

(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

2020年3月5日(05.03.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/045067 A1

(51) 国際特許分類:

C09J 7/38 (2018.01)

C09J 133/00 (2006.01)

C09J 4/02 (2006.01)

C09J 201/00 (2006.01)

(21) 国際出願番号 :

PCT/JP2019/031726

(22) 国際出願日 :

2019年8月9日(09.08.2019)

(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 2018-158773 2018年8月27日(27.08.2018) JP

(71) 出願人: 日東电工株式会社 (NITTO DENKO CORPORATION) [JP/JP]; 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 片岡 賢一 (KATAOKA, Kenichi); 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東电工株式会社内 Osaka (JP). 仲野 武史 (NAKANO, Takeshi); 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東电工株式会社内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 新宅 将人 (SHINTAKU, Masato); 〒5410054 大阪府大阪市中央区南本町4丁目5-7 東亜ビル いざなぎ国際特許事務所 Osaka (JP).

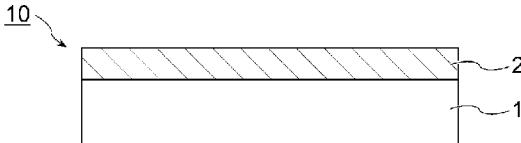
(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ヨーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT,

(54) Title: REINFORCING FILM

(54) 発明の名称 : 補強フィルム

[図1]



(57) **Abstract:** A reinforcing film (10) comprises: an adhesive agent layer (2) that is fixed/laminated on one primary surface of a film substrate (1). The adhesive agent layer is formed from a photo-curable composition comprising a base polymer, a photo-curable agent and a photopolymerization initiator. The reinforcing film has a wetting speed, with respect to a glass sheet, of 0.3 to 4 cm²/second. This reinforcing film can be easily reworked immediately after being affixed to an adherend, firm adhesion with the adherend is possible, and the time until adhesive force increases after affixing to an adherend can be freely set.

(57) **要約:** 補強フィルム (10) は、フィルム基材 (1) の一主面上に固着積層された粘着剤層 (2) を備える。粘着剤層は、ベースポリマー、光硬化剤および光重合開始剤を含む光硬化性組成物からなる。補強フィルムのガラス板に対する濡れ速度は、0.3 cm²/秒～4 cm²/秒である。本発明の補強フィルムは、被着体との貼り合わせ直後はリワークが容易であり、被着体と強固に接着可能であり、かつ被着体との貼り合わせ後、接着力が向上するまでの時間を任意に設定可能である。



LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS,
SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM,
GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類 :

- 国際調査報告（条約第21条(3)）

明 細 書

発明の名称：補強フィルム

技術分野

[0001] 本発明は、デバイス表面に貼設される補強フィルムに関する。

背景技術

[0002] ディスプレイ等の光学デバイスや電子デバイスの表面には、表面保護や耐衝撃性付与等を目的として、粘着性フィルムが貼着される場合がある。このような粘着性フィルムは、通常、フィルム基材の主面に粘着剤層が固着積層されており、この粘着剤層を介してデバイス表面に貼り合わせられる。

[0003] デバイスの組み立て、加工、輸送等の使用前の状態において、デバイスまたはデバイス構成部品の表面に粘着性フィルムを仮着することにより、被着体の傷つきや破損を抑制できる。このような粘着性フィルムは工程材であり、デバイスの使用前に剥離除去される。特許文献1に記載されているように、工程材として用いられる粘着性フィルムは、被着体に濡れ広がりやすく、かつ低粘着性で被着体から容易に剥離可能であり、被着体への糊残りが生じないことが求められる。

[0004] 特許文献2には、デバイスの組み立て、加工、輸送等に加えて、デバイスの使用時にもデバイス表面に貼着したままの状態で使用される粘着性フィルムが開示されている。このような粘着性フィルムは、表面保護に加えて、デバイスへの衝撃の分散や、フレキシブルデバイスへの剛性付与等により、デバイスを補強する機能を有している。

[0005] 粘着性フィルムを被着体に貼り合わせる際に、気泡の混入や貼り位置のずれ等の貼り合わせ不良が生じる場合がある。貼り合わせ不良が生じた場合には、被着体から粘着性フィルムを剥離し、別の粘着性フィルムを貼り合わせる作業（リワーク）が行われる。工程材として用いられる粘着性フィルムは、被着体からの剥離を前提として設計されているため、リワークが容易である。一方、補強フィルムは、一般には、デバイスから剥離することは想定さ

れておらず、デバイスの表面に強固に接着しているため、リワークが困難である。

[0006] 特許文献3では、被着体との貼り合わせ直後は低粘着性であり、経時的に接着力が上昇するように設計された粘着シート（粘着剤層）が開示されている。フィルム基材上にこのような粘着剤層が固着積層された粘着性フィルムは、被着体との貼り合わせ直後は被着体からの剥離が容易であり、所定時間経過後には被着体と強固に接着するため、リワーク性を有する補強フィルムとして利用可能である。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特開2013-107998号公報

特許文献2：特開2017-132977号公報

特許文献3：WO2015/163115号パンフレット

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] デバイス表面に貼り合わせられる粘着性フィルムは、貼り合わせ時の気泡の混入等が生じ難く貼り合わせの作業性に優れるとともに、貼り合わせ不良が生じた場合には容易に剥離除去（リワーク）できることが求められる。被着体との接着力が経時的に変化する補強フィルムは、貼り合わせ直後はリワークが容易であるが、工程のリードタイムに対する柔軟性が十分とは言い難い。例えば、接着力が経時的に上昇する粘着剤層を備える補強フィルムは、被着体との貼り合わせ後、接着力が上昇するまでの所定時間内に、貼り合わせ状態の検査およびリワークを実施する必要がある。また、デバイスやデバイス部品の全面に補強フィルムを貼り合わせた後、一部の領域から補強フィルムを除去する等の加工を行う場合には、接着力が上昇するまでの期間に加工を行う必要がある。

[0009] 上記に鑑み、本発明は、被着体との貼り合わせ性に優れるとともに、被着

体との貼り合わせ後、接着力が向上するまでの時間を任意に設定可能であり、かつ接着力向上により被着体と強固に接着可能な補強フィルムの提供を目的とする。

課題を解決するための手段

- [0010] 本発明の補強フィルムは、フィルム基材の一主面上に固着積層された粘着剤層を備える。粘着剤層は、ベースポリマー、光硬化剤および光重合開始剤を含む光硬化性組成物からなる。粘着剤層のベースポリマーとしては、例えばアクリル系ポリマーが用いられる。
- [0011] ベースポリマーには架橋構造が導入されていることが好ましい。例えば、ベースポリマーがモノマーユニットとして、ヒドロキシ基含有モノマーおよび／またはカルボキシ基含有モノマーを含有し、多官能イソシアネート化合物や多官能エポキシ化合物等の架橋剤がこれらの官能基と結合することにより、架橋構造が導入される。
- [0012] 光硬化剤は2以上の重合性官能基を有するモノマーまたはオリゴマーであり、多官能（メタ）アクリレート等が用いられる。光硬化剤の分子量は1500以下が好ましい。光硬化剤の官能基当量は、100～500 g/eq程度が好ましい。粘着剤層を構成する光硬化性組成物における光硬化剤の量は、ベースポリマー100重量部に対して、10～50重量部が好ましい。
- [0013] 補強フィルムは、ガラス板に対する濡れ速度が $0.3 \text{ cm}^2/\text{秒}$ ～ $4 \text{ cm}^2/\text{秒}$ であることが好ましい。粘着剤層を光硬化前の補強フィルムは、ガラス板等の被着体に対する接着力が $0.03 \text{ N}/25 \text{ mm}$ 以上、 $1 \text{ N}/25 \text{ mm}$ 未満であることが好ましい。粘着剤層を光硬化後の補強フィルムは、ガラス板等の被着体に対する接着力が $1 \text{ N}/25 \text{ mm}$ 以上であることが好ましい。

発明の効果

- [0014] 本発明の補強フィルムは、粘着剤層が光硬化性組成物からなり、被着体との接着後に粘着剤層を光硬化することにより、被着体との接着力が上昇する。光硬化前は被着体との接着力が小さいため、リワークが容易である。また、ガラス等の被着体に対して適度の濡れ速度を有するため、貼り合わせ作業

性に優れる。光硬化後の粘着剤は高い接着力を示すため、補強フィルムを貼り合わせることにより、デバイスの補強および信頼性の向上が期待できる。光硬化性の粘着剤は、被着体との貼り合わせ後の硬化のタイミングを任意に設定できるため、本発明の補強フィルムは、工程のリードタイムに柔軟に対応可能である。

図面の簡単な説明

[0015] [図1]補強フィルムの積層構成を示す断面図である。

[図2]補強フィルムの積層構成を示す断面図である。

[図3]補強フィルムが貼設されたデバイスを示す断面図である。

発明を実施するための形態

[0016] 図1は、補強フィルムの一実施形態を表す断面図である。補強フィルム10は、フィルム基材1の一主面上に粘着剤層2を備える。粘着剤層2は、フィルム基材1の一主面上に固着積層されている。粘着剤層2は光硬化性組成物からなる光硬化性粘着剤であり、紫外線等の活性光線の照射により硬化して、被着体との接着強度が上昇する。

[0017] 図2は、粘着剤層2の主面上にセパレータ5が仮着された補強フィルムの断面図である。図3は、デバイス20の表面に補強フィルム10が貼設された状態を示す断面図である。

[0018] 粘着剤層2の表面からセパレータ5を剥離除去し、粘着剤層2の露出面を被着体としてのデバイス20の表面に貼り合わせることにより、デバイス20の表面に補強フィルム10が貼設される。この状態では、粘着剤層2は光硬化前であり、デバイス20上に補強フィルム10（粘着剤層2）が仮着された状態である。粘着剤層2を光硬化することにより、デバイス20と粘着剤層2との界面での接着力が上昇し、デバイス20と補強フィルム10とが固着される。

