

(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
2011年9月29日(29.09.2011)



(10) 国際公開番号

WO 2011/118315 A1

(51) 国際特許分類:

C08L 21/00 (2006.01) H01L 41/193 (2006.01)
C08K 3/00 (2006.01) H01L 41/26 (2006.01)
H01B 1/24 (2006.01) H05K 1/09 (2006.01)
H01B 13/00 (2006.01)

〒4858550 愛知県小牧市東三丁目1番地 東海ゴム工業株式会社内 Aichi (JP). 高橋 渉(TAKA-HASHI Wataru) [JP/JP]; 〒4858550 愛知県小牧市東三丁目1番地 東海ゴム工業株式会社内 Aichi (JP).

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2011/053812

(74) 代理人: 東口 倫昭, 外(HIGASHIGUCHI Michia-ki et al.); 〒4510051 愛知県名古屋市西区則武新町4-4-19 SG名古屋駅ビル402号室 東口特許事務所 Aichi (JP).

(22) 国際出願日:

2011年2月22日(22.02.2011)

(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 2010-065805 2010年3月23日(23.03.2010) JP

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 東海ゴム工業株式会社(TOKAI RUBBER INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒4858550 愛知県小牧市東三丁目1番地 Aichi (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 小林 淳(KOBAYASHI Jun) [JP/JP]; 〒4858550 愛知県小牧市東三丁目1番地 東海ゴム工業株式会社内 Aichi (JP). 吉川 均(YOSHIKAWA Hitoshi) [JP/JP];

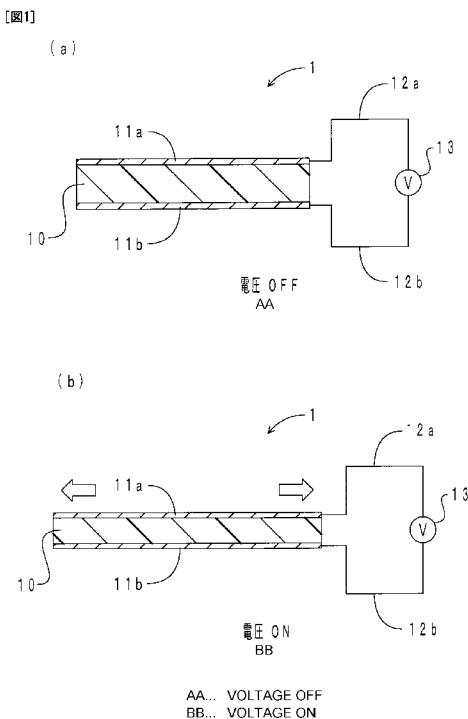
(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, 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, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア

[続葉有]

(54) Title: ELECTROCONDUCTIVE CROSSLINKED PRODUCT, PROCESS FOR PRODUCING SAME, AND TRANSDUCER, FLEXIBLE WIRING BOARD AND ELECTROMAGNETIC-WAVE SHIELD MADE BY USING SAME

(54) 発明の名称: 導電性架橋体、およびその製造方法、並びにそれを用いたトランステューサ、フレキシブル配線板、電磁波シールド



(57) Abstract: Provided is a flexible and highly-durable electroconductive crosslinked product in which reaction residues remaining after crosslinking have little effect on articles to which said residues adhere. Also provided is a process for producing the electroconductive crosslinked product. The electroconductive crosslinked product is synthesized from an electroconductive composition containing a rubber polymer, an organometallic compound, and an electroconductive agent, and has a crosslinked structure. The disclosed process for producing the electroconductive crosslinked product involves: a mixed-solution preparation step of preparing a mixed solution by mixing a rubber polymer, an electroconductive agent, and an organometallic compound into a solvent that is capable of dissolving the rubber polymer and chelating the organometallic compound; and a crosslinking step of removing the solvent from the mixed solution and letting a crosslinking reaction proceed. The electroconductive crosslinked product is suitable for electrodes and wirings of transducers, for wirings of flexible wiring boards, and for electromagnetic-wave shields.

(57) 要約: 架橋後の反応残渣による被着体への影響が小さく、柔軟で耐久性に優れた導電性架橋体、およびその製造方法を提供する。導電性架橋体は、ゴムポリマーと、有機金属化合物と、導電剤と、を含む導電性組成物から合成され、架橋構造を有する。導電性架橋体の製造方法は、ゴムポリマーが溶解可能であり、かつ、有機金属化合物をキレート化できる溶剤中に、ゴムポリマーと、導電剤と、有機金属化合物と、を混合した混合溶液を調製する混合溶液調製工程と、該混合溶液から溶剤を除去して、架橋反応を進行させる架橋工程と、を有する。導電性架橋体は、トランステューサの電極や配線、フレキシブル配線板の配線、電磁波シールドとして好適である。



(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ 添付公開書類:
(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 — 国際調査報告（条約第 21 条(3))
(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR,
NE, SN, TD, TG). — 補正された請求の範囲及び説明書（条約第 19
条(1))

明 細 書

発明の名称：

導電性架橋体、およびその製造方法、並びにそれを用いたトランスデューサ、フレキシブル配線板、電磁波シールド

技術分野

[0001] 本発明は、伸縮可能な電極、配線等に好適な導電性架橋体、およびその製造方法、並びにそれを用いたトランスデューサ、フレキシブル配線板、電磁波シールドに関する。

背景技術

[0002] 誘電体エラストマー等の高分子材料を利用して、柔軟性が高く、小型で軽量なトランスデューサの開発が進められている。トランスデューサの一例として、一対の電極間に、エラストマー製の誘電膜を介装して、アクチュエータを構成することができる（例えば、特許文献1～3参照）。この種のアクチュエータでは、電極間への印加電圧を大きくすると、電極間の静電引力が大きくなる。このため、電極間に挟まれた誘電膜は厚さ方向から圧縮され、誘電膜の厚さは薄くなる。膜厚が薄くなると、その分、誘電膜は電極面に対して平行方向に伸長する。一方、電極間への印加電圧を小さくすると、電極間の静電引力が小さくなる。このため、誘電膜に対する厚さ方向からの圧縮力が小さくなり、誘電膜の弾性復元力により膜厚は厚くなる。膜厚が厚くなると、その分、誘電膜は電極面に対して平行方向に収縮する。電極は、誘電膜の厚さ方向両面に固定されている。したがって、電極には、誘電膜の伸長、収縮を妨げないように、誘電膜の変形に応じて伸縮可能であることが要求される。

[0003] 例えば、バインダー樹脂に銀粉末が配合されている市販の銀ペーストは、柔軟性に乏しい。つまり、バインダー自体の弾性率が高いことに加えて、銀粉末が高充填されているため、銀ペーストの弾性率は高く、破断伸びは低い。このため、大きく伸長されると、クラックが発生し、著しく電気抵抗が増

加してしまう。また、アクチュエータの電極に使用した場合には、誘電膜の伸縮に追従できず、誘電膜の動きを阻害するおそれがある。

[0004] これに対して、例えば特許文献2には、カーボンナノファイバーを誘電膜の厚さ方向両面に付着して、電極を形成することが記載されている。また、特許文献3には、エラストマー等のバインダーに、カーボンブラック等の導電剤を配合したペーストから、電極を形成することが記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特表2003-506858号公報

特許文献2：特開2005-223025号公報

特許文献3：特開2009-296703号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 特許文献2に記載されているように、導電性を有する纖維や粉末（導電剤）をバインダーを使わずに誘電膜に付着させた場合には、伸縮を繰り返すうちに導電剤の位置が移動して、導電剤の分布が変化するおそれがある。こうなると、所望の導電性が得られない。また、導電剤が脱落すれば、周囲を汚染するおそれがある。

[0007] また、特許文献3に記載されているように、バインダーとしてエラストマーを用いる場合には、エラストマー中の不純物が誘電膜に移動するおそれがある。不純物としては、エラストマー中に残存する未反応の架橋剤や架橋助剤等、あるいは架橋剤や架橋助剤等の分解物（反応残渣）が考えられる。不純物が誘電膜に移動すると、誘電膜の電気抵抗が低下する。これにより、電圧を印加した時に、電流が誘電膜中を流れやすくなる。つまり、誘電膜と電極との界面に電荷が溜まりにくく、消費電力が増加してしまう。また、電流が誘電膜中を流れるとき、発生するジュール熱により、誘電膜の物性が変化するおそれがある。さらには、誘電膜が破壊されるおそれがある。このため、

大きな電圧を印加することができない。一方、不純物の問題を考慮して、未架橋のエラストマーをバインダーとして用いると、伸縮の繰り返しに伴う変形を避けられず、所望の耐久性を得られない。

- [0008] また、上記不純物の移動は、アクチュエータの他、誘電膜を介して電極を配置するセンサや発電素子等においても、問題となる。さらに、エラストマー等の弾性基材の表面に、エラストマーをバインダーとするペーストから配線を形成した場合にも、問題となる。すなわち、配線から弾性基材に不純物が移動することにより、弾性基材の電気抵抗が低下して、いわゆる漏れ電流が増加するおそれがある。
- [0009] 本発明は、このような実情に鑑みてなされたものであり、架橋後の反応残渣による被着体への影響が小さく、柔軟で耐久性に優れた導電性架橋体、およびその製造方法を提供することを課題とする。また、当該導電性架橋体を使用して、性能安定性、耐久性に優れたトランスデューサ、フレキシブル配線板、および電磁波シールドを提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

- [0010] (1) 上記課題を解決するため、本発明の導電性架橋体は、ゴムポリマーと、有機金属化合物と、導電剤と、を含む導電性組成物から合成され、架橋構造を有することを特徴とする。
- [0011] 本発明の導電性架橋体は、未架橋のゴムポリマーが有機金属化合物により架橋されて生成される。あるいは、有機金属化合物の架橋体中に、未架橋あるいは架橋後のゴムポリマーが侵入して生成される。すなわち、本発明の導電性架橋体においては、架橋による三次元網目構造が、従来の架橋剤ではなく、有機金属化合物により形成されている。有機金属化合物によるゾルゲル反応では、反応残渣が生じにくい。また、反応残渣が生じても、誘電膜等の被着体への影響は小さいと考えられる。
- [0012] したがって、例えば、誘電膜の厚さ方向両面に、本発明の導電性架橋体からなる電極を配置して、アクチュエータを構成した場合には、電極から誘電膜へ移動する不純物が少ない。このため、誘電膜の電気抵抗は低下しにくい

。よって、電極間への電圧印加により、誘電膜と電極との界面に、多くの電荷を蓄えることができる。これにより、消費電力が低減される。また、電流が誘電膜中を流れにくいため、ジュール熱の発生が抑制される。したがって、熱により、誘電膜の物性が変化したり、誘電膜が破壊されるおそれがない。

[0013] また、本発明の導電性架橋体は、架橋構造を有する。このため、伸縮を繰り返してもへたりにくく、形状保持性に優れる。つまり、本発明の導電性架橋体は、柔軟であると共に耐久性に優れる。また、導電剤は、架橋構造を有するバインダー中に分散されている。このため、伸縮により導電剤の分布が変化しにくい。したがって、伸縮を繰り返しても、所望の導電性を得ることができる。また、導電剤の脱落により、周囲を汚染するおそれも小さい。

