

(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
2016年5月12日(12.05.2016)



(10) 国際公開番号

WO 2016/072200 A1

- (51) 国際特許分類:
G02B 5/30 (2006.01) C09J 133/08 (2006.01)
C09J 7/00 (2006.01) C09J 133/10 (2006.01)
C09J 7/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2015/078305
- (22) 国際出願日: 2015年10月6日(06.10.2015)
- (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 2014-224412 2014年11月4日(04.11.2014) JP
- (71) 出願人: 綜研化学株式会社(SOKEN CHEMICAL & ENGINEERING CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1718531 東京都豊島区高田三丁目2番5号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 米川 雄也(YONEKAWA, Yuya); 〒3501320 埼玉県狭山市広瀬東一丁目1番1号 綜研化学株式会社内 Saitama (JP). 田中 隆祐(TANAKA, Ryusuke); 〒3501320 埼玉県狭山市広瀬東一丁目1番1号 綜研化学株式会社内 Saitama (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人 S S I N P A T (SSINPAT PATENT FIRM); 〒1410031 東京都品川区西五反

田七丁目1番6号 五反田山崎ビル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, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, 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).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: ADHESIVE COMPOSITION FOR POLARIZING PLATES AND POLARIZING PLATE HAVING ADHESIVE LAYER

(54) 発明の名称: 偏光板用粘着剤組成物および粘着剤層付き偏光板

(57) Abstract: [Problem] To provide an adhesive composition for polarizing plates, suitable for configurations whereby at least one polarizer protective film normally formed on both surfaces of a polarizer is omitted, whereby warping (bending) of liquid crystal cells can be suppressed and an adhesive layer having excellent durability can be formed. [Solution] An adhesive composition for polarizing plates, characterized by containing a (meth) acrylate copolymer (A) and a cross linking agent (B) and by being used to form an adhesive layer that comes directly in contact with polarizers. The (meth) acrylate copolymer (A) is obtained by copolymerization of monomer components including: at least 30% by mass and less than 90% by mass of an acrylate alkyl ester (a1) having C8 or higher alkyl groups; at least 10% by mass and less than 70% by mass of a methacrylate alkyl ester (a2) having C8 or higher alkyl groups; and more than 0% by mass and no more than 10% by mass of a crosslinking functional group-containing monomer (a3).

(57) 要約: [課題] 偏光子の両面に通常形成される偏光子保護膜の少なくとも一方が省略された構成に適用可能な、液晶セルの反り (ベンディング) を抑制でき、かつ耐久性に優れた粘着剤層、を形成できる偏光板用粘着剤組成物を提供する。[解決手段] (A) アルキル基の炭素数が8以上のアクリル酸アルキルエステル (a1) を30質量%以上90質量%未満、アルキル基の炭素数が8以上のメタクリル酸アルキルエステル (a2) を10質量%以上70質量%未満、および架橋性官能基含有モノマー (a3) を0質量%を超えて10質量%以下の量で含むモノマー成分を共重合して得られた (メタ) アクリル系共重合体と、(B) 架橋剤とを含有し、偏光子と直接接する粘着剤層を形成するために用いられることを特徴とする偏光板用粘着剤組成物。

WO 2016/072200 A1

明 細 書

発明の名称： 偏光板用粘着剤組成物および粘着剤層付き偏光板 技術分野

[0001] 本発明は、偏光板用粘着剤組成物および粘着剤層付き偏光板等に関する。

背景技術

[0002] 液晶セルは、液晶層が2枚の基板（例：ガラス板）間に挟まれた構造を有する。液晶セルを構成する基板の表面には、粘着剤層を介して偏光板が貼付されている。従来、偏光板は、力学的性質および光学的耐久性を向上させるため、一般的に、偏光機能を有する偏光子の両面に、トリアセチルセルロースフィルム等の偏光子保護膜が積層された構造が採られてきた。

[0003] 近年、液晶セルの薄型化および偏光板の薄型化に伴い、高温・高湿熱環境下での液晶セルの反りが大きな問題となっている。液晶セルの反りの原因としては、例えば、従来の粘着剤層は応力緩和特性が低く、偏光子の熱収縮（寸法変化）に起因する応力を十分に緩和できないことが挙げられる。

[0004] 一方、偏光板の薄型化の要求に対して、偏光子の両面に形成された偏光子保護膜を省略することが試みられている。しかしながら、偏光子保護膜を有さない偏光板は、偏光子に粘着剤層が直接接触するため、高温・高湿熱環境下では、偏光子の熱収縮に伴い粘着剤層には大きな応力が加わり、液晶セルの反りだけでなく、粘着剤層の断裂、偏光板の剥がれ等の不具合も生じやすい。

[0005] 特許文献1には、側鎖にC10～C18のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルを40～99.5質量%含むモノマー成分を重合することにより得られ、ガラス転移温度（ T_g ）が0℃以下のメタクリル系ポリマーを含む粘着剤組成物が記載されている。しかしながら、偏光子保護膜を省略し、偏光子に粘着剤層を直接積層する場合の上記反りの問題について、特に言及されていない。

[0006] 特許文献2には、偏光板と、当該偏光板に設けられた粘着剤層とを有する

粘着型偏光板であって、前記偏光板は、偏光子の片側にのみ透明保護フィルムを有し、前記粘着剤層は、前記透明保護フィルムを有しない側の偏光子に設けられた構成が記載されている。しかしながら、前記透明保護フィルムの省略に伴う上記反りの問題について、特に言及されていない。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特開2013-001761号公報

特許文献2：特開2012-247574号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] 本発明の課題は、偏光子の両面に通常形成される偏光子保護膜の少なくとも一方が省略された構成に適用可能な、液晶セルの反り（ベンディング）を抑制でき、かつ耐久性に優れた粘着剤層、を形成できる偏光板用粘着剤組成物を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明者らは上記課題を解決すべく鋭意検討した。その結果、特定の（メタ）アクリル系共重合体を用い、かつ架橋剤を使用した場合に、上述の液晶セルの反り（ベンディング）を抑制でき、かつ耐久性に優れた粘着剤層を形成することができることを見出した。

[0010] すなわち、本発明者らは、以下の特定の構成を有する偏光板用粘着剤組成物を用いることにより上記課題を解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0011] 本発明は、例えば以下の〔1〕～〔6〕である。

[0012] 〔1〕（A）アルキル基の炭素数が8以上のアクリル酸アルキルエステル（a1）を30質量%以上90質量%未満、アルキル基の炭素数が8以上のメタクリル酸アルキルエステル（a2）を10質量%以上70質量%未満、および架橋性官能基含有モノマー（a3）を0質量%を超えて10質量%以

下の量で含むモノマー成分を共重合して得られた（メタ）アクリル系共重合体と、（Ｂ）架橋剤とを含有し、偏光子と直接接する粘着剤層を形成するために用いられることを特徴とする偏光板用粘着剤組成物。

[0013] [２] 前記偏光板用粘着剤組成物より形成された粘着剤のゲル分率が、４０質量％以上である、前記[１]に記載の偏光板用粘着剤組成物。

[0014] [３] 前記[１]又は[２]に記載の粘着剤組成物より形成された偏光板用粘着剤層。

[0015] [４] ２３℃における貯蔵弾性率が０．１０ＭＰａ以上であり、８５℃における貯蔵弾性率が０．０５ＭＰａ以下であり、かつ、ある温度 T ℃における貯蔵弾性率を G'_T 、 $T+1$ ℃における貯蔵弾性率を G'_{T+1} としたとき、温度 T が２３～５０℃の範囲において、 $G'_T/G'_{T+1} < 1.07$ を常に満たす、前記[３]に記載の偏光板用粘着剤層。

[0016] [５] 前記[３]又は[４]に記載の粘着剤層を有する偏光板用粘着シート。

[0017] [６] 偏光子の少なくとも一方の面に直接積層された、前記[３]又は[４]に記載の粘着剤層を有する粘着剤層付き偏光板。

発明の効果

[0018] 本発明によれば、偏光子の両面に通常形成される偏光子保護膜の少なくとも一方が省略された構成に適用可能な、液晶セルの反り（ベンディング）を抑制でき、かつ耐久性に優れた粘着剤層、を形成できる偏光板用粘着剤組成物を提供することができる。また、前記組成物より形成された偏光板用粘着剤層、前記粘着剤層を有する偏光板用粘着シート、および前記粘着剤層を有する粘着剤層付き偏光板を提供することができる。

発明を実施するための形態

[0019] 以下、本発明の偏光板用粘着剤組成物、偏光板用粘着剤層、偏光板用粘着シートおよび粘着剤層付き偏光板を説明する。以下では、本発明の偏光板用粘着剤組成物、偏光板用粘着剤層および偏光板用粘着シートを、それぞれ「粘着剤組成物」、「粘着剤層」および「粘着シート」ともいう。

[0020] 〔偏光板用粘着剤組成物〕

本発明の偏光板用粘着剤組成物は、以下に説明する（メタ）アクリル系共重合体（A）と架橋剤（B）とを含有する。前記組成物は、必要に応じて、シランカップリング剤（C）および帯電防止剤（D）から選択される少なくとも1種を含有してもよく、有機溶媒（E）を含有してもよい。

