

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6336114号  
(P6336114)

(45) 発行日 平成30年6月6日(2018.6.6)

(24) 登録日 平成30年5月11日(2018.5.11)

(51) Int.Cl. F I  
**C O 9 J 133/06 (2006.01)** C O 9 J 133/06  
**C O 9 J 4/02 (2006.01)** C O 9 J 4/02

請求項の数 3 (全 35 頁)

(21) 出願番号	特願2016-558735 (P2016-558735)	(73) 特許権者	505005049
(86) (22) 出願日	平成26年3月26日 (2014.3.26)		スリーエム イノベイティブ プロパティ
(65) 公表番号	特表2017-512860 (P2017-512860A)		ズ カンパニー
(43) 公表日	平成29年5月25日 (2017.5.25)		アメリカ合衆国, ミネソタ州 55133
(86) 国際出願番号	PCT/CN2014/074139		-3427, セント ポール, ポスト オ
(87) 国際公開番号	W02015/143649		フィス ボックス 33427, スリーエ
(87) 国際公開日	平成27年10月1日 (2015.10.1)		ム センター
審査請求日	平成29年1月31日 (2017.1.31)	(74) 代理人	100088155
			弁理士 長谷川 芳樹
		(74) 代理人	100107456
			弁理士 池田 成人
		(74) 代理人	100128381
			弁理士 清水 義憲
		(74) 代理人	100162352
			弁理士 酒巻 順一郎

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 紫外線硬化 (メタ) アクリレート感圧性接着剤組成物及びその製造プロセス

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(a) 500,000 g / モル (ダルトン) より大きい重量平均分子量を有する、酸官能性 (メタ) アクリレートコポリマー、及び

(b) 20,000 g / モル (ダルトン) 超で 200,000 g / モル (ダルトン) 以下の重量平均分子量を有し、かつ 20 以下のガラス転移温度を有する、(メタ) アクリレート粘着付与剤、

を含む、(メタ) アクリレート感圧性接着剤。

【請求項 2】

前記酸官能性 (メタ) アクリレートコポリマーが第 1 の反応混合物から調製され、

前記第 1 の反応混合物が、

(1) 45 ~ 99.5 重量 % の非三級アルキルアクリレート、

(2) 0.5 ~ 15 重量 % の酸官能性エチレン性不飽和モノマー、

(3) 0 ~ 40 重量 % の任意の高 T<sub>g</sub> (メタ) アクリレート (この T<sub>g</sub> は前記非三級アルキルアクリレートの T<sub>g</sub> の値よりも高い)、

(4) 0 ~ 10 重量 % の任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマー、

(5) 0 ~ 5 重量 % の任意の他のビニルモノマー、及び

(6) 0 ~ 2 重量 % の任意の多官能性アクリレート、を含む、請求項 1 に記載の (メタ) アクリレート感圧性接着剤。

【請求項 3】

10

20

前記（メタ）アクリレート粘着付与剤が第２の反応混合物から生成され、  
この第２の反応混合物が、  
（１）３０～９９．５重量％の非三級アルキルアクリレート、  
（２）０．５～１５重量％の酸官能性エチレン性不飽和モノマー、  
（３）０～６０重量％の任意の高Ｔｇ（メタ）アクリレート（このＴｇは前記非三級アルキルアクリレートのＴｇの値よりも高い）、  
（４）０～４０重量％の任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマー、  
（５）０～４０重量％の任意の他のビニルモノマー、及び  
（６）０～５重量％の任意の多官能性（メタ）アクリレート、を含む、請求項１又は２  
に記載の（メタ）アクリレート感圧性接着剤。

10

【発明の詳細な説明】

【発明の詳細な説明】

【０００１】

[発明の分野]

本発明は、紫外線硬化（メタ）アクリレート感圧性接着剤組成物及びこれを製造するためのプロセスに関する。

【０００２】

[発明の背景]

感圧接着テープ（ＰＳＡ）は、家庭及び職場の実質上至る所に存在する。最も単純な構成のひとつにおいては、感圧性テープは支持体層及び支持体層に付与された接着層を含む。感圧性テープ協議会によると、感圧性接着剤は以下の特性を有することが知られている。すなわち、（１）強力かつ永久的な粘着性、（２）指圧以下での接着、（３）被着体に対する十分な保持力、及び（４）被着体からきれいに剥離されるだけの十分な凝集強さ、である。ＰＳＡとして良好に機能することが判明している材料としては、必須の粘弾性特性を示し、粘着、剥離接着、及びせん断保持力の所望のバランスをもたらすように設計及び処方されたポリマーが挙げられる。ＰＳＡは、通常は、室温（例えば、約２０～２５）で粘着性であることを特徴とする。単に粘着性であったり、表面に接着するだけの材料でＰＳＡを構成するわけではない。ＰＳＡという用語は更に粘弾特性を有する材料を包含する。

20

【０００３】

アクリル系感圧性接着剤は広く使用されてきた。これらの感圧性接着剤組成物は、有機溶剤を含有していてもよいし、又は有機溶剤を含有していなくてもよい。有機溶剤を含有しているＰＳＡ組成物は、現在は市場を支配しているが、有機溶剤の使用に伴う汚染や高エネルギー消費の問題が関わっているため、その重要度が減少している。すなわち、接着剤業界は、無有機溶媒タイプの感圧性接着剤により注目している。有機溶剤を含有していないＰＳＡ組成物は、エマルジョンタイプ接着剤、ホットメルトタイプ接着剤、又は紫外線硬化タイプ接着剤に分類することができる。

30

【０００４】

特に産業界では、溶剤を含有していないＰＳＡ組成物の使用が増加するにつれ、性能向上の要求、特に接着力向上に対する要求が増している。アクリル系ＰＳＡの接着力を効果的に向上させる従来のアプローチには、処方に可塑剤、又は従来の粘着付与剤を添加することも含まれている。可塑剤は、工程における制限、原料の問題、及び安定性の問題のために、粘着付与剤ほど頻繁には使用されてこなかった。一方、一般的に使用される粘着付与剤は、主にロジン樹脂、テルペン樹脂、石油系樹脂、芳香族系樹脂等である。これらの一般的な粘着付与剤は広く使用されてきたが、紫外線によって硬化される感圧性接着剤には通常使用されることがない。すなわち、これらの一般的な粘着付与剤は極めて紫外線を吸収しやすく、重合反応を実質的に阻害する傾向があり、それゆえ生成されたＰＳＡの性能に悪影響を及ぼし得る。例えば、接着剤と粘着付与剤の間で相分離が発生し、低分子量及び接着ポリマーの硬化率が低いことから、低凝集力につながり得る。

40

【０００５】

50

紫外線によって硬化するアクリル系 P S A 組成物の使用に適した粘着付与剤の探索が今までも何度も試みられている。

【 0 0 0 6 】

通常使用される粘着付与剤は、水素添加されたロジン樹脂、又は芳香族系合成樹脂であったが、これらの粘着付与剤には、高コストであり、感圧性接着剤の性能を向上させるには限られた能力しかないといった、相当な制限がある。

【 0 0 0 7 】

[ 発明の概要 ]

ゆえに、エネルギー消費が少なく、硬化速度が速く、効率にも優れ、有機溶剤を使用せずに（あるいは使用を最小限にした）紫外線硬化による作製が可能な新しい感圧性接着剤組成物が必要とされている。

【 0 0 0 8 】

酸官能性（メタ）アクリレートコポリマー、及び（メタ）アクリレート粘着付与剤を含む、感圧性接着剤組成物を提供する。この感圧性接着剤組成物は、部分的に重合した酸官能性（メタ）アクリレートコポリマーを含む第 1 のシロップ状ポリマー、（メタ）アクリレート粘着付与剤、及び紫外線光開始剤を含む、反応混合物から生成される。驚くべきことに、紫外線を使用し、かつ有機溶剤を使用せずに（又は、あるいは最小限の有機溶剤を使用して）、この感圧性接着剤を作製することができる。この P S A を生成するために使用するプロセスは、エネルギー消費が低く、高速で、かつ高効率であり得る。

【 0 0 0 9 】

第 1 の態様は、（ a ）第 1 の反応混合物から生成される第 1 のシロップ状ポリマー、（ b ） 2 0 , 0 0 0 g / モル（ダルトン）超、2 0 0 , 0 0 0 g / モル（ダルトン）以下の重量平均分子量を有し、ガラス転移温度が 2 0 以下である（メタ）アクリレート粘着付与剤、及び（ c ）紫外線光開始剤を含む硬化性接着剤組成物に関する。第 1 のシロップ状ポリマーを生成するのに使用される第 1 の反応混合物は、（ 1 ）非三級アルキルアクリレート、及び（ 2 ）酸官能性エチレン性不飽和モノマーを含む。この第 1 のシロップ状ポリマーは、（ i ）第 1 の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき 1 ~ 3 0 重量 % の部分的に重合した酸官能性（メタ）アクリレートコポリマー、及び（ i i ）第 1 の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき 7 0 ~ 9 9 重量 % の未反応のモノマー、を含み、この部分的に重合した酸官能性（メタ）アクリレートコポリマーは、5 0 0 , 0 0 0 g / モル（ダルトン）超の重量平均分子量を有する。

【 0 0 1 0 】

第 2 の態様は、硬化性接着剤組成物の紫外線硬化反応生成物である、硬化済み接着剤組成物に関する。この硬化性接着剤組成物は、（ a ）第 1 の反応混合物から生成される第 1 のシロップ状ポリマー、（ b ） 2 0 , 0 0 0 g / モル（ダルトン）超、2 0 0 , 0 0 0 g / モル（ダルトン）以下の重量平均分子量を有し、ガラス転移温度が 2 0 以下である（メタ）アクリレート粘着付与剤、及び（ c ）紫外線光開始剤を含む。第 1 のシロップ状ポリマーを生成するのに使用される第 1 の反応混合物は、（ 1 ）非三級アルキルアクリレート、及び（ 2 ）酸官能性エチレン性不飽和モノマーを含む。この第 1 のシロップ状ポリマーは、（ i ）第 1 の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき 1 ~ 3 0 重量 % の部分的に重合した酸官能性（メタ）アクリレートコポリマー、及び（ i i ）第 1 の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき 7 0 ~ 9 9 重量 % の未反応のモノマー、を含み、この部分的に重合した酸官能性（メタ）アクリレートコポリマーは、5 0 0 , 0 0 0 g / モル（ダルトン）超の重量平均分子量を有する。硬化済み接着剤組成物は、感圧性接着剤である。

【 0 0 1 1 】

第 3 の態様は、感圧性接着剤を製造する方法に関する。この方法は、（ 1 ）非三級アルキルアクリレート、及び（ 2 ）酸官能性エチレン性不飽和モノマーを含む第 1 の反応混合物から第 1 のシロップ状ポリマーを生成する工程を含む。この第 1 のシロップ状ポリマーは、（ i ）第 1 の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき 1 ~ 3 0 重量 % の部分的に重合した酸官能性（メタ）アクリレートコポリマー、及び（ i i ）第 1 の反応混合物中のモノ

10

20

30

40

50

ノマーの総重量に基づき70～99重量%の未反応のモノマー、を含み、この部分的に重合した酸官能性(メタ)アクリレートコポリマーは、500,000g/モル(ダルトン)超の重量平均分子量を有する。この方法は、20,000g/モル(ダルトン)超、200,000g/モル(ダルトン)以下の重量平均分子量を有し、ガラス転移温度が20

以下である(メタ)アクリレート粘着付与剤を提供する工程を更に含む。この方法は第1のシロップ状ポリマー、(メタ)アクリレート粘着付与剤、及び紫外線光開始剤を混合して、硬化性接着剤組成物を調整する工程、その後この硬化性接着剤組成物を紫外線で硬化して、感圧性接着剤である、硬化済みの接着剤組成物を作製する工程を更に含む。

#### 【0012】

本発明の第4の態様は、(a)500,000g/モル(ダルトン)より大きい重量平均分子量(Mw)を有する酸官能性(メタ)アクリレートコポリマー、及び(b)20,000g/モル(ダルトン)超、200,000g/モル(ダルトン)以下の重量平均分子量を有し、20以下のガラス転移温度(Tg)を有する(メタ)アクリレート粘着付与剤、を含む(メタ)アクリレート感圧性接着剤組成物に関する。

#### 【0013】

##### [詳細な説明]

(メタ)アクリレート感圧性接着剤、(メタ)アクリレート感圧性接着剤を調製するために使用可能な硬化性接着剤組成物、及び(メタ)アクリレート感圧性接着剤の製造方法を提供する。より具体的には、(メタ)アクリレート感圧性接着剤は、(a)500,000g/モル(ダルトン)より大きい重量平均分子量を有する(メタ)アクリレートコポリマー、及び(b)20,000g/モル(ダルトン)超、200,000g/モル(ダルトン)以下の重量平均分子量を有し、20以下のガラス転移温度(Tg)を有する(メタ)アクリレート粘着付与剤、を含む。この感圧性接着剤は、有機溶剤を最小限しか含まないか、全く含まない硬化性接着剤組成物を紫外線(UV)硬化することで、有利に作製される。

#### 【0014】

本明細書で使用するとき、用語「ポリマー」及び「重合性」及び「重合した生成物」は、ホモポリマー、コポリマー、ターポリマー等である物質を指す。本明細書で使用するとき、用語「コポリマー」及び「共重合性」とは、少なくとも2種類のモノマーから作製したポリマー材料を指す。すなわち、コポリマーは、ホモポリマーのみを除いたポリマーのサブセットである。

#### 【0015】

本明細書で使用するとき、用語「シロップ状ポリマー」とは、1種類以上のモノマーを含む反応混合物を部分的に、しかし不完全に重合することで生成される組成物を指す。すなわち、シロップ状ポリマーは、部分的に重合したポリマー材料と、重合反応を経ていない残りのモノマー(すなわち未反応のモノマー)を含む。この部分的に重合したポリマー材料は、残りのモノマーに可溶であり、溶解性ポリマーと呼ぶことができる。この部分的に重合したポリマー材料は、一般的には架橋していないか、残りのモノマーへの溶解性が阻害されない程度に架橋の量が小さい。すなわち、このシロップ状ポリマーは通常単一相である。部分的に重合した生成物は、一般的に、少なくとも1%重合しているか、少なくとも5%重合しているか、少なくとも10%重合しているか、少なくとも15%重合しているか、又は少なくとも20%重合している。部分的に重合した生成物は、重合反応を経ていない残りのモノマーが存在し、かつその残りのモノマーが、部分的に重合したポリマー材料と単一相を成していれば、どのような好ましい重合量であってもかまわない。

#### 【0016】

本発明で使用する場合、用語「(メタ)アクリレート」は、メタクリレートとアクリレートのモノマーの両方を意味する。同様に、用語「(メタ)アクリル酸」は、アクリル酸及びメタクリル酸材料の両方を指す。

#### 【0017】

用語「ガラス転移温度」又は「Tg」とは、材料がガラス状態からゴム状態へと遷移す

10

20

30

40

50

る温度を意味する。この文脈においては、「ガラス状態」という用語は、材料が硬くて脆いこと（ゆえに比較的割れやすい）を意味する一方で、「ゴム状態」という用語は、材料に弾性があり可撓性があることを意味する。ポリマー材料にとって、 $T_g$  はガラス状挙動とゴム状挙動を分ける重要な温度である。ポリマー材料がその  $T_g$  より低い温度にあるとき、材料は実質的に凍結しているために、大規模な分子の運動は非常に制限されている。一方で、ポリマー材料がその  $T_g$  よりも高い温度にあるときには、繰り返し単位のスケールでの分子運動が起こり、材料は柔らかく、ゴム状態になる。ポリマー材料のガラス転移温度は、しばしば示差走査熱量測定法などの方法を用いて求めることができる。本明細書におけるモノマーの  $T_g$  に関するあらゆる言及は、そのモノマーから調製されたホモポリマーの  $T_g$  を指す。

