

(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  
2012 年 10 月 18 日(18.10.2012)



(10) 国際公開番号  
**WO 2012/141267 A1**

- (51) 国際特許分類:  
C09J 201/00 (2006.01) C09J 177/06 (2006.01)  
C09J 5/06 (2006.01) C09J 179/08 (2006.01)  
C09J 7/02 (2006.01) C09J 201/06 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/060069
- (22) 国際出願日: 2012 年 4 月 12 日(12.04.2012)
- (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:  
PCT/JP2011/059103 2011 年 4 月 12 日(12.04.2011) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日立化成工業株式会社 (HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD.) [JP/JP]; 〒1630449 東京都新宿区西新宿二丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 福山 雄大 (FUKUYAMA Takehiro) [JP/JP]; 〒3004247 茨城県つくば市和台 4 8 日立化成工業株式会社内 Ibaraki (JP). 増田 克之 (MASUDA Katsuyuki) [JP/JP]; 〒3004247 茨城県つくば市和台 4 8 日立化成工業株式会社内 Ibaraki (JP). 品田 詠逸 (SHINADA Eiichi) [JP/JP]; 〒3004247 茨城県つくば市和台 4 8 日立化成工業株式会社内 Ibaraki (JP). 大越 将司 (OKOSHI Masashi) [JP/JP]; 〒

3004247 茨城県つくば市和台 4 8 日立化成工業株式会社内 Ibaraki (JP). 山本 和徳 (YAMAMOTO Kazunori) [JP/JP]; 〒3004247 茨城県つくば市和台 4 8 日立化成工業株式会社内 Ibaraki (JP). 山口 正利 (YAMAGUCHI Masatoshi) [JP/JP]; 〒3004247 茨城県つくば市和台 4 8 日立化成工業株式会社内 Ibaraki (JP). 大山 泰 (OOYAMA Yasushi) [JP/JP]; 〒3088524 茨城県筑西市五所宮 1 1 5 0 番地 日立化成工業株式会社内 Ibaraki (JP). 柳田 裕貴 (YANAGIDA Yuuki) [JP/JP]; 〒3088524 茨城県筑西市五所宮 1 1 5 0 番地 日立化成工業株式会社内 Ibaraki (JP). 片寄 光雄 (KATAYOSE Mitsuo) [JP/JP]; 〒1630449 東京都新宿区西新宿二丁目 1 番 1 号 日立化成工業株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外 (HASEGAWA Yoshiki et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目 1 番 1 号丸の内 M Y P L A Z A (明治安田生命ビル) 9 階 創英国際特許法律事務所 Tokyo (JP).

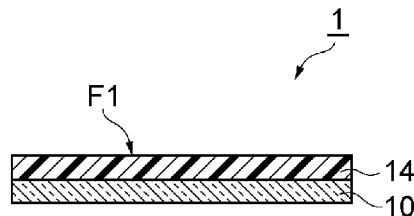
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX,

[続葉有]

(54) Title: PRESSURE-SENSITIVE ADHESIVE, PRESSURE-SENSITIVE ADHESIVE MATERIAL USING SAME, AND METHOD FOR USING SAID ADHESIVE AND MATERIAL

(54) 発明の名称: 粘着剤及びそれを用いた粘着材、並びにそれらの使用方法

[図1]



(57) Abstract: A pressure-sensitive adhesive that satisfies at least one of the belowmentioned conditions (1 and/or 2) and contains a condensation resin that has a structural unit obtained by condensation-polymerizing polymerizable monomers including the following: a monomer (A) that has at least two carboxyl groups; and a monomer (B) that has at least two amino groups. One condition (1) is that at least one of the following is a liquid at 25°C: the first (A) of the aforementioned monomers, an anhydride thereof, and the other (B) of the aforementioned monomers. The other condition (2) is that the condensation resin contains a polyoxyalkane diyl group.

(57) 要約: カルボキシル基を少なくとも2つ有するモノマー (A) 及びアミノ基を少なくとも2つ有するモノマー (B) を含む重合性モノマーを縮合重合して得られる構造単位を有する縮合系樹脂を含有し、下記 (1) 及び (2) の少なくとも一方を満たす、粘着剤。 (1) 前記モノマー (A)、前記モノマー (A) の無水物及び前記モノマー (B) からなる群より選ばれる少なくとも一種が、25°Cで液状である。 (2) 前記縮合系樹脂が、ポリオキシアルカンジイル基を有する。



WO 2012/141267 A1



MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, 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, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, 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, 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：

粘着剤及びそれを用いた粘着材、並びにそれらの使用方法

### 技術分野

[0001] 本発明は、高温環境下でも粘着性が維持される粘着剤、及びそれを用いた粘着材、並びにそれらの使用方法に関する。

### 背景技術

[0002] 従来、粘着剤としては、アクリル系粘着剤が多く用いられている。また、耐熱性の粘着剤としては、例えば特許文献 1 に、シリコーン系粘着剤が記載されている。

### 先行技術文献

#### 特許文献

[0003] 特許文献1：特開 2 0 0 9 - 2 5 6 5 4 2 号公報

### 発明の概要

#### 発明が解決しようとする課題

[0004] ところで、アクリル系粘着剤には、高温環境下（例えば 2 0 0 ℃以上）では、粘着性が維持できず、浮きや剥がれを生じるという問題がある。

[0005] また、シリコーン系粘着剤には、価格が高い、貼付する対象が限定される（例えば、ポリエステルフィルム、ポリイミドフィルム等のプラスチック材料への粘着性が低い）という問題がある。

[0006] そこで本発明は、高温環境下でも粘着性を維持できる新規な粘着剤、及びその使用方法を提供することを目的とする。また本発明は、該粘着剤を用いた粘着材、及びその使用方法を提供することを目的とする。

#### 課題を解決するための手段

[0007] 本発明の一側面は、カルボキシル基を少なくとも 2 つ有するモノマー（A）及びアミノ基を少なくとも 2 つ有するモノマー（B）を含む重合性モノマ

一を縮合重合して得られる構造単位を有する縮合系樹脂を含有する、粘着剤に関する。

[0008] そして、上記粘着剤は、下記（１）及び（２）の少なくとも一方を満たす。

（１）上記モノマー（Ａ）、上記モノマー（Ａ）の無水物及び上記モノマー（Ｂ）からなる群より選ばれる少なくとも一種が、２５℃で液状である。

（２）上記縮合系樹脂が、ポリオキシアルカンジイル基を有する。

[0009] 上記粘着剤によれば、高温環境下（例えば、２００℃以上）でも高い粘着性が維持され、浮きや剥がれの発生が十分に抑制される。また、上記粘着剤は、プラスチック材料等の被着体に対して、高い粘着性を示す。さらに、上記粘着剤は、被着体から剥離した後も高い粘着性が維持されるため、被着体への貼付及び剥離を繰り返し行うことができる。

[0010] 上記粘着剤は、上記（１）及び（２）の双方を満たすことが好ましい。このような粘着剤によれば、粘着性が一層向上する。また、このような粘着剤は、例えば、０～５０℃で押圧することで容易に被着体に貼付することができる。

[0011] 上記粘着剤において、上記縮合系樹脂は、ポリアミドイミド樹脂、ポリイミド樹脂及びポリアミド樹脂からなる群より選ばれる少なくとも一種を含むことが好ましい。

[0012] 上記粘着剤において、上記縮合系樹脂はポリアミド樹脂であることが好ましい。

[0013] 上記粘着剤においては、上記縮合系樹脂中の上記構造単位が、上記ポリオキシアルカンジイル基を有することが好ましい。すなわち、上記（２）におけるポリオキシアルカンジイル基は、上記構造単位に含まれていることが好ましい。

[0014] 上記粘着剤においては、上記構造単位中の上記モノマー（Ｂ）に由来する構造は、上記ポリオキシアルカンジイル基を有することが好ましい。すなわち、上記（２）におけるポリオキシアルカンジイル基は、上記構造単位中の

上記モノマー（B）に由来する構造に含まれていることが好ましい。

[0015] 上記粘着剤において、上記重合性モノマーは、ポリオキシアルカンジイル基及び少なくとも2つのアミノ基を有するモノマー（b-1）を、上記モノマー（A）及び上記モノマー（B）の総量に対して2.5～10mol%の割合で含むことが好ましい。

[0016] 本発明の他の側面は、ポリアミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂及びポリイミド樹脂からなる群より選択される縮合系樹脂を50質量%以上含有し、上記縮合系樹脂がポリオキシアルカンジイル基を有する、粘着剤に関する。

[0017] 上記粘着剤において、上記縮合系樹脂は、ポリオキシアルカンジイル基を有するジアミン単位を含むものであってよい。

[0018] 上記粘着剤において、上記縮合系樹脂は、二価の芳香環基をさらに有していてもよく、二価の芳香環基を有するジカルボン酸単位を含むものであってよい。

[0019] 上記粘着剤において、上記縮合系樹脂は、1,4-ピペラジンジイル基をさらに有していてもよく、1,4-ピペラジンジイル基を有するジアミン単位を含むものであってよい。

[0020] 上記粘着剤において、上記縮合系樹脂の含有量は50質量%以上であることが好ましい。また、上記粘着剤は、上記縮合系樹脂からなるものであってよい。このような粘着剤は耐熱性に一層優れるため、耐熱性粘着剤として一層好適に使用できる。

[0021] 上記粘着剤は、例えば、被着体に貼付され、200℃以上に加熱された後に該被着体から剥離される耐熱性粘着剤として用いることができる。すなわち、上記粘着剤は、200℃以上の高温に晒される工程を有するプロセスに好適に用いることができる。

[0022] 本発明の他の側面は、カルボキシル基を少なくとも2つ有するモノマー（A）及びアミノ基を少なくとも2つ有するモノマー（B）を含む重合性モノマーを縮合重合して得られる構造単位を有し、下記（1）及び（2）の少なくとも一方を満たす縮合系樹脂の、粘着剤としての使用、に関する。

(1) 上記モノマー (A)、上記モノマー (A) の無水物及び上記モノマー (B) からなる群より選ばれる少なくとも一種が、25℃で液状である。

(2) 上記縮合系樹脂が、ポリオキシアルカンジイル基を有する。

[0023] 本発明の他の側面は、カルボキシル基を少なくとも2つ有するモノマー (A) 及びアミノ基を少なくとも2つ有するモノマー (B) を含む重合性モノマーを縮合重合して得られる構造単位を有し、下記 (1) 及び (2) の少なくとも一方を満たす縮合系樹脂の、粘着剤の製造のための使用、に関する。

(1) 上記モノマー (A)、上記モノマー (A) の無水物及び上記モノマー (B) からなる群より選ばれる少なくとも一種が、25℃で液状である。

(2) 上記縮合系樹脂が、ポリオキシアルカンジイル基を有する。

[0024] 本発明の他の側面は、ポリアミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂及びポリイミド樹脂からなる群より選択される縮合系樹脂であって、ポリオキシアルカンジイル基を有する縮合系樹脂の、粘着剤としての使用、に関する。

[0025] 本発明の他の側面は、ポリアミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂及びポリイミド樹脂からなる群より選択される縮合系樹脂であって、ポリオキシアルカンジイル基を有する縮合系樹脂の、粘着剤の製造のための使用、に関する。

[0026] 本発明はまた、支持体と、該支持体上に設けられた上記粘着剤を含有する粘着層と、を備える粘着材を提供する。

[0027] 本発明はまた、第一の被着体に、上記粘着剤を含有する粘着層を介して、第二の被着体を貼付する貼付工程と、上記粘着層の温度が200℃以上となる条件下で、上記第一の被着体及び上記第二の被着体を加熱する加熱工程と、上記加熱工程を経た上記第一の被着体から、上記粘着層及び上記第二の被着体を剥離する剥離工程と、を備える、粘着剤の使用手法を提供する。