[0019] 「固着」とは積層された2つの層が強固に接着しており、両者の界面での剥離が不可能または困難な状態である。「仮着」とは、積層された2つの層間の接着力が小さく、両者の界面で容易に剥離できる状態である。

[0020] 図2に示す補強フィルムでは、フィルム基材1と粘着剤層2とが固着しており、セパレータ5は粘着剤層2に仮着されている。フィルム基材1とセパレータ5を剥離すると、粘着剤層2とセパレータ5との界面で剥離が生じ、フィルム基材1上に粘着剤層2が固着した状態が維持される。剥離後のセパレータ5上には粘着剤は残存しない。

[0021] 図3に示す補強フィルム10が貼設されたデバイスは、粘着剤層2の光硬化前においては、デバイス20と粘着剤層2とが仮着状態である。フィルム基材1とデバイス20を剥離すると、粘着剤層2とデバイス20との界面で剥離が生じ、フィルム基材1上に粘着剤層2が固着した状態が維持される。デバイス20上には粘着剤が残存しないため、リワークが容易である。粘着剤層2を光硬化後は、粘着剤層2とデバイス20との接着力が上昇するため、デバイス20からフィルム基材1を剥離することは困難であり、両者を剥離すると粘着剤層2の凝集破壊が生じる場合がある。

[0022] [フィルム基材]

フィルム基材1としては、プラスチックフィルムが用いられる。フィルム基材1と粘着剤層2とを固着するために、フィルム基材1の粘着剤層2付設面は離型処理が施されていないことが好ましい。

[0023] フィルム基材の厚みは、例えば4～500μm程度である。剛性付与や衝撃緩和等によりデバイスを補強する観点から、フィルム基材1の厚みは12μm以上が好ましく、30μm以上がより好ましく、45μm以上がさらに好ましい。補強フィルムに可撓性を持たせハンドリング性を高める観点から、フィルム基材1の厚みは300μm以下が好ましく、200μm以下がより好ましい。機械強度と可撓性とを両立する観点から、フィルム基材1の圧縮強さは、100～3000kg/cm²が好ましく、200～2900kg/cm²がより好ましく、300～2800kg/cm²がさらに好ましく、400～2700kg/cm²が特に好ましい。

[0024] フィルム基材1を構成するプラスチック材料としては、ポリエステル系樹脂、ポリオレフィン系樹脂、環状ポリオレフィン系樹脂、ポリアミド系樹脂

、ポリイミド系樹脂、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルスルホン等が挙げられる。ディスプレイ等の光学デバイス用の補強フィルムにおいては、フィルム基材1は透明フィルムであることが好ましい。また、フィルム基材1側から活性光線を照射して粘着剤層2の光硬化を行う場合は、フィルム基材1は、粘着剤層2の硬化に用いられる活性光線に対する透明性を有することが好ましい。機械強度と透明性とを兼ね備えることから、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート等のポリエステル系樹脂が好適に用いられる。被着体側から活性光線を照射する場合は、被着体が活性光線に対する透明性を有していればよく、フィルム基材1は活性光線に対して透明でなくてもよい。

[0025] フィルム基材1の表面には、易接着層、易滑層、離型層、帯電防止層、ハードコート層、反射防止層等の機能性コーティングが設けられていてよい。なお、前述のように、フィルム基材1と粘着剤層2とを固着するために、フィルム基材1の粘着剤層2付設面には離型層が設けられていないことが好ましい。

[0026] [粘着剤層]

フィルム基材1上に固着積層される粘着剤層2は、ベースポリマー、光硬化剤および光重合開始剤を含む光硬化性組成物からなる。粘着剤層2は、光硬化前はデバイスやデバイス部品等の被着体との接着力が小さいため、リワークが容易である。粘着剤層2は、光硬化により被着体との接着力が向上するため、デバイスの使用時においても補強フィルムがデバイス表面から剥離し難く、接着信頼性に優れる。

[0027] 光硬化性の粘着剤は一般的な保管環境では硬化はほとんど進行せず、紫外線等の活性光線の照射により硬化する。そのため、本発明の補強フィルムは、粘着剤層2の硬化のタイミングを任意に設定可能であり、工程のリードタイム等に柔軟に対応できるとの利点を有する。

[0028] <濡れ速度>

補強フィルムのガラスに対する濡れ速度は0.3 cm²/秒以上が好ましく

、0.35 cm²/秒以上がより好ましく、0.4 cm²/秒以上がさらに好ましく、0.45 cm²/秒以上が特に好ましい。濡れ速度は、幅25 mm×長さ150 mmの試験片の長さ方向の一端の粘着剤層をガラス板に接触させた状態から、試験片の粘着剤層がガラス板と接触して長さ方向の一端から他端に向けて長さ100 mmの範囲で濡れ拡げられるまでの濡れ広がり時間と、測定面積：2.5 cm×10 cm=25 cm²から、下記の式に基づいて算出される値である。

$$\text{濡れ速度 (cm}^2/\text{秒}) = \frac{\text{測定面積 (25 cm}^2)}{\text{濡れ広がり時間 (秒)}}$$

濡れ速度が大きいほど、被着体への補強フィルムの貼り合わせ時に、粘着剤が濡れ広がり易く、貼り合わせ界面への気泡の混入や異物の巻き込みが抑制されるため、貼り合わせ作業性が向上する。被着体への貼り合わせ時の作業性を考慮すると、濡れ速度は大きいほど好ましい。一方、濡れ速度が大きい粘着剤層（光硬化性組成物）は、光硬化剤のブリードアウト等に起因する外観不良が生じやすい。また、濡れ速度が大きい粘着剤層は表面が液状に近く、ガラス等の被着体との初期接着性が乏しい場合があり、組成物の相溶性が低いために、粘着剤層の光硬化を行っても接着性が十分に上昇しない場合がある。そのため、補強フィルムのガラスに対する濡れ速度は、4 cm²/秒以下が好ましく、3.5 cm²/秒以下がより好ましく、3 cm²/秒以下がさらに好ましく、2.5 cm²/秒以下が特に好ましい。

[0029] <接着強度>

リワークの際に、被着体からの剥離を容易とし、補強フィルムを剥離後の被着体への糊残りを防止する観点から、粘着剤層2を光硬化する前の補強フィルムのガラス板に対する接着力は、1 N/25 mm未満が好ましく、0.8 N/25 mm以下がより好ましく、0.7 N/25 mm以下がさらに好ましく、0.6 N/25 mm以下が特に好ましい。保管やハンドリングの際の被着体からの補強シートの剥離を防止する観点から、補強フィルムのガラス板に対する接着力は、0.03 N/25 mm以上が好ましく、0.05 N/

25 mm以上がより好ましく、0.1 N/25 mm以上がさらに好ましく、0.2 N/25 mm以上が特に好ましい。

[0030] デバイスの実用時の接着信頼性の観点から、粘着剤層2を光硬化後の補強フィルムのガラス板に対する接着力は、1 N/25 mm以上が好ましく、2 N/25 mm以上がより好ましく、3 N/25 mm以上がさらに好ましい。粘着剤層2を光硬化後の接着力は、粘着剤層2を光硬化前の接着力の2倍以上が好ましく、3倍以上がより好ましく、5倍以上がさらに好ましい。

[0031] <厚み>

粘着剤層2の厚みは、例えば、1~300 μm程度である。粘着剤層2の厚みが大きいほど被着体との接着性が向上する傾向がある。一方、粘着剤層2の厚みが過度に大きい場合は、光硬化前の流動性が高く、ハンドリングが困難となる場合がある。そのため、粘着剤層2の厚みは5~100 μmが好ましく、8~50 μmがより好ましく、10~40 μmがさらに好ましく、13~30 μmが特に好ましい。

[0032] <透明性>

補強フィルムが、ディスプレイ等の光学デバイスに用いられる場合、粘着剤層2の全光線透過率は80%以上が好ましく、85%以上がより好ましく、90%以上がさらに好ましい。粘着剤層2のヘイズは2%以下が好ましく、1%以下がより好ましく、0.7%以下がさらに好ましく、0.5%以下が特に好ましい。

[0033] <組成>

粘着剤層2はベースポリマー、光硬化剤および光重合開始剤を含む光硬化性組成物である。光硬化前の粘着剤層2の接着性や濡れ速度を適切な範囲とする観点から、ベースポリマーには架橋構造が導入されていることが好ましい。

[0034] (ベースポリマー)

ベースポリマーは粘着剤組成物の主構成成分である。ベースポリマーの種類は特に限定されず、アクリル系ポリマー、シリコーン系ポリマー、ウレタ

ン系ポリマー、ゴム系ポリマー等を適宜に選択すればよい。特に、光学的透明性および接着性に優れ、かつ接着性の制御が容易であることから、粘着剤組成物は、ベースポリマーとしてアクリル系ポリマーを含有するものが好ましく、粘着剤組成物の50重量%以上がアクリル系ポリマーであることが好みしい。

[0035] アクリル系ポリマーとしては、主たるモノマー成分として(メタ)アクリル酸アルキルエステルを含むものが好適に用いられる。なお、本明細書において、「(メタ)アクリル」とは、アクリルおよび／またはメタクリルを意味する。