[0014] (2) また、上記本発明の導電性架橋体の製造に好適な、本発明の導電性架橋体の製造方法は、前記ゴムポリマーが溶解可能であり、かつ、前記有機金属化合物をキレート化できる溶剤中に、該ゴムポリマーと、前記導電剤と、該有機金属化合物と、を混合した混合溶液を調製する混合溶液調製工程と、該混合溶液から該溶剤を除去して、架橋反応を進行させる架橋工程と、を有することを特徴とする。

[0015] 有機金属化合物は、水と反応して加水分解すると共に、脱水反応あるいは脱アルコール反応により重縮合して（ゾルゲル反応）、架橋構造を形成する。一般に、有機金属化合物は、水との反応性が高く、取扱いが難しい。この点、本発明の製造方法によると、有機金属化合物をキレート化することにより、水との急激な反応を抑制することができる。すなわち、本発明の製造方法において、溶剤は、ゴムポリマーを溶解させると共に、キレート剤としての役割を果たす。つまり、混合溶液調製工程において、有機金属化合物はキレート化される。これにより、有機金属化合物の加水分解が抑制される。その後、架橋工程において、溶剤を除去する。つまり、キレート剤を除去する。すると、有機金属化合物の加水分解が促進され、重縮合による架橋反応が進行する。

[0016] このように、本発明の製造方法によると、有機金属化合物の反応速度を遅くすることができる。加えて、溶剤中で原料を混合するため、導電剤の分散性が向上する。したがって、均質な導電性架橋体を得ることができる。また、溶剤は、ゴムポリマーを溶解させる溶媒としての役割と、キレート剤としての役割と、の両方を果たす。このため、ゴムポリマーを溶解させる溶媒とキレート剤とを別々に準備する必要がない。よって、製造工程が簡略化され、実用的である。

[0017] (3) また、本発明のトランスデューサは、エラストマー製の誘電膜と、該誘電膜を介して配置されている複数の電極と、複数の該電極と各々接続されている配線と、を備え、該電極および該配線の少なくとも一方は、上記本発明の導電性架橋体からなることを特徴とする。

[0018] トランスデューサには、機械エネルギーと電気エネルギーとの変換を行うアクチュエータ、センサ、発電素子等、あるいは音響エネルギーと電気エネルギーとの変換を行うスピーカ、マイクロフォン等がある。本発明のトランスデューサによると、電極および配線の少なくとも一方が、上記本発明の導電性架橋体からなる。よって、誘電膜が変形すると、当該変形に追従して、電極等が伸縮する。このため、トランスデューサの動きが、電極等により妨げられにくい。また、伸縮を繰り返しても、電極等がへたりにくい。また、電極等の導電性も変化しにくい。さらに、電極等から誘電膜へ移動する不純物が少ない。このため、誘電膜の電気抵抗が低下するおそれは小さい。したがって、本発明のトランスデューサは、性能安定性および耐久性に優れる。

[0019] (4) また、本発明のフレキシブル配線板は、伸縮可能な弾性基材と、該弾性基材の表面に配置されている配線と、を備え、該配線の少なくとも一部は、上記本発明の導電性架橋体からなることを特徴とする。

[0020] 本発明のフレキシブル配線板によると、弾性基材の変形に追従して配線が伸縮する。また、伸縮を繰り返しても、配線がへたりにくい。また、配線の導電性も変化しにくい。さらに、配線から弾性基材へ移動する不純物が少ない。このため、弾性基材の電気抵抗が低下して、いわゆる漏れ電流が増加す

るおそれは小さい。したがって、本発明のフレキシブル配線板は、性能安定性および耐久性に優れる。

[0021] (5) 本発明の電磁波シールドは、上記本発明の導電性架橋体からなることを特徴とする。

[0022] 本発明の電磁波シールドは、本発明の導電性架橋体を構成するゴムポリマー等の原料を溶剤に混合した混合溶液から、形成することができる。また、溶剤を用いずに、原料を混練した混練物をプレス成形や押出成形して、形成することができる。したがって、本発明の電磁波シールドにおいては、形状の制約が少ない。このため、電磁波を遮蔽したい様々な部位へ、容易に配置することができる。

[0023] 本発明の電磁波シールドは、伸縮を繰り返してもへたりにくい。また、その導電性も変化しにくい。このため、伸縮性を有する部材に使用しても、シールド性能が低下しにくい。また、本発明の電磁波シールドによると、電磁波シールド（導電性架橋体）中の不純物が、当該電磁波シールドと接触している部材へ移動しにくい。このため、接触している部材の電気抵抗が低下して、漏れ電流が増加するおそれは小さい。したがって、ジュール熱により、接触している部材の物性が変化したり、当該部材が破壊されるおそれは小さい。

図面の簡単な説明

[0024] [図1]本発明のトランスデューサの一実施形態であるアクチュエータの断面模式図であって、(a)はオフ状態、(b)はオン状態を示す。

[図2]本発明のトランスデューサの一実施形態である静電容量型センサの上面図である。

[図3]図2のI—I—I—I—I—I断面図である。

[図4]本発明のトランスデューサの一実施形態である発電素子の断面模式図であって、(a)は伸長時、(b)は収縮時を示す。

[図5]本発明の一実施形態であるフレキシブル配線板の上面透過図である。

[図6]試験装置に取り付けられた試験用素子の表側正面図である。

[図7]図6のV I I - V I I 方向断面図である。

符号の説明

[0025] 1 : アクチュエータ 10 : 誘電膜 11a、11b : 電極 12a、12b : 配線 13 : 電源 2 : 静電容量型センサ (トランスデューサ) 20 : 誘電膜 21a、21b : 電極 22a、22b : 配線 23a、23b : カバーフィルム 24 : コネクタ 3 : 発電素子 (トランスデューサ) 30 : 誘電膜 31a、31b : 電極 32a～32c : 配線 4 : フレキシブル配線板 40 : 弹性基材 41 : 表側配線用コネクタ 42 : 裏側配線用コネクタ 01X～16X : 表側電極 01X1～16X1 : 表側接続部 01Y～16Y : 裏側電極 01Y1～16Y1 : 裏側接続部 01x～16x : 表側配線 01y～16y : 裏側配線 5 : 試験用素子 50 : 被着体 51a、51b : 試験片 52 : 上側チャック 53 : 下側チャック

発明を実施するための形態

[0026] 以下、本発明の導電性架橋体およびその製造方法、本発明のトランスデューサ、フレキシブル配線板、電磁波シールドの実施形態について、順に説明する。

[0027] <導電性架橋体>

上述したように、本発明の導電性架橋体は、ゴムポリマーと、有機金属化合物と、導電剤と、を含む導電性組成物から合成され、架橋構造を有する。

[0028] (1) ゴムポリマー

ゴムポリマーは、特に限定されるものではない。ゴムポリマーの一種を単独で、あるいは二種以上を混合して用いることができる。ゴムポリマーとしては、例えば、有機金属化合物中の活性水素または活性水素を持つ求核性置換基と反応可能な官能基を有するものが、望ましい。この場合、ゴムポリマーの官能基は、有機金属化合物との架橋サイトとなる。すなわち、ゴムポリマーの官能基が、有機金属化合物中の活性水素または活性水素を持つ求核性置換基と反応して、架橋構造が形成される。なお、本発明の導電性架橋体は

、ゴムポリマーと有機金属化合物とが反応せずに、有機金属化合物の架橋構造中にゴムポリマーが侵入した、いわゆる相互網目構造を有していてもよい。

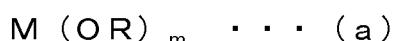
[0029] 有機金属化合物と反応可能な上記官能基としては、例えば、カルボキシル基、ヒドロキシ基、アミノ基、エポキシ基等が挙げられる。具体的には、カルボキシル基含有アクリロニトリルーブタジエン共重合体、およびその水素化物、カルボキシル基含有スチレンーブタジエン共重合体、カルボキシル基含有ポリブタジエン、カルボキシル基含有エチレンープロピレン共重合体、マレイン酸変性塩素化ポリエチレン、ヒドロキシ基またはアミノ基を末端に有するウレタンプレポリマー、エポキシ基含有アクリルゴム、カルボキシル基含有アクリルゴム、ポリエステルポリオール等が挙げられる。

[0030] (2) 有機金属化合物

有機金属化合物の種類は、特に限定されるものではない。有機金属化合物は、液体でも固体でもよい。有機金属化合物としては、金属アルコキシド化合物、金属アシレート化合物、および金属キレート化合物が挙げられる。これらから選ばれる一種を単独で用いてもよく、二種以上を併用してもよい。有機金属化合物は、ケイ素、チタン、ジルコニウム、ハフニウム、アルミニウム、ガリウム、マグネシウム、亜鉛、およびホウ素から選ばれる一種以上の元素を含むことが望ましい。

[0031] 有機金属化合物の配合量は、ゴムポリマー 100 質量部に対して、0.1 質量部以上 50 質量部以下であることが望ましい。0.1 質量部未満であると、架橋が充分ではなく、三次元網目構造が生成しにくい。0.5 質量部以上が好適である。反対に、50 質量部を超えると、架橋が進行し過ぎて、導電性架橋体の柔軟性が損なわれるおそれがある。30 質量部以下が好適である。

[0032] 金属アルコキシド化合物は、例えば、次の一般式 (a) で表される。



[式 (a) 中、M は金属等の原子である。R は炭素数 1 ~ 10 のアルキル基

、アリール基、アルケニル基のいずれか一種以上であり、同一であっても、異なるっていてもよい。mは金属等の原子Mの価数である。】
また、一分子中に、二つ以上の繰り返し単位 [(MO)_n; nは2以上の整数] を有する多量体であってもよい。nの数を変更することにより、ゴムポリマーとの相溶性や、反応速度等を調整することができる。このため、ゴムポリマーの種類に応じて、適宜好適な多量体を選択するとよい。

- [0033] 金属等の原子Mとしては、例えば、チタン、ジルコニウム、アルミニウム、ケイ素、鉄、銅、錫、バリウム、ストロンチウム、ハフニウム、ホウ素等が挙げられる。なかでも反応性が良好であるという理由から、チタン、ジルコニウム、アルミニウムから選ばれる一種以上を含むものが望ましい。具体的には、テトラn-ブトキシチタン、テトラn-ブトキシジルコニウム、テトラn-ブトキシシラン、アセトアルコキアルミニウムジイソプロピレート、テトラi-プロポキシチタン、テトラエトキシシラン、テトラキス(2-エチルヘキシルオキシ)チタン等が好適である。
- [0034] また、金属アシレート化合物としては、ポリヒドロキシチタンステアレート、ジルコニウムトリブトキシモノステアレート等が挙げられる。
- [0035] また、金属キレート化合物としては、チタンージイソプロポキシビス(アセチルアセトネート)、チタン-テトラアセチルアセトネート、チタン-ジオクチロキシビス(オクチレングリコレート)、チタンージイソプロポキシビス(エチルアセトアセテート)、チタンージイソプロポキシビス(トリエタノールアミネート)、チタン-ジブトキシビス(トリエタノールアミネート)等のチタンキレート化合物、ジルコニウムテトラアセチルアセトネート、ジルコニウムトリブトキシモノアセチルアセトネート、ジルコニウムモノブトキシアセチルアセトネートビス(エチルアセトアセテート)、ジルコニウムジブトキシビス(エチルアセトアセテート)等のジルコニウムキレート化合物等が挙げられる。

