

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2023年5月25日(25.05.2023)

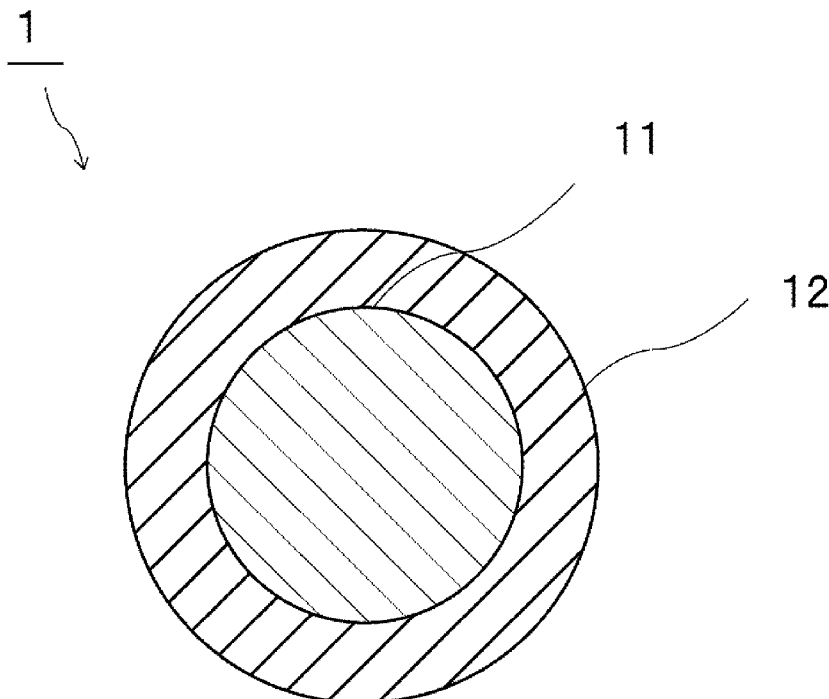


(10) 国際公開番号
WO 2023/090457 A1

- (51) 国際特許分類:
G02F 1/1339 (2006.01) *C08L 83/04* (2006.01)
B32B 27/00 (2006.01) *C08L 101/00* (2006.01)
C08K 5/541 (2006.01) *C09J 201/00* (2006.01)
C08L 63/00 (2006.01) *G02F 1/19* (2019.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2022/043163
- (22) 国際出願日: 2022年11月22日(22.11.2022)
- (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 2021-189156 2021年11月22日(22.11.2021) JP
- (71) 出願人: 積水化学工業株式会社 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5308565 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号 Osaka (JP).
- (72) 発明者: 大倉 滉生(OOKURA, Kouki); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 山田 恭幸(YAMADA, Yasuyuki); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 脇屋 武司(WAKIYA, Takeshi); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP).
- (74) 代理人: 弁理士法人大阪フロント特許事務所 (OSAKA FRONT); 〒5400028 大阪府大阪市中央区常盤町1丁目3番8号 中央大通FNビル Osaka (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT,

(54) Title: ADHESIVE PARTICLES AND LAMINATE

(54) 発明の名称: 接着性粒子及び積層体



(57) Abstract: Provided are adhesive particles capable of sufficiently enhancing adhesiveness, suppressing peeling from base materials, and highly accurately controlling a gap between the base materials. Adhesive particles (1) according to the present invention each comprise: a base material particle (11); and a cover (12) disposed on the surface of the base material particle. The cover includes a thermosetting resin, and a 10% K value of the adhesive particles at 25 °C is 100-3000 N/mm².



WO 2023/090457 A1

HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

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

添付公開書類:

- 一 国際調査報告 (条約第21条(3))
-

(57) 要約: 接着性を十分に高めることができ、基材からの剥離を抑制し、かつ、基材間のギャップを高精度に制御することができる接着性粒子を提供する。本発明に係る接着性粒子(1)は、基材粒子(11)と、前記基材粒子の表面に配置された被覆部(12)とを備え、前記被覆部が、熱硬化性樹脂を含み、接着性粒子の25℃での10%K値が、 $100\text{N}/\text{m}^2$ 以上 $3000\text{N}/\text{m}^2$ 以下である。

明 細 書

発明の名称： 接着性粒子及び積層体

技術分野

[0001] 本発明は、接着性粒子、及び上記接着性粒子を用いた積層体に関する。

背景技術

[0002] 液晶表示装置及び車載用ディスプレイ等のディスプレイ装置に、調光ガラスや調光フィルム等の調光材料が用いられることがある。調光材料は、電界の印加の有無により光透過率が変化する性質を有し、入射光量の調整が可能な材料である。近年、ディスプレイ装置の大画面化、曲面化に伴い、曲面部を有する調光材料のニーズが高まっている。該調光材料では、基材間のギャップを制御するために、スペーサとして粒子が用いられている。また、該調光材料では、2枚のガラス又はフィルム基材を貼り合わせるために、接着剤が用いられることがある。

[0003] また、液晶表示素子は、2枚のガラス又はフィルム基材間に液晶が配置されて構成されている。該液晶表示素子では、基材間のギャップを制御するために、スペーサとして粒子が用いられている。また、該液晶表示素子では、2枚のガラス又はフィルム基材を貼り合わせるために、接着剤が用いられることがある。

[0004] 下記の特許文献1には、基材粒子と、上記基材粒子の表面上に配置された被覆部とを備える粒子が開示されている。該粒子では、上記被覆部の材料が特定の構造を有する化合物である。特許文献1には、該被覆部の材料として、熱可塑性樹脂が記載されている。

[0005] また、下記の特許文献2には、光硬化性化合物又は熱硬化性化合物により形成されている、硬化性樹脂粒子が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開2018-132740号公報

特許文献2：特開2016-218257号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0007] 近年、ディスプレイ装置の大画面化、フレキシブル化に伴い、より高い接着性を有する接着剤のニーズが高まっている。また、接着性をより一層高めるために、接着性を有する粒子（接着性粒子）を用いることが考えられる。
- [0008] 特許文献1のように基材粒子の表面が熱可塑性樹脂で被覆され粒子では、粒子自体の接着性がさほどないことが想定される。
- [0009] また、従来の接着性粒子では、接着性を十分に高めることが困難なことがある。また、粒子本体と、該粒子本体を被覆する接着層とを備える接着性粒子では、接着層を十分に厚くすることができず、結果として粒子の接着性を十分に高めることが困難なことがある。また、加熱時に接着層が溶融して液だれが発生し、結果として接着性が低下することがある。
- [0010] 接着性の不十分な粒子を用いた積層体では、粒子が基材から剥がれて、基材間のギャップのばらつきが生じやすい。特に、積層体が曲面部を有する場合には、スペーサ粒子の基材からの剥離を抑制し、かつ、基材間のギャップの均一性を確保することは非常に困難である。
- [0011] また、接着性粒子の接着後の硬度が高い場合には、基材を曲面化したときに、粒子と接触している基材に大きな圧力がかかることで、粒子が基材から剥がれて、基材間のギャップのばらつきが生じることがある。
- [0012] 本発明の目的は、接着性を十分に高めることができ、基材からの剥離を抑制し、かつ、基材間のギャップを高精度に制御することができる接着性粒子を提供することである。また、本発明の目的は、上記接着性粒子を用いた積層体を提供することである。

課題を解決するための手段

- [0013] 本発明の広い局面によれば、基材粒子と、前記基材粒子の表面に配置された被覆部とを備え、前記被覆部が、熱硬化性樹脂を含み、25℃での10%K値が、100N/mm²以上3000N/mm²以下である、接着性粒子が

提供される。

- [0014] 本発明に係る接着性粒子のある特定の局面では、接着性粒子を120℃で1時間加熱した後の25℃での10%K値が、110N/mm²以上3500N/mm²以下である。
- [0015] 本発明に係る接着性粒子のある特定の局面では、前記基材粒子の25℃での10%K値が、100N/mm²以上3000N/mm²以下である。
- [0016] 本発明に係る接着性粒子のある特定の局面では、25℃での圧縮回復率が、5%以上50%以下である。
- [0017] 本発明に係る接着性粒子のある特定の局面では、前記被覆部の厚みが、0.5μm以上5.0μm以下である。
- [0018] 本発明に係る接着性粒子のある特定の局面では、前記被覆部が、下記式(1)で表される構造を有する化合物を含む。
- [0019] $R1 - (SiO_p R3 R4_q)_n - R2 \quad \dots (1)$
- [0020] 前記式(1)中、R1及びR2はそれぞれ、アミノ基を有する有機基、エポキシ基を有する有機基、アミド基を有する有機基、イソシアネート基を有する有機基、又はヒドロキシ基を有する有機基を表し；R3は、炭素数が1～2のアルキル基、炭素数が1～2のアルコキシ基、又はビニル基を表し；pは、1又は1.5であり；pが1のとき、qは、1であり、かつR4は、水素原子、炭素数が1～2のアルキル基、炭素数が1～2のアルコキシ基、又はビニル基を表し；pが1.5のとき、qは0であり；nは、1～100の整数を表す。
- [0021] 本発明に係る接着性粒子のある特定の局面では、前記被覆部中の熱硬化性樹脂が、エポキシ樹脂を含む。
- [0022] 本発明の広い局面によれば、第1の基材と、第2の基材と、前記第1の基材と前記第2の基材との間に配置されているスペーサ粒子とを備え、前記スペーサ粒子が、前記第1の基材と前記第2の基材とに接着しており、前記スペーサ粒子の材料が、上述の接着性粒子を含む、積層体が提供される。
- [0023] 本発明に係る積層体のある特定の局面では、前記スペーサ粒子が、下記式

(11) で表される構造単位を有する化合物を含む。

[0024] $-(SiO_pR_3R_4)_n- \dots (11)$

[0025] 前記式(11)中、R₃は、炭素数が1~2のアルキル基、炭素数が1~2のアルコキシ基、又はビニル基を表し；pは、1又は1.5であり；pが1のとき、qは、1であり、かつR₄は、水素原子、炭素数が1~2のアルキル基、炭素数が1~2のアルコキシ基、又はビニル基を表し；pが1.5のとき、qは0であり；nは、1~100の整数を表す。

[0026] 本発明に係る積層体のある特定の局面では、前記積層体が、曲面部を有する。

[0027] 本発明に係る積層体のある特定の局面では、前記積層体が、調光積層体であり、前記第1の基材と、前記第2の基材との間に配置されている調光層をさらに備える。

発明の効果

[0028] 本発明に係る接着性粒子は、基材粒子と、上記基材粒子の表面に配置された被覆部とを備え、上記被覆部が、熱硬化性樹脂を含み、25℃での10%K値が、100N/mm²以上3000N/mm²以下である。本発明に係る接着性粒子では、上記の構成が備えられているので、接着性を十分に高めることができ、基材からの剥離を抑制し、かつ、基材間のギャップを高精度に制御することができる。

図面の簡単な説明

[0029] [図1]図1は、本発明の第1の実施形態に係る接着性粒子を模式的に示す断面図である。

[図2]図2は、本発明の第1の実施形態に係る接着性粒子を用いた積層体を模式的に示す断面図である。

[図3]図3は、本発明の第1の実施形態に係る接着性粒子を用いたPDL方式の調光積層体を模式的に示す断面図である。

[図4]図4は、本発明の第1の実施形態に係る接着性粒子を用いたSPD方式の調光積層体を模式的に示す断面図である。

発明を実施するための形態

[0030] 以下、本発明を詳細に説明する。なお、本明細書において、例えば、「(メタ)アクリレート」は「アクリレート」と「メタクリレート」との一方又は双方を意味し、「(メタ)アクリル」は「アクリル」と「メタクリル」との一方又は双方を意味する。

[0031] (接着性粒子)

本発明に係る接着性粒子は、基材粒子と、上記基材粒子の表面に配置された被覆部とを備える。本発明に係る接着性粒子では、上記被覆部が、熱硬化性樹脂を含む。本発明に係る接着性粒子では、25℃での10%K値が、100N/mm²以上3000N/mm²以下である。

[0032] 本発明に係る接着性粒子では、上記の構成が備えられているので、接着性粒子の接着性を十分に高めることができる。また、本発明に係る接着性粒子では、上記の構成が備えられているので、該接着性粒子がスペーサ粒子の材料として用いられた際に、スペーサ粒子の基材からの剥離を抑制することができ、基材間のギャップを高精度に制御することができる。また、本発明に係る接着性粒子では、上記の構成が備えられているので、基材の傷付きを防止することができる。さらに、本発明に係る接着性粒子では、上記の構成が備えられているので、調光積層体に用いられた際に、基材の剥離を抑制することができる。

[0033] また、従来 of 積層体では、積層体が曲面部を有する場合には、基材間のギャップの均一性を確保し、かつ、スペーサ粒子の基材からの剥離を抑制することは非常に困難である。しかし、本発明に係る接着性粒子では、上記の構成が備えられているので、例えば、積層体が曲面部を有していても、曲面部で上記接着性粒子が移動することなく、基材間のギャップの均一性を確保することができる。また、本発明に係る接着性粒子では、積層体が曲面部を有していても、接着性粒子の基材からの剥離を抑制することができるので、基材間のギャップの均一性を確保することができる。結果として、ギャップの不均一性から生じる液晶表示装置の色むら等の不具合の発生を抑制すること

ができる。

[0034] また、上記接着性粒子は、球状であるので、積層体を製造する際に、ロールツーロールプロセスを適用することができ、積層体の製造コストを低減することができる。球状は、真球状に限定されず、略球状も含み、例えば、アスペクト比（長径／短径）が1.5以下である形状も含む。

[0035] 上記接着性粒子の25℃での10%K値は、100N/mm²以上3000N/mm²以下である。上記接着性粒子の25℃での10%K値は、好ましくは200N/mm²以上、より好ましくは300N/mm²以上、さらに好ましくは1000N/mm²以上であり、好ましくは2800N/mm²以下、より好ましくは2500N/mm²以下、さらに好ましくは2000N/mm²以下である。上記接着性粒子の25℃での10%K値が、上記下限以上及び上記上限以下であると、本発明の効果をより一層効果的に発揮することができる。また、基材の傷付きを防止することができる。また、上記接着性粒子の25℃での10%K値が、上記下限以上及び上記上限以下であると、調光積層体に用いられた際に、基材の剥離をより一層抑制することができる。

[0036] 上記接着性粒子の25℃での10%K値は、以下のようにして測定できる。微小圧縮試験機を用いて、円柱（直径50μm、ダイヤモンド製）の平滑圧子端面で、25℃、最大試験荷重20mNを60秒かけて負荷する条件下で接着性粒子を圧縮する。このときの荷重値（N）及び圧縮変位（mm）を測定する。得られた測定値から、上記25℃での10%K値を下記式により求めることができる。上記微小圧縮試験機として、例えば、フィッシャー社製「フィッシャースコープH-100」等が用いられる。

