

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2011-88961  
(P2011-88961A)

(43) 公開日 平成23年5月6日(2011.5.6)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
C09J 7/00 (2006.01)	C09J 7/00	4J004
C09J 167/04 (2006.01)	C09J 167/04	4J040
C09J 167/02 (2006.01)	C09J 167/02	
C09J 11/00 (2006.01)	C09J 11/00	

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 21 頁)

(21) 出願番号	特願2009-241723 (P2009-241723)	(71) 出願人	000003964 日東電工株式会社 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号
(22) 出願日	平成21年10月20日 (2009.10.20)	(74) 代理人	110000729 特許業務法人 ユニアス国際特許事務所
		(72) 発明者	吉江 里美 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
		(72) 発明者	高比良 等 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
		Fターム(参考)	4J004 AA15 AB05 BA02 CA01 CC02 EA05 4J040 ED011 ED031 ED091 EF282 KA16 KA26 NA17 PA23

(54) 【発明の名称】 両面粘着シート

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】植物由来の原料を使用し、地球環境に優しく、被着体選択性を低減でき、被着体に対する安定した粘着性を示す両面粘着シートを提供する。

【解決手段】少なくとも、乳酸単位、二塩基酸単位、及びグリコール単位を含有するポリエステル、粘着付与樹脂、及び架橋剤を含有するポリエステル系粘着剤組成物より形成される粘着剤層を含む両面粘着シートであって、前記二塩基酸単位が、ダイマー酸を含有し、前記ポリエステルが、示差走査熱量計を用いて昇温速度20 /分で測定した際のガラス転移温度が-70~-20 であり、重量平均分子量が2万~20万であり、前記ポリエステルの水酸基価が、1~60mg KOH/gであり、前記ポリエステル100重量部に対して、粘着付与樹脂を10~70重量部含有し、前記粘着剤層のゲル分率が、50~90重量%であることを特徴とする両面粘着シート。

【選択図】なし

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

少なくとも、乳酸単位、二塩基酸単位、及びグリコール単位を含有するポリエステル、粘着付与樹脂、及び架橋剤を含有するポリエステル系粘着剤組成物より形成される粘着剤層を含む両面粘着シートであって、

前記二塩基酸単位が、ダイマー酸を含有し、

前記ポリエステルが、示差走査熱量計を用いて昇温速度 20 / 分で測定した際のガラス転移温度が - 70 ~ - 20 であり、重量平均分子量が 2 万 ~ 20 万であり、

前記ポリエステルの水酸基価が、1 ~ 60 mg KOH / g であり、

前記ポリエステル 100 重量部に対して、粘着付与樹脂を 10 ~ 70 重量部含有し、

前記粘着剤層のゲル分率が、50 ~ 90 重量%であることを特徴とする両面粘着シート

10

## 【請求項 2】

前記ポリエステルが、前記乳酸単位を 10 ~ 50 モル%含有し、前記乳酸単位以外の成分を 50 ~ 90 モル%含有し、

前記二塩基酸単位とグリコール単位の間比が、1 : 0.8 ~ 1 : 1.2 であることを特徴とする請求項 1 記載の両面粘着シート。

## 【請求項 3】

更に、前記二塩基酸単位が、ダイマー酸以外の脂肪族二塩基酸を含有することを特徴とする請求項 1 又は 2 記載の両面粘着シート。

20

## 【請求項 4】

前記ポリエステルが、前記乳酸単位、二塩基酸単位、及びグリコール単位以外の成分として、3 官能以上のカルボン酸及び / 又はポリオールを含有し、

前記ポリエステルの分散度 ( Mw / Mn ) が、2.5 ~ 10.0 であることを特徴とする請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の両面粘着シート。

## 【請求項 5】

前記ポリエステルの酸価が、5 mg KOH / g 以下であることを特徴とする請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載の両面粘着シート。

## 【請求項 6】

前記架橋剤が、多価イソシアヌレートであることを特徴とする請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の両面粘着シート。

30

## 【請求項 7】

前記粘着付与樹脂が、植物由来の原料から得られるものであることを特徴とする請求項 1 ~ 6 のいずれかに記載の両面粘着シート。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、両面粘着シートに関する。