[0021] 〔（メタ）アクリル系共重合体（A）〕

（メタ）アクリル系共重合体（A）は、アルキル基の炭素数が8以上のアクリル酸アルキルエステル（a1）を30質量%以上90質量%未満、アルキル基の炭素数が8以上のメタクリル酸アルキルエステル（a2）を10質量%以上70質量%未満、および架橋性官能基含有モノマー（a3）を0質量%を超えて10質量%以下の量で含むモノマー成分の共重合体であり、前記モノマー成分を共重合して得られる。前記共重合体（A）は、通常、アクリル酸アルキルエステル（a1）由来の構成単位と、メタクリル酸アルキルエステル（a2）由来の構成単位と、架橋性官能基含有モノマー（a3）由来の構成単位とを有する。

[0022] 本明細書において、アクリルおよびメタクリルを総称して「（メタ）アクリル」とも記載する。また、重合体に含まれる、あるモノマーAに由来する構成単位を「モノマーA単位」とも記載する。また、前記（a1）、（a2）および（a3）を、それぞれ「モノマー（a1）」、「モノマー（a2）」および「モノマー（a3）」ともいう。

[0023] 《アクリル酸アルキルエステル（a1）》

モノマー（a1）は、アルキル基の炭素数が8以上のアクリル酸アルキルエステルであり、例えば、式： $\text{CH}_2=\text{CH}-\text{COOR}'$ で表される。R'は炭素数8以上のアルキル基である。前記アルキル基の炭素数は8～18が好ましく、8～12がより好ましい。

[0024] このような長鎖アルキル基を有するアクリル酸アルキルエステル単位を含む（メタ）アクリル系共重合体を使用すると、粘着剤層に適切な応力緩和特性および疎水性を付与することができる。例えば、モノマー（a1）を用い

ることで、 85°C における貯蔵弾性率が 0.05MPa 以下で柔軟性を有し、かつ偏光子への水分の侵入を阻止可能な疎水性を有する粘着剤層が得られる傾向にある。

[0025] モノマー (a 1) としては、例えば、2-エチルヘキシルアクリレート、*n*-オクチルアクリレート、イソオクチルアクリレート、ノニルアクリレート、イソノニルアクリレート、デシルアクリレート、イソデシルアクリレート、ウンデカアクリレート、ラウリルアクリレート、ステアリルアクリレート、イソステアリルアクリレートが挙げられる。

[0026] モノマー (a 1) は1種単独で用いてもよく、2種以上を用いてもよい。

[0027] 共重合体 (A) を形成するモノマー成分100質量%中、モノマー (a 1) の使用量は30質量%以上90質量%未満であり、好ましくは30~70質量%、より好ましくは30~50質量%である。モノマー (a 1) の使用量が前記範囲にあると、得られる粘着剤層の貯蔵弾性率を後述する範囲に調整可能である点（柔軟性および硬質性のバランス）、および疎水化の点で好ましい。

[0028] 《メタクリル酸アルキルエステル (a 2)》

モノマー (a 2) は、アルキル基の炭素数が8以上のメタクリル酸アルキルエステルであり、例えば、式： $\text{CH}_2=\text{C}(\text{CH}_3)-\text{COOR}^2$ で表される。 R^2 は炭素数8以上のアルキル基である。前記アルキル基の炭素数は8~18が好ましく、8~12がより好ましい。

[0029] このような長鎖アルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステル単位を含む（メタ）アクリル系共重合体を使用すると、粘着剤層に適切な加工性および疎水性を付与することができる。例えば、モノマー (a 2) を用いることで、 23°C における貯蔵弾性率が 0.10MPa 以上で硬質であり、かつ偏光子への水分の侵入を阻止可能な疎水性を有する粘着剤層が得られる傾向にある。

[0030] モノマー (a 2) としては、例えば、2-エチルヘキシルメタクリレート、*n*-オクチルメタクリレート、イソオクチルメタクリレート、ノニルメタ

クリレート、イソノニルメタクリレート、デシルメタクリレート、イソデシルメタクリレート、ウンデカメタクリレート、ラウリルメタクリレート、ステアリルメタクリレート、イソステアリルメタクリレートが挙げられる。

[0031] モノマー（a 2）は1種単独で用いてもよく、2種以上を用いてもよい。

[0032] 共重合体（A）を形成するモノマー成分100質量%中、モノマー（a 2）の使用量は10質量%以上70質量%未満であり、好ましくは30～65質量%、より好ましくは40～60質量%である。モノマー（a 2）の使用量が前記範囲にあると、得られる粘着剤層の貯蔵弾性率を後述する範囲に調整可能である点（柔軟性および硬質性のバランス）、および疎水化の点で好ましい。

[0033] モノマー（a 2）の使用割合が大きくなると、粘着剤層の貯蔵弾性率は高くなる傾向にあり、モノマー（a 2）の使用割合が小さくなると、粘着剤層の貯蔵弾性率は低くなる傾向にある。

[0034] 本発明では、アルキル基の炭素数が8以上のアクリル酸アルキルエステル（a 1）とメタクリル酸アルキルエステル（a 2）とを併用しているので、アルキル基の炭素数が8以上のメタクリル酸アルキルエステルを用いず、アルキル基の炭素数が8以上のアクリル酸アルキルエステルを2種以上併用する場合に比べ、疎水性を持ちつつ粘着性能を発現させることができる点で優れている。

[0035] 《架橋性官能基含有モノマー（a 3）》

共重合体（A）を形成するモノマー成分は、架橋剤（B）と反応することが可能な架橋性官能基を有するモノマー、すなわち架橋性官能基含有モノマー（a 3）をさらに含む。

[0036] モノマー（a 3）としては、例えば、水酸基含有モノマー、酸基含有モノマー、アミノ基含有モノマー、アミド基含有モノマー、窒素系複素環含有モノマー、シアノ基含有モノマーが挙げられる。本明細書において酸基としては、例えば、カルボキシル基、酸無水物基、リン酸基、硫酸基が挙げられる。

- [0037] 水酸基含有モノマーとしては、例えば、水酸基含有（メタ）アクリレートが挙げられ、具体的には、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、3-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、4-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、6-ヒドロキシヘキシル（メタ）アクリレート、8-ヒドロキシアクタール（メタ）アクリレート等のヒドロキシアルキル（メタ）アクリレートが挙げられる。ヒドロキシアルキル（メタ）アクリレートでのヒドロキシアルキル基の炭素数は、通常2～8、好ましくは2～6である。
- [0038] カルボキシル基含有モノマーとしては、例えば、（メタ）アクリル酸β-カルボキシエチル、（メタ）アクリル酸5-カルボキシペンチル、コハク酸モノ（メタ）アクリロイルオキシエチルエステル、ω-カルボキシポリカプロラクトンモノ（メタ）アクリレート等のカルボキシル基含有（メタ）アクリレート；アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、クロトン酸、フマル酸、マレイン酸が挙げられる。酸無水物基含有モノマーとしては、例えば、無水マレイン酸、無水イタコン酸が挙げられる。リン酸基含有モノマーとしては、側鎖にリン酸基を有する（メタ）アクリル系モノマーが挙げられ、硫酸基含有モノマーとしては、側鎖に硫酸基を有する（メタ）アクリル系モノマーが挙げられる。
- [0039] アミノ基含有モノマーとしては、例えば、ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート、ジエチルアミノエチル（メタ）アクリレート等のアミノ基含有（メタ）アクリレートが挙げられる。アミド基含有モノマーとしては、例えば、（メタ）アクリルアミド、N-メチル（メタ）アクリルアミド、N-エチル（メタ）アクリルアミド、N-プロピル（メタ）アクリルアミド、N-ヘキシル（メタ）アクリルアミドが挙げられる。窒素系複素環含有モノマーとしては、例えば、ビニルピロリドン、アクリロイルモルホリン、ビニルカプロラクタムが挙げられる。シアノ基含有モノマーとしては、例えば、シアノ（メタ）アクリレート、（メタ）アクリロニトリルが挙げられる。
- [0040] モノマー（a3）としては、架橋剤（B）との架橋性の観点から、水酸基含有モノマー（ただし、水酸基含有モノマーからは、カルボキシル基を有す

るモノマーを除く) およびカルボキシル基含有モノマーから選択される少なくとも1種が好ましく、水酸基含有モノマーがより好ましい。

[0041] モノマー(a3)は1種単独で用いてもよく、2種以上を用いてもよい。

[0042] 共重合体(A)を形成するモノマー成分100質量%中、モノマー(a3)の使用量は0質量%を超えて10質量%以下であり、好ましくは2~8質量%、さらに好ましくは4~6質量%である。モノマー(a3)の使用量が前記上限値以下であると、共重合体(A)と架橋剤(B)とにより形成される架橋密度が高くなりすぎず、応力緩和特性に優れる粘着剤層が得られる。モノマー(a3)の使用量が前記下限値以上であると、架橋構造が有効に形成され、常温において適切な強度を有する粘着剤層が得られる。