[0036] (メタ)アクリル酸アルキルエステルとしては、アルキル基の炭素数が1～20である(メタ)アクリル酸アルキルエステルが好適に用いられる。(メタ)アクリル酸アルキルエステルのアルキル基は直鎖でもよく分枝を有していてもよい。(メタ)アクリル酸アルキルエステルの例としては、(メタ)アクリル酸メチル、(メタ)アクリル酸エチル、(メタ)アクリル酸ブチル、(メタ)アクリル酸イソブチル、(メタ)アクリル酸s-ブチル、(メタ)アクリル酸t-ブチル、(メタ)アクリル酸ペンチル、(メタ)アクリル酸イソペンチル、(メタ)アクリル酸ネオペンチル、(メタ)アクリル酸ヘキシル、(メタ)アクリル酸ヘプチル、(メタ)アクリル酸2-エチルヘキシル、(メタ)アクリル酸オクチル、(メタ)アクリル酸イソオクチル、(メタ)アクリル酸ノニル、(メタ)アクリル酸イソノニル、(メタ)アクリル酸デシル、(メタ)アクリル酸イソデシル、(メタ)アクリル酸ウンデシル、(メタ)アクリル酸ドデシル、(メタ)アクリル酸イソトリデシル、(メタ)アクリル酸テトラデシル、(メタ)アクリル酸イソテトラデシル、(メタ)アクリル酸ペンタデシル、(メタ)アクリル酸セチル、(メタ)アクリル酸ヘプタデシル、(メタ)アクリル酸オクタデシル、(メタ)アクリル酸イソオクタデシル、(メタ)アクリル酸ノナデシル、(メタ)アクリル酸アラルキル等が挙げられる。

[0037] (メタ)アクリル酸アルキルエステルの含有量は、ベースポリマーを構成

するモノマー成分全量に対して40重量%以上が好ましく、50重量%以上がより好ましく、55重量%以上がさらに好ましい。

[0038] アクリル系ベースポリマーは、共重合成分として、架橋可能な官能基を有するモノマー成分を含有することが好ましい。架橋可能な官能基を有するモノマーとしてはヒドロキシ基含有モノマーや、カルボキシ基含有モノマーが挙げられる。アクリル系ベースポリマーは、モノマー成分として、ヒドロキシ基含有モノマーおよびカルボキシ基含有モノマーの両方を有していてもよく、いずれか一方のみを有していてもよい。ベースポリマーのヒドロキシ基やカルボキシ基は、後述の架橋剤との反応点となる。例えば、イソシアネート系架橋剤を用いる場合は、ベースポリマーの共重合成分として、ヒドロキシ基含有モノマーを含有することが好ましい。エポキシ系架橋剤を用いる場合は、ベースポリマーの共重合成分として、カルボキシ基含有モノマーを含有することが好ましい。ベースポリマーに架橋構造が導入されることにより、凝集力が向上し、粘着剤層2の接着力が向上するとともに、リワークの際の被着体への糊残りが低減する傾向がある。

[0039] ヒドロキシ基含有モノマーとしては、(メタ)アクリル酸2-ヒドロキシエチル、(メタ)アクリル酸2-ヒドロキシプロピル、(メタ)アクリル酸4-ヒドロキシブチル、(メタ)アクリル酸6-ヒドロキシヘキシル、(メタ)アクリル酸8-ヒドロキシオクチル、(メタ)アクリル酸10-ヒドロキシデシル、(メタ)アクリル酸12-ヒドロキシラウリル、(メタ)アクリル酸4-(ヒドロキシメチル)シクロヘキシリルメチル等が挙げられる。カルボキシ基含有モノマーとしては、(メタ)アクリル酸、(メタ)アクリル酸2-カルボキシエチル、(メタ)アクリル酸カルボキシペンチル、イタコン酸、マレイン酸、フマル酸、クロトン酸等が挙げられる。

[0040] アクリル系ベースポリマーは、構成モノマー成分全量に対するヒドロキシ基含有モノマーとカルボキシ基含有モノマーの合計量が、1～30重量%であることが好ましく、3～25重量%であることがより好ましく、5～20重量%であることがさらに好ましい。

- [0041] アクリル系ベースポリマーは、構成モノマー成分として、N-ビニルピロリドン、メチルビニルピロリドン、ビニルピリジン、ビニルピペリドン、ビニルピリミジン、ビニルピペラジン、ビニルピラジン、ビニルピロール、ビニルイミダゾール、ビニルオキサゾール、ビニルモルホリン、N-アクリロイルモルホリン、N-ビニルカルボン酸アミド類、N-ビニルカプロラクタム等の窒素含有モノマーを含有していてもよい。
- [0042] アクリル系ベースポリマーは、上記以外のモノマー成分を含んでいてもよい。アクリル系ベースポリマーは、モノマー成分として、例えば、シアノ基含有モノマー、ビニルエステルモノマー、芳香族ビニルモノマー、エポキシ基含有モノマー、ビニルエーテルモノマー、スルホ基含有モノマー、リン酸基含有モノマー、酸無水物基含有モノマー等を含んでいてもよい。
- [0043] アクリル系ベースポリマーの重量平均分子量は、10万～500万が好ましく、30万～300万がより好ましく、50万～200万がさらに好ましい。なお、ベースポリマーに架橋構造が導入される場合、ベースポリマーの分子量とは、架橋構造導入前の分子量を指す。
- [0044] ベースポリマーの構成成分における、高T_gモノマー成分の含有量が多いほど、粘着剤が硬くなる傾向がある。なお、高T_gモノマーとは、ホモポリマーのガラス転移温度（T_g）が高いモノマーを意味する。ホモポリマーのT_gが40℃以上のモノマーとしては、ジシクロ펜타닐メタクリレート（T_g：175℃）、ジシクロ펜타닐アクリレート（T_g：120℃）、イソボルニルメタクリレート（T_g：173℃）、イソボルニルアクリレート（T_g：97℃）、メチルメタクリレート（T_g：105℃）、1-アダマンチルメタクリレート（T_g：250℃）、1-アダマンチルアクリレート（T_g：153℃）等の（メタ）アクリル系モノマー；アクリロイルモルホリン（T_g：145℃）、ジメチルアクリルアミド（T_g：119℃）、ジエチルアクリルアミド（T_g：81℃）、ジメチルアミノプロピルアクリルアミド（T_g：134℃）、イソプロピルアクリルアミド（T_g：134℃）、ヒドロキシエチルアクリルアミド（T_g：98℃）等のアミド基含

有ビニルモノマー；メタクリル酸（ T_g ：228°C）、アクリル酸（ T_g ：106°C）等の酸モノマー；N-ビニルピロリドン（ T_g ：54°C）等が挙げられる。

[0045] アクリル系ベースポリマーは、ホモポリマーの T_g が40°C以上のモノマーの含有量が、構成モノマー成分全量に対して1～50重量%であることが好ましく、3～40重量%であることがより好ましい。適度な硬さを有しリワーク性に優れる粘着剤層を形成するためには、ベースポリマーのモノマー成分として、ホモポリマーの T_g が80°C以上のモノマー成分を含むことが好ましく、ホモポリマーの T_g が100°C以上のモノマー成分を含むことがより好ましい。アクリル系ベースポリマーは、構成モノマー成分全量に対するホモポリマーの T_g が100°C以上のモノマーの含有量が、0.1重量%以上であることが好ましく、0.5重量%以上であることがより好ましく、1重量%以上であることがさらに好ましく、3重量%以上であることが特に好ましい。

[0046] 上記モノマー成分を、溶液重合、乳化重合、塊状重合等の各種公知の方法により重合することによりベースポリマーとしてのアクリル系ポリマーが得られる。粘着剤の接着力、保持力等の特性のバランスや、コスト等の観点から、溶液重合法が好ましい。溶液重合の溶媒としては、酢酸エチル、トルエン等が用いられる。溶液濃度は通常20～80重量%程度である。溶液重合に用いられる重合開始剤としては、アゾ系、過酸化物系等の各種公知のものを使用できる。分子量を調整するために、連鎖移動剤が用いられていてよい。反応温度は通常50～80°C程度、反応時間は通常1～8時間程度である。

[0047] (架橋剤)

粘着剤に適度の凝集力を持たせる観点から、ベースポリマーには架橋構造が導入されることが好ましい。例えば、ベースポリマーを重合後の溶液に架橋剤を添加し、必要に応じて加熱を行うことにより、架橋構造が導入される。架橋剤としては、イソシアネート系架橋剤、エポキシ系架橋剤、オキサゾ

リン系架橋剤、アジリジン系架橋剤、カルボジイミド系架橋剤、金属キレート系架橋剤等が挙げられる。これらの架橋剤は、ベースポリマー中に導入されたヒドロキシ基やカルボキシ基等の官能基と反応して架橋構造を形成する。ベースポリマーのヒドロキシ基やカルボキシ基との反応性が高く、架橋構造の導入が容易であることから、イソシアネート系架橋剤およびエポキシ系架橋剤が好ましい。

[0048] イソシアネート系架橋剤としては、1分子中に2個以上のイソシアネート基を有するポリイソシアネートが用いられる。イソシアネート系架橋剤としては、例えば、ブチレンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート等の低級脂肪族ポリイソシアネート類；シクロペンチレンジイソシアネート、シクロヘキシレンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート等の脂環族イソシアネート類；2, 4-トリレンジイソシアネート、4, 4'-ジフェニルメタンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート等の芳香族イソシアネート類；トリメチロールプロパン／トリレンジイソシアネート3量体付加物（例えば、東ソー製「コロネートL」）、トリメチロールプロパン／ヘキサメチレンジイソシアネート3量体付加物（例えば、東ソー製「コロネートHL」）、キシリレンジイソシアネートのトリメチロールプロパン付加物（例えば、三井化学製「タケネートD110N」、ヘキサメチレンジイソシアネートのイソシアヌレート体（例えば、東ソー製「コロネートHX」）等のイソシアネート付加物等が挙げられる。