40

## 【背景技術】

## 【0002】

従来、レンズ ( ガラス製レンズや、プラスチック製レンズなど )、プリズム、反射板、補償板、偏光板などの光学部材等を貼り合わせる際には、アクリル系粘着剤を用いた両面粘着シートやフィルムが多く用いられてきた ( 特許文献 1 及び 2 )。

## 【0003】

上記両面粘着シート等に用いられる粘着剤の材料には、これまで、主にアクリル系粘着剤等が使用され、前記粘着剤は化石資源 ( 石油など ) を用いて製造されている。

## 【0004】

一方、近年、化石資源の枯渇や地球温暖化の防止策として、再生可能な材料である植物

50

由来の原料の使用が推奨されており、更に、地球温暖化の原因である化石資源の燃焼による二酸化炭素の増加が懸念され、その対策として、いわゆるカーボンニュートラルである植物由来の材料への代替が進行している。

【0005】

しかし、現時点で使用可能な植物由来のアクリル系粘着剤は、見つかっていない。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0006】

【特許文献1】特開2005-23114号公報

【特許文献2】特開2005-255877号公報

10

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

そこで、本発明は、植物由来の原料を使用し、地球環境に優しく、被着体選択性を低減でき、被着体に対する安定した粘着性を示す両面粘着シート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】

【0008】

本発明者らは、前記課題を解決するために鋭意研究を重ねた結果、以下に示す両面粘着シートを見出し、本発明を完成するに至った。

20

【0009】

すなわち、本発明の両面粘着シートは、少なくとも、乳酸単位、二塩基酸単位、及びグリコール単位を含有するポリエステル、粘着付与樹脂、及び架橋剤を含有するポリエステル系粘着剤組成物より形成される粘着剤層を含む両面粘着シートであって、前記二塩基酸単位が、ダイマー酸を含有し、前記ポリエステルが、示差走査熱量計を用いて昇温速度20 /分で測定した際のガラス転移温度が-70~-20であり、重量平均分子量が2万~20万であり、前記ポリエステルの水酸基価が、1~60mg KOH/gであり、前記ポリエステル100重量部に対して、粘着付与樹脂を10~70重量部含有し前記粘着剤層のゲル分率が、50~90重量%であることを特徴とする。

【0010】

30

本発明の両面粘着シートは、前記ポリエステルが、前記乳酸単位を10~50モル%含有し、前記乳酸単位以外の成分を50~90モル%含有し、前記二塩基酸単位とグリコール単位のモル比が、1:0.8~1:1.2であることが好ましい。

【0011】

本発明の両面粘着シートは、更に、前記二塩基酸単位が、ダイマー酸以外の脂肪族二塩基酸を含有することが好ましい。

【0012】

本発明の両面粘着シートは、前記ポリエステルが、前記乳酸単位、二塩基酸単位、及びグリコール単位以外の成分として、3官能以上のカルボン酸及び/又はポリオールを含有し、前記ポリエステルの分散度(Mw/Mn)が、2.5~10.0であることが好ましい。

40

【0013】

本発明の両面粘着シートは、前記ポリエステルの酸価が、5mg KOH/g以下であることが好ましい。

【0014】

本発明の両面粘着シートは、前記架橋剤が、多価イソシアヌレートであることが好ましい。

【0015】

本発明の両面粘着シートは、前記粘着付与樹脂が、植物由来の原料から得られるものであることが好ましい。

50

## 【発明の効果】

## 【0016】

本発明は、植物由来の原料である乳酸や二塩基酸等を使用した特定のポリエステルに、架橋剤や、特定量の粘着付与樹脂を配合したポリエステル系粘着剤組成物を両面粘着シートに用いることにより、化石（石油）資源の枯渇を抑制し、前記両面粘着シートの使用後、剥離して焼却処理した場合であっても、化石（石油）資源由来の原料を用いた粘着シートと比較して、カーボンニュートラルを実現することができ、地球環境に優しく、様々な被着体に対する安定した粘着性（固定性）を有し、被着体選択性を低減することができる両面粘着シートを得ることができ、有効である。

