3 に記載されているように、アクリル酸のエステル部位のアルキル鎖を長鎖の炭素鎖からなるものにして疎水性を高くしても、イソブチレン重合体 (A) とアクリレート系重合体 (B) との相溶性は十分ではなく、本願請求項 1 で特定するヘイズ値を達成することが困難であることは出願時における技術常識であると認められる。

そうすると、本願明細書の記載及び出願時の技術常識を考慮しても、本願明細書に記載されたセミ I P N 構造を形成する以外の方法により、どのようにして、イソブチレン重合体 (A) とアクリレート系重合体 (B) を含み、ヘーズが 2.0 % 以下であるシートを製造すれば良いのかを当業者が理解できない。

よって、本願明細書は、本願請求項 1 に係る発明を当業者が実施できる程度に明確かつ十分に記載されておらず、PCT 第 5 条に規定される裏付けに関する要件を満たしていない。

また、本願請求項 2-17 に係る発明についても同様の判断から、PCT 第 5 条に規定される裏付けに関する要件をそれぞれ満たしていない。

よって、本願請求項 1-17 に係る発明は、「構造単位として式 (1) に示される単位構造の単官能アクリレート単位、及び、多官能アクリレート単位を有するアクリレート系重合体 (B) とイソブチレン重合体 (A) との間でセミ I P N 構造を形成」すること以外のシートについては、有意義な調査を行うことができないため、調査を行わなかった。