[0036] (3) 導電剤

導電剤の種類は、特に限定されるものではない。カーボンブラック、カーボンナノチューブ等が挙げられる。

ポンナノチューブ、グラファイト等の炭素材料、銀、金、銅、ニッケル、ロジウム、パラジウム、クロム、チタン、白金、鉄、およびこれらの合金等の金属材料、酸化チタン化インジウム、酸化亜鉛に他金属をドーピングした導電性酸化物から、適宜選択すればよい。導電剤は、一種を単独で用いてもよく、二種以上を混合して用いてもよい。例えば、カーボンブラックは、ゴム成分との密着性が高く、凝集して導通経路を形成しやすい、という点で好適である。なかでも、ケッテンブラック等の高導電性カーボンブラックが好適である。

[0037] また、粒子表面を金属で被覆して導電性を付与した被覆粒子を使用してもよい。金属単体の粒子と比較して、被覆粒子の比重は小さい。よって、塗料化した際に沈降しにくく、分散性が向上する。また、粒子を加工することにより、様々な形状の被覆粒子を容易に製造することができる。被覆する金属としては、先に列挙した金属材料を用いればよい。また、粒子には、グラファイトやカーボンブラック等の炭素材料、炭酸カルシウム、二酸化チタン、酸化アルミニウム、チタン酸バリウム等の金属酸化物、シリカ等の無機物、アクリルやウレタン等の樹脂等を用いればよい。

[0038] 導電剤の含有量は、所望の導電性が得られるように決定すればよい。例えば、電極としての導電性を確保するという観点から、導電剤の含有量は、導電性架橋体の体積を100 v o l %とした場合の0.1 v o l %以上であることが望ましい。1 v o l %以上であるとより好適である。一方、導電剤の含有量が多くなると柔軟性が低下する。このため、導電剤の含有量は、導電性架橋体の体積を100 v o l %とした場合の35 v o l %以下であることが望ましい。15 v o l %以下であるとより好適である。

[0039] (4) その他

本発明の導電性架橋体を合成する場合には、上記ゴムポリマー、有機金属化合物、および導電剤を含む導電性組成物に、触媒、補強剤、可塑剤、老化防止剤、着色剤等を適宜配合してもよい。

[0040] また、本発明の導電性架橋体を、アクチュエータの電極や配線として用い

る場合には、アクチュエータの小型化、および誘電膜の変形に対する影響をできるだけ小さくするという観点から、電極等（導電性架橋体）の厚さを薄くする方が望ましい。例えば、導電性架橋体の厚さを、0.4 μm以上100.0 μm以下とすることが望ましい。より好適には、5 μm以上50 μm以下である。

[0041] <導電性架橋体の製造方法>

本発明の導電性架橋体の製造方法は、特に限定されるものではない。例えば、次の（1）または（2）の方法により製造することができる。

（1）第一の方法としては、ゴムポリマー、有機金属化合物、および導電剤を、ロールや混練機により混練りして（混練り工程）、所定の条件下で成形する（成形工程）。成形された導電性架橋体は、所定の基材に貼着して用いればよい。

（2）第二の方法としては、まず、所定の溶剤中に、ゴムポリマーおよび導電剤を添加する。次に、当該溶液中に、有機金属化合物をそのまま、あるいは所定の溶剤に溶解した状態で混合して、混合溶液を調製する（混合溶液調製工程）。その後、調製した混合溶液を基材上に塗布し、所定の条件下で乾燥させる（成形工程）。

[0042] 上記第一および第二の方法において、ゴムポリマーと導電剤とを予め混練りしておくと、導電剤の分散性が向上する。例えば、第二の方法においては、ゴムポリマーと導電剤とを、予めロールや混練機により混練りした状態で、溶剤に添加すればよい。また、第二の方法においては、ゴムポリマーを溶剤に溶解させた溶液と、無機フィラーを溶剤に分散させた分散液と、を混合してもよい。

[0043] また、第二の方法において、有機金属化合物を所定の溶剤に溶解した状態で混合する場合には、当該溶剤と、ゴムポリマーを溶解させる溶剤と、は同一であっても異なっていてもよい。また、第一の方法では、混練り工程において、必要に応じて触媒、補強剤、可塑剤、老化防止剤、着色剤等を添加してもよい。また、第二の方法では、混合溶液調製工程において、必要に応じ

て触媒、補強剤、可塑剤、老化防止剤、着色剤等を添加してもよい。

[0044] 混合溶液を基材上に塗布する方法としては、既に公知の方法を採用すればよい。例えば、インクジェット印刷、フレキソ印刷、グラビア印刷、スクリーン印刷、パッド印刷、リソグラフィー等の印刷法の他、ディップ法、スプレー法、バーコート法等が挙げられる。例えば、印刷法を採用すると、塗布する部分と塗布しない部分との塗り分けを、容易に行うことができる。また、大きな面積、細線、複雑な形状の印刷も容易である。印刷法の中でも、高粘度の塗料に対応でき、塗膜厚さの調整が容易であるという理由から、スクリーン印刷法が好適である。

[0045] 有機金属化合物は、空気中や、反応系（ゴムポリマー、溶液）中の水分と反応し、加水分解して重縮合する（ゾルゲル反応）。したがって、水との急激な反応を抑制し、均質な膜を形成するためには、有機金属化合物をキレート剤によりキレート化して用いることが望ましい。なかでも、金属アルコキシド化合物の反応性は高い。このため、金属アルコキシド化合物については、キレート化して用いることが望ましい。一方、金属アシレート化合物については、金属アルコキシド化合物と比較して、反応性はそれほど高くない。したがって、キレート化の必要性は小さい。

[0046] キレート剤としては、例えば、アセチルアセトン、ベンゾイルアセトン、ジベンゾイルメタン等の β -ジケトン、アセト酢酸エチル、ベンゾイル酢酸エチル等の β -ケト酸エステル、トリエタノールアミン、乳酸、2-エチルヘキサン-1, 3ジオール、1, 3ヘキサンジオール等が挙げられる。使用するキレート剤の量は、有機金属化合物100質量部に対して、10質量部以上100000質量部以下とすることが望ましい。10質量部未満であると、充分にキレート化することができない。50質量部以上が好適である。反対に、100000質量部を超えると、除去しにくくなる。このため、例えば、乾燥が過剰に必要となる。8000質量部以下が好適である。

[0047] 有機金属化合物をキレート化して用いる場合には、例えば、次の方法を採用するとよい。まず、所定の溶剤中に、ゴムポリマーおよび導電剤を添加す

る。次に、当該溶液中に、キレート化された有機金属化合物を混合して、混合溶液を調製する（混合溶液調製工程）。その後、調製した混合溶液を基材上に塗布し、所定の条件下で乾燥させると共に、キレート剤を除去して架橋反応を進行させる（架橋工程）。

[0048] また、キレート剤がゴムポリマーを溶解可能な場合には、キレート剤をゴムポリマーを溶解させる溶媒として使用することも可能である。この場合、例えば、次の方法を採用するとよい。まず、ゴムポリマーが溶解可能であり、かつ、有機金属化合物をキレート化できる溶剤中に、ゴムポリマーと、導電剤と、有機金属化合物と、を混合した混合溶液を調製する（混合溶液調製工程）。次に、混合溶液から溶剤を除去して、架橋反応を進行させる（架橋工程）。混合溶液調製工程は、ゴムポリマーと導電剤とが含有されている第一溶液を調製する工程と、第一溶液に有機金属化合物を混合して第二溶液を調製する工程と、から構成されていてもよい。

[0049] 溶剤は、すべてがキレート剤であっても、キレート剤とそれ以外の溶剤との混合物であってもよい。架橋工程では、混合溶液を基材上に塗布し、乾燥させればよい。架橋工程の温度は、反応速度等を考慮して、溶剤の種類に応じて適宜決定すればよい。例えば、常温でもよいが、溶剤の沸点以上とすることが望ましい。また、有機金属化合物をキレート化して用いる場合でも、混合溶液調製工程において、必要に応じて触媒、補強剤、可塑剤、老化防止剤、着色剤等を添加することができる。

[0050] <トランスデューサ>

本発明のトランスデューサは、エラストマー製の誘電膜と、該誘電膜を介して配置されている複数の電極と、複数の該電極と各々接続されている配線と、を備え、該電極および該配線の少なくとも一方は、本発明の導電性架橋体からなる。本発明のトランスデューサにおいても、上述した本発明の導電性架橋体の好適な態様を採用することが望ましい。以下、本発明のトランスデューサの例として、アクチュエータ、エラストマーセンサ、および発電素子の実施形態を説明する。

[0051] [アクチュエータ]

本発明の導電性架橋体からなる電極を備えたアクチュエータの実施形態を説明する。図1に、本実施形態のアクチュエータの断面模式図を示す。（a）はオフ状態、（b）はオン状態を各々示す。

[0052] 図1に示すように、アクチュエータ1は、誘電膜10と、電極11a、11bと、配線12a、12bと、を備えている。誘電膜10は、ウレタンゴム製である。電極11aは、誘電膜10の上面の略全体を覆うように、配置されている。同様に、電極11bは、誘電膜10の下面の略全体を覆うように、配置されている。電極11a、11bは、各々、配線12a、12bを介して電源13に接続されている。電極11a、11bは、いずれも本発明の導電性架橋体からなる。

[0053] オフ状態からオン状態に切り替える際は、一対の電極11a、11b間に電圧を印加する。電圧の印加により、誘電膜10の厚さは薄くなり、その分だけ、図（b）中白抜き矢印で示すように、電極11a、11b面に対して平行方向に伸長する。これにより、アクチュエータ1は、図中上下方向および左右方向の駆動力を出力する。

[0054] 本実施形態によると、電極11a、11bは、柔軟で伸縮可能である。このため、電極11a、11bは、誘電膜10の変形に追従して変形することができる。すなわち、誘電膜10の動きが、電極11a、11bにより妨げられにくい。したがって、アクチュエータ1によると、より大きな力および変位量を得ることができる。

[0055] また、本実施形態によると、電極11a、11bから誘電膜10へ移動する不純物が少ない。このため、誘電膜10の電気抵抗は低下しにくい。よって、誘電膜10と電極11a、11bとの界面に、多くの電荷を蓄えることができる。これにより、消費電力が低減される。また、電流が誘電膜10中を流れにくいため、ジュール熱の発生が抑制される。したがって、熱により、誘電膜10の物性が変化したり、誘電膜10が破壊されるおそれが小さい。また、電極11a、11bは、伸縮を繰り返してもへたりにくく、形状保

持性に優れる。加えて、電極 11a、11b の導電性は変化しにくい。したがって、アクチュエータ 1 は、性能安定性および耐久性に優れる。

[0056] アクチュエータを構成する誘電膜としては、比誘電率の高いエラストマーを用いることが望ましい。具体的には、常温における比誘電率（100 Hz）が2以上、さらには5以上のエラストマーが望ましい。例えば、エステル基、カルボキシル基、水酸基、ハロゲン基、アミド基、スルホン基、ウレタン基、ニトリル基等の極性官能基を有するエラストマー、あるいは、これらの極性官能基を有する極性低分子量化合物を添加したエラストマーを採用するとよい。好適なエラストマーとしては、上記ウレタンゴムの他、シリコーンゴム、アクリロニトリルーブタジエンゴム（NBR）、水素添加アクリロニトリルーブタジエンゴム（H-NBR）、エチレンープロピレンジエンゴム（EPDM）、アクリルゴム、エピクロロヒドリンゴム、クロロスルホン化ポリエチレン、塩素化ポリエチレン等が挙げられる。