[0037] 25℃での10%K値（N/mm²） = $(3/2^{1/2}) \cdot F \cdot S^{-3/2} \cdot R^{-1}$
/2

F：接着性粒子が10%圧縮変形したときの荷重値（N）

S：接着性粒子が10%圧縮変形したときの圧縮変位（mm）

R：接着性粒子の半径（mm）

[0038] 上記接着性粒子を120℃で1時間加熱した後の25℃での10%K値は

、好ましくは $110\text{N}/\text{mm}^2$ 以上、より好ましくは $150\text{N}/\text{mm}^2$ 以上、さらに好ましくは $300\text{N}/\text{mm}^2$ 以上であり、好ましくは $3500\text{N}/\text{mm}^2$ 以下、より好ましくは $3000\text{N}/\text{mm}^2$ 以下、さらに好ましくは $2800\text{N}/\text{mm}^2$ 以下である。上記接着性粒子を 120°C で1時間加熱した後の 25°C での 10% K値が、上記下限以上及び上記上限以下であると、本発明の効果をより一層効果的に発揮することができる。また、基材の傷付きを防止することができる。また、上記接着性粒子を 120°C で1時間加熱した後の 25°C での 10% K値が、上記下限以上及び上記上限以下であると、調光積層体に用いられた際に、基材の剥離をより一層抑制することができる。

[0039] 上記接着性粒子を 120°C で1時間加熱した後の 25°C での 10% K値（加熱後の 25°C での 10% K値）は、以下のようにして測定できる。接着性粒子を、送風定温恒温器（例えば、ヤマト科学社製「DKN302」）内で、 120°C で1時間加熱する。微小圧縮試験機を用いて、円柱（直径 $50\mu\text{m}$ 、ダイヤモンド製）の平滑圧子端面で、 25°C 、最大試験荷重 20mN を 60 秒かけて負荷する条件下で加熱後の接着性粒子を圧縮する。このときの荷重値（N）及び圧縮変位（mm）を測定する。得られた測定値から、加熱後の 25°C での 10% K値を下記式により求めることができる。上記微小圧縮試験機として、例えば、フィッシャー社製「フィッシャースコープH-100」等が用いられる。

[0040] 加熱後の 25°C での 10% K値（ N/mm^2 ） $= (3/2^{1/2}) \cdot F \cdot S^{-3/2} \cdot R^{-1/2}$

F：加熱後の接着性粒子が 10% 圧縮変形したときの荷重値（N）

S：加熱後の接着性粒子が 10% 圧縮変形したときの圧縮変位（mm）

R：加熱後の接着性粒子の半径（mm）

[0041] 上記接着性粒子を 120°C で1時間加熱した後の 25°C での 10% K値を好適な範囲に制御する方法としては、上記基材粒子の 25°C での 10% K値を調整する方法、上記被覆部に好ましい材料を用いる方法、及び上記被覆部に用いる熱硬化性樹脂と後述する硬化剤との含有量を調整する方法等が挙げ

られる。特に、上記基材粒子の25℃での10%K値が100N/mm²未満である場合には、上記被覆部に好ましい材料を用いる方法により上記10%K値を制御することが好ましい。

[0042] 上記接着性粒子の25℃での圧縮回復率は、好ましくは5%以上、より好ましくは10%以上であり、好ましくは50%以下、より好ましくは40%以下である。上記接着性粒子の25℃での圧縮回復率が、上記下限以上及び上記上限以下であると、本発明の効果をより一層効果的に発揮することができる。また、上記接着性粒子の25℃での圧縮回復率が、上記下限以上及び上記上限以下であると、調光積層体に用いられた際に、基材の剥離をより一層抑制することができる。

[0043] 上記接着性粒子の25℃での上記圧縮回復率は、以下のようにして測定できる。

[0044] 試料台上に接着性粒子を散布する。散布された1個の接着性粒子について、微小圧縮試験機を用いて、円柱（直径50μm、ダイヤモンド製）の平滑圧子端面で、25℃で、接着性粒子の中心方向に、原点荷重値1.0mN、反転荷重値10mNの条件で負荷をかけ、その負荷を除去した後の回復挙動を解析することにより、圧縮回復率を導出する。この間の荷重-圧縮変位を測定し、下記式から圧縮回復率を求めることができる。なお、負荷速度は0.33mN/秒とする。上記微小圧縮試験機として、例えば、フィッシャー社製「フィッシャースコープH-100」等が用いられる。

[0045] 圧縮回復率 (%) = $[L2 / L1] \times 100$

L1 : 負荷を与えるときの原点用荷重値から反転荷重値に至るまでの圧縮変位

L2 : 負荷を解放するときの反転荷重値から原点用荷重値に至るまでの除荷変位

[0046] 接着性をより一層高める観点からは、上記接着性粒子の粒子径は、好ましくは1μm以上、より好ましくは3μm以上、さらに好ましくは10μm以上であり、好ましくは150μm以下、より好ましくは100μm以下、さ

らに好ましくは50 μ m以下である。

[0047] 上記接着性粒子の粒子径は、上記接着性粒子が真球状である場合には直径を意味し、上記接着性粒子が真球状以外の形状である場合には、その体積相当の真球と仮定した際の直径を意味する。上記接着性粒子の粒子径は、平均粒子径であることが好ましく、数平均粒子径であることがより好ましい。上記接着性粒子の平均粒子径は、任意の粒度分布測定装置により測定することができる。例えば、レーザー光散乱、電気抵抗値変化、撮像後の画像解析等の原理を用いた粒度分布測定装置等を用いて測定することができる。さらに具体的には、接着性粒子の粒子径の測定方法として、粒度分布測定装置（ベックマンコールター社製「Multisizer4」）を用いて、約100000個の接着性粒子の粒子径を測定し、平均値を算出する方法が挙げられる。

[0048] ギャップをより一層高精度に制御する観点からは、上記接着性粒子の粒子径のCV値は、好ましくは10%以下、より好ましくは7%以下である。従来のスペーサ粒子の役割から鑑みると、上記接着性粒子の粒子径のCV値は小さいほど好ましいとされる。一方、本発明の積層体においては、上記接着性粒子の粒子径のCV値が上記上限以下であることが好ましく、それによって、特に積層体が曲面部を有する場合や積層体を折り曲げる等の操作を行った場合に、接着性粒子が積層体に追従することができ、接着性粒子の移動を抑制することができる。上記接着性粒子の粒子径のCV値の下限は、特に限定されない。上記接着性粒子の粒子径のCV値は、0%以上であってもよく、7%以上であってもよい。

[0049] 上記接着性粒子の粒子径のCV値（変動係数）は、以下のようにして測定できる。

[0050] $CV \text{ 値 } (\%) = (\rho / D_n) \times 100$

ρ : 上記接着性粒子の粒子径の標準偏差

D_n : 上記接着性粒子の粒子径の平均値

[0051] 基材間のギャップをより一層高精度に制御する観点からは、上記接着性粒

子のアスペクト比は、好ましくは1.5以下、より好ましくは1.3以下である。上記アスペクト比は、長径／短径を示す。上記アスペクト比は、任意の接着性粒子10個を、電子顕微鏡又は光学顕微鏡により観察し、最大径と最小径をそれぞれ長径、短径とし、各球状の上記接着性粒子の長径／短径の平均値を算出することにより求めることが好ましい。上記接着性粒子のアスペクト比の下限は、特に限定されない。上記接着性粒子のアスペクト比は、1.0以上であってもよく、1.1以上であってもよい。

[0052] 接着性をより一層高める観点からは、以下の接着性試験Aにおいて、上記接着性粒子の引張降伏応力は、好ましくは0.07MPa以上、より好ましくは0.10MPa以上、さらに好ましくは0.12MPa以上であることが好ましい。上記接着性粒子の引張降伏応力の上限は、特に限定されない。以下の接着性試験Aにおいて、上記接着性粒子の引張降伏応力は、0.12MPa以下であってもよく、0.07MPa以下であってもよい。

[0053] (接着性試験A)

第1の基材及び第2の基材として、ガラス基板を用意する。第1の基材の表面上に、接着性粒子を14000個/mm²となるように散布する。次いで、接着性粒子上に、第2の基材を載せる。JIS K6850の方法に準拠して5kgf/cm²の圧力で、120℃で1時間加熱して、接着性粒子を第1、2の基材上に接着させ、試験体（試験サンプル）を作製する。テンシロン万能材料試験機（例えば、エー・アンド・デイ社製「RT1-1310」）を用いて、引張速度20mm/分、ロードセル定格1000Nで得られた試験体の23℃での接着強度を測定する。この測定値を、接着性粒子の引張降伏応力とする。

[0054] 接着性をより一層高める観点からは、以下の接着性試験Bにおいて、上記接着性粒子の90°ピール強度は、好ましくは0.1N/30mm以上、より好ましくは0.5N/30mm以上、さらに好ましくは1.0N/30mm以上であることが好ましい。上記接着性粒子の90°ピール強度の上限は、特に限定されない。上記接着性粒子の90°ピール強度は、10.0N/

30mm以下であってもよく、0.1N/30mm以下であってもよい。

[0055] (接着性試験B)

第1の基材及び第2の基材として、公知の方法に従い、PETフィルム上にポリイミド溶液をキャストし、乾燥、ラビング工程を行い作製した配向膜付きフィルムを用意する。第1の基材の表面上に、接着性粒子を14000個/mm²となるように散布する。次いで、JIS K6850の方法に準拠して5kgf/cm²の圧力で、120℃で1時間加熱して、接着性粒子を第1, 2の基材上に接着させ、試験体(試験サンプル)を作製する。JIS K6854:1999に準拠して、引張試験機(例えば、島津製作所社製「オートグラフAGS」)を用いて、引張速度50mm/秒として測定を行う。この測定値を、接着性粒子の90°ピール強度とする。

[0056] 本発明に係る接着性粒子は、スペーサ粒子の材料として好適に用いられる。本発明に係る接着性粒子は、特に、調光積層体におけるスペーサ粒子の材料として好適に用いられる。上記接着性粒子は、調光ガラス用スペーサ粒子の材料として用いられてもよく、調光フィルム用スペーサ粒子の材料として用いられてもよい。上記接着性粒子は、調光ガラス用スペーサ粒子の材料又は調光フィルム用スペーサ粒子の材料として用いられることが好ましい。

[0057] 次に、図面を参照しつつ、本発明の具体的な実施形態を説明する。

[0058] 図1は、本発明の第1の実施形態に係る接着性粒子を模式的に示す断面図である。

[0059] 接着性粒子1は、基材粒子11と、基材粒子11の表面に配置された被覆部12とを備える。被覆部12は、基材粒子11の表面を被覆している。接着性粒子1は、基材粒子11の表面が被覆部12により被覆された被覆粒子である。上記被覆部は、上記基材粒子の表面を完全に被覆していてもよく、上記基材粒子の表面を完全に被覆していなくてもよい。上記基材粒子は、上記被覆部によって被覆されていない部分を有していてもよい。

[0060] 接着性粒子1では、被覆部12が、熱硬化性樹脂を含む。接着性粒子1では、25℃での10%K値が、100N/mm²以上3000N/mm²以下

である。

[0061] <基材粒子>

上記基材粒子の材料は特に限定されない。上記基材粒子は、有機材料を含んでいてもよく、無機材料を含んでいてもよい。

[0062] 上記有機材料としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリイソブチレン、ポリブタジエン等のポリオレフィン樹脂；ポリメチルメタクリレート及びポリメチルアクリレート等のアクリル樹脂；ポリカーボネート、ポリアミド、フェノールホルムアルデヒド樹脂、メラミンホルムアルデヒド樹脂、ベンゾグアナミンホルムアルデヒド樹脂、尿素ホルムアルデヒド樹脂、フェノール樹脂、メラミン樹脂、ベンゾグアナミン樹脂、尿素樹脂、エポキシ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、飽和ポリエステル樹脂、ポリエチレンテレフタレート、ポリスルホン、ポリフェニレンオキサイド、ポリアセタール、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルスルホン、及びジビニルベンゼン重合体等が挙げられる。上記ジビニルベンゼン重合体は、ジビニルベンゼン共重合体であってもよい。上記ジビニルベンゼン共重合体等としては、ジビニルベンゼン-スチレン共重合体及びジビニルベンゼン-（メタ）アクリル酸エステル共重合体等が挙げられる。上記接着性粒子及び上記基材粒子の硬度を好適な範囲に容易に制御できるので、上記基材粒子は、エチレン性不飽和基を有する重合性単量体を1種又は2種以上重合させた重合体を含むことが好ましい。

[0063] 上記基材粒子を、エチレン性不飽和基を有する重合性単量体を重合させて得る場合、上記エチレン性不飽和基を有する重合性単量体としては、非架橋性の単量体と架橋性の単量体とが挙げられる。

[0064] 上記非架橋性の単量体としては、ビニル化合物として、スチレン、 α -メチルスチレン、クロルスチレン等のスチレン単量体；メチルビニルエーテル、エチルビニルエーテル、プロピルビニルエーテル等のビニルエーテル化合物；酢酸ビニル、酪酸ビニル、ラウリン酸ビニル、ステアリン酸ビニル等の

酸ビニルエステル化合物；塩化ビニル、フッ化ビニル等のハロゲン含有単量体；（メタ）アクリル化合物として、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、プロピル（メタ）アクリレート、ブチル（メタ）アクリレート、2-エチルヘキシル（メタ）アクリレート、ラウリル（メタ）アクリレート、セチル（メタ）アクリレート、ステアリル（メタ）アクリレート、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、イソボルニル（メタ）アクリレート等のアルキル（メタ）アクリレート化合物；2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、グリセロール（メタ）アクリレート、ポリオキシエチレン（メタ）アクリレート、グリシジル（メタ）アクリレート等の酸素原子含有（メタ）アクリレート化合物；（メタ）アクリロニトリル等のニトリル含有単量体；トリフルオロメチル（メタ）アクリレート、ペンタフルオロエチル（メタ）アクリレート等のハロゲン含有（メタ）アクリレート化合物； α -オレフィン化合物として、ジイソブチレン、イソブチレン、リニアレン、エチレン、プロピレン等のオレフィン化合物；共役ジエン化合物として、イソプレン、ブタジエン等が挙げられる。

[0065] 上記架橋性の単量体としては、ビニル化合物として、ジビニルベンゼン、1,4-ジビニロキシブタン、ジビニルスルホン等のビニル単量体；（メタ）アクリル化合物として、テトラメチロールメタンテトラ（メタ）アクリレート、ポリテトラメチレングリコールジアクリレート、テトラメチロールメタントリ（メタ）アクリレート、テトラメチロールメタンジ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、グリセロールトリ（メタ）アクリレート、グリセロールジ（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、ポリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、ポリテトラメチレングリコールジ（メタ）アクリレート、1,4-ブタンジオールジ（メタ）アクリレート等の多官能（メタ）アクリレート化合物；アリル化合物として、トリアリル（イソ）シアヌレート、トリアリルトリメリテート、ジアリル

