

(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
2019年7月4日(04.07.2019)



(10) 国際公開番号

WO 2019/130617 A1

(51) 国際特許分類:
B32B 38/10 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2018/016943

(22) 国際出願日: 2018年4月26日(26.04.2018)

(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 2017-253311 2017年12月28日(28.12.2017) JP

(71) 出願人: 日東電工株式会社 (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: 設楽 浩司 (SHITARA, Koji); 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内 Osaka (JP). 野呂 弘司 (NORO, Hiroshi); 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目

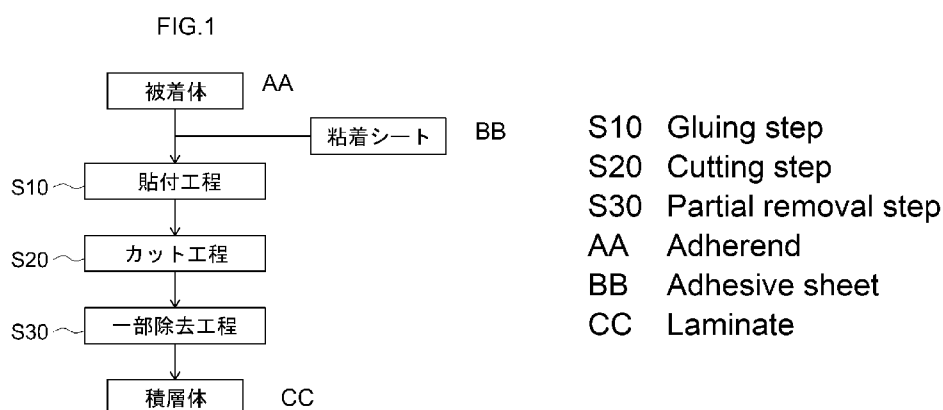
1番2号 日東電工株式会社内 Osaka (JP). 仲野 武史 (NAKANO, Takeshi); 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内 Osaka (JP). 林 圭治 (HAYASHI, Keiji); 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 大井 道子 (OI, Michiko); 〒4600002 愛知県名古屋市中区丸の内三丁目20番3号 BPRプレイス久屋大通 特許業務法人協働特許事務所 Aichi (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,

(54) Title: LAMINATE PRODUCTION METHOD

(54) 発明の名称: 積層体の製造方法



(57) Abstract: Provided is a method for producing a laminate which comprises an adherend and an adhesive piece partially covering the adherend and in which the adhesive strength of the adhesive piece to the adherend is at least 5 N/25 mm. The laminate production method involves, in order: a gluing step for gluing an adhesive sheet onto the adherend; a cutting step for cutting the adhesive sheet at the boundary between a first region that constitutes the adhesive piece and a second region that does not constitute the adhesive piece; and a partial removal step for peeling the second region off the adherend while leaving the first region on the adherend. The partial removal step is performed before the adhesive strength of the adhesive sheet with respect to the adherend exceeds 2 N/25 mm.

MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ,
NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT,
QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,
SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

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

添付公開書類：

- 一 国際調査報告（条約第21条(3)）

(57) 要約：被着体と該被着体を部分的に覆う粘着片とを含み、上記粘着片の上記被着体に対する粘着力が $5\text{ N}/25\text{ mm}$ 以上である積層体を製造する方法が提供される。その積層体製造方法は、上記被着体に粘着シートを貼り付ける貼付工程と、上記粘着シートのうち上記粘着片を構成する第一領域と上記粘着片を構成しない第二領域との境界に切断加工を施すカット工程と、上記第一領域を上記被着体上に残しつつ上記第二領域を上記被着体から剥離除去する一部除去工程と、をこの順で含む。ここで、上記一部除去工程は、上記粘着シートの上記被着体に対する粘着力が $2\text{ N}/25\text{ mm}$ を超える前に行われる。

明 細 書

発明の名称： 積層体の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、積層体の製造方法に関する。

本出願は、2017年12月28日に出願された日本国特許出願2017-253311に基づく優先権を主張しており、その出願の全内容は本明細書中に参照として組み入れられている。

背景技術

[0002] 被着体に一または二以上の粘着片を貼り付けることにより該被着体を上記粘着片で部分的に覆った積層体によると、上記粘着剤の外形や配置に応じて、様々なパターンを表現することができる。このように被着体が粘着片で部分的に覆われた積層体を高精度に製造する方法としては、例えば回路基板のカバーレイフィルム貼り合わせのように粘着シートを所望する粘着片の形状にあらかじめカットしておき、その粘着片を被着体に位置合わせして貼り付ける方法が一般的に用いられている。この種の技術に関する技術文献として、特許文献1が挙げられる。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：日本国特許出願公開2013-38379号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] しかしながら、上述の方法では、あらかじめ粘着シートを所望する粘着片の形状にカットし、次いで位置合わせをして所定の被着体部位へ貼り合わせることから、カット精度と貼り合わせ精度との双方の誤差が生じる。このため、今後の小型化、高精細化する電子部品の製造において歩留りよく製品を製造するためには非常に高価な設備が必要となることが懸念される。また、例えばカットされた粘着片のサイズが大きい場合や形状が複雑な場合等にお

いては、該粘着片を被着体に位置精度および形状精度よく貼り付けることはさらに困難となる恐れがある。特に、耐久性の高い積層体を製造するために強粘着性の粘着片を用いる場合には、該粘着片を被着体に正確に貼り付ける操作の難度が高くなる傾向にある。

[0005] そこで本発明は、粘着片によるパターンが被着体上に精度よく形成され、かつ該粘着片が被着体に強固に接合した積層体を、効率よく製造する方法を提供することを目的とする。関連する他の発明は、かかる製造方法の実施に適した装置を提供することである。

課題を解決するための手段

[0006] この明細書により、被着体と該被着体を部分的に覆う粘着片とを含み、上記粘着片の上記被着体に対する粘着力が $5\text{ N} / 25\text{ mm}$ 以上である積層体の製造方法が提供される。その積層体製造方法は、基材層と該基材層の少なくとも上記被着体側の面に積層された粘着剤層とを含む粘着シートを上記被着体に貼り付ける貼付工程と、上記粘着シートのうち上記粘着片を構成する第一領域と上記粘着片を構成しない第二領域との境界に切断加工を施すカット工程と、上記第一領域を上記被着体上に残しつつ上記第二領域を上記被着体から剥離除去する一部除去工程と、をこの順で含む。ここで、上記一部除去工程は、上記粘着シートの上記被着体に対する粘着力が $2\text{ N} / 25\text{ mm}$ を超える前に行われる。

[0007] 上記製造方法によると、上記貼付工程、上記カット工程および上記一部除去工程をこの順で実施することにより、第一領域が被着体上に形状精度および位置精度よく配置された構成を効率よく得ることができる。また、上記粘着シートの上記被着体に対する粘着力が $2\text{ N} / 25\text{ mm}$ を超える前に上記一部除去工程を行うので、第二領域を被着体から剥がす操作を行いやすく、被着体の変形や損傷も生じにくい。

[0008] いくつかの態様において、上記粘着シートとしては、ポリイミドに貼り合わせた後、 23°C で 24 時間経過後の粘着力が $2\text{ N} / 25\text{ mm}$ 以下であるものを好ましく使用し得る。このような粘着シートによると、積層体の製造工

程のリードタイムに柔軟に対応し得る。

[0009] ここに開示される積層体製造方法のいくつかの態様では、上記一部除去工程の後に加熱処理を行って上記第一領域の上記被着体に対する粘着力を $5\text{ N} / 25\text{ mm}$ 以上にする。かかる態様は、例えば、ガラス転移温度が 0°C 未満のポリマー A と、ポリオルガノシロキサン骨格を有するモノマーと（メタ）アクリル系モノマーとの共重合体であるポリマー B と、を含む粘着剤層を備えた粘着シートを用いて実施することができるが、これに限定されない。

[0010] ここに開示される積層体製造方法の他のいくつかの態様では、上記一部除去工程の後に紫外線照射処理を行って上記第一領域の上記被着体に対する粘着力を $5\text{ N} / 25\text{ mm}$ 以上にする。かかる態様は、例えば、ベースポリマーと光硬化剤とを含む光硬化性組成物からなり、上記光硬化剤は多官能（メタ）アクリレートであり、上記光硬化剤の含有量が上記ベースポリマー 100 重量部に対して 1 重量部以上 50 重量部以下である粘着剤層を備えた粘着シートを用いて実施することができるが、これに限定されない。

[0011] また、ここに開示される積層体製造方法は、上記一部除去工程の後、上記第一領域の上記被着体に対する粘着力が $5\text{ N} / 25\text{ mm}$ 以上になるまで常温で保管する態様で実施してもよい。

なお、この明細書において常温とは、特記しない場合、概ね $0^{\circ}\text{C} \sim 35^{\circ}\text{C}$ 、典型的には $10^{\circ}\text{C} \sim 35^{\circ}\text{C}$ の温度を意味する。

[0012] いくつかの態様において、上記粘着シートとしては、厚さが $30\text{ }\mu\text{m}$ 以上であり、かつ上記基材層の厚さ T_s が上記粘着剤層の厚さ T_a の 2 倍以上であるものを好ましく使用し得る。このような粘着シートを用いることにより、被着体への貼り付け操作や第二領域の剥離操作を行いやすいという利点が得られる。

[0013] 上記第二領域は、その少なくとも一端が上記粘着シートの端に至るように設定されていることが好ましい。このことによって、上記一部除去工程を行う際に第二領域のピックアップを行いやすいという利点が得られる。上記第二領域は、ピックアップ性向上の観点から、上記粘着シートの端に至る一端

が当該粘着シートの端に向けて幅広になる形状であってもよい。

[0014] ここに開示される製造方法は、面積が 2500 cm^2 以上であり、かつ短辺の長さが 50 cm 以上である粘着シートを上記貼付工程に使用する態様で好ましく実施され得る。このように面積が大きくかつ幅の広い粘着シートを用いる態様において、ここに開示される製造方法を採用することによる利点がより効果的に発揮され得る。

[0015] ここに開示される製造方法は、上記貼付工程に用いられる上記粘着シートおよび上記被着体として、上記積層体に対応するユニットを複数含むものを使用し、上記貼付工程より後に行われる工程として、上記粘着シートおよび上記被着体を上記ユニットに分割する分割工程をさらに含んでもよい。このように複数のユニットを含む粘着シートを被着体に貼り付けた後に分割することにより、複数の積層体を効率よく製造することができる。なお、上記複数のユニットの構成は、同一であってもよく、異なってもよい。

[0016] この明細書によると、被着体と、該被着体に部分的に積層された粘着片と、を含む積層体を製造するための装置が提供される。その装置は、粘着シートを貼り付ける貼付機構を含む。また、上記装置は、上記粘着シートに切断加工を施すカット機構を含み得る。また、上記装置は、上記第二領域を剥離する剥離機構を含み得る。このような構成を有する製造装置を用いて、ここに開示されるいずれかの積層体製造方法は好適に実施され得る。

[0017] なお、上述した各要素を適宜組み合わせたものも、本件特許出願によって特許による保護を求める発明の範囲に含まれ得る。

図面の簡単な説明

[0018] [図1]一実施形態に係る積層体製造方法を示すフロー図である。

[図2]一実施形態に係る積層体製造方法により製造された積層体を示す斜視図である。

[図3]図2のIII-III線断面図である。

[図4]一実施形態に係る積層体製造方法のカット工程を説明する斜視図である。

。

[図5]一実施形態に係る積層体製造方法に用いられる積層体製造装置の概略構成を示す説明図である。

[図6]耐久性試験の実施方法を示す説明図である。

発明を実施するための形態

[0019] 以下、本発明の好適な実施形態を説明する。本明細書において特に言及している事項以外の事柄であって本発明の実施に必要な事柄は、本明細書に記載された発明の実施についての教示と出願時の技術常識とに基づいて当業者に理解され得る。本発明は、本明細書に開示されている内容と当該分野における技術常識とに基づいて実施することができる。

なお、以下の図面において、同じ作用を奏する部材・部位には同じ符号を付して説明することがあり、重複する説明は省略または簡略化することがある。また、図面に記載の実施形態は、本発明を明瞭に説明するために模式化されており、実際のサイズや縮尺を必ずしも正確に表したものではない。

[0020] <<積層体の製造方法>>

図1は、一実施形態に係る積層体製造方法を示すフロー図であり、図2は、該方法により製造される積層体を示す斜視図であり、図3はそのIII-III線における断面図である。図2、3に示されるように、この実施形態により製造される積層体1は、被着体10と、該被着体10の表面10Aを部分的に覆う粘着片21A、21Bとを含む。粘着片21A、21Bは、粘着シート20を被着体10に貼り付けた後、該粘着シート20のうち第一領域21を被着体10上に残して第二領域22を被着体10から剥離除去することにより、被着体10上に残された第一領域21から形成されたものである。粘着シート20は、基材層202の片面に粘着剤層204が積層された構成を有する。

[0021] この実施形態に係る積層体製造方法は、図1に示すように、貼付工程S10と、カット工程S20と、一部除去工程S30と、をこの順に含む。

貼付工程S10では、粘着シート20を被着体10に貼り付ける。この工程において用いられる粘着シート20は、粘着片21A、21Bとして積層

体 1 の構成要素に含まれることとなる領域である第一領域 2 1 と、積層体 1 の構成要素とはならず積層体 1 の製造過程においてのみ用いられる第二領域 2 2 とを含む。図 2 に示す例では、粘着シート 2 0 の幅のほぼ中央に、該粘着シート 2 0 の長手方向の一端から他端に至るまで直線状に延びる第二領域 2 2 が設定されている。貼付工程 S 1 0 に用いられる粘着シート 2 0 では、第一領域 2 1 と第二領域 2 2 とは物理的に繋がっており、これらの領域 2 1 , 2 2 を一続きの粘着シート 2 0 として取り扱うことができる。

[0022] カット工程 S 2 0 では、被着体 1 0 に貼り付けられた粘着シート 2 0 の第一領域 2 1 と第二領域 2 2 との境界に切断加工を施す。例えば、図 4 に示すように、第一領域 2 1 と第二領域 2 2 との境界をなす切断予定線 C に沿ってレーザー光 L を照射するレーザー切断を行う。なお、図 4 はレーザー切断の例を示しているが、切断加工の手段は特に限定されず、公知の各種切断手段のなかから目的や用途に応じて適宜選択することができる。そのような切断手段の例としては、CO₂レーザーやYAGレーザー等のレーザー光を用いるレーザー切断；トムソン刃、ピナクル刃、回転刃、ナイフ等の刃物による切断；ブレード切断；等が挙げられるが、これらに限定されない。切断手段は、一種を単独でまたは二種以上を組み合わせる用いることができる。

[0023] 一部除去工程 S 3 0 は、貼付工程において被着体に貼り付けられた粘着シートの上記被着体に対する粘着力が 2 N / 2 5 mm を超える前に（言い換えると、貼付け後、粘着力が 2 N / 2 5 mm 以下に抑えられている間に）行われる。この一部除去工程 S 3 0 では、第一領域 2 1 を被着体 1 0 上に残しつつ、第二領域 2 2 を被着体 1 0 から剥離除去する。例えば、粘着シート 2 0 の長手方向の一端から他端に向けて第二領域 2 2 を引き剥がす。これにより、図 2, 3 に示すように、第一領域 2 1 から形成された粘着片 2 1 A, 2 1 B が被着体 1 0 上に互いに離隔して配置され、それらの粘着片 2 1 A, 2 1 B の間で被着体 1 0 が露出した構造が形成される。

[0024] この実施形態に係る積層体製造方法では、粘着シート 2 0 を被着体 1 0 に貼り付けた後に該粘着シート 2 0 のうちの一部、すなわち第二領域 2 2 を被

着体 10 から剥離除去することによって、互いに離隔して配置された二枚の粘着片 21 A, 21 B からなる被覆パターンを被着体 10 上に形成する。この方法によると、積層体 1 において互いに離隔した二枚の粘着片 21 A, 21 B を構成する第一領域 21 を一枚の粘着シート 20 の形態で被着体 10 に貼りつけることができ、かつ粘着シート 20 の貼付け時において粘着片 21 A と粘着片 21 B との相対的な位置関係の調整が不要となることにより、積層体 1 の製造効率が向上する。また、粘着シート 20 を被着体 10 に貼り付けた後に該粘着シート 20 の第一領域 21 と第二領域 22 との境界に切断処理を施すので、第一領域 21 の形状精度や被着体 10 に対する位置精度を高めやすい。例えば、貼付工程 S10 において被着体 10 に対する粘着シート 20 の貼付け位置に多少のズレが生じた場合や、温度変化や内部応力の解放等により粘着シート 20 に多少の伸縮や変形が生じた場合等にも、カット工程 S20 における切断処理の位置や形状を調整することにより、それらの影響を解消または軽減することができる。