[0057] 誘電膜の厚さは、アクチュエータの用途等に応じて適宜決定すればよい。例えば、アクチュエータの小型化、低電位駆動化、および変位量を大きくする等の観点からは、誘電膜の厚さは薄い方が望ましい。この場合、絶縁破壊性等をも考慮して、誘電膜の厚さを、 $1 \mu\text{m}$ 以上 $1000 \mu\text{m}$ （1 mm）以下とすることが望ましい。より好適な範囲は、 $5 \mu\text{m}$ 以上 $200 \mu\text{m}$ 以下である。

[0058] アクチュエータの変位量をより大きくするためには、誘電膜を面延在方向に延伸した状態で取り付けることが望ましい。また、複数の誘電膜と電極とを交互に積層させた積層構造とすると、より大きな力を発生させることができる。これにより、アクチュエータの出力が大きくなり、駆動対象部材をより大きな力で駆動させることができる。

[0059] [エラストマーセンサ]

本発明の導電性架橋体からなる電極および配線を備えたエラストマーセンサの一例として、静電容量型センサの実施形態を説明する。まず、本実施形態の静電容量型センサの構成について説明する。図2に、静電容量型センサ

の上面図を示す。図3に、図2のI—I—I—I—I—I断面図を示す。図2、図3に示すように、静電容量型センサ2は、誘電膜20と、一対の電極21a、21bと、配線22a、22bと、カバーフィルム23a、23bと、を備えている。

[0060] 誘電膜20は、ウレタンゴム製であって、左右方向に延びる帯状を呈している。誘電膜20の厚さは、約300μmである。

[0061] 電極21aは、長方形状を呈している。電極21aは、誘電膜20の上面に、スクリーン印刷により三つ形成されている。同様に、電極21bは、長方形状を呈している。電極21bは、誘電膜20を挟んで電極21aと対向するように、誘電膜20の下面に三つ形成されている。電極21bは、誘電膜20の下面に、スクリーン印刷されている。このように、誘電膜20を挟んで、電極21a、21bが三対配置されている。電極21a、21bは、本発明の導電性架橋体からなる。

[0062] 配線22aは、誘電膜20の上面に形成された電極21aの一つ一つに、それぞれ接続されている。配線22aにより、電極21aとコネクタ24とが結線されている。配線22aは、誘電膜20の上面に、スクリーン印刷により形成されている。同様に、配線22bは、誘電膜20の下面に形成された電極21bの一つ一つに、それぞれ接続されている（図2中、点線で示す）。配線22bにより、電極21bとコネクタ（図略）とが結線されている。配線22bは、誘電膜20の下面に、スクリーン印刷により形成されている。配線22a、22bは、本発明の導電性架橋体からなる。

[0063] カバーフィルム23aは、アクリルゴム製であって、左右方向に延びる帯状を呈している。カバーフィルム23aは、誘電膜20、電極21a、配線22aの上面を覆っている。同様に、カバーフィルム23bは、アクリルゴム製であって、左右方向に延びる帯状を呈している。カバーフィルム23bは、誘電膜20、電極21b、配線22bの下面を覆っている。

[0064] 次に、静電容量型センサ2の動きについて説明する。例えば、静電容量型センサ2が上方から押圧されると、誘電膜20、電極21a、カバーフィル

ム23aは一体となって、下方に湾曲する。圧縮により、誘電膜20の厚さは小さくなる。その結果、電極21a、21b間のキャパシタンスは大きくなる。このキャパシタンス変化により、圧縮による変形が検出される。

[0065] 次に、本実施形態の静電容量型センサ2の作用効果について説明する。本実施形態によると、誘電膜20、電極21a、21b、配線22a、22b、カバーフィルム23a、23bは、いずれもエラストマー材料からなる。このため、静電容量型センサ2の全体が柔軟であり、伸縮可能である。また、電極21a、21bおよび配線22a、22bは、誘電膜20の変形に追従して変形することができる。

[0066] また、本実施形態によると、電極21a、21bから誘電膜20へ移動する不純物が少ない。このため、誘電膜20の電気抵抗は低下しにくい。つまり、誘電膜20中に電流が流れにくいため、検出精度が低下するおそれは小さい。また、電流が誘電膜20中を流れにくいため、ジュール熱の発生が抑制される。したがって、熱により、誘電膜20の物性が変化したり、誘電膜20が破壊されるおそれがない。また、電極21a、21bおよび配線22a、22bは、伸縮を繰り返してもへたりにくく、形状保持性に優れる。加えて、電極21a、21bおよび配線22a、22bの導電性は、変化しにくい。したがって、静電容量型センサ2は、性能安定性および耐久性に優れる。なお、本実施形態の静電容量型センサ2には、誘電膜20を狭んで対向する電極21a、21bが、三対形成されている。しかし、電極の数、大きさ、配置等は、用途に応じて、適宜決定すればよい。

[0067] [発電素子]

本発明の導電性架橋体からなる電極を備えた発電素子の実施形態を説明する。図4に、本実施形態の発電素子の断面模式図を示す。(a)は伸長時、(b)は収縮時を各々示す。図4に示すように、発電素子3は、誘電膜30と、電極31a、31bと、配線32a～32cと、を備えている。誘電膜30は、ウレタンゴム製である。電極31aは、誘電膜30の上面の略全体を覆うように、配置されている。同様に、電極31bは、誘電膜30の下面

の略全体を覆うように、配置されている。電極31aには、配線32a、32bが接続されている。すなわち、電極31aは、配線32aを介して、外部負荷（図略）に接続されている。また、電極31aは、配線32bを介して、電源（図略）に接続されている。電極31bは、配線32cにより接地されている。電極31a、31bは、いずれも本発明の導電性架橋体からなる。

[0068] 図4(a)に示すように、発電素子3を圧縮し、誘電膜30を電極31a、31b面に対して平行方向に伸長すると、誘電膜30の膜厚は薄くなり、電極31a、31b間に電荷が蓄えられる。その後、圧縮力を除去すると、図4(b)に示すように、誘電膜30の弾性復元力により誘電膜30は収縮し、膜厚が厚くなる。その際、蓄えられた電荷が配線32aを通して放出される。

[0069] 本実施形態によると、電極31a、31bは、柔軟で伸縮可能である。このため、電極31a、31bは、誘電膜30の変形に追従して変形することができる。すなわち、誘電膜30の動きが、電極31a、31bにより妨げられにくい。また、本実施形態によると、電極31a、31bから誘電膜30へ移動する不純物が少ない。このため、誘電膜30の電気抵抗は低下しにくい。誘電膜30中に電流が流れにくいため、誘電膜30と電極31a、31bとの界面に、多くの電荷を蓄えることができる。したがって、発電効率が向上する。さらに、ジュール熱の発生も抑制される。このため、熱により、誘電膜30の物性が変化したり、誘電膜30が破壊されるおそれがない。また、電極31a、31bは、伸縮を繰り返してもへたりにくく、形状保持性に優れる。加えて、電極31a、31bの導電性は変化しにくい。したがって、発電素子3は、性能安定性および耐久性に優れる。

[0070] <フレキシブル配線板>

本発明のフレキシブル配線板は、伸縮可能な弹性基材と、該弹性基材の表面に配置されている配線と、を備え、該配線の少なくとも一部は、本発明の導電性架橋体からなる。本発明のフレキシブル配線板においても、上述した

本発明の導電性架橋体の好適な態様を採用することが望ましい。以下、本発明のフレキシブル配線板の実施形態を説明する。

- [0071] 図5に、本実施形態のフレキシブル配線板の上面透過図を示す。なお、図5中、裏側の配線については細線で示す。図5に示すように、フレキシブル配線板4は、弾性基材40と、表側電極O1X～16Xと、表側電極O1X～16Xと、表側配線O1x～16xと、裏側配線O1y～16yと、表側配線用コネクタ41と、裏側配線用コネクタ42と、を備えている。
- [0072] 弾性基材40は、ウレタンゴム製であって、シート状を呈している。表側電極O1X～16Xは、弾性基材40の上面に、合計16本配置されている。表側電極O1X～16Xは、各々、帯状を呈している。表側電極O1X～16Xは、各々、X方向（左右方向）に延在している。表側電極O1X～16Xは、Y方向（前後方向）に、所定間隔ごとに離間して、互いに略平行になるように、配置されている。表側電極O1X～16Xの左端には、各々、表側接続部O1X1～16X1が配置されている。同様に、裏側電極O1Y～16Yは、弾性基材40の下面に、合計16本配置されている。裏側電極O1Y～16Yは、各々、帯状を呈している。裏側電極O1Y～16Yは、各々、Y方向に延在している。裏側電極O1Y～16Yは、X方向に、所定間隔ごとに離間して、互いに略平行になるように、配置されている。裏側電極O1Y～16Yの前端には、各々、裏側接続部O1Y1～16Y1が配置されている。図5にハッチングで示すように、弾性基材40を挟んで、表側電極O1X～16Xと裏側接続部O1Y1～16Y1とが交差する部分（重複する部分）により、荷重等を検出する検出部が形成されている。
- [0073] 表側配線O1x～16xは、弾性基材40の上面に、合計16本配置されている。表側配線O1x～16xは、各々、線状を呈している。表側配線用コネクタ41は、弾性基材40の左後隅に配置されている。表側配線O1x～16xは、各々、表側接続部O1X1～16X1と、表側配線用コネクタ41と、を接続している。また、弾性基材40の上面、表側電極O1X～16X、表側配線O1x～16xは、上方から、表側カバーフィルム（図略）

により覆われている。表側配線 O₁x～16x は、本発明の導電性架橋体からなる。

- [0074] 裏側配線 O₁y～16y は、弾性基材 40 の下面に、合計 16 本配置されている。裏側配線 O₁y～16y は、各々、線状を呈している。裏側配線用コネクタ 42 は、弾性基材 40 の左前隅に配置されている。裏側配線 O₁y～16y は、各々、裏側接続部 O₁Y₁～16Y₁ と、裏側配線用コネクタ 42 と、を接続している。また、弾性基材 40 の下面、裏側電極 O₁Y～16Y、裏側配線 O₁y～16y は、下方から、裏側カバーフィルム（図略）により覆われている。裏側配線 O₁y～16y は、本発明の導電性架橋体からなる。
- [0075] 表側配線用コネクタ 41、裏側配線用コネクタ 42 には、各々、演算部（図略）が電気的に接続されている。演算部には、表側配線 O₁x～16x および裏側配線 O₁y～16y から、検出部におけるインピーダンスが入力される。これに基づいて、面圧分布が測定される。
- [0076] 本実施形態によると、表側配線 O₁x～16x および裏側配線 O₁y～16y は、各々、柔軟で伸縮可能である。このため、表側配線 O₁x～16x および裏側配線 O₁y～16y は、弾性基材 40 の変形に追従して変形することができる。また、本実施形態によると、表側配線 O₁x～16x および裏側配線 O₁y～16y から、弾性基材 40 へ移動する不純物が少ない。このため、弾性基材 40 の電気抵抗が低下して、いわゆる漏れ電流が増加するおそれは小さい。これにより、誤動作が抑制される。また、弾性基材 40 中に電流が流れにくいため、ジュール熱により弾性基材 40 が破壊されるおそれが小さい。さらに、表側配線 O₁x～16x および裏側配線 O₁y～16y は、伸縮を繰り返してもへたりにくく、形状保持性に優れる。加えて、導電性も変化しにくい。したがって、フレキシブル配線板 4 は、性能安定性および耐久性に優れる。