フタレート、ジアリルアクリルアミド、ジアリルエーテル；シラン化合物として、テトラメトキシシラン、テトラエトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、エチルトリメトキシシラン、エチルトリエトキシシラン、イソプロピルトリメトキシシラン、イソブチルトリメトキシシラン、シクロヘキシルトリメトキシシラン、*n*-ヘキシルトリメトキシシラン、*n*-オクチルトリエトキシシラン、*n*-デシルトリメトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシラン、トリメトキシシリルスチレン、 γ -（メタ）アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、1, 3-ジビニルテトラメチルジシロキサン、メチルフェニルジメトキシシラン、ジフェニルジメトキシシラン等のシランアルコキシド化合物；ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ジメトキシメチルビニルシラン、ジメトキシエチルビニルシラン、ジエトキシメチルビニルシラン、ジエトキシエチルビニルシラン、エチルメチルジビニルシラン、メチルビニルジメトキシシラン、エチルビニルジメトキシシラン、メチルビニルジエトキシシラン、エチルビニルジエトキシシラン、*p*-スチリルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、3-アクリロキシプロピルトリメトキシシラン等の重合性二重結合含有シランアルコキシド；デカメチルシクロペンタシロキサン等の環状シロキサン；片末端変性シリコーンオイル、両末端シリコーンオイル、側鎖型シリコーンオイル等の変性（反応性）シリコーンオイル；（メタ）アクリル酸、マレイン酸、無水マレイン酸等のカルボキシル基含有単量体等が挙げられる。

[0066] 上記基材粒子は、上記エチレン性不飽和基を有する重合性単量体を重合させることによって得ることができる。上記の重合方法としては特に限定されず、ラジカル重合、イオン重合、重縮合（縮合重合、縮重合）、付加縮合、リビング重合、及びリビングラジカル重合等の公知の方法が挙げられる。ま

た、他の重合方法としては、ラジカル重合開始剤の存在下での懸濁重合が挙げられる。

[0067] 上記無機材料としては、ケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、鉛ガラス、ソーダ石灰ガラス、アルミナ及びアルミナシリケートガラス等が挙げられる。

[0068] 上記基材粒子は、上記有機材料のみにより形成されていてもよく、上記無機材料のみにより形成されていてもよく、上記有機材料と上記無機材料との双方により形成されていてもよい。基材粒子及び接着性粒子の圧縮特性を好適な範囲に容易に制御する観点からは、上記基材粒子は、有機材料のみにより形成されているか、又は、有機材料と無機材料との双方により形成されていることが好ましい。

[0069] 上記基材粒子は、必要に応じて、他の成分を含んでいてもよい。上記他の成分としては、着色剤、重合禁止剤、重合開始剤、顔料分散剤、高分子分散剤、及び界面活性剤等が挙げられる。上記他の成分は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0070] 上記基材粒子の25℃での10%K値は、好ましくは100N/mm²以上、より好ましくは300N/mm²以上、さらに好ましくは1000N/mm²以上であり、好ましくは3000N/mm²以下、より好ましくは2500N/mm²以下、さらに好ましくは2000N/mm²以下である。上記基材粒子の25℃での10%K値が、上記下限以上及び上記上限以下であると、本発明の効果をより一層効果的に発揮することができる。また、基材の傷付きを防止することができる。また、上記基材粒子の25℃での10%K値が、上記下限以上及び上記上限以下であると、得られる接着性粒子が調光積層体に用いられた際に、基材の剥離をより一層抑制することができる。

[0071] 上記基材粒子の25℃での10%K値は、以下のようにして測定できる。微小圧縮試験機を用いて、円柱（直径50μm、ダイヤモンド製）の平滑圧子端面で、25℃、最大試験荷重20mNを60秒かけて負荷する条件下で基材粒子を圧縮する。このときの荷重値（N）及び圧縮変位（mm）を測定する。得られた測定値から、上記25℃での10%K値を下記式により求め

ることができる。上記微小圧縮試験機として、例えば、フィッシャー社製「フィッシャースコープH-100」等が用いられる。

$$[0072] \quad 25^\circ\text{Cでの}10\%K\text{値} (N/mm^2) = (3/2^{1/2}) \cdot F \cdot S^{-3/2} \cdot R^{-1/2}$$

F：基材粒子が10%圧縮変形したときの荷重値（N）

S：基材粒子が10%圧縮変形したときの圧縮変位（mm）

R：基材粒子の半径（mm）

[0073] 上記基材粒子の25℃での圧縮回復率は、好ましくは5%以上、より好ましくは10%以上であり、好ましくは50%以下、より好ましくは40%以下である。上記基材粒子の25℃での圧縮回復率が、上記下限以上及び上記上限以下であると、本発明の効果をより一層効果的に発揮することができる。また、上記基材粒子の25℃での圧縮回復率が、上記下限以上及び上記上限以下であると、調光積層体に用いられた際に、基材の剥離をより一層抑制することができる。

[0074] 上記基材粒子の25℃での上記圧縮回復率は、以下のようにして測定できる。

[0075] 試料台上に基材粒子を散布する。散布された1個の基材粒子について、微小圧縮試験機を用いて、円柱（直径50μm、ダイヤモンド製）の平滑圧子端面で、25℃で、基材粒子の中心方向に、原点荷重値1.0mN、反転荷重値10mNの条件で負荷をかけ、その負荷を除去した後の回復挙動を解析することにより圧縮回復率を導出する。この間の荷重-圧縮変位を測定し、下記式から圧縮回復率を求めることができる。なお、負荷速度は0.33mN/秒とする。上記微小圧縮試験機として、例えば、フィッシャー社製「フィッシャースコープH-100」等が用いられる。

$$[0076] \quad \text{圧縮回復率} (\%) = [L2/L1] \times 100$$

L1：負荷を与えるときの原点用荷重値から反転荷重値に至るまでの圧縮変位

L2：負荷を解放するときの反転荷重値から原点用荷重値に至るまでの除

荷変位

- [0077] 接着性をより一層高める観点からは、上記基材粒子の粒子径は、好ましくは $1.0\mu\text{m}$ 以上、より好ましくは $5.0\mu\text{m}$ 以上、更に好ましくは $10\mu\text{m}$ 以上であり、好ましくは $50\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $40\mu\text{m}$ 以下、更に好ましくは $30\mu\text{m}$ 以下である。
- [0078] 上記基材粒子の粒子径は、平均粒子径であることが好ましく、数平均粒子径であることがより好ましい。上記基材粒子の粒子径は、粒度分布測定装置を用いて、約 100000 個の基材粒子の粒子径を測定し、平均粒子径を算出することが好ましい。上記粒度分布測定装置としては、ベックマンコールター社製「Multisizer 4」等が挙げられる。
- [0079] 接着性をより一層高める観点からは、上記基材粒子の粒子径のCV値（変動係数）は、好ましくは 10% 以下、より好ましくは 7% 以下、更に好ましくは 5% 以下である。上記基材粒子の粒子径のCV値の下限は特に限定されない。上記基材粒子の粒子径のCV値は、 2% 以上であってもよい。
- [0080] 上記基材粒子の粒子径のCV値は、下記式で表される。
- [0081]
$$\text{CV値}(\%) = (\rho / D_n) \times 100$$

 ρ : 基材粒子の粒子径の標準偏差
 D_n : 基材粒子の粒子径の平均値
- [0082] <被覆部>
上記被覆部は、上記基材粒子の表面上に配置されている。
- [0083] 接着性をより一層高める観点からは、上記基材粒子の表面積全体 100% 中、上記基材粒子の表面の上記被覆部により覆われている表面積（被覆率）は、好ましくは 80% 以上、より好ましくは 90% 以上である。上記被覆率の上限は特に限定されない。上記被覆率は、 100% 以下であってもよい。
- [0084] 上記被覆率は、電界放出形走査電子顕微鏡（FE-SEM）を用いて、画像倍率 1 万倍に設定し、 20 個の接着性粒子を無作為に選択し、それぞれの接着性粒子の表面を観察する。得られた接着性粒子における基材粒子が被覆されている部分の表面積の基材粒子全体の投影面積に対する百分率を計測し

、それを算術平均して被覆率とする。

[0085] 接着性をより一層高める観点からは、上記被覆部の厚みは、好ましくは0.5 μm 以上、より好ましくは0.7 μm 以上、さらに好ましくは1.0 μm 以上であり、好ましくは8.0 μm 以下、より好ましくは5.0 μm 以下である。なお、上記被覆部の厚みは、上記基材粒子の表面上に配置された被覆部がある部分のみの被覆部の厚みを意味する。上記基材粒子の表面上に配置された被覆部がない部分については、被覆部の厚みを算出する際に考慮されない。

[0086] また、上記被覆部は、単層であってもよく、2層以上の層（多層）であってもよい。上記被覆部が2層以上の層（多層）である場合には、上記被覆部の厚みは、上記被覆部全体の厚みを意味する。また、上記被覆部が2層以上の層（多層）である場合には、上記被覆部の各層を形成している材料は、異なってもよい。

[0087] 上記被覆部の厚みは、上記基材粒子の粒子径と上記接着性粒子の粒子径との差により算出することができる。また、上記被覆部の厚みは、例えば、透過型電子顕微鏡（TEM）を用いて、接着性粒子の断面を観察することにより求めることもできる。

[0088] 接着性をより一層高める観点からは、上記被覆部の厚みの上記基材粒子の粒子径に対する比（被覆部の厚み／基材粒子の粒子径）は、好ましくは0.001以上、より好ましくは0.01以上であり、好ましくは1.0以下、より好ましくは0.5以下、さらに好ましくは0.4以下である。

[0089] 上記被覆部は、熱硬化性樹脂を含む。

[0090] 上記熱硬化性樹脂としては、エポキシ樹脂、架橋性アクリル樹脂、フェノール樹脂、メラミン樹脂、ウレタン樹脂、及び架橋性ポリアミド樹脂等が挙げられる。接着性をより一層高める観点からは、上記被覆部中の上記熱硬化性樹脂は、エポキシ樹脂、架橋性アクリル樹脂、又は架橋性ポリアミド樹脂を含むことが好ましく、エポキシ樹脂を含むことがより好ましい。

[0091] 上記エポキシ樹脂は、多官能エポキシ樹脂であることが好ましい。上記多

官能エポキシ樹脂は、2官能エポキシ樹脂であってもよく、2官能以上のエポキシ樹脂であってもよく、3官能エポキシ樹脂であってもよく、3官能以上のエポキシ樹脂であってもよく、4官能エポキシ樹脂であってもよく、4官能以上のエポキシ樹脂であってもよい。上記2官能エポキシ樹脂としては、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、及びビスフェノールF型エポキシ樹脂等が挙げられる。上記3官能エポキシ樹脂としては、トリアジン型エポキシ樹脂、及びグリシジルアミン型エポキシ樹脂等が挙げられる。上記4官能エポキシ樹脂としては、テトラキスフェノールエタン型エポキシ樹脂、及びグリシジルアミン型エポキシ樹脂等が挙げられる。上記エポキシ樹脂は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0092] 上記熱硬化性樹脂は、硬化剤と併用されることが好ましい。上記硬化剤は、上記熱硬化性樹脂を硬化させる。上記硬化剤は、特に限定されない。上記硬化剤としては、イミダゾール硬化剤、アミン硬化剤、フェノール硬化剤、チオール硬化剤、及び酸無水物硬化剤等が挙げられる。上記硬化剤は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。上記接着性粒子の圧縮特性を好適な範囲に容易に制御する観点からは、上記硬化剤は、アミン硬化剤であることが好ましい。

[0093] 上記イミダゾール硬化剤は特に限定されない。上記イミダゾール硬化剤としては、2-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾール、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾリウムトリメリテート、2,4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1')] -エチル-s-トリアジン及び2,4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1')] -エチル-s-トリアジンイソシアヌル酸付加物、2-フェニル-4,5-ジヒドロキシメチルイミダゾール、2-フェニル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール、2-フェニル-4-ベンジル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール、2-パラトルイル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール、2-メタトルイル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール、2-メタト

ルイルー4, 5-ジヒドロキシメチルイミダゾール、及び2-パラトルイルー4, 5-ジヒドロキシメチルイミダゾール等における1H-イミダゾールの5位の水素原子がヒドロキシメチル基で置換され、かつ、2位の水素原子がフェニル基又はトルイル基で置換されたイミダゾール化合物等が挙げられる。

[0094] 上記チオール硬化剤は特に限定されない。上記チオール硬化剤は、ポリチオール硬化剤であってもよい。上記チオール硬化剤としては、トリメチロールプロパントリス-3-メルカプトプロピオネート、ペンタエリスリトールテトラキス-3-メルカプトプロピオネート、及びジペンタエリスリトールヘキサ-3-メルカプトプロピオネート等が挙げられる。

[0095] 上記アミン硬化剤は特に限定されない。上記アミン硬化剤としては、エチレンジアミン、ヘキサメチレンジアミン、オクタメチレンジアミン、デカメチレンジアミン、ノルボルナンジアミン、3, 9-ビス(3-アミノプロピル)-2, 4, 8, 10-テトラスピロ[5. 5]ウンデカン、ビス(4-アミノシクロヘキシル)メタン、フェニレンジアミン、2, 2-ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]プロパン、メタフェニレンジアミン、ジアミノジフェニルメタン、ジアミノフェニルエーテル、メタキシレンジアミン、ジアミノナフタレン、ビスアミノメチルシクロヘキサン、及びジアミノジフェニルスルホン等が挙げられる。上記アミン硬化剤は、エチレンジアミン、ヘキサメチレンジアミン、オクタメチレンジアミン、メタフェニレンジアミン、ノルボルナンジアミン、ジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニルスルホン、フェニレンジアミン、又は2, 2-ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]プロパンであることが好ましい。上記アミン硬化剤が上記の好ましい化合物である場合には、上記接着性粒子の圧縮特性を好適な範囲に容易に制御することができる。上記接着性粒子の圧縮特性を好適な範囲に容易に制御する観点からは、上記アミン硬化剤は、エチレンジアミン、ノルボルナンジアミン、フェニレンジアミン、又は2, 2-ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]プロパンであることがより好ましく

、ノルボルナンジアミンであることがさらに好ましい。

[0096] 上記酸無水物硬化剤は特に限定されない。上記酸無水物硬化剤は、エポキシ樹脂等の熱硬化性樹脂の硬化剤として一般に用いられる酸無水物を広く用いることができる。上記酸無水物硬化剤としては、無水フタル酸、テトラヒドロ無水フタル酸、トリアルキルトetraヒドロ無水フタル酸、ヘキサヒドロ無水フタル酸、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸、メチルトetraヒドロ無水フタル酸、メチルブテニルトetraヒドロ無水フタル酸、フタル酸誘導体の無水物、無水マレイン酸、無水ナジック酸、無水メチルナジック酸、無水グルタル酸、無水コハク酸、グリセリンビス無水トリメリット酸モノアセテート、及びエチレングリコールビス無水トリメリット酸等の2官能の酸無水物硬化剤、無水トリメリット酸等の3官能の酸無水物硬化剤、並びに、無水ピロメリット酸、無水ベンゾフェノンテトラカルボン酸、メチルシクロヘキセンテトラカルボン酸無水物、及びポリアゼライン酸無水物等の4官能以上の酸無水物硬化剤等が挙げられる。