[0049] エポキシ系架橋剤としては、1分子中に2個以上のエポキシ基を有する多官能エポキシ化合物が用いられる。エポキシ系架橋剤のエポキシ基はグリシジル基であってもよい。エポキシ系架橋剤としては、例えば、N, N, N', N' - テトラグリシジル-m-キシレンジアミン、ジグリシジルアニリン、1, 3-ビス(N, N-ジグリシジルアミノメチル)シクロヘキサン、1, 6-ヘキサンジオールジグリシジルエーテル、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、エチレングリコールジグリシジルエーテル、プロピレングリコールジグリシジルエーテル、ポリエチレングリコールジグリシジル

エーテル、ポリプロピレングリコールジグリシジルエーテル、ソルビトールポリグリシジルエーテル、グリセロールポリグリシジルエーテル、ペンタエリスリトールポリグリシジルエーテル、ポリグリセロールポリグリシジルエーテル、ソルビタンポリグリシジルエーテル、トリメチロールプロパンポリグリシジルエーテル、アジピン酸ジグリシジルエステル、○-フタル酸ジグリシジルエステル、トリグリシジルートリス（2-ヒドロキシエチル）イソシアヌレート、レゾルシンジグリシジルエーテル、ビスフェノール-S-ジグリシジルエーテル等が挙げられる。エポキシ系架橋剤として、ナガセケムテックス製の「デナコール」、三菱ガス化学製の「テトラッドX」「テトラッドC」等の市販品を用いてもよい。

- [0050] 架橋剤の使用量は、ベースポリマーの組成や分子量等に応じて適宜に調整すればよい。架橋剤の使用量は、ベースポリマー100重量部に対して、0.01～10重量部程度であり、好ましくは0.1～7重量部、より好ましくは0.2～6重量、さらに好ましくは0.3～5重量部である。また、ベースポリマー100重量部に対する架橋剤の使用量（重量部）を架橋剤の官能基当量（g／eq）で割った値は、0.00015～0.11が好ましく、0.001～0.077がより好ましく、0.003～0.055がさらに好ましく、0.0045～0.044が特に好ましい。永久接着を目的とした一般的なアクリル系の光学用透明粘着剤よりも架橋剤の使用量を大きくして粘着剤に適度な硬さを持たせることにより、リワーク時の被着体への糊残りが低減し、リワーク性が向上する傾向がある。
- [0051] 架橋構造の形成を促進するために架橋触媒を用いてもよい。例えば、イソシアネート系架橋剤の架橋触媒としては、テトラン-ブチルチタネート、テトライソプロピルチタネート、ナーセム第二鉄、ブチルスズオキシド、ジオクチルスズジラウレート、ジブチルスズジラウレート等の金属系架橋触媒（特にスズ系架橋触媒）等が挙げられる。架橋触媒の使用量は、一般には、ベースポリマー100重量部に対して0.05重量部以下である。
- [0052] (光硬化剤)

粘着剤層2を構成する粘着剤組成物は、ベースポリマーに加えて光硬化剤を含有する。光硬化性の粘着剤組成物からなる粘着剤層2は、被着体との貼り合わせ後に光硬化を行うと、被着体との接着力が向上する。

[0053] 光硬化剤としては、1分子中に2以上の重合性官能基を有する光硬化性モノマー、または光硬化性オリゴマーが用いられる。光硬化剤は、重合性官能基として、ビニル基や(メタ)アクリロイル基等のエチレン性不飽和結合を有する化合物が好ましい。また、光硬化剤は、ベースポリマーとの相溶性を示す化合物が好ましい。ベースポリマーとの適度な相溶性を示すことから、光硬化剤は常温で液体であるものが好ましい。光硬化剤がベースポリマーと適度に相溶し、組成物中で均一に分散することにより、濡れ速度を適切な範囲とすることができます。

[0054] ベースポリマーと光硬化剤との相溶性は、主に、化合物の構造の影響を受ける。化合物の構造と相溶性は、例えばハンセン溶解度パラメータにより評価可能であり、ベースポリマーと光硬化剤の溶解度パラメータの差が小さいほど相溶性が高くなる傾向がある。

[0055] アクリル系ベースポリマーとの相溶性が高いことから、光硬化剤として多官能(メタ)アクリレートを用いることが好ましい。多官能(メタ)アクリレートとしては、ポリエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ポリプロピレングリコールジ(メタ)アクリレート、ポリテトラメチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ビスフェノールAエチレンオキサイド変性ジ(メタ)アクリレート、ビスフェノールAプロピレンオキサイド変性ジ(メタ)アクリレート、アルカンジオールジ(メタ)アクリレート、トリシクロデカンジメタノールジ(メタ)アクリレート、エトキシ化イソシアヌル酸トリ(メタ)アクリレート、ペンタエリストールトリ(メタ)アクリレート、ペンタエリストールジ(メタ)アクリレート、トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレート、ジトリメチロールプロパンテトラ(メタ)アクリレート、エトキシ化ペンタエリストールテトラ(メタ)アクリレート、ペンタエリストールテトラ(メタ)アクリレート、ジペンタエリストールポリ(メタ)

) アクリレート、ジペンタエリストールヘキサ（メタ）アクリレート、ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、グリセリンジ（メタ）アクリレート、ウレタン（メタ）アクリレート、エポキシ（メタ）アクリレート、ブタジエン（メタ）アクリレート、イソプレン（メタ）アクリレート等が挙げられる。

[0056] ベースポリマーと光硬化剤との相溶性は、化合物の分子量にも左右される。光硬化性化合物の分子量が小さいほど、ベースポリマーとの相溶性が高くなる傾向がある。ベースポリマーとの相溶性の観点から、光硬化剤の分子量は1500以下が好ましく、1000以下がより好ましい。

[0057] 光硬化剤の種類や含有量は、光硬化後の接着力に影響を与える。官能基当量が小さく（すなわち、単位分子量あたりの官能基数が大きく）、光硬化剤の含有量が大きいほど、光硬化後の接着力が大きくなる傾向がある。光硬化後の接着力を高める観点から、光硬化剤の官能基当量（g／eq）は500以下が好ましく、450以下がより好ましい。一方、光架橋密度が過度に上昇すると、粘着剤の粘性が低下し接着力が低下する場合がある。そのため、光硬化剤の官能基当量は100以上が好ましく、130以上がより好ましく、150以上がさらに好ましい。

[0058] アクリル系ベースポリマーと多官能アクリレート光硬化剤との組み合わせにおいては、光硬化剤の官能基当量が小さい場合は、ベースポリマーと光硬化剤の相互作用が強く、光硬化前の粘着剤の接着力（初期接着力）が上昇する傾向がある。本発明の用途においては、初期接着力の過度の上昇がリワーク性の低下につながる場合がある。光硬化前の粘着剤層2と被着体との接着力を適切な範囲に保持する観点からも、光硬化剤の官能基当量は上記の範囲内であることが好ましい。

[0059] 粘着剤組成物における光硬化剤の含有量は、ベースポリマー100重量部に対して、10～50重量部が好ましく、13～40重量部がより好ましく、15～40重量部がさらに好ましい。光硬化性化合物が、未硬化のモノマーまたはオリゴマーとして粘着剤組成物に含まれることにより、光硬化性の

粘着剤層2が得られる。光硬化剤を未硬化の状態で組成物中に含めるために、ベースポリマーを重合後のポリマー溶液に光硬化剤を添加することが好ましい。

[0060] 粘着剤層のベースポリマーと光硬化剤とが完全相溶系ではない場合は、粘着剤層の表面近傍（被着体との接着界面）に液状の光硬化剤が局在し、弱い境界層（Weak Boundary Layer；WBL）が形成されやすい。光硬化剤が局在化したWBLが形成されると、粘着剤層の表面は液状の特性が強くなるため、濡れ速度が大きくなり、被着体への貼り合わせ作業性が向上する傾向がある。

[0061] ベースポリマーが高度に架橋されゲル分率が高い粘着剤は、一般に弾性挙動が支配的であり、被着体に対する濡れ性が小さい傾向がある。一方、WBLが形成されると、粘着剤層のバルクの特性を保持したまま、表面（接着界面）の特性が変化する。すなわち、WBLが形成されると、バルク特性としての粘着剤の「硬さ」を保持したまま、表面の粘性が高められるため、貼り合わせの際の濡れ速度を向上しつつ、リワークの際には被着体との剥離が容易となる傾向がある。

[0062] ベースポリマーと光硬化剤の相溶性が過度に低い場合は、光硬化剤が粘着剤層の表面にブリードアウトしやすく、粘着剤層の表面に液状特性の強いWBLが形成され、濡れ速度が大幅に上昇する。そのため、貼り合わせの作業性は向上するが、ブリードアウトした光硬化剤が、外観不良や被着体の汚染の原因となる場合がある。また、光硬化剤がブリードアウトして液状のWBLが形成されると、せん断保持が困難であるために初期接着力が不十分となる場合がある。光硬化剤とベースポリマーとの相溶性が低い場合は、粘着剤の光硬化を行ってもバルクとしての接着特性が上昇し難く、補強フィルムの接着信頼性に劣る場合がある。

[0063] 上記のように、ベースポリマーと光硬化剤を含む光硬化性粘着剤では、濡れ速度は、貼り合わせ作業性の指標であるとともに、ベースポリマーと光硬化剤との相溶性の指標でもある。濡れ速度が小さい場合は貼り合わせ作業性

が低く、気泡の混入や異物の巻き込み等の貼り合わせ不良が生じやすい。一方、濡れ速度が過度に大きい場合は、光硬化剤のブリードアウトや、接着不良が生じやすい。そのため、前述のように、濡れ速度は $0.3 \sim 4 \text{ cm}^2/\text{秒}$ が好ましく、 $0.35 \sim 3.5 \text{ cm}^2/\text{秒}$ がより好ましく、 $0.4 \sim 3 \text{ cm}^2/\text{秒}$ がさらに好ましく、 $0.45 \sim 2.5 \text{ cm}^2/\text{秒}$ が特に好ましい。