[0025] 上記製造方法では、粘着片 21 A, 21 B の被着体に対する粘着力が $5\text{ N} / 25\text{ mm}$ 以上である積層体 1 を製造する。このように粘着片 21 A, 21 B が被着体 10 に強固に接合していることは、積層体 1 の使用時において、人間の手が接触する等の外力、被着体の変形、あるいは積層体が風雨や温度変化に曝される等の環境要因等によって粘着片 21 A, 21 B が被着体 10 から剥がれたり浮いたりする事象を抑制する観点から好ましい。一方、一部除去工程 S30 において、第二領域 22 の被着体 10 に対する粘着性が高すぎると、第二領域 22 の剥離時に被着体 10 に伸び等の変形や表面剥がれ等の損傷が生じたり、第二領域 22 が剥離途中で千切れたりする等の不都合が発生し得る。上記製造方法によると、貼付工程 S10 において被着体に貼り付けられた粘着シートの該被着体に対する粘着力が $2\text{ N} / 25\text{ mm}$ を超える前に一部除去工程 S30 を実施することにより、粘着片 21 A, 21 B が被着体 10 に強固に接合した積層体 1 を製造することができ、かつ一部除去工程 S20 において上述の不具合を回避または軽減することができる。

[0026] いくつかの態様において、一部除去工程時における粘着シートの被着体に対する粘着力 A_p は、第二領域の剥離容易性の観点から、例えば $2\text{ N}/25\text{ mm}$ 未満であってよく、 $1.5\text{ N}/25\text{ mm}$ 未満でもよく、 $1.3\text{ N}/25\text{ mm}$ 以下でもよく、 $1\text{ N}/25\text{ mm}$ 以下でもよく、 $0.8\text{ N}/25\text{ mm}$ 以下でもよい。粘着力 A_p の下限は特に制限されないが、カット工程や一部除去工程における第一領域の位置ズレや浮きを抑制する観点から、例えば、 $0.005\text{ N}/25\text{ mm}$ 以上であってよく、 $0.01\text{ N}/25\text{ mm}$ 以上でもよく、 $0.05\text{ N}/25\text{ mm}$ 以上でもよく、 $0.1\text{ N}/25\text{ mm}$ 以上でもよく、 $0.2\text{ N}/25\text{ mm}$ 以上でもよい。

[0027] ここに開示される製造方法は、ポリイミドに貼り合わせた後、 23°C で24時間経過後の粘着力（以下、室温24時間後粘着力ともいう。）が $2\text{ N}/25\text{ mm}$ 以下である粘着シートを用いて好ましく実施することができる。このような粘着シートによると、積層体の製造工程のリードタイムに柔軟に対応し得る。上記室温24時間後粘着力の上限は、例えば、上記で例示した粘着力 A_p のいずれかの上限と同程度であり得る。上記室温24時間後粘着力の下限は、例えば、上記で例示した粘着力 A_p のいずれかの下限と同程度であり得る。

[0028] 一部除去工程S30を実施した後、必要に応じて、粘着片21A、21Bの被着体10に対する粘着力を高める粘着力上昇工程S40をさらに行ってもよい。かかる粘着力上昇工程を含む製造方法によると、目的とする積層体（すなわち、粘着片の被着体に対する粘着力が $5\text{ N}/25\text{ mm}$ 以上である積層体）を得るまでの期間を短縮し得る。このことによって積層体の生産性を向上させ得る。また、上記粘着力上昇工程を行うことにより、粘着片の被着体に対する粘着力がより高い積層体が製造される傾向にある。

[0029] 粘着力上昇工程S40は、粘着片21A、21Bの粘着力の上昇を促進する刺激を与える工程であり得る。上記刺激の内容は、使用する粘着シートのタイプ等に応じて適宜選択し得る。上記刺激の例には、加熱、活性光線の照射、プレス（加圧）等が含まれ得る。これらの刺激は、一種を単独でまたは

二種以上を組み合わせ適用することができる。

[0030] なお、ここに関示される積層体製造方法において、粘着力上昇工程は必須の工程ではなく、使用する粘着シートの種類、所望する積層体の生産性や性能、該積層体の製造設備や製造コスト等を考慮して適宜採用し得る任意工程である。例えば、積層体の製造に用いる粘着シートの適切な選択により、一部除去工程後に特段の粘着力上昇工程を実施しない態様においても、粘着シートの被着体に対する粘着力が $2\text{ N} / 25\text{ mm}$ を超える前に一部除去工程を行い、かつ該粘着シートの上記被着体に対する粘着力が $5\text{ N} / 25\text{ mm}$ 以上である積層体を製造することができる。

[0031] ここに関示される方法により製造される積層体に含まれる粘着片は、基材層と粘着剤層とを含み、上記粘着剤層を介して被着体に接合している。このように、得られた積層体において粘着片と被着体とが粘着剤により接合していること、すなわち粘着剤が所望の粘弾性を維持していることは、ここに関示される方法により製造される積層体の柔軟性、耐衝撃性、応力緩和性、低温特性、被着体と粘着片との密着性、等の観点から好ましい。

[0032] なお、図2に示す例では被着体10の片側の全面（全領域）を覆うように該被着体10とほぼ同サイズの粘着シート20を貼り付けているが、被着体10への粘着シートの貼付け態様はこれに限定されない。例えば、粘着シートが被着体の片側の一部領域のみを覆うように貼り付けてもよく、粘着シートの一部が被着体からはみ出すように貼り付けてもよい。また、貼付工程S10に用いられる粘着シートにおいて、第一領域と第二領域とは、これらの領域を一続きのシートとして取り扱い得る程度に繋がっていればよく、その限りにおいて、第一領域と第二領域との境界に切れ目（ミシン目等）、ハーフカット等の切断補助構造が設けられていることは妨げられない。ここでハーフカットとは、粘着シートを厚さ方向に貫通しない深さの切込みをいい、典型的には基材層を厚さ方向に貫通しない深さの切込みとして形成される。このような切込みは、例えば、基材層の背面（粘着剤層が積層される側とは反対側）から該基材層を貫通しない深さまで加工刃を進入させることにより

形成することができる。一態様において、粘着シートの取扱い性向上や製造コスト低減等の観点から、第一領域と第二領域との境界に切断補助構造が設けられていない粘着シートを好ましく用いることができる。また、貼付工程 S 1 0 に用いられる粘着シートには、該粘着シートと被着体との位置合わせに役立つ目印が設けられていてもよい。上記目印は、貫通孔、切欠き、窪み等のような構造的な目印であってもよく、光学的に検出可能なマーキング（例えば、印刷や着色）等による視覚的な目印であってもよく、異部材の配置（例えば、識別ラベルの貼付け、信号の発信または反射を可能とする素子の固定）によるものであってもよい。このような目印は、第一領域および第二領域の一方または両方に設けられてもよく、第一領域と第二領域との境界に設けられてもよい。

[0033] また、図 4 に示す例では、カット工程 S 2 0 において、粘着シートを貫通して被着体表面に至る深さで連続な線状の切断加工を施しているが、切断加工の態様はこれに限定されない。例えば、一部除去工程 S 3 0 を適切に実施し得る限度で、カット工程 S 2 0 後の第一領域と第二領域とが部分的に繋がっていてもよい。そのような切断加工の例として、マシン目等の不連続な切断加工、ハーフカット加工、マシン目とハーフカットとを組み合わせた加工（例えば、基材層を貫通する切れ目と、該基材層を貫通しない深さの切込みとが交互に繰り返す態様の切断加工）等が挙げられる。また、上記切断加工は、粘着シートを貫通して被着体表面に至る深さで行われてもよく、粘着シートを貫通してさらに被着体の表面から一部深さに至るように行われてもよく、粘着シートを貫通しない深さ（すなわち、ハーフカット）で行われてもよい。ここに開示される製造方法では、一部除去工程 S 3 0 を行う際には粘着シートの被着体に対する粘着力が低く抑えられていることから、少なくとも基材層を貫通する深さまでは第一領域と第二領域とが完全に分離されるように切断加工を行うことが好ましい。このことは、一部除去工程 S 3 0 における第二領域のピックアップ性の向上、第一領域の浮きやズレの防止性、第一領域の外形精度向上、等の観点から有利となり得る。

- [0034] 図4に示す例では、直線状に延びる第二領域の一端および他端が粘着シートの端に至っている。このように第二領域の少なくとも一端が粘着シートの端に至るように該第二領域を設定することは、一部除去工程S30における第二領域のピックアップ性の観点から好ましい。第二領域が粘着シートの端に至らない態様では、例えば第二領域の一端において該第二領域の背面に強粘着性の粘着テープを貼り付けて引き上げることにより、第二領域のピックアップを行うことができる。かかるピックアップ方法は、第二領域の少なくとも一端が粘着シートの端に至る態様においても採用することができる。ここに開示される積層体製造方法において、一部除去工程時における粘着シートの上記被着体に対する粘着力が $2\text{ N} / 25\text{ mm}$ 以下であることは、上述のように粘着テープを貼り付けて引き上げる手法による第二領域のピックアップ性向上の観点から有利である。
- [0035] 第二領域が粘着シートの端に至るように設定されている態様において、上記第二領域が上記粘着シートの端に至る幅は、ピックアップ性の観点から、 0.2 mm 以上とすることが好ましく、 0.5 mm 以上でもよく、 1 mm 以上でもよい。ピックアップ性を高めるために、第二領域が粘着シートの端に至る付近では該第二領域の幅が広がるように構成してもよい。また、ここに開示される製造方法により得られる積層体を含む製品（電子デバイス等）の小型化の観点から、上記第二領域が上記粘着シートの端に至る幅は、 10 mm 以下とすることが好ましく、 8 mm 以下とすることがさらに好ましい。
- [0036] ここに開示される積層体製造方法が粘着力上昇工程を含む場合、該工程において粘着力を上昇させる程度は特に限定されず、該工程前の粘着力に比べて、該工程後の粘着力または該工程を経て得られる積層体の粘着力が、相対的に高くなっていればよい。いくつかの態様において、粘着力上昇工程は、該工程前における被着体への粘着力 A_0 [$\text{N} / 25\text{ mm}$] と、該工程後における被着体への粘着力 A_1 [$\text{N} / 25\text{ mm}$] との関係が、比 $(A_1 / A_0) \geq 2$ を満たすように行うことが好ましい。すなわち、粘着力上昇工程では、粘着シートの被着体に対する粘着力を、該工程前の2倍以上に上昇させることが好

ましい。このような粘着力上昇工程によると、一部除去工程における第二領域の除去容易性と、製造された積層体における粘着片の被着体に対する強粘着性とが好適に両立する傾向にある。いくつかの態様において、上記比 (A_1/A_0) は、例えば3以上であってよく、5以上でもよく、10以上でもよい。上記比 (A_1/A_0) の上限は特に制限されないが、粘着力上昇工程前における第一領域の位置ズレや浮きを抑制する観点から、通常は10000以下、5000以下または2000以下であることが好ましい。上記粘着力 A_0 、 A_1 の各々は、JIS Z0237に準じて、23℃、50%RH的环境下にて、剥離角度180度、引張速度300mm/分の条件で、粘着シートの被着体からの剥離強度を測定することによって把握することができる。

[0037] 粘着力上昇工程前における粘着シートの被着体に対する粘着力 A_0 は、例えば、上記一部除去工程時の粘着力 A_P と概ね同程度であり得る。したがって、上記で例示した粘着力 A_P の各上限値および各下限値は、それぞれ独立に、粘着力 A_0 のとり得る上限値および下限値の各々にも適用され得る。また、上記で例示した粘着力 A_P の各上限値および下限値は、それぞれ独立に、後述する初期粘着力 B_0 のとり得る上限値および下限値の各々にも適用され得る。

[0038] ここに開示される方法により製造された積層体において、粘着片の被着体に対する粘着力 A_F は、例えば5N/25mm超であってよく、7N/25mm以上でもよく、10N/25mm以上でもよく、12N/25mm以上でもよい。粘着力 A_F が高いことは、上記積層体の使用時における粘着片の被着体からの剥がれや浮きを抑制する観点から好ましい。粘着力 A_F の上限は特に制限されない。一部除去工程における第二領域の剥離容易性との両立を容易とする観点から、いくつかの態様において、粘着力 A_F は、例えば50N/25mm以下であってよく、40N/25mm以下でもよく、35N/25mm以下でもよく、30N/25mm以下でもよい。

[0039] なお、粘着力上昇工程を含む態様において、該粘着力上昇工程後における粘着シートの被着体に対する粘着力 A_1 [N/25mm] は、例えば、製造された積層体における粘着片の被着体に対する粘着力 A_F と概ね同程度であり得

る。したがって、上記で例示した粘着力 A_F の各上限値および各下限値は、それぞれ独立に、粘着力 A_1 のとり得る上限値および下限値の各々にも適用され得る。また、上記で例示した粘着力 A_F の各上限値および下限値は、それぞれ独立に、後述する刺激後粘着力 B_1 のとり得る上限値および下限値の各々にも適用され得る。

[0040] 粘着力上昇工程において粘着シートに与える刺激の内容は、例えば、使用する粘着シートのポリイミドに対する初期粘着力 B_0 の刺激後粘着力 B_1 に対する比として定義される粘着力上昇比 (B_1/B_0) が所定の目標値を満たすように設定することができる。初期粘着力 B_0 および刺激後粘着力 B_1 は、後述する実施例に記載の方法により測定される。

[0041] ここに開示される製造方法が粘着力上昇工程を含む場合、該粘着力上昇工程は、粘着力上昇比 (B_1/B_0) が例えば2以上となるように行うことが好ましく、粘着力上昇比 (B_1/B_0) が3以上、5以上、10以上または15以上となるように行うことがより好ましい。また、粘着シートおよび被着体にかかる負荷の軽減や積層体の生産性向上の観点から、粘着力上昇工程は、粘着力上昇比 (B_1/B_0) が凡そ10000以下、5000以下または2000以下となるように実施することができる。いくつかの態様において、粘着力上昇比 (B_1/B_0) は、例えば1000以下でもよく、500以下でもよく、200以下でもよく、100以下でもよい。

[0042] また、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、上記基板材料としてはポリイミドフィルムが用いられることが多い。ポリイミドに対して上述した粘着力 B_0 、 B_1 または粘着力上昇比 (B_1/B_0) を示す粘着シートは、ポリイミドを被着体とする態様で積層体の製造に用いられて、一部除去工程においては第二領域の剥離作業性がよく、かつ得られた積層体の使用時には被着体との接着信頼性に優れるという性質を発揮し得る。かかる性質を利用して、FPCのフィルムカバーレイを精度よくかつ効率よ

く形成することができる。したがって、ここに開示される方法は、例えば、フィルムカバーレイを備えたFPCの製造に好ましく適用され得る。

[0043] 粘着力上昇工程において粘着シートに与える刺激として加熱を行う場合における加熱温度は、特に限定されず、作業性、経済性、粘着シートに含まれ得る基材層や被着体の耐熱性等を考慮して設定することができる。上記加熱温度は、例えば150℃未満であってよく、120℃以下であってよく、100℃以下でもよく、80℃以下でもよく、70℃以下でもよい。また、上記加熱温度は、例えば40℃以上、50℃以上または60℃以上とすることができ、80℃以上としてもよく、100℃以上としてもよい。より高い加熱温度によると、より短時間の処理によって粘着力を上昇させ得る。加熱時間は特に限定されず、例えば1時間以下であってよく、30分以下でもよく、10分以下でもよく、5分以下でもよい。あるいは、粘着シートや被着体に顕著な熱劣化が生じない限度で、より長期間の（例えば、2時間以上、5時間以上等の）加熱処理を行ってもよい。なお、加熱処理は、一度に行ってもよく、複数回に分けて行ってもよい。

[0044] 貼付工程に用いられる粘着シートは、一枚の粘着シートのなかに、積層体を構成する粘着片となる領域（第一領域）を一つのみ含んでいてもよく、例えば図2に示すように互いに離隔した二つの第一領域を含んでいてもよく、三つ以上の第一領域を含んでいてもよい。一枚の粘着シートが複数の第一領域を含む場合、それらの第一領域の形状は、同一であってもよく異なってもよい。同様に、貼付工程に用いられる粘着シートは、一枚の粘着シートのなかに、一部除去工程において剥離除去される第二領域を、例えば図4に示すように一つのみ含んでいてもよく、二つ以上または三つ以上含んでいてもよい。一枚の粘着シートが複数の第二領域を含む場合、それらの第二領域の形状は、同一であってもよく異なってもよい。

[0045] いくつかの態様に係る積層体製造方法では、貼付工程に用いられる粘着シートおよび被着体として、該方法により製造される積層体に対応するユニットを複数含むものを使用することができる。かかる態様は、上記貼付工程よ

り後に行われる工程として、上記粘着シートおよび上記被着体を上記ユニットに分割する分割工程をさらに含み得る。上記分割工程は、貼付工程を行った後、任意の時期に行うことができる。例えば、少なくともカット工程を終えた後に分割工程を行うことにより、複数のユニットに対してまとめてカット工程を行うことができる。ここに開示される製造方法は、例えば、上記分割工程を、（a）カット工程と一部除去工程との間に含む態様で実施することができる。一部除去工程の後に粘着力上昇工程を含む製造方法において、上記分割工程を、例えば、（b）一部除去工程と粘着力上昇工程との間または（c）粘着力上昇工程の後に含む態様で実施してもよい。上記（a）～（c）の態様の一または二以上を組み合わせてもよい。なお、上記態様（a）は、例えば、後述する粘着剤層（2）を備える粘着シートを用いて好ましく実施され得る。上記態様（b）や上記態様（c）は、例えば、後述する粘着剤層（1）または粘着剤層（2）を備える粘着シートを用いて好ましく実施され得る。