[0097] 上記熱硬化性樹脂と上記硬化剤とを重合する場合、重合方法は特に限定されず、ラジカル重合、イオン重合、重縮合（縮合重合、縮重合）、付加縮合、リビング重合、リビングラジカル重合等の公知の方法により重合を行うことができる。

[0098] 上記接着性粒子は、溶液中において多官能エポキシ樹脂と硬化剤とを含む材料を用いて分散重合等を行うことで容易に得ることができる。また、多官能エポキシ樹脂と硬化剤とを溶解した溶液を油層として懸濁重合する方法、並びに非架橋の種粒子を用いて多官能エポキシ樹脂と硬化剤とを溶解した溶液を膨潤させて重合する方法であるシード重合法等によって得ることができる。

[0099] 上記被覆部100重量%中、上記熱硬化性樹脂の含有量は、好ましくは30重量%以上、より好ましくは50重量%以上、さらに好ましくは60重量%以上、特に好ましくは80重量%以上であり、好ましくは100重量%以下、より好ましくは95重量%以下、さらに好ましくは90重量%以下であ

る。上記熱硬化性樹脂の含有量が、上記下限以上及び上記上限以下であると、接着性をより一層高めることができる。

[0100] 上記接着性粒子100重量%中、上記熱硬化性樹脂の含有量は、好ましくは10重量%以上、より好ましくは20重量%以上、さらに好ましくは30重量%以上、特に好ましくは40重量%以上であり、好ましくは75重量%以下、より好ましくは70重量%以下、さらに好ましくは60重量%以下である。上記熱硬化性樹脂の含有量が、上記下限以上及び上記上限以下であると、接着性をより一層高めることができる。

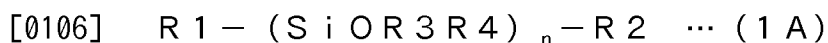
[0101] 上記被覆部は、下記式(1)で表される構造を有する化合物を含むことが好ましい。



[0103] 上記式(1)中、R1及びR2はそれぞれ、アミノ基を有する有機基、エポキシ基を有する有機基、アミド基を有する有機基、イソシアネート基を有する有機基、又はヒドロキシ基を有する有機基を表す。R3は、炭素数が1～2のアルキル基、炭素数が1～2のアルコキシ基、又はビニル基を表す。pは、1又は1.5である。pが1のとき、qは、1であり、かつR4は、水素原子、炭素数が1～2のアルキル基、炭素数が1～2のアルコキシ基、又はビニル基を表す。pが1.5のとき、qは0である(R4は存在しない)。nは、1～100の整数を表す。

[0104] 上記式(1)で表される構造を有する化合物は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0105] 上記式(1)は、pが1のとき、下記式(1A)で表される。



[0107] 上記式(1A)中、R1及びR2はそれぞれ、アミノ基を有する有機基、エポキシ基を有する有機基、アミド基を有する有機基、イソシアネート基を有する有機基、又はヒドロキシ基を有する有機基を表す。R3は、炭素数が1～2のアルキル基、炭素数が1～2のアルコキシ基、又はビニル基を表す。R4は、水素原子、炭素数が1～2のアルキル基、炭素数が1～2のアル

コキシ基、又はビニル基を表す。nは、1～100の整数を表す。

[0108] 上記式(1)は、pが1、5のとき、下記式(1B)で表される。

[0109] $R1 - (SiO_{3/2}R3)_n - R2 \dots (1B)$

[0110] 上記式(1B)中、R1及びR2はそれぞれ、アミノ基を有する有機基、エポキシ基を有する有機基、アミド基を有する有機基、イソシアネート基を有する有機基、又はヒドロキシ基を有する有機基を表す。R3は、炭素数が1～2のアルキル基、炭素数が1～2のアルコキシ基、又はビニル基を表す。nは、1～100の整数を表す。

[0111] 上記式(1B)で表される構造を有する化合物は、一般に、ポリシルセスキオキサンと呼ばれる。上記式(1B)で表される構造を上記式(1)に当てはめると、上記式(1)中のqは0であり、R4は存在しない。

[0112] 上記式(1)、(1A)及び(1B)中、R1及びR2はそれぞれ、アミノ基を有する有機基、エポキシ基を有する有機基、アミド基を有する有機基、イソシアネート基を有する有機基、又はヒドロキシ基を有する有機基を表す。上記式(1)、(1A)及び(1B)中、R1及びR2は、同一であってもよく、異なってもよい。接着性を良好にする観点からは、上記式(1)、(1A)及び(1B)中、R1及びR2はそれぞれ、アミノ基を有する有機基、又はエポキシ基を有する有機基であることが好ましい。

[0113] 上記式(1)、(1A)及び(1B)中、R3は、炭素数が1～2のアルキル基、炭素数が1～2のアルコキシ基、又はビニル基を表す。接着性をより一層高める観点からは、上記式(1)、(1A)及び(1B)中、R3は、メチル基、エチル基又はビニル基であることが好ましく、メチル基であることがより好ましい。

[0114] 上記式(1)及び(1A)中、R4は、水素原子、炭素数が1～2のアルキル基、炭素数が1～2のアルコキシ基、又はビニル基を表す。接着性をより一層高める観点からは、上記式(1)及び(1A)中、R4は、メチル基、エチル基又はビニル基であることが好ましく、メチル基であることがより好ましい。

- [0115] 上記式(1)、(1A)及び(1B)中、 n は1~100の整数を表す。接着性をより一層高める観点からは、上記式(1)、(1A)及び(1B)中、 n は好ましくは2以上の整数であり、好ましくは50以下の整数、より好ましくは10以下の整数である。
- [0116] 上記式(1)及び(1A)中、 R_3 及び R_4 は、同一であってもよく、異なってもよい。上記式(1)、(1A)及び(1B)中、 n が2以上のとき、複数の R_3 は同一であってもよく、異なってもよい。上記式(1)及び(1A)中、 n が2以上のとき、複数の R_4 は同一であってもよく、異なってもよい。
- [0117] 上記式(1)で表される構造を有する化合物は、上記式(1A)で表される構造を有する化合物を含んでもよく、上記式(1B)で表される構造を有する化合物を含んでもよく、上記式(1A)で表される構造を有する化合物及び上記式(1B)で表される構造を有する化合物を含んでもよい。上記式(1)で表される構造を有する化合物が、上記式(1A)で表される構造を有する化合物及び上記式(1B)で表される構造を有する化合物を含む場合がある。この場合に、上記式(1)で表される構造を有する化合物が、上記式(1A)で表される構造及び上記式(1B)で表される構造を有する化合物であってもよい。上記式(1)で表される構造は、上記式(1A)で表される構造であってもよく、上記式(1B)で表される構造であってもよい。
- [0118] 接着性をより一層高める観点からは、上記式(1)で表される構造を有する化合物は、上記式(1A)で表される構造を有する化合物を含むことが好ましい。接着性をより一層高める観点からは、上記式(1)で表される構造は、上記式(1A)で表される構造であることが好ましい。
- [0119] 上記被覆部100重量%中、上記式(1)で表される構造を有する化合物の含有量は、好ましくは1重量%以上、より好ましくは5重量%以上、さらに好ましくは10重量%以上であり、好ましくは50重量%以下、より好ましくは40重量%以下、さらに好ましくは30重量%以下である。上記式(

1) で表される構造を有する化合物の含有量が、上記下限以上及び上記上限以下であると、接着性をより一層高めることができる。なお、上記式(1)で表される構造を有する化合物が、上記式(1A)で表される構造を有する化合物及び上記式(1B)で表される構造を有する化合物の双方を含む場合がある。この場合に、上記含有量は、上記式(1A)で表される構造を有する化合物の含有量及び上記式(1B)で表される構造を有する化合物の含有量の合計を表す。

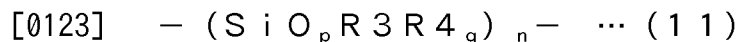
[0120] 上記被覆部は、必要に応じて、他の成分を含んでもよい。上記他の成分としては、着色剤、重合開始剤、重合禁止剤、密着性付与剤、着色防止剤、界面活性剤、及び高分子分散剤等が挙げられる。上記他の成分は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0121] (積層体)

本発明に係る積層体(以下、積層体(A)とすることがある)は、第1の基材と、第2の基材と、上記第1の基材と上記第2の基材との間に配置されているスペーサ粒子とを備える。上記積層体(A)では、上記スペーサ粒子が、上記第1の基材と上記第2の基材とに接着している。上記積層体(A)では、上記スペーサ粒子の材料が、上記接着性粒子を含む。例えば、上記熱硬化性樹脂を熱硬化させたり、上記式(1)で表される構造を有する化合物を反応させたりすることで、上記積層体(A)において、上記スペーサ粒子を形成することができる。また、上記熱硬化性樹脂を熱硬化させたり、上記式(1)で表される構造を有する化合物を反応させたりすることで、上記スペーサ粒子を上記第1の基材と上記第2の基材とに接着させることができる。

[0122] また、本発明に係る別の積層体(以下、積層体(B)とすることがある)は、第1の基材と、第2の基材と、前記第1の基材と上記第2の基材との間に配置されているスペーサ粒子とを備える。上記積層体(B)では、上記スペーサ粒子が、上記第1の基材と上記第2の基材とに接着している。上記積層体(B)では、上記スペーサ粒子の材料が、上記接着性粒子を含み、上記

スペーサ粒子が、下記式(11)で表される構造単位を有する化合物を含む。例えば、上記熱硬化性樹脂を熱硬化させたり、上記式(1)で表される構造を有する化合物を反応させたりすることで、上記積層体(B)において、上記スペーサ粒子を形成することができる。また、上記熱硬化性樹脂を熱硬化させたり、上記式(1)で表される構造を有する化合物を反応させたりすることで、上記スペーサ粒子を上記第1の基材と上記第2の基材とに接着させることができる。



[0124] 上記式(11)中、R3は、炭素数が1~2のアルキル基、炭素数が1~2のアルコキシ基、又はビニル基を表す。pは、1又は1.5である。pが1のとき、qは、1であり、かつR4は、水素原子、炭素数が1~2のアルキル基、炭素数が1~2のアルコキシ基、又はビニル基を表す。pが1.5のとき、qは0である(R4は存在しない)。nは、1~100の整数を表す。

[0125] 本発明に係る積層体(A)及び積層体(B)では、上記の構成が備えられているので、接着性を十分に高めることができ、スペーサ粒子の基材からの剥離を抑制し、かつ、基材間のギャップを高精度に制御することができる。また、本発明に係る積層体(A)及び積層体(B)では、上記の構成が備えられているので、基材の傷付きを防止することができる。さらに、本発明に係る積層体(A)及び積層体(B)では、上記の構成が備えられているので、調光積層体に用いられた際に、基材の剥離を抑制することができる。

[0126] また、本発明に係る積層体(A)及び積層体(B)では、上記の構成が備えられているので、例えば、積層体が曲面部を有していても、曲面部で上記スペーサ粒子が押しつぶされることなく、基材間のギャップの均一性を確保することができる。また、積層体が曲面部を有していても、スペーサ粒子の基材からの剥離を抑制することができるので、基材間のギャップの均一性を確保することができる。結果として、ギャップの不均一性から生じる液晶表示装置の色むら等の不具合の発生を抑制することができる。

- [0127] 上記積層体 (B) において、上記式 (11) で表される構造単位を有する化合物は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。
- [0128] 上記式 (11) は、pが1のとき、下記式 (11A) で表される。
- [0129] $-(SiOR_3R_4)_n- \dots (11A)$
- [0130] 上記式 (11A) 中、R3は、炭素数が1~2のアルキル基、炭素数が1~2のアルコキシ基、又はビニル基を表す。R4は、水素原子、炭素数が1~2のアルキル基、炭素数が1~2のアルコキシ基、又はビニル基を表す。nは、1~100の整数を表す。
- [0131] 上記式 (11) は、pが1, 5のとき、下記式 (11B) で表される。
- [0132] $-(SiO_{3/2}R_3)_n- \dots (11B)$
- [0133] 上記式 (11B) 中、R3は、炭素数が1~2のアルキル基、炭素数が1~2のアルコキシ基、又はビニル基を表す。nは、1~100の整数を表す。
- [0134] 上記式 (11B) で表される構造単位を有する化合物は、一般に、ポリシルセスキオキサンと呼ばれる。上記式 (11B) で表される構造単位を上記式 (11) に当てはめると、上記式 (11) 中のqは0であり、R4は存在しない。
- [0135] 上記式 (11)、(11A) 及び (11B) 中、右端部及び左端部は、他の基との結合部位を表す。
- [0136] 上記式 (11)、(11A) 及び (11B) 中、R3は、炭素数が1~2のアルキル基、炭素数が1~2のアルコキシ基、又はビニル基を表す。接着性をより一層高める観点からは、上記式 (11)、(11A) 及び (11B) 中、R3は、メチル基、エチル基又はビニル基であることが好ましく、メチル基であることがより好ましい。
- [0137] 上記式 (11) 及び (11A) 中、R4は、水素原子、炭素数が1~2のアルキル基、炭素数が1~2のアルコキシ基、又はビニル基を表す。接着性をより一層高める観点からは、上記式 (11) 及び (11A) 中、R4は、メチル基、エチル基又はビニル基であることが好ましく、メチル基であるこ

とがより好ましい。

[0138] 上記式(11)、(11A)及び(11B)中、 n は1~100の整数を表す。接着性をより一層高める観点からは、上記式(11)、(11A)及び(11B)中、 n は好ましくは2以上の整数であり、好ましくは50以下の整数、より好ましくは10以下の整数である。

[0139] 上記式(11)及び(11A)中、 R_3 及び R_4 は、同一であってもよく、異なってもよい。上記式(11)、(11A)及び(11B)中、 n が2以上のとき、複数の R_3 は同一であってもよく、異なってもよい。上記式(11)及び(11A)中、 n が2以上のとき、複数の R_4 は同一であってもよく、異なってもよい。

[0140] 上記式(11)で表される構造単位を有する化合物は、上記式(11A)で表される構造単位を有する化合物を含んでもよく、上記式(11B)で表される構造単位を有する化合物を含んでもよく、上記式(11A)で表される構造単位を有する化合物及び上記式(11B)で表される構造単位を有する化合物を含んでもよい。上記式(11)で表される構造単位を有する化合物が、上記式(11A)で表される構造単位を有する化合物及び上記式(11B)で表される構造単位を有する化合物を含む場合がある。この場合に、上記式(11)で表される構造単位を有する化合物が、上記式(11A)で表される構造単位及び上記式(11B)で表される構造単位を有する化合物であってもよい。上記式(11)で表される構造単位は、上記式(11A)で表される構造単位であってもよく、上記式(11B)で表される構造単位であってもよい。