[0064] 光硬化剤の含有量の調整や、ベースポリマーと光硬化剤との相溶性の制御等により、濡れ速度を上記範囲に調整できる。光硬化性粘着剤組成物中の光硬化剤の含有量が大きいほど、濡れ速度が大きくなる傾向がある。また、ベースポリマーと光硬化剤との相溶性が低いほど濡れ速度が大きくなる傾向がある。前述のように、ベースポリマーと光硬化剤との相溶性は、両者の化学構造の類似性（溶解度パラメータ）、光硬化剤の分子量および官能基当量等により調整できる。

[0065] 光硬化剤が類似の化学構造を有する場合は、官能基当量が大きい（重合性官能基間を連結する分子鎖の分子量が大きい）ほど、ベースポリマーとの相溶性が低く、濡れ速度が小さくなる傾向がある。例えば、光硬化剤がポリエチレングリコールジアクリレートである場合は、エチレンオキシド（EO）の繰り返し単位数が大きいほど、濡れ速度が大きくなる傾向がある。濡れ速度を上記範囲に調整する観点からは、EOの繰り返し単位数は $2 \sim 8$ 程度が好ましく、 $3 \sim 7$ 程度がより好ましい。

[0066] (光重合開始剤)

光重合開始剤は、活性光線の照射により活性種を発生し、光硬化剤の硬化反応を促進する。光重合開始剤としては、光硬化剤の種類等に応じて、光力チオン開始剤（光酸発生剤）、光ラジカル開始剤、光アニオン開始剤（光塩基発生剤）等が用いられる。光硬化剤として多官能アクリレート等のエチレン性不飽和化合物が用いられる場合は、重合開始剤として光ラジカル開始剤を用いることが好ましい。

[0067] 光ラジカル開始剤は、活性光線の照射によりラジカルを生成し、光ラジカル開始剤から光硬化剤へのラジカル移動により、光硬化剤のラジカル重合反

応を促進する。光ラジカル開始剤（光ラジカル発生剤）としては、波長450 nmよりも短波長の可視光または紫外線の照射によりラジカルを生成するものが好ましく、ヒドロキシケトン類、ベンジルジメチルケタール類、アミノケトン類、アシルフォスフィンオキサイド類、ベンゾフェノン類、トリクロロメチル基含有トリアジン誘導体等が挙げられる。光ラジカル開始剤は、単独で使用してもよく、2種以上を混合して使用してもよい。

[0068] 粘着剤層2に透明性が求められる場合、光重合開始剤は、400 nmよりも長波長の光（可視光）に対する感度が小さいことが好ましく、例えば、波長405 nmにおける吸光係数が 1×10^2 [$\text{mL g}^{-1} \text{cm}^{-1}$] 以下である光重合開始剤が好ましく用いられる。

[0069] 粘着剤層2における光重合開始剤の含有量は、ベースポリマー100重量部に対して、0.01～5重量部が好ましく、0.02～3重量部がより好ましく、0.03～2重量部がさらに好ましい。粘着剤層2における光重合開始剤の含有量は、光硬化剤100重量部に対して、0.02～10重量部が好ましく、0.05～7重量部がより好ましく、0.1～5重量部がさらに好ましい。

[0070] (その他の添加剤)

上記例示の各成分の他、粘着剤層中は、シランカップリング剤、粘着性付与剤、可塑剤、軟化剤、劣化防止剤、充填剤、着色剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤、界面活性剤、帯電防止剤等の添加剤を、本発明の特性を損なわない範囲で含有していてもよい。

[0071] [補強フィルムの作製]

フィルム基材1上に光硬化性の粘着剤層2を積層することにより、補強フィルムが得られる。粘着剤層2は、フィルム基材1上に直接形成してもよく、他の基材上でシート状に形成された粘着剤層をフィルム基材1上に転写してもよい。

[0072] 上記の粘着剤組成物を、ロールコート、キスロールコート、グラビアコート、リバースコート、ロールブラッシュ、スプレーコート、ディップロール

コート、バーコート、ナイフコート、エアーナイフコート、カーテンコート、リップコート、ダイコート等により、基材上に塗布し、必要に応じて溶媒を乾燥除去することにより粘着剤層が形成される。乾燥方法としては、適宜、適切な方法が採用され得る。加熱乾燥温度は、好ましくは40°C～200°C、より好ましくは50°C～180°C、さらに好ましくは70°C～170°Cである。乾燥時間は、好ましくは5秒～20分、より好ましくは5秒～15分、さらに好ましくは10秒～10分である。

[0073] 粘着剤組成物が架橋剤を含有する場合は、溶媒の乾燥と同時、または溶媒の乾燥後に、加熱またはエージングにより架橋を進行させることが好ましい。加熱温度や加熱時間は、使用する架橋剤の種類によって適宜設定され、通常、20°C～160°Cの範囲で、1分から7日程度の加熱により架橋が行われる。溶媒を乾燥除去するための加熱が、架橋のための加熱を兼ねていてもよい。

[0074] ベースポリマーに架橋構造が導入されることにより、ゲル分率が上昇する。ゲル分率が高いほど粘着剤が硬く、リワーク等による被着体からの補強フィルムの剥離時に、被着体への糊残りが抑制される傾向がある。粘着剤層2の光硬化前のゲル分率は、30%以上が好ましく、50%以上がより好ましく、60%以上がさらに好ましく、65%以上が特に好ましい。粘着剤層2の光硬化前のゲル分率は、70%以上または75%以上であってもよい。粘着剤層2の光硬化前のゲル分率が過度に大きいと、被着体に対する投錨力が低下し、初期接着力が不十分となる場合がある。そのため、粘着剤層2の光硬化前のゲル分率は、95%以下が好ましく、90%以下がより好ましく、85%以下がさらに好ましく、80%以下が特に好ましい。ゲル分率は、酢酸エチル等の溶媒に対する不溶分として求めることができ、具体的には、粘着剤層を酢酸エチル中に23°Cで7日間浸漬した後の不溶成分の、浸漬前の試料に対する重量分率（単位：重量%）として求められる。一般に、ポリマーのゲル分率は架橋度に等しく、ポリマー中の架橋された部分が多いほど、ゲル分率が大きくなる。

[0075] 架橋剤によりポリマーに架橋構造を導入後も、光硬化剤は未反応の状態を維持している。そのため、ベースポリマーと光硬化剤とを含む光硬化性の粘着剤層2が形成される。フィルム基材1上に粘着剤層2を形成する場合は、粘着剤層2の保護等を目的として、粘着剤層2上にセパレータ5を付設することが好ましい。粘着剤層2上にセパレータ5を付設後に架橋を行ってもよい。

[0076] 他の基材上に粘着剤層2を形成する場合は、溶媒を乾燥後に、フィルム基材1上に粘着剤層2を転写することにより補強フィルムが得られる。粘着剤層の形成に用いた基材を、そのままセパレータ5としてもよい。

[0077] セパレータ5としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエチレンテレフタレート、ポリエステルフィルム等のプラスチックフィルムが好ましく用いられる。セパレータの厚みは、通常3～200μm、好ましくは10～100μm程度である。セパレータ5の粘着剤層2との接触面には、シリコーン系、フッ素系、長鎖アルキル系、もしくは脂肪酸アミド系等の離型剤、またはシリカ粉等による離型処理が施されていることが好ましい。セパレータ5の表面が離型処理されていることにより、フィルム基材1とセパレータ5を剥離した際に、粘着剤層2とセパレータ5との界面で剥離が生じ、フィルム基材1上に粘着剤層2が固着した状態が維持される。

[0078] [補強フィルムの使用]

補強フィルムは、デバイスまたはデバイス構成部品等の被着体に貼り合わせて用いられる。補強フィルムを貼り合わせることにより、被着体に適度な剛性が付与されるため、ハンドリング性向上や破損防止効果が期待される。本発明の補強フィルムは、永久接着を目的とした一般的な粘着シートに比べて濡れ速度が大きいため、被着体への補強フィルムの貼り合わせ時に、気泡や異物の巻き込みを抑制でき、貼り合わせの作業性に優れている。また、補強フィルムは適度な濡れ速度と初期接着力を有するため、保管やハンドリングの際の被着体からの剥離を抑制できる。

[0079] デバイスの製造工程において、仕掛け品に補強フィルムが貼り合わせられる

場合は、製品サイズに切斷される前の大判の仕掛品に補強フィルムを貼り合わせてもよい。ロールトゥーロールプロセスにより製造されるデバイスのマザーロールに、補強フィルムをロールトゥーロールで貼り合わせてもよい。

[0080] 補強フィルムが貼り合わせられる被着体は特に限定されず、各種の電子デバイス、光学デバイスおよびその構成部品等が挙げられる。デバイスの高度集積化、小型軽量化および薄型化に伴って、デバイスを構成する部材の厚みが小さくなる傾向がある。構成部材の薄型化により、積層界面での応力や等に起因する湾曲やカールが生じやすくなる。また、薄型化により自重による撓みが生じやすくなる。補強フィルムを貼り合わせることにより、被着体に剛性を付与できるため、応力や自重等による湾曲、カール、撓み等が抑制され、ハンドリング性が向上する。そのため、デバイスの製造工程で仕掛品に補強フィルムを貼り合わせることにより、自動化された装置による搬送や加工の際の不良や不具合を防止できる。