10

**【0018】**

範囲を示している場合は、その範囲の両端はその範囲に含まれているとみなす。例えば、「 $x$  から  $y$  の範囲」、「 $x \sim y$  の範囲」、「 $x$  から  $y$  の量」、「 $x \sim y$  の量」の表現、又はそれに類似した表現は、両端の  $x$  と  $y$  を含む。

**【0019】**

第1のシロップ状ポリマー：部分的に重合した酸官能性（メタ）アクリレートコポリマーの調製

酸官能性（メタ）アクリレートコポリマーは第1の反応混合物から生成される。第1の反応混合物は複数のモノマーを含む。より具体的には、第1の反応混合物は以下のモノマーを含み得る。（a）非三級アルキルアクリレート、（b）酸官能性エチレン性不飽和モノマー、（c）非三級アルキルアクリレートモノマーの  $T_g$  の値よりも高い  $T_g$  を有する、任意の高  $T_g$  （メタ）アクリレート、（d）任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマー、（e）任意の他のビニルモノマー、及び（f）任意の多官能性（メタ）アクリレート。一般的に、第1の反応混合物には、反応開始剤（例えば重合開始剤）が添加される。この反応開始剤は、通常、紫外線光開始剤等の光開始剤である。この第1の反応混合物は、一般的には、部分的に重合して、完全には重合せずに、第1のシロップ状ポリマーに調製される。すなわち、第1のシロップ状ポリマーは、部分的に重合した酸官能性（メタ）アクリレートコポリマーと酸官能性（メタ）アクリレートコポリマーの生成に使われたモノマーの未反応のものを含む。

20

**【0020】**

第1の反応混合物は非三級アルキルアクリレートを含む。好適な非三級アルキル基は、最大20個の炭素原子、最大18個の炭素原子、最大12個の炭素原子、又は最大10個の炭素原子を有する。非三級アルキル基は、多くの場合、1～20個の炭素原子、1～18個の炭素原子、2～18個の炭素原子、4～18個の炭素原子、1～12個の炭素原子、4～12個の炭素原子、1～10個の炭素原子、又は4～10個の炭素原子を有する。非三級アルキル基は、直鎖、分枝鎖、又はこれらの組合せであってもよい。非三級アルキルアクリレートは、例えば、メチルアクリレート、エチルアクリレート、 $n$ -プロピルアクリレート、イソプロピルアクリレート、 $n$ -ブチルアクリレート、イソブチルアクリレート、 $n$ -ペンチルアクリレート、イソペンチルアクリレート、2-メチルブチルアクリレート、 $n$ -ヘキシルアクリレート、4-メチル-2-ペンチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート、2-メ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、2-オクチルアクリレート、イソノニルアクリレート、イソアミルアクリレート、 $n$ -デシルアクリレート、イソデシルアクリレート、2-プロピルヘプチルアクリレート、イソトリデシルアクリレート、イソステアリルアクリレート、オクタデシルアクリレート、2-オクチルデシルアクリレート、ドデシルアクリレート、ラウリルアクリレート、及びヘプタデカンシルアクリレートが挙げられるが、これらに限定されない。

30

40

**【0021】**

非三級アルキルアクリレートの量は、通常、第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、45～99.5重量%、又は55～99.5重量%の範囲である。いくつかの実

50

施形態においては、非三級アルキルアクリレートの量は、第1の反応混合物中のモノマーの総重量の、少なくとも45重量%、少なくとも50重量%、少なくとも55重量%、少なくとも60重量%、少なくとも70重量%、少なくとも80重量%、少なくとも85重量%又は少なくとも90重量%である。非三級アルキルアクリレートの量は、多くの場合、第1の反応混合物中のモノマーの総重量の、最大99.5重量%、最大99重量%、最大98重量%、最大95重量%、最大90重量%、最大85重量%、最大80重量%、最大75重量%、又は最大70重量%である。

#### 【0022】

第1の反応混合物は、また酸官能性エチレン性不飽和モノマーを含む。酸官能性基のそれぞれは、酸性基、又は酸性基の塩として存在してよい。好適な塩として、例えば、アンモニウムイオン、アルキル置換アンモニウムイオン、又はアルカリ金属カチオンから選択されるカチオンが挙げられる。利用可能な酸官能性エチレン性モノマーとしては、エチレン性不飽和カルボン酸、エチレン性不飽和スルホン酸、及びエチレン性不飽和ホスホン酸が挙げられるが、これに限定されない。酸官能性エチレン性不飽和モノマーの例として、アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、クロトン酸、シトラコン酸、マレイン酸、オレイン酸、 $\alpha$ -カルボキシエチルメタクリレート、スチレンスルホン酸、2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸、ビニルホスホン酸、及びこれらの混合物が挙げられるが、これらに限定されない。その加工性から、酸官能性エチレン性不飽和モノマーは、通常、例えば(メタ)アクリル酸などのエチレン性不飽和カルボン酸から選択される。多くの実施形態では、このモノマーはアクリル酸である。より強い酸が求められる場合には、酸官能性エチレン性不飽和モノマーは、エチレン性不飽和スルホン酸、及びエチレン性不飽和ホスホン酸であってもよい。

#### 【0023】

酸官能性エチレン性不飽和モノマーの量は、通常、第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、0.5~15重量%の範囲である。いくつかの実施形態では、酸官能性エチレン性不飽和モノマーの量は、少なくとも0.5重量%、少なくとも1重量%、少なくとも2重量%、又は少なくとも5重量%である。酸官能性エチレン性不飽和モノマーの量は、最大15重量%、最大10重量%、又は最大5重量%である。

#### 【0024】

第1の反応混合物は、任意に高Tgモノマーを含んでいてよい。このモノマーに言及する際には、「高Tg」という用語は、この特定のモノマーから生成された対応するホモポリマーのTgが、少なくとも25、少なくとも30、少なくとも35、少なくとも40、少なくとも45、又は少なくとも50であることを意味する。高TgモノマーのTgは典型的に上記の非三級アルキルアクリレートのTgよりも高い。高Tgモノマーは、多くの場合、シクロアルキルアクリレート、二環式アルキルアクリレート、アルキルメタクリレート、又はアリアルメタクリレートである。好適なシクロアルキルアクリレートは、多くの場合、炭素数6~10の環状アルキルを有し、例えば、シクロヘキシルアクリレート、3,3,5-トリメチルシクロヘキシルアクリレート、及びイソボルニルアクリレート等が含まれる。好適なアルキルメタクリレートは、直鎖、分枝鎖、環状、又はこれらの組合せで、かつ最大20個の炭素原子、最大18個の炭素原子、最大12個の炭素原子、最大10個の炭素原子、又は最大8個の炭素原子を有する、アルキル基を有し得る。アルキルメタクリレートの例として、例えば、メチルメタクリレート、エチルメタクリレート、n-プロピルメタクリレート、イソプロピルメタクリレート、n-ブチルメタクリレート、イソブチルメタクリレート、tert-ブチルメタクリレート、オクタデシルメタクリレート、及びイソボルニルメタクリレートが挙げられるが、これらに限定されない。好適なアリアルメタクリレートとして、フェニルメタクリレート及びベンジルメタクリレートが挙げられるが、これらに限定されない。

#### 【0025】

高Tgモノマーは、第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき0~40重量%の量で存在してよい。任意であるが、この高Tgモノマーは多くの実施形態で含有される。

もし存在する場合、高Tgモノマーは、多くの場合、少なくとも1重量%、少なくとも5重量%、少なくとも10重量%、少なくとも15重量%、又は少なくとも20重量%に等しい量で存在する。高Tgモノマーは、最大40重量%、最大35重量%、最大30重量%、又は最大25重量%の量で存在してよい。存在する場合、高Tgモノマー及び非三級アルキルアクリレートの組合せは、第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、最大99.5重量%、最大99重量%、最大95重量%、又は最大90重量%の量で存在する。

#### 【0026】

いくつかの第1の反応混合物においては、モノマーは、0.5~15重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマー及び85~99.5重量%の非三級アルキルアクリレートと高Tgモノマーの組合せを含む。例えば、モノマーは、1~15重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマー及び85~99重量%の非三級アルキルアクリレートと高Tgモノマーの組合せ、1~10重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマー及び90~99重量%の非三級アルキルアクリレートと高Tgモノマーの組合せ、又は1~5重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマー及び95~99重量%の非三級アルキルアクリレートと高Tgモノマーの組合せを含む。

#### 【0027】

第1の反応混合物は更に任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマーを含んでいてもよい。極性モノマーは、ヒドロキシル基、1級アミド基、2級アミド基、3級アミド基、アミノ基、又はエーテル基（すなわち、 $-R-O-R-$ の式（ここで各Rは1~4個の炭素原子を有するアルキレンである）で表されるアルキレン-オキシ-アルキレン基を少なくとも1個有する基）等の極性基を有している。様々なアミド基又はアミノ基は、カチオンの形態をとることができ、アニオン性の対イオンを有することができる。多くの実施形態では、アニオン性の対イオンは、ハロゲン化物、酢酸塩、ギ酸塩、硫酸塩、リン酸塩、又は同様なものである。

#### 【0028】

例示的なヒドロキシル基を有する極性モノマーとしては、ヒドロキシアルキル（メタ）アクリレート（例えば、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシプロピル（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、及び4-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート）、ヒドロキシアルキル（メタ）アクリルアミド（例えば、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリルアミド又は3-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリルアミド）、エトキシ化ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート（例えば、Sartomer（Exton, PA, USA）からCD570、CD571、及びCD572という商品名で市販されているモノマー）、及びアリアルオキシ置換ヒドロキシアルキル（メタ）アクリレート（例えば、2-ヒドロキシ-2-フェノキシプロピル（メタ）アクリレート）が挙げられるが、これらに限らない。

#### 【0029】

1級アミド基を有する極性モノマーの例としては（メタ）アクリルアミドがあり、2級アミド基を有する極性モノマーの例としては、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-イソプロピル（メタ）アクリルアミド、N-tert-ブチル（メタ）アクリルアミド、N-tert-オクチル（メタ）アクリルアミド、又はN-オクチル（メタ）アクリルアミド等のN-アルキル（メタ）アクリルアミドがある。三級アミド基を有する例示的な極性モノマーとしては、N-ビニルカプロラクタム、N-ビニル-2-ピロリドン、（メタ）アクリロイルモルホリン、並びにN,N-ジメチル（メタ）アクリルアミド、N,N-ジエチル（メタ）アクリルアミド、N,N-ジプロピル（メタ）アクリルアミド、及びN,N-ジブチル（メタ）アクリルアミドなどのN,N-ジアルキル（メタ）アクリルアミドが挙げられるが、これらに限らない。

#### 【0030】

アミノ基を有する極性モノマーには、様々なN,N-ジアルキルアミノアルキル（メタ）アクリレート及びN,N-ジアルキルアミノアルキル（メタ）アクリルアミドが含まれ

10

20

30

40

50

る。例として、N，N - ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート、N，N - ジメチルアミノエチル（メタ）アクリルアミド、N，N - ジメチルアミノプロピル（メタ）アクリレート、N，N - ジメチルアミノプロピル（メタ）アクリルアミド、N，N - ジエチルアミノエチル（メタ）アクリレート、N，N - ジエチルアミノエチル（メタ）アクリルアミド、N，N - ジエチルアミノプロピル（メタ）アクリレート、及びN，N - ジエチルアミノプロピル（メタ）アクリルアミドが挙げられるが、これに限定されない。

【0031】

エーテル基を有する極性モノマーの例として、ビニルメチルエーテル等のビニルエーテル、2 - （2 - エトキシエトキシ）エチル（メタ）アクリレート、2 - エトキシエチル（メタ）アクリレート、2 - メトキシエトキシエチル（メタ）アクリレート、及び2 - メトキシエチル（メタ）アクリレート等のアルコキシ化アルキル（メタ）アクリレート、ポリ（アルキレンオキシド）（メタ）アクリレート（ポリアルキレングリコール（メタ）アクリレートとしばしば呼ばれ、ポリエチレングリコール（メタ）アクリレート、及びポリプロピレングリコール（メタ）アクリレートを含む）が挙げられるが、これらに限定されない。これらのモノマーは、ヒドロキシル基又はアルコキシ基などの任意の好適な末端基を有する可能性がある。例えば、末端基がメトキシ基であるとき、モノマーは、メトキシポリ（エチレングリコール）（メタ）アクリレートと称することができる。

【0032】

非酸性極性モノマーは、第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、0 ~ 10重量%の量で存在することができる。存在する場合、非酸性極性モノマーはしばしば、少なくとも0.5重量%、少なくとも1重量%、少なくとも2重量%、少なくとも3重量%、又は少なくとも5重量%の量で使用される。非酸性極性モノマーは、最大10重量%、最大8重量%、最大6重量%、又は最大5重量%の量で存在してもよい。

【0033】

第1の反応混合物は更に他の任意のビニルモノマーを含むことができる。好適な任意のビニルモノマーとしては、ビニルアセテート、及びビニルプロピオネート等のビニルエステル、スチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン等の置換スチレン、塩化ビニル、エチレン、プロピレン、及びブチレン等のオレフィン系モノマー等が挙げられる。これらの他のビニルモノマーには、前記の非三級アルキルアクリレート、高T<sub>g</sub>モノマー、極性モノマー、又は酸官能性モノマーは含まれない。

【0034】

この任意の他のビニルモノマーは、第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき0 ~ 5重量%の量で存在することができる。存在する場合には、この他のビニルモノマーはしばしば、少なくとも0.5重量%、少なくとも1重量%、又は少なくとも2重量%の量で使用される。この量は、最大5重量%、最大4重量%又は最大3重量%であることができる。

【0035】

第1の反応混合物は更に任意の多官能性（メタ）アクリレートを含むことができる。第1の反応混合物は通常、部分的に重合した酸官能性（メタ）アクリレートコポリマーを含む第1のシロップ状ポリマーを生成するために使用されるため、任意の多官能性（メタ）アクリレートは使用されないか、第1のシロップ中に第2の相を生成しないような量にて使用される。

【0036】

存在する場合には、好適な任意の多官能性（メタ）アクリレートはしばしば、2つのアクリロイル基を有する（多官能性（メタ）アクリレートはジアクリレートである）。2つのアクリロイル基を有する代表的な架橋剤としては、1，2 - エタンジオールジアクリレート、1，3 - プロパンジオールジアクリレート、1，9 - ノナンジオールジアクリレート、1，12 - ドデカンジオールジアクリレート、1，4 - ブタンジオールジアクリレート、1，6 - ヘキサンジオールジアクリレート、ブチレングリコールジアクリレート、ビスフェノールAジアクリレート、ジエチレングリコールジアクリレート、トリエチレング



リコールジアクリレート、テトラエチレングリコールジアクリレート、トリプロピレングリコールジアクリレート、ポリエチレングリコールジアクリレート、ポリプロピレングリコールジアクリレート、ポリエチレンノポリプロピレンコポリマージアクリレート、及びネオペンチルグリコールヒドロキシビバレートジアクリレート変性カプロラクトンが挙げられる。