[0141] 接着性をより一層高める観点からは、上記式(11)で表される構造単位を有する化合物は、上記式(11A)で表される構造単位を有する化合物を含むことが好ましい。接着性をより一層高める観点からは、上記式(11)で表される構造単位は、上記式(11A)で表される構造単位であることが好ましい。

[0142] 接着性をより一層高める観点からは、上記スペーサ粒子100重量%中、

上記式（11）で表される構造単位を有する化合物の含有量は、好ましくは1重量%以上、より好ましくは5重量%以上、さらに好ましくは10重量%以上であり、好ましくは50重量%以下、より好ましくは40重量%以下、さらに好ましくは30重量%以下である。なお、上記式（11）で表される構造単位を有する化合物が、上記式（11A）で表される構造単位を有する化合物及び上記式（11B）で表される構造単位を有する化合物の双方を含む場合がある。この場合に、上記含有量は、上記式（11A）で表される構造単位を有する化合物の含有量及び上記式（11B）で表される構造単位を有する化合物の含有量の合計を表す。

[0143] 上記スペーサ粒子は、上記接着性粒子を加熱して得ることができる。上記スペーサ粒子は、例えば、上記接着性粒子を80℃～150℃で、0.5時間～3時間加熱することで得ることができる。より具体的な条件に関しては、例えば、上記接着性粒子を120℃で、1時間加熱することで得ることができる。

[0144] 図2は、本発明の第1の実施形態に係る接着性粒子を用いた積層体を模式的に示す断面図である。

[0145] 図2に示す積層体51は、第1の基材2と、第2の基材3と、第1の基材2と第2の基材3との間に配置されているスペーサ粒子1Xとを備える。積層体51では、スペーサ粒子1Xが、第1の基材2と第2の基材3とに接着している。積層体51では、スペーサ粒子1Xの材料が、上記接着性粒子を含む。積層体51では、スペーサ粒子1Xが、上記式（11）で表される構造単位を有する化合物を含む。上記熱硬化性樹脂を熱硬化させたり、上記式（1）で表される構造を有する化合物を反応させたりすることで、積層体51において、上記スペーサ粒子が形成されている。また、上記熱硬化性樹脂を熱硬化させたり、上記式（1）で表される構造を有する化合物を反応させたりすることで、上記スペーサ粒子を上記第1の基材と上記第2の基材とに接着されている。

[0146] 上記積層体は、曲面部を有していてもよく、曲面部を有していなくてもよ

い。上記積層体は、曲面部を有することが好ましい。上記積層体は、折り曲げられた形状又は湾曲された形状を有していてもよい。上記積層体は、折り曲げられた形状又は湾曲された形状を有することが好ましく、折り曲げられた形状又は湾曲された形状で用いられることが好ましい。上記積層体は、折り曲げ部又は湾曲部を有していてもよい。上記積層体、上記第1の基材及び上記第2の基材は、折り曲げられた形状又は湾曲された形状とすることが可能であるように、フレキシブル性を有することが好ましい。上記積層体が曲面部を有する場合において、上記積層体の曲面部の曲率は、 $300R$ 以上 $1800R$ 以下であることが好ましい。上記積層体が曲面部を有していたり、上記積層体の曲面部の曲率が上記の好ましい態様を満足していたりしても、本発明に係る接着性粒子を用いることにより、積層体の全体にわたって、接着性を十分に高めることができる。さらに、基材からの剥離を抑制し、かつ、基材間のギャップを高精度に制御することができる。

[0147] 上記積層体は、乗り物の窓ガラス、又は、パーテーション等に用いられることが好ましい。上記乗り物としては、車両、船舶、及び航空機等が挙げられる。上記積層体は、車両、船舶、及び航空機等の乗り物の窓ガラス、又は、パーテーション等に用いられることが好ましい。上記積層体は、窓ガラス、又は、パーテーションであることが好ましく、車両、船舶、及び航空機等の乗り物の窓ガラス、又は、パーテーションであることがより好ましい。上記積層体は、車両、船舶及び航空機等の乗り物の窓ガラスであってもよく、パーテーションであってもよい。上記乗り物は、運輸機関であることが好ましい。上記パーテーションは、乗り物の座席間に配置され、座席間を仕切る部材であってもよい。

[0148] (調光積層体)

上記積層体は、調光積層体であってもよい。上記積層体は、調光積層体に好適に用いられる。上記積層体が調光積層体である場合、上記積層体は、上記第1の基材と、上記第2の基材との間に配置された調光層をさらに備えることが好ましい。上記調光積層体では、上記調光層が、上記スペーサ粒子を

含む。

[0149] 上記調光積層体は、PDLC (Polymer Dispersed Liquid Crystal) 方式の調光積層体であってもよく、SPD (Suspended Particle Device) 方式の調光積層体であってもよい。上記調光積層体は、SPD方式又はPDLC方式の調光積層体であることが好ましい。上記調光積層体は、液晶表示装置ではなくてもよい。

[0150] 図3は、本発明の第1の実施形態に係る接着性粒子を用いたPDLC方式の調光積層体を模式的に示す断面図である。図4は、本発明の第1の実施形態に係る接着性粒子を用いたSPD方式の調光積層体を模式的に示す断面図である。なお、図3、4において、調光層及び接着性粒子の大きさ、厚み、形状及び添加量等は、図示の便宜上、実際の大きさ及び形状から適宜変更している。

[0151] 図3に示すPDLC方式の調光積層体52は、第1の基材2と、第2の基材3と、調光層4とを備える。調光層4は、第1の基材2と第2の基材3との間に挟まれている。調光層4は、第1の基材2と第2の基材3との間に配置されている。第1の基材2と、第2の基材3との間において、調光層4の周囲に、シール剤が配置されていてもよい。

[0152] 調光層4は、スペーサ粒子1Xと、液晶カプセル4Aと、バインダー4Bとを含む。液晶カプセル4Aは液晶材料である。液晶カプセル4Aは、バインダー4B中に分散している。液晶カプセル4Aは、バインダー4B中にカプセル状に保持されている。液晶材料は、カプセル状でバインダー中に分散していてもよく、液晶材料が連続相としてバインダー中に分散していてもよい。

[0153] スペーサ粒子1Xは、第1の基材2と第2の基材3とに接触している。スペーサ粒子1Xは、第1の基材2と第2の基材3とのギャップを制御している。スペーサ粒子1Xは、上記式(11)で表される構造単位を有する化合物を含む。スペーサ粒子1Xの材料は、上記接着性粒子を含む。

- [0154] 第1の基材2の表面上及び第2の基材3の表面上には電極が形成されている（図示せず）。上記電極の材料としては、インジウム錫オキサイド（ITO）等が挙げられる。上記電極は、透明電極であることが好ましい。
- [0155] PDL方式の調光積層体52に電界が印加されていない状態では、液晶カプセル4A内の液晶分子の配向が均一ではないために、バインダー4Bと液晶材料との屈折率の違いにより、入射光がバインダー中で散乱して、不透明な状態となる。
- [0156] PDL方式の調光積層体52に電界が印加されると、液晶カプセル4A内の液晶分子が電界に対して平行な方向に配列する。この状態でバインダー4Bと液晶材料との屈折率が同等になるため、光が透過することができ、透明な状態となる。
- [0157] 図4に示すSPD方式の調光積層体53は、第1の基材2と、第2の基材3と、調光層5とを備える。調光層5は、第1の基材2と第2の基材3との間に挟まれている。調光層5は、第1の基材2と第2の基材3との間に配置されている。
- [0158] 調光層5は、スペーサ粒子1Xと、光調整懸濁液の液滴5Aと、樹脂マトリックス5Bとを含む。光調整懸濁液の液滴5Aは、樹脂マトリックス5B中に分散している。光調整懸濁液の液滴5Aは、樹脂マトリックス5B中に液滴状態で保持されている。
- [0159] 光調整懸濁液の液滴5Aは、分散媒5Aaと光調整粒子5Abとを含む。光調整粒子5Abは、分散媒5Aa中に分散している。
- [0160] スペーサ粒子1Xは、第1の基材2と第2の基材3とに接触している。スペーサ粒子1Xは、第1の基材2と第2の基材3とのギャップを制御している。スペーサ粒子1Xは、上記式(11)で表される構造単位を有する化合物を含む。スペーサ粒子1Xの材料は、上記接着性粒子を含む。
- [0161] 第1の基材2の表面上及び第2の基材3の表面上には電極が形成されている（図示せず）。上記電極の材料としては、インジウム錫オキサイド（ITO）等が挙げられる。上記電極は、透明電極であることが好ましい。

[0162] SPD方式の調光積層体53に電界が印加されていない状態では、光調整懸濁液の液滴5Aを構成する分散媒5Aa中に分散している光調整粒子5Abのブラウン運動により、入射光が光調整粒子5Abに吸収、散乱、又は反射され、入射光は調光層5を透過することができない。

[0163] SPD方式の調光積層体53に電界が印加されると、光調整粒子5Abが電界に対して平行な方向に配列する。このため、入射光は、配列した光調整粒子5Ab間を通過することができ、調光層5を透過することができる。

[0164] <調光層>

上記調光層は、調光性を有していることが好ましい。調光性とは、電界の印加の有無により可視光透過率が変化し、入射光量を調整することができる性質である。上記調光層は、上記スペーサ粒子を含む。

[0165] (PDL方式)

上記調光層は、バインダーと、上記バインダー中に分散している液晶材料とをさらに含むことが好ましい。

[0166] 上記液晶材料は、特に限定されず、電界の印加によって配向が変化する性質を有していれば、どのような液晶材料であってもよい。上記液晶材料は、上記バインダー中に連続相として分散していてもよく、上記バインダー中に液晶ドロップ状又は液晶カプセル状で分散してもよい。上記液晶材料としては、ネマチック液晶、及びコレステリック液晶等が挙げられる。

[0167] 上記ネマチック液晶の材料としては、シアノビフェニル系、フェニルエステル系、アゾキシベンゼン系、含フッ素ビフェニル系、炭酸エステル系及びシッフ塩基系等が挙げられる。上記ネマチック液晶の材料は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0168] 上記コレステリック液晶の材料としては、ステロイド系コレステロール誘導体、シッフ塩基系、アゾ系、アゾキシ系、安息香酸エステル系、ビフェニル系、ターフェニル系、シクロヘキシルカルボン酸エステル系、フェニルシクロヘキサン系、ビフェニルシクロヘキサン系、ピリミジン系、ジオキサン系、シクロヘキシルシクロヘキサンエステル系、シクロヘキシルエタン系、

シクロヘキサン系、トラン系、アルケニル系、スチルベン系、縮合多環系等のネマチック液晶やスメクチック液晶、及びこれらの混合液晶に、シッフ塩基系、アゾ系、エステル系、ビフェニル系等の光学活性材料からなるカイラル成分を添加した材料等が挙げられる。上記コレステリック液晶の材料は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0169] 上記バインダーは、上記液晶材料を保持し、上記液晶材料の流動を抑制する。上記バインダーは、液晶材料に溶解せず、外力に耐えうる強度を持ち、さらに、反射光及び入射光に対して高い透過性を有していれば、特に限定されない。上記バインダーの材料としては、ゼラチン、ポリビニルアルコール、セルロース誘導体、ポリアクリル酸系ポリマー、エチレンイミン、ポリエチレンオキサイド、ポリアクリルアミド、ポリスチレンスルホン酸塩、ポリアミジン、イソプレン系スルホン酸ポリマー等の水溶性高分子材料、及びフッ素樹脂、シリコーン樹脂、アクリル樹脂、ウレタン樹脂、エポキシ樹脂等の水性エマルジョン化できる材料等が挙げられる。上記バインダーの材料は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0170] 上記バインダーは、架橋剤によって架橋されていることが好ましい。上記架橋剤は、上記バインダー間で架橋が形成され、上記バインダーを硬膜化、難溶化、又は不溶化するものであれば、特に限定されない。上記架橋剤としては、アセトアルデヒド、グルタルアルデヒド、グリオキサール、多価金属塩化合物のカリミョウバン水和物、アジピン酸ジヒドラジド、メラミンホルマリンオリゴマ、エチレングリコールジグリシジルエーテル、ポリアミドエピクロロヒドリン、及びポリカルボジイミド等が挙げられる。上記架橋剤は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0171] (SPD方式)

上記調光層は、樹脂マトリックスと、上記樹脂マトリックス中に分散している光調整懸濁液とをさらに含むことが好ましい。

[0172] 上記光調整懸濁液は、分散媒と、分散媒中に分散した光調整粒子を含む。

[0173] 上記光調整粒子としては、ポリヨウ化物、カーボンブラック等の炭素系材

料、銅、ニッケル、鉄、コバルト、クロム、チタン、アルミニウム等の金属材料、及び窒化ケイ素、窒化チタン、酸化アルミニウム等の無機化合物材料等が挙げられる。また、これらの材料がポリマーで被覆された粒子であってもよい。上記光調整粒子は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0174] 上記分散媒は、上記光調整粒子を流動可能な状態で分散させる。上記分散媒は、上記光調整粒子に選択的に付着し、上記光調整粒子を被覆し、樹脂マトリックスとの相分離の際に上記光調整粒子が相分離された液滴相に移動するように作用し、電気導電性がなく、樹脂マトリックスとは親和性がない材料であることが好ましい。さらに、上記分散媒は、調光積層体とした際に、樹脂マトリックスとの屈折率が近似した液状共重合体であることが好ましい。上記液状共重合体としては、フルオロ基又は水酸基を有する（メタ）アクリル酸エステルオリゴマーが好ましく、フルオロ基及び水酸基を有する（メタ）アクリル酸エステルオリゴマーがより好ましい。このような共重合体を使用すると、フルオロ基又は水酸基のモノマー単位が光調整粒子に向き、残りのモノマー単位が光調整懸濁液の液滴を樹脂マトリックス中で安定化させる。このため、光調整懸濁液内に光調整粒子が分散しやすく、樹脂マトリックスとの相分離の際に光調整粒子が相分離される液滴内に誘導されやすい。

[0175] 上記フルオロ基又は水酸基を有する（メタ）アクリル酸エステルオリゴマーとしては、メタクリル酸2, 2, 2-トリフルオロエチル/アクリル酸ブチル/アクリル酸2-ヒドロキシエチル共重合体、アクリル酸3, 5, 5-トリメチルヘキシル/アクリル酸2-ヒドロキシプロピル/フマル酸共重合体、アクリル酸ブチル/アクリル酸2-ヒドロキシエチル共重合体、アクリル酸2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロピル/アクリル酸ブチル/アクリル酸2-ヒドロキシエチル共重合体、アクリル酸1H, 1H, 5H-オクタフルオロペンチル/アクリル酸ブチル/アクリル酸2-ヒドロキシエチル共重合体、アクリル酸1H, 1H, 2H, 2H-ヘプタデカフルオロデシル/アクリル酸ブチル/アクリル酸2-ヒドロキシエチル共重合体、メタクリ