[0077] <電磁波シールド>

本発明の電磁波シールドは、本発明の導電性架橋体からなる。電磁波シ一

ルドは、電子機器の内部で発生した電磁波が外部に漏れるのを抑制したり、外部からの電磁波を内部へ侵入させにくくする役割を果たす。例えば、電子機器の筐体の内周面に、電磁波シールドを配置する場合には、本発明の導電性架橋体を形成するための混合溶液を、電子機器の筐体の内周面に塗布し、乾燥されればよい。また、上記トランステューサの実施形態として示した静電容量型センサに、電磁波シールドを配置することもできる。例えば、カバーフィルム23aの上面と、カバーフィルム23bの下面と、を各々覆うように、電磁波シールドを配置すればよい（前出図2、図3参照）。この場合、本発明の導電性架橋体を形成するための混合溶液を、カバーフィルム23aの上面およびカバーフィルム23bの下面に塗布し、乾燥されればよい。さらに、電子機器の隙間にガスケットとして配置する場合には、本発明の導電性架橋体を、所望の形状に成形して用いればよい。

実施例

[0078] 次に、実施例を挙げて本発明をより具体的に説明する。

[0079] <導電性架橋体の製造>

[実施例1～4]

下記の表1に示す原料から、実施例1～4の導電性架橋体を製造した。まず、カルボキシル基含有アクリルゴムポリマー（日本ゼオン（株）製「Nipoo!（登録商標）AR14」）、またはエポキシ基含有アクリルゴムポリマー（同「Nipoo!AR42W」）と、導電剤（ライオン（株）製「ケッテンブラック（登録商標）EC-600JD」）と、をロール練り機にて混練りし、ゴム組成物を調製した。次に、調製したゴム組成物を、アセチルアセトンに溶解した。続いて、この溶液に、所定の有機金属化合物を添加して、混合した。ここで、アセチルアセトンは、アクリルゴムポリマーを溶解させる溶媒であると共に、有機金属化合物のキレート剤である。その後、混合溶液を基材上にバーコート法により塗布し、乾燥させた後、150°Cで約60分間加熱して導電性架橋体を得た。なお、有機金属化合物については、以下のものを使用した。

テトランーブトキシチタン：日本曹達（株）製「B-1」
ジルコニウムテトラアセチルアセトネート：マツモトファインケミカル（株）
製「オルガチックス（登録商標）ZC150」
ポリヒドロキシチタンステアレート：マツモトファインケミカル（株）製「
オルガチックスTPHS」

[0080] [比較例 1]

下記の表 1 に示す原料から、比較例 1 の導電性材料を製造した。まず、エ
ポキシ基含有アクリルゴムポリマー（同上）と、架橋促進剤のジメチルジチ
オカルバミン酸亜鉛（大内新興化学（株）製「ノクセラー（登録商標）PZ
」）、およびジメチルジチオカルバミン酸第二鉄（大内新興化学（株）製「
ノクセラーTTFE」）と、をロール練り機にて混合し、ゴム組成物を調製
した。次に、調製したゴム組成物を、メチルエチルケトン（MEK）に溶解
した。そして、この溶液に、導電剤（同上）を添加して、分散させた。続い
て、調製した溶液を、基材上にバーコート法により塗布した。その後、塗膜
が形成された基材を、約 170°C の乾燥炉内に約 30 分間静置して、塗膜を
乾燥させると共に、架橋反応を進行させて、導電性材料を得た。

[0081] [比較例 2]

下記の表 1 に示す原料から、比較例 2 の導電性材料を製造した。まず、エ
ポキシ基含有アクリルゴムポリマー（同上）を、MEK に溶解した。次に、
この溶液に、導電剤（同上）を添加して、分散させた。続いて、調製した溶
液を、基材上にバーコート法により塗布した。その後、塗膜が形成された基
材を、約 150°C の乾燥炉内に約 30 分間静置して、塗膜を乾燥させて、導
電性材料を得た。

[0082] 表 1 に、使用した原料の種類および配合量を示す。

[表1]

	(質量部)					
	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	比較例1	比較例2
ゴムポリマー	カルボキシル基含有アクリルゴムポリマー エポキシ基含有アクリルゴムポリマー	100 —	100 —	— 100	— 100	— 100
有機金属化合物	テトラーノーブトキシチタン ジルコニウムテトラアセチルアセトネート	2 —	— 2	— 2	— —	— —
導電剤	ポリビドロキシチタンステアレート ケッヂエンブラック	— 10	— 10	— 10	— 10	— 10
架橋促進剤	ジメチルジオカルバミン酸亜鉛 ジメチルジオカルバミン酸第二鉄	— —	— —	— —	— 2.5	— —
溶剤	アセチルアセトン メチルエチルケトン	2000 —	1000 —	2000 —	— —	— —
導電剤の含有量 [vol%]	5.3 MEK不溶分 [%]	5.3 99	5.2 99	5.2 99.6	5.2 78	5.3 0
評価結果	弾性率 [MPa]	1.4	1.5	1.2	1.5	2.2
	切断時伸び [%]	900	520	970	680	900
	永久伸び [%]	39.8	30.5	58.8	43.5	破断
	体積抵抗率 [$\Omega \text{ cm}$]	2.1×10^0	4.5×10^0	3.2×10^0	5.2×10^0	6.6×10^0
	被着体の体積抵抗率 [$\Omega \text{ cm}$]	1.7×10^{12}	2.5×10^{12}	1.4×10^{12}	1.4×10^{12}	2.6×10^{11}
	被着体における漏れ電流 [mA]	0.002	0.002	0.003	0.028	8.8×10^{11}

[0083] 製造した導電性架橋体および導電性材料（以下、適宜「導電性架橋体等」と称す）について、架橋性、導電性、引張特性、永久伸び、および被着体への影響を評価した。以下、各々の評価方法および評価結果について説明する。

[0084] <評価方法>

[架橋性]

まず、導電性架橋体等から作製した試験片 1 g を、M E K 3 0 g に浸漬した。そのまま室温で 4 時間静置した後、試験片を取り出して乾燥させた。そして、乾燥後の試験片の質量を測定し、初期の質量に対する乾燥後の質量割合（M E K 不溶分）を算出した。

[0085] [引張特性]

導電性架橋体等の弾性率を、J I S K 7 1 2 7 (1999) に準じた引張試験における応力ー伸び曲線から、算出した。試験片の形状は、試験片タイプ 2 とした。また、導電性架橋体等の切断時伸びを、J I S K 6 2 5 1 (2004) に準じて測定した。試験片には、ダンベル状 5 号形を用いた。

[0086] [永久伸び]

まず、導電性架橋体等から、幅 10 mm の短冊状の試験片を作製した。続いて、試験片の中央部を中心として、30 mm 間隔の標線を付けた。次に、試験片の両端をジグで把持し（把持間隔 40 mm）、標線間距離が 60 mm になるように、試験片を伸長した（伸長率 100 %）。この状態で、60 °C のオーブンに入れ、24 時間静置した。それから、試験片をオーブンから取り出して、ジグを外し、30 分間室温にて静置した。その後、標線間距離を測定した。そして、永久伸びを、次式 (I) により算出した。

$$\text{永久伸び (\%)} = (d - 30) / 30 \times 100 \dots \quad (I)$$

[d : 自然収縮後の標線間距離]

[0087] [導電性]

導電性架橋体等の体積抵抗率を、J I S K 6 2 7 1 (2008) の平行

端子電極法に準じて測定した。この際、導電性架橋体等（試験片）を支持する絶縁樹脂製支持具として、市販のブチルゴムシート（タイガースポリマー（株）製）を用いた。

[0088] [被着体への影響]

次のようにして被着体を作製した。まず、アクリロニトリルブタジエンゴムポリマー（日本ゼオン（株）製「Nipol DN202」）100質量部に、シリカ（東ソー・シリカ（株）製「Nipsil（登録商標）VN3」）10質量部を加えて、二本ロールで混練りした。続いて、架橋剤（日油（株）製「パークミル（登録商標）D-40」）10質量部を加えて混練りし、ゴム組成物を調製した。そして、調製したゴム組成物を、170°Cで約15分間プレス架橋した後、さらに150°Cのオーブン中で4時間保持することにより、二次架橋を行った。このようにして、薄膜状の被着体（膜厚約100μm）を作製した。作製した被着体の体積抵抗値を測定したところ、
2.7 × 10¹² Ω cmであった。

[0089] (1) 体積抵抗率の測定

まず、導電性架橋体等から、直径約20mm、厚さ約30μmの円形の試験片を、2枚作製した。次に、これらの試験片を、被着体の表裏両面に一枚ずつ配置して、試験用素子を作製した。なお、試験片は、被着体を介して対向するように配置した。それから、試験片から被着体への不純物の移動を促進させるために、試験用素子を150°Cのオーブンに入れ、1時間静置した。試験用素子をオーブンから取り出して室温に戻した後、一対の試験片を電極として、100Vの電圧を印加した。そして、被着体の体積抵抗率を測定した。

[0090] (2) 漏れ電流の測定

まず、導電性架橋体等から、縦38mm、横20mm、厚さ約10μmの長方形の試験片を、2枚作製した。次に、これらの試験片を、縦50mm、横25mm、厚さ約100μmの長方形の被着体の表裏両面に一枚ずつ配置して、試験用素子を作製した。そして、作製した試験用素子を、試験装置に

設置して、一対の試験片を電極として電圧を印加した時の、被着体に流れる電流を測定した。図6に、試験装置に取り付けられた試験用素子の表側正面図を示す。図7に、図6のVII-VII方向断面図を示す。

- [0091] 図6、図7に示すように、試験用素子5の上端は、試験装置における上側チャック52により把持されている。試験用素子5の下端は、下側チャック53により把持されている。試験用素子5は、予め上下方向に延伸された状態で、上側チャック52と下側チャック53との間に、取り付けられている（延伸率25%）。
- [0092] 試験用素子5は、被着体50と一対の試験片51a、51bとからなる。試験片51a、51bは、被着体50を挟んで表裏方向に対向するよう配置されている。試験片51a、51bは、上下方向に8mmずれた状態で配置されている。つまり、試験片51a、51bは、被着体50を介して、縦30mm、横20mmの範囲で重なっている。試験片51aの下端には、配線（図略）が接続されている。同様に、試験片51bの上端には、配線（図略）が接続されている。試験片51a、51bは、各々の配線を介して、電源（図略）に接続されている。
- [0093] 試験片51a、51b間に電圧を印加すると、試験片51a、51b間に静電引力が生じて、被着体50を圧縮する。これにより、被着体50の厚さは薄くなり、延伸方向（上下方向）に伸長する。電界強度20V/ μ mの直流電圧を印加してから10秒後に、被着体50に流れる電流を測定した。

[0094] <評価結果>

導電性架橋体等の評価結果を、上記表1にまとめて示す。表1に示すように、実施例の導電性架橋体におけるM.E.K不溶分は、100%に近い値となった。これにより、実施例の導電性架橋体においては、架橋が充分に進行していることが確認された。これに対して、比較例1の導電性材料のM.E.K不溶分は、78%であった。つまり、比較例1の導電性材料においては、実施例の導電性架橋体と比較して、架橋が進行していないことがわかる。なお、比較例2の導電性材料は、架橋させていないので、M.E.K不溶分は0%であ

った。

[0095] また、弾性率については、実施例と比較例とにおいて、大きな差は見られなかった。切断時伸びについても、実施例2、4において、やや低下したものの、実施例1、3については、比較例と略同レベルの値であった。また、実施例の導電性架橋体は、比較例の導電性材料と同様に、いずれも高い導電性を示した。