[0043] 《その他のモノマー》

共重合体(A)を形成するモノマー成分としては、共重合体(A)の物性を損なわない範囲で、例えば、アルキル基の炭素数が1~7の(メタ)アクリル酸アルキルエステル、アルコキシアルキル(メタ)アクリレート、アルコキシポリアルキレングリコールモノ(メタ)アクリレート、脂環式基または芳香環含有(メタ)アクリレート等の、その他の(メタ)アクリル酸エステルを用いることもできる。すなわち、前記共重合体(A)は、前記その他の(メタ)アクリル酸エステル由来の構成単位をさらに有してもよい。

[0044] アルキル基の炭素数が1~7の(メタ)アクリル酸アルキルエステルは、例えば、式： $\text{CH}_2=\text{CR}^3-\text{COOR}^4$ で表される。式中、 R^3 は水素原子またはメチル基であり、 R^4 は炭素数1~7のアルキル基である。例えば、メチル(メタ)アクリレート、エチル(メタ)アクリレート、n-プロピル(メタ)アクリレート、イソプロピル(メタ)アクリレート、n-ブチル(メタ)アクリレート、イソブチル(メタ)アクリレート、tert-ブチル(メタ)アクリレート、ペンチル(メタ)アクリレート、ヘキシル(メタ)アクリレート、ヘプチル(メタ)アクリレートが挙げられる。

[0045] アルコキシアルキル(メタ)アクリレートとしては、例えば、メトキシメチル(メタ)アクリレート、2-メトキシエチル(メタ)アクリレート、2

ーエトキシエチル（メタ）アクリレート、3-メトキシプロピル（メタ）アクリレート、3-エトキシプロピル（メタ）アクリレート、4-メトキシブチル（メタ）アクリレート、4-エトキシブチル（メタ）アクリレートが挙げられる。

[0046] アルコキシポリアルキレングリコールモノ（メタ）アクリレートとしては、例えば、メトキシジエチレングリコールモノ（メタ）アクリレート、メトキシジプロピレングリコールモノ（メタ）アクリレート、エトキシトリエチレングリコールモノ（メタ）アクリレート、エトキシジエチレングリコールモノ（メタ）アクリレート、メトキシトリエチレングリコールモノ（メタ）アクリレートが挙げられる。

[0047] 脂環式基または芳香環含有（メタ）アクリレートとしては、例えば、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、ベンジル（メタ）アクリレート、フェニル（メタ）アクリレートが挙げられる。

[0048] また、共重合体（A）を形成するモノマー成分としては、共重合体（A）の物性を損なわない範囲で、例えば、スチレン系単量体、酢酸ビニルなどの、共重合性モノマーを用いることもできる。すなわち、前記共重合体（A）は、前記共重合性モノマー由来の構成単位をさらに有してもよい。

[0049] スチレン系単量体としては、例えば、スチレン；メチルスチレン、ジメチルスチレン、トリメチルスチレン、プロピルスチレン、ブチルスチレン、ヘキシルスチレン、ヘプチルスチレン、オクチルスチレン等のアルキルスチレン；フロロスチレン、クロロスチレン、ブロモスチレン、ジブロモスチレン、ヨウ化スチレン等のハロゲン化スチレン；ニトロスチレン、アセチルスチレン、メトキシスチレンが挙げられる。

[0050] その他のモノマーは1種単独で用いてもよく、2種以上を用いてもよい。

[0051] 共重合体（A）を形成するモノマー成分100質量%中、以上のその他のモノマー（例：その他の（メタ）アクリル酸エステル、共重合性モノマー）の全使用量は、0～10質量%であることが好ましく、より好ましくは0～5質量%である。

[0052] 《(メタ)アクリル系共重合体(A)の製造条件》

(メタ)アクリル系共重合体(A)の製造条件は特に限定されないが、例えば、溶液重合法により製造することができる。具体的には、反応容器内に重合溶媒およびモノマー成分を仕込み、窒素ガス等の不活性ガス雰囲気下で重合開始剤を添加し、反応開始温度を通常40～100℃、好ましくは50～80℃に設定し、通常50～90℃、好ましくは70～90℃の温度に反応系を維持して、4～20時間反応させる。

[0053] 共重合体(A)は、例えば上述したモノマー(a1)～(a3)を含むモノマー成分を共重合して得られるが、ランダム共重合体でもよく、ブロック共重合体でもよい。これらの中では、ランダム共重合体が好ましい。

[0054] 溶液重合に用いる重合溶媒としては、例えば、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類；n-ペンタン、n-ヘキサン、n-ヘプタン、n-オクタン等の脂肪族炭化水素類；シクロペンタン、シクロヘキサン、シクロヘプタン、シクロオクタン等の脂環式炭化水素類；ジエチルエーテル、ジイソプロピルエーテル、1,2-ジメトキシエタン、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、アニソール、フェニルエチルエーテル、ジフェニルエーテル等のエーテル類；クロロホルム、四塩化炭素、1,2-ジクロロエタン、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類；酢酸エチル、酢酸プロピル、酢酸ブチル、プロピオン酸メチル等のエステル類；アセトン、メチルエチルケトン、ジエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン類；N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセタミド、N-メチルピロリドン等のアミド類；アセトニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル類；ジメチルスルホキシド、スルホラン等のスルホキシド類等が挙げられる。これらの重合溶媒は1種単独で用いてもよく、2種以上を用いてもよい。

[0055] 溶液重合に用いる重合開始剤としては、例えば、アゾ系開始剤、過酸化物系開始剤が挙げられる。具体的には、2,2'-アゾビスイソブチロニトリル等のアゾ化合物、過酸化ベンゾイル、過酸化ラウロイル等の過酸化物が挙げ

られる。これらの中でも、アゾ化合物が好ましい。アゾ化合物としては、例えば、2, 2'-アゾビスイソブチロニトリル、2, 2'-アゾビス(4-メトキシ-2, 4-ジメチルバレロニトリル)、2, 2'-アゾビス(2-シクロプロピルプロピオニトリル)、2, 2'-アゾビス(2, 4-ジメチルバレロニトリル)、2, 2'-アゾビス(2-メチルブチロニトリル)、1, 1'-アゾビス(シクロヘキサン-1-カルボニトリル)、2-(カルバモイルアゾ)イソブチロニトリル、2-フェニルアゾ-4-メトキシ-2, 4-ジメチルバレロニトリル、2, 2'-アゾビス(2-アミジノプロパン)ジヒドロクロリド、2, 2'-アゾビス(N, N'-ジメチレンイソブチルアミジン)、2, 2'-アゾビス[2-メチル-N-(2-ヒドロキシエチル)-プロピオンアミド]、2, 2'-アゾビス(イソブチルアミド)ジヒドレート、4, 4'-アゾビス(4-シアノペンタン酸)、2, 2'-アゾビス(2-シアノプロパノール)、ジメチル-2, 2'-アゾビス(2-メチルプロピオネート)が挙げられる。これらの重合開始剤は1種単独で用いてもよく、2種以上を用いてもよい。

[0056] 重合開始剤は、(メタ)アクリル系共重合体(A)を形成するモノマー成分100質量部に対して、通常0.01~5質量部、好ましくは0.1~3質量部の範囲内の量で使用される。また、上記重合反応中に、重合開始剤、連鎖移動剤、モノマー成分、重合溶媒を適宜追加添加してもよい。

[0057] 《(メタ)アクリル系共重合体(A)の物性および含有量》

(メタ)アクリル系共重合体(A)のゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)法により測定される重量平均分子量(Mw)は、ポリスチレン換算値で、通常40万~180万であり、好ましくは60万~140万、より好ましくは80万~100万である。Mwが前記範囲にあり、かつ上記モノマー単位を有する共重合体(A)を用いることで、粘着力のバランス(貯蔵弾性率(G'1)および(G'2)のバランス)を取りやすく、塗工に適した粘度の粘着剤組成物とすることが出来る。

[0058] (メタ)アクリル系共重合体(A)のGPC法により測定される分子量分

布 (M_w/M_n) は、通常 1.5 以下であり、好ましくは 2 ~ 10、より好ましくは 4 ~ 8 である。

[0059] (メタ) アクリル系共重合体 (A) のガラス転移温度 (T_g) は、例えば、当該共重合体を構成するモノマー単位およびその含有割合から、Fox の式により算定することができる。例えば、Fox の式により求めたガラス転移温度 (T_g) が通常 $-70 \sim -20^\circ\text{C}$ 、好ましくは $-60 \sim -30^\circ\text{C}$ となるように、(メタ) アクリル系共重合体 (A) を合成することができる。このようなガラス転移温度 (T_g) を有する (メタ) アクリル系共重合体 (A) を用いることにより、常温で粘着性に優れた粘着剤組成物を得ることができる。

[0060] Fox の式：

$$1/T_g = (W_1/T_{g1}) + (W_2/T_{g2}) + \dots + (W_m/T_{gm})$$

$$W_1 + W_2 + \dots + W_m = 1$$

式中、 T_g は (メタ) アクリル系共重合体 (A) のガラス転移温度 (単位：K) であり、 T_{g1} , T_{g2} , ..., T_{gm} は各モノマーからなるホモポリマーのガラス転移温度 (単位：K) であり、 W_1 , W_2 , ..., W_m は各モノマー由来の構成単位の前記共重合体 (A) における重量分率である。各モノマー由来の構成単位の重量分率としては、共重合体合成時の各モノマーの全モノマーに対する仕込み割合を用いることができる。