ル酸 2, 2, 2-トリフルオロエチル/アクリル酸ブチル/アクリル酸 2-ヒドロキシエチル共重合体、メタクリル酸 2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロピル/アクリル酸ブチル/アクリル酸 2-ヒドロキシエチル共重合体、メタクリル酸 1 H, 1 H, 5 H-オクタフルオロペンチル/アクリル酸ブチル/アクリル酸 2-ヒドロキシエチル共重合体、及びメタクリル酸 1 H, 1 H, 2 H, 2 H-ヘプタデカフルオロデシル/アクリル酸ブチル/アクリル酸 2-ヒドロキシエチル共重合体等が挙げられる。また、これらの(メタ)アクリル酸エステルオリゴマーはフルオロ基及び水酸基の両方を有することがより好ましい。

[0176] 上記(メタ)アクリル酸エステルオリゴマーの重量平均分子量は、好ましくは 1000 以上、より好ましくは 2000 以上であり、好ましくは 20000 以下、より好ましくは 10000 以下である。

[0177] 上記調光層は、上記樹脂マトリックスを形成するための樹脂材料と、上記光調整懸濁液とを用いて、作製することができる。

[0178] 上記樹脂材料は、エネルギー線を照射することにより硬化する樹脂材料であることが好ましい。エネルギー線を照射することにより硬化する樹脂材料としては、光重合開始剤及び、紫外線、可視光線、電子線等のエネルギー線により硬化する高分子化合物を含む高分子組成物が挙げられる。上記高分子組成物としては、エチレン性不飽和基を有する重合性単量体及び光重合開始剤を含む高分子組成物が挙げられる。上記エチレン性不飽和基を有する重合性単量体としては、非架橋性の単量体と架橋性の単量体とが挙げられる。

[0179] 上記非架橋性の単量体としては、ビニル化合物として、スチレン、 α -メチルスチレン、クロルスチレン等のスチレン単量体；メチルビニルエーテル、エチルビニルエーテル、プロピルビニルエーテル等のビニルエーテル化合物；酢酸ビニル、酪酸ビニル、ラウリン酸ビニル、ステアリン酸ビニル等の酸ビニルエステル化合物；塩化ビニル、フッ化ビニル等のハロゲン含有単量体；(メタ)アクリル化合物として、メチル(メタ)アクリレート、エチル(メタ)アクリレート、プロピル(メタ)アクリレート、ブチル(メタ)ア

クリレート、2-エチルヘキシル（メタ）アクリレート、ラウリル（メタ）アクリレート、セチル（メタ）アクリレート、ステアリル（メタ）アクリレート、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、イソボルニル（メタ）アクリレート等のアルキル（メタ）アクリレート化合物；2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、グリセロール（メタ）アクリレート、ポリオキシエチレン（メタ）アクリレート、グリシジル（メタ）アクリレート等の酸素原子含有（メタ）アクリレート化合物；（メタ）アクリロニトリル等のニトリル含有単量体；トリフルオロメチル（メタ）アクリレート、ペンタフルオロエチル（メタ）アクリレート等のハロゲン含有（メタ）アクリレート化合物； α -オレフィン化合物として、ジイソブチレン、イソブチレン、リニアレン、エチレン、プロピレン等のオレフィン化合物；共役ジエン化合物として、イソプレン、ブタジエン等が挙げられる。

[0180] 上記架橋性の単量体としては、ビニル化合物として、ジビニルベンゼン、1,4-ジビニロキシブタン、ジビニルスルホン等のビニル単量体；（メタ）アクリル化合物として、テトラメチロールメタンテトラ（メタ）アクリレート、ポリテトラメチレングリコールジアクリレート、テトラメチロールメタントリ（メタ）アクリレート、テトラメチロールメタンジ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、グリセロールトリ（メタ）アクリレート、グリセロールジ（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、ポリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、ポリテトラメチレングリコールジ（メタ）アクリレート、1,3-ブチレングリコールジ（メタ）アクリレート、1,4-ブタンジオールジ（メタ）アクリレート、1,6-ヘキサジオールジ（メタ）アクリレート、1,9-ノナンジオールジ（メタ）アクリレート等の多官能（メタ）アクリレート化合物；アリル化合物として、トリアリル（イソ）シアヌレート、トリアリルトリメリテート、ジアリルフタレート、ジアリルアクリルアミド、ジアリルエーテル；シラン

化合物として、テトラメトキシシラン、テトラエトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、エチルトリメトキシシラン、エチルトリエトキシシラン、イソプロピルトリメトキシシラン、イソブチルトリメトキシシラン、シクロヘキシルトリメトキシシラン、*n*-ヘキシルトリメトキシシラン、*n*-オクチルトリエトキシシラン、*n*-デシルトリメトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン、ジイソプロピルジメトキシシラン、トリメトキシシリルスチレン、 γ -（メタ）アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、1，3-ジビニルテトラメチルジシロキサン、メチルフェニルジメトキシシラン、ジフェニルジメトキシシラン等のシランアルコキシド化合物；ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ジメトキシメチルビニルシラン、ジメトキシエチルビニルシラン、ジエトキシメチルビニルシラン、ジエトキシエチルビニルシラン、エチルメチルジビニルシラン、メチルビニルジメトキシシラン、エチルビニルジメトキシシラン、メチルビニルジエトキシシラン、エチルビニルジエトキシシラン、*p*-スチリルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、3-アクリロキシプロピルトリメトキシシラン等の重合性二重結合含有シランアルコキシド；デカメチルシクロペンタシロキサン等の環状シロキサン；片末端変性シリコーンオイル、両末端シリコーンオイル、側鎖型シリコーンオイル等の変性（反応性）シリコーンオイル；（メタ）アクリル酸、マレイン酸、無水マレイン酸等のカルボキシル基含有単量体等が挙げられる。

[0181] 上記光重合開始剤としては、2，2-ジメトキシ-1，2-ジフェニルエタン-1-オン、1-（4-（2-ヒドロキシエトキシ）フェニル）-2-ヒドロキシ-2-メチル-1-プロパン-1-オン、ビス（2，4，6-トリメチルベンゾイル）フェニルフォスフィンオキサイド、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニルプロパン-1-オン、及び（1-ヒドロキシシク

ロヘキシル) フェニルケトン等が挙げられる。

[0182] 上記樹脂材料は、有機溶剤可溶型樹脂、熱可塑性樹脂、及びポリ(メタ)アクリル酸等を含んでいてもよい。また、上記樹脂材料は、着色防止剤、酸化防止剤、及び密着性付与剤等の各種添加剤を含んでいてもよく、溶剤を含んでいてもよい。

[0183] <第1の基材及び第2の基材>

上記第1の基材は、透明基材であることが好ましい。上記第2の基材は、透明基材であることが好ましい。上記透明基材は、例えば、光透過性を有する基材(光透過性基材)である。例えば、透明基材の一方側から、透明基材を介して他方側に光が透過する。例えば、透明基材の一方側から、透明基材を介して他方側にある物質を目視したときに、物質を視認可能である。透明には、例えば半透明も含まれる。透明基材は、無色透明であってもよく、有色透明であってもよい。

[0184] 上記第1の基材及び第2の基材の材料は、特に限定されない。上記第1の基材の材料と第2の基材の材料とは同一であってもよく、異なってもよい。上記第1の基材及び第2の基材の材料としては、ガラス及び樹脂フィルム等が挙げられる。上記ガラスとしては、一般建築用のソーダ石灰ガラス、鉛ガラス、硼珪酸ガラス、及びその他用途における各種組成のガラス等、並びに熱反射ガラス、熱吸収ガラス、及び強化ガラス等の機能ガラスが挙げられる。上記樹脂フィルムとしては、ポリエチレンテレフタレート等のポリエステルフィルム、ポリプロピレン等のポリオレフィンフィルム、アクリル樹脂系フィルム等の樹脂フィルムが挙げられる。透明性、成形性、接着性、加工性等に優れていることから、上記第1の基材及び第2の基材は、樹脂基材であることが好ましく、樹脂フィルムであることがより好ましく、ポリエチレンテレフタレート(PET)フィルムであることが更に好ましい。

[0185] 上記第1の基材及び第2の基材は、調光のための電界を印加可能であるように、基材本体と、上記基材本体の表面に形成された導電膜とを備えることが好ましい。上記導電膜としては、インジウム錫オキサイド(ITO)、S

$n\text{O}_2$ 、及び $ln_2\text{O}_3$ 等が挙げられる。上記導電膜は、透明導電膜であることが好ましい。

[0186] 調光積層体の視認性をより一層高める観点からは、上記第1の基材及び第2の基材の可視光透過率は、好ましくは75%以上、より好ましくは80%以上である。

[0187] 上記第1の基材及び第2の基材の可視光透過率は、分光測定等を実施し、ISO13837:2008に準拠して測定することができる。

[0188] 以下、実施例及び比較例を挙げて、本発明を具体的に説明する。本発明は、以下の実施例のみに限定されない。

[0189] 以下の材料を用意した。

[0190] (基材粒子) :

基材粒子A (アクリルージビニルベンゼン共重合体粒子、平均粒子径15.0 μm 、下記の合成例1に従って作製)

基材粒子B (カーボンブラック分散アクリルージビニルベンゼン共重合体粒子、平均粒子径18.0 μm 、下記の合成例2に従って作製)

基材粒子C (アクリルージビニルベンゼン共重合体粒子、平均粒子径15.0 μm 、下記の合成例3に従って作製)

基材粒子D (積水化学工業社製「マイクロパール SP-215」、平均粒子径15.0 μm)

基材粒子E (シリコーン粒子、平均粒子径16.0 μm 、下記の合成例4に従って作製)

基材粒子F (アクリルージビニルベンゼン共重合体粒子、平均粒子径20.0 μm 、下記の合成例5に従って作製)

基材粒子G (積水化学工業社製「マイクロパール SP-220」、平均粒子径20.0 μm)

[0191] (合成例1)

種粒子として平均粒子径5.0 μm のポリスチレン粒子を用意した。上記ポリスチレン粒子3.5重量部と、イオン交換水500重量部と、ポリビニ

ルアルコールの5重量%水溶液120重量部とを混合し、混合液を調製した。上記混合液を超音波により分散させた後、セパラブルフラスコに入れて、均一に攪拌した。次に、モノマーとしてイソボルニルアクリレート47重量部と、ジビニルベンゼン（純度96重量%）12重量部と、重合開始剤として過酸化ベンゾイル（日油社製「ナイパーBW」）1.5重量部と、ラウリル硫酸トリエタノールアミン3.7重量部と、エタノール28重量部とをイオン交換水300重量部に添加し、乳化液を調製した。セパラブルフラスコ中の上記混合液に、上記乳化液を2回に分けて添加し、8時間攪拌し、種粒子にモノマーを吸収させて、モノマーが膨潤した種粒子を含む懸濁液を得た。その後、ポリビニルアルコールの5重量%水溶液200重量部を添加し、加熱を開始して85℃で11時間反応させ粒子を得た。得られた粒子を分級操作により、精製を行い基材粒子Aとした。

[0192] （合成例2）

種粒子として平均粒子径5.0 μm のポリスチレン粒子を用意した。上記ポリスチレン粒子3.5重量部と、イオン交換水500重量部と、ポリビニルアルコールの5重量%水溶液120重量部とを混合し、混合液を調製した。上記混合液を超音波により分散させた後、セパラブルフラスコに入れて、均一に攪拌した。次に、モノマーとしてイソボルニルアクリレート83重量部と、ジビニルベンゼン（純度96重量%）21重量部と、重合開始剤として過酸化ベンゾイル（日油社製「ナイパーBW」）2.7重量部と、ラウリル硫酸トリエタノールアミン6.3重量部と、エタノール48重量部とをイオン交換水600重量部に添加し、乳化液を調製した。なお、上記イソボルニルアクリレートには、カーボンブラックが公知の方法で分散されていた。セパラブルフラスコ中の上記混合液に、上記乳化液を2回に分けて添加し、8時間攪拌し、種粒子にモノマーを吸収させて、モノマーが膨潤した種粒子を含む懸濁液を得た。その後、ポリビニルアルコールの5重量%水溶液400重量部を添加し、加熱を開始して85℃で11時間反応させ、粒子を得た。得られた粒子を分級操作により、精製を行い基材粒子Bとした。

[0193] (合成例3)

イソボルニルアクリレートを35重量部、ジビニルベンゼンを23重量部としたこと以外は、合成例1と同様にして基材粒子Cを得た。

[0194] (合成例4)

両末端アクリルシリコンオイル（信越化学工業社製「X-22-2445」）30重量部に、tert-ブチル-2-エチルペルオキシヘキサノート（重合開始剤、日油社製「パーブチルO」）0.5重量部を溶解させた溶解液Aを用意した。また、イオン交換水150重量部に、ラウリル硫酸トリエタノールアミン塩40重量%水溶液（乳化剤）0.8重量部とポリビニルアルコール（重合度：約2000、けん化度：86.5~89モル%、日本合成化学工業社製「ゴーセノールGH-20」）の5重量%水溶液80重量部とを混合して、水溶液Bを用意した。温浴槽中に設置したセパラブルフラスコに、上記溶解液Aを入れた後、上記水溶液Bを添加した。その後、Shirasu Porous Glass (SPG) 膜（細孔平均径約20 μ m）を用いることで、乳化を行った。その後、85 $^{\circ}$ Cに昇温して、9時間重合を行った。重合後の粒子全量を遠心分離により水洗浄した後、分級操作を行った後、凍結乾燥させて基材粒子Eを得た。

[0195] (合成例5)

種粒子として平均粒子径5.0 μ mのポリスチレン粒子を用意した。上記ポリスチレン粒子3.5重量部と、イオン交換水500重量部と、ポリビニルアルコールの5重量%水溶液120重量部とを混合し、混合液を調製した。上記混合液を超音波により分散させた後、セパラブルフラスコに入れて、均一に攪拌した。次に、モノマーとしてイソボルニルアクリレート115重量部と、ジビニルベンゼン（純度96重量%）29重量部と、重合開始剤として過酸化ベンゾイル（日油社製「ナイパーBW」）3.7重量部と、ラウリル硫酸トリエタノールアミン8.7重量部と、エタノール60重量部とをイオン交換水1000重量部に添加し、乳化液を調製した。セパラブルフラスコ中の上記混合液に、上記乳化液を2回に分けて添加し、8時間攪拌し、

種粒子にモノマーを吸収させて、モノマーが膨潤した種粒子を含む懸濁液を得た。その後、ポリビニルアルコールの5重量%水溶液500重量部を添加し、加熱を開始して85℃で11時間反応させ、粒子を得た。得られた粒子を分級操作により、精製を行い基材粒子Fとした。