[0081] 自動搬送においては、搬送対象の仕掛品と、搬送アームやピン等との接触が不可避である。また、形状の調整や不要部分除去のために、仕掛品の切斷加工がおこなわれる場合がある。高度集積化、小型軽量化および薄型化されたデバイスでは、搬送装置等との接触や切斷加工の際に、局所的な応力の集中による破損が生じやすい。複数の部材が積層されたデバイスの製造工程においては、部材を順次積層するだけでなく、仕掛品から部材の一部や工程材等が剥離除去される場合がある。部材が薄型化されている場合は、剥離箇所およびその近傍に局所的に応力が集中して、破損や寸法変化が生じる場合がある。補強フィルム10は粘着剤層2による応力分散性を有しているため、搬送対象物および加工対象物に補強フィルム10が貼り合わせられることにより、適度な剛性が付与されるとともに、応力が緩和・分散され、クラック、割れ、剥がれ、寸法変化等の不具合を抑制できる。

[0082] 補強フィルム10は被着体20の全面に貼り合わせられてもよく、補強を必要とする部分にのみ選択的に貼り合わせられてもよい。また、被着体の全面に補強フィルムを貼り合わせ後、補強を必要としない箇所の補強フィルム

を切断し、被着体の表面から剥離除去してもよい。粘着剤層2の接着力上昇処理前であれば、補強フィルムは被着体表面に仮着された状態であるため、被着体20の表面から補強フィルム10を容易に剥離除去できる。

[0083] <光硬化前の粘着剤層の特性>

(接着力)

前述のように、被着体に対する適度の接着性を示し、かつリワークの際に被着体からの剥離が容易であり補強フィルムを剥離後の被着体への糊残りを防止する観点から、光硬化前の粘着剤層2のガラス板に対する接着力は、0.03 N/25 mm以上1 N/25 mm未満が好ましく、0.05～0.8 N/25 mmがより好ましく、0.1～0.7 N/25 mmがさらに好ましく、0.2～0.6 N/25 mmが特に好ましい。補強フィルムは、粘着剤層2を光硬化前の状態において、ポリイミドフィルムに対する接着力が上記範囲内であることが好ましい。フレキシブルディスプレイパネル、フレキシブルプリント配線板(FPC)、ディスプレイパネルと配線板とを一体化したデバイス等においては、可撓性の基板材料が用いられ、耐熱性や寸法安定性の観点から、一般的に、ポリイミドフィルムが用いられる。粘着剤層2が基板としてのポリイミドフィルムに対して上記の接着力を有する補強フィルムは、粘着剤層2の光硬化前にはポリイミド被着体からの剥離が容易であり、光硬化後は接着信頼性に優れる。

[0084] (貯蔵弾性率)

粘着剤層2は、光硬化前の25°Cにおけるせん断貯蔵弾性率G'が $1 \times 10^4 \sim 1.2 \times 10^5 \text{ Pa}$ であることが好ましい。せん断貯蔵弾性率(以下、単に「貯蔵弾性率」と記載する)は、JIS K 7244-1「プラスチック—動的機械特性の試験方法」に記載の方法に準拠して、周波数1 Hzの条件で、-50～150°Cの範囲で昇温速度5°C/分で測定した際の、所定温度における値を読み取ることにより求められる。

[0085] 粘着剤のように粘弹性を示す物質において、貯蔵弾性率G'は硬さの程度を表す指標として用いられる。粘着剤層の貯蔵弾性率は凝集力と高い相関を

有しており、粘着剤の凝集力が高いほど被着体への投錨力が大きくなる傾向がある。光硬化前の粘着剤層2の貯蔵弾性率が $1 \times 10^4\text{ Pa}$ 以上であれば、粘着剤が十分な硬さと凝集力を有するため、適度の濡れ速度を有し、かつ被着体から補強フィルムを剥離した際に被着体への糊残りが生じ難い。また、粘着剤層2の貯蔵弾性率が大きい場合は、補強フィルムの端面からの粘着剤のはみ出しを抑制できる。光硬化前の粘着剤層2の貯蔵弾性率が $1.2 \times 10^5\text{ Pa}$ 以下であれば、粘着剤層2と被着体との界面での剥離が容易であり、リワークを行った場合でも、粘着剤層の凝集破壊や被着体表面への糊残りが生じ難い。補強シートのリワーク性を高め、リワーク時の被着体への糊残りを抑制する観点から、粘着剤層2の光硬化前の 25°C における貯蔵弾性率G'は、 $3 \times 10^4 \sim 1 \times 10^5\text{ Pa}$ がより好ましく、 $4 \times 10^4 \sim 9.5 \times 10^4\text{ Pa}$ がさらに好ましい。

[0086] <粘着剤層の光硬化>

被着体20に補強フィルム10を貼り合わせ、粘着剤層2に活性光線を照射することにより、粘着剤層2を光硬化させる。活性光線としては、紫外線、可視光、赤外線、X線、 α 線、 β 線、および γ 線等が挙げられる。保管状態における粘着剤層の硬化を抑制可能であり、かつ硬化が容易であることから、活性光線としては紫外線が好ましい。活性光線の照射強度や照射時間は、粘着剤層の組成や厚み等に応じて適宜設定すればよい。粘着剤層2への活性光線の照射は、フィルム基材1側および被着体20側のいずれの面から実施してもよく、両方の面から活性光線の照射を行ってもよい。

[0087] <光硬化後の粘着剤層の特性>

(接着力)

前述のように、デバイスの実用時の接着信頼性の観点から、光硬化前の粘着剤層2のガラス板に対する接着力は、 $1\text{ N} / 25\text{ mm}$ 以上が好ましく、 $2\text{ N} / 25\text{ mm}$ 以上がより好ましく、 $3\text{ N} / 25\text{ mm}$ 以上がさらに好ましい。補強フィルムは、粘着剤層2を光硬化後の状態において、ポリイミドフィルムに対する接着力が上記範囲内であることが好ましい。光硬化後の粘着剤層

2と被着体との接着力は、光硬化前の粘着剤層2と被着体との接着力の2倍以上が好ましく、3倍以上がより好ましく、5倍以上がさらに好ましい。

[0088] 粘着剤層2は、光硬化後の25°Cにおける貯蔵弾性率G'_fが1.5×10⁵Pa以上であることが好ましい。光硬化後の粘着剤層2の貯蔵弾性率が1.5×10⁵Pa以上であれば、凝集力の増大に伴って被着体との接着力が向上し、高い接着信頼性が得られる。一方、貯蔵弾性率が過度に大きい場合は、粘着剤が濡れ拡がり難く被着体との接触面積が小さくなる。また、粘着剤の応力分散性が低下するため、剥離力が接着界面に伝播しやすく、被着体との接着力が低下する傾向がある。そのため、粘着剤層2の光硬化後の25°Cにおける貯蔵弾性率G'_fは2×10⁶Pa以下が好ましい。粘着剤層を光硬化後の補強シートの接着信頼性を高める観点から、G'_fは、1.8×10⁵～1.2×10⁶Paがより好ましく、2×10⁵～1×10⁶Paがさらに好ましい。

[0089] 粘着剤層2の光硬化前後の25°Cにおける貯蔵弾性率の比G'_f/G'_iは、2以上が好ましい。G'_fがG'_iの2倍以上であれば、光硬化によるG'の増加が大きく、光硬化前のリワーク性と光硬化後の接着信頼性とを両立できる。G'_f/G'_iは4以上がより好ましく、8以上がさらに好ましく、10以上が特に好ましい。G'_f/G'_iの上限は特に限定されないが、G'_f/G'_iが過度に大きい場合は、光硬化前のG'が小さいことによる初期接着不良、または光硬化後のG'が過度に大きいことによる接着信頼性の低下に繋がりやすい。そのため、G'_f/G'_iは、100以下が好ましく、40以下がより好ましく、30以下がさらに好ましく、25以下が特に好ましい。

[0090] 補強フィルム10を付設後の被着体20は、複数の積層部材の積層界面の親和性向上等を目的としたオートクレーブ処理や、回路部材接合のための熱圧着等の加熱処理が行われる場合がある。このような加熱処理が行われた際に、補強フィルムと被着体との間の粘着剤が、端面から流動しないことが好ましい。

[0091] 高温加熱時の粘着剤のはみ出しを抑制する観点から、光硬化後の粘着剤層

2の100°Cにおける貯蔵弾性率は、 $5 \times 10^4 \text{ Pa}$ 以上が好ましく、 $8 \times 10^4 \text{ Pa}$ 以上がより好ましく、 $1 \times 10^5 \text{ Pa}$ 以上がさらに好ましい。加熱時の粘着剤のはみ出し防止に加えて、加熱時の接着力低下を防止する観点から、光硬化後の粘着剤層2の100°Cにおける貯蔵弾性率は、50°Cにおける貯蔵弾性率の60%以上が好ましく、65%以上がより好ましく、70%以上がさらに好ましく、75%以上が特に好ましい。

[0092] 本発明の補強フィルムは、粘着剤層2が光硬化性であり、硬化のタイミングを任意に設定可能である。リワークや補強フィルムの加工等の処理は、被着体に補強フィルムを貼設後、粘着剤を光硬化するまでの間の任意のタイミングで実施可能であるため、デバイスの製造工程のリードタイムに柔軟に対応可能である。

[0093] 粘着剤層2の光硬化により、補強フィルム10は被着体20に強固に接着した状態となる。デバイスの落下、デバイス上への重量物の載置、デバイスへの飛来物の衝突等により、不意に外力が負荷された場合でも、補強フィルムが貼り合わせられていることにより、デバイスの破損を防止できる。また、粘着剤層が強固に接着しているため、長期使用においても補強フィルムが剥がれ難く、信頼性に優れている。

実施例

[0094] 以下に実施例および比較例を挙げてさらに説明するが、本発明は、これらの実施例に限定されるものではない。

[0095] [ベースポリマーの重合]