[0028] 上記粘着剤の使用手法では、上記貼付工程において、上記第一の被着体と上記第二の被着体とを0～50℃で貼付することが好ましい。

[0029] 上記粘着剤の使用手法では、上記剥離工程において、上記第一の被着体から、上記粘着層及び上記第二の被着体を0～50℃で剥離することが好ましい。

[0030] 上記粘着剤の使用方法では、上記剥離工程で剥離された上記粘着層を、上記貼付工程に再利用することができる。

[0031] 本発明はまた、被着体に、上記粘着材を上記粘着層が上記被着体に近い側に配置されるように貼付する貼付工程と、上記粘着材の温度が200℃以上となる条件下で、上記被着体を加熱する加熱工程と、上記加熱工程を経た上記被着体から、上記粘着材を剥離する剥離工程と、を備える、粘着材の使用方法を提供する。

[0032] 上記粘着材の使用方法では、上記貼付工程において、上記粘着材を上記被着体に0～50℃で貼付することが好ましい。

[0033] 上記粘着材の使用方法では、上記剥離工程において、上記被着体から、上記粘着材を0～50℃で剥離することが好ましい。

[0034] 上記粘着材の使用方法では、上記剥離工程で剥離された上記粘着材を、上記貼付工程に再利用することができる。

### 発明の効果

[0035] 本発明によれば、高温環境下でも粘着性を維持できる新規な粘着剤、及びその使用方法が提供される。また本発明によれば、該粘着剤を用いた粘着材、及びその使用方法が提供される。

### 図面の簡単な説明

[0036] [図1]本発明の粘着剤の好適な一実施形態を示す模式断面図である。

[図2]示差走査型熱量計によって測定された、実施例1のポリアミド樹脂の-50～200℃の間における熱収支を示す図である。

[図3]示差走査型熱量計によって測定された、実施例2のポリアミド樹脂の-50～200℃の間における熱収支を示す図である。

[図4]示差走査型熱量計によって測定された、比較例1のポリアミド樹脂の-50～200℃の間における熱収支を示す図である。

### 発明を実施するための形態

[0037] 本発明の粘着剤及び粘着材の好適な実施形態について以下に説明する。

[0038] (粘着剤)

本実施形態に係る粘着剤は、カルボキシル基を少なくとも2つ有するモノマー（A）及びアミノ基を少なくとも2つ有するモノマー（B）を含む重合性モノマーを縮合重合して得られる構造単位を有する縮合系樹脂を、含有する。

[0039] そして、本実施形態に係る粘着剤は、下記（1）及び（2）のうち少なくとも一方を満たす。

（1）モノマー（A）、モノマー（A）の無水物及びモノマー（B）からなる群より選ばれる少なくとも一種が、25℃で液状である。

（2）縮合系樹脂が、ポリオキシアルカンジイル基を有する。

[0040] このような粘着剤によれば、例えば200℃以上の高温環境下に保持しても、高い粘着性が維持され、浮きや剥がれの発生が十分に抑制される。

[0041] なお、上記縮合系樹脂は、必ずしも上記重合性モノマーを縮合重合して製造されたものである必要はなく、上記重合性モノマーの縮合重合により形成され得る構造単位を有していればよい。

[0042] すなわち、上記（1）を満たすためには、必ずしも上記縮合系樹脂が25℃で液状のモノマー（又は無水物が25℃で液状であるモノマー）を用いて製造されたものである必要はなく、上記縮合系樹脂が、25℃で液状のモノマー（又は無水物が25℃で液状であるモノマー）を含む重合性モノマーの縮合重合により形成され得る構造単位を有していればよい。

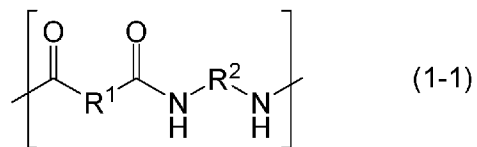
[0043] 上記縮合系樹脂中の上記構造単位は、一種のモノマー（A）及びモノマー（B）を縮合重合して得られる構造単位であっても、複数のモノマー（A）及びモノマー（B）を縮合重合して得られる構造単位であってもよい。後者の場合、上記（1）を満たすためには、複数のモノマー（A）、それらの無水物、及び複数のモノマー（B）からなる群より選ばれる少なくとも一種が、25℃で液状であればよい。

[0044] 上記構造単位を形成し得るモノマー（A）及びモノマー（B）は、次の方法により確認することができる。すなわち、上記構造単位を加水分解したときに生成する、カルボキシル基を少なくとも2つ有する化合物及びアミノ基

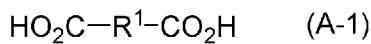
を少なくとも2つ有する化合物を、それぞれモノマー（A）及びモノマー（B）とすることができる。

[0045] 例えば、下記式（1-1）で表される構造単位は、下記式（A-1）で表されるモノマー及び下記式（B-1）で表されるモノマーを縮合重合して得られる構造単位とすることができる。なお、式中、 $R^1$ 及び $R^2$ は二価の有機基を示す。

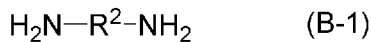
[0046] [化1]



[0047] [化2]



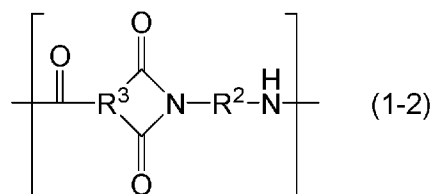
[0048] [化3]



[0049] ここで式（1-1）で表される構造単位が上記（1）を満たすためには、式（A-1）で表されるモノマー及び式（B-1）で表されるモノマーのうち、少なくとも一種が25℃で液状であればよい。

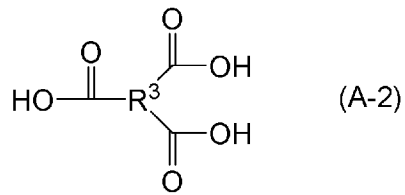
[0050] また、例えば、下記式（1-2）で表される構造単位は、下記式（A-2）で表されるモノマー及び上記式（B-1）で表されるモノマーを縮合重合して得られる構造単位とすることができる。なお、式中、 $R^3$ は三価の有機基を示す。

[0051] [化4]



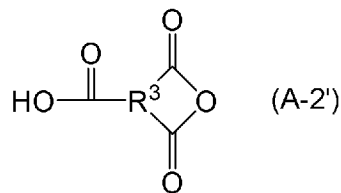
[0052]

[化5]



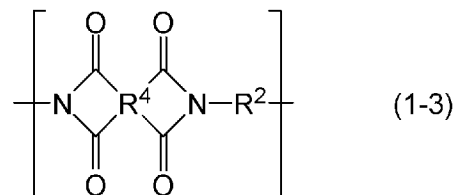
[0053] ここで式（１－２）で表される構造単位が上記（１）を満たすためには、式（Ａ－２）で表されるモノマー、式（Ｂ－１）で表されるモノマー及び下記式（Ａ－２'）で表される無水物からなる群より選ばれる少なくとも一種が２５℃で液状であればよい。

[0054] [化6]

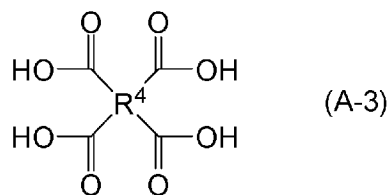


[0055] さらに、例えば、下記式（１－３）で表される構造単位は、下記式（Ａ－３）で表されるモノマー及び上記式（Ｂ－１）で表されるモノマーを縮合重合して得られる構造単位ということができる。なお、式中、 $\text{R}^4$ は四価の有機基を示す。

[0056] [化7]



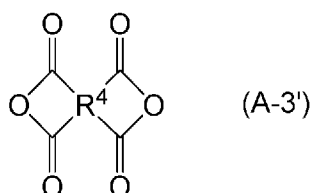
[0057] [化8]



[0058] ここで式（１－３）で表される構造単位が上記（１）を満たすためには、式（Ａ－３）で表されるモノマー、式（Ｂ－１）で表されるモノマー及び下

記式 (A-3') で表される無水物からなる群より選ばれる少なくとも一種が 25℃で液状であればよい。

[0059] [化9]



[0060] モノマー (A) としては、カルボキシル基を 2 つ有するモノマー (式 (A-1) で表されるモノマー)、カルボキシル基を 3 つ有するモノマー (式 (A-2) で表されるモノマー)、カルボキシル基を 4 つ有するモノマー (式 (A-3) で表されるモノマー) 等が挙げられる。

[0061] カルボキシル基を 2 つ有するモノマーとしては、例えば、シュウ酸、マロン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、1, 9-ノナンジカルボン酸、ドデカン二酸、テトラデカン二酸、ペンタデカン二酸、オクタデカン二酸等のアルキレンジカルボン酸、フタル酸、テレフタル酸、イソフタル酸、1, 4-ナフタレンジカルボン酸、1, 5-ナフタレンジカルボン酸、2, 6-ナフタレンジカルボン酸、アセナフチレン-5, 6-ジカルボン酸、ピリジン-2, 3-ジカルボン酸、ピリジン-2, 6-ジカルボン酸、1H-イミダゾール-4, 5-ジカルボン酸、1H-ピロール-2, 4-ジカルボン酸、フラン-2, 5-ジカルボン酸、チオフェン-2, 5-ジカルボン酸等の芳香族ジカルボン酸、1, 3-シクロヘキサンジカルボン酸、1, 4-シクロヘキサンジカルボン酸、4-メチルヘキサヒドロフタル酸、3-メチルヘキサヒドロフタル酸、3-エチルヘキサヒドロフタル酸、4-エチルヘキサヒドロフタル酸、メチルノルボルナン-2, 3-ジカルボン酸等のシクロヘキサン骨格を有するジカルボン酸、3-メチル-1, 2, 3, 6-テトラヒドロフタル酸、4-メチル-1, 2, 3, 6-テトラヒドロフタル酸、メチル-3, 6-エンドメチレン-1, 2, 3, 6-テトラヒドロフタル酸等のシクロヘキセン骨格を有するジカルボン酸等が挙げられる。

- [0062] すなわち、式（１－１）における $R^1$ としては、アルカンジイル基、二価の脂環基、二価の芳香環基等が挙げられる。
- [0063] アルカンジイル基としては、炭素数１～３０のアルカンジイル基が好ましく、炭素数１～２０のアルカンジイル基がより好ましい。アルカンジイル基は直鎖状でも分岐状でもよく、好ましくは直鎖状であることが好ましい。
- [0064] アルカンジイル基の具体例としては、メチレン基、エチレン基、プロパンジイル基、ブタンジイル基、ペンタンジイル基、ヘキサジイル基、ヘプタンジイル基、オクタンジイル基、ノナンジイル基、デカンジイル基、ウンデカンジイル基、ドデカンジイル基、トリデカンジイル基、ヘキサデカンジイル基等が挙げられる。
- [0065] 二価の脂環基は、芳香族性を有しない飽和又は不飽和の炭素環構造を有する基である。二価の脂環基の炭素数は、３～２０であることが好ましく、４～１２であることがより好ましい。また、二価の脂環基は、シクロヘキサン環を有することが好ましい。
- [0066] 二価の脂環基としては、１，３－シクロヘキサジイル基、１，４－シクロヘキサジイル基、４－アルキルシクロヘキサ－１，２－ジイル基、３－アルキルシクロヘキサ－１，２－ジイル基、４，５－ジアルキルシクロヘキサ－１，２－ジイル基、３，４－ジアルキルシクロヘキサ－１，２－ジイル基、ノルボルナンジイル基、５－アルキルノルボルナン－２，３－ジイル基、３－アルキル－４－シクロヘキセン－１，２－ジイル基、４－アルキル－４－シクロヘキセン－１，２－ジイル基、４－メチル－３，６－エンドメチレン－４－シクロヘキセン－１，２－ジイル基等が挙げられる。
- [0067] ここで、二価の脂環基の炭素環構造に結合したアルキル基は、炭素数１～１０のアルキル基であることが好ましく、炭素数１～５のアルキル基であることがより好ましい。
- [0068] 二価の芳香環基は、芳香族性を有する環構造を有する基である。二価の芳香環基としては、炭素数６～２０の二価の芳香環基が好ましく、炭素数６～１０の二価の芳香環基がより好ましい。