[0196] (被覆部) :

熱硬化性樹脂 :

エポキシ樹脂 (DIC社製「EPICLON-EXA-850CRP」及びDIC社製「EPICLON-EXA-4850-150」の等量混合物)

ポリアミド樹脂 (東亜合成社製「アロンマイティ FS-1750SV10」)

[0197] 硬化剤 :

硬化剤I (アミン硬化剤、三井化学ファイン社製「ノルボルナンジアミン」)

硬化剤II (芳香族アミン硬化剤、東京化成工業社製「4,4'-ジアミノジフェニルメタン」)

[0198] 上記式(1)で表される構造を有する化合物 :

化合物A (信越シリコーン社製「X-22-163」)

[0199] (1) 接着性粒子の作製

(実施例1)

温度計、攪拌機、冷却管を備えた反応容器に、基材粒子A 13重量部と、エポキシ樹脂 15重量部と、分散安定剤としてポリビニルピロリドン 27重量部と、臭化セチルトリメチルアンモニウム 4.8重量部と、メタノール 1100重量部とを入れ、45℃で1時間攪拌することで均一に溶解させた。次に、硬化剤I 1.2重量部を反応容器内に添加し、45℃及び20時間の条件で反応させ、反応生成物を得た。得られた反応生成物をメタノールで洗浄した後、分級操作を行って、基材粒子と、上記基材粒子の表面に配置された被覆部とを備える接着性粒子を回収した。

[0200] (実施例 2～9、11、及び比較例 1～3)

基材粒子の種類、及び被覆部の構成を表 1～4 に示すように変更したこと以外は、実施例 1 と同様にして、接着性粒子を作製した。

[0201] (実施例 10)

温度計、攪拌機、冷却管を備えた反応容器に、基材粒子 C 3 重量部と、ポリアミド樹脂 15 重量部と、分散安定剤として臭化セチルトリメチルアンモニウム 4.8 重量部と、エタノール 100 重量部とを入れ、25℃で1時間攪拌することで均一に溶解させた。次に、ポリビニルアルコールの5重量%水溶液 1000 重量部を容器内に添加し、基材粒子とポリアミド樹脂の複合物を得た。得られた複合物を凍結乾燥させた後、分級操作を行って接着性粒子を回収した。

[0202] (2) 調光積層体の作製

SPD方式の調光積層体：

透明かつ導電性を有するITOが蒸着されたPETフィルム2枚の間に、得られた接着性粒子を5重量%分散させたこと以外は公知のSPD層が配置された調光フィルムを作製した。2枚の透明ガラスに調光フィルムを挟みこみ、5kgの分銅を載せ、ホットプレート上に配置して120℃1時間、加熱を行うことで、上下基板の接着を行った。2枚の透明ガラスに調光フィルムを挟みこむことで、スペーサ粒子が第1、第2の基材に接着しているSPD方式の調光積層体を作製した。

[0203] PDL方式の調光積層体：

透明かつ導電性を有するITOが蒸着されたPETフィルム2枚の間に、得られた接着性粒子を5重量%分散させたこと以外は公知のPDL層が配置された調光フィルムを作製した。2枚の透明ガラスに調光フィルムを挟みこみ、5kgの分銅を載せ、ホットプレート上に配置して120℃1時間、加熱を行うことで、上下基板の接着を行った。2枚の透明ガラスに調光フィルムを挟みこむことで、スペーサ粒子が第1、第2の基材に接着しているPDL方式の調光積層体を作製した。

[0204] (評価)

(1) 平均粒子径

得られた接着性粒子について、粒度分布測定装置（ベックマンコールター社製「Multisizer 4」）を用いて、約100000個の粒径を測定し、平均粒子径を測定した。

[0205] (2) 被覆部の厚み

得られた接着性粒子について、電界放出形走査電子顕微鏡（FE-SEM）を用いて、画像倍率3000倍に設定し、100個の接着性粒子を無作為に選択し、それぞれの粒子径を計測した。接着性粒子の粒子径と、基材粒子の粒子径との差の半分の値を、被覆部の厚みとした。

[0206] (3) 25℃での10%K値

得られた接着性粒子について、フィッシャー社製「フィッシャースコープH-100」を用いて、上述した方法で、加熱前の接着性粒子の25℃での10%K値を測定した。また、接着性粒子を送風定温恒温器（ヤマト科学社製「DKN302」）内で、120℃で1時間加熱した後、加熱後の接着性粒子の25℃での10%K値を測定した。

[0207] (4) 圧縮回復率

得られた接着性粒子について、上述した方法で、25℃で10%圧縮変形させた際の圧縮回復率を測定した。

[0208] (5) 接着性（引張降伏応力）

得られた接着性粒子を用いて、上述の接着性試験Aに従って試験体（試験サンプル）を作製した。テンシロン万能材料試験機（エー・アンド・デイ社製「RT1-1310」）を用いて、上記試験体の23℃での引張降伏応力を測定した（接着性試験A）。接着性（引張降伏応力）を、以下の基準で判定した。

[0209] [接着性（引張降伏応力）の判断基準]

〇〇：引張降伏応力が0.12MPa以上

〇：引張降伏応力が0.10MPa以上、0.12MPa未満

△：引張降伏応力が0.07MPa以上、0.10MPa未満

×：引張降伏応力が0.07MPa未満

[0210] (6) 接着性 (90°ピール強度)

得られた接着性粒子を用いて、上述の接着性試験Bに従って試験体（試験サンプル）を作製した。JIS K6854：1999に準拠して、引張試験機（島津製作所社製「オートグラフAGS」）を用いて、引張速度50mm/秒として上記試験体の23℃での90°ピール強度を測定した（接着性試験B）。接着性（90°ピール強度）を、以下の基準で判定した。

[0211] [接着性 (90°ピール強度) の判断基準]

○○：90°ピール強度が1.0N/30mm以上

○：90°ピール強度が0.5N/30mm以上、1.0N/30mm未満

△：90°ピール強度が0.1N/30mm以上、0.5N/30mm未満

×：90°ピール強度が0.1N/30mm未満

[0212] (7) スペーサ粒子の残存性

得られた調光積層体を、曲率0.1の円筒板を用いて湾曲させ、曲面部を有する調光積層体を得た。該調光積層体において、スペーサ粒子が移動又は剥離せず、調光層内に均一に残存しているか否かを、デジタルマイクロスコープ（キーエンス社製「VHX-2000」）を用いて観察した。第2の基板表面の任意の5箇所の1cm²の領域において、残存しているスペーサ粒子の個数を計測した。残存しているスペーサ粒子の個数の標準偏差を求め、スペーサ粒子の残存性を、下記の基準で判定した。

[0213] [スペーサ粒子の残存性]

○○：標準偏差が2未満

○：標準偏差が2以上4未満

△：標準偏差が4以上6未満

×：標準偏差が6以上

[0214] (8) ギャップ制御性

得られた調光積層体を、曲率0.1の円筒板を用いて湾曲させ、曲面部を有する調光積層体を得た。該調光積層体について、調光層の厚みを、走査型電子顕微鏡を用いて測定した。調光層の厚みの最小値の、調光層の厚みの最大値に対する比（調光層の厚みの最小値／調光層の厚みの最大値）を計算し、ギャップ制御性を、下記の基準で判定した。

[0215] [ギャップ制御性の判定基準]

○ ○ : 比（調光層の厚みの最小値／調光層の厚みの最大値）が0.95以上

○ : 比（調光層の厚みの最小値／調光層の厚みの最大値）が0.90以上
 0.95未満 △ : 比（調光層の厚みの最小値／調光層の厚みの最大値）が
 0.70以上0.90未満 × : 比（調光層の厚みの最小値／調光層の厚みの
 最大値）が0.70未満

[0216] 接着性粒子の組成及び結果を下記の表1～4に示す。

[0217] [表1]

			実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	
基材粒子	種類	—	A	B	C	F	
	10%K値	N/mm ²	1660	2000	2800	1500	
	平均粒子径	μm	15.0	18.0	15.0	20.0	
被覆部	熱硬化性樹脂	種類	—	エポキシ樹脂	エポキシ樹脂	エポキシ樹脂	エポキシ樹脂
		含有量	重量%	91	92	91	92
	式(1)で表される構造を有する化合物	種類	—	—	—	—	—
		含有量	重量%	0	0	0	0
	硬化剤	種類	—	I	I	I	I
		含有量	重量%	9	8	9	8
厚み	μm	2.0	2.0	2.0	1.5		
接着性粒子	平均粒子径	μm	19.0	22.0	19.0	23.0	
	加熱前の25°Cでの10%K値	N/mm ²	2000	2100	2850	1800	
	加熱後の25°Cでの10%K値	N/mm ²	2100	2150	3200	1930	
	圧縮回復率	%	28	30	35	32	
評価	接着性(引張降伏応力)	—	○ ○	○ ○	○	○ ○	
	接着性(90°ピール強度)	—	○ ○	○ ○	○	○ ○	
	スペーサ粒子の残存性	—	○	○	○	○	
	ギャップ制御性	—	○ ○	○ ○	○	○ ○	

[0218]

[表2]

			実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8	
基材粒子	種類	—	A	F	F	F	
	10%K値	N/mm ²	1660	1500	1500	1500	
	平均粒子径	μm	15.0	20.0	20.0	20.0	
被覆部	熱硬化性樹脂	種類	—	エポキシ樹脂	エポキシ樹脂	エポキシ樹脂	エポキシ樹脂
		含有量	重量%	91	90	73	74
	式(1)で表される構造を有する化合物	種類	—	—	—	A	A
		含有量	重量%	0	0	18	19
	硬化剤	種類	—	I	I	I	I
		含有量	重量%	9	10	9	7
	厚み	μm	0.6	0.3	1.0	2.0	
接着性粒子	平均粒子径	μm	16.2	20.6	22.0	24.0	
	加熱前の25°Cでの10%K値	N/mm ²	1700	1500	1600	1500	
	加熱後の25°Cでの10%K値	N/mm ²	1750	1600	1650	1530	
	圧縮回復率	%	28	32	28	28	
評価	接着性(引張降伏応力)	—	○	△	○	○○	
	接着性(90°ピール強度)	—	△	△	○	○○	
	スペーサ粒子の残存性	—	○	△	○○	○○	
	ギャップ制御性	—	○○	○	○○	○○	

[0219] [表3]

			実施例 9	実施例 10	実施例 11	
基材粒子	種類	—	C	C	E	
	10%K値	N/mm ²	2800	2800	10	
	平均粒子径	μm	15.0	15.0	16.0	
被覆部	熱硬化性樹脂	種類	—	エポキシ樹脂	ポリアミド樹脂	エポキシ樹脂
		含有量	重量%	91	100	91
	式(1)で表される構造を有する化合物	種類	—	—	—	—
		含有量	重量%	0	0	0
	硬化剤	種類	—	II	—	II
		含有量	重量%	9	0	9
	厚み	μm	2.0	1.0	2.0	
接着性粒子	平均粒子径	μm	19.0	17.0	20.0	
	加熱前の25°Cでの10%K値	N/mm ²	3000	2000	200	
	加熱後の25°Cでの10%K値	N/mm ²	3400	2200	230	
	圧縮回復率	%	35	28	60	
評価	接着性(引張降伏応力)	—	△	○	△	
	接着性(90°ピール強度)	—	△	○○	△	
	スペーサ粒子の残存性	—	△	○○	△	
	ギャップ制御性	—	○	○○	△	

[0220] [表4]

			比較例 1	比較例 2	比較例 3	
基材粒子	種類	—	D	E	G	
	10%K値	N/mm ²	3500	10	3000	
	平均粒子径	μm	15.0	16.0	20.0	
被覆部	熱硬化性樹脂	種類	—	エポキシ樹脂	エポキシ樹脂	エポキシ樹脂
		含有量	重量%	91	92	91
	式(1)で表される構造を有する化合物	種類	—	—	—	—
		含有量	重量%	0	0	0
	硬化剤	種類	—	I	I	II
		含有量	重量%	9	8	9
	厚み	μm	2.0	2.0	2.0	
接着性粒子	平均粒子径	μm	19.0	20.0	24.0	
	加熱前の25°Cでの10%K値	N/mm ²	3500	80	3100	
	加熱後の25°Cでの10%K値	N/mm ²	3600	100	4000	
	圧縮回復率	%	80	64	80	
評価	接着性(引張降伏応力)	—	×	△	×	
	接着性(90°ピール強度)	—	×	×	×	
	スペーサ粒子の残存性	—	×	△	×	
	ギャップ制御性	—	△	×	×	

符号の説明

- [0221] 1…接着性粒子
 1 1…基材粒子
 1 2…被覆部
 1 X…スペーサ粒子
 2…第1の基材
 3…第2の基材
 4, 5…調光層
 4 A…液晶カプセル
 4 B…バインダー
 5 A…光調整懸濁液の液滴
 5 A a…分散媒
 5 A b…光調整粒子

5 B…樹脂マトリックス

5 1…積層体

5 2…P D L C方式の調光積層体

5 3…S P D方式の調光積層体

請求の範囲

- [請求項1] 基材粒子と、前記基材粒子の表面に配置された被覆部とを備え、前記被覆部が、熱硬化性樹脂を含み、
25℃での10%K値が、100N/mm²以上3000N/mm²以下である、接着性粒子。
- [請求項2] 接着性粒子を120℃で1時間加熱した後の25℃での10%K値が、110N/mm²以上3500N/mm²以下である、請求項1に記載の接着性粒子。
- [請求項3] 前記基材粒子の25℃での10%K値が、100N/mm²以上3000N/mm²以下である、請求項1又は2に記載の接着性粒子。
- [請求項4] 25℃での圧縮回復率が、5%以上50%以下である、請求項1～3のいずれか1項に記載の接着性粒子。
- [請求項5] 前記被覆部の厚みが、0.5μm以上5.0μm以下である、請求項1～4のいずれか1項に記載の接着性粒子。
- [請求項6] 前記被覆部が、下記式(1)で表される構造を有する化合物を含む、請求項1～5のいずれか1項に記載の接着性粒子。

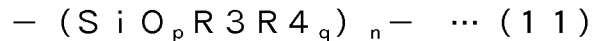
$$R1 - (SiO_p R3 R4_q)_n - R2 \quad \dots (1)$$
前記式(1)中、R1及びR2はそれぞれ、アミノ基を有する有機基、エポキシ基を有する有機基、アミド基を有する有機基、イソシアネート基を有する有機基、又はヒドロキシ基を有する有機基を表し；R3は、炭素数が1～2のアルキル基、炭素数が1～2のアルコキシ基、又はビニル基を表し；pは、1又は1.5であり；pが1のとき、qは、1であり、かつR4は、水素原子、炭素数が1～2のアルキル基、炭素数が1～2のアルコキシ基、又はビニル基を表し；pが1.5のとき、qは0であり；nは、1～100の整数を表す。
- [請求項7] 前記被覆部中の熱硬化性樹脂が、エポキシ樹脂を含む、請求項1～6のいずれか1項に記載の接着性粒子。
- [請求項8] 第1の基材と、第2の基材と、前記第1の基材と前記第2の基材と