## 【発明を実施するための形態】

## 【0017】

本発明の両面粘着シートに用いられるポリエステルは、少なくとも、乳酸単位、二塩基酸単位、及びグリコール単位を含有する。なお、ポリエステルの合成方法としては、特に限定されるものではなく、公知の重合方法を用いることができる。また、本発明でいう両面粘着シートとしては、シート状に限定されるものではなく、フィルム状やテープ状等をも含むものである。

## 【0018】

前記乳酸単位としては、特に限定されないが、例えば、L-ラクチド、D-ラクチド、DL-ラクチド、メソラクチド、L-乳酸、D-乳酸及びDL-乳酸等が挙げられる。これらの中でも、重合反応の効率、溶剤への溶解性から、DL-ラクチドが好ましい。これらの乳酸単位を共重合させることにより、所望の特性を有するポリエステルを得ることができる。前記乳酸単位は、1種または2種以上を組み合わせて使用できる。

## 【0019】

前記乳酸単位は、ポリエステル成分中、10～50モル%含有することが好ましく、より好ましくは、15～45モル%である。10モル%未満であると、前記ポリエステルを用いた粘着剤層の弾性率が低下し、経時的に粘着剤の粘着特性が変化する恐れがある。一方、50モル%を越えると、前記ポリエステルのガラス転移温度（T<sub>g</sub>）が高くなり、粘着特性の低下原因となる恐れがあり、好ましくない。

## 【0020】

一方、前記乳酸単位以外の成分は、ポリエステル成分中、50～90モル%含有することが好ましく、より好ましくは、55～85モル%である。50モル%未満であると、前記ポリエステルを用いた粘着剤の粘着特性が低下し、90モル%を越えると、前記ポリエステルを用いた粘着剤の凝集力が低下し、貼り付け材（基材や支持体等）との接着（粘着）力が低下する恐れがあり、好ましくない。

## 【0021】

前記二塩基酸単位は、ダイマー酸を含有する。また、前記ダイマー酸単位としては、水添ダイマー酸を用いてもよい。これらの二塩基酸単位を共重合させることにより、粘着特性に優れたポリエステルを得ることができる。前記二塩基酸単位は、1種または2種以上を組み合わせて使用できる。

## 【0022】

前記ポリエステルは、前記二塩基酸単位が、前記ダイマー酸以外の脂肪族二塩基酸を含有することが好ましい。ダイマー酸以外の脂肪族二塩基酸を共重合することにより、ダイマー酸と乳酸の相溶性を向上させることができ、溶剤溶解性を改良することが期待できる。

## 【0023】

前記脂肪族二塩基酸としては、特に限定されないが、例えば、多価カルボン酸やそのアルキルエステル、酸無水物などを挙げることができる。

## 【0024】

前記多価カルボン酸として、アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、4-メチル-1,2-シクロヘキサンジカルボン酸、ドデセニル

10

20

30

40

50

無水琥珀酸、フマル酸、琥珀酸、ドデカン二酸、ヘキサヒドロ無水フタル酸、テトラヒドロ無水フタル酸、マレイン酸、無水マレイン酸、イタコン酸、シトラコン酸等の脂肪族や脂環族ジカルボン酸等が挙げられ、特にセバシン酸は植物から得られるため好ましい。これらは、1種または2種以上を組み合わせ使用できる。

【0025】

更に、本発明の両面粘着シートに用いられるポリエステルの特性を損なわない程度であれば、芳香族二塩基酸を使用することができる。前記芳香族二塩基酸としては、特に限定されないが、例えば、テレフタル酸、イソフタル酸、オルソフタル酸、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、4,4'-ジフェニルジカルボン酸、2,2'-ジフェニルジカルボン酸、4,4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸等が挙げられる。これらは、1種または2種以上を組み合わせ使用できる。

10

【0026】

前記グリコール単位としては、特に制限されないが、例えば、脂肪族グリコールを使用することができる。脂肪族グリコールを使用することにより、前記ポリエステルの高分子量化が可能となり、前記ポリエステルを用いた粘着剤の粘着特性や耐久性向上を図ることができる。