[0096] 一方、永久伸びについては、実施例と比較例とにおいて、大きな違いがあった。すなわち、比較例の導電性材料は、60°C下での伸長時に破断してしまったのに対して、実施例の導電性架橋体は、破断しなかった。これにより、実施例の導電性架橋体は、へたりにくく、形状保持性に優れることが確認された。

[0097] また、試験用素子を用いた試験の結果、比較例の導電性材料を電極にした場合には、非着体の体積抵抗率が低下した。また、実施例の導電性架橋体を電極にした場合と比較して、被着体に流れる電流が大きくなった。これは、エラストマーおよび架橋促進剤に由来する反応残渣が、被着体へ移動したためと考えられる。これに対して、実施例の導電性架橋体を電極にした場合には、被着体の体積抵抗率は、ほとんど変化しなかった。また、被着体に流れる電流も小さかった。このように、実施例の導電性架橋体によると、反応残渣が生じにくいか、あるいは反応残渣が生じても、被着体への影響は小さいことが確認された。

産業上の利用可能性

[0098] 柔軟なアクチュエータは、例えば、産業、医療、福祉ロボット用の人工筋肉、電子部品冷却用や医療用等の小型ポンプ、医療用器具等に用いられる。本発明の導電性架橋体は、このような柔軟なアクチュエータの電極、配線等に好適である。また、静電容量型センサ等のエラストマーセンサの電極、配線等にも好適である。また、発電素子の他、発光、発熱、発色等を行う柔軟なトランスデューサの電極、配線等にも好適である。また、本発明の導電性架橋体は、ロボットや産業用機械の可動部の制御、ウェアラブルデバイス、

屈曲可能なディスプレイ等に使用されるフレキシブル配線板の電極、配線等
に好適である。さらに、電磁波シールドとしても好適である。

請求の範囲

- [請求項1] ゴムポリマーと、有機金属化合物と、導電剤と、を含む導電性組成物から合成され、架橋構造を有することを特徴とする導電性架橋体。
- [請求項2] 前記有機金属化合物は、金属アルコキシド化合物、金属アシレート化合物、および金属キレート化合物から選ばれる一種以上である請求項1に記載の導電性架橋体。
- [請求項3] 前記有機金属化合物は、ケイ素、チタン、ジルコニウム、ハフニウム、アルミニウム、ガリウム、マグネシウム、亜鉛、およびホウ素から選ばれる一種以上の元素を含む請求項1または請求項2に記載の導電性架橋体。
- [請求項4] 前記ゴムポリマーは、活性水素または活性水素を持つ求核性置換基と反応可能な官能基を有し、該官能基による前記有機金属化合物との反応により前記架橋構造が形成されている請求項1ないし請求項3のいずれかに記載の導電性架橋体。
- [請求項5] 前記官能基は、カルボキシル基、ヒドロキシ基、アミノ基、およびエポキシ基から選ばれる一種以上である請求項4に記載の導電性架橋体。
- [請求項6] 前記導電剤は、カーボンブラックを含む請求項1ないし請求項5のいずれかに記載の導電性架橋体。
- [請求項7] 前記導電剤の含有量は、導電性架橋体の体積を100v o l %とした場合の0.1v o l %以上35v o l %以下である請求項1ないし請求項6のいずれかに記載の導電性架橋体。
- [請求項8] 請求項1ないし請求項7のいずれかに記載の導電性架橋体の製造方法であつて、
前記ゴムポリマーが溶解可能であり、かつ、前記有機金属化合物をキレート化できる溶剤中に、該ゴムポリマーと、前記導電剤と、該有機金属化合物と、を混合した混合溶液を調製する混合溶液調製工程と、

該混合溶液から該溶剤を除去して、架橋反応を進行させる架橋工程
と、

を有することを特徴とする導電性架橋体の製造方法。

[請求項9] エラストマー製の誘電膜と、該誘電膜を介して配置されている複数の電極と、複数の該電極と各々接続されている配線と、を備え、
該電極および該配線の少なくとも一方は、請求項1ないし請求項7のいずれかに記載の導電性架橋体からなることを特徴とするトランスデューサ。

[請求項10] 複数の前記電極間に印加された電圧に応じて、前記誘電膜が伸縮するアクチュエータである請求項9に記載のトランスデューサ。

[請求項11] 伸縮可能な弾性基材と、該弾性基材の表面に配置されている配線と、を備え、
該配線の少なくとも一部は、請求項1ないし請求項7のいずれかに記載の導電性架橋体からなることを特徴とするフレキシブル配線板。

[請求項12] 請求項1ないし請求項7のいずれかに記載の導電性架橋体からなることを特徴とする電磁波シールド。

補正された請求の範囲
[2011年5月25日(25.05.2011)国際事務局受理]

- [請求項 1] (補正後) 活性水素または活性水素を持つ求核性置換基と反応可能な官能基を有するゴムポリマーと、有機金属化合物と、導電剤と、を含む導電性組成物から合成され、架橋構造を有し伸縮可能であることを特徴とする導電性架橋体。
- [請求項 2] 前記有機金属化合物は、金属アルコキシド化合物、金属アシレート化合物、および金属キレート化合物から選ばれる一種以上である請求項 1 に記載の導電性架橋体。
- [請求項 3] 前記有機金属化合物は、ケイ素、チタン、ジルコニウム、ハフニウム、アルミニウム、ガリウム、マグネシウム、亜鉛、およびホウ素から選ばれる一種以上の元素を含む請求項 1 または請求項 2 に記載の導電性架橋体。
- [請求項 4] (補正後) 前記架橋構造は、前記ゴムポリマーの前記官能基と前記有機金属化合物との反応により形成されている請求項 1 ないし請求項 3 のいずれかに記載の導電性架橋体。
- [請求項 5] 前記官能基は、カルボキシル基、ヒドロキシ基、アミノ基、およびエポキシ基から選ばれる一種以上である請求項 4 に記載の導電性架橋体。
- [請求項 6] 前記導電剤は、カーボンブラックを含む請求項 1 ないし請求項 5 のいずれかに記載の導電性架橋体。
- [請求項 7] 前記導電剤の含有量は、導電性架橋体の体積を 100 v o l % とした場合の 0.1 v o l % 以上 35 v o l % 以下である請求項 1 ないし請求項 6 のいずれかに記載の導電性架橋体。
- [請求項 8] 請求項 1 ないし請求項 7 のいずれかに記載の導電性架橋体の製造方法であつて、
前記ゴムポリマーが溶解可能であり、かつ、前記有機金属化合物をキレート化できる溶剤中に、該ゴムポリマーと、前記導電剤と、該有機金属化合物と、を混合した混合溶液を調製する混合溶液調製工程と

、
該混合溶液から該溶剤を除去して、架橋反応を進行させる架橋工程

と、

を有することを特徴とする導電性架橋体の製造方法。

[請求項 9] エラストマー製の誘電膜と、該誘電膜を介して配置されている複数の電極と、複数の該電極と各々接続されている配線と、を備え、

該電極および該配線の少なくとも一方は、請求項 1ないし請求項 7 のいずれかに記載の導電性架橋体からなることを特徴とするトランスデューサ。

[請求項 10] 複数の前記電極間に印加された電圧に応じて、前記誘電膜が伸縮するアクチュエータである請求項 9 に記載のトランスデューサ。

[請求項 11] 伸縮可能な弾性基材と、該弾性基材の表面に配置されている配線と、を備え、

該配線の少なくとも一部は、請求項 1ないし請求項 7 のいずれかに記載の導電性架橋体からなることを特徴とするフレキシブル配線板。

[請求項 12] 請求項 1ないし請求項 7 のいずれかに記載の導電性架橋体からなることを特徴とする電磁波シールド。

PCT 19条（1）の規定に基づく説明書

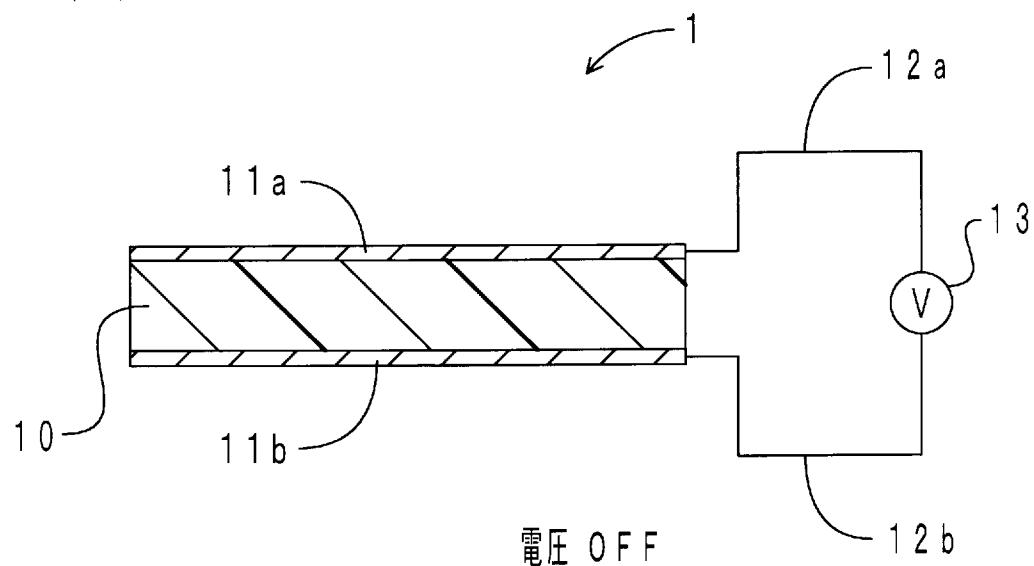
請求の範囲の第1項において、ゴムポリマーは、活性水素または活性水素を持つ求核性置換基と反応可能な官能基を有する点を明確にすると共に、本発明の導電性架橋体は、伸縮可能であることを明確にした。

ゴムポリマーの官能基は、有機金属化合物との架橋サイトとなる。つまり、ゴムポリマーの官能基が、有機金属化合物中の活性水素または活性水素を持つ求核性置換基と反応することにより、架橋による三次元網目構造を形成することができる。このように、本発明の導電性架橋体は、架橋サイトを介した三次元網目構造や、ゴムポリマーの一部と有機金属化合物とが反応せずに、有機金属化合物の架橋構造中にゴムポリマーが侵入した相互網目構造を有する。したがって、伸縮を繰り返してもへたりにくく、形状保持性に優れる。