- [0069] 二価の芳香環基としては、例えば、ベンゼンジイル基、ナフタレンジイル基、ビフェニルジイル基、アセナフチレン-5, 6-ジイル基、ピリジン-2, 3-ジイル基、ピリジン-2, 6-ジイル基、1H-イミダゾール-4, 5-ジイル基、1H-ピロール-2, 4-ジイル基、フラン-2, 5-ジイル基、チオフェン-2, 5-ジイル基が挙げられる。また、ベンゼンジイル基としては、1, 2-ベンゼンジイル基、1, 3-ベンゼンジイル基、1, 4-ベンゼンジイル基が挙げられる。また、ナフタレンジイル基としては、1, 2-ナフタレンジイル基、1, 3-ナフタレンジイル基、1, 4-ナフタレンジイル基、1, 5-ナフタレンジイル基、1, 6-ナフタレンジイル基、1, 7-ナフタレンジイル基、1, 8-ナフタレンジイル基、2, 3-ナフタレンジイル基、2, 6-ナフタレンジイル基、2, 7-ナフタレンジイル基等が挙げられる。また、ビフェニルジイル基としては、ビフェニル-4, 4'-ジイル基が挙げられる。
- [0070] カルボキシル基を3つ有するモノマーとしては、例えば、トリメリット酸等の芳香族トリカルボン酸、シクロヘキサン-1, 2, 4-トリカルボン酸等の脂環式トリカルボン酸等が挙げられる。
- [0071] すなわち、式(1-2)における $R^3$ としては、三価の脂環基、三価の芳香環基等が挙げられる。
- [0072] 三価の脂環基としては、シクロヘキサントリイル基が好ましく、シクロヘキサン-1, 2, 4-トリイル基がより好ましい。
- [0073] 三価の芳香環基としては、例えば、ベンゼントリイル基、ナフタレントリイル基が挙げられ、ベンゼン-1, 2, 4-トリイル基が好ましい。
- [0074] カルボキシル基を4つ有するモノマーとしては、例えば、ピロメリット酸、ベンゼン-1, 2, 3, 4-テトラカルボン酸、1, 2, 5, 6-ナフタレントetraカルボン酸、2, 3, 6, 7-ナフタレントetraカルボン酸、1, 2, 4, 5-ナフタレントetraカルボン酸、1, 4, 5, 8-ナフタレントetraカルボン酸、2, 3, 6, 7-アントラセンテトラカルボン酸、フェナンスレン-1, 8, 9, 10-テトラカルボン酸、3, 4, 9, 10-ペ

リレントトラカルボン酸、3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸、2, 2', 3, 3'-ビフェニルテトラカルボン酸、2, 3, 3', 4'-ビフェニルテトラカルボン酸、3, 3', 4, 4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸、2, 3, 2', 3'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸、2, 3, 3', 4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸、3, 3', 4, 4'-ビフェニルエーテルテトラカルボン酸、ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)エーテル、ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)スルホン、1-トリフルオロメチル-2, 3, 5, 6-ベンゼンテトラカルボン酸、ビス(2, 3-ジカルボキシフェニル)メタン、ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)メタン、1, 1-ビス(2, 3-ジカルボキシフェニル)エタン、1, 1-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)エタン、2, 2-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)プロパン、2, 2-ビス(2, 3-ジカルボキシフェニル)プロパン、4, 4'-(4, 4'-イソプロピリデンジフェノキシ)-ビス(フタル酸)、p-フェニレンビス(トリメリテート)、ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)ジメチルシラン、ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)メチルフェニルシラン、ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)ジフェニルシラン、1, 3-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)-1, 1, 3, 3-テトラメチルジシロキサン、1, 4-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニルジメチルシリル)ベンゼン、2, 2-ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)ヘキサフルオロプロパン、2, 2-ビス(4-(3, 4-ジカルボキシフェノキシ)フェニル)ヘキサフルオロプロパン、4, 4'-ビス(3, 4-ジカルボキシフェノキシ)ジフェニルスルフィド、2, 3, 5, 6-ピリジンテトラカルボン酸、ピロリジン-2, 3, 4, 5-テトラカルボン酸、ピラジン-2, 3, 5, 6-テトラカルボン酸、チオフェン-2, 3, 4, 5-テトラカルボン酸、テトラヒドロフラン-2, 3, 4, 5-テトラカルボン酸、エチレントトラカルボン酸、1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボン酸、1, 1, 2, 2-エタンテトラカルボン酸、1, 1, 2, 3-プロパンテトラカルボン酸、1, 1, 6, 6-ヘキサンテトラカ

ルボン酸、1, 2, 4, 5-シクロヘキサントトラカルボン酸、1, 2, 3, 4-シクロペンタントトラカルボン酸、1, 2, 3, 4-シクロブタントトラカルボン酸、デカヒドロナフタレン-1, 4, 5, 8-テトラカルボン酸、4, 8-ジメチル-1, 2, 3, 5, 6, 7-ヘキサヒドロナフタレン-1, 2, 5, 6-テトラカルボン酸、シクロペンタン-1, 2, 3, 4-テトラカルボン酸、1, 2, 3, 4-シクロブタントトラカルボン酸、ビス(エキソビスクロ[2. 2. 1]ヘプタン-2, 3-ジカルボン酸)スルホン、1, 2, 4, 5-テトラカルボキシシクロヘキサン、ビスクロ[2. 2. 2]オクタン-2, 3, 5, 6-テトラカルボン酸、5, 5'-(1, 1, 3, 3, 5, 5-ヘキサメチルトリシロキサン-1, 5-ジイル)ビス(ビスクロ[2. 2. 1]ヘプタン-2, 3-ジカルボン酸)等が挙げられる。

[0075] すなわち、式(1-3)における $R^4$ としては、アルカンテトライル基、四価の脂環基、四価の芳香環基、又は四価の複素環基が挙げられる。換言すると、 $R^4$ としては、アルカン、脂環式化合物、芳香族化合物又は複素環式化合物から4つの水素原子を除いた基が挙げられる。

[0076] アルカンテトライル基の炭素数は、2~10が好ましく、2~6がより好ましい。アルカンテトライル基としては、例えば、エタン-1, 1, 2, 2-テトライル基、プロパン-1, 1, 2, 3-テトライル基、ブタン-1, 2, 3, 4-テトライル基、ヘキサン-1, 1, 6, 6-テトライル基、エチレンテトライル基が挙げられる。

[0077] 四価の脂環基としては、炭素数が4~50であるものが好ましく、炭素数が6~30であるものがより好ましい。また、四価の脂環基は、シクロヘキサン環を有することが好ましい。

[0078] 四価の脂環基としては、例えば、シクロヘキサン、シクロペンタン、シクロブタン、ビスクロヘキサン、デカヒドロナフタレン、ビスクロ[2, 2, 2]オクタン、ビスクロ[2, 2, 1]ヘプタン、ジメチルヘキサヒドロナ

フタレン、ビスクロ [2, 2, 2] オクトー 7-エン、5, 5' - (1, 1, 3, 3, 5, 5-ヘキサメチルトリシロキサン-1, 5-ジイル) ビス (ビスクロ [2, 2, 1] ヘプタン) 又はビス (ビスクロ [2, 2, 1] ヘプタン) スルホンから水素原子を 4 つ除いてなる基が挙げられる。

[0079] 四価の芳香環基としては、例えば、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、フェナンスレン、ペリレン、ビフェニル、ベンゾフェノン、ビフェニルエーテル、ジフェニルスルホン、トリフルオロメチルベンゼン、ジフェニルメタン、1, 1-ジフェニルエタン、2, 2-ジフェニルプロパン、2, 2-ビス (4-フェノキシフェニル) プロパン、ビス安息香酸フェニル、ジフェニルジメチルシラン、トリフェニルメチルシラン、テトラフェニルシラン、1, 3-ジフェニル-1, 1, 3, 3-テトラメチルジシロキサン、ビス (ジフェニルジメチルシリル) ベンゼン、2, 2-ジフェニルヘキサフルオロプロパン、2, 2-ビス (4-フェノキシフェニル) ヘキサフルオロプロパン又はジフェニルスルフィドから水素原子を 4 つ除いてなる基が挙げられる。

[0080] 四価の複素環基としては、例えば、ピリジン、ピラジン、チオフェン、ピロリジン又はテトラヒドロフランから水素原子を 4 つ除いてなる基が挙げられる。

[0081] これらのモノマー (A) 及びその無水物のうち、25℃で液状の化合物としては、3-メチルヘキサヒドロフタル酸無水物、4-メチルヘキサヒドロフタル酸無水物、3-エチルヘキサヒドロフタル酸無水物、4-エチルヘキサヒドロフタル酸無水物、3-メチル-1, 2, 3, 6-テトラヒドロフタル酸無水物、4-メチル-1, 2, 3, 6-テトラヒドロフタル酸無水物、メチル-3, 6-エンドメチレン-1, 2, 3, 6-テトラヒドロフタル酸無水物、5, 5'-エキソ- (1, 1, 3, 3, 5, 5-ヘキサメチルトリシロキサン-1, 5-ジイル) ビス (ビスクロ [2, 2, 1] ヘプタン-エキソ-2, 3-ジカルボン酸) 二無水物等が挙げられる。

[0082] ここで、上記式 (1-1) における R<sup>1</sup> が、例えば 4-アルキルシクロヘキ

サンー 1, 2-ジイル基、3-アルキルシクロヘキササンー 1, 2-ジイル基、3-アルキル-4-シクロヘキセン-1, 2-ジイル基、4-アルキル-4-シクロヘキセン-1, 2-ジイル基、4-メチル-3, 6-エンドメチレン-4-シクロヘキセン-1, 2-ジイル基であるとき（好ましくは4-メチルシクロヘキササン-1, 2-ジイル基、3-メチルシクロヘキササン-1, 2-ジイル基、3-メチル-4-シクロヘキセン-1, 2-ジイル基、4-メチル-4-シクロヘキセン-1, 2-ジイル基、4-メチル-3, 6-エンドメチレン-4-シクロヘキセン-1, 2-ジイル基であるとき）、本実施形態に係る粘着剤は上記（1）を満たす。

[0083] また、上記式（1-3）における $R^4$ が、例えば5, 5'-エキソー（1, 1, 3, 3, 5, 5-ヘキサメチルトリシロキササン-1, 5-ジイル）ビス（ビシクロ[2.2.1]ヘプタン-エキソー2, 3-ジイル基）であるとき、本実施形態に係る粘着剤は上記（1）を満たす。

[0084] また、モノマー（B）としては、アミノ基を2つ有するモノマーが好ましく、このようなモノマーとしては、例えば、2, 2-ビス[4-（4-アミノフェノキシ）フェニル]プロパン、ビス[4-（3-アミノフェノキシ）フェニル]スルホン、ビス[4-（4-アミノフェノキシ）フェニル]スルホン、2, 2-ビス[4-（4-アミノフェノキシ）フェニル]ヘキサフルオロプロパン、ビス[4-（4-アミノフェノキシ）フェニル]メタン、4, 4'-ビス（4-アミノフェノキシ）ビフェニル、ビス[4-（4-アミノフェノキシ）フェニル]エーテル、ビス[4-（4-アミノフェノキシ）フェニル]ケトン、1, 3-ビス（4-アミノフェノキシ）ベンゼン、1, 4-ビス（4-アミノフェノキシ）ベンゼン、2, 2'-ジメチルビフェニル-4, 4'-ジアミン、2, 2'-ビス（トリフルオロメチル）ビフェニル-4, 4'-ジアミン、2, 6, 2', 6'-テトラメチルビフェニル-4, 4'-ジアミン、5, 5'-ジメチル-2, 2'-スルフォニル-ビフェニル-4, 4'-ジアミン、（4, 4'-ジアミノ）ジフェニルエーテル、（4, 4'-ジアミノ）ジフェニルスルホン、（4, 4'-ジアミノ）ベ