【0037】

任意の多官能性（メタ）アクリレートの量は、しばしば、第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、0～2重量%の範囲である。存在する場合には、その量はしばしば、少なくとも0.01重量%、少なくとも0.02重量%、少なくとも0.05重量%、又は少なくとも0.1重量%である。この量は、最大2重量%、最大1重量%又は最大0.5重量%であることができる。多くの実施形態では、任意の多官能性（メタ）アクリレートは、第1の反応混合物に含まれない。

10

【0038】

第1の反応混合物のいくつかの例として（a）45～99.5重量%の非三級アルキルアクリレート、（b）0.5～15重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマー、（c）0～40重量%の任意の高Tg（メタ）アクリレート（このTgは非三級アルキルアクリレートモノマーのTgの値よりも高い）、（d）0～10重量%の任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマー、（e）0～5重量%の任意の他のビニルモノマー、及び（f）0～2重量%の任意の多官能性アクリレート、を含むものが挙げられる。それ以外のモノマーは存在しない。これらの重量%は、第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づく。

20

【0039】

第1の反応混合物の他の例として（a）70～98重量%の非三級アルキルアクリレート、（b）1～10重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマー、（c）1～30重量%の任意の高Tg（メタ）アクリレート（このTgは非三級アルキルアクリレートモノマーのTgの値よりも高い）、（d）0～10重量%の任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマー、（e）0～5重量%の任意の他のビニルモノマー、及び（f）0～1重量%の任意の多官能性（メタ）アクリレート、を含むものが挙げられる。それ以外のモノマーは存在しない。これらの重量%は、第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づく。

【0040】

第1の反応混合物の更なる例として、（a）65～99重量%の非三級アルキルアクリレート、（b）1～15重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマー、（c）1～30重量%の任意の高Tg（メタ）アクリレート（このTgは非三級アルキルアクリレートモノマーのTgの値よりも高い）を含むものが挙げられる。それ以外のモノマーは存在しない。これらの重量%は、第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づく。

30

【0041】

通常は、紫外線光開始剤が第1の反応混合物に添加されている。この光開始剤は添加して、第1の反応混合物の第1のシロップ状ポリマーを生成する。すなわち、第1のシロップ状ポリマーは、光によって開始された、第1の反応混合物のフリーラジカル重合によって作製される。光によって開始された、フリーラジカル重合には以下のような有利な点がある。（1）反応混合物を加熱する必要がない。かつ（2）活性化の光源が切られると光開始が停止する。重合の程度（すなわち、モノマーからポリマー材料に変換した割合）は、光開始剤を使用することで簡単に制御できる。第1のシロップ状ポリマーを生成するのに使用される第1の反応混合物では、通常、望ましい粘度が得られた際に重合反応を停止する。望ましい粘度とは、コーティングに適した粘度に対応しており、通常、第1の反応混合物中のモノマーの重量に基づき、最大約30重量%までの変換率に対応する。望ましい変換率及び粘度に到達した際には、光源を取り除き、空気（酸素）を部分的に重合した生成物に導入して、ラジカルをクエンチし、重合を停止する。

40

【0042】

望ましい場合には、有機溶剤（すなわち、非モノマーの有機溶剤）を第1の反応混合物に添加することができる。有機溶剤の添加は、高分子量で、第1の反応混合物中のモノマ

50

ーの変換率が高い、部分的に重合した酸官能性（メタ）アクリレートコポリマーを調製する目的で実施される。すなわち、有機溶剤は反応混合物の粘度を下げる。有機溶剤を使用する場合には、シロップ状ポリマーが生成された後に、例えば真空蒸留で除去することが可能である。これは許容されている工程ではあるが、最も好ましいものではない。なぜならば、追加の有機溶剤除去工程を必要とし、更なる材料（非モノマー有機溶剤）を必要とし、かつ、結果生成される、高分子量で高いモノマーの変換率の部分的に重合した材料の溶解には比較的長い時間を必要とするからである。

#### 【0043】

第1の反応混合物は多くの場合有機溶剤又は水を含むしない。存在している任意の有機溶剤又は水は第1の反応混合物に添加される他の構成成分のうちの1つの不純物として存在している。すなわち、有機溶剤及び/又は水の量は、第1の反応混合物の総重量に基づき、5重量%以下、3重量%以下、2重量%以下、1重量%以下、0.5重量%以下、又は0.1重量%以下である。

10

#### 【0044】

しかし、他の実施形態では、有機溶剤は存在してもよい。好適な有機溶剤は、不活性なもの（例えば、反応混合物の他のどの構成成分とも重合反応又は反応を起こさない有機溶剤）である。好適な溶剤は第1の反応混合物中に含まれているモノマーと適合性があり、単一相シロップ状ポリマーの生成をさせるものが選択される。すなわち、溶剤には、モノマー及び部分的に重合した酸官能性（メタ）アクリレートコポリマーと優れた適合性を有するものが選択される。溶剤の例としては、エチルアセテート、トルエン、及びテトラハイドロフランが挙げられる。

20

#### 【0045】

紫外線光開始剤には、例えば、ベンゾインエーテル（例えば、ベンゾインメチルエーテル、又はベンゾインイソプロピルエーテル）又は置換ベンゾインエーテル（例えば、アニソインメチルエーテル）が挙げられる。他の光開始剤の例は、2,2-ジエトキシアセトフェノン又は2,2-ジメトキシ-2-フェニルアセトフェノン（BASF Corp. (Florham Park, NJ, USA) から商標表記 IRGACURE 651で、又は Sartomer (Exton, PA, USA) から商標表記 ESACURE KB-1で市販されている）などの置換アセトフェノンである。更に別の例示的な光開始剤は、2-メチル-2-ヒドロキシプロピオフェノンなどの置換-ケトール、2-ナフタレンスルホニルクロライドなどの芳香族スルホニルクロライド、及び、1-フェニル-1,2-プロパンジオン-2-(O-エトキシカルボニル)オキシムなどの光活性オキシムである。他の好適な光開始剤としては、例えば、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン（IRGACURE 184という商品名で市販されている）、ビス(2,4,6-トリメチルベンゾイル)フェニルホスフィンオキシド（IRGACURE 819という商品名で市販されている）、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（IRGACURE 2959という商品名で市販されている）、2-ベンジル-2-ジメチルアミノ-1-(4-ホルホルノフェニル)ブタノン（IRGACURE 369という商品名で市販されている）、2-メチル-1-[4-(メチルチオ)フェニル]-2-ホルホルノプロパン-1-オン（IRGACURE 907という商品名で市販されている）、及び2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニルプロパン-1-オン（Ciba Specialty Chemicals Corp. (Tarrytown, NY, USA) から DAROCUR 1173という商品名で市販されている）が挙げられる。

30

40

#### 【0046】

第1の反応物に添加される紫外線光開始剤の量は、第1のシロップ状ポリマー中の部分的に重合した酸官能性（メタ）アクリレートコポリマーの好ましいモノマー変換率に基づき決定される。濃度は通常第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、0.0001~3重量%である。この量は、しばしば、少なくとも0.0001重量%、少なくとも0.0005重量%、少なくとも0.001重量%、少なくとも0.005重量%、少な

50

くとも0.01重量%、少なくとも0.05重量%、少なくとも0.1重量%、又は少なくとも0.5重量%である。この量は、しばしば、最大3重量パーセント、最大2重量パーセント、最大1重量パーセント、最大0.5重量パーセント、又は最大0.1重量パーセントである。

#### 【0047】

UV光源を用いた照射中の第1の反応混合物から第1のシロップ状ポリマーを生成する変換率は、屈折率を測定することでモニターできる。この変換率は、シロップ状ポリマーが使用可能な粘度になるように、通常は30重量%以下である。多くの実施形態では、第1のシロップ状ポリマーへの変換率は、25重量%以下、20重量%以下、又は15重量%以下である。変換率は、通常、少なくとも1重量%、少なくとも2重量%、少なくとも5重量%、又は少なくとも10重量%である。いくつかの実施形態では、変換率は、1~30重量%の範囲、2~20重量%、5~20重量%の範囲、5~15重量%の範囲、7~12重量%の範囲である。

10

#### 【0048】

言い換えると、第1のシロップ状ポリマーは、最大30重量%の部分的に重合した酸官能性(メタ)アクリレートコポリマー(第1の反応混合物中のモノマーの最大30重量%が重合反応を経た)及び少なくとも70重量%のモノマー(重合反応を経ていない未反応のモノマー)を含む。これらの重量%の値は、第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づく。いくつかの実施形態では、第1のシロップは、1~30重量%の部分的に重合した(メタ)アクリレートコポリマー及び70~99重量%のモノマー、2~20重量%の部分的に重合した(メタ)アクリレートコポリマー及び80~98重量%のモノマー、5~20重量%の部分的に重合した(メタ)アクリレートコポリマー及び80~95重量%のモノマー、又は5~15重量%の部分的に重合した(メタ)アクリレートコポリマー及び85~95重量%のモノマーを含む。部分的に重合した(メタ)アクリレートコポリマーは、第1の反応混合物中の未反応モノマーに溶解している。

20

#### 【0049】

一般的に、第1の反応混合物は重合して、22で500~10,000センチポワズ(cPs)の粘度を有する第1のシロップを提供する。部分的に重合した酸官能性(メタ)アクリレートコポリマーの分子量は、通常500,000g/mol(ダルトン、Da)より大きい。例えば、重量平均分子量は多くの場合、少なくとも750,000ダルトン、少なくとも1,000,000ダルトン、少なくとも1,500,000ダルトン、少なくとも2,000,000ダルトン、又は少なくとも3,000,000ダルトンである。重量平均分子量は、最大5,000,000ダルトン、最大6,000,000ダルトン、最大8,000,000ダルトン、又は最大10,000,000ダルトンであり得る。

30

#### 【0050】

いくつかの実施形態では、酸官能性(メタ)アクリレートコポリマーを作製するために使用された全てのモノマーは、第1のシロップ状ポリマーを生成するために使用される、元の第1の反応混合物に含まれている。他の実施形態では、例えば任意の高Tgモノマー等のいくつかのモノマーは、第1のシロップ状ポリマーの生成後に添加することができる。すなわち、いくつかのモノマーは、感圧性接着剤を生成するために使用される硬化性接着剤組成物中に存在してもよいが、第1のシロップを生成するために使用される元の第1の反応混合物には使用されない。

40

#### 【0051】

(メタ)アクリレート粘着付与剤の調製

(メタ)アクリレート感圧性接着剤組成物は、上記の酸官能性(メタ)アクリレートコポリマーに加えて、追加のポリマー材料を含む。より具体的には、(メタ)アクリレート感圧性接着剤組成物は、20,000g/mol(ダルトン)超で200,000g/mol(ダルトン)以下の重量平均分子量と、20以下のTgを有するポリマー材料である、(メタ)アクリレート粘着付与剤を含む。

50

## 【0052】

(メタ)アクリレート粘着付与剤の調製には、好適であればどのような方法を用いてもよい。多くの実施形態では、(メタ)アクリレート粘着付与剤は、(a)非三級アルキルアクリレート、(b)酸官能性エチレン性不飽和モノマー、(c)非三級アルキルアクリレートモノマーのTgの値よりも高いTgを有する、任意の高Tg(メタ)アクリレート、(d)任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマー、(e)任意の他のビニルモノマー、及び(f)任意の多官能性(メタ)アクリレート、のモノマーを含む第2の反応混合物から調製される。一般的に、第2の反応混合物には、反応開始剤(例えば重合開始剤)が添加される。この反応開始剤は、通常、紫外線光開始剤等の光開始剤である。

## 【0053】

第2の反応混合物に使用される好適な非三級アルキルアクリレートモノマーは、第1の反応混合物に使用される前記のものと同様である。非三級アルキルアクリレートの量は、通常、第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、30~99.5重量%の範囲で存在する。いくつかの実施形態においては、非三級アルキルアクリレートの量は、第2の反応混合物中のモノマーの総重量の、少なくとも30重量%、少なくとも40重量%、少なくとも50重量%、少なくとも60重量%、少なくとも70重量%、少なくとも80重量%、少なくとも85重量%又は少なくとも90重量%である。非三級アルキルアクリレートの量は、多くの場合、最大99.5重量%、最大99重量%、最大98重量%、最大95重量%、最大90重量%、最大85重量%、最大80重量%、最大75重量%、又は最大70重量%である。

## 【0054】

第2の反応混合物に使用される好適な酸官能性エチレン性不飽和モノマーは、第1の反応混合物に使用される前記のものと同様である。このモノマーは、多くの場合、(メタ)アクリル酸である。多くの実施形態では、このモノマーはアクリル酸である。酸官能性エチレン性不飽和モノマーの量は、通常、第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、0.5~15重量%の範囲である。いくつかの実施形態では、酸官能性エチレン性不飽和モノマーの量は、少なくとも0.5重量%、少なくとも1重量%、少なくとも2重量%、又は少なくとも5重量%である。酸官能性エチレン性不飽和モノマーの量は、最大15重量%、最大10重量%、又は最大5重量%である。

## 【0055】

第2の反応混合物に使用される好適な任意の高Tgモノマーは、第1の反応混合物に使用される前記のものと同様である。結果としてできる(メタ)アクリレート粘着付与剤のTgが20以下である限り、高Tgモノマーは第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき0~60重量%の量で存在してよい。任意の材料ではあるが、高Tgモノマーは、第2の反応混合物の多くの実施形態で含まれている。もし存在する場合、高Tgモノマーは、多くの場合、少なくとも1重量%、少なくとも5重量%、少なくとも10重量%、少なくとも15重量%、又は少なくとも20重量%に等しい量で存在する。高Tgモノマーは、最大60重量パーセント、最大50重量パーセント、最大40重量パーセント、最大35重量パーセント、最大30重量パーセント、又は最大25重量パーセントの量で存在し得る。

## 【0056】

存在する場合、高Tgモノマー及び非三級アルキルアクリレートの組合せは、第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、最大99.5重量%、最大99重量%、最大95重量%、又は最大90重量%の量で存在し得る。いくつかの実施形態では、第1の反応混合物中の唯一の他のモノマーは、酸官能性エチレン性不飽和モノマーである。

## 【0057】

第2の反応混合物に使用される好適な任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマーは、第1の反応混合物に使用される前記のものと同様である。非酸性極性モノマーは、第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、0~40重量%の量で存在することができる。存在する場合、非酸性極性モノマーはしばしば、少なくとも1重量%、少なくとも2重

10

20

30

40

50

量%、少なくとも5重量%、又は少なくとも10重量%の量で使用される。非酸性極性モノマーは、最大40重量%、最大35重量%、最大30重量%、最大25重量%、又は最大20重量%の量で存在してもよい。

【0058】

第2の反応混合物に使用される好適な他の任意のビニルモノマーは、第1の反応混合物に使用される前記のものと同様である。他の任意のビニルモノマーは、第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、0~40重量%の量で存在することができる。存在する場合、他のビニルモノマーはしばしば、少なくとも1重量%、少なくとも2重量%、少なくとも5重量%、又は少なくとも10重量%の量で使用される。他のビニルモノマーは、最大40重量%、最大35重量%、最大30重量%、最大25重量%、又は最大20重量%の量で存在してもよい。

10

【0059】

第2の反応混合物に使用される好適な任意の多官能性(メタ)アクリレートモノマーは、第1の反応混合物に使用される前記のものと同様である。任意の多官能性(メタ)アクリレートの量は、しばしば、第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、0~5重量%の範囲である。存在する場合、この量は通常、少なくとも0.01重量%、少なくとも0.02重量%、少なくとも0.05重量%、少なくとも0.1重量%、少なくとも0.2重量%、又は少なくとも0.5重量%である。この量は、最大5重量パーセント、最大3重量パーセント、最大2重量パーセント、又は最大1重量パーセントであることができる。多くの実施形態では、任意の多官能性(メタ)アクリレートは、第2の反応混合物に含まれない。