[0046] <<製造装置>>

ここに開示される積層体製造方法は、例えば図5に示すように、粘着シート20を被着体10に貼り付ける貼付機構51と、粘着シート20の第一領域21と第二領域22との境界に切断加工を施すカット機構52と、第一領域21を被着体10上に残しつつ第二領域22を被着体10から剥離除去する剥離機構53と、を備えた積層体製造装置50を用いて実施することができる。

[0047] 貼付機構51は、ここに開示されるいずれかの製造方法における貼付工程を実施し得るように構成され、例えば、被着体供給手段、粘着シート供給手段、粘着シートの被着体への圧着手段、等の一または二以上を含み得る。カット機構52は、ここに開示されるいずれかの製造方法におけるカット工程を実施し得るように構成され、上記で例示したような切断手段の一または二以上を含み得る。剥離機構53は、ここに開示されるいずれかの方法における一部除去工程を実施し得るように構成され、例えば、第二領域のピックアップ

ップ手段、保持手段、引き剥がし手段、等の一または二以上を含み得る。

[0048] なお、粘着力上昇工程を含む態様の積層体製造方法の実施に用いられ得る積層体製造装置は、例えば第一領域に対してその粘着力を上昇させる刺激を与える機構として、図示しない粘着力上昇機構をさらに含み得る。粘着力上昇機構は、粘着シートに対して該粘着シートの粘着力を上昇させ得る刺激を提供することにより、ここに開示されるいずれかの方法における粘着力上昇工程を実施し得るように構成されている。粘着力上昇機構は、例えば、UV照射手段（UV照射ランプ、光路調整用のミラー等）、加熱手段（温風ヒーター、赤外線ヒーター、電熱器等）、プレス手段、等の一または二以上を含み得る。

また、分割工程を含む態様の積層体製造方法に用いられる製造装置は、図示しない分割機構をさらに含み得る。上記分割機構は、トムソン刃やピナクル刃、回転刃、ナイフ等による切断、あるいはレーザー切断、ウォータージェット切断、ブレード切断等の公知の分割手段を用いて分割工程を実施し得るように構成することができる。

[0049] <<粘着シート>>

以下、ここに開示される積層体製造方法を実施するために好ましく採用され得る粘着シートのいくつかの例について説明するが、本発明の範囲を限定する意図ではない。

[0050] ここに開示される積層体製造方法は、基材層と、該基材層の少なくとも被着体側に積層された粘着剤層とを含む構成の粘着シートを用いて好ましく実施され得る。粘着剤層が基材層に積層された構成の粘着シートによると、上記基材層によって粘着剤層を補強することができるので、一部除去工程において被着体から第二領域を剥がしやすい。

[0051] <基材層>

上記基材層としては、各種のフィルム基材を好ましく用いることができる。上記フィルム基材は、発泡体フィルムや不織布シート等のように多孔質の基材でもよく、非多孔質の基材でもよく、多孔質の層と非多孔質の層とが積

層した構造の基材でもよい。いくつかの態様において、上記フィルム基材としては、独立して形状維持可能な（自立型の、あるいは非依存性の）樹脂フィルムをベースフィルムとして含むものを好ましく用いることができる。ここで「樹脂フィルム」とは、非多孔質の構造であって、典型的には実質的に気泡を含まない（ボイドレスの）樹脂フィルムを意味する。したがって、上記樹脂フィルムは、発泡体フィルムや不織布とは区別される概念である。上記樹脂フィルムは、単層構造であってもよく、二層以上の多層構造（例えば三層構造）であってもよい。

[0052] 樹脂フィルムを構成する樹脂材料としては、例えば、ポリエステル、ポリオレフィン、ナイロン6、ナイロン66、部分芳香族ポリアミド等のポリアミド（PA）、ポリイミド（PI）、ポリアミドイミド（PAI）、ポリエーテルエーテルケトン（PEEK）、ポリエーテルスルホン（PES）、ポリフェニレンサルファイド（PPS）、ポリカーボネート（PC）、ポリウレタン（PU）、エチレン-酢酸ビニル共重合体（EVA）、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）等のフッ素樹脂、アクリル樹脂、ポリアクリレート、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン等の樹脂を用いることができる。

[0053] 上記樹脂フィルムは、このような樹脂の一種を単独で含む樹脂材料を用いて形成されたものであってもよく、二種以上がブレンドされた樹脂材料を用いて形成されたものであってもよい。上記樹脂フィルムは、無延伸であってもよく、延伸（例えば一軸延伸または二軸延伸）されたものであってもよい。例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）フィルム、ポリエチレンナフタレート（PEN）フィルム、無延伸ポリプロピレン（CPP）フィルム、二軸延伸ポリプロピレン（OPP）フィルム、低密度ポリエチレン（LDPE）フィルム、直鎖状低密度ポリエチレン（LLDPE）フィルム、PP/PEブレンドフィルム等の樹脂フィルムが好ましく用いられ得る。強度や寸法安定性の観点から好ましい樹脂フィルムの例として、PETフィルム、PENフィルム、PPSフィルムおよびPEEKフィルムが挙げられる。

入手容易性等の観点からPETフィルムおよびPPSフィルムが特に好ましく、なかでもPETフィルムが好ましい。

[0054] 樹脂フィルムには、本発明の効果が著しく妨げられない範囲で、光安定剤、酸化防止剤、帯電防止剤、着色剤（染料、顔料等）、充填材、スリップ剤、アンチブロッキング剤等の公知の添加剤を、必要に応じて配合することができる。

[0055] 樹脂フィルムの製造方法は特に限定されない。例えば、押出成形、インフレーション成形、Tダイキャスト成形、カレンダーロール成形等の、従来公知の一般的な樹脂フィルム成形方法を適宜採用することができる。

[0056] 上記基材層は、このようなベースフィルムから実質的に構成されたものであり得る。あるいは、上記基材層は、上記ベースフィルムの他に、補助的な層を含むものであってもよい。上記補助的な層の例としては、光学特性調整層（例えば着色層、反射防止層）、基材層に所望の外観を付与するための印刷層やラミネート層、帯電防止層、下塗り層、剥離層等の表面処理層が挙げられる。

[0057] 基材層のうち粘着剤層が積層される側の面には、必要に応じて、コロナ放電処理、プラズマ処理、紫外線照射処理、酸処理、アルカリ処理、下塗り剤（プライマー）の塗布による下塗り層の形成等の、従来公知の表面処理が施されていてもよい。このような表面処理は、粘着剤層の基材層への投錨性を向上させるための処理であり得る。下塗り層の形成に用いるプライマーの組成は特に限定されず、公知のものから適宜選択することができる。下塗り層の厚さは特に制限されないが、通常、 $0.01\mu\text{m} \sim 1\mu\text{m}$ 程度が適当であり、 $0.1\mu\text{m} \sim 1\mu\text{m}$ 程度が好ましい。必要に応じて基材層に施され得る他の処理として、帯電防止層形成処理、着色層形成処理、印刷処理等が挙げられる。これらの処理は、単独でまたは組み合わせて適用することができる。

[0058] <<粘着剤層>>

粘着剤層を構成する粘着剤の組成は特に限定されない。上記粘着剤は、粘

着剤の分野において公知のアクリル系ポリマー、ゴム系ポリマー、ポリエステル系ポリマー、ウレタン系ポリマー、ポリエーテル系ポリマー、シリコン系ポリマー、ポリアミド系ポリマー、フッ素系ポリマー等、室温域においてゴム弾性を示す各種のポリマーの一種または二種以上をベースポリマー（ポリマー成分のなかの主成分、すなわち50重量%超を占める成分）として含むものであり得る。なかでも好ましい粘着剤として、アクリル系粘着剤およびゴム系粘着剤が例示される。ここで、アクリル系粘着剤とは、アクリル系ポリマーをベースポリマーとして含む粘着剤をいう。ゴム系粘着剤についても同様である。また、上記アクリル系ポリマーとは、該アクリル系ポリマーを構成するモノマー成分全量のうち50重量%以上がアクリル系モノマーである重合物をいう。なお、本明細書においてアクリル系モノマーとは、1分子中に少なくとも一つの（メタ）アクリロイル基を有するモノマーをいう。また、上記（メタ）アクリロイル基とは、アクリロイル基およびメタクリロイル基を包括的に指す意味である。

[0059] ここに開示される製造方法に好ましく用いられ得る粘着剤層のいくつかの例には、（1）ベースポリマーおよびシロキサン構造含有ポリマーを含む粘着剤層（以下、「粘着剤層（1）」ともいう。）、および、（2）ベースポリマーおよび光硬化剤を含む光硬化性組成物から形成される粘着剤層（以下、「粘着剤層（2）」ともいう。）、が含まれる。以下、粘着剤層（1）および粘着剤層（2）について詳細に説明するが、ここに開示される製造方法に用いられる粘着シートはこれらの粘着剤層を有するものに限定されない。

[0060] <ベースポリマーAおよびシロキサン構造含有ポリマーBを含む粘着剤層>

粘着剤層（1）は、ベースポリマーAおよびシロキサン構造含有ポリマーBを含み、被着体に貼り合わせた後、室温域（例えば20℃～30℃）においてしばらくの間は粘着力が低く抑えられ、エージング（加熱、経時、これらの組合せ等であり得る。）により粘着力が大きく上昇する性質を示し得る。したがって、ここに開示される積層体製造方法に好ましく用いられ得る。粘着剤層（1）は、ベースポリマーAまたはその前駆体と、シロキサン構造

含有ポリマーBと、を含有する粘着剤組成物から形成され得る。粘着剤組成物の形態は特に制限されず、例えば水分散型、溶剤型、ホットメルト型、活性光線硬化型（例えば、UV硬化型）等の、各種の形態であり得る。

[0061] (ベースポリマーA)

粘着剤層(1)のベースポリマーA（以下、「ポリマーA」と略記することがある。）としては、アクリル系ポリマーを好ましく用いることができる。ポリマーAとしてアクリル系ポリマーを用いると、ポリマーBとの良好な相溶性が得られやすくなる傾向にある。ポリマーAとポリマーBとの相溶性が良いことは、粘着剤層内におけるポリマーBの移動性向上を通じて、一部除去工程における低粘着性と粘着力上昇処理（例えば加熱処理）後の強粘着性を併せもつ粘着剤層(1)の実現に貢献し得るので好ましい。粘着剤層(1)の50重量%以上がアクリル系ポリマーであることが好ましい。

[0062] アクリル系ポリマーとしては、例えば、該アクリル系ポリマーを構成するモノマー成分全量のうち40重量%以上が（メタ）アクリル酸アルキルエステルであるものを好ましく使用し得る。（メタ）アクリル酸アルキルエステルとしては、炭素数1～20の（すなわち、 C_{1-20} の）直鎖または分岐鎖状のアルキル基をエステル末端に有するものが好ましく用いられ得る。特性のバランスをとりやすいことから、アクリル系ポリマーの構成モノマー成分全量のうち（メタ）アクリル酸 C_{1-20} アルキルエステルの割合は、例えば50重量%以上であってよく、55重量%以上でもよく、60重量%以上でもよい。同様の理由から、構成モノマー成分全量のうち（メタ）アクリル酸 C_{1-20} アルキルエステルの割合は、例えば99.9重量%以下であってよく、98重量%以下でもよく、95重量%以下でもよい。いくつかの態様において、モノマー成分全量のうち（メタ）アクリル酸 C_{1-20} アルキルエステルの割合は、例えば90重量%以下であってよく、85重量%以下でもよく、80重量%以下でもよい。

[0063] （メタ）アクリル酸 C_{1-20} アルキルエステルの非限定的な具体例としては、（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

ル酸プロピル、(メタ)アクリル酸イソプロピル、(メタ)アクリル酸n-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)アクリル酸オクチル、(メタ)アクリル酸2-エチルヘキシル、(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)アクリル酸トリデシル、(メタ)アクリル酸イソトリドデシル、(メタ)アクリル酸テトラデシル、(メタ)アクリル酸ペンタデシル、(メタ)アクリル酸ヘキサデシル、(メタ)アクリル酸ヘプタデシル、(メタ)アクリル酸ステアリル、(メタ)アクリル酸イソステアリル、(メタ)アクリル酸ノナデシル、(メタ)アクリル酸エイコシル等が挙げられる。

[0064] これらのうち、少なくとも(メタ)アクリル酸 C_{1-18} アルキルエステルを用いることが好ましく、少なくとも(メタ)アクリル酸 C_{1-14} アルキルエステルを用いることがより好ましい。いくつかの態様において、アクリル系ポリマーの構成モノマー成分は、(メタ)アクリル酸 C_{4-12} アルキルエステル(好ましくはアクリル酸 C_{4-10} アルキルエステル、例えばアクリル酸 C_{6-10} アルキルエステル)から選択される少なくとも一種を含み得る。例えば、アクリル酸n-ブチル(BA)およびアクリル酸2-エチルヘキシル(2EHA)の一方または両方を含むアクリル系ポリマーが好ましく、少なくとも2EHAを含むアクリル系ポリマーが特に好ましい。好ましく用いられ得る他の(メタ)アクリル酸 C_{1-18} アルキルエステルの例としては、アクリル酸メチル、メタクリル酸メチル(MMA)、メタクリル酸n-ブチル(BMA)、メタクリル酸2-エチルヘキシル(2EHMA)、アクリル酸イソステアリル(ISTA)等が挙げられる。

[0065] アクリル系ポリマーの構成モノマー成分は、主成分としての(メタ)アク

リル酸アルキルエステルとともに、必要に応じて、（メタ）アクリル酸アルキルエステルと共重合可能な他のモノマー（共重合性モノマー）を含んでもよい。共重合性モノマーとしては、極性基（例えば、カルボキシ基、ヒドロキシ基等）を有するモノマーを好適に使用することができる。極性基を有するモノマーは、アクリル系ポリマーに架橋点を導入したり、アクリル系ポリマーの凝集力を高めたりするために役立ち得る。共重合性モノマーは、一種を単独でまたは二種以上を組み合わせる用いることができる。

[0066] 共重合性モノマーの非限定的な具体例としては、以下のものが挙げられる。

カルボキシ基含有モノマー：例えば、アクリル酸、メタクリル酸、カルボキシエチルアクリレート、カルボキシペンチルアクリレート、イタコン酸、マレイン酸、フマル酸、クロトン酸、イソクロトン酸等。

ヒドロキシ基含有モノマー：例えば、（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3-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、（4-ヒドロキシメチルシクロヘキシル）メチル（メタ）アクリレート等の（メタ）アクリル酸ヒドロキシアルキル；N-（2-ヒドロキシエチル）アクリルアミド（HEAA）等の、ヒドロキシ基とアミド基とを有するモノマー等。

窒素含有モノマー：例えば、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-ビニル-3-モルホリノン、N-ビニル-2-カプロラクタム、N-ビニル-1,3-オキサジン-2-オン、N-ビニル-3,5-モルホリンジオン、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等。

その他、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。

[0067] このような共重合性モノマーを使用する場合、その使用量は特に限定されないが、通常はモノマー成分全量の0.01重量%以上とすることが適当である。共重合性モノマーの使用による効果をよりよく発揮する観点から、共重合性モノマーの使用量をモノマー成分全量の0.1重量%以上としてもよく、1重量%以上としてもよい。また、共重合性モノマーの使用量は、モノマー成分全量の50重量%以下とすることができ、40重量%以下とすることが好ましい。これにより、粘着剤の凝集力が高くなり過ぎることを防ぎ、常温（25℃）でのタック感を向上させ得る。

[0068] いくつかの態様において、アクリル系ポリマーは、その構成モノマー成分として、N-ビニル環状アミドおよび水酸基含有モノマーからなる群から選ばれる少なくとも一種のモノマーを含有することが好ましい。

[0069] N-ビニル環状アミドの使用により、粘着剤の凝集力や極性を調整し、粘着力を上昇させる刺激として加熱を行った後の粘着力（以下、「加熱後粘着力」ともいう。）を向上させ得る。N-ビニル環状アミドの具体例としては、上述した窒素含有モノマーのうち該当する構造を有するものが挙げられる。特に好ましくはN-ビニル-2-ピロリドン、N-ビニル-2-カプロラクタムである。N-ビニル環状アミドの使用量は、特に制限されないが、通常、アクリル系ポリマーの構成モノマー成分全量の0.01重量%以上（好ましくは0.1重量%以上、例えば0.5重量%以上）とすることが適当である。いくつかの態様において、N-ビニル環状アミドの使用量は、上記モノマー成分全量の1重量%以上としてもよく、5重量%以上としてもよく、10重量%以上としてもよい。また、常温（25℃）でのタック感向上や低温における柔軟性向上の観点から、N-ビニル環状アミドの使用量は、通常、上記モノマー成分全量の40重量%以下とすることが適当であり、30重量%以下としてもよく、20重量%以下としてもよい。