[0061] 前記 Fox の式における各モノマーからなるホモポリマーのガラス転移温度は、例えば、Polymer Handbook Fourth Edition (Wiley-Interscience 2003) 記載の値を用いることができる。

[0062] 本発明の粘着剤組成物において、(メタ) アクリル系共重合体 (A) の含有量は、組成物中の有機溶媒を除く固形分 100 質量%中、通常 60 ~ 99.99 質量%、より好ましくは 70 ~ 99.95 質量%、特に好ましくは 80 ~ 99.90 質量%である。(メタ) アクリル系共重合体 (A) の含有量が前記範囲にあると、粘着剤としての性能のバランスがとれ、粘着特性に優

れる。

[0063] 〔架橋剤（B）〕

本発明の粘着剤組成物は、さらに架橋剤（B）を含有する。

[0064] 架橋剤（B）は、（メタ）アクリル系共重合体（A）が有する、架橋性官能基含有モノマー（a 3）由来の架橋性官能基と架橋反応を起こすことができる成分であれば特に限定されないが、例えば、イソシアネート化合物（B 1）、金属キレート化合物（B 2）、エポキシ化合物（B 3）が挙げられる。

[0065] 架橋剤（B）は1種単独で用いてもよく、2種以上を用いてもよい。

[0066] 本発明の粘着剤組成物において、架橋剤（B）の含有量は、（メタ）アクリル系共重合体（A）100質量部に対して、通常0.01～5質量部、より好ましくは0.05～2.5質量部、さらに好ましくは0.1～1質量部である。この含有量が前記範囲にあると、耐久性と応力緩和特性のバランスが取りやすい点で好ましい。

[0067] 《イソシアネート化合物（B 1）》

イソシアネート化合物（B 1）としては、1分子中のイソシアネート基数が2以上のイソシアネート化合物が通常用いられる。イソシアネート化合物（B 1）により（メタ）アクリル系共重合体（A）を架橋することで、架橋体（ネットワークポリマー）を形成することができる。

[0068] イソシアネート化合物（B 1）のイソシアネート基数は、通常2以上であり、好ましくは2～8であり、より好ましくは3～6である。イソシアネート基数が前記範囲にあると、（メタ）アクリル系共重合体（A）とイソシアネート化合物（B 1）との架橋反応効率の点、および粘着剤層の柔軟性を保つ点で好ましい。

[0069] 1分子中のイソシアネート基数が2のジイソシアネート化合物としては、例えば、脂肪族ジイソシアネート、脂環族ジイソシアネート、芳香族ジイソシアネートが挙げられる。脂肪族ジイソシアネートとしては、エチレンジイソシアネート、テトラメチレンジイソシアネート、ペンタメチレンジイソシ

アネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、2-メチル-1, 5-ペンタンジイソシアネート、3-メチル-1, 5-ペンタンジイソシアネート、2, 2, 4-トリメチル-1, 6-ヘキサメチレンジイソシアネート等の炭素数4~30の脂肪族ジイソシアネートが挙げられる。脂環族ジイソシアネートとしては、イソホロンジイソシアネート、シクロペンチルジイソシアネート、シクロヘキシルジイソシアネート、水素添加キシリレンジイソシアネート、水素添加トリレンジイソシアネート、水素添加ジフェニルメタンジイソシアネート、水素添加テトラメチルキシリレンジイソシアネート等の炭素数7~30の脂環族ジイソシアネートが挙げられる。芳香族ジイソシアネートとしては、例えば、フェニレンジイソシアネート、トリレンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、ナフチレンジイソシアネート、ジフェニルエーテルジイソシアネート、ジフェニルメタンジイソシアネート、ジフェニルプロパンジイソシアネート等の炭素数8~30の芳香族ジイソシアネートが挙げられる。

[0070] 1分子中のイソシアネート基数が3以上のイソシアネート化合物としては、例えば、芳香族ポリイソシアネート、脂肪族ポリイソシアネート、脂環族ポリイソシアネートが挙げられる。具体的には、2, 4, 6-トリイソシアネートトルエン、1, 3, 5-トリイソシアネートベンゼン、4, 4', 4''-トリフェニルメタントリイソシアネートが挙げられる。

[0071] また、イソシアネート化合物(B1)としては、例えば、イソシアネート基数が2または3以上の上記イソシアネート化合物の、多量体(例えば2量体または3量体、ビウレット体、イソシアヌレート体)、誘導体(例えば、多価アルコールと2分子以上のジイソシアネート化合物との付加反応生成物)、重合物が挙げられる。前記誘導体における多価アルコールとしては、低分子量多価アルコールとして、例えば、トリメチロールプロパン、グリセリン、ペンタエリトリール等の3価以上のアルコールが挙げられ；高分子量多価アルコールとして、例えば、ポリエーテルポリオール、ポリエステルポリオール、アクリルポリオール、ポリブタジエンポリオール、ポリイソプレ

ンポリオールが挙げられる。

[0072] このようなイソシアネート化合物としては、例えば、ジフェニルメタンジイソシアネートの3量体、ポリメチレンポリフェニルポリイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネートまたはトリレンジイソシアネートのビウレット体またはイソシアヌレート体、トリメチロールプロパンとトリレンジイソシアネートまたはキシリレンジイソシアネートとの反応生成物（例えばトリレンジイソシアネートまたはキシリレンジイソシアネートの3分子付加物）、トリメチロールプロパンとヘキサメチレンジイソシアネートとの反応生成物（例えばヘキサメチレンジイソシアネートの3分子付加物）、ポリエーテルポリイソシアネート、ポリエステルポリイソシアネートが挙げられる。

[0073] イソシアネート化合物（B1）の中でも、エージング性を向上させることができる点で、トリメチロールプロパンとトリレンジイソシアネートまたはキシリレンジイソシアネートとの反応生成物（綜研化学（株）製L-45、綜研化学（株）製TD-75等）、ヘキサメチレンジイソシアネートまたはトリレンジイソシアネートのイソシアヌレート体（旭化成（株）製TSE-100、日本ポリウレタン工業（株）製2050等）が好ましい。

[0074] イソシアネート化合物（B1）は1種単独で用いてもよく、2種以上を用いてもよい。

[0075] 《金属キレート化合物（B2）》

金属キレート化合物（B2）としては、例えば、アルミニウム、鉄、銅、亜鉛、スズ、チタン、ニッケル、アンチモン、マグネシウム、バナジウム、クロム、ジルコニウム等の多価金属に、アルコキシド、アセチルアセトン、アセト酢酸エチル等が配位した化合物が挙げられる。

[0076] これらの中でも、特にアルミキレート化合物（綜研化学（株）製M-12AT等）が好ましい。具体的には、アルミニウムイソプロピレート、アルミニウムセカンダリーブチレート、アルミニウムエチルアセトアセテート・ジイソプロピレート、アルミニウムトリスエチルアセトアセテート、アルミニウムトリスアセチルアセトネートが挙げられる。

[0077] 金属キレート化合物（B2）は1種単独で用いてもよく、2種以上を用いてもよい。

[0078] 金属キレート化合物（B2）は、配位結合により（メタ）アクリル系共重合体（A）を架橋する（疑似架橋）。架橋剤（B）として金属キレート化合物（B2）を用いる場合、室温時には前記架橋が維持され、ポリマーが凝集性を発揮するのに対して、高温時には前記架橋が一部解かれ、粘着剤層がより優れた柔軟性を示す。

[0079] 《エポキシ化合物（B3）》

エポキシ化合物（B3）としては、1分子中のエポキシ基数が2以上のエポキシ化合物が通常用いられる。例えば、エチレングリコールジグリシジルエーテル、ポリエチレングリコールジグリシジルエーテル、グリセリンジグリシジルエーテル、グリセリントリグリシジルエーテル、1,3-ビス（N, N-ジグリシジルアミノメチル）シクロヘキサン、N, N, N', N'-テトラグリシジル-m-キシリレンジアミン、N, N, N', N'-テトラグリシジルアミノフェニルメタン、トリグリシジルイソシアヌレート、m-N, N-ジグリシジルアミノフェニルグリシジルエーテル、N, N-ジグリシジルトルイジン、N, N-ジグリシジルアニリンが挙げられる。

[0080] 「シランカップリング剤（C）」

本発明の粘着剤組成物は、さらにシランカップリング剤（C）を含有することが好ましい。シランカップリング剤（C）は、粘着剤層をガラス板等の被着体に対して強固に接着させ、高湿熱環境下で剥がれを防止する点に寄与する。

[0081] シランカップリング剤（C）としては、例えば、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン等の重合性不飽和基含有シランカップリング剤；3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、2-（3,4-エポキシシクロヘキシル）エチ

ルトリメトキシシラン等のエポキシ基含有シランカップリング剤；3-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-(2-アミノエチル)-3-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-(2-アミノエチル)-3-アミノプロピルメチルジメトキシシラン等のアミノ基含有シランカップリング剤；3-クロロプロピルトリメトキシシラン等のハロゲン含有シランカップリング剤が挙げられる。