<ポリマーA>

温度計、攪拌機、還流冷却管および窒素ガス導入管を備えた反応容器に、モノマーとして、2-エチルヘキシリックアクリレート(2EHA)63重量部、N-ビニルピロリドン(NVP)15重量部、メチルメタクリレート(MMA)9重量部、およびヒドロキシエチルアクリレート(HEA)13重量部、重合開始剤としてアゾビスイソブチロニトリル0.2重量部、ならびに溶媒として酢酸エチル233重量部を投入し、窒素ガスを流し、攪拌しながら

ら約1時間窒素置換を行った。その後、60°Cに加熱し、7時間反応させて、アクリル系ポリマーAの溶液を得た。

[0096] <ポリマーB>

モノマーの仕込み量を、ブチルアクリレート(BA)95重量部、およびアクリル酸(AA)5重量部に変更した。それ以外はポリマーAと同様に重合を行いアクリル系ポリマーBの溶液を得た。

[0097] <ポリマーC>

ポリオールとして、ヒドロキシル基を3個有する数平均分子量10000のポリエーテルポリオール(旭硝子製「S3011」)85重量部、ヒドロキシル基を3個有するポリエーテルポリオール(三洋化成製「サンニックスGP3000」)13重量部、およびヒドロキシル基を3個有する数平均分子量1000のポリエーテルポリオール(三洋化成製「サンニックスGP1000」)2重量部、ポリイソシアネート化合物として、ヘキサメチレンジイソシアネートのイソシアヌレート体(東ソー製「コロネートHX」)18重量部、触媒として、鉄(!!!)アセチルアセトナート0.04重量部、ならびに希釀溶剤として酢酸エチル210重量部を配合し、常温で攪拌してウレタン系ポリマーCの溶液を得た。

[0098] [実施例1]

(粘着剤組成物の調製)

アクリル系ポリマーAの溶液300重量部(固体分100重量部)に、イソシアネート系架橋剤としてキシリレンジイソシアネートのトリメチロールプロパン付加物の75%酢酸エチル溶液(三井化学製「タケネートD110N」)3.3重量部(固体分2.5重量部)、架橋触媒として鉄(!!!)アセチルアセトナート0.005重量部、光硬化剤(多官能アクリルモノマー)として東亞合成製「アロニックスM-321」20重量部、および光重合開始剤として1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン(BASF製「イルガキュア184」)0.1重量部を添加して攪拌し、光硬化性のアクリル系粘着剤溶液を調製した。

[0099] (補強フィルムの作製)

表面処理がされていない厚み 7.5 μm のポリエチレンテレフタレートフィルム（東レ製「ルミラー S 10」）上に、上記の粘着剤組成物を、乾燥後の厚みが 2.5 μm となるように、ファウンテンロールを用いて塗布した。130°C で 1 分間乾燥して溶媒を除去後、粘着剤の塗布面に、セパレータ（表面がシリコーン離型処理された厚み 2.5 μm のポリエチレンテレフタレートフィルム）の離型処理面を貼り合わせた。その後、25°C の雰囲気で 4 日間のエージング処理を行い、架橋を進行させ、フィルム基材上に厚み 2.5 μm の光硬化性粘着シートが固着積層され、その上にセパレータが仮着された補強フィルムを得た。

[0100] [実施例 2～7 および比較例 1～4]

粘着剤組成物の調製において、光硬化剤の種類を表 1 に示すように変更したこと以外は、実施例 1 と同様にして補強フィルムを作製した。比較例 4 では、イソシアネート系架橋剤の添加量を変更し、光硬化剤を添加しなかった。

[0101] [実施例 8]

アクリル系ポリマー B の溶液 300 重量部（固体分 100 重量部）に、4 官能のエポキシ系架橋剤（三菱ガス化学製「テトラッド C」）0.5 重量部、多官能アクリルモノマーとして新中村化学工業製「NK エステル A-200」20 重量部、および光重合開始剤として BASF 製「イルガキュア 184」0.1 重量部を添加して光硬化性のアクリル系粘着剤溶液を調製した。この粘着剤溶液を用いて、実施例 1 と同様にして補強フィルムを得た。

[0102] [比較例 5]

表面処理がされていない厚み 7.5 μm のポリエチレンテレフタレートフィルム上に、ウレタン系ポリマー C の溶液を乾燥後の厚みが 2.5 μm となるように、ファウンテンロールを用いて塗布し、130°C で 1 分間乾燥して溶媒を除去後、セパレータの離型処理面を貼り合わせて補強フィルムを得た。

[0103] [評価]

実施例および比較例の補強フィルムの濡れ速度およびガラス板に対する接着力を下記の方法により評価した。下記の評価は、いずれもクラス 1000 のクリーンルーム（温度 23°C、湿度 50%RH）の環境下で行った。

[0104] <濡れ速度>

幅 25 mm × 長さ 150 mm に切り出した補強フィルムの表面からセパレータを剥離除去した試験片の長さ方向の一端の粘着剤層をガラス板（松浪硝子工業製「マイクロスライドガラス S」）に接触させた状態で、ガラス板と試験片の角度が 20～30° となるように、試験片の他端を手で保持した。試験片から手を離し、試験片の粘着剤層がガラス板と接触して長さ方向の一端から他端に濡れ広がる様子をビデオカメラで記録して、試験片が長さ方向に 100 mm の範囲（面積 25 cm²）に濡れ広がるまでの時間を求め、下記の式から濡れ速度を算出した。

$$\text{濡れ速度 (cm}^2/\text{秒}) = \text{測定面積 (25 cm}^2) / \text{濡れ広がり時間 (秒)}$$

[0105] <接着力>

幅 25 mm × 長さ 100 mm に切り出した補強フィルムの表面からセパレータを剥離除去した試験片を、ガラス板にハンドローラを用いて貼り合わせ、光硬化前の試験サンプルとした。試験サンプルの PET フィルム側から紫外線を照射して粘着剤層を光硬化したものを光硬化後の試験サンプルとした。これらの試験サンプルを用い、試験片をチャックで保持して、引張速度 300 mm/分で、補強フィルムの 180° ピールを行い、ピール強度を測定した。

[0106] 各補強シートの粘着剤の組成および評価結果を表 1 に示す。表 1 における架橋剤および光硬化剤の添加量は、ベースポリマー 100 重量部に対する添加量（重量部）である。表 1 における光硬化剤の詳細は下記の通りである。

[0107] APG 700：新中村化学工業製「NK エステル APG-700」、ポリプロピレングリコール #700 (n = 12) ジアクリレート；官能基当量 404 g/eq

A 200：新中村化学工業製「NKエステル A-200」、ポリエチレングリコール#200 (n=4) ジアクリレート；官能基当量154 g／eq

A 400：新中村化学工業製「NKエステル A-400」、ポリエチレングリコール#400 (n=9) ジアクリレート；官能基当量254 g／eq

A 600：新中村化学工業製「NKエステル A-600」、ポリエチレングリコール#600 (n=14) ジアクリレート；官能基当量354 g／eq

AM 130G：新中村化学工業製「NKエステル AM-130G」、メキシポリエチレングリコール#550 (n=13) モノアクリレート

M 321：東亞合成製「アロニックス M-321」、トリメチロールプロパンプロピレンオキサイド (n=2) 変性トリアクリレート；官能基当量187 g／eq

M 350：東亞合成製「アロニックス M-350」、トリメチロールプロパンエチレンオキシド (n=1) 変性トリアクリレート；官能基当量129 g／eq

M 360：東亞合成製「アロニックス M-360」、トリメチロールプロパンエチレンオキシド (n=2) 変性トリアクリレート；官能基当量159 g／eq

PTG 9A：日立化成製「ファンクリル FA-PTG 9A」、ポリテトラメチレングリコール (n=9) ジアクリレート；官能基当量387 g／eq

321A：日立化成製「ファンクリル FA-321A」、エチレンオキシド (n=10) 変性ビスフェノールAジアクリレート；官能基当量388 g／eq

[表1]

| ベース ポリマー | 粘着剤組成 | | | | 補強フィルム評価結果 | | | |
|-------------|-------|-------|-----|------------------------------|--------------|-------|-------|------|
| | 架橋剤 | 光硬化剤 | | 濡れ速度 (cm ² /秒) | 接着力 (N/25mm) | | | |
| | | 種類 | 添加量 | | 種類 | 添加量 | 光硬化前 | |
| 実施例1 | A | D110N | 2.5 | M321 | 20 | 0.50 | 0.52 | 1.04 |
| 実施例2 | A | D110N | 2.5 | M350 | 20 | 0.50 | 0.51 | 1.42 |
| 実施例3 | A | D110N | 2.5 | M360 | 20 | 0.42 | 0.30 | 6.68 |
| 実施例4 | A | D110N | 2.5 | A200 | 20 | 0.50 | 0.21 | 1.82 |
| 実施例5 | A | D110N | 2.5 | APG700 | 20 | 1.00 | 0.46 | 7.68 |
| 実施例6 | A | D110N | 2.5 | PTG9A | 20 | 0.83 | 0.38 | 3.88 |
| 実施例7 | A | D110N | 2.5 | 321A | 20 | 2.50 | 0.15 | 3.93 |
| 実施例8 | B | T/C | 0.5 | A200 | 30 | 2.08 | 0.18 | 4.42 |
| 比較例1 | A | D110N | 2.5 | AM130G | 20 | 5.00 | 0.01 | 0.10 |
| 比較例2 | A | D110N | 2.5 | A400 | 20 | 5.00 | 0.01 | 0.44 |
| 比較例3 | A | D110N | 2.5 | A600 | 20 | 5.00 | 0.01 | 0.82 |
| 比較例4 | A | D110N | 1.1 | - | - | 測定不可 | 11.08 | - |
| 比較例5 | C | - | - | - | - | 12.50 | 0.02 | - |