[0070] 水酸基含有モノマーの使用により、粘着剤の凝集力や極性を調整し、加熱後粘着力を向上させ得る。また、水酸基含有モノマーは、後述する架橋剤（例えば、イソシアネート系架橋剤）との反応点を提供し、架橋反応によって粘着剤の凝集力を高め得る。水酸基含有モノマーの好適例としては、アクリル酸2-ヒドロキシエチル（HEA）、アクリル酸4-ヒドロキシブチル（4HBA）、N-（2-ヒドロキシエチル）アクリルアミド（HEAA）が挙げられる。水酸基含有モノマーの使用量は、特に制限されないが、通常、アクリル系ポリマーの構成モノマー成分全量の0.01重量%以上（好ましくは0.1重量%以上、例えば0.5重量%以上）とすることが適当である。いくつかの態様において、水酸基含有モノマーの使用量は、上記モノマー成分全量の1重量%以上としてもよく、5重量%以上としてもよく、10重量%以上としてもよい。また、常温（25℃）でのタック感向上や低温における柔軟性向上の観点から、水酸基含有モノマーの使用量は、通常、上記モノマー成分全量の40重量%以下とすることが適当であり、30重量%以下としてもよく、20重量%以下としてもよく、10重量%以下または5重量%以下としてもよい。

[0071] いくつかの態様において、共重合性モノマーとして、N-ビニル環状アミドと水酸基含有モノマーとを併用することができる。この場合、N-ビニル環状アミドと水酸基含有モノマーとの合計量は、例えば、アクリル系ポリマーの構成モノマー成分全量の0.1重量%以上であってよく、1重量%以上でもよく、5重量%以上でもよく、10重量%以上、15重量%以上、20重量%以上または25重量%以上でもよい。また、N-ビニル環状アミドと水酸基含有モノマーとの合計量は、例えば、上記モノマー成分全量の50重量%以下とすることができ、40重量%以下とすることが好ましい。

[0072] ポリマーAのT_gは、典型的には0℃未満であり、好ましくは-10℃未満、より好ましくは-20℃未満である。T_gが0℃未満のポリマーAを含む粘着剤は、適度な流動性（例えば、該粘着剤に含まれるポリマー鎖の運動性）を示すことから、任意のタイミングで加熱処理を行うことにより粘着力

を大きく上昇させやすい。いくつかの態様において、ポリマーAの T_g は、例えば -30°C 未満であってよく、 -40°C 未満でもよく、 -50°C 未満でもよく、 -60°C 未満でもよい。ポリマーAの T_g の下限は特に制限されない。材料の入手容易性や粘着剤層の凝集力向上の観点から、通常は、 T_g が -80°C 以上のポリマーAを好適に採用し得る。

[0073] この明細書において、ポリマーの T_g とは、文献やカタログ等に記載された公称値か、または該ポリマーの調製に用いられるモノマー成分の組成に基づいてFoxの式により求められる T_g をいう。Foxの式とは、以下に示すように、共重合体の T_g と、該共重合体を構成するモノマーの各々を単体重合したホモポリマーのガラス転移温度 T_{gi} との関係式である。

$$1/T_g = \sum (W_i / T_{gi})$$

上記Foxの式において、 T_g は共重合体のガラス転移温度（単位：K）、 W_i は該共重合体におけるモノマー i の重量分率（重量基準の共重合割合）、 T_{gi} はモノマー i のホモポリマーのガラス転移温度（単位：K）を表す。 T_g の特定に係る対象のポリマーがホモポリマーである場合、該ホモポリマーの T_g と対象のポリマーの T_g とは一致する。

[0074] T_g の算出に使用するホモポリマーのガラス転移温度としては、公知資料に記載の値を用いるものとする。具体的には、「Polymer Handbook」（第3版、John Wiley & Sons, Inc., 1989年）に数値が挙げられている。上記Polymer Handbookに複数種類の値が記載されているモノマーについては、最も高い値を採用する。

[0075] 特に限定するものではないが、ポリマーAの重量平均分子量（ M_w ）は、通常は凡そ5万以上であることが適当であり、より良好な凝集性を示す粘着剤を得る観点から、例えば10万以上であってよく、20万以上でもよく、30万以上でもよい。また、ポリマーAの M_w は、通常、凡そ500万以下であることが適当である。かかる M_w のポリマーAは、適度な流動性（ポリマー鎖の運動性）を示す粘着剤を形成しやすいことから、粘着力上昇比の高い粘着シートの実現に適している。

- [0076] この明細書において、ポリマーのM_wは、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）によりポリスチレン換算して求めることができる。より具体的には、後述する実施例において記載する方法および条件に準じてM_wを測定することができる。
- [0077] アクリル系ポリマーを得る方法は特に限定されず、溶液重合法、エマルション重合法、バルク重合法、懸濁重合法、光重合法等の、アクリル系ポリマーの合成手法として知られている各種の重合方法を適宜採用することができる。
- [0078] 重合に用いる開始剤は、重合方法に応じて、従来公知の熱開始剤や光開始剤等から適宜選択することができる。熱開始剤の非限定的な例としては、2, 2'-アゾビスイソブチロニトリル（AIBN）等のアゾ系開始剤、過硫酸カリウム等の過硫酸塩、過氧化物系開始剤、レドックス系開始剤等が挙げられる。光開始剤の非限定的な例としては、ベンゾインエーテル系光開始剤、アセトフェノン系光開始剤、 α -ケトール系光開始剤、芳香族スルホニルクロリド系光開始剤、光活性オキシム系光開始剤、ベンゾイン系光開始剤、ベンジル系光開始剤、ベンゾフェノン系光開始剤、ケタール系光開始剤、チオキサントン系光開始剤、アシルフォスフィンオキサイド系光開始剤等が挙げられる。開始剤は、一種を単独でまたは二種以上を組み合わせ使用することができる。
- [0079] いくつかの態様において、アクリル系ポリマーを得る方法として、溶液重合法を好ましく採用し得る。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。開始剤としては、アゾ系、過氧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もよい。反応温度は通常50～80℃程度、反応時間は通常1～8時間程度であり得る。
- [0080] いくつかの態様において、アクリル系ポリマーは、上述のようなモノマー成分に開始剤を配合した混合物に紫外線（UV）を照射して該モノマー成分の一部を重合させた部分重合物（アクリル系ポリマーシロップ）の形態で、

粘着剤層を形成するための粘着剤組成物に含まれ得る。かかるアクリル系ポリマーシロップを含む粘着剤組成物を所定の被塗布体に塗布し、UVを照射して重合を完結させることができる。すなわち、上記アクリル系ポリマーシロップは、アクリル系ポリマーの前駆体として把握され得る。粘着剤層（１）は、例えば、このようなアクリル系ポリマーシロップとポリマーＢとを含む粘着剤組成物を用いて形成され得る。

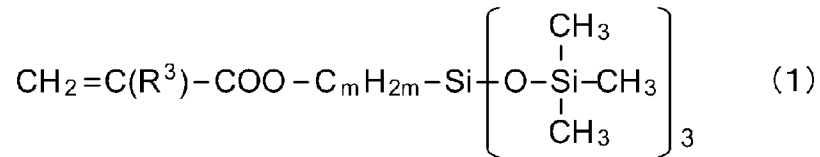
[0081] （シロキサン構造含有ポリマーＢ）

シロキサン構造含有ポリマーＢ（以下、「ポリマーＢ」と略記することがある。）は、ポリオルガノシロキサン骨格を有するモノマー（以下、「モノマーＳ１」ともいう。）と（メタ）アクリル系モノマーとの共重合体である。ポリマーＢは、モノマーＳ１に由来するポリオルガノシロキサン構造の低極性および運動性によって、初期粘着力の抑制および粘着力上昇比の向上に寄与する粘着力上昇遅延剤として機能し得る。モノマーＳ１としては、特に限定されず、ポリオルガノシロキサン骨格を含有する任意のモノマーを用いることができる。モノマーＳ１は、その構造に由来する極性の低さにより、使用前（被着体への貼付け前）の粘着シートにおいてポリマーＢの粘着剤層表面への偏在を促進し、貼り合わせ初期の軽剥離性（低粘着性）を発現する。モノマーＳ１としては、片末端に重合性反応基を有する構造のものを好ましく用いることができる。このようなモノマーＳ１と（メタ）アクリル系モノマーとの共重合によると、側鎖にポリオルガノシロキサン骨格を有するポリマーＢが形成される。かかる構造のポリマーＢは、側鎖の運動性および移動容易性により、初期粘着力が低く、かつ粘着力上昇比の高いものとなりやすい。

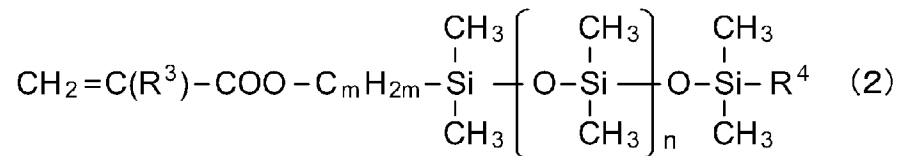
[0082] モノマーＳ１としては、例えば、下記一般式（１）または（２）で表される化合物を用いることができる。より具体的には、信越化学工業株式会社製の片末端反応性シリコンオイルとして、X-22-174ASX、X-22-2426、X-22-2475、KF-2012などが挙げられる。モノマーＳ１は、一種を単独でまたは二種以上を組み合わせ使用することが

できる。

[化1]



[化2]



ここで、上記一般式（１），（２）中の R^3 は水素またはメチルであり、 R^4 はメチル基または１価の有機基であり、 m および n は０以上の整数である。

[0083] モノマーＳ１の官能基当量は、例えば、 700 g/mol 以上 15000 g/mol 未満であることが好ましく、 800 g/mol 以上 10000 g/mol 未満であることがより好ましく、 850 g/mol 以上 6000 g/mol 未満であることがさらに好ましく、 1500 g/mol 以上 5000 g/mol 未満であることが特に好ましい。モノマーＳ１の官能基当量が 700 g/mol 未満であると、初期粘着力が十分に抑制されないことがあり得る。モノマーＳ１の官能基当量が 15000 g/mol 以上であると、粘着力の上昇が不十分になることがあり得る。モノマーＳ１の官能基当量が上記範囲内であると、粘着剤層内における相溶性（例えば、ポリマーＡとの相溶性）や移動性を適度な範囲に調節しやすく、初期の低粘着性と積層体使用時の強粘着性とを高レベルで両立する粘着シートを実現しやすくなる。

[0084] ここで、「官能基当量」とは、官能基１個当たりに結合している主骨格（例えばポリジメチルシロキサン）の重量を意味する。標記単位 g/mol に関しては、官能基 1 mol と換算している。モノマーＳ１の官能基当量は、例えば、核磁気共鳴（ＮＭＲ）に基づく $^1\text{H-NMR}$ （プロトンＮＭＲ）のスペクトル強度から算出することができる。 $^1\text{H-NMR}$ のスペクトル強度に基

づくモノマーS 1の官能基当量（g／mol）の算出は、¹H-NMRスペクトル解析に係る一般的な構造解析手法に基づいて、必要であれば日本国特許第5951153号公報の記載を参照して行うことができる。

[0085] なお、モノマーS 1として官能基当量が異なる二種類以上のモノマーを用いる場合、モノマーS 1の官能基当量としては、算術平均値を用いることができる。すなわち、官能基当量が異なるn種類のモノマー（モノマーS 1₁、モノマーS 1₂・・・モノマーS 1_n）からなるモノマーS 1の官能基当量は、下記式により計算することができる。

モノマーS 1の官能基当量（g／mol）＝（モノマーS 1₁の官能基当量×モノマーS 1₁の配合量＋モノマーS 1₂の官能基当量×モノマーS 1₂の配合量＋・・・＋モノマーS 1_nの官能基当量×モノマーS 1_nの配合量）／（モノマーS 1₁の配合量＋モノマーS 1₂の配合量＋・・・＋モノマーS 1_nの配合量）

[0086] モノマーS 1の含有量は、ポリマーBを調製するための全モノマー成分に対して、例えば5重量%以上であってよく、粘着力上昇遅延剤としての効果をよりよく発揮する観点から10重量%以上とすることが好ましく、15重量%以上としてもよく、20重量%以上としてもよい。また、モノマーS 1の含有量は、重合反応性や相溶性の観点から、ポリマーBを調製するための全モノマー成分に対して、60重量%以下とすることが適当であり、50重量%以下としてもよく、40重量%以下としてもよく、30重量%以下としてもよい。モノマーS 1の含有量が5重量%より少ないと、初期粘着力が十分に抑制されないことがあり得る。モノマーS 1の含有量が60重量%より多いと、粘着力の上昇が不十分になることがあり得る。

[0087] ポリマーBの調製に用いられるモノマー成分は、モノマーS 1に加えて、モノマーS 1と共重合可能な（メタ）アクリル系モノマーを含む。一種または二種以上の（メタ）アクリル系モノマーとモノマーS 1とを共重合させることにより、粘着剤層内におけるポリマーBの移動性を好適に調節し得る。モノマーS 1と（メタ）アクリル系モノマーとを共重合させることは、ポリ

マーBとポリマーA（例えば、アクリル系ポリマー）との相溶性の改善にも役立ち得る。

[0088] （メタ）アクリル系モノマーとしては、例えば、（メタ）アクリル酸アルキルエステルが挙げられる。例えば、ポリマーAがアクリル系ポリマーである場合に用いられ得る（メタ）アクリル酸アルキルエステルとして上記で例示したモノマーの一種または二種以上を、ポリマーBの共重合成分として用いることができる。いくつかの態様において、ポリマーBは、（メタ）アクリル酸 C_{4-12} アルキルエステル（好ましくは（メタ）アクリル酸 C_{4-10} アルキルエステル、例えば（メタ）アクリル酸 C_{6-10} アルキルエステル）の少なくとも一種をモノマー単位として含有し得る。他のいくつかの態様において、ポリマーBは、メタクリル酸 C_{1-18} アルキルエステル（好ましくはメタクリル酸 C_{1-14} アルキルエステル、例えばメタクリル酸 C_{1-10} アルキルエステル）の少なくとも一種をモノマー単位として含有し得る。ポリマーBを構成するモノマー単位は、例えば、MMA、BMAおよび2EHMAから選択される一種または二種以上を含み得る。

[0089] 上記（メタ）アクリル系モノマーの他の例として、脂環式炭化水素基を有する（メタ）アクリル酸エステルが挙げられる。例えば、シクロペンチル（メタ）アクリレート、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、イソボルニル（メタ）アクリレート、ジシクロペンタニル（メタ）アクリレート、1-アダマンチル（メタ）アクリレート等を用いることができる。いくつかの態様において、ポリマーBは、ジシクロペンタニルメタクリレート、イソボルニルメタクリレートおよびシクロヘキシルメタクリレートから選択される少なくとも一種をモノマー単位として含有し得る。

[0090] 上記（メタ）アクリル酸アルキルエステルおよび上記脂環式炭化水素基を有する（メタ）アクリル酸エステルの使用量は、ポリマーBを調製するための全モノマー成分に対して、例えば10重量%以上95重量%以下であってよく、20重量%以上95重量%以下でもよく、30重量%以上90重量%以下、40重量%以上90重量%以下、または50重量%以上85重量%以

下でもよい。

[0091] ポリマーBを構成するモノマー単位としてモノマーS 1とともに含まれ得るモノマーの他の例として、ポリマーAがアクリル系ポリマーである場合に用いられ得るモノマーとして上記で例示した各種の共重合性モノマーが挙げられる。

[0092] いくつかの態様において、ポリマーBに含まれるモノマー単位と共通するモノマー単位をポリマーAにも含ませることにより、粘着剤層内におけるポリマーBの移動性を改善し、粘着力上昇比を向上させ得る。共通するモノマー単位は、ポリマーBを構成する全モノマー単位の5重量%以上を占める成分であることが効果的であり、10重量%以上（より好ましくは20重量%以上、例えば30重量%以上）を占める成分であることが好ましい。上記共通するモノマー単位がポリマーAを構成する全モノマー単位に占める割合は、例えば1重量%以上であってよく、好ましくは3重量%以上、より好ましくは5重量%以上であり、7重量%以上であってもよい。共通するモノマー単位がポリマーAを構成する全モノマー単位に占める割合が高くなると、相溶性を改善する効果がよりよく発揮される傾向にある。また、他の特性とのバランスを考慮して、共通するモノマー単位がポリマーAを構成する全モノマー単位に占める割合は、50重量%以下でもよく、30重量%以下でもよく、15重量%以下でもよい。共通するモノマー単位として好ましく採用し得るモノマーの非限定的な例として、MMA、BMA、2EHMA、メチルアクリレート（MA）、BA、2EHA、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、イソボルニル（メタ）アクリレート、ジシクロペンタニル（メタ）アクリレート等が挙げられる。