【0027】

前記脂肪族グリコールとして、例えば、エチレングリコール、1,2-プロピレングリコール、1,3-プロパンジオール、2-メチル-1,3-プロパンジオール、1,2-ブタンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサジオール、3-メチル-1,5-ペンタンジオール、ネオペンチルグリコール、ジエチレングリコール、ジプロピレングリコール、2,2,4-トリメチル-1,5-ペンタンジオール、2-エチル-2-ブチルプロパンジオール、1,9-ノナンジオール、2-メチルオクタンジオール、1,10-デカンジオール、1,4-シクロヘキサジメタノール、1,2-シクロヘキサジメタノール等が挙げられ、特に1,3-プロパンジオールは植物から得られるため好ましい。これらは、1種または2種以上を組み合わせ使用できる。

20

【0028】

本発明の両面粘着シートに用いられるポリエステルの特性を損なわない程度であれば、前記脂肪族グリコール以外のグリコール単位を併用してもよく、例えば、ビスフェノールAのエチレンオキサイド付加物及びプロピレンオキサイド付加物、水素化ビスフェノールAのエチレンオキサイド付加物及びプロピレンオキサイド付加物、ポリテトラメチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリカーボネートグリコール等が挙げられる。これらは、1種または2種以上を組み合わせ使用できる。

30

【0029】

前記二塩基酸単位とグリコール単位のモル比は、1:0.8~1:1.2であることが好ましく、より好ましくは、1:0.9~1:1.1である。モル比が1:0.8より低い(グリコール単位の含有割合が低い)場合は、酸価が高くなったり、分子量が低くなったりし、1:1.2より高い(グリコール単位の含有割合が高い)場合は、分子量が低くなったり、粘着特性が低下する傾向にあり、好ましくない。

40

【0030】

更に、前記ポリエステルは、更に、前記乳酸単位、二塩基酸単位、及びグリコール単位以外の成分として、3官能以上のカルボン酸及び/又はポリオールを含有し、前記ポリエステルの分散度(Mw/Mn)が2.5~10.0であることが好ましく、より好ましくは2.5~9.5である。分散度が前記範囲内にある場合、粘着力の向上や、被着体への粘着剤の転移を防ぐことができ有効である。3官能以上のカルボン酸及び/又はポリオールを含有することにより、本発明に用いられるポリエステルをより高分子量化することができ、このポリエステルを使用した粘着剤が、粘着特性に優れたものとなる。なお、Mwとは、重量平均分子量であり、Mnは数平均分子量を表すものである。

【0031】

50

前記3官能以上のカルボン酸としては、特に制限されないが、例えば、トリメリット酸、ピロメリット酸、ベンゾフェノンテトラカルボン酸、ビフェニルテトラカルボン酸、エチレングリコールビス(アンヒドロトリメリテート)、グルセロールトリス(アンヒドロトリメリテート)等が挙げられる。

【0032】

また、前記3官能以上のポリオールとしては、グリセリン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール、ポリグリセリンなどが挙げられる。

【0033】

前記3官能以上のカルボン酸及び/又はポリオールは、反応性の観点から、ポリエステル成分中、0.01~10モル%が好ましく、より好ましくは、0.1~5モル%である。

10

【0034】

また、本発明の両面粘着シートに用いられるポリエステルの特性を損なわない程度であれば、グリコール酸やラクトン類を共重合(使用)することもでき、また、他の成分を重合後に、前記グリコール酸やラクトン類を添加・重合して、分子末端を変性することも可能である。また、他の成分を重合後に、酸無水物を添加・重合して、分子末端をカルボキシル基に変性することも可能である。これらは、1種または2種以上を組み合わせ使用できる。

【0035】

前記ポリエステルは、示差走査熱量計を用いて昇温速度20 /分で測定した際のガラス転移温度(Tg)が-70~-20であり、好ましくは、-60~-40である。Tgが-70未満であると、保持力が低下する恐れがあり、-20を越える場合は、前記ポリエステルを用いた粘着剤の常温での粘着特性が低下する恐れがあり、好ましくない。

20

【0036】

前記ポリエステルは、重量平均分子量が2万~20万であり、好ましくは、5万~15万である。重量平均分子量が2万未満の場合は、前記ポリエステルを用いた粘着剤の粘着力低下の原因となる場合がある。また、20万を超えると、凝集力の低下や、保持力の低下などの原因となる場合があり、好ましくない。