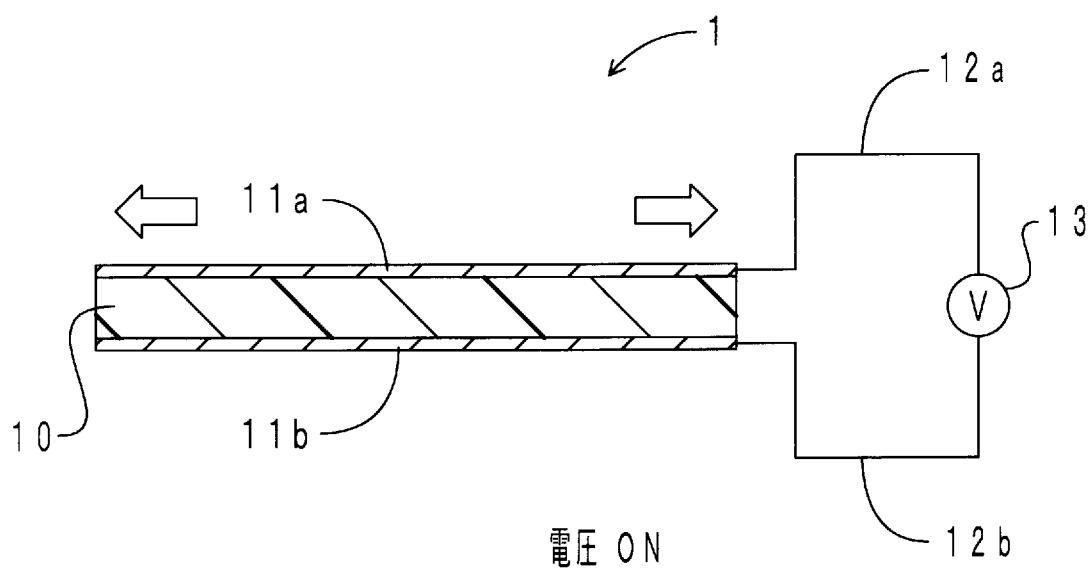
上記架橋構造を有し、伸縮可能な本発明の導電性架橋体は、文献1（JP 2007-222722）、文献2（JP 2010-59441）、文献3（JP 57-47353）、文献4（JP 63-12672）、文献5（JP 2004-323652）、文献6（JP 60-215009）には開示されていない。例えば、文献1に記載の親水性部材は、ガラス基板やプラスチック基板を必須とする。つまり、文献1に記載の親水性部材においては、親水性被膜が、ガラス基板やプラスチック基板の上に塗設される。このため、親水性被膜は、伸縮性を有しない。また、文献2に記載の組成物は、導電剤を含まない。このため、文献2に記載の組成物は、導電性を有しない。

[図1]

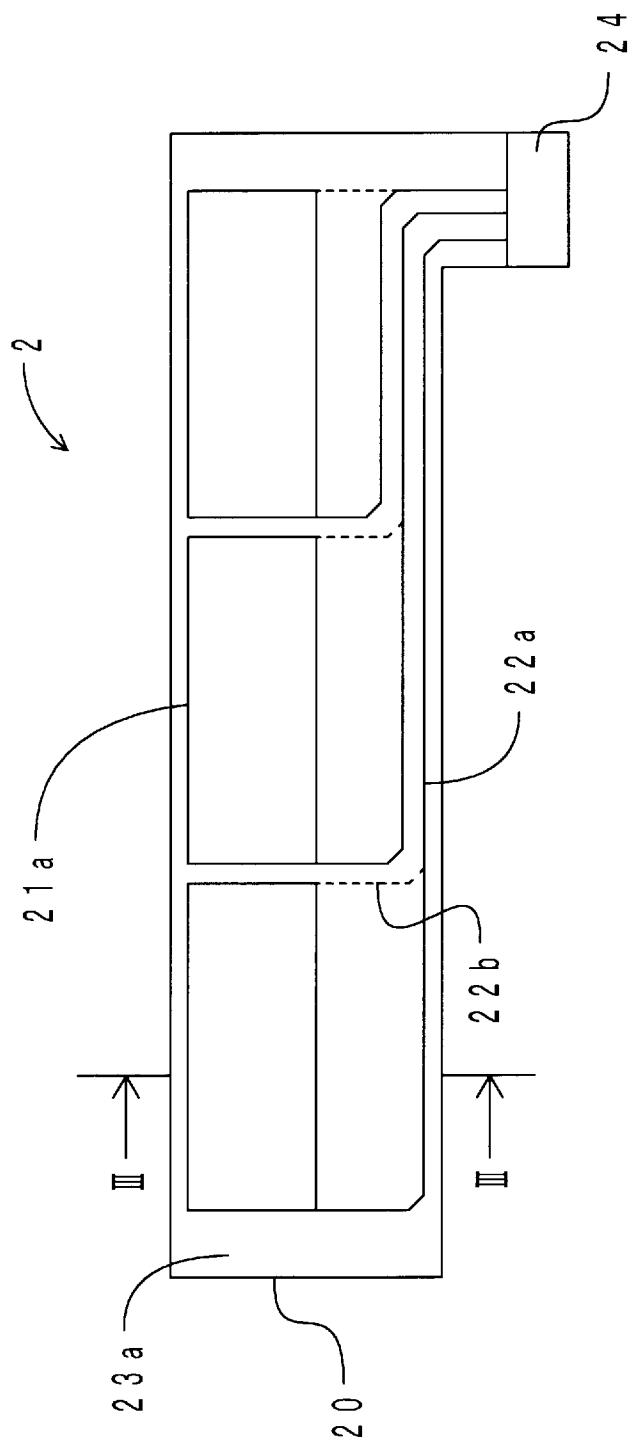
(a)



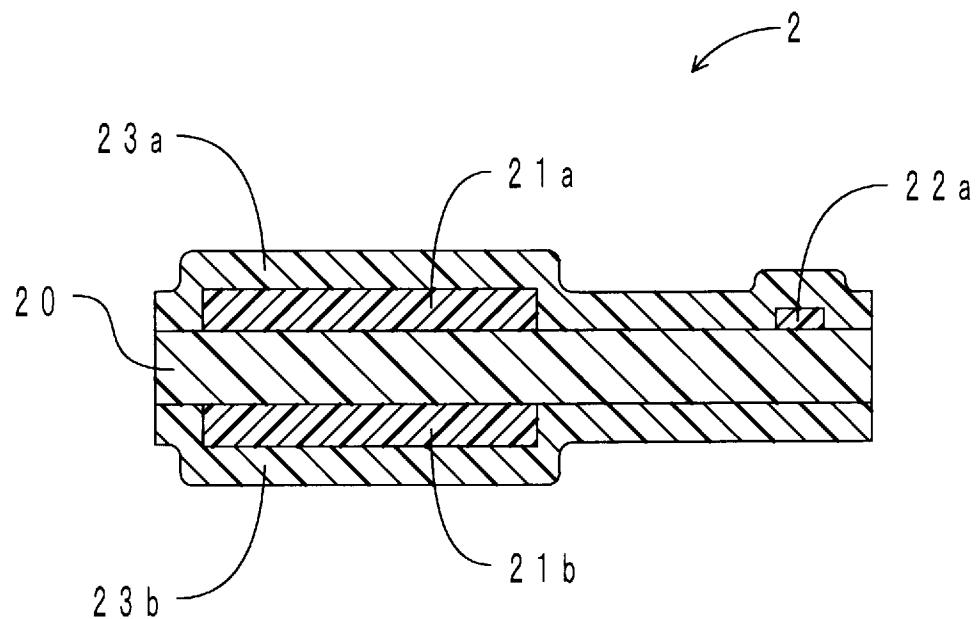
(b)



[図2]

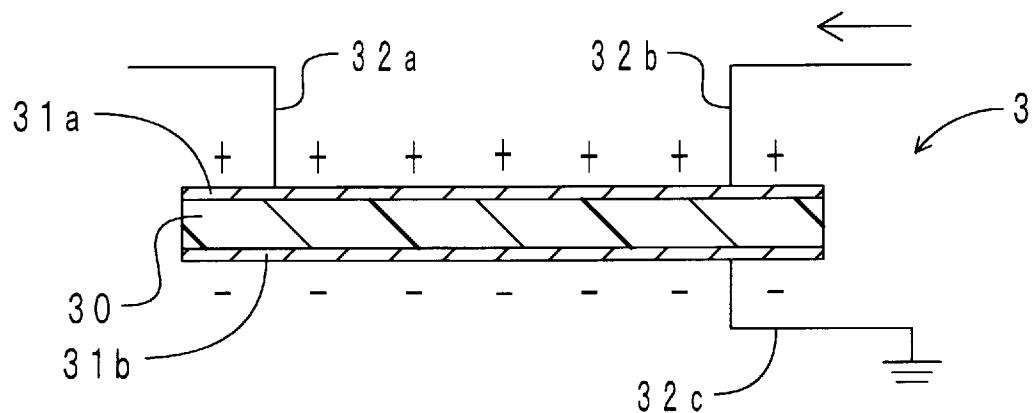


[図3]



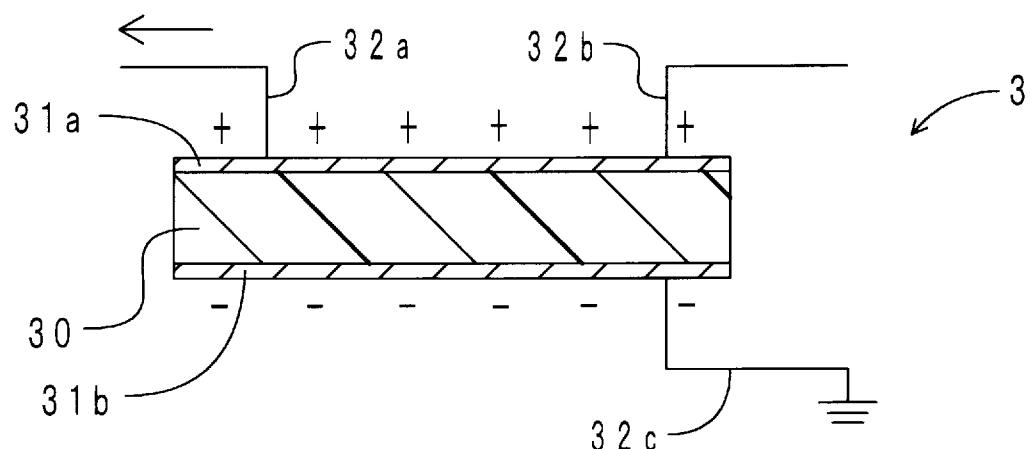
[図4]