ンゾフェノン、(3, 3' -ジアミノ) ベンゾフェノン、(4, 4' -ジアミノ) ジフェニルメタン、(4, 4' -ジアミノ) ジフェニルエーテル、(3, 3' -ジアミノ) ジフェニルエーテル等の芳香族ジアミン；エチレンジアミン、プロピレンジアミン等のアルキレンジアミン、ポリエチレンオキサイドジアミン、ポリプロピレンオキサイドジアミン等のポリアルキレンオキサイドジアミン、1, 3-シクロヘキサレンジアミン、1, 4-シクロヘキサレンジアミン、(4, 4' -ジアミノ) ジシクロヘキシルメタン、イソホロレンジアミン、1, 4-ビスアミノプロピルピペラジン、[3, 4-ビス(1-アミノヘプチル)-6-ヘキシル-5-(1-オクテニル)] シクロヘキセン、ビスアミノメチルノルボルナン等の脂肪族ジアミン、ポリジメチルシロキサレンジアミン等のシロキサレンジアミン等が挙げられる。

[0085] すなわち、式(1-1)、(1-2)及び(1-3)における $R^2$ としては、アルカンジイル基、ポリオキシアルカンジイル基、二価の脂環基、二価の芳香環基、二価の複素環基、ポリシロキサンジイル基等が挙げられる。

[0086]  $R^2$ におけるアルカンジイル基としては、炭素数1~30のアルカンジイル基が好ましく、炭素数1~20のアルカンジイル基がより好ましい。アルカンジイル基は直鎖状でも分岐状でもよく、好ましくは直鎖状であることが好ましい。

[0087]  $R^2$ におけるアルカンジイル基としては、メチレン基、エチレン基、プロパンジイル基、ブタンジイル基、ペンタンジイル基、ヘキサンジイル基、ヘプタンジイル基、オクタンジイル基、ノナンジイル基、デカンジイル基、ウンデカンジイル基、ドデカンジイル基、トリデカンジイル基、ヘキサデカンジイル基等が挙げられる。

[0088]  $R^2$ における二価の脂環基としては、炭素数3~10の脂環基が好ましく、4~8の脂環基がより好ましい。また、二価の脂環基は、シクロヘキサン環を有することが好ましい。

[0089]  $R^2$ における二価の脂環基としては、シクロヘキサンジイル基、アルキルシクロヘキサン-1, 4-ジイル基、ジアルキルシクロヘキサン-1, 4-ジ

イル基、ノルボルナンジイル基、アルキルノルボルナン-2, 3-ジイル基、ジシクロヘキシルメタンジイル基、ジシクロヘキシルプロパンジイル基、イソホロニル基、ビスメチレンシクロヘキサン基、ビスメチレンノルボルナン基等が挙げられる。

[0090] なお、 $R^2$ における二価の脂環基の炭素環構造に結合したアルキル基は、炭素数1～10のアルキル基であることが好ましく、炭素数1～5のアルキル基であることがより好ましい。

[0091]  $R^2$ における二価の芳香環基としては、例えば、ベンゼンジイル基（1, 2-ベンゼンジイル基、1, 3-ベンゼンジイル基、1, 4-ベンゼンジイル基）、ナフタレンジイル基（1, 2-ナフタレンジイル基、1, 3-ナフタレンジイル基、1, 4-ナフタレンジイル基、1, 5-ナフタレンジイル基、1, 6-ナフタレンジイル基、1, 7-ナフタレンジイル基、1, 8-ナフタレンジイル基、2, 3-ナフタレンジイル基、2, 6-ナフタレンジイル基、2, 7-ナフタレンジイル基等）、4, 4'-ビフェニルジイル基、3, 3'-ビフェニルジイル基、4, 4'-(2, 2'-ジフェニルプロパン)ジイル基、3, 3'-(2, 2'-ジフェニルプロパン)ジイル基、4, 4'-(ジフェニルスルホン)ジイル基、3, 3'-(ジフェニルスルホン)ジイル基、4, 4'-(3, 3'-ジフェニルヘキサフルオロプロパン)ジイル基、3, 3'-(3, 3'-ジフェニルヘキサフルオロプロパン)ジイル基、4, 4'-(ジフェニルエーテル)ジイル基、3, 3'-(ジフェニルエーテル)ジイル基、4, 4'-(ジフェニルケトン)ジイル基、3, 3'-(ジフェニルケトン)ジイル基、4, 4'-(2, 2'-ジメチルビフェニル)ジイル基、4, 4'-(2, 2'-ビス(トリフルオロメチル)ビフェニル)ジイル基、4, 4'-(2, 6, 2', 6'-テトラメチルビフェニル)ジイル基が挙げられる。

[0092]  $R^2$ における二価の複素環基としては、例えば、(1, 4-ジプロピルピペラジン)ジイル基が挙げられる。

[0093]  $R^2$ におけるポリシロキサンジイル基としては、例えば、ポリジメチルシロ

キサンジイル基等が挙げられる。

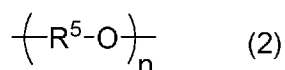
[0094] これらのモノマー（Ｂ）のうち、２５℃で液状のモノマーとしては、エチレンジアミン、プロピレンジアミン、イソホロンジアミン、１，４－ビスアミノプロピルピペラジン、〔３，４－ビス（１－アミノヘプチル）－６－ヘキシル－５－（１－オクテニル）〕シクロヘキセン、アルキレンオキサイドジアミン、ビスアミノメチルノルボルナン、アルキルジアミン、ポリアルキレンオキサイドジアミン、シロキサンジアミン等が挙げられる。

[0095] ここで、式（１－１）、（１－２）及び（１－３）における $R^2$ が、例えばアルカンジイル基、（１，４－ジプロピルピペラジン）ジイル基、ビスメチレンノルボルナン基又はイソホロニル基であるとき、本実施形態に係る粘着剤は上記（１）を満たす。

[0096] 縮合系樹脂は、ポリオキシアルカンジイル基を有することが好ましい。このような基を有する縮合系樹脂は、 $T_g$ が低下し、低温で良好な粘着性を有するものとなる。

[0097] ここで、ポリオキシアルカンジイル基としては、下記式（２）で表される基が挙げられる。なお、式中、 $n$ は２以上の整数を示し、 $R^5$ はアルカンジイル基を示す。複数存在する $R^5$ は互いに同一でも異なってもよい。

[0098] [化10]



[0099]  $R^5$ におけるアルカンジイル基は、直鎖状でも分岐状であってもよい。 $R^5$ におけるアルカンジイル基としては、炭素数２～４のアルカンジイル基が好ましく、炭素数２～３のアルカンジイル基がより好ましい。 $R^5$ におけるアルカンジイル基としては、例えば、エチレン基、１，２－プロパンジイル基、１，３－プロパンジイル基、１，４－ブタンジイル基等が挙げられる。

[0100] 式（２）における $n$ は、２～７０であることが好ましく、６～３３であることがより好ましい。

[0101] ポリオキシアルカンジイル基としては、ポリエチレンオキサイド、ポリブ

ロピレンオキサイド、ポリブチレンオキサイド、ポリテトラメチレンオキサイド、ポリエチレンオキサイドポリプロピレンオキサイド共重合体、ポリエチレングリコールポリテトラメチレングリコール共重合体、ポリプロピレングリコールポリテトラメチレングリコール共重合体、ポリエチレングリコールポリプロピレングリコールポリテトラメチレングリコール共重合体等のポリアルキレンオキサイドから誘導される基が好ましく、ポリオキシエチレン基、ポリオキシ-1, 2-プロパンジイル基、がより好ましい。

[0102] 縮合系樹脂に上記ポリオキシアルカンジイル基を導入する方法は特に制限されないが、例えば、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂等の縮合系樹脂を変性して上記ポリオキシアルカンジイル基を導入する方法が挙げられる。

[0103] また、縮合系樹脂は、上記構造単位中に上記ポリオキシアルカンジイル基を有していることが好ましく、上記構造単位中のモノマー（B）に由来する構造に上記ポリオキシアルカンジイル基が存在することがより好ましい。すなわち、モノマー（A）及びモノマー（B）のうち少なくとも一種が上記ポリオキシアルカンジイル基を有することが好ましく、モノマー（B）のうち少なくとも一種が上記ポリオキシアルカンジイル基を有することがより好ましい。

[0104] 縮合系樹脂は、上記構造単位中のモノマー（B）に由来する構造が、ポリオキシアルカンジイル基を有することがより好ましい。

[0105] すなわち、縮合系樹脂としては、ポリオキシアルカンジイル基及び少なくとも2つのアミノ基を有するモノマー（b-1）を含む重合性モノマーを縮合重合して得られる構造単位を有することが好ましい。

[0106] 重合性モノマー中のモノマー（b-1）の含有量は、モノマー（A）及びモノマー（B）の総量に対して0.5～20mol%であることが好ましく、1～10mol%であることがより好ましく、2～8mol%であることがさらに好ましい。このような重合性モノマーを縮合重合して得られる構造単位を有する縮合系樹脂によれば、被着体との密着性に一層優れる粘着剤が

得られる。

[0107] モノマー (b-1) としては、ポリアルキレンオキサジジンが挙げられ、例えば、ジェファーマインD-230 (HUNTSMAN、商品名)、ジェファーマインD-400 (HUNTSMAN、商品名)、ジェファーマインD-2000 (HUNTSMAN、商品名)、ジェファーマインD-4000 (HUNTSMAN、商品名) 等のポリプロピレンオキサジジン；ジェファーマインED-600 (HUNTSMAN、商品名)、ジェファーマインED-900 (HUNTSMAN、商品名) 等のポリプロピレンオキサジジンとポリエチレンオキサジジンの共重合体ジジン；ジェファーマインEDR-148 (HUNTSMAN、商品名)、ジェファーマインEDR-176 (HUNTSMAN、商品名) 等のポリエチレンオキサジジン；ジェファーマイント-403 (HUNTSMAN、商品名)、ジェファーマイント-3000 (HUNTSMAN、商品名) 及びジェファーマイント-5000 (HUNTSMAN、商品名) 等のトリアジン；を好適に用いることができる。これらは単独で用いてもよく、2種類以上を併用してもよい。

[0108] 25℃で液状又は25℃で無水物が液状であるモノマー (A) をモノマー (a-1) とし、25℃で液状であるモノマー (B) をモノマー (b-2) としたとき、重合性モノマー中のモノマー (a-1) 及びモノマー (b-2) の合計含有量は、モノマー (A) 及びモノマー (B) の総量に対して、15~60mol%であることが好ましく、20~50mol%であることがより好ましく、25~45mol%であることが更に好ましい。

[0109] 重合性モノマーの好適な組み合わせとして、モノマー (A) が式 (A-1) のR<sup>1</sup>が二価の芳香環基である化合物、式 (A-2) のR<sup>3</sup>が三価の芳香環基である化合物及び式 (A-3) のR<sup>4</sup>が四価の芳香環基である化合物のうち少なくとも一種を含み、モノマー (B) がモノマー (b-1) 及びモノマー (b-2) を含むことが好ましい。

[0110] また、重合性モノマーの好適な組み合わせとして、モノマー (A) が、二価の芳香環基である化合物、式 (A-2) のR<sup>3</sup>が三価の芳香環基である化合

物及び式 (A-3) の  $R^4$  が四価の芳香環基である化合物のうち少なくとも一種とモノマー (a-1) とを含み、モノマー (B) が、モノマー (b-1) を含むことも好ましい。

[0111] 縮合系樹脂は、例えば、モノマー (A) 及びモノマー (B) を含む重合性モノマーの縮合重合により得ることができる。また、モノマー (A) に代えてモノマー (A) の無水物、モノマー (A) のエステル化物、モノマー (A) の酸ハロゲン化物等を用いることもできる。また、重合性モノマーは、ジイソシアネート化合物等の他のモノマーを含有していてもよい。

[0112] 重合性モノマー中のモノマー (A) 及びモノマー (B) の含有量は、重合性モノマーの総量に対して、30 mol %以上であることが好ましく、50 mol %以上であることがより好ましく、70 mol %以上であることが更に好ましい。また、モノマー (A) 及びモノマー (B) の含有量は、100 mol %であってもよい。