[0082] 本発明の粘着剤組成物において、シランカップリング剤（C）の含有量は、（メタ）アクリル系共重合体（A）100質量部に対して、通常1質量部以下、好ましくは0.01～1質量部、より好ましくは0.05～0.5質量部である。含有量が前記範囲にあると、高温熱環境下における偏光板の剥がれや、高温環境下におけるシランカップリング剤（C）のブリードが防止される傾向にある。

[0083] 〔帯電防止剤（D）〕

帯電防止剤（D）は、例えば、本発明の粘着剤組成物より形成された粘着剤層の表面抵抗値を低下させるために使用することができる。帯電防止剤（D）としては、例えば、界面活性剤、イオン性化合物、導電性ポリマーが挙げられる。

[0084] 界面活性剤としては、例えば、4級アンモニウム塩類、アミド4級アンモニウム塩類、ピリジウム塩類、第1級～第3級アミノ基等のカチオン性基を有するカチオン性界面活性剤；スルホン酸塩基、硫酸エステル塩基、リン酸エステル塩基等のアニオン性基を有するアニオン性界面活性剤；アルキルベタイン類、アルキルイミダゾリニウムベタイン類、アルキルアミノオキサイド類、アミノ酸硫酸エステル類等の両性界面活性剤、グリセリン脂肪酸エステル類、ソルビタン脂肪酸エステル類、ポリオキシエチレンアルキルアミン類、ポリオキシエチレンアルキルアミン脂肪酸エステル類、N-ヒドロキシエチル-N-2-ヒドロキシアルキルアミン類、アルキルジエタノールアミド類等の非イオン性界面活性剤が挙げられる。

[0085] また、界面活性剤として重合性基を有する反応型乳化剤も挙げられ、上記

の界面活性剤または反応性乳化剤を含むモノマー成分を高分子量化したポリマー系界面活性剤を用いることもできる。

[0086] イオン性化合物は、カチオン部とアニオン部とから構成され、室温下（23℃／50％RH）では固体状でも液体状のいずれであってもよい。

[0087] イオン性化合物を構成するカチオン部としては、無機系カチオンまたは有機系カチオンのいずれか一方であっても双方であってもよい。無機系カチオンとしては、アルカリ金属イオンおよびアルカリ土類金属イオンが好ましく、帯電防止性が優れた Li^+ 、 Na^+ および K^+ がより好ましい。有機系カチオンとしては、例えば、ピリジニウムカチオン、ペリジニウムカチオン、ピロリジニウムカチオン、ピロリンカチオン、ピロールカチオン、イミダゾリウムカチオン、テトラヒドロピリミジニウムカチオン、ジヒドロピリミジニウムカチオン、ピラゾリウムカチオン、ピラゾリニウムカチオン、テトラアルキルアンモニウムカチオン、トリアルキルスルホニウムカチオン、テトラアルキルホスホニウムカチオンおよびこれらの誘導体が挙げられる。

[0088] イオン性化合物を構成するアニオン部としては、カチオン部とイオン結合してイオン性化合物を形成し得るものであれば特に制限されない。具体的には、 F^- 、 Cl^- 、 Br^- 、 I^- 、 AlCl_4^- 、 Al_2Cl_7^- 、 BF_4^- 、 PF_6^- 、 SCN^- 、 ClO_4^- 、 NO_3^- 、 CH_3COO^- 、 CF_3COO^- 、 CH_3SO_3^- 、 CF_3SO_3^- 、 $(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{N}^-$ 、 $(\text{F}_2\text{SO}_2)_2\text{N}^-$ 、 $(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3\text{C}^-$ 、 AsF_6^- 、 SbF_6^- 、 NbF_6^- 、 TaF_6^- 、 $\text{F}(\text{HF})_n^-$ 、 $(\text{CN})_2\text{N}^-$ 、 $\text{C}_4\text{F}_9\text{SO}_3^-$ 、 $(\text{C}_2\text{F}_5\text{SO}_2)_2\text{N}^-$ 、 $\text{C}_3\text{F}_7\text{COO}^-$ および $(\text{CF}_3\text{SO}_2)(\text{CF}_3\text{CO})\text{N}^-$ が挙げられる。これらの中では、フッ素原子を含むアニオンは、低融点のイオン性化合物を与えるので好ましく、 $(\text{F}_2\text{SO}_2)_2\text{N}^-$ および $(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{N}^-$ がとりわけ好ましい。

[0089] イオン性化合物としては、リチウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド、リチウムビス（ジフルオロスルホニル）イミド、リチウムトリス（トリフルオロメタンスルホニル）メタン、カリウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド、カリウムビス（ジフルオロスルホニル）イミド、1-エチルピリジニウムヘキサフルオロホスフェート、1-ブチルピリジニ

ウムヘキサフルオロホスフェート、1-ヘキシル-4-メチルピリジニウムヘキサフルオロホスフェート、1-オクチル-4-メチルピリジニウムヘキサフルオロホスフェート、1-オクチル-4-メチルピリジニウムビス（フルオロスルホニル）イミド、1-オクチル-4-メチルピリジニウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド、（N，N-ジエチル-N-メチル-N-（2-メトキシエチル）アンモニウムテトラフルオロボレート、N，N-ジエチル-N-メチル-N-（2-メトキシエチル）アンモニウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド、1-オクチルピリジニウムフルオロスホニウムイミド、1-オクチル-3-メチルピリジニウム、トリフルオロスルホニウムイミドが好ましい。

[0090] 導電性ポリマーとしては、例えば、ポリチオフェン、ポリアニリン、ポリピロールおよびこれらの誘導体が挙げられる。

[0091] 本発明の粘着剤組成物において、帯電防止剤（D）の含有量は、（メタ）アクリル系共重合体（A）100質量部に対して、通常3質量部以下、好ましくは0.01～3質量部、より好ましくは0.05～2.5質量部である。

[0092] 〔有機溶媒（E）〕

本発明の粘着剤組成物は、その塗布性を調整するため、有機溶媒（E）を含有することが好ましい。有機溶媒としては、（メタ）アクリル系共重合体（A）の欄で説明した重合溶媒が挙げられる。例えば、上記共重合で得られた、（メタ）アクリル系共重合体（A）および重合溶媒を含むポリマー溶液と、架橋剤（B）とを混合して、粘着剤組成物を調製することができる。本発明の粘着剤組成物において、有機溶媒（E）の含有量は、通常50～90質量%、好ましくは60～85質量%である。

[0093] なお、本明細書において「固形分」とは、粘着剤組成物中の含有成分のうち上記有機溶媒（E）を除いた全成分をいい、「固形分濃度」とは、粘着剤組成物100質量%に対する前記固形分の割合をいう。

[0094] 〔添加剤〕

本発明の粘着剤組成物は、上記成分のほか、本発明の効果を損なわない範囲で、酸化防止剤、光安定剤、金属腐蝕防止剤、粘着付与剤、可塑剤、架橋促進剤、前記（Ａ）以外の（メタ）アクリル系重合体およびリワーク剤から選択される１種または２種以上を含有してもよい。

[0095] 〔偏光板用粘着剤組成物の調製〕

本発明の粘着剤組成物は、（メタ）アクリル系共重合体（Ａ）と架橋剤（Ｂ）と、必要に応じて他の成分とを、従来公知の方法により混合することで調製することができる。例えば、（メタ）アクリル系共重合体（Ａ）を合成する際に得られた、当該ポリマーを含むポリマー溶液に、架橋剤（Ｂ）と必要に応じて他の成分とを配合することが挙げられる。

[0096] 本発明の粘着剤組成物は、液晶セルを構成する基板と偏光子との貼り合わせ用途に好適である。特に、薄型化された液晶セルを構成するガラス板の厚さが０．０５～１．０ｍｍ程度と小さい場合においても、当該基板と偏光子との貼り合わせ用途に好適である。

[0097] 本発明の粘着剤組成物より形成された粘着剤のゲル分率は、好ましくは４０質量％以上、より好ましくは５０～８０質量％、さらに好ましくは５５～７０質量％である。前記ゲル分率は、例えば実施例記載の条件により採取された粘着剤について測定される値である。

[0098] 〔偏光板用粘着剤層〕

本発明の偏光板用粘着剤層は、上述の粘着剤組成物より形成される。本発明の粘着剤組成物を用いることで、以下の貯蔵弾性率特性を有する粘着剤層を形成することができる。

[0099] 本発明の粘着剤層は、２３℃における貯蔵弾性率（ $G'1$ ）が、好ましくは０．１０ＭＰａ以上、より好ましくは０．１０～０．２０ＭＰａ、特に好ましくは０．１０～０．１５ＭＰａであり；８５℃における貯蔵弾性率（ $G'2$ ）が、好ましくは０．０５ＭＰａ以下、より好ましくは０．０１～０．０４ＭＰａ、特に好ましくは０．０１～０．０３ＭＰａである。