【0037】

前記ポリエステルは、水酸基価が1~60mg KOH/gであり、好ましくは、2~40mg KOH/gであり、特に好ましくは、3~20mg KOH/gである。水酸基価が1mg KOH/g未満の場合は、架橋剤との反応性が悪くなり、前記ポリエステルを用いた粘着剤の凝集力の低下の原因となる。また、60mg KOH/gを超えると、耐水性が低下する恐れがあり、好ましくない。

30

【0038】

前記ポリエステルは、酸価が5mg KOH/g以下であることが好ましく、より好ましくは0.1~3mg KOH/gである。酸価が5mg KOH/gを超えると、加水分解が促進され、耐久性を低下させる場合があり、好ましくない。

【0039】

本発明の両面粘着シートに用いられるポリエステル系粘着剤組成物は、前記ポリエステル(ポリエステル(i))50~100重量部に対して、水酸基価が100~1000mg KOH/gである分岐型ポリエステルオリゴマー(ii)を0~50重量部含有するポリエステル組成物として用いることが好ましく、より好ましくは、前記ポリエステル(i)を90~99重量部、水酸基価が100~800mg KOH/gである分岐型ポリエステルオリゴマー(ii)を1~10重量部含有するポリエステル組成物として用いることである。分岐型ポリエステルオリゴマー(ii)を配合することにより、硬化(架橋)が促進され、粘着剤(層)として利用した場合に、凝集力が向上し、有効である。また水酸基価が100mg KOH/g未満であると、硬化促進効果が不十分となり、1000mg KOH/gを超えると、汎用の有機溶剤への溶解性が悪化する恐れがあり、好ましくない。また

40

50

、分岐型ポリエステルオリゴマー ( i i ) の添加量が 1 重量部未満であると、硬化促進効果が不十分となり、50 重量部を超えると、粘着特性を損なう恐れがあり、好ましくない。なお、本発明においてポリエステル組成物とは、ポリエステル単独 ( 前記ポリエステルのみを使用し、分岐型ポリエステルオリゴマーを使用しない場合 ) 、又は、前記ポリエステルと分岐型ポリエステルオリゴマーの混合したものを意味し、ポリエステル系粘着剤組成物とは、前記ポリエステル組成物に、架橋剤などの添加剤を配合したものを意味する。

【 0 0 4 0 】

前記分岐型ポリエステルオリゴマー ( i i ) は、構造中に分岐を有し、有機溶剤への溶解性も良好であり、経済面においても、比較的安価である。

【 0 0 4 1 】

前記分岐型ポリエステルオリゴマー ( i i ) の数平均分子量は 1 0 0 0 ~ 8 0 0 0 が好ましく、より好ましくは、1 0 0 0 ~ 6 0 0 0 である。1 0 0 0 未満であると、被着体への汚染の原因となる恐れがあり、8 0 0 0 を超えると、架橋剤との反応性が低下する恐れがあり、好ましくない。

【 0 0 4 2 】

前記分岐型ポリエステルオリゴマー ( i i ) の構造については、特に限定されるものではないが、例えば、A B x 型化合物の重縮合反応あるいは重付加反応により得られるものを主骨格とする構造を有することが好ましい。ここで、A B x 型化合物とは、異なる官能基 A 及び B ( 有機基 ) を併せ持つ化合物を意味する。また、前記 A B x 型化合物は、分子内縮合や分子内付加反応は起こさないが、分子間縮合や分子間付加反応は起こすことが可能な官能基を有する化合物である。特に好ましくは、主骨格にエステル結合を有するものが好ましく、異なる官能基としては、例えば、官能基 A がカルボキシル基又はその誘導体基、官能基 B が水酸基又はその誘導体基であり、これらを併せ持つ化合物である。