[0093] ポリマーBのMwは特に限定されない。ポリマーBのMwは、例えば1000以上であってよく、5000以上でもよい。加熱による粘着力上昇性を高める観点から、いくつかの態様において、ポリマーBのMwは、例えば10000以上であってよく、12000以上でもよく、15000以上でもよく、17000以上でもよく、20000以上でもよい。また、一部除去

工程において第二領域を被着体から剥離しやすくする観点から、ポリマーBのMwは、例えば100000以下であってよく、70000以下でもよく、50000以下でもよく、50000未満でもよく、40000未満でもよく、35000未満でもよく、30000以下であってよく、28000以下でもよく、25000以下でもよい。ポリマーBのMwが上述したいずれかの上限値および下限値の範囲内であると、粘着剤層内における相溶性や移動性を適度な範囲に調節しやすく、一部除去工程における低粘着性と積層体使用時の強粘着性とを高レベルで両立しやすくなる。

[0094] ポリマーBは、例えば、上述したモノマーを、溶液重合法、エマルション重合法、バルク重合法、懸濁重合法、光重合法等の公知の手法により重合させることで作製することができる。

[0095] ポリマーBの分子量を調整するために連鎖移動剤を用いることができる。使用する連鎖移動剤の例としては、オクチルメルカプタン、ラウリルメルカプタン、*t*-ノニルメルカプタン、*t*-ドデシルメルカプタン、メルカプトエタノール、 α -チオグリセロール等の、メルカプト基を有する化合物；チオグリコール酸；チオグリコール酸メチル、チオグリコール酸エチル、チオグリコール酸プロピル、チオグリコール酸ブチル、チオグリコール酸*t*-ブチル、チオグリコール酸2-エチルヘキシル、チオグリコール酸オクチル、チオグリコール酸イソオクチル、チオグリコール酸デシル、チオグリコール酸ドデシル、エチレングリコールのチオグリコール酸エステル、ネオペンチルグリコールのチオグリコール酸エステル、ペンタエリスリトールのチオグリコール酸エステル等の、チオグリコール酸エステル類； α -メチルスチレンダイマー；等が挙げられる。

[0096] 連鎖移動剤の使用量としては、特に制限されないが、通常、モノマー100重量部に対して0.05重量部～20重量部、好ましくは、0.1重量部～15重量部、さらに好ましくは0.2重量部～10重量部とすることが適当である。このように連鎖移動剤の使用量を調整することで、好適な分子量のポリマーBを得ることができる。連鎖移動剤は、一種を単独でまたは二種

以上を組み合わせ使用することができる。

[0097] 特に限定するものではないが、ポリマーBの使用量は、ポリマーAの使用量100重量部に対して、例えば0.1重量部以上とすることができ、より高い効果を得る観点から0.3重量部以上としてもよく、0.4重量部以上としてもよく、0.5重量部以上としてもよく、1重量部以上または2重量部以上としてもよい。また、凝集力の過度な低下を避ける観点から、ポリマーA100重量部に対するポリマーBの使用量は、例えば75重量部以下であってよく、50重量部以下でもよく、20重量部以下でもよく、10重量部以下でもよく、8重量部以下でもよく、5重量部以下でもよい。

[0098] 粘着剤層は、ここに開示される技術により得られる効果を大きく損なわない範囲で、ポリマーAおよびポリマーB以外のポリマー（任意ポリマー）を必要に応じて含有し得る。そのような任意ポリマーの使用量は、通常、粘着剤層に含まれるポリマー成分全体の20重量%以下とすることが適当である。いくつかの態様において、上記任意ポリマーの使用量は、上記ポリマー成分全体の5重量%以下であってよく、1重量%以下でもよい。ポリマーAおよびポリマーB以外のポリマーを実質的に含有しない粘着剤層であってもよい。

[0099] （架橋剤）

粘着剤層には、凝集力の調整等の目的で、必要に応じて架橋剤が用いられ得る。架橋剤としては、粘着剤の分野において公知の架橋剤を使用することができ、例えば、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を挙げることができる。特に、イソシアネート系架橋剤、エポキシ系架橋剤、金属キレート系架橋剤が好ましい。架橋剤は、一種を単独でまたは二種以上を組み合わせ用いることができる。ここに開示される技術は、架橋剤として少なくともイソシアネート系架橋剤を用いる態様で好ましく実施され得る。

[0100] イソシアネート系架橋剤の例としては、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。

[0101] エポキシ系架橋剤としては、ビスフェノールA、エピクロルヒドリン型のエポキシ系樹脂、エチレングリシジルエーテル、ポリエチレングリコールジグリシジルエーテル、グリセリンジグリシジルエーテル、グリセリントリグリシジルエーテル、1，6－ヘキサンジオールグリシジルエーテル、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル、ジグリシジルアニリン、ジアミングリシジルアミン、N，N，N’，N’－テトラグリシジルーm－キシリレンジアミンおよび1，3－ビス（N，N－ジグリシジルアミノメチル）シクロヘキサン等を挙げることができる。

[0102] 架橋剤を使用する場合における使用量は、特に限定されず、例えばポリマーA100重量部に対して0重量部を超える量とすることができる。いくつかの態様において、ポリマーA100重量部に対する架橋剤の使用量は、例えば0.01重量部以上であってよく、0.05重量部以上でもよく、0.1重量部以上、0.5重量部以上、1重量部以上、1.5重量部以上または2重量部以上でもよい。架橋剤の使用量の増大により、より高い凝集力が得られる傾向にある。一方、過度な凝集力向上によるタックの低下を避ける観点から、ポリマーA100重量部に対する架橋剤の使用量は、通常、15重

量部以下とすることが適当であり、10重量部以下としてもよく、5重量部以下としてもよい。架橋剤の使用量が多過ぎないことは、粘着剤の流動性を利用してポリマーBの使用効果をよりよく発現させる観点からも有利となり得る。

[0103] 架橋反応をより効果的に進行させるために、架橋触媒を用いてもよい。架橋触媒としては、テトラ-*n*-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等の金属系架橋触媒等が例示される。なかでも、ジラウリン酸ジオクチルスズ等のスズ系架橋触媒が好ましい。架橋触媒の使用量は特に制限されず、例えば、ポリマーA 100重量部に対して凡そ0.0001重量部～1重量部（典型的には0.05重量部以下）とすることができる。

[0104] 粘着剤層には、必要に応じて多官能性モノマーが用いられ得る。多官能性モノマーは、上述のような架橋剤に代えて、あるいは該架橋剤と組み合わせることで、凝集力の調整等の目的のために役立ち得る。例えば、光硬化型の粘着剤組成物から形成される粘着剤層において、多官能性モノマーが好ましく用いられ得る。

多官能性モノマーとしては、例えば、エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、プロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、ポリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ポリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールジ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、1,6-ヘキサンジオールジ（メタ）アクリレート、1,12-ドデカンジオールジ（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、テトラメチロールメタントリ（メタ）アクリレート、アリル（メタ）アクリレート、ビニル（メタ）アクリレート、ジビニルベンゼン、エポキシアクリレート、ポリエステルアクリレート、ウレタンアクリレート、ブチルジオール（メタ）アクリレート

、ヘキシルジオールジ（メタ）アクリレート等が挙げられる。なかでも、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、1，6-ヘキサジオールジ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレートを好適に使用することができる。多官能性モノマーは、一種を単独でまたは二種以上を組み合わせ使用することができる。

[0105] 多官能性モノマーの使用量は、その分子量や官能基数等により異なるが、通常は、ポリマーA 100重量部に対して0.01重量部～3.0重量部程度の範囲とすることが適当である。いくつかの態様において、多官能性モノマーの使用量は、ポリマーA 100重量部に対して、例えば0.02重量部以上であってもよく、0.03重量部以上であってもよい。多官能性モノマーの使用量の増大により、より高い凝集力が得られる傾向にある。一方、過度な凝集力向上によるタックの低下を避ける観点から、多官能性モノマーの使用量は、ポリマーA 100重量部に対して2.0重量部以下であってもよく、1.0重量部以下でもよく、0.5重量部以下でもよい。多官能性モノマーの使用量が多過ぎないことは、粘着剤の流動性を利用してポリマーBの使用効果をよりよく発現させる観点からも有利となり得る。

[0106] （粘着付与樹脂）

粘着剤層には、必要に応じて粘着付与樹脂を含ませることができる。粘着付与樹脂としては、特に制限されないが、例えば、ロジン系粘着付与樹脂、テルペン系粘着付与樹脂、フェノール系粘着付与樹脂、炭化水素系粘着付与樹脂、ケトン系粘着付与樹脂、ポリアミド系粘着付与樹脂、エポキシ系粘着付与樹脂、エラストマー系粘着付与樹脂等が挙げられる。粘着付与樹脂は、一種を単独でまたは二種以上を組み合わせ用いることができる。

[0107] 粘着付与樹脂の含有量は特に限定されず、目的や用途に応じて適切な粘着性能が発揮されるように設定することができる。ポリマーA 100重量部に対する粘着付与樹脂の含有量（二種以上の粘着付与樹脂を含む場合には、それらの合計量）は、例えば5～500重量部程度とすることができる。

[0108] 粘着付与樹脂としては、軟化点（軟化温度）が凡そ80℃以上（好ましく

は凡そ100℃以上、例えば凡そ120℃以上)であるものを好ましく使用し得る。上述した下限値以上の軟化点をもつ粘着付与樹脂によると、初期の低粘着性および積層体使用時の強粘着性が効果的に改善される傾向にある。軟化点の上限は特に制限されず、例えば凡そ200℃以下(典型的には180℃以下)であり得る。粘着付与樹脂の軟化点は、JIS K2207に規定する軟化点試験方法(環球法)に基づいて測定することができる。

[0109] (粘着剤層の形成)

粘着剤層(1)は、粘着剤組成物の硬化層であり得る。すなわち、該粘着剤層(1)は、水分散型、溶剤型、光硬化型、ホットメルト型等の粘着剤組成物を適当な表面に塗布した後、硬化処理を適宜施すことにより形成され得る。二種以上の硬化処理(乾燥、架橋、重合、冷却等)を行う場合、これらは、同時に、または多段階にわたって行うことができる。モノマー成分の部分重合物(アクリル系ポリマーシロップ)を用いた粘着剤組成物では、典型的には、上記硬化処理として、最終的な共重合反応が行われる。すなわち、部分重合物をさらなる共重合反応に供して完全重合物を形成する。例えば、光硬化性の粘着剤組成物であれば、光照射が実施される。必要に応じて、架橋、乾燥等の硬化処理が実施されてもよい。例えば、光硬化性粘着剤組成物で乾燥させる必要がある場合は、乾燥後に光硬化を行うとよい。完全重合物を用いた粘着剤組成物では、典型的には、上記硬化処理として、必要に応じて乾燥(加熱乾燥)、架橋等の処理が実施される。

[0110] 粘着剤組成物の塗布は、例えば、グラビアロールコーター、リバースロールコーター、キスロールコーター、ディップロールコーター、バーコーター、ナイフコーター、スプレーコーター等の慣用のコーターを用いて実施することができる。後述する粘着剤層(2)の形成に用いられる粘着剤組成物および他の粘着剤組成物の塗布も、同様にして実施することができる。

[0111] <ベースポリマーPおよび光硬化剤を含む光硬化性組成物から形成される粘着剤層>

粘着剤層(2)は、ベースポリマーPおよび光硬化剤を含み、活性光線(

例えばUV)の照射により硬化して粘着力が向上する性質を示す。かかる性質を利用して、例えば光硬化前の粘着力が2 N / 25 mm以下となるように構成し、該光硬化前に貼付工程、カット工程および一部除去工程を行い、次いで光硬化させて粘着力を上昇させる（典型的には、5 N / 25 mm以上に上昇させる）態様で、ここに開示される積層体製造方法の実施に好適に利用することができる。活性光線照射による硬化の効率を高める観点から、粘着剤層（2）を構成する粘着剤組成物（光硬化性組成物）は、光開始剤を含んでいることが好ましい。光硬化前の粘着剤層を固くして、一部除去工程において第二領域の粘着シートを剥離除去する際に粘着剤が被着体上に残留する現象、すなわち糊残り現象を抑制する観点から、ベースポリマーPには架橋構造が導入されていることが好ましい。

[0112] （ベースポリマーP）

粘着剤層（2）のベースポリマーP（以下、「ポリマーP」と略記することがある。）としては、光学的透明性等の観点から、アクリル系ポリマーを好ましく用いることができる。例えば、粘着剤層（2）の50重量%以上がアクリル系ポリマーであることが好ましい。アクリル系ポリマーとしては、その構成モノマー成分全量のうち40重量%以上が、上述したポリマーAと同様の（メタ）アクリル酸アルキルエステルであるものを好ましく用いることができる。

[0113] アクリル系ポリマーは、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。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例としては、粘着剤層（1）に含まれるポリマーAの構成モノマー成分として例示したモノマーと同様のものが挙げられる。なかでも、ヒドロキシ基含有モノマーを含有することが好ましい。ポリマーP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。ポリマーP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）の接着性が向上するとともに、

粘着剤の流動性が低下するため、一部除去工程における被着体への糊残りが低減する傾向がある。

[0114] アクリル系ポリマーは、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。特に、ヒドロキシ基を含む（メタ）アクリル酸エステルの含有量が上記範囲であることが好ましい。

[0115] アクリル系ポリマーは、構成モノマー成分として窒素含有モノマーを含有することが好ましい。窒素含有モノマーの例としては、粘着剤層（1）に含まれるポリマーAの構成モノマー成分として例示したモノマーと同様のものが挙げられる。構成モノマー成分全量に対する窒素含有モノマーの含有量は、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。アクリル系ポリマーは、窒素含有モノマーとして、N-ビニルピロリドンを上記範囲で含有することが好ましい。

[0116] アクリル系ポリマーがモノマー成分としてヒドロキシ基含有モノマーと窒素含有モノマーの両方を含む場合に、粘着剤の凝集力および透明性が高められる傾向がある。アクリル系ポリマーは、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窒素含有モノマーの合計量が5～50重量%であることが好ましく、10～40重量%であることがより好ましく、15～35重量%であることがさらに好ましい。

[0117] アクリル系ポリマーは、上記以外のモノマー成分、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。

[0118] アクリル系ポリマーは、ホモポリマーのT_gが40℃以上のモノマーの含有量が、該アクリル系ポリマーの構成モノマー成分全量に対して5～50重量%であることが好ましく、10～40重量%であることがより好ましい。

一部除去工程における糊残りを抑制する観点から、ポリマーPの構成モノマー成分は、ホモポリマーのT_gが80℃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℃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℃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%以上でも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。特に、MMAの含有量が上記範囲であることが好ましい。なお、ポリマーPとして用いられるアクリル系ポリマーのT_gの好適範囲は、上述したポリマーAの好適なT_gと同様であり得る。

[0119] アクリル系ポリマーは、粘着剤層(1)に含まれるポリマーAと同様、公知の各種重合方法により得ることができる。例えば、溶液重合法を好ましく採用し得る。

[0120] 光硬化前の粘着剤層の接着力は、ポリマーPの構成成分および分子量に左右されやすい。適度の接着性と、一部除去工程における糊残りの抑制とを両立する観点から、アクリル系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、ポリマーPに架橋構造が導入される場合、ポリマーPの分子量とは、架橋構造導入前の分子量を指す。

[0121] (架橋剤)

粘着剤に適度の凝集力を持たせる観点から、ポリマーPには架橋構造が導入されていることが好ましい。例えば、ポリマーPを重合した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、ポリマーPに導入されたヒドロキシ基等の官能基と反応して架橋構造を形成する。イソシアネート系架橋剤としては、粘着剤層(1)と同様のものを使用し得る。

[0122] 架橋剤の使用量は、ポリマーP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、ポリマーP 100重量部に対して、例えば0.1～10重量部程度であってよく、好ましくは0.3～7重量部、より好ましくは0.5～5重量部、さらに好ましくは1～4重量部である。架橋構造の形成を促進するために、粘着剤層（1）と同様に架橋触媒を用いてもよい。

[0123] （光硬化剤）

粘着剤層（2）を構成する粘着剤組成物は、ポリマーPに加えて光硬化剤を含有することにより、光硬化性を示すように構成されている。粘着剤層（2）は、被着体との貼り合わせ後、粘着力を上昇させる刺激として活性光線の照射を行うことにより、光硬化して粘着力が向上する性質を示す。

[0124] 光硬化剤としては、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。光硬化剤としては、1分子中に2個以上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、ポリマーPとの相溶性を示す化合物が好ましい。ポリマーP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。光硬化剤がポリマーPと相溶し、組成物中で均一に分散することにより、被着体との接触面積を確保可能であり、かつ透明性の高い粘着剤層（2）を形成できる。

[0125] ポリマーP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、ポリマーP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。

[0126] アクリル系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。

[0127] ポリマーP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、ポリマーPとの相溶性が高くなる傾向がある。ポリマーP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。

[0128] 光硬化剤の種類や含有量は、主に光硬化後の粘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くほど、光硬化後の粘着力が大きくなる傾向がある。

[0129] 光硬化後の粘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て粘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く、180以上が特に好ましい。