[0113] 縮合重合の方法は特に制限されないが、例えば、上記重合性モノマーを溶媒に溶解して、反応温度0～200℃、反応時間1～5時間程度で反応させる方法を採用することができる。

[0114] 縮合重合に用いる溶媒としては、例えば、N-メチルピロリドン、N-エチルピロリドン、N-メチルスクシイミド、ジメチルフラン、トルエン、N,N'-ジメチルアセトアミド、ヘキサメチレンホスホルアミド、ジメチルスルホキシド等が挙げられる。この中で樹脂の溶解性の観点からN-メチルピロリドンが好ましい。

[0115] また、縮合重合においては、縮合反応を促進する目的で、触媒等の加速剤を用いることができる。加速剤の添加量は、重合性モノマー10 mol 等量に対して、0.1～50 mol 等量とすることが好ましい。加速剤としては、例えば、塩化リチウム、塩化カルシウム、ロダンカルシウム等の無機塩；トリエチルアミン、ピリジン等の3級アミン；テトラメチルアンモニウムクロライド、テトラエチルアンモニウムブロマイド、テトラ-n-ブチルアンモニウムブロマイド等の4級アンモニウム塩；が挙げられる。

- [0116] 縮合系樹脂は、縮合重合で得られた重合体をさらに変性したものであってもよく、例えば、オレフィン変性ポリアミド、アルコキシシラン変性ポリアミド、シロキサン変性ポリイミド、エポキシ変性ポリアミド、ポリカーボネート変性ポリアミド、オレフィン変性ポリイミド、シロキサン変性ポリイミド、エポキシ変性ポリイミド、ポリカーボネート変性ポリイミド、シロキサン変性ポリイミド、オレフィン変性ポリアミドイミド、アルコキシシラン変性ポリアミドイミド、シロキサン変性ポリアミドイミド、エポキシ変性ポリアミドイミド、エポキシ変性ポリアミドイミド、ポリカーボネート変性ポリアミドイミド等が挙げられる。
- [0117] 本実施形態における縮合系樹脂は、例えば、ポリオキシアルカンジイル基を有する、ポリアミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂又はポリイミド樹脂であってもよい。このような縮合系樹脂は、少なくとも上記（２）を満たす。
- [0118] この縮合系樹脂は、ポリオキシアルカンジイル基を有するジアミン単位を含むことが好ましい。すなわち、ポリオキシアルカンジイル基が、縮合系樹脂のジアミン単位に含まれていることが好ましい。
- [0119] ポリオキシアルカンジイル基を有するジアミン単位としては、例えば、ポリアルキレンオキサイドジアミン単位が挙げられる。ポリアルキレンオキサイドジアミン単位としては、上記ポリアルキレンオキサイドジアミンのとして例示されたモノマーに由来するモノマー単位が挙げられる。
- [0120] この縮合系樹脂は、二価の芳香環基を更に有していてもよく、二価の芳香環基を有するジカルボン酸単位を含んでいてもよい。縮合系樹脂が二価の芳香環基を有することにより、粘着剤の高温環境下での粘着力変化を一層抑制することができる。
- [0121] 二価の芳香環基を有するジカルボン酸単位としては、上記式（A-1）の  $R^1$  が二価の芳香環基である化合物が挙げられる。
- [0122] 縮合系樹脂は、二価の芳香環基としてベンゼンジイル基を有していてもよく、フタル酸単位、イソフタル酸単位及びテレフタル酸単位からなる群より選択される少なくとも一種を含んでいてもよい。縮合系樹脂がベンゼンジイ

ル基を有することにより、粘着剤の高温環境下での粘着力変化を一層抑制することができる。

[0123] この縮合系樹脂はまた、1, 4-ピペラジンジイル基を更に有していてもよく、1, 4-ピペラジンジイル基を有するジアミン単位を含んでいてもよい。このようなジアミン単位によれば、粘着剤の高温環境下での粘着力変化が一層抑制される。

[0124] 1, 4-ピペラジンジイル基を有するジアミン単位としては、例えば、1, 4-ビス(ω-アミノアルキル)ピペラジン単位が挙げられる。1, 4-ビス(ω-アミノアルキル)ピペラジン単位において、ω-アミノアルキル基の炭素数は1~10であることが好ましく、2~4であることがより好ましい。

[0125] 1, 4-ビス(ω-アミノアルキル)ピペラジン単位としては、1, 4-ビス(3-アミノプロピル)ピペラジン単位等が挙げられる。

[0126] 縮合系樹脂において、ポリオキシアルカンジイル基を有するジアミン単位の含有量 $C_1$ に対する、1, 4-ピペラジンジイル基を有するジアミン単位の含有量 $C_2$ の比 $C_2/C_1$ は、モル比で、2~40であることが好ましく、4~20であることがより好ましい。

[0127] 縮合系樹脂におけるモノマー(A)に由来する構造単位は、モノマー(A)単位ということができ、モノマー(B)に由来する構造単位は、モノマー(B)単位ということができ、縮合系樹脂は、モノマー(A)単位及びモノマー(B)単位を含む縮合系樹脂ということができる。

[0128] 縮合系樹脂におけるポリオキシアルカンジイル基を有するジアミン単位の含有量は、モノマー(A)単位及びモノマー(B)単位の総量基準で、2.5~10mol%であることが好ましく、3.5~7.5mol%であることがより好ましく、4~6mol%であることがさらに好ましい。このような縮合系樹脂によれば、被着体との密着性に一層優れる粘着剤が得られる。

[0129] 縮合系樹脂における二価の芳香環基を有するジカルボン酸単位の含有量は、モノマー(A)単位及びモノマー(B)単位の総量基準で、20~50mol%

○ 1 %であることが好ましく、30～50 m○ 1 %であることがより好ましく、40～50 m○ 1 %であることが更に好ましい。

[0130] 縮合系樹脂における1, 4-ピペラジンジイル基を有するジアミン単位の含有量は、モノマー (A) 単位及びモノマー (B) 単位の総量基準で、15～60 m○ 1 %であることが好ましく、20～50 m○ 1 %であることがより好ましく、25～45 m○ 1 %であることが更に好ましい。

[0131] 縮合系樹脂の重量平均分子量は、20000～100000であることが好ましく、30000～60000であることがより好ましい。なお、本明細書中、重量平均分子量はGPC法により測定されるポリスチレン換算の重量平均分子量を示す。

[0132] 本実施形態に係る粘着剤における縮合系樹脂の含有量は、粘着剤の全量基準で、50質量%以上であることが好ましく、70質量%以上であることがより好ましい。縮合系樹脂の含有量が上記範囲内であると、高耐熱性を十分に維持しつつ、一層高い粘着性を得ることができる。また、縮合系樹脂の含有量は、96質量%以下であってよく、90質量%以下であってもよい。また、本実施形態に係る粘着剤は、縮合系樹脂からなるもの（すなわち、縮合系樹脂の含有量が100質量%）であってもよい。ただし、縮合系樹脂の含有量は、用途に応じて適宜上記の範囲外とすることもできる。

[0133] また、本実施形態に係る粘着剤は、高温環境下での粘着性を良好に維持する観点から、熱硬化性樹脂の含有量が30質量%以下であることが好ましく、20質量%以下であることがより好ましく、熱硬化性樹脂を含有しないことがさらに好ましい。

[0134] 本実施形態に係る粘着剤には、密着性を高めるために、発明の目的を損なわない範囲内でロジン樹脂、テルペン樹脂、クマロン樹脂、フェノール樹脂、スチレン樹脂、脂肪族系石油樹脂、芳香族系石油樹脂、脂肪族芳香族共重合系石油樹脂等の粘着付与剤等を添加してもよい。

[0135] (粘着剤の使用方法)

本実施形態に係る粘着剤は、高温環境下でも粘着性を維持することができ

るため、下記（１）～（３）の工程を備える用途に用いることができる。

（１）第一の被着体に、粘着剤を含有する粘着層を介して、第二の被着体を貼付する貼付工程。

（２）粘着層の温度が２００℃以上となる条件下で、第一の被着体及び第二の被着体を加熱する加熱工程。

（３）加熱工程を経た第一の被着体から、粘着層及び第二の被着体を剥離する剥離工程。

[0136] 貼付工程では、例えば、第一の被着体の一面上に粘着層を形成し、該粘着層の第一の被着体とは反対側の面上に第二の被着体を配置して、第一の被着体及び第二の被着体を互いに押し付けることにより、第一の被着体に第二の被着体を貼付することができる。

[0137] また、第二の被着体の一面上に粘着層を形成し、該粘着層の第二の被着体とは反対側の面上に第一の被着体を配置して、第一の被着体及び第二の被着体を互いに押し付けることによって、第一の被着体に第二の被着体を貼付することもできる。

[0138] 粘着層は、例えば、粘着剤及び溶媒を含む粘着剤ワニスを調製し、当該粘着剤ワニスを塗布して乾燥させることにより、形成することができる。粘着剤ワニスに用いられる溶媒は、特に制限されないが、粘着剤が良好な溶解性を示すことから、グリコール系溶剤、グリコールエーテル系溶剤、グリコールエステル系溶剤等が好ましい。

[0139] 溶媒としては、例えば、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、プロピレングリコール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、プロピレングリコール、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、トリエチレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテル、３－メトキシ－３－メチルー１－ブタノール、エチレングリコールモノメチルエーテルアセテート、PMA（プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート）、ジエチレングリコールモノブチルエーテルアセテート及びジエチレングリコール

モノエチルエーテルアセテートが挙げられる。上記以外にも、N-メチルピロリドン、N-エチルピロリドン、N-メチルスクシイミド、N, N'-ジメチルアセトアミド及びジメチルホルムアミドも用いることができる。これらの溶剤は単独で用いても良いし、2種類以上を混合させて用いても良い。

[0140] 貼付工程における粘着層は、粘着剤ワニスで第一の被着体又は第二の被着体の一面上に塗布して乾燥させることにより、当該一面上に設けられたものであってもよく、後述する支持体上に形成した粘着層を第一の被着体又は第二の被着体の一面上にラミネートして転写することによって当該一面上に設けられたものであってもよい。

[0141] 貼付工程では、例えば、第一の被着体と第二の被着体とを0～50℃で貼付することができる。

[0142] 加熱工程では、第一の被着体及び第二の被着体が加熱される。加熱の方法及び加熱の目的は特に制限されないが、当該加熱により、粘着層は、200℃以上の温度下に晒される。通常、耐熱性の低い粘着剤（例えば、アクリル系粘着剤）をこのような加熱工程に供すると、粘着性が維持されず、浮きや剥がれが生じてしまう。しかし、本実施形態に係る粘着剤を含む粘着層によれば、このような加熱工程を経ても粘着性が維持されるため、浮きや剥がれの発生を十分に抑制することができる。

[0143] 加熱工程においては、加熱した第一の被着体及び第二の被着体を成形加工してもよい。本実施形態に係る粘着剤を含む粘着層は、追従性に優れるため、成形加工によって第一の被着体及び第二の被着体に変形した場合でも、浮きや剥がれの発生が十分に抑制される。

[0144] 剥離工程では、第一の被着体から、粘着層及び第二の被着体を剥離する。ここで、粘着層と第二の被着体とは、一体となって第一の被着体から剥離されてもよく、それぞれ独立に第一の被着体から剥離されてもよい。

[0145] 剥離工程では、例えば、第一の被着体から、粘着層及び第二の被着体を0～50℃で剥離することができる。

[0146] 剥離工程で剥離された粘着層は、上記加熱工程を経ても粘着性が維持され

ているため、貼付工程に再利用することができる。

[0147] 第一の被着体及び第二の被着体としては、特に制限されないが、ポリエステル、ポリイミド、ポリアミド、ポリエーテルスルホン、ポリフェニレンスルフィド、ポリエーテルケトン、ポリエーテルエーテルケトン、トリアセチルセルロース、ポリエーテルイミド、ポリエチレンナフタレート、ポリプロピレン、アクリル、ポリスチレン、ポリカーボネート等から選択される少なくとも一つの有機材料を含むものが挙げられる。また、無機材料を含む支持体を用いることもでき、例えば、アルミニウム、マグネシウム、チタン、クロム、マンガン、鉄、ニッケル、亜鉛、錫、ガラス、銅、シリコンウエハ及び合金から選択される少なくとも一つの無機材料を含むものを用いることができる。