20

【0060】

第2の反応混合物のいくつかの例として(a)30~99.5重量%の非三級アルキルアクリレート、(b)0.5~15重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマー、(c)0~60重量%の任意の高Tg(メタ)アクリレート(このTgは非三級アルキルアクリレートモノマーのTgの値よりも高い)、(d)0~40重量%の任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマー、(e)0~40重量%の任意の他のビニルモノマー、及び(f)0~5重量%の任意の多官能性(メタ)アクリレート、を含むものが挙げられる。それ以外のモノマーは存在しない。これらの重量%は、第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づく。

30

【0061】

第2の反応混合物の他の例として、35~90重量%の非三級アルキルアクリレート、(b)0.5~15重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマー、(c)10~60重量%の任意の高Tg(メタ)アクリレート(このTgは非三級アルキルアクリレートモノマーのTgの値よりも高い)、(d)0~30重量%の任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマー、(e)0~30重量%の任意の他のビニルモノマー、及び(f)0~2重量%の任意の多官能性(メタ)アクリレート、を含むものが挙げられる。それ以外のモノマーは存在しない。これらの重量%は、第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づく。

【0062】

第2の反応混合物の更なる他の例として、40~80重量%の非三級アルキルアクリレート、(b)0.5~15重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマー、(c)0~30重量%の任意の高Tg(メタ)アクリレート(このTgは非三級アルキルアクリレートモノマーのTgの値よりも高い)、(d)10~40重量%の任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマー、(e)0~40重量%の任意の他のビニルモノマー、及び(f)0~1重量%の任意の多官能性(メタ)アクリレート、を含むものが挙げられる。それ以外のモノマーは存在しない。これらの重量%は、第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づく。

40

【0063】

第2の反応混合物は、通常、紫外線光開始剤等の開始剤を含む。好適な紫外線光開始剤は、第1の反応混合物について上述したものと同様である。光開始剤の量は、しばしば、

50

第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、0.005～5重量%の範囲である。光開始剤の量は、多くの場合、少なくとも0.005重量パーセント、少なくとも0.01重量パーセント、少なくとも0.05重量パーセント、少なくとも0.1重量パーセント又は少なくとも0.5重量パーセントである。光開始剤の量は、最大5重量パーセント、最大3重量パーセント、最大2重量パーセント、又は最大1重量パーセントであることができる。

#### 【0064】

望ましい重量平均分子量の範囲を有する(メタ)アクリレートオリゴマー粘着付与剤を得るためには、任意の連鎖移動剤を使用して分子量を調整してもよい。使用可能な連鎖移動剤の例として、四臭化炭素、アルコール類、チオグリコレート類等のチオール類、及びこれらの混合物が挙げられるが、この限りではない。多くの実施例では、好ましい連鎖移動剤はイソ-オクチルチオグリコレート(IOTG)、四臭化炭素、又はtert-ドデシルメルカプタン(TDDM)である。任意の連鎖移動剤の量は、しばしば、第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、0～5重量%の範囲である。存在する場合、連鎖移動剤はしばしば、少なくとも0.01重量%、少なくとも0.05重量%、少なくとも0.1重量%、又は少なくとも0.5重量%の量で使用される。この量は、最大5重量パーセント、最大3重量パーセント、最大2重量パーセント、又は最大1重量パーセントであることができる。

#### 【0065】

(メタ)アクリレート粘着付与剤は、第2の反応混合物を紫外線照射に曝すことによって生成される。第2のモノマー混合物を紫外線照射を用いて重合するには好適であればいかなる方法を用いてもよい。第1の方法では、第2の反応混合物は紫外線照射に曝露されて第2のシロップ状ポリマーが作製される。第2のシロップ状ポリマーは、部分的に、しかし完全には重合していない(メタ)アクリレート粘着付与剤と残りの未反応のモノマーを含んでいる。例えば、第2のシロップ状ポリマーは、少なくとも70重量%、少なくとも75重量%、少なくとも80重量%、又は少なくとも85重量%の変換率を有することができる。変換率は通常95重量%未満、又は90重量%未満である。変換率は、第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づく。この第2のシロップが、硬化性接着剤組成物に添加される。

#### 【0066】

第2の方法では、第2のシロップ状ポリマーが、第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、30重量%のモノマー変換率で重合される。すなわち、第2の反応混合物は、コーティングに好適な粘度を有する、部分的に重合した第2のシロップ状ポリマーになるまで重合される。変換率は、少なくとも40重量%、少なくとも50重量%、少なくとも60重量%、少なくとも70重量%、又は少なくとも80重量%であり得る。次いで、この第2のシロップ状ポリマーは、より高い変換率となるように、薄い層としてコーティングされ、照射(例えばUV光)に曝露される。例えば、第2の方法を用いた場合の変換率は、少なくとも85重量%、少なくとも90重量%、少なくとも95重量%、少なくとも98重量%、少なくとも99重量%、又は少なくとも99.5重量%であり得る。変換率は、多くの場合、少なくとも95重量%、少なくとも98重量%、又は少なくとも99重量%であることが好ましい。この高変換率のポリマー材料は、硬化性接着剤組成物に添加される。

#### 【0067】

(メタ)アクリレート粘着付与剤の重量平均分子量は20,000g/mol(ダルトン)超で、200,000g/mol(ダルトン)以下である。重量平均分子量は少なくとも20,000ダルトン、少なくとも25,000ダルトン、少なくとも30,000ダルトン、少なくとも40,000ダルトン、少なくとも50,000ダルトン、又は少なくとも75,000ダルトンであり得る。重量平均分子量は、200,000ダルトン以下、最大175,000ダルトン、最大150,000ダルトン、最大125,000ダルトン、又は最大100,000ダルトンであり得る。

## 【 0 0 6 8 】

(メタ)アクリレート粘着付与剤は20 以下のガラス転移温度を有する。例えば、 $T_g$ は10 以下、0 以下、-10 以下、又は-20 以下であり得る。 $T_g$ は、多くの場合、-100 超、-80 超、又は-60 超、-40 超、又は-20 超である。いくつかの実施形態では、 $T_g$ は、-100 ~ 20 の範囲、-100 ~ 0 の範囲、-80 ~ 0 の範囲、-40 ~ 0 の範囲、又は-20 ~ 0 の範囲である。

## 【 0 0 6 9 】

## 硬化性接着剤組成物

硬化性接着剤組成物は、(a)上記の第1のシロップ状ポリマー、(b)上記の(メタ)アクリレート粘着付与剤、及び(c)紫外線光開始剤を含むように調製される。言い換えれば、硬化性接着剤組成物は、第1のシロップ状ポリマーの部分的に重合した酸官能性(メタ)アクリレートコポリマー、第1のシロップ状ポリマーの未反応モノマー、(メタ)アクリレート粘着付与剤、及び紫外線光開始剤を含む。

10

## 【 0 0 7 0 】

溶剤タイプの(メタ)アクリレートPSA組成物に使用される従来の粘着付与剤は、紫外線硬化に使用するためには多くの場合適していない。すなわち、従来の粘着付与剤は作用中に紫外線硬化反応を阻害する程度に大量の紫外線照射を吸収する傾向があり、生成されたPSAの性能に著しい影響を与えてしまう。驚くべきことに、本明細書において記述された(メタ)アクリレート粘着付与剤、及び(メタ)アクリレートコポリマーを含む硬化性接着剤組成物は、紫外線によって効果的に硬化することが可能である。(メタ)アクリレート粘着付与剤は、硬化性接着剤組成物内で通常は、連鎖移動剤、連鎖停止剤、又はフリーラジカルスカベンジャーのような振る舞いはしない。

20

## 【 0 0 7 1 】

より具体的には、この硬化性接着剤組成物は、(a)第1の反応混合物から生成される第1のシロップ状ポリマー、(b)20,000g/mol(ダルトン)超、200,000g/mol(ダルトン)以下の重量平均分子量を有し、ガラス転移温度が20 以下である(メタ)アクリレート粘着付与剤、及び(c)紫外線光開始剤を含む。第1のシロップ状ポリマーを生成するのに使用される第1の反応混合物は、(1)非三級アルキルアクリレート、及び(2)酸官能性エチレン性不飽和モノマーを含む。この第1のシロップ状ポリマーは、(i)第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき1~30重量%の部分的に重合した酸官能性(メタ)アクリレートコポリマー、及び(ii)第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき70~99重量%の未反応のモノマー、を含み、この部分的に重合した酸官能性(メタ)アクリレートコポリマーは、500,000g/mol(ダルトン)超の重量平均分子量を有する。

30

## 【 0 0 7 2 】

いくつかの実施形態では、第1のシロップ状ポリマーに含まれていない追加のモノマーが、硬化性組成物に添加される。例えば、任意の高 $T_g$ モノマーを第1のシロップ状ポリマー生成後に添加することができる。この高 $T_g$ モノマーは上記のものと同一である。

## 【 0 0 7 3 】

硬化性接着剤組成物に使用する(メタ)アクリレート粘着付与剤は、第2のシロップ状ポリマーとして添加することができ、その変換率は少なくとも70重量%か、又は完全に重合した材料(例えば、少なくとも95重量%、少なくとも98重量%、少なくとも99重量%、又は少なくとも99.5重量%の変換率)である。(メタ)アクリレート粘着付与剤は第1のシロップ中に可溶性である。言い換えれば、硬化性接着剤組成物は通常単一相である。

40

## 【 0 0 7 4 】

硬化性接着剤組成物に添加される(メタ)アクリレート粘着付与剤の量は通常、モノマーではない有機溶剤を除いた第1のシロップ状ポリマーの総重量に基づき、40重量%以下である。すなわち、第1のシロップ状ポリマー(例えば、部分的に重合した酸官能性(

50

メタ) アクリレートコポリマー及び未反応のモノマー) 100部に対して、(メタ) アクリレート粘着付与剤は40部以下である。この重量の(メタ) アクリレート粘着付与剤は、上記の第2のシロップ状ポリマー、又は上記の高変換率のポリマー材料のいずれかであってよい。多くの実施形態では、(メタ) アクリレート粘着付与剤の量は、第1のシロップ状ポリマーの総重量に基づき、35重量%以下、30重量%以下、25重量%以下、又は20重量%以下である。(メタ) アクリレート粘着付与剤の量は、多くの場合、第1のシロップ状ポリマーの総重量に基づき、少なくとも5重量%、少なくとも10重量%、又は少なくとも15重量%である。

#### 【0075】

紫外線光開始剤が硬化性接着剤組成物に添加される。この構成成分は、第1のシロップ状ポリマー中の未反応モノマー、並びに硬化性接着剤組成物に含まれる他の任意のモノマー及び/又は架橋剤の重合に必要なラジカルを生成する。好適な紫外線光開始剤は、第1のシロップ状ポリマーに使用する上記のものが挙げられる。硬化性接着剤組成物中の光開始剤の量は、多くの場合、第1のシロップ状ポリマーの総重量に基づき0.001~3重量%である。その量は、多くの場合、少なくとも0.001重量パーセント、少なくとも0.005重量パーセント、少なくとも0.01重量パーセント、少なくとも0.05重量パーセント、又は少なくとも0.1重量パーセントである。この量は、多くの場合、最大3重量パーセント、最大2重量パーセント、最大1重量パーセント、又は最大0.5重量パーセントである。

#### 【0076】

硬化性接着剤組成物中に、他の任意の構成成分を含むことができる。例えば、硬化性接着剤組成物は、任意の架橋剤を含むことができる。任意の架橋剤の添加によって、例えば、生成される硬化済み接着剤組成物の凝集力の向上、硬化済み接着剤組成物の耐候性の向上、硬化済み接着剤組成物の耐熱性の向上、硬化済み接着剤組成物の耐油性及び/若しくは有機溶剤耐性の向上、又はこれらの組合せを得ることができる。

#### 【0077】

好適な架橋剤であれば、硬化性接着剤組成物に使用してよい。これらには、多官能性(メタ)アクリレートモノマー、ポリ官能性アジリジン化合物、ポリ官能性イソシアネート化合物、及びポリ官能性エポキシ化合物等の加熱活性化架橋剤、並びにベンゾフェノン系モノマー及びトリアジン等の光感応性架橋剤が例として挙げられる。いくつかの実施形態においては、硬化性接着剤組成物は、異なる種類の架橋剤などの架橋剤の組合せを含む。

#### 【0078】

多官能性(メタ)アクリレートモノマーのいくつかの例として、例えば、2個以上の(メタ)アクリロイル基を有するものが挙げられる。具体的に、2つの(メタ)アクリロイル基を有する多官能性(メタ)アクリレートモノマーとしては、1,2-エタンジオールジアクリレート、1,3-プロパンジオールジアクリレート、1,9-ノナンジオールジアクリレート、1,12-ドデカンジオールジアクリレート、1,4-ブタンジオールジアクリレート、1,6-ヘキサンジオールジアクリレート、ブチレングリコールジアクリレート、ビスフェノールAジアクリレート、ジエチレングリコールジアクリレート、トリエチレングリコールジアクリレート、テトラエチレングリコールジアクリレート、トリプロピレングリコールジアクリレート、ポリエチレングリコールジアクリレート、ポリプロピレングリコールジアクリレート、ポリエチレン/ポリプロピレンコポリマージアクリレート、及びネオペンチルグリコールヒドロキシビバレートジアクリレート変性カプロラクトンが挙げられるが、これに限定されない。3個、又は4個の(メタ)アクリロイル基をもつ架橋剤の例としては、トリメチロールプロパントリアクリレート(例えば、TMPTA-Nの商品名でSurface Specialties, Smyrna, GAより市場で入手可能、及びSR-351の商品名でSartomer, Exton, PAより市場で入手可能)、ペンタエリスリトールトリアクリレート(例えば、SR-444の商品名でSartomerより市場で入手可能)、トリス(2-ヒドロキシエチルイソシアヌレート)トリアクリレート(SR-368の商品名でSartomerより市場で入手可

10

20

30

40

50



能)、ペンタエリスリトールトリアクリレート及びペンタエリスリトールテトラアクリレートの混合物(例えば、テトラアクリレートとトリアクリレートの比が約1:1のものがPETIAの商品名で、テトラアクリレートとトリアクリレートの比が約3:1のものがPETA-Kの商品名でSurface Specialtiesより市場で入手可能)、ペンタエリスリトールテトラアクリレート(例えば、SR-295の商品名でSartomerより市場で入手可能)、ジトリメチロールプロパンテトラアクリレート(例えば、SR-355の商品名でSartomerより市場で入手可能)、及びエトキシ化ペンタエリスリトールテトラアクリレート(例えば、SR-494の商品名でSartomerより市場で入手可能)が挙げられるが、これらに限られない。5つの(メタ)アクリロイル基を有する例示的な架橋剤としては、ジペンタエリスリトールペンタアクリレート(例えば、Sartomerから商品名SR-399で市販されている)が挙げられるが、これらに限定されない。