[0130] アクリル系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ポリマーPと光硬化剤の相互作用が強く、光硬化前の粘着力が高くなる傾向がある。ここに開示される技術

では、光硬化前の粘着力を適切な範囲に抑えて一部除去工程における第二領域の除去性を高める観点からも、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。

[0131] 粘着剤組成物における光硬化剤の含有量は、ポリマーP 100重量部に対して、1～50重量部が好ましく、5～40重量部がより好ましく、10～35重量部がさらに好ましい。光硬化性化合物が、未硬化（未反応）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、ポリマーPを重合した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。

[0132] 粘着剤組成物における光硬化剤の含有量が大きくなると、光硬化剤が粘着剤層の表面にブリードアウトしやすくなる。光硬化剤が大量にブリードアウトすると、第二領域を除去した後の被着体に光硬化剤が残留しやすくなる。一方、少量の光硬化剤を表面にブリードアウトさせることにより、粘着剤層の被着体に対する粘着力を抑制し、光硬化前の低粘着性と光硬化後の強粘着性とを好適に両立させることが可能となる。

[0133] （光開始剤）

粘着剤層（2）は、光開始剤を含むことが好ましい。光開始剤は、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。光開始剤としては、光硬化剤の種類等に応じて、光カチオン開始剤（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が用いられる場合は、光ラジカル開始剤を用いることが好ましい。光ラジカル開始剤としては、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。光ラジカル発生剤は、単独で使用してもよく、二種以上を混合して使用してもよい。粘着剤層における光開始剤の含有量は、粘着剤層の全量100重量部に対して、0.001～10重量部が好ましく、0.01～

5 重量部がより好ましい。

[0134] (その他の添加剤)

上記例示の各成分の他、粘着剤層は、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、ここに開示される技術により得られる効果を大きく損なわない範囲で含有していてもよい。

[0135] (粘着剤層の形成)

粘着剤層(2)は、例えば、ポリマーP、光硬化剤および必要に応じて用いられる他の成分とを含む粘着剤組成物を適当な表面に塗布した後、必要に応じて溶媒を乾燥除去することにより形成することができる。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℃～200℃、より好ましくは50℃～180℃、さらに好ましくは70℃～170℃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。

[0136] 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℃～160℃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。架橋剤によりポリマーに架橋構造を導入した後も、光硬化剤は未反応の状態を維持している。そのため、架橋構造が導入されたポリマーPと未反応の光硬化剤とを含む、光硬化性の粘着剤層(2)が形成される。

[0137] (摩擦力)

光硬化前の粘着剤層(2)は、粘着力を抑制しやすくする観点から、摩擦力顕微鏡(FFM)のタッピングモードにより測定される周波数5Hzでの摩擦力が、周波数0.1Hzでの摩擦力の2～5倍であることが好ましい。また、粘着剤層(2)の周波数0.1Hzと5Hzの摩擦力の比が当該範囲にある場合に、光硬化後の粘着力を光硬化前に比べて大きく上昇させやすく

なる傾向にある。

[0138] FFMでは、走査型プローブ顕微鏡（SPM）のプローブと試料表面との間に働く力を、カンチレバーの板バネの変位（ねじれ量）に変換し、この変位を電氣的に検出する。変位量は差分電圧に比例し、摩擦力はカンチレバーのバネ定数および変位量に比例する。したがって、摩擦力はFFM差分電圧に比例する。周波数5 Hzでの摩擦力と、周波数0.1 Hzでの摩擦力との比は、両者のFFM差分信号の比に等しい。

[0139] ナノトライボロジーによる摩擦力は、粘着剤層の表面の被着体との接着性を反映する傾向があり、摩擦力が小さいことは、粘着剤の表面が液状に近く、粘りが小さいことを意味する。粘着剤層の表面が粘性を有する場合は、摩擦力が大きくなるとともに、FFMにより測定される摩擦力に周波数依存性が現れる。特定の周波数で測定される摩擦力は、粘着剤組成物の構成成分の個々の物性を反映しやすいのに対して、周波数依存は表面の特性をよりの確に反映する傾向がある。摩擦力の周波数依存が小さいほど、粘性が小さく液状の特性が強いことを表し、摩擦力の周波数依存が大きいほど、粘性が大きく被着体に対する接着性が高くなる傾向がある。例えば、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、液状の光硬化剤が表面にブリードアウトして、被着体との接着界面に接着阻害層（Weak Boundary Layer; WBL）が形成され、液状の特性が強くなるため、摩擦力および摩擦力の周波数依存が小さくなる傾向がある。

[0140] 粘着剤層（2）におけるポリマーPと光硬化剤との相溶性を制御することにより、少量の光硬化剤が粘着剤層表面にブリードアウトして、WBLが形成される場合がある。WBLが適度に形成されると、表面（接着界面）の特性が変化し、摩擦力および摩擦力の周波数依存が小さくなる。これにより、光硬化前の粘着力を抑制しやすくなり、該光硬化前に一部除去工程を行う場合における第二領域の剥離が容易となる。

[0141] 光硬化前の粘着剤層の周波数5 Hzでの摩擦力が、周波数0.1 Hzでの摩擦力の5倍以下の場合に、光硬化前の粘着剤層と被着体との剥離が容易と

なる傾向がある。光硬化剤のブリードアウトを避ける観点から、粘着剤層の周波数 5 Hz での摩擦力は、周波数 0.1 Hz での摩擦力の 2 倍以上が好ましく、3 倍以上がより好ましく、3.5 倍以上がさらに好ましい。

[0142] 被着体に対する適度な接着性と剥離性とを両立する観点から、バネ定数 40 N/m のカンチレバーを用いて測定した光硬化前の粘着剤層の周波数 5 Hz での FFM 差分信号は、0.01 ~ 1 V が好ましく、0.05 ~ 0.9 V がより好ましく、0.1 ~ 0.8 V がさらに好ましく、0.2 ~ 0.7 V が特に好ましい。

[0143] 光硬化後の粘着力を高める観点から、光硬化後の粘着剤層は、FFM により測定される周波数 5 Hz での摩擦力が、周波数 0.1 Hz での摩擦力の 5 倍以上であることが好ましく、5.5 倍以上であることがより好ましい。バネ定数 40 N/m のカンチレバーを用いて測定した光硬化後の粘着剤層の周波数 5 Hz での FFM 差分信号は、0.1 V 以上が好ましく、0.2 V 以上がより好ましく、0.3 V 以上がさらに好ましい。粘着力向上の観点からは、光硬化後の粘着剤層の摩擦力は大きいほど好ましい。そのため、摩擦力の上限は特に制限されないが、バネ定数 40 N/m のカンチレバーを用いて測定した 5 Hz での FFM 差分信号は、一般には 10 V 以下であり、粘着剤の特性のバランスを考慮すると 5 V 以下が好ましい。

[0144] 光硬化後の粘着剤層の周波数 5 Hz での摩擦力は、光硬化前の粘着剤層の周波数 5 Hz での摩擦力の 1.5 倍以上が好ましく、2 倍以上がより好ましく、2.5 倍以上がさらに好ましく、3 倍以上が特に好ましい。光硬化前後の摩擦力の比が大きいほど、光硬化による接着力の増加率が高くなる傾向がある。光硬化後の摩擦力は、一般的には、光硬化前の摩擦力の 20 倍以下であり、好ましくは 10 倍以下である。

[0145] なお、光硬化前および光硬化後の粘着剤層の周波数 0.1 Hz および 5 Hz での摩擦力は、走査型プローブ顕微鏡（日立ハイテクサイエンス製「AFM 5300E」）の FFM モードで、下記の条件により、一方向のスキャン幅 5 μ m（往復で 10 μ m 走査）でフリクショナル測定を行い、測定範囲の

左側から $3\text{ }\mu\text{m}$ の位置での差分電圧を読み取ることにより測定される。

(測定条件)

カンチレバー：Budget Sensors 製「Tap 300E-G」

(バネ定数 40 N/m 相当品)

ADD 値： 8.44 V 、DIF 値： 0.4 V 、FFM 値： 0 V

雰囲気：真空、室温

スキャン速度： 0.1 Hz 、 1 Hz および 5 Hz

[0146] 粘着剤層 (2) の光硬化に利用し得る活性光線の例としては、紫外線 (UV)、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しやすく、かつ硬化が容易であることから、活性光線としては UV 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。

[0147] 粘着剤層 (2) は、光硬化性であり、硬化により粘着力を上昇させるタイミングを任意に設定可能である。したがって、被着体に粘着シートを貼設後、粘着剤を光硬化するまでの間の任意のタイミングで一部除去工程を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。

[0148] <粘着シートの構造>

ここに開示される製造方法に用いられる粘着シートの厚さは特に限定されず、例えば $3\text{ }\mu\text{m}$ ~ 11 mm 程度であり得る。粘着シートの取扱い性等の観点から、粘着シートの厚さは、通常、 $5\text{ }\mu\text{m}$ 以上であることが適当であり、 $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上でもよく、 $30\text{ }\mu\text{m}$ 以上でもよい。一部除去工程における第二領域の剥離作業性等の観点から、いくつかの態様において、厚さが $50\text{ }\mu\text{m}$ 以上、 $70\text{ }\mu\text{m}$ 以上または $90\text{ }\mu\text{m}$ 以上の粘着シートを好ましく使用し得る。また、カット工程における切断加工性や一部除去工程における第二領域の剥離作業性等の観点から、粘着シートの厚さは、例えば $1000\text{ }\mu\text{m}$ 以下であってよく、 $600\text{ }\mu\text{m}$ 以下であってもよく、 $350\text{ }\mu\text{m}$ 以下でもよく、 $200\text{ }\mu\text{m}$ 以下でもよく、 $150\text{ }\mu\text{m}$ 以下でもよい。

[0149] 基材層と粘着剤層とを含む粘着シートにおいて、粘着剤層の厚さは特に限定されず、例えば $1\ \mu\text{m} \sim 1000\ \mu\text{m}$ 程度の範囲とすることができる。いくつかの態様において、粘着剤層の厚さは、例えば $3\ \mu\text{m}$ 以上であってよく、 $5\ \mu\text{m}$ 以上でもよく、 $8\ \mu\text{m}$ 以上でもよく、 $10\ \mu\text{m}$ 以上でもよく、 $13\ \mu\text{m}$ 以上でもよく、 $20\ \mu\text{m}$ 以上または $20\ \mu\text{m}$ 超でもよい。粘着剤層の厚さの増大により、粘着片がより強固に被着体に接合した積層体を得られる傾向にある。一方、粘着剤層の厚さが過度に大きいと、第一領域の粘着剤と第二領域の粘着剤とのブロッキング等により、一部除去工程における作業性（例えば、第一領域と第二領域との分離性）が低下傾向となることがあり得る。かかる観点から、粘着剤層の厚さは、例えば $300\ \mu\text{m}$ 以下であってよく、 $200\ \mu\text{m}$ 以下でもよく、 $150\ \mu\text{m}$ 以下でもよく、 $100\ \mu\text{m}$ 以下でもよく、 $70\ \mu\text{m}$ 以下でもよく、 $50\ \mu\text{m}$ 以下でもよく、 $40\ \mu\text{m}$ 以下でもよく、 $30\ \mu\text{m}$ 以下でもよい。

[0150] 基材層と粘着剤層とを含む粘着シートにおいて、基材層の厚さは特に限定されず、例えば $2\ \mu\text{m} \sim 10\ \text{mm}$ 程度であり得る。粘着シートの取扱い性や一部除去工程における第二領域の千切れ防止の観点から、いくつかの態様において、基材層の厚さは、例えば $5\ \mu\text{m}$ 以上であってよく、 $10\ \mu\text{m}$ 以上でもよく、 $25\ \mu\text{m}$ 以上でもよく、 $35\ \mu\text{m}$ 以上でもよく、 $50\ \mu\text{m}$ 以上でもよく、 $60\ \mu\text{m}$ 以上でもよい。また、カット工程における切断加工性等の観点から、いくつかの態様において、基材層の厚さは、例えば $1000\ \mu\text{m}$ 以下であってよく、 $500\ \mu\text{m}$ 以下でもよく、 $300\ \mu\text{m}$ 以下でもよく、 $200\ \mu\text{m}$ 以下でもよく、 $150\ \mu\text{m}$ 以下でもよく、 $100\ \mu\text{m}$ 以下でもよく、 $90\ \mu\text{m}$ 以下でもよい。

[0151] ここに開示される製造方法に用いられる粘着シートは、基材層の厚さ T_s が粘着剤層の厚さ T_a より大きい態様で好適に実施され得る。すなわち、 T_s/T_a が1より大きいことが好ましい。特に限定するものではないが、 T_s/T_a は、例えば1.1以上であってよく、1.2以上でもよく、1.5以上でもよく、2以上でもよく、2.5以上でもよい。また、 T_s/T_a は

、例えば50以下であってよく、20以下でもよく、10以下でもよく、7以下でもよい。上述したいずれかの上限値を満たし、かつ／または、上述したいずれかの下限値を満たす構成の粘着シートを用いることにより、一部除去工程における良好な剥離作業性と、最終的に得られる積層体における粘着片の被着体への強固な接着性とがバランスよく両立する傾向にある。

[0152] いくつかの態様において、貼付工程に用いられる粘着シートは、例えば面積が 2500 cm^2 以上であり、かつ短辺の長さが 50 cm 以上であり得る。このように大判の粘着シートを用いる態様では、ここに開示される製造方法を採用することが特に有意義である。かかる粘着シートを用いることにより、例えば、位置精度の向上、形状精度の向上、生産性の向上等のうち一または二以上の効果が好適に発揮される傾向にある。また、ここに開示される製造方法によると、粘着シートの被着体に対する粘着力が $2\text{ N}/25\text{ mm}$ を超える前に該粘着シートの第二領域を剥離除去する一部除去工程を行うので、上記のように大判の粘着シートであっても第二領域の剥離除去を行いやすい。上記粘着シートの面積が 3600 cm^2 以上、より好ましくは 4900 cm^2 以上である態様や、上記短辺の長さが 60 cm 以上、より好ましくは 70 cm 以上である態様によると、さらに高い効果が発揮され得る。

[0153] <用途>

ここに開示される方法によると、粘着片によるパターンが被着体上に精度よく形成され、かつ上記パターンの耐久性に優れた積層体を、効率よく製造することができる。かかる特長を活かして、ここに開示される方法は、車両の外装材や内装材、建物の外装材や内装材等の建材、窓ガラス、看板、標識、家電製品、光学製品、電子製品等の製品またはその構成部材を被着体とし、そのような被着体が粘着片のパターンによって部分的に覆われた積層体を製造する用途に好ましく適用され得る。上記積層体は、上述した各種製品またはその構成部材であり得る。上記粘着片は、上記積層体の構成要素として各種製品に含まれることにより、該積層体に含まれる被着体、または上記積層体を含む製品やその部材に、装飾、表示、保護、補強、衝撃緩和、応力集

中の緩和、形状維持、形状回復、等の機能を付与するために役立ち得る。ここに開示される方法は、例えば、フィルムカバーレイを備えたFPCの製造に好ましく適用され得る。

[0154] また、光学製品に用いられる光学部材や、電子製品に用いられる電子部材では、高度な集積化、小型軽量化、薄型化が進行しており、線膨張係数や厚みの異なる複数の薄い光学部材／電子部材が積層され得る。このような部材を被着体として、ここに開示される方法を利用して上記部材が粘着片で部分的に覆われた積層体を形成することにより、上記光学部材／電子部材に適度な剛性を付与することができる。これにより、製造プロセスおよび／または製造後の製品において、上記線膨張係数や厚みの異なる複数の部材間に発生し得る応力に起因するカールや湾曲を抑制することができる。

[0155] また、光学製品／電子製品の製造プロセスにおいて、上述のように薄い光学部材／電子部材に切断加工等の形状加工処理を行う局面において、該部材（被着体）が粘着片で部分的に覆われた積層体を形成することにより、上記粘着片を補強部材として利用して、上記積層体の加工に伴う光学部材／電子部材への局所的な応力集中を緩和し、クラック、割れ、積層部材の剥がれなどのリスクを低減することができる。光学部材／電子部材に補強部材を貼り付けて取り扱うことは、該部材の搬送、積層、回転等の際における局所的な応力集中の緩和や、該部材の自重による折れや湾曲の抑制等にも役立ち得る。

[0156] さらに、被着体が上記粘着片のパターンで部分的に覆われた積層体を含む光学製品や電子製品等のデバイスは、市場において消費者に使用される段階において、該デバイスが落下した場合、重量物の下に置かれた場合、飛来物が衝突した場合等、非意図的な応力が付与された場合にも、該デバイスに含まれる上記粘着片が補強部材として機能することで、デバイスにかかるストレスを緩和し、耐久性を向上させ得る。