(a) 伸長時

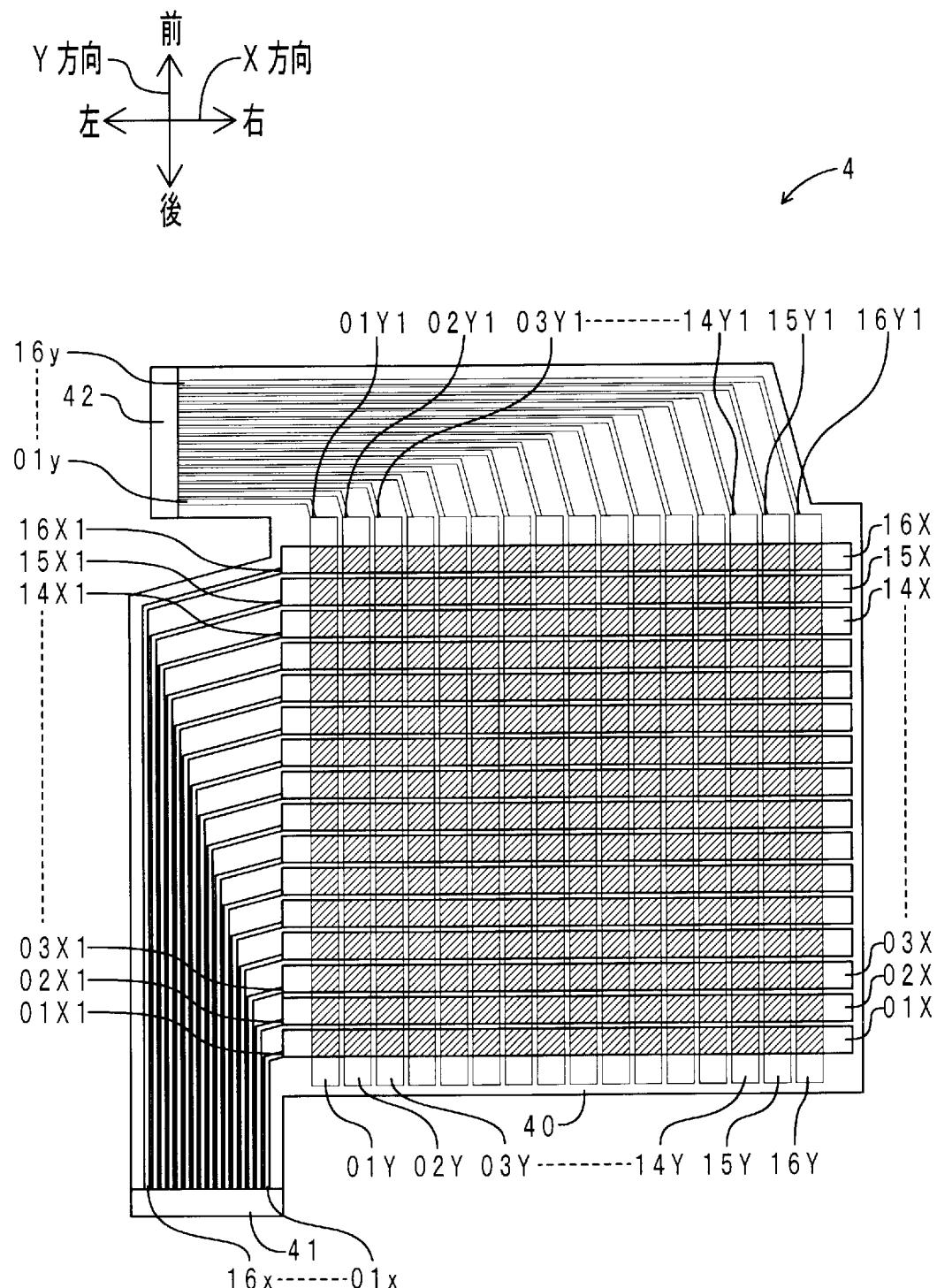


電荷を吸収 ↑ 電荷を放出 ↓

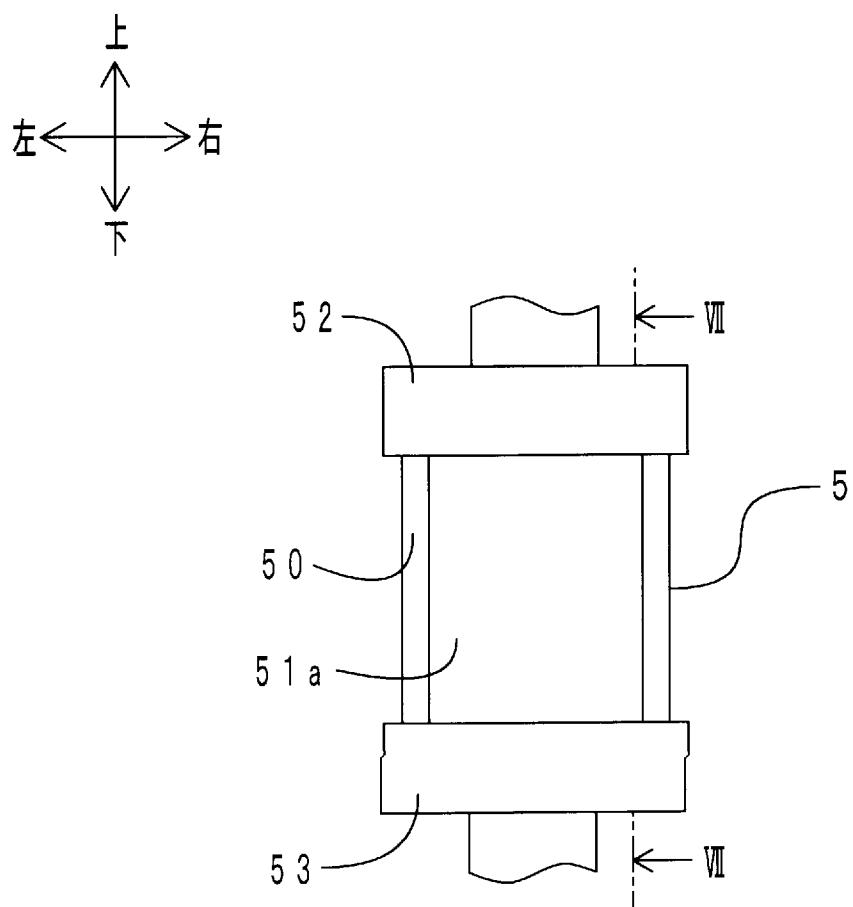
(b) 収縮時



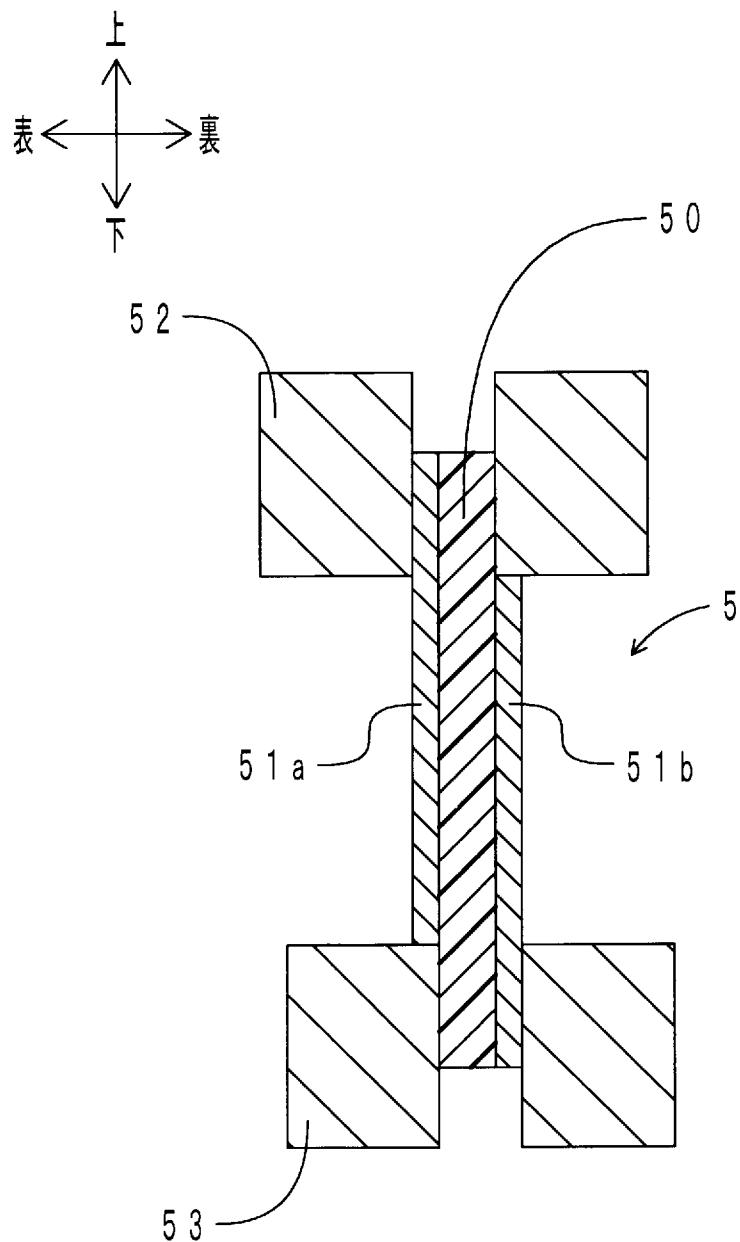
[図5]



[図6]



[図7]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/053812

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L21/00(2006.01)i, *C08K3/00*(2006.01)i, *H01B1/24*(2006.01)i, *H01B13/00*(2006.01)i, *H01L41/193*(2006.01)i, *H01L41/26*(2006.01)i, *H05K1/09*(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)

C08K3/00-13/08, C08L1/00-101/14

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	1996-2011
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2011	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2011

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 A	JP 2007-222722 A (Fujifilm Corp.), 06 September 2007 (06.09.2007), claim 1; paragraph [0073] (Family: none)	1-3, 12 4-11
X A	JP 2010-59441 A (Four Road Research Ltd.), 18 March 2010 (18.03.2010), claims 1, 6; paragraphs [0010], [0040] & US 2008/207809 A1 & US 2008/227913 A1	1-5, 7-8 6, 9-12
X A	JP 57-47353 A (General Electric Co.), 18 March 1982 (18.03.1982), claims 1, 30 & US 4438039 A1 & US 4722967 A1	1-3 4-12

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
17 March, 2011 (17.03.11)

Date of mailing of the international search report
29 March, 2011 (29.03.11)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/053812

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 63-12672 A (Ube Industries, Ltd.), 20 January 1988 (20.01.1988), claims 1 to 2; page 3, upper left column, lines 9 to 10; page 3, lower right column, lines 4 to 5 (Family: none)	1-3 4-12
X A	JP 2004-323652 A (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 18 November 2004 (18.11.2004), claim 1; paragraph [0026] (Family: none)	1, 6 2-5, 7-12
X A	JP 60-215009 A (Loctite Corp.), 28 October 1985 (28.10.1985), claim 1; page 3, upper right column, lines 11 to 20 & US 4675346 A1 & EP 228145 A1	1, 7 2-6, 8-12

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C08L21/00(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, H01B1/24(2006.01)i, H01B13/00(2006.01)i, H01L41/193(2006.01)i, H01L41/26(2006.01)i, H05K1/09(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C08K3/00-13/08, C08L1/00-101/14

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2011年
日本国実用新案登録公報	1996-2011年
日本国登録実用新案公報	1994-2011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 A	JP 2007-222722 A (富士フイルム株式会社) 2007.09.06, 請求項 1, 段落【0073】 (ファミリーなし)	1-3, 12 4-11
X A	JP 2010-59441 A (有限会社フォアロードリサーチ) 2010.03.18, 請 求項 1, 請求項 6, 段落【0010】, 段落【0040】 & US 2008/207809 A1 & US 2008/227913 A1	1-5, 7-8 6, 9-12
X A	JP 57-47353 A (ゼネラル・エレクトリック・カンパニイ) 1982.03.18, 請求項 1, 請求項 30 & US 4438039 A1 & US 4722967 A1	1-3 4-12

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 17. 03. 2011	国際調査報告の発送日 29. 03. 2011
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/JP） 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 米村 耕一 電話番号 03-3581-1101 内線 3457 4 J 3751

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X A	JP 63-12672 A (宇部興産株式会社) 1988.01.20, 請求項 1-2, 第 3 頁左上欄第 9-10 行, 第 3 頁右下欄第 4-5 行 (ファミリーなし)	1-3 4-12
X A	JP 2004-323652 A (信越化学工業株式会社) 2004.11.18, 請求項 1, 段落【0026】 (ファミリーなし)	1, 6 2-5, 7-12
X A	JP 60-215009 A (ロツクタイト コーポレーション) 1985.10.28, 請 求項 1, 第 3 頁右上欄第 11-20 行 & US 4675346 A1 & EP 228145 A1	1, 7 2-6, 8-12