[0148] 第一の被着体及び第二の被着体としては、200℃以上の温度に対する耐熱性を有する材料を用いてもよく、例えば、ナイロン6、ナイロン66、ナイロン46等のポリアミド樹脂；ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリトリメチレンテレフタレート、ポリトリメチレンナフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリブチレンナフタレート等のポリエステル樹脂；ポリプロピレン、ポリエチレンなどのポリオレフィン樹脂；アクリル樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアリレート樹脂またはそれらの混合樹脂、アルミニウム、マグネシウム、チタン、クロム、マンガン、鉄、ニッケル、亜鉛、錫やガラス、銅、シリコンウエハが挙げられる。これらの材料の中では、ポリエステル樹脂、ポリアミド樹脂、ポリオレフィン樹脂、ポリイミド樹脂、アクリル樹脂、アルミニウム、マグネシウム、チタン、クロム、マンガン、鉄、ニッケル、亜鉛、錫、ガラス、銅、シリコンウエハが高い耐熱性を示すことから好ましい。

[0149] 上記の使用方法によれば、例えば、剛性が低い第一の被着体を、高温加工時には第二の被着体に確実に固定し、加工後には第一の被着体に損傷を与えたり変形させたりすることなく剥離することができる。

[0150] (粘着材)

図 1 は、本発明の粘着剤の好適な一実施形態を示す模式断面図である。図 1 に示す粘着剤 1 は、支持体 10 と、該支持体 10 上に設けられた粘着剤を含有する粘着層 14 と、を備える。

[0151] 支持体としては、特に制限されないが、ポリエステル、ポリイミド、ポリアミド、ポリエーテルスルホン、ポリフェニレンスルフィド、ポリエーテルケトン、ポリエーテルエーテルケトン、トリアセチルセルロース、ポリエーテルイミド、ポリエチレンナフタレート、ポリプロピレン、アクリル、ポリスチレン、ポリカーボネート等から選択される少なくとも一つの有機材料を含むものが挙げられる。また、無機材料を含む支持体を用いることもでき、例えば、アルミニウム、マグネシウム、チタン、クロム、マンガン、鉄、ニッケル、亜鉛、錫、ガラス、銅、シリコンウエハ及び合金から選択される少なくとも一つの無機材料を含むものを用いることができる。

[0152] 粘着材は、例えば、粘着剤及び溶媒を含む粘着剤ワニスを、支持体上に塗布して乾燥させることにより粘着層を形成して、作製することができる。このようなキャストリング法による作製方法は、平坦な粘着層が容易に得られることから好適である。粘着剤ワニスに用いられる溶媒としては、上記と同様のものが例示できる。

[0153] また、粘着材は、粘着剤及び溶媒を含む粘着剤ワニスを、離型フィルム上に塗布して乾燥させることにより形成された粘着層を、支持体にラミネートして転写させることにより、作製することもできる。

[0154] 粘着層の厚さは、0.1～100  $\mu\text{m}$  であることが好ましく、1～50  $\mu\text{m}$  であることがより好ましい。粘着層の厚さは、上記粘着剤ワニスにおける粘着剤の濃度や、粘着剤ワニスの塗布量によって、適宜調整することができる。

[0155] (粘着材の使用方法)

本実施形態に係る粘着剤は、高温環境下でも粘着性を維持することができるため、下記(1)～(3)の工程を備える用途に用いることができる。

(1) 被着体に、粘着材を、粘着層が被着体に近い側に配置されるように貼

付する貼付工程。

(2) 粘着材の温度が200℃以上となる条件下で、被着体を加熱する加熱工程。

(3) 加熱工程を経た被着体から、粘着材を剥離する剥離工程。

[0156] 貼付工程では、粘着材の粘着層と被着体とが接するようにして押圧することで、粘着材を被着体に貼付することができる。貼付工程では、第一の被着体と第二の被着体とを、任意の温度で貼付けすることができるが、例えば、適切な粘着性の発現と作業効率の観点から0～50℃で貼付することが望ましい。

[0157] 加熱工程では、被着体が加熱され、それとともに粘着層が200℃以上の温度下に晒される。通常、耐熱性の低い粘着剤（例えば、アクリル系粘着剤）をこのような加熱工程に供すると、粘着性が維持されず、浮きや剥がれが生じてしまう。しかし、本実施形態に係る粘着材によれば、このような加熱工程を経ても粘着性が維持されるため、浮きや剥がれの発生を十分に抑制することができる。

[0158] 加熱工程においては、加熱した被着体を成形加工してもよい。本実施形態に係る粘着剤を含む粘着層は、追従性に優れるため、成形加工によって被着体が変形した場合でも、浮きや剥がれの発生が十分に抑制される。

[0159] 剥離工程では、被着体から粘着材を剥離する。剥離工程では、例えば、被着体から粘着材を0～50℃で剥離することができる。

[0160] 剥離工程で剥離された粘着材は、上記加熱工程を経ても粘着性が維持されているため、貼付工程に再利用することができる。

[0161] 本使用方法における被着体としては、上記第一の被着体及び第二の被着体と同様のものが例示できる。

[0162] 上記の使用方法によれば、例えば、剛性が低い被着体を、高温加工時には支持体に確実に固定し、加工後には、被着体に損傷を与えたり変形させたりすることなく剥離することができる。

[0163] 以上、本発明の好適な実施形態について説明したが、本発明は上記実施形

態に限定されるものではない。

[0164] 例えば、本発明の一態様は、上記モノマー（A）及び上記モノマー（B）を含む重合性モノマーを縮合重合して得られる構造単位を有し、上記（1）及び（2）の少なくとも一方を満たす縮合系樹脂の、粘着剤としての使用、に関する。

[0165] また、本発明の他の態様は、上記モノマー（A）及び上記モノマー（B）を含む重合性モノマーを縮合重合して得られる構造単位を有し、上記（1）及び（2）の少なくとも一方を満たす縮合系樹脂の、粘着剤の製造のための使用、に関する。

[0166] また、本発明の他の態様は、ポリアミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂及びポリイミド樹脂からなる群より選択される縮合系樹脂であって、ポリオキシアルカンジイル基を有する縮合系樹脂の、粘着剤としての使用、に関する。

[0167] また、本発明の他の態様は、ポリアミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂及びポリイミド樹脂からなる群より選択される縮合系樹脂であって、ポリオキシアルカンジイル基を有する縮合系樹脂の、粘着剤の製造のための使用、に関する。

## 実施例

[0168] 以下、実施例により本発明をより具体的に説明するが、本発明は実施例に限定されるものではない。

[0169] （実施例1）

攪拌機、還流冷却器、温度計、窒素導入管を備えたセパラブルフラスコに、二塩化イソフタロイル50部（モル比）、ポリプロピレンオキサジジン（JEFFAMINE（登録商標）D-2000、HUNTSMAN社製）5部（モル比）及び1,4-ビス（3-アミノプロピル）ピペラジン45部（モル比）を、酸中和剤としてトリエチルアミン110部（モル比）を含むN-メチルピロリドン中、氷冷下で縮合重合させた。反応終了後、反応混合液に3倍量の水を加えて、不溶成分を分離、乾燥することにより平均分子量が45000のポリアミド樹脂を得た。得られたポリアミド樹脂を

、N，N'－ジメチルアセトアミドに溶解させ、粘着剤ワニスを得た。

[0170] 次いで、得られた粘着剤ワニスを、厚み $25\mu\text{m}$ 、幅 $20\text{cm}$ のポリイミドフィルムに、乾燥後の粘着層の厚みが $20\mu\text{m}$ となるようにアプリケータを用いて塗工し、 $130^{\circ}\text{C}$ で5分、次いで $150^{\circ}\text{C}$ で30分加熱して乾燥させ、粘着材を作製した。

[0171] 得られたポリアミド樹脂について以下の方法で $T_g$ を測定し、得られた粘着材について以下の方法で粘着性、剥れ残り及び耐熱性を評価した。結果を表1に示す。なお、図2は、示差走査型熱量計によって測定された、実施例1のポリアミド樹脂の $-50\sim 200^{\circ}\text{C}$ の間における熱収支を示す図である。

[0172] ( $T_g$ の測定)

アルミパン中に実施例1で得られたポリアミド樹脂を $3\text{mg}$ 取り、TA Instrument製示差走査型熱量計 DSC Q2000を使用して、 $-50\sim 200^{\circ}\text{C}$ の間における熱収支から、 $T_g$ を測定した。

[0173] (粘着性の評価)

実施例1で得られた粘着材を、厚さ $70\mu\text{m}$ の $10\text{cm}\times 10\text{cm}$ ガラス板上に配置し、 $17\sim 25^{\circ}\text{C}$ の条件下で、ロール圧 $0.3\text{MPa}$ のラミネータを $0.8\text{m}/\text{分}$ の速度で通過させることで貼り付けた。貼り付けられた粘着材を $200^{\circ}\text{C}$ 、10分間加熱した後に、粘着材のポリイミドフィルムの端部を少し剥がして把持し、レオメータRE3305R（山電製）引っ張り試験機を用いて、幅 $10\text{mm}$ を $90^{\circ}$ 度、引張速度 $300\text{mm}/\text{min}$ で、ポリイミドフィルムを引き剥がすのに要する最小の力（ $\text{N}/\text{cm}$ ）を測定した。

[0174] (剥れ残りの評価)

実施例1で得られた粘着材の重量を測定し、予め測定していたポリイミドフィルムの重量を差し引くことで、粘着材の粘着層の重量を算出した。次いで、粘着性の評価と同様にして、粘着材のガラス板への貼り付け及び粘着材の剥離を行った。剥離した粘着材の重量を測定し、予め測定していたポリイミドフィルムの重量を差し引くことで、剥離後の粘着材の粘着層の重量を算

出した。このとき、貼付前の粘着層の重量に対する、剥離後の粘着層の重量の割合が90%以上であった場合を「A」、90%未満であった場合を「B」として、剥れ残りの有無を評価した。

[0175] (耐熱性の評価)

粘着性の評価と同様にして、粘着材のガラス板への貼り付けを行った。粘着材を貼り付けたガラス板を、200℃のクリーンオーブン中で1時間加熱し、粘着材のガラス板からの剥れの有無を目視で確認した。剥れがなかった場合を「A」、剥れがあった場合を「B」として、耐熱性を評価した。

[0176] (実施例2)

二塩化イソフタロイル43.75部(モル比)、二塩化テレフタロイル6.25部、ポリプロピレングリコールジアミン(JEFFAMINE(登録商標)D-2000、HUNTSMAN社製)5部及び1,4-ビス(3-アミノプロピル)ピペラジン45部を、N-メチルピロリドン中で縮合重合して、ポリアミド樹脂を得た。得られたポリアミド樹脂を、N,N'-ジメチルアセトアミドに溶解させ、粘着剤ワニスを得た。

[0177] 次いで、得られた粘着剤ワニスをを用いて実施例1と同様にして、粘着材を作製した。また、得られたポリアミド樹脂について上記の方法でT<sub>g</sub>を測定し、得られた粘着材について上記の方法で粘着性、剥れ残り及び耐熱性を評価した。結果を表1に示す。なお、図3は、示差走査型熱量計によって測定された、実施例2のポリアミド樹脂の-50~200℃の間における熱収支を示す図である。

[0178] (比較例1)

二塩化イソフタロイル13部、3,3-ジアミノジフェニルスルホン13部をN-メチルピロリドン中で縮合重合して、ポリアミド樹脂を得た。得られたポリアミド樹脂を、N,N'-ジメチルアセトアミドに溶解させ、粘着剤ワニスを得た。

[0179] 次いで、得られた粘着剤ワニスをを用いて実施例1と同様にして、粘着材を作製した。また、得られたポリアミド樹脂について上記の方法でT<sub>g</sub>を測定