[0157] ここに開示される方法は、例えば各種の携帯機器（ポータブル機器）の構成部材を被着体とし、上記部材が粘着片のパターンで部分的に覆われた積層

体を製造するために好ましく用いられ得る。ここで「携帯」とは、単に携帯することが可能であるだけでは充分ではなく、個人（標準的な成人）が相対的に容易に持ち運び可能なレベルの携帯性を有することを意味するものとする。また、ここでいう携帯機器の例には、携帯電話、スマートフォン、タブレット型パソコン、ノート型パソコン、各種ウェアラブル機器、デジタルカメラ、デジタルビデオカメラ、音響機器（携帯音楽プレーヤー、ICレコーダー等）、計算機（電卓等）、携帯ゲーム機器、電子辞書、電子手帳、電子書籍、車載用情報機器、携帯ラジオ、携帯テレビ、携帯プリンター、携帯スキャナ、携帯モデム等の携帯電子機器の他、機械式の腕時計や懐中時計、懐中電灯、手鏡等が含まれ得る。上記携帯電子機器を構成する部材の例には、液晶ディスプレイ等の薄層ディスプレイやフィルム型ディスプレイ等のような画像表示装置に用いられる光学フィルムや表示パネル等が含まれ得る。ここに開示される方法は、自動車、家電製品等における各種部材を被着体とし、該部材が粘着片のパターンで部分的に覆われた積層体を製造する用途にも好ましく適用され得る。

実施例

[0158] 以下、本発明に関するいくつかの実施例を説明するが、本発明をかかる具体例に示すものに限定することを意図したものではない。なお、以下の説明中の「部」および「%」は、特に断りがない限り重量基準である。

[0159] （ポリマーA1の調製）

攪拌羽根、温度計、窒素ガス導入管および冷却器を備えた反応容器に、2-エチルヘキシルアクリレート（2EHA）63部、N-ビニルピロリドン（NVP）15部、メチルメタクリレート（MMA）9部、2-ヒドロキシエチルアクリレート（HEA）13部、および重合溶媒として酢酸エチル200部を仕込み、60℃にて窒素雰囲気下で2時間攪拌した後、熱開始剤としてAIBN 0.2部を投入し、60℃で6時間反応を行って、ポリマーA1の溶液を得た。このポリマーA1のMwは110万であった。

[0160] （ポリマーA2の調製）

使用するモノマーの組成を 2 E H A / H E A = 9 5 / 5 (重量比) に変更した他はポリマー A 1 の合成と同様にして溶液重合を行うことにより、ポリマー A 2 の溶液を得た。このポリマー A 2 の Mw は 9 0 万であった。

[0161] (ポリマー B 1 の調製)

攪拌羽根、温度計、窒素ガス導入管および冷却器を備えた反応容器に、MMA 4 0 部、*n*-ブチルメタクリレート (BMA) 2 0 部、2-エチルヘキシルメタクリレート (2 E HMA) 2 0 部、官能基当量が 9 0 0 g / m o l のポリオルガノシロキサン骨格含有メタクリレートモノマー (商品名: X-2 2 - 1 7 4 A S X、信越化学工業株式会社製) 9 部、官能基当量が 4 6 0 0 g / m o l のポリオルガノシロキサン骨格含有メタクリレートモノマー (商品名: K F - 2 0 1 2、信越化学工業株式会社製) 1 1 部、酢酸エチル 1 0 0 部、および連鎖移動剤としてチオグリセロール 0. 6 部を投入し、7 0 °C にて窒素雰囲気下で 1 時間攪拌した後、熱開始剤として A I B N 0. 2 部を投入し、7 0 °C で 3 時間反応させた後に、さらに 0. 1 重量部の A I B N を投入し、続いて 8 0 °C で 5 時間反応させた。このようにしてシロキサン構造含有ポリマー B 1 の溶液を得た。このポリマー B 1 の Mw は 2 0 0 0 0 であった。

[0162] なお、上述した各ポリマーの重量平均分子量は、GPC 装置 (東ソー社製、HLC-8 2 2 0 GPC) を用いて下記の条件で測定を行い、ポリスチレン換算により求めた。

- ・サンプル濃度: 0. 2 w t % (テトラヒドロフラン (THF) 溶液)
- ・サンプル注入量: 1 0 μ l
- ・溶離液: THF ・流速: 0. 6 m l / m i n
- ・測定温度: 4 0 °C
- ・カラム:
 - サンプルカラム; TSKguardcolumn SuperHZ-H (1 本) + TSKgel SuperHZM-H (2 本)
 - リファレンスカラム; TSKgel SuperH-RC (1 本)

・検出器：示差屈折計（R I）

[0163] <粘着シートの作製>

（粘着シートD 1）

上記ポリマーA 1の溶液に、該溶液に含まれるポリマーA 1の100部当たり、固形分基準で、ポリマーB 1を2.5部、イソシアネート系架橋剤（商品名：タケネートD 110N、トリメチロールプロパンキシリレンジイソシアネート、三井化学社製）を2.5部添加し、均一に混合して粘着剤組成物C 1を調製した。

表面処理がされていない厚さ75 μ mのPETフィルム（東レ製「ルミラーS 10」）の片面に、粘着剤組成物C 1を直接塗布し、110℃で2分間加熱して乾燥させることにより厚さ25 μ mの粘着剤層を形成し、該粘着剤層の表面（粘着面）に剥離ライナー（三菱ケミカル社製のMRQ 50T 100、片面がシリコン系剥離剤で処理されたポリエステルフィルム、厚さ50 μ m）の剥離処理面を貼り合わせて保護した。このようにして、厚さ75 μ mのPETフィルムからなる基材層の片面に粘着剤層を有し、該粘着剤層の表面（粘着面）が剥離ライナーで保護された形態の粘着シートD 1を得た。

[0164] （粘着シートD 2）

上記ポリマーA 1の溶液に、該溶液に含まれるポリマーA 1の100部当たり、固形分基準で、イソシアネート系架橋剤（商品名：タケネートD 110N、トリメチロールプロパンキシリレンジイソシアネート、三井化学社製）を2.5部、光硬化剤（商品名：A-200、ポリエチレングリコール#200ジアクリレート、官能基当量154 g/e q、新中村化学工業製）を30部、および光開始剤を0.1部添加し、均一に混合して、粘着剤組成物C 2を調製した。光開始剤としては、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」）を使用した。

表面処理がされていない厚さ75 μ mのPETフィルム（東レ製「ルミラーS 10」）の片面に、ファウンテンロールを用いて粘着剤組成物C 2を直

接塗布し、130℃で1分間加熱して乾燥させることにより、厚さ25 μ mの粘着剤層を形成した。この粘着剤層の表面（粘着面）に剥離ライナー（表面がシリコン剥離剤で処理されたPETフィルム、厚さ25 μ m）の剥離処理面を貼り合わせて保護し、25℃の雰囲気中で4日間のエージング処理を行って架橋を進行させた。このようにして、粘着面が剥離ライナーで保護された形態の粘着シートD2を得た。

[0165] （粘着シートD3）

上記ポリマーA2の溶液に、該溶液に含まれるポリマーA2の100部当たり、イソシアネート系架橋剤（商品名：タケネートD110N、トリメチロールプロパンキシリレンジイソシアネート、三井化学社製）を固形分基準で2.5部添加し、均一に混合して粘着剤組成物C3を調製した。粘着剤組成物C1に代えて粘着剤組成物C3を用いた他は粘着シートD1の作製と同様にして、粘着面が剥離ライナーで保護された形態の粘着シートD3を得た。

[0166] （粘着シートD4）

ポリマーB1を使用しない他は粘着剤組成物C1の調製と同様にして、粘着剤組成物C4を調製した。粘着剤組成物C1に代えて粘着剤組成物C4を用いた他は粘着シートD1の作製と同様にして、粘着面が剥離ライナーで保護された形態の粘着シートD4を得た。

[0167] ＜ポリイミドに対する粘着力の測定＞

厚さ12.5 μ mのポリイミドフィルム（東レ・デュポン製「カプトン50EN」）を、両面粘着テープ（日東電工製「No. 531」）を介してガラス板に固定することにより、粘着力測定用のテストピースを作製した。また、粘着シートD1～D4を幅25mmの短冊状に裁断して測定用サンプルを作製した。

23℃、50%RHの標準環境下において、上記テストピースに測定用サンプルの粘着面を、2kgのローラを1往復させて圧着した。これを上記標準環境下に30分間放置した後、引張試験機（ミネベア社製「TCM-1k

NB」) を使用して、JIS Z0237 に準じて剥離角度 180 度、引張速度 300 mm/分の条件で剥離強度 (初期粘着力) B_0 [N/25 mm] を測定した。

また、初期粘着力 B_0 の測定において、テストピースに測定用サンプルを圧着してから標準環境下に放置する時間を 12 時間および 24 時間に変更した。その他の点は初期粘着力 B_0 の測定と同様にして、室温 12 時間後粘着力 [N/25 mm] および室温 24 時間後粘着力 [N/25 mm] を測定した。

さらに、初期粘着力 B_0 の測定と同様にしてテストピースに測定用サンプルを圧着し、常温 (ここでは約 25℃) の蛍光灯下に約 4 週間保持した後、初期粘着力 B_0 の測定と同様にして剥離強度 (4 週間後粘着力) [N/25 mm] を測定した。

[0168] また、粘着シート D1 から作製した測定用サンプルを、初期粘着力 B_0 の測定と同様にしてテストピースに圧着し、上記標準環境下に 30 分間放置した後、80℃で 5 分間加熱した。さらに上記標準環境下に 30 分間放置した後、同様に剥離角度 180 度、引張速度 300 mm/分の条件で剥離強度 (加熱後粘着力) [N/25 mm] を測定したところ、13.94 N/25 mm であった。

また、粘着シート D2 から作製した測定用サンプルを、初期粘着力 B_0 の測定と同様にしてテストピースに圧着し、上記標準環境下に 30 分間放置した後、ウシオ社製の UniField を用いて、主波長約 365 nm の紫外線を、2000 mJ/cm² の光量となるように照射した。さらに上記標準環境下に 30 分間放置した後、同様に剥離角度 180 度、引張速度 300 mm/分の条件で剥離強度 (UV 照射後粘着力) [N/25 mm] を測定したところ、19.84 N/25 mm であった。

[0169] <積層体の製造>

(製造例 1)

粘着シート D1 を幅 25 mm、長さ 100 mm のサイズに裁断して、積層体製造用の粘着シートを調製した。また、被着体として、厚さ 12.5 μm

、幅30mm、長さ120mmのポリイミドフィルム（東レ・デュポン社製、「カプトン50EN」）を用意した。

上記被着体の中央と上記粘着シートの中央とを位置合わせして、上記被着体に上記粘着シートをハンドローラーにより貼り付けた（貼付工程）。

上記被着体に粘着シートを貼り付けた後であってかつ下記一部除去工程の前に、カット工程を行った。得られた粘着シート／被着体積層物における粘着シートの幅中央に、該粘着シートの長手方向の一端から他端まで直線状に延びる幅2mm、長さ100mmの第二領域を設定し、該第二領域とその両側の第一領域との境界（二本の直線）に沿って粘着シート面側からレーザーを照射することにより、粘着シートD1のみを切断する切断加工を施した。上記切断加工は、GCC社製のレーザー切断装置「Spirit, Model number SI-30V」を使用して、以下の条件で行った。

Speed : 9.0%

Power : 10.0%

DPI : 500

PPI : 400

上記被着体に粘着シートを貼り付けてから約12時間後に、一部除去工程を行った。具体的には、第二領域の一端を被着体から剥がして引張試験機のチャックで掴み、剥離角度180度、引張速度300mm／分の条件で粘着シートの長手方向に引っ張ることにより、幅2mmのスリット状の第二領域を被着体から剥離除去した。

次いで、粘着力上昇刺激として上述の加熱（80℃、5分間）を行うことにより（粘着力上昇工程）、目的とする積層体、すなわち上記被着体が上記パターン加工された粘着シートで覆われた構成の積層体を作製した。表1には、製造例1の一部除去工程時の粘着力として粘着シートD1の室温12時間後粘着力の値を、積層体の粘着力として粘着シートD1の加熱後粘着力の値を記載している。

[0170] （製造例2）

粘着シートD 1 に代えて粘着シートD 2 を用いた点、および粘着力上昇工程において加える刺激を加熱から上述のUV照射（主波長約365 nm、光量2000 mJ / cm²）に変更した点を除いては、製造例1と同様の手順で積層体を製造した。表1には、製造例2の一部除去工程時の粘着力として粘着シートD 2 の室温12時間後粘着力の値を、積層体の粘着力として粘着シートD 2 のUV照射後粘着力の値を記載している。

[0171] （製造例3，4）

表1に示す粘着シートをそれぞれ使用して、カット工程の後、上述の加熱およびUV照射のいずれも行わず、代わりに粘着シートの被着体への貼付からの経過時間が24時間となるまで上述の標準環境下に放置した。その他の点については製造例1と同様の手順により積層体を製造した。表1には、製造例3，4の一部除去工程時の粘着力として各粘着シートの室温12時間後粘着力の値を、積層体の粘着力として各粘着シートの室温24時間後粘着力の値を記載している。

[0172] （製造例5）

製造例1において、粘着シートD 1 を被着体に貼り付けてから約11時間後に上述の加熱（80℃、5分間）を行い、次いで粘着シートD 1 を被着体に貼り付けてからの経過時間が約12時間となるまで室温に保持した後に、一部除去工程を行った。その他の点については製造例1と同様にして積層体を製造した。表1には、製造例5の一部除去工程時の粘着力として粘着シートD 2 の加熱後粘着力の値を記載している。

[0173] （製造例6，7）

製造例1と同様にして粘着シートD 1，D 2 を被着体に貼り付け、上記標準環境に維持された室内で蛍光灯下に約24時間放置した後、同様にカット工程を行い、次いで一部除去工程を行った。その後、粘着シートD 1，D 2 を被着体に貼り付けてからの経過時間が4週間となるまで上記標準環境の室内で蛍光灯下に保持することにより、製造例6，7に係る積層体を得た。表1には、製造例6，7の一部除去工程時の粘着力として各粘着シートの室温

24時間後粘着力の値を、積層体の粘着力として各粘着シートの4週間後粘着力の値を記載している。

[0174] (スリット部除去性評価)

各製造例の一部除去工程において、被着体から第二領域を剥離する際に被着体に伸び等の変形が認められなかった場合には「G」（パターン加工性良好）、変形が認められた場合には「P」（パターン加工性に乏しい）と評価した。結果を表1に示した。

なお、製造例4、5では第二領域の剥離を適切に行うことができなかったため、以下の耐久性試験は行わなかった。また、製造例1～3および6、7のいずれにおいても、第二領域の剥離時に被着体への糊残りや被着体の汚染は認められなかった。

[0175] (耐久性試験)

製造例1～3および6、7により得られた積層体について、ユアシステム機器社製の面状体無負荷U字伸縮試験機「DLDM111LH」および治具（面状体無負荷U字伸縮試験治具）を用いて、伸縮速度30rpm、曲げ半径3mm、伸縮回数100回の条件で耐久性試験を行った。

具体的には、図6に示すように、サンプル60の両端部x、yを上記試験機のクランプ部分61、62に両面テープ（図示せず）で固定した後、上記条件にて、サンプル60が平面の状態から粘着シート側を内側として曲げ半径3mmのU字状に折れ曲るような伸縮を繰り返して行った。サンプル60を折り曲げる際には、クランプの作動によりサンプル60の両端部x、yを接触させるとともに、サンプル60の他の部分を別途設置されている板部63、64により両外側から無負荷で挟み込むようにした。

100回伸縮後のサンプルの状態を目視により観察し、粘着シートと被着体の間に浮きが認められなかった場合は「G」（耐久性良好）、浮きが認められた場合は「P」（耐久性に乏しい）と評価した。結果を表1に示した。

[0176]

[表1]

表 1

	粘着シート	粘着力 [N/25mm]			パターン 加工性	耐久性
		初期	一部除去工程時	積層体		
製造例 1	D 1	0.43	0.45	13.94	G	G
製造例 2	D 2	0.35	0.42	19.84	G	G
製造例 3	D 3	0.28	0.32	0.36	G	P
製造例 4	D 4	18.82	18.82	19.29	P	—
製造例 5	D 1	0.43	13.94	—	P	—
製造例 6	D 1	0.43	0.45	12.2	G	G
製造例 7	D 2	0.35	0.56	12.9	G	G

[0177] 表 1 に示されるように、粘着力が 5 N / 25 mm である積層体の製造に係る製造例 1, 2, 4 ~ 7 のうち、粘着力が 2 N / 25 mm を超える前に一部除去工程を行った製造例 1, 2, 6, 7 では一部除去工程における第二領域の剥離性が良好であり、かつ製造された積層体が良好な耐久性を示した。これに対して、製造例 3 では得られた積層体の耐久性が低く、製造例 4, 5 では一部除去工程における第二領域の剥離性に難があった。

[0178] 以上、本発明の具体例を詳細に説明したが、これらは例示にすぎず、特許請求の範囲を限定するものではない。特許請求の範囲に記載の技術には、以上に例示した具体例を様々に変形、変更したものが含まれる。

符号の説明

- [0179] 1 積層体
- 1 0 被着体
- 1 0 A 表面
- 2 0 粘着シート
- 2 1 第一領域
- 2 1 A, 2 1 B 粘着片
- 2 2 第二領域
- 2 0 2 基材層
- 2 0 4 粘着剤層
- 5 0 積層体製造装置