【 0 0 4 3 】

前記 A B x 型化合物の具体例としては、2, 2 - ジメチロールプロピオン酸、2, 2 - ジメチロールブタン酸、5 - ( 2 - ヒドロキシエトキシ ) イソフタル酸、5 - アセトキシイソフタル酸、3, 5 - ビス ( 2 - ヒドロキシエトキシ ) 安息香酸、3, 5 - ビス ( 2 - ヒドロキシエトキシ ) 安息香酸メチルエステル、4, 4 - ( 4 ' - ヒドロキシフェニル ) ペンタン酸、5 - ヒドロキシシクロヘキサン - 1, 3 - ジカルボン酸、1, 3 - ジヒドロキシ - 5 - カルボキシシクロヘキサン、5 - ( 2 - ヒドロキシエトキシ ) シクロヘキサン - 1, 3 - ジカルボン酸、1, 3 - ( 2 - ヒドロキシエトキシ ) - 5 - カルボキシシクロヘキサン等が挙げられる。特に、原料となる化合物の汎用性や、重合反応工程の簡便性の観点から、2, 2 - ジメチロールプロピオン酸、2, 2 - ジメチロールブタン酸を用いることが好ましい。

【 0 0 4 4 】

また、前記分岐型ポリエステルオリゴマー ( i i ) は、エステル結合を有するため、ポリエステル ( i ) との相溶性に優れ、これらの反応物 ( 架橋体 ) の透明性がより高まる傾向にあり、有効である。特に脂肪族モノマーからなる分岐型ポリエステルオリゴマー ( i i ) は、より相溶性に優れる傾向にあり、好ましい。

【 0 0 4 5 】

前記分岐型ポリエステルオリゴマー ( i i ) の製造方法は、前記 A B x 型化合物を単独で、縮合反応触媒の存在下で反応させて合成することができ、また、多価水酸基含有化合物や、多価カルボン酸、あるいは水酸基とカルボキシル基を併せ持つ化合物を用いて、前記分岐型ポリエステルオリゴマー ( i i ) の分岐点として、用いることもできる。

【 0 0 4 6 】

前記多価水酸基含有化合物として、汎用の種々のグリコール化合物や、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール、ジペンタエリスリトールなどの 3 官能以上の水酸基含有化合物が挙げられる。

【 0 0 4 7 】

また、前記多価カルボン酸としては、汎用の種々の二塩基酸、トリメリット酸、ピロメリット酸、ベンゾフェノンテトラカルボン酸等の 3 官能以上のカルボン酸化合物が挙げら

10

20

30

40

50

れる。

【0048】

更に、水酸基等とカルボキシル基等を併せ持つ化合物としては、グリコール酸、ヒドロキシピバリン酸、3-ヒドロキシ-2-メチルプロピオン酸、乳酸、グリセリン酸、リンゴ酸、クエン酸などが挙げられる。

【0049】

前記分岐型ポリエステルオリゴマー(i i)の分岐点として、多価水酸基含有化合物や、多価カルボン酸、あるいは水酸基とカルボキシル基を併せ持つ化合物以外にも、二塩基酸とグリコール化合物の縮合反応により得られる直鎖状(線状)ポリエステルオリゴマーや、これらに3官能以上の多価水酸基含有化合物や、多価カルボン酸を共重合した特定官能基含有の分岐型ポリエステルオリゴマー(i i i)を用いることもできる。

10

【0050】

前記分岐点となりうる直鎖状(線状)ポリエステルオリゴマーや、特定官能基含有の分岐型ポリエステルオリゴマー(i i i)の原料として、汎用の種々の二塩基酸や、グリコール化合物、3官能以上の多価カルボン酸や、多価アルコール化合物を用いることができる。

【0051】

前記二塩基酸としては、コハク酸、アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカン酸などの脂肪族系二塩基酸、テレフタル酸、イソフタル酸、オルソフタル酸、1,2-ナフタレンジカルボン酸、1,6-ナフタレンジカルボン酸等の芳香族系二塩基酸、1,2-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-1,2-シクロヘキサンジカルボン酸などの脂環族二塩基酸などが挙げられる。これらの中でも、特に耐熱性の観点から、テレフタル酸、イソフタル酸、オルソフタル酸、1,2-ナフタレンジカルボン酸、1,6-ナフタレンジカルボン酸が好ましく、テレフタル酸、1,2-ナフタレンジカルボン酸、1,6-ナフタレンジカルボン酸が特に好ましい。