し、得られた粘着材について上記の方法で粘着性、剥れ残り及び耐熱性を評価した。結果を表 1 に示す。なお、図 4 は、示差走査型熱量計によって測定された、比較例 1 のポリアミド樹脂の  $-50 \sim 200^{\circ}\text{C}$  の間における熱収支を示す図である。

[表1]

|       | T <sub>g</sub> ( $^{\circ}\text{C}$ ) | 粘着性<br>(N/cm) | 剥れ残り    | 耐熱性     |
|-------|---------------------------------------|---------------|---------|---------|
| 実施例 1 | 126、176                               | 1.22          | A       | A       |
| 実施例 2 | 49.9、86.8、158                         | 0.70          | A       | A       |
| 比較例 1 | 明確なT <sub>g</sub> を検出できず              | 室温で粘着せず       | 室温で粘着せず | 室温で粘着せず |

## 請求の範囲

- [請求項1]           カルボキシル基を少なくとも2つ有するモノマー（A）及びアミノ基を少なくとも2つ有するモノマー（B）を含む重合性モノマーを縮合重合して得られる構造単位を有する縮合系樹脂を含有し、
- 下記（1）及び（2）の少なくとも一方を満たす、粘着剤。
- （1）前記モノマー（A）、前記モノマー（A）の無水物及び前記モノマー（B）からなる群より選ばれる少なくとも一種が、25℃で液状である。
- （2）前記縮合系樹脂が、ポリオキシアルカンジイル基を有する。
- [請求項2]           前記（1）及び（2）の双方を満たす、請求項1に記載の粘着剤。
- [請求項3]           前記縮合系樹脂が、ポリアミドイミド樹脂、ポリイミド樹脂及びポリアミド樹脂からなる群より選ばれる少なくとも一種を含む、請求項1又は2に記載の粘着剤。
- [請求項4]           前記縮合系樹脂が、ポリアミド樹脂である、請求項1～3のいずれか一項に記載の粘着剤。
- [請求項5]           前記縮合系樹脂中の前記構造単位が、前記ポリオキシアルカンジイル基を有する、請求項1～4のいずれか一項に記載の粘着剤。
- [請求項6]           前記構造単位中の前記モノマー（B）に由来する構造が、前記ポリオキシアルカンジイル基を有する、請求項1～5のいずれか一項に記載の粘着剤。
- [請求項7]           前記重合性モノマーが、ポリオキシアルカンジイル基及び少なくとも2つのアミノ基を有するモノマー（b-1）を、前記モノマー（A）及び前記モノマー（B）の総量に対して2.5～10mol%の割合で含む、請求項1～6のいずれか一項に記載の粘着剤。
- [請求項8]           前記縮合系樹脂の含有量が50質量%以上である、請求項1～7のいずれか一項に記載の粘着剤。
- [請求項9]           前記縮合系樹脂からなる粘着剤である、請求項1～8のいずれか一項に記載の粘着剤。

- [請求項10]       ポリアミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂及びポリイミド樹脂からなる群より選択される縮合系樹脂を50質量%以上含有し、  
前記縮合系樹脂がポリオキシアルカンジイル基を有する、粘着剤。
- [請求項11]       前記縮合系樹脂が、ポリオキシアルカンジイル基を有するジアミン単位を含む、請求項10に記載の粘着剤。
- [請求項12]       前記縮合系樹脂が二価の芳香環基をさらに有する、請求項10又は11に記載の粘着剤。
- [請求項13]       前記縮合系樹脂が、二価の芳香環基を有するジカルボン酸単位を含む、請求項12に記載の粘着剤。
- [請求項14]       前記縮合系樹脂が1,4-ピペラジンジイル基をさらに有する、請求項10～13のいずれか一項に記載の粘着剤。
- [請求項15]       前記縮合系樹脂が、1,4-ピペラジンジイル基を有するジアミン単位を含む、請求項14に記載の粘着剤。
- [請求項16]       前記縮合系樹脂からなる粘着剤である、請求項10～15のいずれか一項に記載の粘着剤。
- [請求項17]       被着体に貼付され、200℃以上に加熱された後に該被着体から剥離される耐熱性粘着剤として用いられる、請求項1～16のいずれか一項に記載の粘着剤。
- [請求項18]       カルボキシル基を少なくとも2つ有するモノマー（A）及びアミノ基を少なくとも2つ有するモノマー（B）を含む重合性モノマーを縮合重合して得られる構造単位を有し、下記（1）及び（2）の少なくとも一方を満たす縮合系樹脂の、粘着剤としての使用。  
（1）前記モノマー（A）、前記モノマー（A）の無水物及び前記モノマー（B）からなる群より選ばれる少なくとも一種が、25℃で液状である。  
（2）前記縮合系樹脂が、ポリオキシアルカンジイル基を有する。
- [請求項19]       カルボキシル基を少なくとも2つ有するモノマー（A）及びアミノ基を少なくとも2つ有するモノマー（B）を含む重合性モノマーを縮

合重合して得られる構造単位を有し、下記（１）及び（２）の少なくとも一方を満たす縮合系樹脂の、粘着剤の製造のための使用。

（１）前記モノマー（Ａ）、前記モノマー（Ａ）の無水物及び前記モノマー（Ｂ）からなる群より選ばれる少なくとも一種が、２５℃で液状である。

（２）前記縮合系樹脂が、ポリオキシアルカンジイル基を有する。

[請求項20]        ポリアミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂及びポリイミド樹脂からなる群より選択される縮合系樹脂であって、ポリオキシアルカンジイル基を有する縮合系樹脂の、粘着剤としての使用。

[請求項21]        ポリアミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂及びポリイミド樹脂からなる群より選択される縮合系樹脂であって、ポリオキシアルカンジイル基を有する縮合系樹脂の、粘着剤の製造のための使用。

[請求項22]        支持体と、該支持体上に設けられた請求項１～１７のいずれか一項に記載の粘着剤を含有する粘着層と、を備える粘着材。

[請求項23]        第一の被着体に、請求項１～１７のいずれか一項に記載の粘着剤を含有する粘着層を介して、第二の被着体を貼付する貼付工程と、

前記粘着層の温度が２００℃以上となる条件下で、前記第一の被着体及び前記第二の被着体を加熱する加熱工程と、

前記加熱工程を経た前記第一の被着体から、前記粘着層及び前記第二の被着体を剥離する剥離工程と、

を備える、粘着剤の使用方法。

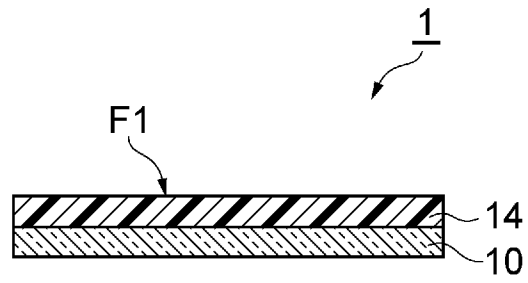
[請求項24]        前記貼付工程において、前記第一の被着体と前記第二の被着体とを０～５０℃で貼付する、請求項２３に記載の使用方法。

[請求項25]        前記剥離工程において、前記第一の被着体から、前記粘着層及び前記第二の被着体を０～５０℃で剥離する、請求項２３又は２４に記載の使用方法。

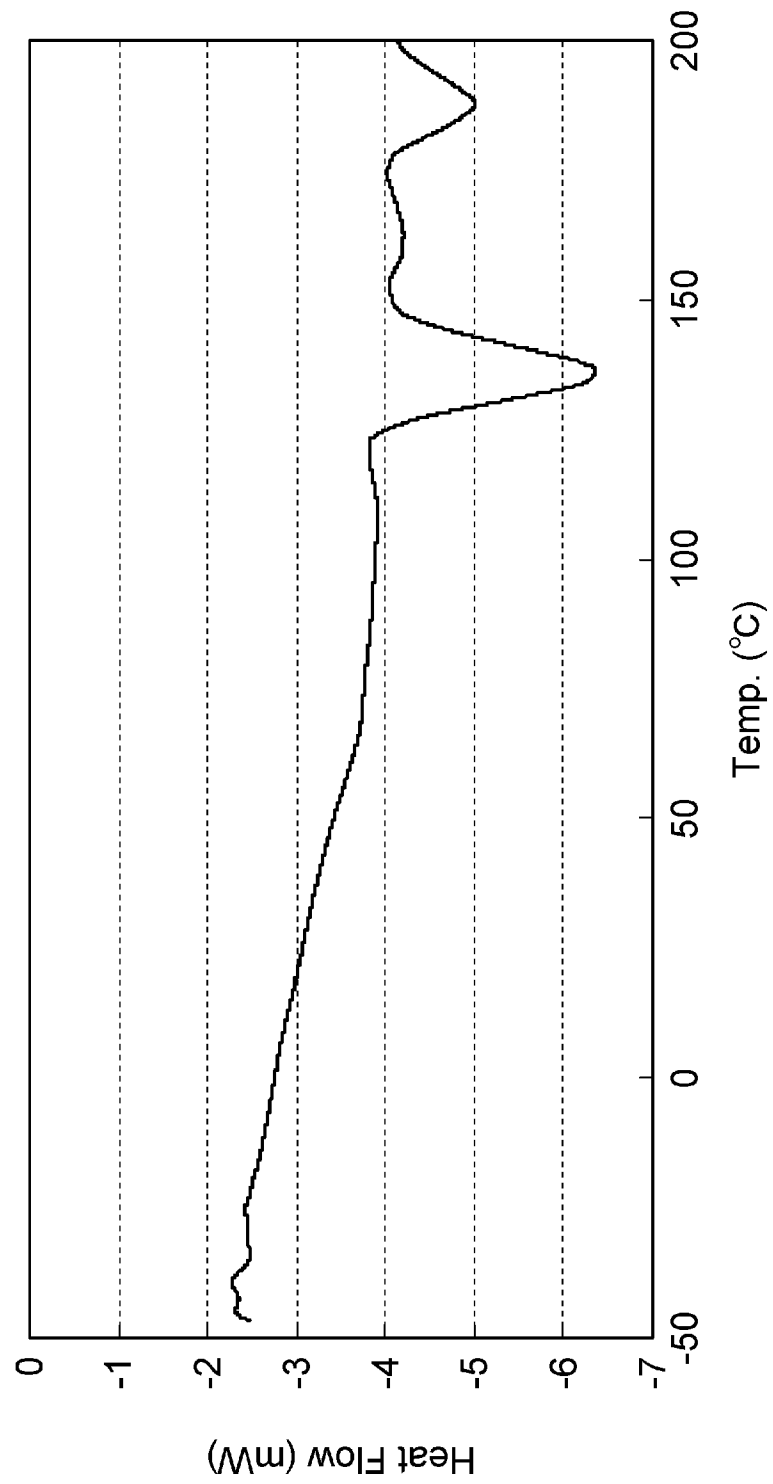
[請求項26]        前記剥離工程で剥離された前記粘着層を、前記貼付工程に再利用する、請求項２３～２５のいずれか一項に記載の使用方法。

- [請求項27]        被着体に、請求項 2 2 に記載の粘着材を、前記粘着層が前記被着体に近い側に配置されるように貼付する貼付工程と、  
                  前記粘着材の温度が 2 0 0℃以上となる条件下で、前記被着体を加熱する加熱工程と、  
                  前記加熱工程を経た前記被着体から、前記粘着材を剥離する剥離工程と、  
                  を備える、粘着材の使用方法。
- [請求項28]        前記貼付工程において、前記粘着材を前記被着体に 0～5 0℃で貼付する、請求項 2 7 に記載の使用方法。
- [請求項29]        前記剥離工程において、前記被着体から、前記粘着材を 0～5 0℃で剥離する、請求項 2 7 又は 2 8 に記載の使用方法。
- [請求項30]        前記剥離工程で剥離された前記粘着材を、前記貼付工程に再利用する、請求項 2 7～2 8 のいずれか一項に記載の使用方法。