10

#### 【0079】

好適な任意の加熱活性化架橋剤であれば、硬化性接着剤組成物に使用してよい。多くの実施形態では、加熱活性化架橋剤は1,1'-(1,3-フタロイル)-ビス-(2-メチルアジリジン)(CAS No. 7652-64-4)等のポリ官能性アジリジン化合物である。その他の使用可能なポリ官能性アジリジン化合物は、例えば米国特許第8,263,711号(Krepeskiら)及び米国特許第8,524,836号(Kavanaghら)に記載されている。このタイプの架橋剤は、硬化性接着剤組成物に添加して、硬化性組成物を基材上にコーティングした後、加熱活性によって反応させることができる。

20

#### 【0080】

好適な任意の光感応性架橋剤であれば、硬化性接着剤組成物に使用してよい。このタイプの架橋剤は、紫外線に曝露した際に架橋することができる芳香族基を有し、かつ(メタ)アクリロイル等の重合可能な基を有する化合物であり得る。紫外線に曝露した際に、芳香族基は他の重合鎖又は同じ重合鎖の他の部分から水素原子を引き抜くことができる。この引抜きによって、重合鎖同士又は同じ重合鎖内で架橋が形成される。これらの化合物は、例えば米国特許第4,737,559号(Kellenら)に更に記載されている。多くの実施形態において、芳香族ケトン基は(メタ)アクリロイル基を有するベンゾフェノンの誘導体(すなわち、ベンゾフェノン含有基)である。光感応性架橋剤の例として、4-(メタ)アクリロイルオキシベンゾフェノン、4-(メタ)アクリロイルオキシエトキシベンゾフェノン、4-(メタ)アクリロイルオキシ-4'-メトキシベンゾフェノン、4-(メタ)アクリロイルオキシエトキシ-4'-メトキシベンゾフェノン、4-(メタ)アクリロイルオキシ-4'-プロモベンゾフェノン、4-アクリロイルオキシエトキシ-4'-プロモベンゾフェノン等が挙げられるが、これに限定されない。

30

#### 【0081】

他のタイプの光感応性架橋剤は、トリアジン化合物である。これらの化合物は、例えば米国特許第4,391,687号(Vesley)に記載されている。トリアジン化合物の一例として2,4-ビス(トリクロロメチル)-6-(4-メトキシフェニル)-トリアジンがある。

40

#### 【0082】

硬化性接着剤組成物中の任意の架橋剤の量は、多くの場合、第1のシロップ状ポリマーの総重量に基づき0~5重量%の範囲である。存在する場合、この量は通常、少なくとも0.01重量%、少なくとも0.02重量%、少なくとも0.05重量%、少なくとも0.1重量%、少なくとも0.2重量%、又は少なくとも0.5重量%である。この量は、最大5重量パーセント、最大3重量パーセント、最大2重量パーセント、又は最大1重量パーセントであることができる。

#### 【0083】

いくつかの実施形態では、硬化性接着剤組成物は、上記の(メタ)アクリレート粘着付与剤のみを粘着付与剤として含有する。他の実施形態では、硬化性接着剤組成物は(メタ

50

）アクリレート粘着付与剤に加えて第2の任意の粘着付与剤を含有する。硬化性接着剤組成物から結果として得られる感圧性接着剤の特性をより向上させるために、第2の任意の粘着付与剤を加えることができる。第1のシロップ状ポリマー中のモノマーは通常第2の任意の粘着付与剤の存在下で重合するため、第2の任意の粘着付与剤が、例えばフリーラジカルスカルベンジャー、連鎖停止剤、又は連鎖移動剤として作用して実質的に重合プロセスを阻害しないように、選択する際に気をつけなければならない。

【0084】

第2の任意の粘着付与剤は、ロジン酸及びその誘導体（例えばロジンエステル）等のロジン樹脂；ポリテルペン（例えば ピネン系樹脂、 ピネン系樹脂、及びリモネン系樹脂）及び芳香族変性ポリテルペン樹脂（例えばフェノール変性ポリテルペン樹脂）等のテルペン樹脂；クマロン-インデン樹脂；並びにC5系炭化水素樹脂、C9系炭化水素樹脂、C5/C9系炭化水素樹脂、及びジシクロペンタジエン系樹脂等の石油系炭化水素樹脂等、従来の粘着付与剤であってよい。添加される場合、これらの粘着付与樹脂は、それらの感圧性接着剤組成物への色の寄与を低下するために、水素添加することができる。所望する場合、様々な粘着付与剤の組合せを使用することができる。

【0085】

ロジンエステルである粘着付与剤は、様々なロジン酸及びアルコールの反応生成物である。これらとしては、ロジン酸のメチルエステル、ロジン酸のトリエチレングリコールエステル、ロジン酸のグリセロールエステル、及びロジン酸のペンタエリスリトールエステルが挙げられるがこれに限定されない。これらのロジンエステルは、安定性を改善し、かつそれらの感圧性接着剤組成物への色貢献を低減するために、部分的に又は完全に水素添加することができる。ロジン樹脂粘着付与剤は、例えば、Eastman Chemical Company (Kingsport, TN, USA) から PERMALYN、STAYBELITE、及びFORAL という商品名で市販されており、また Newport Industries (London, England) から NUROZ、及び NUTAC という商品名で市販されている。完全水素化ロジン樹脂は、例えば、Eastman Chemical Company より商品名 FORAL AX-E で市販されている。部分水素添加ロジン樹脂は、例えば、Eastman Chemical Company より商品名 STAYBELITE-E で市販されている。

【0086】

炭化水素樹脂である粘着付与剤は、様々な石油系原材料から調製することができる。これらの原材料は、脂肪族炭化水素（主として、トランス-1,3-ペンタジエン、シス-1,3-ペンタジエン、2-メチル-2-ブテン、ジシクロペンタジエン、シクロペンタジエン、及びシクロペンテンの混合物などとして存在するいくつかの他のモノマーを含むC5モノマー）、芳香族炭化水素（主として、ビニルトルエン、ジシクロペンタジエン、インデン、メチルスチレン、スチレン、及びメチルインデンの混合物などとして存在するいくつかの他のモノマーを含むC9モノマー）、又はこれらの混合物とすることができる。C5モノマーに由来する粘着付与剤は、C5系炭化水素樹脂と呼ばれる一方で、C9モノマーに由来するものは、C9系炭化水素樹脂と呼ばれる。いくつかの粘着付与剤は、C5モノマーとC9モノマーとの混合物、又はC5系炭化水素粘着付与剤とC9系炭化水素粘着付与剤のブレンドに由来する。これらの粘着付与剤は、C5/C9系炭化水素粘着付与剤と呼ぶことができる。これらの樹脂のうちのいずれかは、それらの色及び熱安定性を改良するために部分的に又は完全に水素添加することができる。

【0087】

C5系炭化水素樹脂は、Eastman Chemical Company から PICCOTAC 及び EASTOTAC という商品名で市販されており、Cray Valley (Exton, PA, USA) から WINGTACK という商品名で市販されており、Neville Chemical Company (Pittsburg, PA, USA) から NEVTAC LX という商品名で市販されており、また Kolon Industries, Inc. (韓国) から HIKOREZ という商品名で市販されている。

C5系炭化水素樹脂は、Eastman Chemicalから様々な程度の水素添加で商品名EASTOTACKで市販されている。

【0088】

C9系炭化水素樹脂は、Eastman Chemical CompanyからPICCO、KRISTLEX、PLASTOLYN、及びPICCOTAC並びにENDEXという商品名で市販されており、Cray Valley (Exton, PA, USA)からNORSOLENEという商品名で市販されており、Ruetgers N.V. (Belgium)からNOVAREZという商品名で市販されており、そしてKoloon Industries, Inc. (South Korea)からHIKOTACという商品名で市販されている。これらの樹脂は、部分的な又は完全な水素添加とすることができる。水素添加の前に、C9系炭化水素樹脂は、プロトン核磁気共鳴によって測定した際に、しばしば約40%が芳香族である。水素添加C9系炭化水素樹脂は、例えば、Eastman Chemicalから商品名REGALITE及びREGALREXで市販されており、これらは50~100パーセント(例えば、50パーセント、70パーセント、90パーセント、及び100パーセント)水素添加されている。部分的な水素添加樹脂は、典型的にはいくつかの芳香環を有する。

10

【0089】

様々なC5/C9系炭化水素粘着付与剤は、Arakawa (Germany)からARKONという商品名で市販されており、Zeon Corporation (Japan)からQUINTONEという商品名で市販されており、Exxon Mobile Chemical (Houston, TX)からESCOREZという商品名で市販されており、及びNewport Industries (London, England)からNURES及びH-REZという商品名で市販されている。

20

【0090】

テルペンフェノールコポリマー等の種々のテルペン樹脂は、Yasuhara Chemical Co., Ltd (Hiroshima, Japan)より市販されている。これらには、例えば商品名TH130で市販されているものがある。

【0091】

第2の任意の粘着付与剤は第1のシロップの重量を基準として0~50重量%の範囲の量で添加してよい。存在する場合には、その量は、少なくとも1重量%、少なくとも2重量%、少なくとも5重量%、又は少なくとも10重量%であり得る。その量は、最大50重量パーセント、最大45重量パーセント、最大40重量パーセント、最大35重量パーセント、最大30重量パーセント、又は最大25重量パーセントであってよい。いくつかの実施形態では、硬化性接着剤組成物は第2の任意の粘着付与剤を含まない。

30

【0092】

硬化性接着剤組成物から結果として得られる感圧性接着剤の特性に悪影響を与えない限り、硬化性接着剤組成物に他の任意の添加剤を含めることができる。好適な添加剤として、例えば、可塑剤、染料、酸化防止剤、ガラス繊維、シランカップリング剤、及びUV安定剤等が挙げられる。導電性、磁気特性、熱伝導性、又はそれらの組合せ等の特別な特性を感圧性接着剤に提供するために他の材料を添加することができる。種々の粒子、短繊維、フレーク等、そのような特別な特性をもたらすことが知られている材料を添加することで、これらの特別な特性を得ることができる。

40

【0093】

硬化済み接着剤組成物

紫外線に曝露することで、硬化性接着剤組成物が反応して、硬化済み接着剤組成物を生成する。すなわち、硬化済み接着剤組成物とは、硬化性組成物を紫外線に曝露して得られる反応生成物である。

【0094】

より具体的には、硬化済み接着剤組成物は、硬化性接着剤組成物の紫外線硬化反応生成物である。この硬化性接着剤組成物は、(a)第1の反応混合物から生成される第1のシ

50

ロップ状ポリマー、(b) 20,000 g / モル (ダルトン) 超、200,000 g / モル (ダルトン) 以下の重量平均分子量を有し、ガラス転移温度が 20 以下である (メタ) アクリレート粘着付与剤、及び (c) 紫外線光開始剤を含む。第 1 のシロップ状ポリマーを生成するのに使用される第 1 の反応混合物は、(1) 非三級アルキルアクリレート、及び (2) 酸官能性エチレン性不飽和モノマーを含む。この第 1 のシロップ状ポリマーは、(i) 第 1 の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき 1 ~ 30 重量 % の部分的に重合した酸官能性 (メタ) アクリレートコポリマー、及び (ii) 第 1 の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき 70 ~ 99 重量 % の未反応のモノマー、を含み、この部分的に重合した酸官能性 (メタ) アクリレートコポリマーは、500,000 g / モル (ダルトン) 超の重量平均分子量を有する。

10

#### 【0095】

硬化済み接着剤組成物は、(メタ) アクリレート粘着付与剤及び酸官能性 (メタ) アクリレートコポリマーを含む感圧性接着剤である。(メタ) アクリレート粘着付与剤は、通常、酸官能性 (メタ) アクリレートコポリマーと混和可能である。すなわち、これらの 2 つの材料は、多くの場合、感圧性接着剤内で単一相を形成する。

#### 【0096】

紫外線硬化系はラジカル系かカチオン系かに分類できるが、いずれもその硬化メカニズムや構成成分が相違する。ラジカル系では、紫外線に曝露された際に光開始剤から生成したラジカルが、モノマー及びコポリマーの重合及び / 又は重合架橋をトリガーする。カチオン系では、紫外線に曝露された際に光開始剤から強プロトン酸が生成される。これらのカチオンが、付加重合反応を触媒し、樹脂を硬化 (重合及び / 又は架橋) する。カチオン硬化系は水分に敏感な傾向にあるため、ラジカル系が多くの場合好まれる。ラジカル重合反応には、速度が速く、周囲の条件の影響を受けにくく、かつ実施が容易である等の有利な点がある。従って、硬化済み接着剤組成物はラジカル系を用いて生成されることが好ましい。

20

#### 【0097】

ラジカル系においては、紫外線ラジカル硬化は以下のステップに従って進む。(1) ラジカル生成: 紫外線に曝露されると、ラジカル光開始剤は励起して分解しラジカルを生成する; (2) 連鎖開始: 開始剤によって生成されたラジカルは樹脂及びモノマー分子中の不飽和二重結合から新しいラジカルを生成する; (3) 連鎖延長: 樹脂及びモノマーから生成したラジカルは更に樹脂及びモノマー分子中の不飽和二重結合からラジカル連鎖反応のためのラジカルを生成する; (4) 連鎖停止: 化学反応の中で、ラジカルはその不対電子のためにラジカルカップリング又は酸化を起こして連鎖反応を非常に停止しやすい。以上の反応の結果、硬化性接着剤組成物は、シロップ状から感圧性接着剤である硬化済み接着剤組成物に変化する。

30

#### 【0098】

紫外線源には 2 種類ある。(1) ブラック・ライト等の強度の低い光源。280 ~ 400 nm の波長範囲内で 10 mW / cm<sup>2</sup> 以下の強度を通常有する。(この強度は、例えば、General Electronic Instrument Technology Co., Ltd (Virginia, USA) 製の UV IMA PTM UM 365 L - S ラジオメーターを使用し、アメリカ国立標準技術研究所によって承認された手法に従って測定する。)(2) 中圧水銀ランプ等の高強度光源。通常、10 mW / cm<sup>2</sup> 超の強度を有し、最大 600 mW / cm<sup>2</sup>、あるいはそれ以上の強度を有することも可能である。いくつかの紫外線源は 15 ~ 450 mW / cm<sup>2</sup> の強度を有する。いくつかの実施形態においては、高強度紫外線を用いた短い曝露時間が望ましい。例えば、600 mW / cm<sup>2</sup> の強度で 1 秒の曝露時間を使用してもよい。強度範囲は、約 0.1 ~ 約 150 mW / cm<sup>2</sup>、約 0.5 ~ 100 mW / cm<sup>2</sup>、又は約 0.5 ~ 50 mW / cm<sup>2</sup> であってよい。

40

#### 【0099】

感圧性接着剤の製造方法が提供される。この方法は、(1) 非三級アルキルアクリレー

50

ト、及び(2)酸官能性エチレン性不飽和モノマーを含む第1の反応混合物から第1のシロップ状ポリマーを生成する工程を含む。この第1のシロップ状ポリマーは、(i)第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき1~30重量%の部分的に重合した酸官能性(メタ)アクリレートコポリマー、及び(ii)第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき70~99重量%の未反応のモノマー、を含み。この部分的に重合した酸官能性(メタ)アクリレートコポリマーは、500,000g/モル(ダルトン)超の重量平均分子量を有する。この方法は、20,000g/モル(ダルトン)超、200,000g/モル(ダルトン)以下の重量平均分子量を有し、ガラス転移温度が20以下である(メタ)アクリレート粘着付与剤を提供する工程を更に含む。この方法は第1のシロップ状ポリマー、(メタ)アクリレート粘着付与剤、及び紫外線光開始剤を混合して、硬化性接