- 5 1 貼付機構
- 5 2 カット機構
- 5 3 剥離機構

請求の範囲

- [請求項1] 被着体と該被着体を部分的に覆う粘着片とを含み、前記粘着片の前記被着体に対する粘着力が $5\text{ N} / 25\text{ mm}$ 以上である積層体の製造方法であって、
- 基材層と該基材層の少なくとも前記被着体側の面に積層された粘着剤層とを含む粘着シートを前記被着体に貼り付ける貼付工程；
- 前記粘着シートのうち前記粘着片を構成する第一領域と前記粘着片を構成しない第二領域との境界に切断加工を施すカット工程；
- 前記第一領域を前記被着体上に残しつつ前記第二領域を前記被着体から剥離除去する一部除去工程；および、
- を、この順で含み、
- ここで、前記一部除去工程は、前記粘着シートの前記被着体に対する粘着力が $2\text{ N} / 25\text{ mm}$ を超える前に行われる、積層体製造方法。
- [請求項2] 前記粘着シートとして、ポリイミドに貼り合わせた後、 23°C で24時間経過後の粘着力が $2\text{ N} / 25\text{ mm}$ 以下であるものを使用する、請求項1に記載の積層体製造方法。
- [請求項3] 前記一部除去工程の後に加熱処理を行って前記第一領域の前記被着体に対する粘着力を $5\text{ N} / 25\text{ mm}$ 以上にする、請求項1または2に記載の積層体製造方法。
- [請求項4] 前記粘着剤層は、ガラス転移温度が 0°C 未満のポリマーAと、ポリオルガノシロキサン骨格を有するモノマーと（メタ）アクリル系モノマーとの共重合体であるポリマーBと、を含む、請求項3に記載の積層体製造方法。
- [請求項5] 前記一部除去工程の後に紫外線照射処理を行って前記第一領域の前記被着体に対する粘着力を $5\text{ N} / 25\text{ mm}$ 以上にする、請求項1または2に記載の積層体製造方法。
- [請求項6] 前記粘着剤層は、ベースポリマーと光硬化剤とを含む光硬化性組成物からなり、

前記光硬化剤は多官能（メタ）アクリレートであり、

前記光硬化剤の含有量は、前記ベースポリマー 100 重量部に対して 1 重量部以上 50 重量部以下である、請求項 5 に記載の積層体製造方法。

[請求項7] 前記一部除去工程の後、前記第一領域の前記被着体に対する粘着力が $5\text{ N} / 25\text{ mm}$ 以上になるまで常温で保管する、請求項 1 または 2 に記載の積層体製造方法。

[請求項8] 前記粘着シートの厚さが $30\text{ }\mu\text{m}$ 以上であり、かつ、前記基材層の厚さ T_s が前記粘着剤層の厚さ T_a の 2 倍以上である、請求項 1 から 7 のいずれか一項に記載の積層体製造方法。

[請求項9] 前記第二領域は、該第二領域の少なくとも一端が前記粘着シートの端に至るように設定される、請求項 1 から 8 のいずれか一項に記載の積層体製造方法。

[請求項10] 前記第二領域は、前記粘着シートの端に至る一端が当該粘着シートの端に向けて幅広になる形状である、請求項 9 に記載の積層体製造方法。

[請求項11] 前記貼付工程に用いられる前記粘着シートは、面積が 2500 cm^2 以上であり、かつ短辺の長さが 50 cm 以上である、請求項 1 から 10 のいずれか一項に記載の積層体製造方法。

[請求項12] 前記貼付工程に用いられる前記粘着シートおよび前記被着体として、前記積層体に対応するユニットを複数含むものを使用し、
前記貼付工程より後に行われる工程として、前記粘着シートおよび前記被着体を前記ユニットに分割する分割工程をさらに含む、請求項 1 から 11 のいずれか一項に記載の積層体製造方法。

[請求項13] 請求項 1 から 12 のいずれか一項に記載の製造方法を実施するための装置であって、

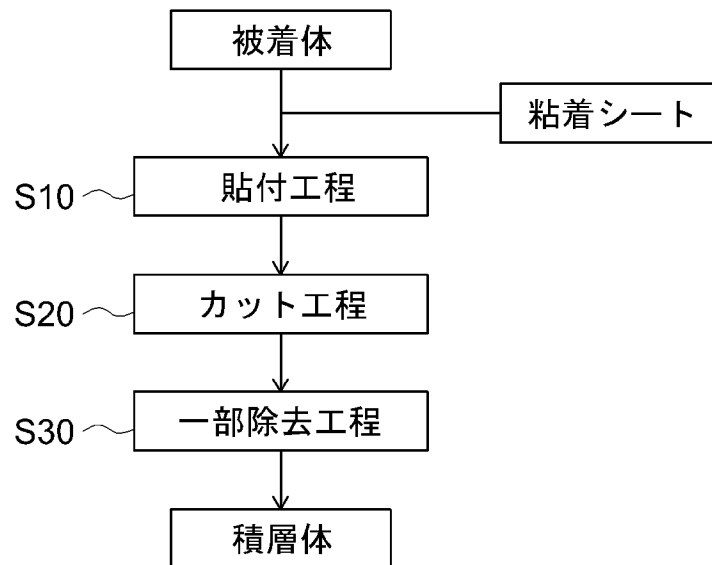
前記粘着シートを貼り付ける貼付機構と、

前記粘着シートに切断加工を施すカット機構と、

前記粘着シートの前記第二領域を剥離する剥離機構と、
を含む、積層体製造装置。

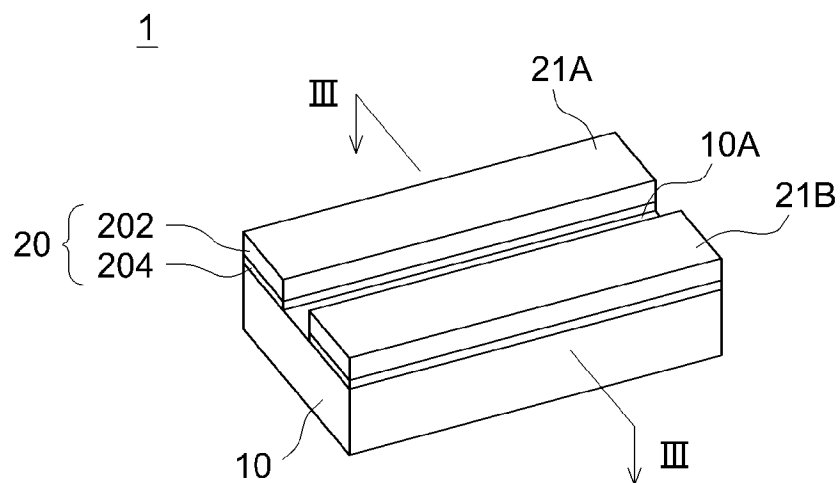
[図1]

FIG.1



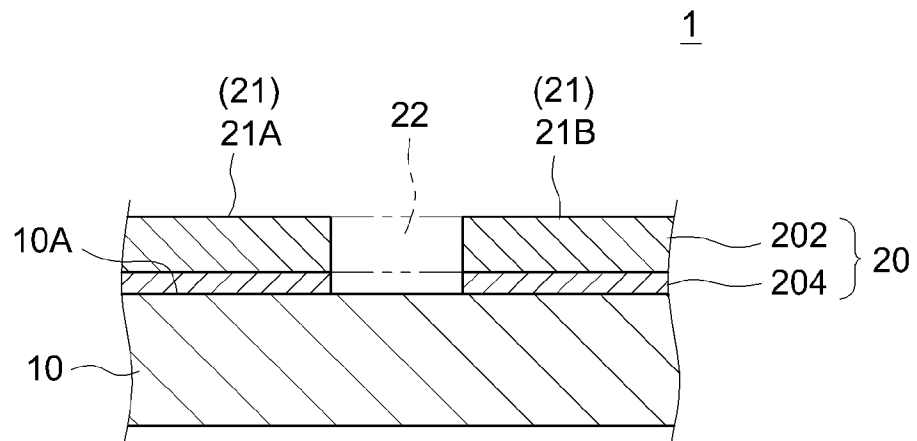
[図2]

FIG.2



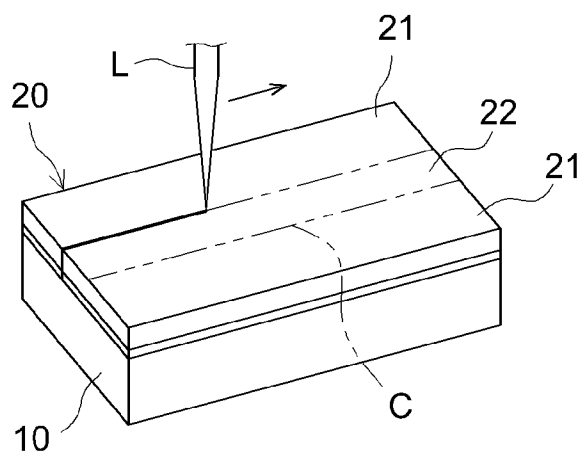
[図3]

FIG.3



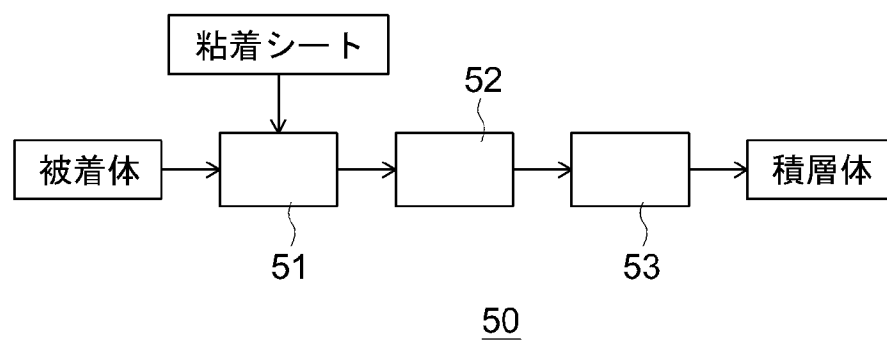
[図4]

FIG.4



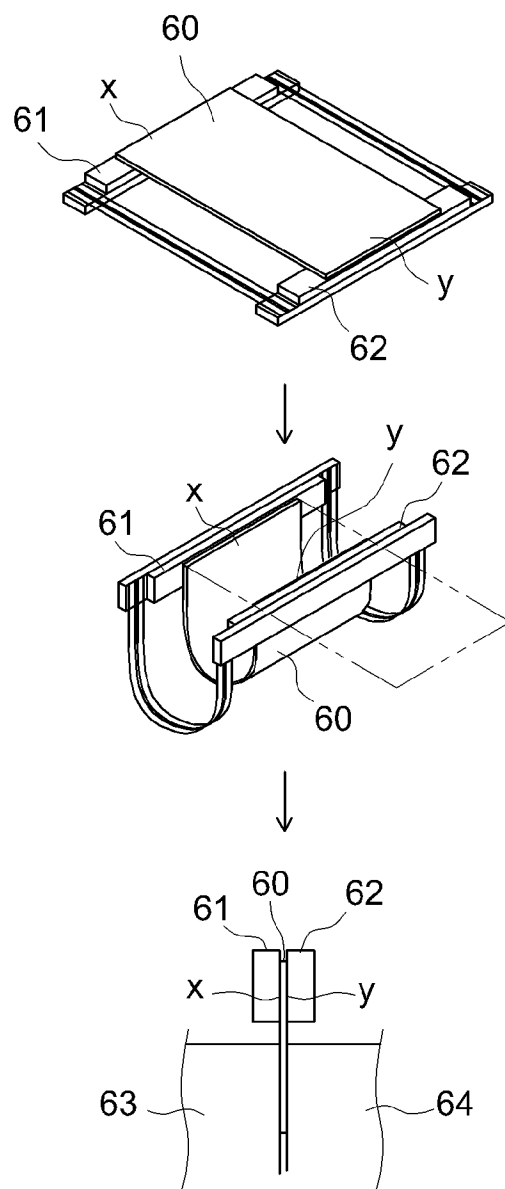
[図5]

FIG.5



[図6]

FIG.6



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/016943

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl. B32B38/10 (2006.01) i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl. B29C63/00-63/48, B29C65/00-65/82, B32B1/00-43/00, C09J7/00-7/50, H01L21/56, H05K3/28

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 1971-2018
 Registered utility model specifications of Japan 1996-2018
 Published registered utility model applications of Japan 1994-2018

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	JP 1-221225 A (MAX CO., LTD.) 04 September 1989, page 2, lower left column, line 13 to lower right column, line 1, page 3, lower right column, lines 2, 3, page 4, upper left column, lines 12, 13, 16-18, fig. 2-4 (Family: none)	1-3, 7-13 4 5, 6
Y	WO 2015/190441 A1 (NITTO DENKO CORP.) 17 December 2015, claims 1, 2, 4, 12, paragraphs [0014], [0095] & US 2017/0081557 A1, claims 1, 2, 4, 12 & KR 10-2016-0130315 A & CN 106459692 A	4
A	JP 2006-1253 A (LINTEC CORP.) 05 January 2006, entire text, all drawings & US 2008/0020164 A1 & EP 1767603 A1 & KR 10-2007-0024727 A & CN 1957052 A	1-13



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

06.07.2018

Date of mailing of the international search report

17.07.2018

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/JP2018/016943

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2017-183640 A (THE FURUKAWA ELECTRIC CO., LTD.) 05 October 2017, entire text, all drawings & TW 201736547 A	1-13
A	JP 2011-111530 A (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 09 June 2011, entire text, all drawings (Family: none)	1-13
A	WO 2014/156127 A1 (MITSUI CHEMICALS TOHCELLO, INC.) 02 October 2014, entire text, all drawings & US 2016/0053137 A1 & EP 2980176 A1 & CN 105073931 A & KR 10-2015-0121149 A	1-13
A	JP 2016-208033 A (NITTO DENKO CORP.) 08 December 2016, entire text, all drawings & TW 201642361 A	1-13
A	JP 2-210386 A (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 21 August 1990, entire text, all drawings (Family: none)	1-13
A	JP 2017-62430 A (TOPPAN PRINTING CO., LTD.) 30 March 2017, entire text, all drawings (Family: none)	1-13
A	JP 2015-174903 A (ASAHI GLASS CO., LTD.) 05 October 2015, entire text, all drawings & CN 104914598 A	1-13
A	JP 7-237569 A (HONDA MOTOR CO., LTD.) 12 September 1995, entire text, all drawings (Family: none)	1-13
A	JP 10-278183 A (KAYOU GIKEN KOGYO KK) 20 October 1998, entire text, all drawings (Family: none)	1-13

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. E32B38/10(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. B29C63/00-63/48, B29C65/00-65/82, B32B1/00-43/00, C09J7/00-7/50, H01L21/56, H05K3/28

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	1971-2018年
日本国実用新案登録公報	1996-2018年
日本国登録実用新案公報	1994-2018年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X Y A	JP 1-221225 A（マツクス株式会社）1989.09.04, 第2頁左下欄13行-右下欄1行、第3頁右下欄2-3行、第4頁左上欄12-13行、16-18行、第2-4図（ファミリーなし）	1-3, 7-13 4 5, 6
Y	W0 2015/190441 A1（日東電工株式会社）2015.12.17, 請求項1、2、4、12、[0014]、[0095] & US 2017/0081557 A1, 請求項1, 2, 4, 12 & KR 10-2016-0130315 A & CN 106459692 A	4

☒ 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

06.07.2018

国際調査報告の発送日

17.07.2018

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）

河島 拓未

電話番号 03-3581-1101 内線 3474

4S

6290

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	JP 2006-1253 A (リンテック株式会社) 2006. 01. 05, 全文、全図 & US 2008/0020164 A1 & EP 1767603 A1 & KR 10-2007-0024727 A & CN 1957052 A	1-13
A	JP 2017-183640 A (古河電気工業株式会社) 2017. 10. 05, 全文、全図 & TW 201736547 A	1-13
A	JP 2011-111530 A (日立化成工業株式会社) 2011. 06. 09, 全文、全図 (ファミリーなし)	1-13
A	WO 2014/156127 A1 (三井化学東セロ株式会社) 2014. 10. 02, 全文、全図 & US 2016/0053137 A1 & EP 2980176 A1 & CN 105073931 A & KR 10-2015-0121149 A	1-13
A	JP 2016-208033 A (日東電工株式会社) 2016. 12. 08, 全文、全図 & TW 201642361 A	1-13
A	JP 2-210386 A (積水化学工業株式会社) 1990. 08. 21, 全文、全図 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 2017-62430 A (凸版印刷株式会社) 2017. 03. 30, 全文、全図 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 2015-174903 A (旭硝子株式会社) 2015. 10. 05, 全文、全図 & CN 104914598 A	1-13
A	JP 7-237569 A (本田技研工業株式会社) 1995. 09. 12, 全文、全図 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 10-278183 A (華陽技研工業株式会社) 1998. 10. 20, 全文、全図 (ファミリーなし)	1-13