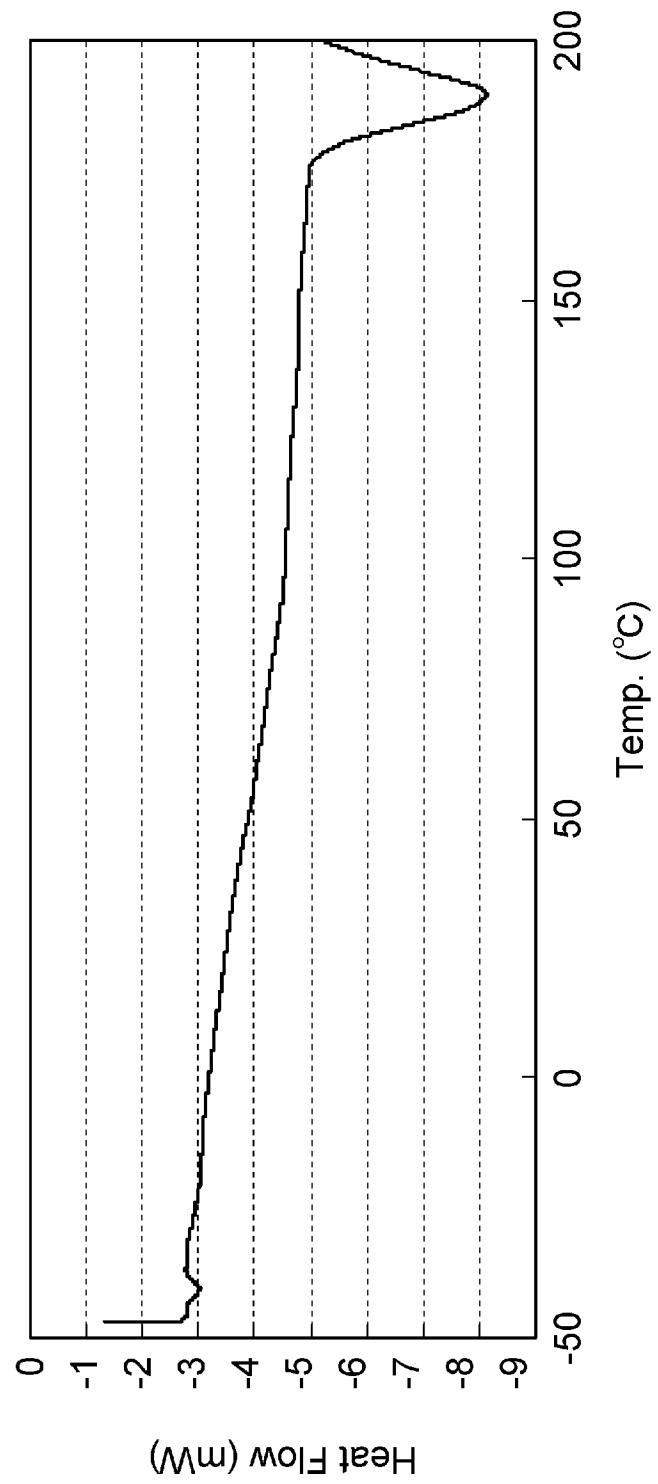
[図1]



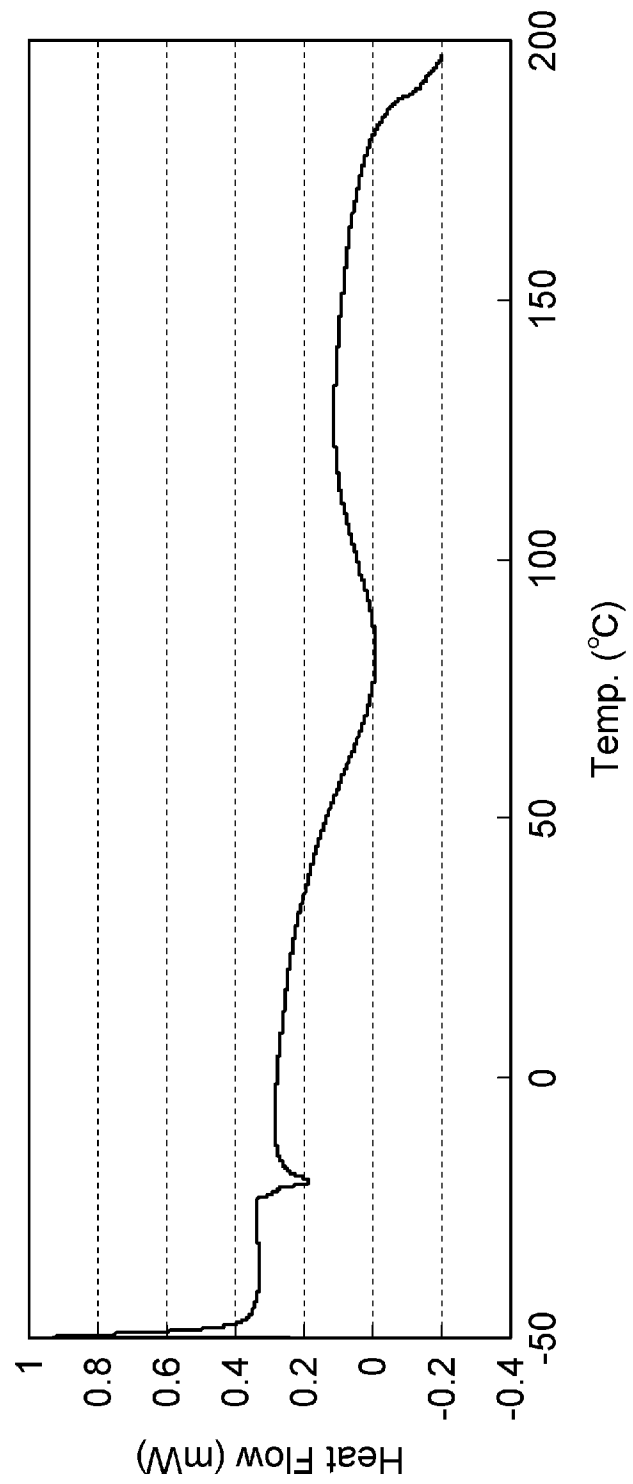
[図2]



[図3]



[図4]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/060069

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C09J201/00(2006.01)i, C09J5/06(2006.01)i, C09J7/02(2006.01)i, C09J177/06(2006.01)i, C09J179/08(2006.01)i, C09J201/06(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)

C09J1/00-201/10, C08G73/00-73/26

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

|                           |           |                            |           |
|---------------------------|-----------|----------------------------|-----------|
| Jitsuyo Shinan Koho       | 1922-1996 | Jitsuyo Shinan Toroku Koho | 1996-2012 |
| Kokai Jitsuyo Shinan Koho | 1971-2012 | Toroku Jitsuyo Shinan Koho | 1994-2012 |

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<br>A    | JP 10-234840 A (Teijin Ltd.),<br>08 September 1998 (08.09.1998),<br>claims; examples<br>(Family: none) | 1-6, 8-13, 16,<br>18-22<br>7, 14-15, 17,<br>23-30 |
| X<br>A    | JP 10-298067 A (Teijin Ltd.),<br>10 November 1998 (10.11.1998),<br>claims; examples<br>(Family: none)  | 1-6, 8-13, 16,<br>18-22<br>7, 14-15, 17,<br>23-30 |
| X<br>A    | JP 10-298069 A (Teijin Ltd.),<br>10 November 1998 (10.11.1998),<br>claims; examples<br>(Family: none)  | 1-6, 8-13, 16,<br>18-22<br>7, 14-15, 17,<br>23-30 |



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  
26 June, 2012 (26.06.12)

Date of mailing of the international search report  
17 July, 2012 (17.07.12)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/060069

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                                                                                  | Relevant to claim No.                                        |
|-----------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------|
| X<br>A    | JP 62-022843 A (Minnesota Mining and Manufacturing Co.),<br>31 January 1987 (31.01.1987),<br>claims; page 5, upper right column; examples<br>& US 4696965 A & US 4769285 A<br>& EP 210812 A1 & KR 10-1991-0003913 B | 1-8, 10-13,<br>16, 18-22<br>9, 14-15, 17,<br>23-30           |
| X<br>A    | JP 2009-191230 A (Mitsui Chemicals, Inc.),<br>27 August 2009 (27.08.2009),<br>claims; paragraph [0037]; examples<br>(Family: none)                                                                                  | 1-3, 5-6,<br>8-11, 16-25,<br>27-29<br>4, 7, 12-15,<br>26, 30 |
| X<br>A    | JP 2010-238852 A (Mitsui Chemicals, Inc.),<br>21 October 2010 (21.10.2010),<br>claims; paragraphs [0015], [0023] to [0025];<br>examples<br>(Family: none)                                                           | 1-3, 5-6,<br>8-11, 16-25,<br>27-29<br>4, 7, 12-15,<br>26, 30 |

## A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C09J201/00(2006.01)i, C09J5/06(2006.01)i, C09J7/02(2006.01)i, C09J177/06(2006.01)i,  
C09J179/08(2006.01)i, C09J201/06(2006.01)i

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C09J1/00-201/10, C08G73/00-73/26

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

|             |                     |
|-------------|---------------------|
| 日本国実用新案公報   | 1 9 2 2 - 1 9 9 6 年 |
| 日本国公開実用新案公報 | 1 9 7 1 - 2 0 1 2 年 |
| 日本国実用新案登録公報 | 1 9 9 6 - 2 0 1 2 年 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1 9 9 4 - 2 0 1 2 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<br>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<br>請求項の番号                                    |
|-----------------|----------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------|
| X<br>A          | JP 10-234840 A（帝人株式会社）<br>1998. 09. 08, 【特許請求の範囲】、【実施例】<br>（ファミリーなし） | 1-6, 8-13, 16,<br>18-22<br>7, 14-15, 17,<br>23-30 |
| X<br>A          | JP 10-298067 A（帝人株式会社）<br>1998. 11. 10, 【特許請求の範囲】、【実施例】<br>（ファミリーなし） | 1-6, 8-13, 16,<br>18-22<br>7, 14-15, 17,<br>23-30 |

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

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

の日の後に公表された文献

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

国際調査を完了した日

2 6 . 0 6 . 2 0 1 2

国際調査報告の発送日

1 7 . 0 7 . 2 0 1 2

国際調査機関の名称及びあて先

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

特許庁審査官（権限のある職員）

松原 宜史

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 8 0

4 Z

4 1 6 2

| C (続き) . 関連すると認められる文献 |                                                                                                                                                                          |                                                              |
|-----------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------|
| 引用文献の<br>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<br>請求項の番号                                               |
| X<br>A                | JP 10-298069 A (帝人株式会社)<br>1998. 11. 10, 【特許請求の範囲】、【実施例】<br>(ファミリーなし)                                                                                                    | 1-6, 8-13, 16,<br>18-22<br>7, 14-15, 17,<br>23-30            |
| X<br>A                | JP 62-022843 A (ミネソタ マイニング アンド マニユファクチュアリング コンパニー)<br>1987. 01. 31, 【特許請求の範囲】、【第 5 頁右上欄】、【実施例】<br>& US 4696965 A & US 4769285 A<br>& EP 210812 A1 & KR 10-1991-0003913 B | 1-8, 10-13,<br>16, 18-22<br>9, 14-15, 17,<br>23-30           |
| X<br>A                | JP 2009-191230 A (三井化学株式会社)<br>2009. 08. 27, 【特許請求の範囲】、【0 0 3 7】、【実施例】<br>(ファミリーなし)                                                                                      | 1-3, 5-6,<br>8-11, 16-25,<br>27-29<br>4, 7, 12-15,<br>26, 30 |
| X<br>A                | JP 2010-238852 A (三井化学株式会社)<br>2010. 10. 21, 【特許請求の範囲】、【0 0 1 5】、<br>【0 0 2 3】 - 【0 0 2 5】、【実施例】<br>(ファミリーなし)                                                            | 1-3, 5-6,<br>8-11, 16-25,<br>27-29<br>4, 7, 12-15,<br>26, 30 |