10  
着剤組成物を調整する工程、その後この硬化性接着剤組成物を紫外線で硬化して、感圧性接着剤であり硬化済みの接着剤組成物を作製する工程を更に含む。

#### 【0100】

硬化済み接着剤組成物は、多くの場合、硬化性接着剤組成物を好適な支持体に塗布し、次いで、塗布された硬化性接着剤組成物を紫外線に曝露することで生成することができる。硬化性接着剤組成物を塗布する支持体は、剛体であってもフレキシブルであってもよく、透明であっても不透明であってもよく、ポリマー材料、ガラス又はセラミック材料、金属等、望ましい材料であればいかなる材料で作製されていてもよい。多くの実施形態では、この支持体はフレキシブルなポリマーフィルム等のポリマー材料であり、これらはフレキシブル支持体とも呼ばれ得る。好適なポリマー材料として、例えば、ポリエチレン及びポリプロピレン(アイソタクチックポリプロピレンを含む)等のポリオレフィン；ポリスチレン；ポリ(エチレンテレフタレート)、ポリ(ブタジエンテレフタレート)、ポリラクチド、及びポリ(カプロラクタム)等のポリエステル；ナイロン；ポリビニルアルコール；ポリ(フッ化ビニリデン)；並びに酢酸セルロース及びエチルセルロースなどセルロース系材料が挙げられる。望ましい場合には、フレキシブル支持体は特定の微細構造化表面を有してもよい。この微細構造化表面は、例えば米国特許第5,141,790号(Calhounら)、同第5,296,277号(Wilsonら)及び同第5,362,516号(Wilsonら)に記載されている。これらの微細構造化表面は、多くの場合、微細複製技術によって得られる。

20

#### 【0101】

他の好適な支持体は、合成繊維又は天然繊維から作られた繊維等、種々の繊維から作製することができる。この繊維は織物であっても不織であってもよい。好適な繊維として、綿、ナイロン、レーヨン、ガラス及びセラミック材料が挙げられるが、これに限定されない。他の好適な支持体として、更に、金属シート又は箔、金属を適用したポリマーフィルム及びセラミックシートが挙げられる。更に他の好適な支持体として、例えばアクリル発泡体、ポリエチレン発泡体、ポリウレタン発泡体、又はネオプレン発泡体等の発泡体も挙げられる。

30

#### 【0102】

硬化性接着剤組成物は、任意の好適な手段、例えば、ローラーコーティング、フローコーティング、ディップコーティング、スピンコーティング、スプレーコーティング、ブレードコーティング、ダイコーティング等を用いて支持体に塗布することが可能である。これらの異なる塗布方法によって、支持体に硬化性接着剤組成物を様々な厚みで塗布することが可能になる。コーティングの厚みは様々であり得るが、硬化済み接着剤組成物の通常の厚みは2~500マイクロメートルの範囲、又は25~250マイクロメートルの範囲である。

40

#### 【0103】

硬化済み接着剤組成物は通常(メタ)アクリレート感圧性接着剤である。種々の物品に使用可能な(メタ)アクリレート感圧性接着剤は、通常このような接着剤から作製される。例えば、(メタ)アクリレート感圧性接着剤は剥離層上に形成されて転写接着テープを形成することができる。他の接着テープにおいては、通常、フレキシブルポリマーフィル

50

ム（支持体）である支持層に（メタ）アクリレート感圧性接着剤が接着して、接着テープを形成する。接着テープは支持体の片面又は両面に（メタ）アクリレート感圧性接着剤が接着していてもよい。

【0104】

硬化性接着剤組成物、硬化済み接着剤組成物、（メタ）アクリレート感圧性接着剤の製造方法、又は（メタ）アクリレート感圧性接着剤が、種々の実施形態で提供される。

【0105】

実施形態1は、（a）第1の反応混合物から生成される第1のシロップ状ポリマー、（b）20,000g/mol（ダルトン）超、200,000g/mol（ダルトン）以下の重量平均分子量を有し、ガラス転移温度が20以下である（メタ）アクリレート粘着付与剤、及び（c）紫外線光開始剤を含む、硬化性接着剤組成物である。第1のシロップ状ポリマーを生成するのに使用される第1の反応混合物は、（1）非三級アルキルアクリレート、及び（2）酸官能性エチレン性不飽和モノマーを含む。この第1のシロップ状ポリマーは、（i）第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき1～30重量%の部分的に重合した酸官能性（メタ）アクリレートコポリマー、及び（ii）第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき70～99重量%の未反応のモノマー、を含み、この部分的に重合した酸官能性（メタ）アクリレートコポリマーは、500,000g/mol（ダルトン）超の重量平均分子量を有する。

10

【0106】

実施形態2は、硬化性接着剤組成物が第1のシロップ状ポリマーの総重量に基づき、5～40重量%の（メタ）アクリレート粘着付与剤を含む、実施形態1の硬化性接着剤組成物である。

20

【0107】

実施形態3は、（メタ）アクリレート粘着付与剤の重量平均分子量が40,000～150,000g/mol（ダルトン）の範囲内である、実施形態1又は2の硬化性接着剤組成物である。

【0108】

実施形態4は、（メタ）アクリレート粘着付与剤のTgが0以下である、実施形態1～3のいずれか一形態の硬化性接着剤組成物である。いくつかの実施形態では、Tgは0～-20の範囲である。

30

【0109】

実施形態5は、第1の反応混合物が、非三級アルキルアクリレートを45～99.5重量%含む、実施形態1～4のいずれか一形態の硬化性接着剤組成物である。

【0110】

実施形態6は、第1の反応混合物が（1）45～99.5重量%の非三級アルキルアクリレート、（2）0.5～15重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマー、（3）0～40重量%の任意の高Tg（メタ）アクリレート（このTgは非三級アルキルアクリレートモノマーのTgの値よりも高い）、（4）0～10重量%の任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマー、（5）0～5重量%の任意の他のビニルモノマー、及び（6）0～2重量%の任意の多官能性アクリレート、を含む、実施形態1～4のいずれか一形態の硬化性接着剤組成物である。各重量%は第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づくものである。

40

【0111】

実施形態7は、第1の反応混合物が（1）非三級アルキルアクリレート及び任意の高Tg（メタ）アクリレートでその和が85～99.5重量%と、（2）0.5～15重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマーとを含む、実施形態6の硬化性接着剤組成物である。

【0112】

実施形態8は、（メタ）アクリレート粘着付与剤が第2の反応混合物から生成され、この第2の反応混合物が、（1）30～99.5重量%の非三級アルキルアクリレート、（

50

2) 0.5 ~ 15 重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマー、(3) 0 ~ 60 重量%の任意の高Tg(メタ)アクリレート(このTgは非三級アルキルアクリレートモノマーのTgの値よりも高い)、(4) 0 ~ 40 重量%の任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマー、(5) 0 ~ 40 重量%の任意の他のビニルモノマー、及び(6) 0 ~ 5 重量%の任意の多官能性(メタ)アクリレート、を含む、実施形態1 ~ 7のいずれか一形態の硬化性接着剤組成物である。各重量%は第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づくものである。

【0113】

実施形態9は、(メタ)アクリレート粘着付与剤が第2のシロップ状ポリマーの形態であり、この第2のシロップ状ポリマーが、(i) 第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、少なくとも70重量%(例えば70 ~ 99重量%)の部分的に重合した(メタ)アクリレート粘着付与剤、及び(ii) 1 ~ 30 重量%の未反応のモノマーを含む、実施形態8の硬化性接着剤組成物である。各重量%は第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づくものである。

10

【0114】

実施形態10は、(メタ)アクリレート粘着付与剤とは異なる第2の粘着付与剤樹脂を更に含む、実施形態1 ~ 9のいずれか一形態の硬化性接着剤組成物である。いくつかの実施形態では、第2の粘着付与剤樹脂は炭化水素樹脂粘着付与剤、又は水素添加テルペンフェノール樹脂粘着付与剤である。

【0115】

20

実施形態11は、光感応性架橋剤を更に含む、実施形態1 ~ 10のいずれか一形態の硬化性接着剤組成物である。

【0116】

実施形態12は、部分的に重合した酸官能性(メタ)アクリレートコポリマーの重量平均分子量が1,000,000g/mol(ダルトン)超である、実施形態1 ~ 11のいずれか一形態の硬化性接着剤組成物である。

【0117】

実施形態13は、硬化性接着剤組成物の紫外線硬化反応生成物である、硬化済み接着剤組成物である。この硬化性接着剤組成物は、(a) 第1の反応混合物から生成される第1のシロップ状ポリマー、(b) 20,000g/mol(ダルトン)超、200,000g/mol(ダルトン)以下の重量平均分子量を有し、ガラス転移温度が20以下である(メタ)アクリレート粘着付与剤、及び(c) 紫外線光開始剤を含む。第1のシロップ状ポリマーを生成するのに使用される第1の反応混合物は、(1) 非三級アルキルアクリレート、及び(2) 酸官能性エチレン性不飽和モノマーを含む。この第1のシロップ状ポリマーは、(i) 第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき1 ~ 30 重量%の部分的に重合した酸官能性(メタ)アクリレートコポリマー、及び(ii) 第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき70 ~ 99 重量%の未反応のモノマー、を含み、この部分的に重合した酸官能性(メタ)アクリレートコポリマーは、500,000g/mol(ダルトン)超の重量平均分子量を有する。硬化済み接着剤組成物は、感圧性接着剤である。

30

【0118】

40

実施形態14は、硬化性接着剤組成物が第1のシロップ状ポリマーの総重量に基づき、5 ~ 40 重量%の(メタ)アクリレート粘着付与剤を含む、実施形態13の硬化済み接着剤組成物である。

【0119】

実施形態15は、(メタ)アクリレート粘着付与剤の重量平均分子量が40,000 ~ 150,000g/mol(ダルトン)の範囲内である、実施形態13又は14の硬化済み接着剤組成物である。

【0120】

実施形態16は、(メタ)アクリレート粘着付与剤のTgが0以下である、実施形態13 ~ 15のいずれか一形態の硬化済み接着剤組成物である。いくつかの実施形態では、

50

Tgは0～-20の範囲である。

【0121】

実施形態17は、第1の反応混合物が(1)45～99.5重量%の非三級アルキルアクリレート、(2)0.5～15重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマー、(3)0～40重量%の任意の高Tg(メタ)アクリレート(このTgは非三級アルキルアクリレートモノマーのTgの値よりも高い)、(4)0～10重量%の任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマー、(5)0～5重量%の任意の他のビニルモノマー、及び(6)0～2重量%の任意の多官能性アクリレート、を含む、実施形態13～16のいずれか一形態の硬化済み接着剤組成物である。各重量%は第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づくものである。

10

【0122】

実施形態18は、第1の反応混合物が(1)非三級アルキルアクリレート及び任意の高Tg(メタ)アクリレートでその和が85～99.5重量%と、(2)0.5～15重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマーとを含む、実施形態17の硬化済み接着剤組成物である。

【0123】

実施形態19は、(メタ)アクリレート粘着付与剤が第2の反応混合物から生成され、この第2の反応混合物が、(1)30～99.5重量%の非三級アルキルアクリレート、(2)0.5～15重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマー、(3)0～60重量%の任意の高Tg(メタ)アクリレート(このTgは非三級アルキルアクリレートモノマーのTgの値よりも高い)、(4)0～40重量%の任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマー、(5)0～40重量%の任意の他のビニルモノマー、及び(6)0～5重量%の任意の多官能性(メタ)アクリレート、を含む、実施形態13～18のいずれか一形態の硬化済み接着剤組成物である。各重量%は第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づくものである。

20

【0124】

実施形態20は、(メタ)アクリレート粘着付与剤が第2のシロップ状ポリマーの形態であり、この第2のシロップ状ポリマーが、(i)第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、少なくとも70重量%(例えば70～99重量%)の部分的に重合した(メタ)アクリレート粘着付与剤、及び(ii)1～30重量%の未反応のモノマーを含む、実施形態19の硬化済み接着剤組成物である。各重量%は第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づくものである。

30

【0125】

実施形態21は、(メタ)アクリレート粘着付与剤とは異なる第2の粘着付与剤樹脂を更に含む、実施形態13～20のいずれか一形態の硬化済み接着剤組成物である。

【0126】

実施形態22は、光感応性架橋剤を更に含む、実施形態13～21のいずれか一形態の硬化済み接着剤組成物である。

【0127】

実施形態23は、部分的に重合した酸官能性(メタ)アクリレートコポリマーの重量平均分子量が1,000,000g/mol(ダルトン)超である、実施形態13～22のいずれか一形態の硬化済み接着剤組成物である。

40

【0128】

実施形態24は、感圧性接着剤の製造方法である。この方法は、(1)非三級アルキルアクリレート、及び(2)酸官能性エチレン性不飽和モノマーを含む第1の反応混合物から第1のシロップ状ポリマーを生成する工程を含む。この第1のシロップ状ポリマーは、(i)第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき1～30重量%の部分的に重合した酸官能性(メタ)アクリレートコポリマー、及び(ii)第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき70～99重量%の未反応のモノマー、を含み、この部分的に重合した酸官能性(メタ)アクリレートコポリマーは、500,000g/mol(ダルトン)超

50



の重量平均分子量を有する。この方法は、20,000g/mol(ダルトン)超、200,000g/mol(ダルトン)以下の重量平均分子量を有し、ガラス転移温度が20以下である(メタ)アクリレート粘着付与剤を提供する工程を更に含む。この方法は第1のシロップ状ポリマー、(メタ)アクリレート粘着付与剤、及び紫外線光開始剤を混合して、硬化性接着剤組成物を調整する工程、その後この硬化性接着剤組成物を紫外線で硬化して、感圧性接着剤であり硬化済みの接着剤組成物を作製する工程を更に含む。

【0129】

実施形態25は、硬化性接着剤組成物が第1のシロップ状ポリマーの総重量に基づき、5~40重量%の(メタ)アクリレート粘着付与剤を含む、実施形態24の方法である。

【0130】

実施形態26は、(メタ)アクリレート粘着付与剤の重量平均分子量が40,000~150,000g/mol(ダルトン)の範囲内である、実施形態24又は25の方法である。

【0131】

実施形態27は、(メタ)アクリレート粘着付与剤のTgが0以下である、実施形態24~26のいずれか一形態の方法である。いくつかの実施形態では、Tgは0~-20の範囲である。

【0132】

実施形態28は、第1の反応混合物が(1)45~99.5重量%の非三級アルキルアクリレート、(2)0.5~15重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマー、(3)0~40重量%の任意の高Tg(メタ)アクリレート(このTgは非三級アルキルアクリレートモノマーのTgの値よりも高い)、(4)0~10重量%の任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマー、(5)0~5重量%の任意の他のビニルモノマー、及び(6)0~2重量%の任意の多官能性アクリレート、を含む、実施形態24~27のいずれか一形態の方法である。各重量%は第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づくものである。

【0133】

実施形態29は、第1の反応混合物が(1)非三級アルキルアクリレート及び任意の高Tg(メタ)アクリレートでその和が85~99.5重量%と、(2)0.5~15重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマーとを含む、実施形態28の方法である。

【0134】

実施形態30は、(メタ)アクリレート粘着付与剤が第2の反応混合物から生成され、この第2の反応混合物が、(1)30~99.5重量%の非三級アルキルアクリレート、(2)0.5~15重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマー、(3)0~60重量%の任意の高Tg(メタ)アクリレート(このTgは非三級アルキルアクリレートモノマーのTgの値よりも高い)、(4)0~40重量%の任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマー、(5)0~40重量%の任意の他のビニルモノマー、及び(6)0~5重量%の任意の多官能性(メタ)アクリレート、を含む、実施形態24~29のいずれか一形態の方法である。各重量%は第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づくものである。