[0100] 本発明の粘着剤層は、ある温度 T ℃における貯蔵弾性率を G'_T 、 $T+1$ ℃に

における貯蔵弾性率を G'_{T+1} としたとき、温度 T が $23 \sim 50^\circ\text{C}$ の範囲において、 $G'_T/G'_{T+1} < 1.07$ を常に満たすことが好ましく、 $1 \leq G'_T/G'_{T+1} \leq 1.05$ を常に満たすことがより好ましい。

- [0101] 上記貯蔵弾性率は、例えば、上記粘着剤層同士を複数回貼り合わせ、厚さ約 1.0 mm の積層体を作製し、この積層体について測定した動的粘弾性スペクトルより算出される値である。
- [0102] 23°C における貯蔵弾性率(G'_1)が上記範囲にあることにより、本発明の粘着剤層は常温での硬質性に優れ、加工性が向上している。例えば、粘着剤層を裁断する際に、裁断刃に粘着剤が付着することや、粘着剤層の糸曳き等が防止される。
- [0103] 85°C における貯蔵弾性率(G'_2)が上記範囲にあることにより、本発明の粘着剤層は、高温環境下で十分な柔軟性を有しているために、偏光子の熱収縮(寸法変化)に起因する応力を十分に緩和できる。このため、高温環境に晒されても、被着体の反りが低減され、また粘着剤層の断裂、偏光子からの粘着剤層の剥がれが発生しにくい。
- [0104] $23 \sim 50^\circ\text{C}$ の範囲において $G'_T/G'_{T+1} < 1.07$ を常に満たすことは、この温度範囲における弾性率変化が小さいことを意味し、粘着剤層の変形およびはみ出しを抑制することができる。
- [0105] 本発明の粘着剤組成物より形成された粘着剤層は、偏光板の歪み抑制、凝集力、接着力、再剥離性の観点から、ゲル分率が、好ましくは 40 質量%以上、より好ましくは $50 \sim 80$ 質量%、さらに好ましくは $55 \sim 70$ 質量%である。ゲル分率が前記範囲にあると、粘着剤層は優れた耐久性を示す。
- [0106] 本発明の粘着剤層は、例えば、上述の粘着剤組成物中の架橋反応を進めることにより、具体的には(メタ)アクリル系共重合体(A)を架橋剤(B)で架橋することにより得られる。
- [0107] 粘着剤層の形成条件は、例えば以下のとおりである。本発明の粘着剤組成物を支持体上に塗布し、溶媒の種類によっても異なるが、通常 $50 \sim 150^\circ\text{C}$ 、好ましくは $60 \sim 100^\circ\text{C}$ で、通常 $1 \sim 10$ 分間、好ましくは $2 \sim 7$ 分

間乾燥して溶媒を除去し、塗膜を形成する。乾燥塗膜の膜厚は、通常5～75 μm 、好ましくは10～50 μm である。

[0108] 粘着剤層は、以下の条件で形成することが好ましい。本発明の粘着剤組成物を支持体上に塗布し、上記条件で形成された塗膜上にカバーフィルムを貼付した後、通常3日以上、好ましくは7～10日間、通常5～60℃、好ましくは15～40℃、通常30～70%RH、好ましくは40～70%RHの環境下で養生する。上記のような熟成条件で架橋を行うと、効率よく架橋体（ネットワークポリマー）の形成が可能である。

[0109] 粘着剤組成物の塗布方法としては、公知の方法、例えばスピコート法、ナイフコート法、ロールコート法、バーコート法、ブレードコート法、ダイコート法、グラビアコート法などにより、所定の厚さになるように塗布・乾燥する方法を用いることができる。

[0110] 支持体およびカバーフィルムとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）等のポリエステルフィルム；ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン－酢酸ビニル共重合体等のポリオレフィンフィルムなどのプラスチックフィルムが挙げられる。

[0111] 〔偏光板用粘着シート〕

本発明の偏光板用粘着シートは、上述の粘着剤組成物より形成された粘着剤層を有する。粘着シートとしては、例えば、上記粘着剤層のみを有する両面粘着シート、基材と、基材の両面に形成された上記粘着剤層とを有する両面粘着シート、基材と、基材の一方の面に形成された上記粘着剤層を有する片面粘着シート、およびそれら粘着シートの粘着剤層の基材と接していない面に剥離処理されたカバーフィルムが貼付された粘着シートが挙げられる。

[0112] 基材およびカバーフィルムとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）等のポリエステルフィルム；ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン－酢酸ビニル共重合体等のポリオレフィンフィルムなどのプラスチックフィルムが挙げられる。

[0113] 粘着剤層の形成条件は、〔偏光板用粘着剤層〕の欄に記載した条件と同様

である。

[0114] 粘着剤層の膜厚は、粘着性能維持の観点から、通常 $5 \sim 75 \mu\text{m}$ 、好ましくは $10 \sim 50 \mu\text{m}$ である。基材およびカバーフィルムの膜厚は、特に限定されないが、通常 $10 \sim 125 \mu\text{m}$ 、好ましくは $25 \sim 75 \mu\text{m}$ である。

[0115] 〔粘着剤層付き偏光板〕

本発明の粘着剤層付き偏光板は、偏光子の少なくとも一方の面に直接積層された、本発明の粘着剤組成物より形成された粘着剤層を有する。なお、本明細書では、「偏光板」は「偏光フィルム」を包含する意味で用いる。

[0116] 偏光板としては、従来公知の偏光フィルムを使用することができる。例えば、偏光子そのもの、偏光子と、偏光子上に配置された偏光子保護膜とを有する多層フィルムが挙げられる。本発明では、偏光子に上記粘着剤層が直接接して配置されることから、偏光子の片面のみに偏光子保護膜が配置された構成、偏光子の両面に偏光子保護膜が配置されていない構成が挙げられる。

[0117] 偏光子としては、例えば、ポリビニルアルコール系樹脂からなるフィルムに偏光成分を含有させて、延伸することにより得られる延伸フィルムが挙げられる。ポリビニルアルコール系樹脂としては、例えば、ポリビニルアルコール、ポリビニルホルマール、ポリビニルアセタール、エチレン・酢酸ビニル共重合体の鹼化物が挙げられる。偏光成分としては、例えば、ヨウ素または二色性染料が挙げられる。

[0118] 偏光子保護膜としては、例えば、熱可塑性樹脂からなるフィルムが挙げられる。熱可塑性樹脂としては、例えば、トリアセチルセルロース等のセルロース樹脂、ポリエステル樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリオレフィン樹脂、(メタ)アクリル樹脂、環状ポリオレフィン樹脂(ノルボルネン系樹脂)、ポリアリレート樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリビニルアルコール樹脂、およびこれらの樹脂から選択される2種以上の混合物が挙げられる。

[0119] 偏光板の厚さは、通常 $10 \sim 200 \mu\text{m}$ 、好ましくは $50 \sim 100 \mu\text{m}$ である。本発明では、偏光子上に形成される偏光子保護膜を省略することがで

きるため、偏光板を薄型化することができる。

[0120] 本発明では、上記粘着剤層が、偏光子に直接接して形成される。本発明の粘着剤層付き偏光板としては、例えば、偏光子保護膜と偏光子と上記粘着剤層とがこの順で積層された構成、上記粘着剤層と偏光子保護膜と偏光子と上記粘着剤層とがこの順で積層された構成、上記粘着剤層と偏光子と上記粘着剤層とがこの順で積層された構成が挙げられる。これらの構成では、粘着剤層上には最外層として上述したカバーフィルムが配置されていてもよい。

[0121] 偏光子表面に粘着剤層を形成する方法に特に制限はなく、偏光子表面に直接バーコーター等を用いて上記粘着剤組成物を塗布し乾燥および熟成させる方法、本発明の偏光板用粘着シートが有する粘着剤層を偏光子表面に転写し熟成させる方法が挙げられる。乾燥および熟成の条件やゲル分率の範囲等は、〔偏光板用粘着剤層〕の欄に記載した条件と同様である。

[0122] 粘着剤層の厚さは、乾燥膜厚で通常5～75 μm 、好ましくは10～50 μm である。なお、粘着剤層は、偏光子の少なくとも一方の面上で偏光子と接して形成されていればよく、偏光子の片面のみに粘着剤層が形成される態様、偏光子の両面に粘着剤層が形成される態様が挙げられる。

[0123] また、上記偏光板には、例えば保護層、防眩層、位相差層、視野角向上層等の他の機能を有する層が積層されていてもよい。

[0124] 上記のようにして得られる本発明の粘着剤層付き偏光板を液晶セルの基板表面に設けることにより液晶素子が製造される。ここで液晶セルは、液晶層が2枚の基板間に挟まれた構造を有している。

[0125] 液晶セルが有する基板としては、例えばガラス板が挙げられる。基板の厚さとしては、通常0.05～3 mm、好ましくは0.2～1 mmである。本発明では、上記粘着剤組成物を用いることで、偏光子上に粘着剤層が直接積層される場合でも、偏光板および基板の反りを抑制することができる。このため、基板の厚さが小さい場合（例：1 mm以下、好ましくは0.2～1 mm）にも、偏光板と基板との貼り合わせに、上記粘着剤組成物は好適に用いることができる。