の間に配置されているスペーサ粒子とを備え、

前記スペーサ粒子が、前記第1の基材と前記第2の基材とに接着しており、

前記スペーサ粒子の材料が、請求項1～7のいずれか1項に記載の接着性粒子を含む、積層体。

[請求項9] 前記スペーサ粒子が、下記式(11)で表される構造単位を有する化合物を含む、請求項8に記載の積層体。



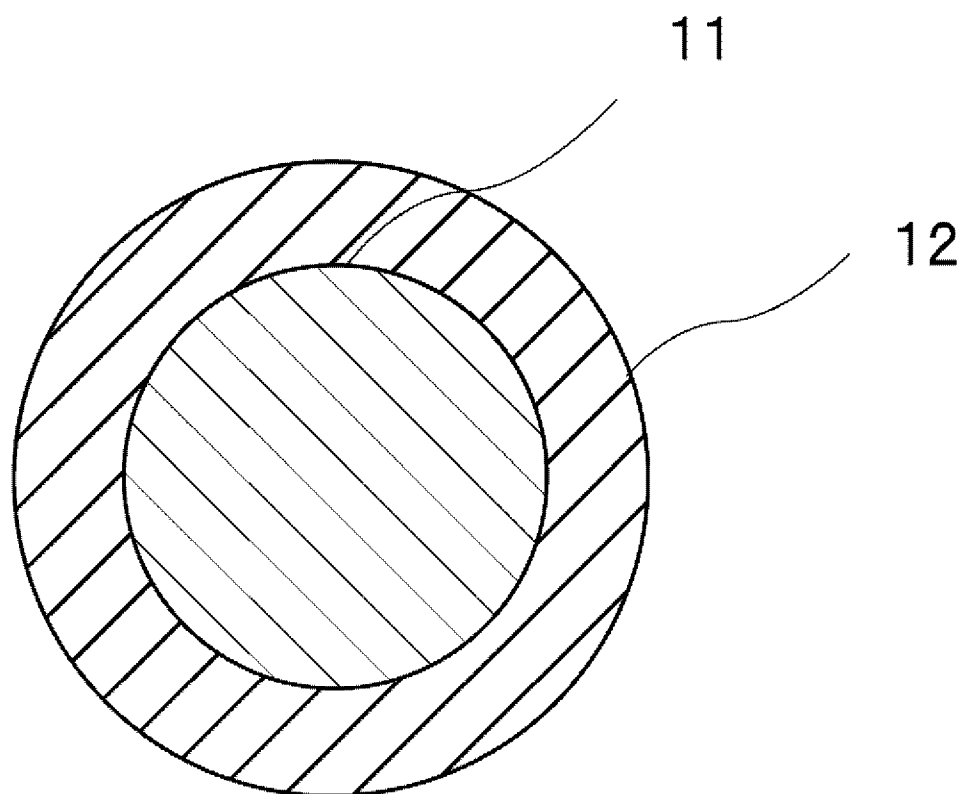
前記式(11)中、R₃は、炭素数が1～2のアルキル基、炭素数が1～2のアルコキシ基、又はビニル基を表し；pは、1又は1.5であり；pが1のとき、qは、1であり、かつR₄は、水素原子、炭素数が1～2のアルキル基、炭素数が1～2のアルコキシ基、又はビニル基を表し；pが1.5のとき、qは0であり；nは、1～100の整数を表す。

[請求項10] 曲面部を有する、請求項8又は9に記載の積層体。

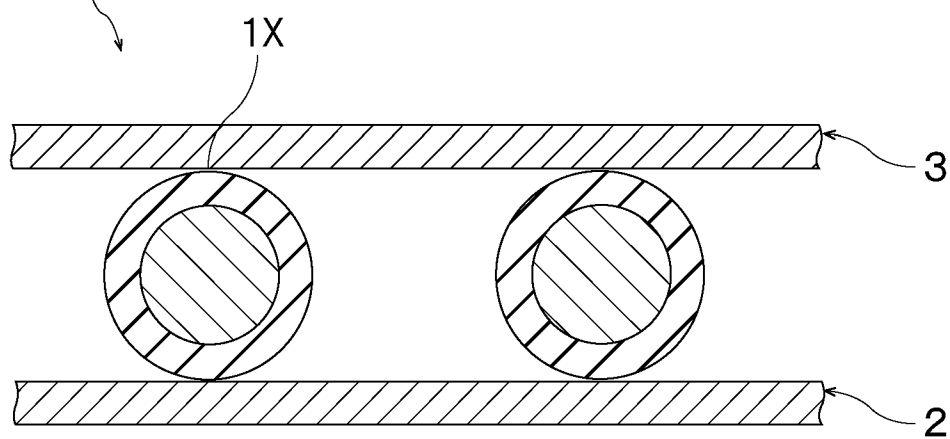
[請求項11] 調光積層体であり、

前記第1の基材と、前記第2の基材との間に配置されている調光層をさらに備える、請求項8～10のいずれか1項に記載の積層体。

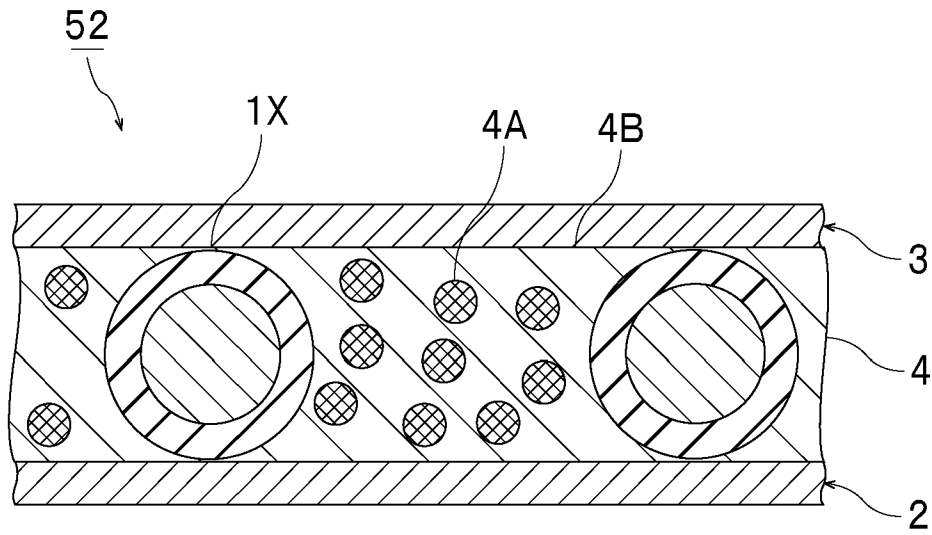
[図1]

1

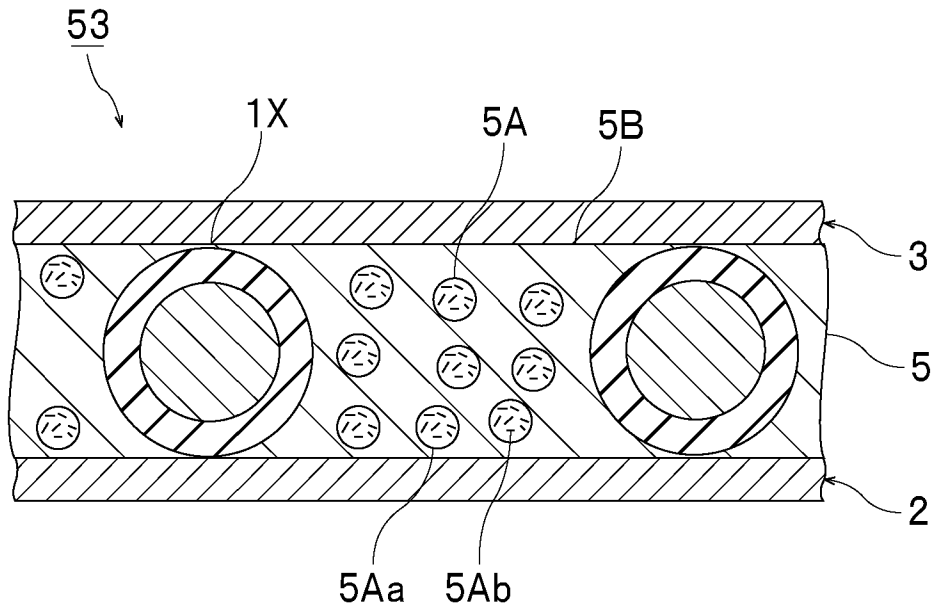
[図2]

51

[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/043163

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<p>G02F 1/1339(2006.01)i; B32B 27/00(2006.01)i; C08K 5/541(2006.01)i; C08L 63/00(2006.01)i; C08L 83/04(2006.01)i; C08L 101/00(2006.01)i; C09J 201/00(2006.01)i; G02F 1/19(2019.01)i FI: G02F1/1339 500; B32B27/00 101; C08K5/541; C08L63/00 Z; C08L83/04; C08L101/00; C09J201/00; G02F1/19 501</p> <p>According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC</p>		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) G02F1/1339; B32B27/00; C08K5/541; C08L63/00; C08L83/04; C08L101/00; C09J201/00; G02F1/13; G02F1/1334; G02F1/19		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2023 Registered utility model specifications of Japan 1996-2023 Published registered utility model applications of Japan 1994-2023		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAplus/REGISTRY (STN)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	WO 2018/203500 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 08 November 2018 (2018-11-08) paragraphs [0059]-[0062], [0125]-[0128], [0130]-[0158]	1-5, 7-11 6
Y A	JP 2007-156319 A (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 21 June 2007 (2007-06-21) paragraphs [0033], [0038]	1-5, 7-11 6
A	WO 2016/181860 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 17 November 2016 (2016-11-17) entire text, all drawings	1-11
A	WO 2018/016378 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 25 January 2018 (2018-01-25) entire text, all drawings	1-11
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
<p>* Special categories of cited documents:</p> <p>“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>“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)</p> <p>“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“&” document member of the same patent family</p>		
Date of the actual completion of the international search 18 January 2023		Date of mailing of the international search report 31 January 2023
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2022/043163

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)
WO	2018/203500	A1	08 November 2018	CN	110088160	A	
				KR	10-2019-0139194	A	
				TW	201843214	A	

JP	2007-156319	A	21 June 2007	(Family: none)			

WO	2016/181860	A1	17 November 2016	CN	107250220	A	
				KR	10-2018-0004700	A	
				TW	201702290	A	

WO	2018/016378	A1	25 January 2018	US	2020/0012138	A1	
				entire text, all drawings			
				EP	3489741	A1	
				CN	108700765	A	
				KR	10-2019-0028357	A	
				TW	201835308	A	

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））</p> <p>G02F 1/1339(2006.01)i; B32B 27/00(2006.01)i; C08K 5/541(2006.01)i; C08L 63/00(2006.01)i; C08L 83/04(2006.01)i; C08L 101/00(2006.01)i; C09J 201/00(2006.01)i; G02F 1/19(2019.01)i FI: G02F1/1339 500; B32B27/00 101; C08K5/541; C08L63/00 Z; C08L83/04; C08L101/00; C09J201/00; G02F1/19 501</p>																	
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））</p> <p>G02F1/1339; B32B27/00; C08K5/541; C08L63/00; C08L83/04; C08L101/00; C09J201/00; G02F1/13; G02F1/1334; G02F1/19</p> <p>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</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2023年</td> </tr> </table> <p>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）</p> <p>CAplus/REGISTRY (STN)</p>			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2023年	日本国実用新案登録公報	1996-2023年	日本国登録実用新案公報	1994-2023年							
日本国実用新案公報	1922-1996年																
日本国公開実用新案公報	1971-2023年																
日本国実用新案登録公報	1996-2023年																
日本国登録実用新案公報	1994-2023年																
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>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</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>Y A</td> <td>WO 2018/203500 A1（積水化学工業株式会社）08.11.2018（2018-11-08） 段落[0059]-[0062], [0125]-[0128], [0130]-[0158]</td> <td>1-5, 7-11 6</td> </tr> <tr> <td>Y A</td> <td>JP 2007-156319 A（積水化学工業株式会社）21.06.2007（2007-06-21） 段落[0033], [0038]</td> <td>1-5, 7-11 6</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>WO 2016/181860 A1（積水化学工業株式会社）17.11.2016（2016-11-17） 全文全図</td> <td>1-11</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>WO 2018/016378 A1（積水化学工業株式会社）25.01.2018（2018-01-25） 全文全図</td> <td>1-11</td> </tr> </tbody> </table>			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	Y A	WO 2018/203500 A1（積水化学工業株式会社）08.11.2018（2018-11-08） 段落[0059]-[0062], [0125]-[0128], [0130]-[0158]	1-5, 7-11 6	Y A	JP 2007-156319 A（積水化学工業株式会社）21.06.2007（2007-06-21） 段落[0033], [0038]	1-5, 7-11 6	A	WO 2016/181860 A1（積水化学工業株式会社）17.11.2016（2016-11-17） 全文全図	1-11	A	WO 2018/016378 A1（積水化学工業株式会社）25.01.2018（2018-01-25） 全文全図	1-11
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															
Y A	WO 2018/203500 A1（積水化学工業株式会社）08.11.2018（2018-11-08） 段落[0059]-[0062], [0125]-[0128], [0130]-[0158]	1-5, 7-11 6															
Y A	JP 2007-156319 A（積水化学工業株式会社）21.06.2007（2007-06-21） 段落[0033], [0038]	1-5, 7-11 6															
A	WO 2016/181860 A1（積水化学工業株式会社）17.11.2016（2016-11-17） 全文全図	1-11															
A	WO 2018/016378 A1（積水化学工業株式会社）25.01.2018（2018-01-25） 全文全図	1-11															
<p><input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p>																	
<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの</p> <p>“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</p> <p>“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）</p> <p>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>“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</p> <p>“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“&” 同一パテントファミリー文献</p>																	
<p>国際調査を完了した日</p> <p>18.01.2023</p>	<p>国際調査報告の発送日</p> <p>31.01.2023</p>																
<p>名称及びあて先</p> <p>日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号</p>	<p>権限のある職員（特許庁審査官）</p> <p>岩村 貴 2L 6007</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3295</p>																

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2022/043163

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2018/203500	A1	08.11.2018	CN	110088160	A	
				KR	10-2019-0139194	A	
				TW	201843214	A	

JP	2007-156319	A	21.06.2007	(ファミリーなし)			

WO	2016/181860	A1	17.11.2016	CN	107250220	A	
				KR	10-2018-0004700	A	
				TW	201702290	A	

WO	2018/016378	A1	25.01.2018	US	2020/0012138	A1	
				全文全図			
				EP	3489741	A1	
				CN	108700765	A	
				KR	10-2019-0028357	A	
				TW	201835308	A	