【0135】

実施形態31は、(メタ)アクリレート粘着付与剤が第2のシロップ状ポリマーの形態であり、この第2のシロップ状ポリマーが、(i)第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、少なくとも70重量%(例えば70~99重量%)の部分的に重合した(メタ)アクリレート粘着付与剤、及び(ii)1~30重量%の未反応のモノマーを含む、実施形態30の方法である。各重量%は第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づくものである。

【0136】

実施形態32は、(メタ)アクリレート粘着付与剤とは異なる第2の粘着付与剤樹脂を更に含む、実施形態24~31のいずれか一形態の方法である。

【0137】

実施形態33は、光感応性架橋剤を更に含む、実施形態24~32のいずれか一形態の

10

20

30

40

50

方法である。

【0138】

実施形態34は、部分的に重合した酸官能性(メタ)アクリレートコポリマーの重量平均分子量が1,000,000g/mol(ダルトン)超である、実施形態24~33のいずれか一形態の方法である。

【0139】

実施形態35は、(a)500,000g/mol(ダルトン)より大きい重量平均分子量(Mw)を有する酸官能性(メタ)アクリレートコポリマー、及び(b)20,000g/mol(ダルトン)超、200,000g/mol(ダルトン)以下の重量平均分子量を有し、20以下のガラス転移温度(Tg)を有する(メタ)アクリレート粘着付与剤、を含む(メタ)アクリレート感圧性接着剤組成物である。

10

【0140】

実施形態36は、(メタ)アクリレート感圧性接着剤組成物が、酸官能性(メタ)アクリレートコポリマーの総重量に基づき、5~40重量%の(メタ)アクリレート粘着付与剤を含む、実施形態35の(メタ)アクリレート感圧性接着剤組成物である。

【0141】

実施形態37は、(メタ)アクリレート粘着付与剤の重量平均分子量が40,000~150,000g/mol(ダルトン)の範囲内である、実施形態35又は36の(メタ)アクリレート感圧性接着剤組成物である。

【0142】

20

実施形態38は、(メタ)アクリレート粘着付与剤のTgが0以下である、実施形態35~38のいずれか一形態の(メタ)アクリレート感圧性接着剤組成物である。いくつかの実施形態では、Tgは-20~0の範囲である。

【0143】

実施形態39は、酸官能性(メタ)アクリレートコポリマーが第1の反応混合物から調製され、この第1の反応混合物が、(1)45~99.5重量%の非三級アルキルアクリレート、(2)0.5~15重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマー、(3)0~40重量%の任意の高Tg(メタ)アクリレート(このTgは非三級アルキルアクリレートモノマーのTgの値よりも高い)、(4)0~10重量%の任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマー、(5)0~5重量%の任意の他のビニルモノマー、及び(6)0~2重量%の任意の多官能性アクリレート、を含む、実施形態35~38のいずれか一形態の(メタ)アクリレート感圧性接着剤組成物である。各重量%は第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づくものである。

30

【0144】

実施形態40は、第1の反応混合物が(1)非三級アルキルアクリレート及び任意の高Tg(メタ)アクリレートでその和が85~99.5重量%と、(2)0.5~15重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマーとを含む、実施形態39の(メタ)アクリレート感圧性接着剤組成物である。

【0145】

実施形態41は、(メタ)アクリレート粘着付与剤が第2の反応混合物から生成され、この第2の反応混合物が、(1)30~99.5重量%の非三級アルキルアクリレート、(2)0.5~15重量%の酸官能性エチレン性不飽和モノマー、(3)0~60重量%の任意の高Tg(メタ)アクリレート(このTgは非三級アルキルアクリレートモノマーのTgの値よりも高い)、(4)0~40重量%の任意の非酸性エチレン性不飽和極性モノマー、(5)0~40重量%の任意の他のビニルモノマー、及び(6)0~5重量%の任意の多官能性(メタ)アクリレート、を含む、実施形態35~40のいずれか一形態の(メタ)アクリレート感圧性接着剤組成物である。各重量%は第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づくものである。

40

【0146】

実施形態42は、(メタ)アクリレート粘着付与剤が第2のシロップ状ポリマーから生

50

成され、この第2のシロップ状ポリマーが、(i)第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき、少なくとも70重量%(例えば70~99重量%)の部分的に重合した(メタ)アクリレート粘着付与剤、及び(ii)1~30重量%の未反応のモノマーを含む、実施形態41の(メタ)アクリレート感圧性接着剤組成物である。各重量%は第2の反応混合物中のモノマーの総重量に基づくものである。

【0147】

実施形態43は、(メタ)アクリレート粘着付与剤とは異なる第2の粘着付与剤樹脂を更に含む、実施形態35~42のいずれか一形態の(メタ)アクリレート感圧性接着剤組成物である。いくつかの実施形態では、第2の粘着付与剤樹脂は炭化水素樹脂粘着付与剤、又は水素添加テルペンフェノール樹脂粘着付与剤である。

10

【0148】

実施形態44は、(メタ)アクリレート感圧性接着剤が(a)第1の反応混合物から生成された第1のシロップ状ポリマー、(b)重量平均分子量が20,000g/mol(ダルトン)超、200,000g/mol(ダルトン)以下で、ガラス転移温度が20以下である(メタ)アクリレート粘着付与剤、及び(c)紫外線光開始剤を含む硬化性接着剤組成物から調製される、(メタ)アクリレート感圧性接着剤組成物である。第1のシロップ状ポリマーを生成するのに使用される第1の反応混合物は、(1)非三級アルキルアクリレート、及び(2)酸官能性エチレン性不飽和モノマーを含む。この第1のシロップ状ポリマーは、(i)第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき1~30重量%の部分的に重合した酸官能性(メタ)アクリレートコポリマー、及び(ii)第1の反応混合物中のモノマーの総重量に基づき70~99重量%の未反応のモノマー、を含み、この部分的に重合した酸官能性(メタ)アクリレートコポリマーは、500,000g/mol(ダルトン)超の重量平均分子量を有する。

20

【実施例】

【0149】

本発明の目的と利点を、以下の実施例を参照して更に記述する。これらの実施例に記載されている具体的な材料、量、並びに他の条件及び詳細は、本発明を記述するために使用しているものであって、本発明に何らかの限定をするものとして解釈されるべきものではない。本発明で記載されているパーセント、比、部等は、別途記載されている場合を除き、全て重量基準である。

30

【0150】

別途記載のない限り、全ての量は重量%として記載する。

【0151】

## 【表 1】

表1: 材料用語集

省略形又は 商品名	詳細
IOA	イソオクチルアクリレート(3M Company(Saint Paul, MN, USA))
2-EHA	2-エチルヘキシルアクリレート(Huayi acrylic Co. Ltd. (Shanghai, China))
MA	メチルアクリレート(Huayi acrylic Co. Ltd. (Shanghai, China))
BA	ブチルアクリレート(Huayi acrylic Co. Ltd. (Shanghai, China))
AA	アクリル酸(Huayi acrylic Co. Ltd. (Shanghai, China))
DMAA	N, N-ジメチルアクリルアミド(Beijing Boruilong Sci. Co. Ltd. (Beijing, China))
IBxA	イソボルニルアクリレート(San Ester Corp. (Osaka, Japan))
HDDA	1, 6-ヘキサンジオールジアクリレート(Cytec Co. Ltd. (Woodland Park, NJ, USA))
トリアジン	2, 4-ビス(トリクロロメチル)-6-(4-メトキシフェニル)-トリアジン(3M Company(Saint Paul, MN, USA))
IRGACURE 651	2, 2-ジメトキシ-2-フェニル-1-アセトフェノン(BASF Co. Ltd. , (Florham Park, NJ, USA))の商品名
REGALREZ 6108	炭化水素系粘着付与剤(Eastman Chemical Co. Ltd. (Kingsport, TN, USA))の商品名
TH130	水素添加テルペンフェノール樹脂粘着付与剤(Yasuhara Chemical Co. Ltd. (Hiroshima, Japan))の商品名
IOTG	イソオクチルチオグリコレート(Showa Denko Co. Ltd. (Tokyo, Japan))
TDDM	tert-ドデシルメルカプタン(Arkema Co. Ltd. (Genay, France))

10

20

## 【0152】

## 試験法

本発明のサンプルについての性能テスト及び特性把握を以下のテスト方法に従って実施する。

## 【0153】

剥離力テスト(ASTM D3330/D3330M-04)

片面接着テープの解析のために、接着テープは作製後そのまま使用した。接着面がテスト面であり、当初は剥離フィルムCPフィルムT10 PET(Solutia Co., Ltd(Eastman(Kingsport, TN, USA)の子会社)より入手)に覆われていた。片面接着テープの支持体はもとのPETフィルム支持体(厚み0.075mm、Loperax, Shanghai, Chinaより入手)であった。解析の前に剥離テープを取り除いた。両面接着テープの解析には、接着テープの一方の面の剥離フィルムを取り除き、0.051mmのPETフィルム(Yihua Toray Polyester Film Co. Ltd., Yizheng, Jiangsu Province, Chinaより入手)を1枚接着して支持体として使用した。もともと剥離フィルムで覆われていた接着テープのもう一方の面をテスト面とした。カッティングナイフを用いて注意深く25.4mm幅、約203mm長の両種類のテープのサンプル片を切り出した。

30

40

## 【0154】

接着テープのテスト面は、剥離フィルムを取り除いた後、ステンレス鋼板(SS、Chemsubtants International Co. Ltd., Ohio, USA製)、ポリカーボネート板(PC、SABIC Plastics, Shanghai, China製)、ポリプロピレン板(PP、QUADRANT Plastics, Pennsylvania, USA製)に接着した。

## 【0155】

このサンプルに2kgのゴムローラーを304.8mm/分のスピードで前後に転がした。決められた時間の後、Instron 3343(Chemsubtants International Co. Ltd., Ohio, USA)を使用して、304.8

50

mm / 分の剥離速度で 180 ° 剥離に必要な力を試験した。3つのテープサンプルについて平均値を求め、N / mmで記載した。サンプルは、テストの前に様々な条件下に置かれた。条件 A は、 $23 \pm 2 / 50 \pm 5 \% RH$  ( 相対湿度 ) に 20 分、条件 B は  $23 \pm 2 / 50 \pm 5 \% RH$  に 3 時間、条件 C は  $85 / 85 \% RH$  に 7 日間の後、 $23 \pm 2 / 50 \pm 5 \% RH$  に 1 日間である。

#### 【 0 1 5 6 】

高温せん断試験 ( ASTM D - 3654 / D 3654 M 06 , PSTC - 7 )

片面接着テープの解析のために、接着テープは作製後そのまま使用した。接着面がテスト面であり、当初は剥離フィルム CP フィルム T10 PET ( Solutia Co. , Ltd ( Eastman ( Kingsport , TN , USA ) の子会社 ) より入手 ) に覆われていた。片面接着テープの支持体はもとの PET フィルム支持体 ( 厚み 0.075 mm、Loperax , Shanghai , China より入手 ) であった。解析の前に剥離テープを取り除いた。両面接着テープの解析には、接着テープの一方の面の剥離フィルムを取り除き、0.051 mm の PET フィルム ( Yihua Toray Polyester Film Co. Ltd. , Yizheng , Jiangsu Province , China より入手 ) を 1 枚接着して支持体として使用した。もともと剥離フィルムで覆われていた接着テープのもう一方の面をテスト面とした。カッティングナイフを用いて注意深く 12.7 mm 幅、約 150 mm 長の両種類のテープのサンプル片を切り出した。

#### 【 0 1 5 7 】

剥離フィルムを部分的に取り除いた後、テープをステンレス鋼板に接着した。接着剤の SS 板への接着面積は  $25.4 \text{ mm} \times 12.7 \text{ mm}$  であった。SS 板に接着していない部分の接着テープはアダプター・フックの中心部で折り返して定位置に固定されるよう留めた。SS 板に接着した部分の接着テープに 2 kg のゴムローラーを  $304.8 \text{ mm} / \text{分}$  の速度で前後に転がした。試験試料は、試験の前に 20 分間室温に保たれた。試験では、500 g の荷重をアダプター・フックを付加して実施した。試験試料は、不良が発生するまで、及び / 又は試験が終了するまで、架けた。不良が発生するまでの時間 ( 分 ) と不良の状態を記録した。試験時間が 10,000 分を超えた場合には、10,000 分として記録した。それぞれの試料は 3 回試験され、その平均を記録した。

#### 【 0 1 5 8 】

( メタ ) アクリレート 粘着付与剤 のガラス転移温度 ( Tg )

示差走査熱量測定装置 ( DSC、Q100 , TA Co. Ltd. , Delaware , US 製 ) を用いて、( メタ ) アクリレート 粘着付与剤 のガラス転移温度 ( Tg ) を求めた。各サンプルは ( 1 ) - 80 において平衡化され、( 2 ) - 80 において 2 分間保持された後、( 3 ) 40 まで ( 又は 100 まで )  $10 / \text{分}$  の速度で加熱された。Tg はガラスから液体へ遷移する際のピーク温度に相当した。

#### 【 0 1 5 9 】

変換率測定

第 1 のシロップ状ポリマー及び ( メタ ) アクリレート 粘着付与剤 ( 又は相当する第 2 のシロップ状ポリマー ) の変換率は固形分 ( 固形 % ) を測定することで求めた。この手順は、各サンプルをアルミ皿に秤量し、強制対流加熱型オープンでアルミ皿内の試料を  $105 \pm 3$  において  $60 \pm 30$  分間加熱し、オープンから試料を取り出した後、5 分間試料を冷却して、試料を秤量することを含んだ。転化率 % は、次式から計算した：

$$\text{固形 \%} = 100 [ ( M1 - M2 ) \div M1 ]$$

この式において、M1 は試料の加熱前の質量、M2 は試料の加熱後の質量を表す。M1 も M2 もアルミ皿の重量は含まない。

#### 【 0 1 6 0 】

分子量の決定

( メタ ) アクリレート 粘着付与剤 及び部分的に重合した酸官能性 ( メタ ) アクリレートコポリマーの分子量 ( Mw ) は、Waters Co. Ltd. ( Milford , MA

、U S A ) 製機器のゲル透過クロマトグラフィー ( G P C ) を用いて求めた。この手順は、0 . 1 g の試料を 5 m L のバイアル瓶に秤量し、3 m L のテトラヒドロフランで試料を溶解することを含んだ。クロマトグラフ分析の必要に応じて、試料を更に希釈した。試料溶液を 0 . 4 5 マイクロメートルの膜を通して濾過した。この濾過した溶液を G P C に注入し、Mw を算出した。分子量が既知のポリスチレンの標準試料を使用し、検量線は線形最小二乗解析を用いて求め、G P C を検量した。

#### 【 0 1 6 1 】

準備例 S - 1、S - 2 及び S - 3

3 種類の第 1 のシロップ状ポリマー ( S - 1、S - 2 及び S - 3 ) を調製した。表 2 に記載している種類と量のモノマーを各試料の 1 クォートのガラス瓶に投入した。光開始剤 I R G A C U R E 6 5 1 ( 0 . 0 4 p h r、これはモノマー総重量を基にして 0 . 0 4 重量 % に相当する ) を各試料中のモノマーに添加した。各混合物は磁力攪拌をしながら窒素で 1 5 分間パージされ、次いで、シロップ状ポリマーの室温 ( R T ) での粘度が約 2 , 0 0 0 ~ 8 , 0 0 0 c P s になるまで低強度 U V 光源 ( 3 6 5 n m で約 1 . 5 m W / c m <sup>2</sup> の強度 ) に曝露した。Mw は 7 , 3 0 0 , 0 0 0 g / モル ( S - 1 )、4 , 8 0 0 , 0 0 0 g / モル ( S - 2 )、及び 1 , 7 0 0 , 0 0 0 g / モル ( S - 3 ) であった。この分子量は G P C で求められた。