20

【0052】

前記グリコール化合物としては、エチレングリコール、1,2-プロピレングリコール、1,3-プロピレングリコール、1,2-ブチレングリコール、1,3-ブチレングリコール、2,3-ブチレングリコール、1,4-ブチレングリコール、2-メチル-1,3-プロピレングリコール、ネオペンチルグリコール、3-メチル-1,5-ペンタジオール、2,2,4-トリメチル-1,3-ペンタジジオール、2,4-ジエチル-1,5-ペンタジジオール、2-エチル-1,3-ヘキサジジオール、2,2-ジメチル-3-ヒドロキシプロピル-2',2'-ジメチル-3-ヒドロキシプロパネート、2-n-ブチル-2-エチル-1,3-プロパンジジオール、3-エチル-1,5-ペンタンジジオール、3-プロピル-1,5-ペンタンジジオール、2,2-ジエチル-1,3-プロパンジジオール、3-オクチル-1,5-ペンタンジジオール等の脂肪族系ジジオール類や、1,3-ビス(ヒドロキシメチル)シクロヘキサン、1,4-ビス(ヒドロキシメチル)シクロヘキサン、1,4-ビス(ヒドロキシエチル)シクロヘキサン、1,4-ビス(ヒドロキシプロピル)シクロヘキサン、1,4-ビス(ヒドロキシメトキシ)シクロヘキサン、1,4-ビス(ヒドロキシエトキシ)シクロヘキサン、2,2-ビス(4-ヒドロキシメトキシシクロヘキシル)プロパン、2,2-ビス(4-ヒドロキシエトキシシクロヘキシル)プロパン、ビス(4-ヒドロキシシクロヘキシル)メタン、2,2-ビス(4-ヒドロキシシクロヘキシル)プロパン、3(4),8(9)-トリシクロ[5.2.1.0<sup>2,6</sup>]デカンジメタノールなどの脂環族系グリコール類、ビスフェノールAなどのエチレンオキサイドやプロピレンオキサイド付加物等の芳香族系グリコール類などが挙げられる。

30

40

【0053】

更に、前記3官能以上の多価カルボン酸や多価水酸基含有化合物としては、トリメリット酸、ピロメリット酸、ベンゾフェノンテトラカルボン酸、グリセリン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトールなどが挙げられる。

【0054】

50

前記重合(縮合)反応で生成する水を除去する方法としては、トルエンやキシレンを用いて共沸脱水させる方法や、反応系内に不活性ガスを吹き込み、不活性ガスと共に、生成した水や、モノアルコールを反応系外に排出する方法、減圧下で溜出する方法等が挙げられる。

【0055】

前記重合(縮合)反応に用いられる重合触媒としては、通常のポリエステル重合触媒に用いられるものを使用することができ、特に限定されるものではないが、例えば、チタン系、錫系、アンチモン系、亜鉛系、ゲルマニウム系等の種々の金属化合物や、p-トルエンスルホン酸や硫酸などの強酸化合物を用いることができる。

【0056】

また、前記ポリエステルとの相溶性を向上させるために、分岐型ポリエステルオリゴマーの末端基に炭素数6以上の長鎖炭化水素基を導入することがより好ましい。例えば、炭素数6以上の炭化水素基を導入する方法としては、炭素数6以上の炭化水素基を有する化合物を予め合成した分岐型ポリエステルオリゴマーの末端のカルボキシル基や水酸基に付加反応や縮合反応する方法などが挙げられる。このような化合物としては、ヘキサノール、オクタノール、デシルアルコール、ウンデシルアルコール、ドデシルアルコール等の長鎖アルキル基を有するモノアルコール類や、オクタン酸、デカン酸、ドデカン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、不飽和基を有するオレイン酸等の長鎖アルキルやアルケニル基を有するモノカルボン酸類又はメチルエステル誘導体等が挙げられる。