[0109] 比較例1～3の補強フィルムはガラス板に対する濡れ速度が大きく、被着体に対する高い濡れ性を示したが、粘着剤層の表面が白濁しており、光硬化剤のブリードアウトがみられた。また、これらの比較例では、光硬化前の接着力が不十分であり、光硬化後の接着力も不十分であった。ウレタン系粘着剤を用いた比較例5の補強フィルムは、比較例1～3よりもさらに高い濡れ速度を示したが、比較例1～3と同様、ガラス板に対する接着力が不十分であり、被着体への永久接着を目的とする補強フィルムとして使用できるものではなかった。

[0110] 光硬化剤を含まない粘着剤を用いた比較例4の補強フィルムは、ハンドドローラを用いてガラス板に圧着すると高い接着力を示したが、圧力をかけずにガラス板上に載置するのみでは粘着剤がガラス板の表面に濡れ広がらず、濡れ速度を測定できなかった。

[0111] 実施例1～8の補強フィルムは、ガラス板に対して適度の濡れ速度を示し、かつ光硬化前の接着強度が適切な範囲であり、接着性とリワーク性を兼ね備えていた。また、光硬化後は高い接着力を示し、デバイスに対する接着信

頼性に優れた補強フィルムとして適したものであった。

[0112] 実施例4、比較例2および比較例3では、いずれも、光硬化剤としてポリエチレングリコールジアクリレートを用いたが、実施例4では良好な特性を示したのに対して、比較例2および比較例3では、濡れ速度が過度に大きく、ガラス板との接着性が不十分であった。エチレンオキシドの繰り返し単位数の増加に伴って、アクリル系ベースポリマーと光硬化剤との相溶性が低下したことにより、比較例2および比較例3では、光硬化剤が表面にブリードアウトして、接着性が低下したと考えられる。

符号の説明

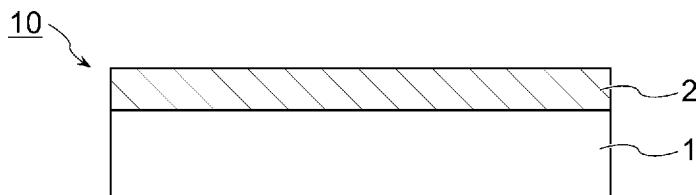
- [0113]
- | | |
|----|-----------|
| 1 | フィルム基材 |
| 2 | 粘着剤層 |
| 5 | セパレータ |
| 10 | 補強フィルム |
| 20 | デバイス（被着体） |

請求の範囲

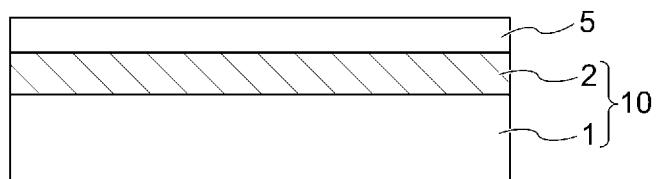
- [請求項1] フィルム基材と、前記フィルム基材の一主面上に固着積層された粘着剤層とを備え、
前記粘着剤層は、ベースポリマー、2以上の重合性官能基を有する光硬化剤および光重合開始剤を含む光硬化性組成物であり、
ガラス板に対する濡れ速度が0.3 cm²/秒～4 cm²/秒である、補強フィルム：
ここで、濡れ速度は、幅25mm×長さ150mmの試験片の長さ方向の一端の粘着剤層をガラス板に接触させた状態から、試験片の粘着剤層がガラス板と接触して長さ方向の一端から他端に向けて長さ100mmの範囲で濡れ拡げられるまでの濡れ広がり時間と、測定面積25cm²から、下記の式に基づいて算出される値である。
$$\text{濡れ速度 (cm}^2/\text{秒}) = \frac{\text{測定面積 (25 cm}^2)}{\text{濡れ広がり時間 (秒)}}$$
- [請求項2] 前記粘着剤層を光硬化する前のガラス板に対する接着力が0.03N/25mm以上、1N/25mm未満である、請求項1に記載の補強フィルム。
- [請求項3] 前記粘着剤層を光硬化した後のガラス板に対する接着力が1N/25mm以上である、請求項1または2に記載の補強フィルム。
- [請求項4] 前記ベースポリマーに架橋構造が導入されている、請求項1～3のいずれか1項に記載の補強フィルム。
- [請求項5] 前記光硬化性組成物は、前記ベースポリマーとしてアクリル系ポリマーを含有する、請求項1～4のいずれか1項に記載の補強フィルム。
。
- [請求項6] 前記光硬化性組成物は、前記ベースポリマー100重量部に対して、前記光硬化剤を10～50重量部含有する、請求項1～5のいずれか1項に記載の補強フィルム。
- [請求項7] 前記光硬化剤が多官能(メタ)アクリレートである、請求項1～6

のいずれか1項に記載の補強フィルム。

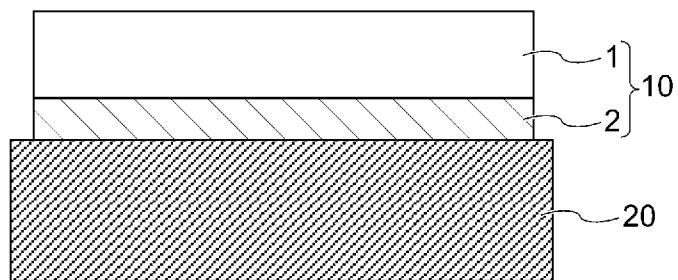
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/031726

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C09J7/38 (2018.01) i, C09J4/02 (2006.01) i, C09J133/00 (2006.01) i, C09J201/00 (2006.01) i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl. C09J1/00-201/10

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

| | |
|--|-----------|
| Published examined utility model applications of Japan | 1922-1996 |
| Published unexamined utility model applications of Japan | 1971-2019 |
| Registered utility model specifications of Japan | 1996-2019 |
| Published registered utility model applications of Japan | 1994-2019 |

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. |
|-----------|---|-----------------------|
| A | JP 2013-107998 A (NITTO DENKO CORPORATION) 06 June 2013, entire text & WO 2013/077234 A1 & CN 103946328 A & KR 10-2014-0101332 A | 1-7 |
| A | JP 2012-131847 A (TORAY ADVANCED FILM CO., LTD.) 12 July 2012, entire text (Family: none) | 1-7 |
| A | JP 2011-231182 A (NITTO DENKO CORPORATION) 17 November 2011, entire text (Family: none) | 1-7 |



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
21.08.2019

Date of mailing of the international search report
03.09.2019

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/031726

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
| A | WO 2015/163115 A1 (NITTO DENKO CORPORATION) 29 October 2015, entire text & US 2017/0043566 A1, entire text & JP 2016-135878 A & CN 105555895 A & KR 10-2016-0127839 A | 1-7 |
| A | JP 2013-018163 A (NITTO DENKO CORPORATION) 31 January 2013, entire text & US 2013/0011670 A1, entire text & EP 2543703 A1 & CN 102863922 A & KR 10-2013-0006365 A | 1-7 |
| A | JP 09-157603 A (NITTO DENKO CORPORATION) 17 June 1997, entire text (Family: none) | 1-7 |
| A | JP 2014-502291 A (LG CHEMICAL LTD.) 30 January 2014, entire text & US 2013/0224436 A1, entire text & WO 2012/064071 A2 & EP 2639275 A2 & KR 10-2012-0049151 A & CN 103298898 A | 1-7 |
| A | WO 2016/136436 A1 (ASAHI GLASS CO., LTD.) 01 September 2016, entire text & US 2017/0313039 A1, entire text & EP 3263668 A1 & KR 10-2017-0121153 A | 1-7 |

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C09J7/38(2018.01)i, C09J4/02(2006.01)i, C09J133/00(2006.01)i, C09J201/00(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. C09J1/00-201/10

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 | 1971-2019年 |
| 日本国実用新案登録公報 | 1996-2019年 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1994-2019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 |
|-----------------|---|----------------|
| A | JP 2013-107998 A (日東電工株式会社) 2013.06.06, 全文 & WO 2013/077234 A1 & CN 103946328 A & KR 10-2014-0101332 A | 1-7 |
| A | JP 2012-131847 A (東レフィルム加工株式会社) 2012.07.12, 全文 (ファミリーなし) | 1-7 |
| A | JP 2011-231182 A (日東電工株式会社) 2011.11.17, 全文 (ファミリーなし) | 1-7 |

※ 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 21. 08. 2019 | 国際調査報告の発送日 03. 09. 2019 |
| 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） 田澤 俊樹 電話番号 03-3581-1101 内線 3480 |

| 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 |
| A | WO 2015/163115 A1 (日東電工株式会社) 2015.10.29, 全文 & US 2017/0043566 A1, 全文 & JP 2016-135878 A & CN 105555895 A & KR 10-2016-0127839 A | 1-7 |
| A | JP 2013-018163 A (日東電工株式会社) 2013.01.31, 全文 & US 2013/0011670 A1, 全文 & EP 2543703 A1 & CN 102863922 A & KR 10-2013-0006365 A | 1-7 |
| A | JP 09-157603 A (日東電工株式会社) 1997.06.17, 全文 (ファミリーなし) | 1-7 |
| A | JP 2014-502291 A (エルジー・ケム・リミテッド) 2014.01.30, 全文 & US 2013/0224436 A1, 全文 & WO 2012/064071 A2 & EP 2639275 A2 & KR 10-2012-0049151 A & CN 103298898 A | 1-7 |
| A | WO 2016/136436 A1 (旭硝子株式会社) 2016.09.01, 全文 & US 2017/0313039 A1, 全文 & EP 3263668 A1 & KR 10-2017-0121153 A | 1-7 |