#### 【 0 1 6 2 】

##### 【表 2】

表 2 : 第 1 のシロップ状ポリマー S - 1、S - 2 及び S - 3 の組成

調製 実施例	IOA (重量 %)	2-EHA (重量 %)	AA (重量 %)	IBxA (重量 %)
S - 1	90	—	10	—
S - 2	—	96	4	—
S - 3	82	—	1	—17

#### 【 0 1 6 3 】

準備例 T - 1、T - 2 及び T - 3

(メタ) アクリレート 粘着付与剤 を生成するためのシロップ状ポリマー ( 第 2 のシロップ状ポリマー ) を調製した。表 3 に記載している種類と量のモノマーを 1 クォートのガラス瓶に投入した。更に、光開始剤 I R G A C U R E 6 5 1 ( 0 . 8 p h r、これはモノマー総重量に基づき 0 . 8 重量 % に相当する ) 及び連鎖移動剤 T D D M ( 1 p h r、これはモノマーの総重量に基づき 1 重量 % に相当する ) を各試料に添加した。各混合物は磁力攪拌をしながら窒素で 1 5 分間パージされ、次いで、シロップ状ポリマーが望ましい変換率 ( 固形分 % に相当する ) に到達するまで低強度 U V 光源 ( 3 6 5 n m で 1 . 5 m W / c m <sup>2</sup> の強度 ) に曝露した。シロップ中の部分的に重合した (メタ) アクリレート 粘着付与剤 の重量平均分子量及びガラス転移温度も表 3 に記載した。

#### 【 0 1 6 4 】

##### 【表 3】

表 3 : 第 2 のシロップ状ポリマー T - 1、T - 2 及び T - 3 の組成と特性

調製 実施例	2-EHA (重量 %)	BA (重量 %)	IBxA (重量 %)	AA (重量 %)	固形分 (重量 %)	MW (Da)	Tg (°C)
T - 1	42. 5	42. 5	12. 5	2. 5	84. 2	54, 300	-46. 8
T - 2	57. 5	5. 0	35	2. 5	89. 4	49, 700	-31. 5
T - 3	36. 5	46. 5	15. 5	1. 5	88. 4	63, 400	-51. 3

#### 【 0 1 6 5 】

準備例 T - 4 ~ T - 9

(メタ) アクリレート 粘着付与剤 T - 4 ~ T - 9 は、まずシロップ状ポリマーを生成し、そのシロップ状ポリマーを支持体上にフィルムとしてコーティングし、次いで更に紫外

線に曝露してシロップ状ポリマーを重合して作製した。シロップ状ポリマーの作製に使用したモノマーの種類と量は表4に記載されている。モノマー、光開始剤IRGACURE 651(0.6 phr、反応混合物中のモノマーの重量に基づき0.6重量%に相当する)及び連鎖移動剤IOTG(0.8 phr、反応混合物中のモノマーの重量に基づき0.8重量%に相当する)を1クォートのガラス瓶に投入した。各混合物は磁力攪拌をしながら窒素で15分間パージされ、次いで、シロップ状ポリマーが望ましい粘度(変換率)に到達するまで低強度UV光源(365nmで1.5mW/cm<sup>2</sup>の強度)に曝露した。表5の固形分率は各シロップ状ポリマーの変換率に相当する。次いで、各シロップ状ポリマーは2片の剥離フィルム(CPフィルムT10 PET、Eastman(Kingsport, TN, USA)の子会社のSolutia Co., Ltd製)の間にコーティングした。この剥離フィルムは厚みが0.051mmであり、片面に透明なシリコンの剥離層を有していた。シロップ状ポリマーの各コーティングの厚みは、0.1~0.3mmの範囲にコントロールされた。各コーティングは上記と同じ低強度UV源によって10~20分間、共重合が完了するまで照射された。両剥離フィルムを取り除いて、(メタ)アクリレート粘着付与剤を得た。各(メタ)アクリレート粘着付与剤の固形分は表5に記載されており、これらの値は変換率に相当する。

【0166】

【表4】

表4:(メタ)アクリレート粘着付与剤T4~T9の組成

調製 実施例	IOA (重量%)	2-EHA (重量%)	BA (重量%)	IBxA (重量%)	AA (重量%)	MA (重量%)	DMAA (重量%)
T-4	—	36.5	27.5	30	6	—	—
T-5	—	51	—	46	3	—	—
T-6	—	—	72	20	8	—	—
T-7	41	—	—	18	5	36	—
T-8	67	—	—	—	5	—	28
T-9	60	—	—	38.5	1	—	—

【0167】

【表5】

表5:(メタ)アクリレート粘着付与剤T4~T9の特性

調製 実施例	シロップ状固形分 (重量%)	オリゴマー固形分 (重量%)	オリゴマーT <sub>g</sub> (°C)	MW (Da)
T-4	60.3	98.7	-16.2	88,400
T-5	56.2	98.4	-14.7	50,800
T-6	46.7	99.0	-16.6	50,500
T-7	69.2	98.7	-12.3	44,200
T-8	44.6	98.6	-6.4	150,700
T-9	60.3	98.9	-17.8	22,200

【0168】

実施例1~5:硬化済み接着剤組成物

実施例1~5は、表6に記載された硬化性接着剤組成物から作製された。phr値はシロップ状ポリマー(S-1)の総重量を基にしている。シロップ状ポリマーS-1、粘着付与剤TH130、光開始剤IRGACURE 651、多官能性アクリレートHDDA、及び架橋剤2,4-ビス(トリクロロメチル)-6-(4-メトキシフェニル)-トリアジン(表6では「トリアジン」と記載)を各試料の1クォートのガラス瓶に投入した。(メタ)アクリレート粘着付与剤T-2及びT-3をそれぞれ実施例1、実施例2に添加した。REGALREZ 6108及び(メタ)アクリレート粘着付与剤T-1を実施例3に、REGALREZ 6108及び(メタ)アクリレート粘着付与剤T-2を実施例

4 に、及び REGALREZ 6108 及び (メタ) アクリレート粘着付与剤 T-3 を実施例 5 に添加した。各瓶を蓋をして閉めた後、3 台のローラマシンに載せて全ての成分が溶解するまで、混合物を混合した。出来上がった硬化性接着剤組成物は透明であった。

【0169】

【表 6】

表 6: 実施例 1～5 の硬化性接着剤組成物

実施例	S-1 (phr)	トリアジン (phr)	HDDA (phr)	イルガキュア 651 (phr)	TH130 (phr)	REGALREZ 6108 (phr)	T-1 (phr)	T-2 (phr)	T-3 (phr)
1	100	0.35	0.12	0.20	35.0	—	—	10.0	—
2	100	0.35	0.12	0.20	35.0	—	—	—	10.0
3	100	0.30	0.12	0.20	21.0	15.0	10.0	—	—
4	100	0.30	0.12	0.20	21.0	15.0	—	10.0	—
5	100	0.30	0.12	0.20	21.0	15.0	—	—	10.0

【0170】

硬化性接着剤組成物を 2 片の CP フィルム T10 PET 透明剥離フィルムの剥離面間にコーティングした。コーティング厚みは 0.07 mm にコントロールした。コーティング層を組成物が硬化するまで 5～10 分間上記参照の低強度 UV 光源で上から照射した。

【0171】

第 1 の部分から剥離フィルムの 1 枚を取り除き、次いで第 1 の部分の接着層を 0.013 mm の厚みの透明な PET フィルム (DuPont Foshan, Foshan, Guangdong Province, China 製) で覆って、両面接着テープを作製した。そして、第 2 の部分から剥離フィルムを取り除いて、第 2 の部分の接着層を PET フィルムの反対側に貼り付けた。この作製した両面テープは、 $23 \pm 2$  及び  $50 \pm 5\%$  RH に 1 日保持した後、関連する試験を行った。詳細な試験データを表 7 に記載している。

【0172】

【表 7】

表 7: 実施例 1～5 の接着特性

実施例	SS に対する剥離 (N/mm)			PC に対する剥離 (N/mm)			高 T せん断 (分)
	条件 A	条件 B	条件 C	条件 A	条件 B	条件 C	
1	1.25	1.82	1.23	1.27	1.57	1.32	10000+
2	1.11	1.53	1.18	1.12	1.21	1.13	10000+
3	1.11	1.61	1.09	1.20	1.35	1.18	10000+
4	1.23	1.38	1.17	1.12	1.15	1.19	10000+
5	0.98	1.18	1.01	1.02	1.32	1.04	10000+

【0173】

比較例 C1～C3 及び実施例 6～21

比較例 C1～C3 及び実施例 6～21 は表 8 に記載された硬化性接着剤組成物から作製された。比較例 C1 及び C2 には、シロップ状ポリマー (S-1 又は S-2)、架橋剤 2, 4-ビス(トリクロロメチル)-6-(4-メトキシフェニル)-トリアジン、及び光開始剤 IRGACURE 651 を 1 クォートのガラス瓶に入れた。実施例 6～15 には、シロップ状ポリマー (S-1 又は S-2)、(メタ)アクリレート粘着付与剤 (T-4、T-6、T-7 又は T-8)、架橋剤 2, 4-ビス(トリクロロメチル)-6-(4-メトキシフェニル)-トリアジン、及び光開始剤 IRGACURE 651 を 1 クォートのガラス瓶に入れた。比較例 C3 には、シロップ状ポリマー S-3、モノマー IBxA、架橋剤 2, 4-ビス(トリクロロメチル)-6-(4-メトキシフェニル)-トリアジン、及び光開始剤 IRGACURE 651 を 1 クォートのガラス瓶に入れた。実施例 16～21 には、シロップ状ポリマー S-3、(メタ)アクリレート粘着付与剤 (T-5 又は T-5 と T-9)、モノマー IBxA、架橋剤 2, 4-ビス(トリクロロメチル)-6-



(4-メトキシフェニル)-トリアジン、及び光開始剤IRGACURE 651を1クォートのガラス瓶に入れた。各瓶を蓋をして閉めた後、3台のローラーマシンに載せて全ての成分が溶解するまで、混合物を混合した。出来上がった硬化性接着剤組成物は透明であった。

【0174】

【表8】

表8: 硬化性接着剤組成物比較例C1～C3及び実施例6～21の組成

実施例	S-1	S-2	S-3/ IBxA	トリアジン (phr)	IRACURE 651 (phr)	T-4 (phr)	T-5 (phr)	T-6 (phr)	T-7 (phr)	T-8 (phr)	T-9 (phr)
C1	100	—	—	0.10	0.15	0	—	—	—	—	—
6	100	—	—	0.12	0.20	10	—	—	—	—	—
7	100	—	—	0.16	0.20	20	—	—	—	—	—
C2	—	100	—	0.1	0.15	0	—	—	—	—	—
8	—	100	—	0.12	0.20	10	—	—	—	—	—
9	—	100	—	0.16	0.20	20	—	—	—	—	—
10	—	100	—	0.19	0.20	30	—	—	—	—	—
11	—	100	—	0.12	0.20	—	—	10	—	—	—
12	—	100	—	0.12	0.20	—	—	—	10	—	—
13	—	100	—	0.16	0.20	—	—	—	20	—	—
14	—	100	—	0.19	0.20	—	—	—	30	—	—
15	—	100	—	0.12	0.20	—	—	—	—	10	—
C3	—	—	83/17	0.10	0.15	—	0	—	—	—	—
16	—	—	83/17	0.14	0.20	—	10	—	—	—	—
17	—	—	83/17	0.16	0.20	—	20	—	—	—	—
18	—	—	83/17	0.18	0.20	—	30	—	—	—	—
19	—	—	83/17	0.16	0.20	—	10	—	—	—	10
20	—	—	83/17	0.18	0.20	—	20	—	—	—	20
21	—	—	83/17	0.20	0.20	—	30	—	—	—	30

【0175】

硬化性接着剤組成物は2枚のフィルムの間にコーティングされた。第1の剥離フィルムは、1片のCPフィルムT10 PETであった。第2の剥離フィルムは、片面にシリコンがコーティングされ、厚みが0.075mmである、透明剥離フィルム(Loperax Co., Ltd., Shanghai, China製)の非剥離面であった。コーティング厚みは0.051mmにコントロールされた。このコーティングに、重合が完了するまで5～10分、低強度UV光源(365nmで約1.5mW/cm<sup>2</sup>)で上から照射した。作製された硬化済み接着剤組成物を、23±2及び50±5% RHに1日保持した後、関連する試験(剥離試験及びせん断力試験)を行った。比較例C1～C3、及び実施例6～21のステンレス鋼及びポリカーボネートに対する剥離試験及びせん断力試験の結果を表9に示す。実施例16～21、及び比較例C3のポリプロピレンに対する剥離試験の結果を表10に示す。

【0176】

## 【表 9】

表9: 比較例C1～C3及び実施例6～21の接着特性

実施例	SSに対する剥離(N/mm)			PCに対する剥離(N/mm)			せん断(分)
	条件A	条件B	条件C	条件A	条件B	条件C	
C1	0.765	1.241	0.690	0.697	0.698	0.716	10000+
6	0.767	1.433	0.719	0.756	1.040	0.788	10000+
7	0.785	1.483	0.855	0.802	1.044	0.837	10000+
C2	0.320	0.578	0.350	0.313	0.566	0.369	10000+
8	0.444	1.001	0.462	0.525	0.868	0.547	10000+
9	0.497	1.048	0.529	0.641	1.045	0.656	10000+
10	0.519	1.170	0.585	0.566	1.070	0.784	10000+
11	0.549	0.878	0.607	0.733	0.909	0.837	10000+
12	0.687	0.930	0.765	0.799	1.189	0.925	10000+
13	0.657	1.002	0.763	0.740	1.102	1.046	10000+
14	0.746	1.273	0.834	0.753	1.298	1.108	10000+
15	0.755	1.367	0.662	0.801	1.192	0.943	10000+
C3	0.254	0.488	0.413	0.425	0.761	0.542	10000+
16	0.565	0.870	0.695	0.578	0.863	0.802	10000+
17	0.604	0.884	0.644	0.633	0.848	0.867	10000+
18	0.599	0.923	0.674	0.603	0.843	0.833	10000+
19	0.429	0.591	0.489	0.518	0.807	0.627	10000+
20	0.474	0.635	0.526	0.531	0.820	0.729	10000+
21	0.542	0.658	0.567	0.567	0.855	0.751	10000+

10

20

## 【0177】

## 【表 10】

表10: 比較例C3及び実施例16～21の接着特性

実施例	PPに対する剥離(N/mm)		
	条件A	条件B	条件C
C3	0.333	0.525	0.566
16	0.615	0.710	0.703
17	0.605	0.826	0.789
18	0.636	0.804	0.804
19	0.420	0.633	0.635
20	0.478	0.699	0.683
21	0.513	0.743	0.747

30

---

フロントページの続き

(72)発明者 チャン, ウェンジェ

中華人民共和国, 200336 シャンハイ, シンイー ロード 8, マクスド センター  
, 38 / エフ

審査官 菅野 芳男

(56)参考文献 特開2001-049200(JP, A)

特開2006-225443(JP, A)

特開2007-091816(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C09J 1/00 - 201/10