実施例

[0126] 以下、本発明を実施例に基づいてさらに具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されない。以下の実施例等の記載において、特に言及しない限り、「部」は「質量部」を示す。

[0127] 〔GPC〕

(メタ) アクリル系共重合体について、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー法 (GPC法) により、下記条件で、重量平均分子量 (M_w) および数平均分子量 (M_n) を求めた。

- ・測定装置：HLC-8320GPC (東ソー (株) 製)
- ・GPCカラム構成：以下の4連カラム (すべて東ソー (株) 製)
 - (1) TSKgel HxL-H (ガードカラム)
 - (2) TSKgel GMHxL
 - (3) TSKgel GMHxL
 - (4) TSKgel G2500HxL
- ・流速：1.0 mL/min
- ・カラム温度：40℃
- ・サンプル濃度：1.5% (w/v) (テトラヒドロフランで希釈)
- ・移動相溶媒：テトラヒドロフラン
- ・標準ポリスチレン換算

〔合成例1〕

攪拌機、還流冷却器、温度計および窒素導入管を備えた反応装置に、2-エチルヘキシルアクリレート39部、2-エチルヘキシルメタクリレート56部、2-ヒドロキシエチルメタクリレート5部および酢酸エチル溶媒100部を仕込み、窒素ガスを導入しながら80℃に昇温した。次いで、2, 2'-アゾビスイソブチロニトリル0.1部を加え、窒素ガス雰囲気下、80℃で6時間重合反応を行った。反応終了後、酢酸エチルにて希釈し、固形分濃度30質量%のポリマー溶液を調製した。得られた(メタ)アクリル系共重合体A1の重量平均分子量 (M_w) は91万であり、分子量分布 (M_w/M_n)

n) は 6. 2 であった。

[0128] 〔合成例 2 ～ 5〕

重合反応に用いたモノマー成分を表 1 に記載したとおりに変更したこと以外は合成例 1 と同様に行い、固形分濃度 3 0 質量%のポリマー溶液を調製した。結果を表 1 に示す。

[0129]

[表1]

モノマー成分	合成例				
	1	2	3	4	5
	(メタ)アクリル系共重合体				
	A1	A2	A3	A4	A5
	39	55		20	60
	ステアリルアクリレート				
					35
	56		95	75	
	2-エチルヘキシルメタクリレート				
		45			
モノマー成分	イソデシルメタクリレート				
	5	5	5	5	5
	2-ヒドロキシエチルメタクリレート				
Mw(万)					
Mw/Mn					
FoXの式によるTg(°C)					
-35					-38
-56					-22
6.7					6.3
88					87
91					87
6.2					6.3
86					87
6.5					6.3
-7					-38

(1) 粘着剤組成物の調製

合成例 1 で得られたポリマー溶液（固形分濃度 30 質量％）と、当該溶液に含まれる（メタ）アクリル系共重合体 A 1 100 部（固形分量）に対して、イソシアネート化合物として綜研化学（株）製「TD-75」（固形分 75 質量％、酢酸エチル溶液）0.2 部（固形分量）と、シランカップリング剤として信越化学工業（株）製「KBM-403」（固形分 100 質量％）0.2 部とを混合して、粘着剤組成物を得た。

[0131] (2) 粘着シートの作製

剥離処理されたポリエチレンテレフタレートフィルム（PET フィルム）上に、上記（1）で得られた粘着剤組成物を、泡抜け後、ドクターブレードを用いて塗布し、90℃で3分間乾燥して、乾燥膜厚 20 μm の塗膜を形成した。塗膜の前記 PET フィルムの貼付面とは反対面に、剥離処理された PET フィルムをさらに貼り合わせ、23℃／50%RH 環境下で7日間静置して熟成させて、2 枚の PET フィルムに挟まれた厚さ 20 μm の粘着剤層を有する粘着シートを得た。

[0132] (3) 粘着剤層付き偏光板の作製

剥離処理されたポリエチレンテレフタレートフィルム（PET フィルム）上に、上記（1）で得られた粘着剤組成物を、泡抜け後、ドクターブレードを用いて塗布し、90℃で3分間乾燥して、乾燥膜厚 20 μm の塗膜を有するシートを得た。当該シートの塗膜面と、偏光子であるポリビニルアルコールフィルムと偏光子保護膜であるトリアセチルセルロースフィルムとからなる 2 層構成（厚さ 60 μm）の偏光板の、ポリビニルアルコールフィルム面とが接するように貼り合わせ、23℃／50%RH の条件で7日間静置して熟成させて、PET フィルムと厚さ 20 μm の粘着剤層と偏光子と偏光子保護膜とを有する粘着剤層付き偏光板を得た。

[0133] [実施例 2、比較例 1～3]

実施例 1 において、ポリマー溶液を合成例 2～5 で得られたポリマー溶液に変更し、配合組成を表 2 に記載したとおりに変更したこと以外は実施例 1

と同様にして、粘着剤組成物、粘着シートおよび粘着剤層付き偏光板を得た。

[0134] 〔評価〕

〔ゲル分率〕

実施例・比較例で得られた粘着シートから、粘着剤約0.1gをサンプル瓶に採取し、酢酸エチル30mLを加えて4時間振盪した後、このサンプル瓶の内容物を200メッシュのステンレス製金網で濾過し、金網上の残留物を100℃で2時間乾燥して乾燥重量を測定した。次式により、粘着剤のゲル分率を求めた。

$$\cdot \text{ゲル分率}(\%) = (\text{乾燥重量} / \text{粘着剤採取重量}) \times 100(\%)$$

〔貯蔵弾性率〕

実施例・比較例で得られた粘着シートにおいて、厚さ20μmの粘着剤層同士を23℃/50%RH環境下で複数回貼り合わせ、50℃/5atmのオートクレーブで20分間処理して、厚さ1.0mmの粘着剤層を作製した。この厚さ1.0mmの粘着剤層について、Anton Paar製「Physica MCR300」を用いて、JIS K7244に準拠した動的粘弾性測定法（温度範囲-40～160℃、昇温速度3.67℃/分、周波数1Hzの条件）により粘弾性スペクトルを測定し、温度23℃および85℃における貯蔵弾性率、23～50℃の範囲における G'_T / G'_{T+1} の最大値を決定した。

[0135] 〔粘着力の測定〕

実施例・比較例で得られた粘着剤層付き偏光板（PETフィルム/粘着剤層/偏光子/偏光子保護膜からなる積層体）を70mm×25mmの大きさに裁断して、試験片を作成した。試験片からPETフィルムを剥離し、ラミネーターロールを用いて、粘着剤層/偏光子/偏光子保護膜からなる積層体を、厚さ2mmのガラス板の片面に、粘着剤層とガラス板とが接するように貼着した。得られた積層体を、50℃/5気圧に調整されたオートクレーブ中に20分間保持した。次いで23℃/50%RH環境下に1時間放置した

後、ガラス板面に対して90°方向に300mm/minの速度で偏光板端部を引っ張り、粘着力（剥離強度）を測定した。

[0136] 〔水蒸気透過率〕

水蒸気透過率は、JIS Z0208に準じて、以下の様にして測定した。
「（２）粘着シートの作製」の欄に記載した方法と同様にして、厚さ50μmの粘着剤層を有する粘着シートを作成した。この粘着シートからPETフィルムを剥離し、粘着剤層の両面に不織布を貼り合わせ（得られた積層体を「シートA」という）、透湿カップの径に合わせて裁断した。透湿カップ（内径60mm）に塩化カルシウム10gを入れ、裁断したシートA、ゴムパッキン、カバーリングをセットして、ボルトで固定した。40℃/90%RHの恒温恒湿条件下に、シートA等をセットした透湿カップを投入し、24時間後に透湿カップを取り出し、透湿カップの重量を秤量した（初期重量）。秤量した透湿カップを40℃/90%RH条件下に戻し、24時間おきに重量を秤量した。24時間毎の質量増加が5%以内の範囲になった時点で、最後の質量変化量、測定間隔から、下記式を用いて、水蒸気透過率を算出した。

[0137] 水蒸気透過率 $[g/m^2/day] = 240 \times M / T \times S$

M：試験を行った最後の二つの秤量間隔の増加質量（mg）

T：試験を行った最後の二つの秤量間隔の時間（時間）

S：透過面積（cm²）

〔耐久性試験（耐熱性・耐湿熱性試験）〕

実施例・比較例で得られた粘着剤層付き偏光板（PETフィルム／粘着剤層／偏光子／偏光子保護膜からなる積層体）を150mm×250mmの大きさに裁断して、試験片を作成した。試験片からPETフィルムを剥離し、ラミネーターロールを用いて、粘着剤層／偏光子／偏光子保護膜からなる積層体を、厚さ0.5mmのガラス板の片面に、粘着剤層とガラス板とが接するように貼着した。得られた積層体を、50℃/5気圧に調整されたオートクレーブ中に20分間保持して、試験板を作成した。同様の試験板を2枚作

成した。前記試験板を、温度 80℃の条件下（耐熱性）または温度 60℃／湿度 90％RHの条件下（耐湿熱性）で 500 時間放置し、以下の基準で発泡、浮き、剥がれの発生を観察して評価した。

- [0138] A A : 発泡、浮き、剥がれ等の外観不良は観察されなかった
 B B : 発泡、浮き、剥がれ等の外観不良が僅かに観察された
 C C : 発泡、浮き、剥がれ等の外観不良が明らかに観察された

〔反り（ベンディング）試験〕

実施例・比較例で得られた粘着剤層付き偏光板（PET フィルム／粘着剤層／偏光子／偏光子保護膜からなる積層体）を 35 mm×400 mm（延伸軸方向）の大きさに裁断して、試験片を作成した。試験片から PET フィルムを剥離し、ラミネーターロールを用いて、粘着剤層／偏光子／偏光子保護膜からなる積層体を、厚さ 0.7 mm、40 mm×410 mm のガラス板の片面に、粘着剤層とガラス板とが接するように貼着した。得られた積層体を、23℃／50％RH 環境下に 24 時間放置した後、60℃のオーブン中に 72 時間保持した。片方の末端を床面に対して垂直な壁面に固定し、逆側末端の浮き上がり量を定規で測定した。以下の基準で反り（ベンディング）の観察を行った。

- [0139] A A : 末端の浮き上がりが 3 mm 以下
 B B : 末端の浮き上がりが 3 mm を超えて 5 mm 未満
 C C : 末端の浮き上がりが 5 mm 以上

〔加工性（裁断性）〕

実施例・比較例で得られた粘着シートを、トムソン打抜機を用いて 50 mm×50 mm のトムソン刃で 30 枚カットした。裁断直後、端部の形状を観察し、糊のはみ出しや端部の潰れ、粘着剤層の欠損が 30 枚中に 1 か所もみられないものを A A、みられるものを C C と判定した。

[0140] 〔粘着変形性〕

実施例・比較例で得られた粘着剤層付き偏光板を 100 mm×100 mm に裁断したものを、10 枚積層させ、上から 1 kg の荷重をかけて 24 時間

放置し、以下の基準で粘着剤層のはみ出しを目視で観察した。

- [0141] A A : 粘着剤層のはみ出しは観察されなかった
 B B : 粘着剤層のはみ出しが僅かに観察された
 C C : 粘着剤層のはみ出しが明らかに観察された

[0142]

[表2]

表2		実施例 1	実施例 2	比較例 1	比較例 2	比較例 3
粘着剤 組成物	(メタ)アクリル系共重合体	A1	A2	A3	A4	A5
	架橋剤 TD-75	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
	シランカップリング剤 KBM-403	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
粘着剤層 の物性	ゲル分率(質量%)	61	64	65	64	66
	貯蔵弾性率	0.12	0.16	0.21	0.15	0.12
	粘着力	1.04	1.05	1.04	1.05	1.08
	水蒸気透過率	780	810	700	720	770
	耐熱試験	320	330	290	300	600
	耐湿熱試験	AA	BB	CC	CC	CC
	反り試験	AA	BB	CC	BB	BB
加工性	加工性	AA	AA	CC	CC	AA
	粘着変形性	AA	AA	AA	AA	CC
		AA	AA	AA	AA	CC
		AA	AA	AA	AA	CC

※粘着剤組成物の処方、(メタ)アクリル系共重合体100質量部に対する含有量(質量部)であり、固形分比で記載した。

[0143] (メタ)アクリル系共重合体を形成するモノマーとして、(1)実施例に

示すとおり、モノマー（a 1）とモノマー（a 2）とを上記特定の割合で用いた例では、耐久性、反り抑制、加工性および粘着非変形性に優れており、（2）比較例 1 に示すとおり、モノマー（a 1）を用いない例では、耐熱性および反り抑制に劣り、（3）比較例 2 に示すとおり、モノマー（a 1）とモノマー（a 2）とを上記特定の割合で用いていない例では、耐熱性および反り抑制に劣り、（4）比較例 3 に示すとおり、モノマー（a 2）を用いない例では、加工性および粘着非変形性に劣る結果となった。

請求の範囲

- [請求項1] (A) アルキル基の炭素数が8以上のアクリル酸アルキルエステル (a 1) を30質量%以上90質量%未満、アルキル基の炭素数が8以上のメタクリル酸アルキルエステル (a 2) を10質量%以上70質量%未満、および架橋性官能基含有モノマー (a 3) を0質量%を超えて10質量%以下の量で含むモノマー成分を共重合して得られた (メタ) アクリル系共重合体と、
(B) 架橋剤と
を含有し、
偏光子と直接接する粘着剤層を形成するために用いられる
ことを特徴とする偏光板用粘着剤組成物。
- [請求項2] 前記偏光板用粘着剤組成物より形成された粘着剤のゲル分率が、40質量%以上である、請求項1に記載の偏光板用粘着剤組成物。
- [請求項3] 請求項1または2に記載の粘着剤組成物より形成された偏光板用粘着剤層。
- [請求項4] 23℃における貯蔵弾性率が0.10MPa以上であり、
85℃における貯蔵弾性率が0.05MPa以下であり、かつ、
ある温度T℃における貯蔵弾性率を G'_T 、T+1℃における貯蔵弾性率を G'_{T+1} としたとき、温度Tが23～50℃の範囲において、 $G'_T / G'_{T+1} < 1.07$ を常に満たす、
請求項3に記載の偏光板用粘着剤層。
- [請求項5] 請求項3または4に記載の粘着剤層を有する偏光板用粘着シート。
- [請求項6] 偏光子の少なくとも一方の面に直接積層された、請求項3または4に記載の粘着剤層を有する粘着剤層付き偏光板。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/078305

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

G02B5/30(2006.01)i, C09J7/00(2006.01)i, C09J7/02(2006.01)i, C09J133/08(2006.01)i, C09J133/10(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

G02B5/30, C08F20/12-20/18, C08F20/68, C08F220/10-220/18, C08F220/68, C08L33/04-33/16, C09J7/00-7/04, C09J133/06-133/12

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

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	JP 2013-1761 A (Nitto Denko Corp.),	1-6
Y	07 January 2013 (07.01.2013), entire text; all drawings; particularly, paragraphs [0112] to [0113]; examples 3 to 4 & US 2014/0093726 A1 entire text; all drawings; particularly, paragraphs [0115] to [0116]; examples 3 to 4 & EP 2722377 A1 & WO 2012/173039 A1 & TW 201307505 A & CN 103582685 A & KR 10-2014-0022015 A	1-6

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
22 December 2015 (22.12.15)

Date of mailing of the international search report
12 January 2016 (12.01.16)

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/JP2015/078305

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2012-246477 A (Nitto Denko Corp.), 13 December 2012 (13.12.2012), entire text; all drawings; particularly, paragraphs [0125] to [0126]; examples 5, 16 & US 2014/0065417 A1 entire text; all drawings; particularly, paragraphs [0129] to [0130]; examples 5, 16 & EP 2706102 A1 & WO 2012/150682 A1 & TW 201245369 A & CN 103492516 A & KR 10-2014-0031920 A & JP 5469194 B2	1-6 1-6
Y	JP 2012-247574 A (Nitto Denko Corp.), 13 December 2012 (13.12.2012), entire text; particularly, claim 1; paragraphs [0025], [0074] & US 2012/0300299 A1 entire text; particularly, claim 1; paragraphs [0036], [0088] & CN 102798920 A & TW 201307512 A	1-6

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. G02B5/30(2006.01)i, C09J7/00(2006.01)i, C09J7/02(2006.01)i, C09J133/08(2006.01)i, C09J133/10(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. G02B5/30, C08F20/12-20/18, C08F20/68, C08F220/10-220/18, C08F220/68, C08L33/04-33/16, C09J7/00-7/04, C09J133/06-133/12

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 5 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 5 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 5 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 2013-1761 A（日東電工株式会社）2013.01.07, 全文、全図、特に、段落[0112]-[0113]、実施例 3-実施例 4 & US 2014/0093726 A1、全文、全図、特に、段落[0115]-[0116]、Examples 3-4 & EP 2722377 A1 & WO 2012/173039 A1 & TW 201307505 A & CN 103582685 A & KR 10-2014-0022015 A	1-6 1-6
X Y	JP 2012-246477 A（日東電工株式会社）2012.12.13, 全文、全図、特に、段落[0125]-[0126]、実施例 5、実施例 16	1-6 1-6

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の 1 以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

2 2 . 1 2 . 2 0 1 5

国際調査報告の発送日

1 2 . 0 1 . 2 0 1 6

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官（権限のある職員）

森内 正明

2 0

9 2 2 2

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 2 7 1

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
Y	& US 2014/0065417 A1、全文、全図、特に、段落[0129]-[0130]、Examples 5, 16 & EP 2706102 A1 & WO 2012/150682 A1 & TW 201245369 A & CN 103492516 A & KR 10-2014-0031920 A & JP 5469194 B2 JP 2012-247574 A (日東電工株式会社) 2012. 12. 13, 全文、特に、請求項 1、段落[0025]、[0074] & US 2012/0300299 A1、全文、特に、Claim 1、段落[0036]、[0088] & CN 102798920 A & TW 201307512 A	1-6