【0057】

また、末端水酸基に対し、炭素数6以上の炭化水素基を有するカルボン酸無水物化合物を塩基性触媒存在下で開環付加させる方法や、末端カルボキシル基に対し、炭素数6以上の炭化水素基とグリシジル基を有する化合物をトリフェニルホスフィン等の適当な触媒の存在下で、反応付加させる方法などが挙げられる。前記炭化水素基を有する化合物としては、無水酸化合物が挙げられ、具体的には、ドデセニル琥珀酸無水物やオクタデシル琥珀酸無水物などが挙げられる。また、前記グリシジル基を有する化合物としては、フェニルグリシジリエーテル等の種々のアリアルグリシジリエーテル、ポリエチレングリコールモノグリシジリエーテル、ポリプロピレングリコールモノグリシジリエーテル、ポリテトラメチレングリコールモノグリシジリエーテルや、その他、アルキルやアルケニル、アルキニルグリシジリエーテル等のモノグリシジリエーテル類を挙げることができる。

【0058】

前記ポリエステル組成物の全体の水酸基価総量は、1~200mg KOH/gであることが好ましく、より好ましくは、5~100mg KOH/gである。水酸基価総量が1mg KOH/g未満であると、硬化促進効果が不十分となることがあり、200mg KOH/gを超えると、粘着特性を損なう恐れがあり、好ましくない。

【0059】

前記ポリエステル系粘着剤組成物が、植物由来の原料により製造されることが好ましい態様である。その理由としては、植物由来の原料は、生分解性で、いわゆるカーボニュートラルであるといわれており、地球環境に優しく、環境対応型の粘着剤を得ることができるからである。植物由来の原料をどのくらい含有するかの目安として、バイオマス度が、70%以上が好ましく、より好ましくは80%以上である。ここで、バイオマス度(%)とは、前記ポリエステル系粘着剤組成物を構成する使用原料全体の重量に対する植物由来の使用原料の重量から、植物由来の使用原料の割合を計算したものを意味する。植物由来の原料として、二塩基酸成分ではダイマー酸、セバシン酸など、乳酸成分としては、乳酸などが挙げられ、グリコール(ジオール)成分では、1,3-プロピレングリコールなどを挙げることができる。

【0060】

本発明の両面粘着シートに用いられるポリエステル系粘着剤組成物は、少なくとも、乳酸単位、二塩基酸単位、及びグリコール単位を含有するポリエステル、粘着付与樹脂、及び架橋剤を含有する。

10

20

30

40

50

## 【 0 0 6 1 】

前記架橋剤を含有する前記粘着剤組成物を、架橋反応させることにより、粘着剤層を形成することができる。前記架橋剤として、特に限定されるものではなく、従来公知のものを使用することができ、例えば、多価イソシアヌレート、多官能性イソシアネート、多官能性メラミン化合物、多官能性エポキシ化合物、多官能性オキサゾリン化合物、多官能性アジリジン化合物、金属キレート化合物などを用いることができ、特に得られる粘着剤層の透明性や、高いゲル分率を得るという観点から、多価イソシアヌレートや多官能性イソシアネート化合物を用いることが好ましい態様である。

## 【 0 0 6 2 】

前記多価イソシアヌレートとしては、例えば、ヘキサメチレンジイソシアネートのポリイソシアヌレート体などが挙げられる。これらを用いることにより、得られる粘着剤層の透明性や、高いゲル分率を得るという目的を達成することができ、有効である。前記多価イソシアヌレートの市販品を使用することもでき、具体的には、商品名「デュラネート TPA-100」（旭化成ケミカルズ社製）、商品名「コロネート HK」、「コロネート HX」、「コロネート 2096」（日本ポリウレタン工業社製）等が挙げられる。これらは、1種または2種以上を組み合わせ使用できる。

10

## 【 0 0 6 3 】

前記多官能性イソシアネート化合物としては、例えば、分子中に少なくとも2個以上のイソシアネート基を有する化合物であることが好ましく、より好ましくは3個以上（前記分岐型ポリエステルオリゴマー（ii）を配合する場合には、2個以上でよい。）であれば、特に制限されず、具体的には、脂肪族ポリイソシアネート類、脂環族ポリイソシアネート類、芳香族ポリイソシアネート類などを挙げることができる。これらは、1種または2種以上を組み合わせ使用できる。

20

## 【 0 0 6 4 】

前記脂肪族ポリイソシアネート類としては、例えば、1,2-エチレンジイソシアネートや、1,2-テトラメチレンジイソシアネート、1,3-テトラメチレンジイソシアネート、1,4-テトラメチレンジイソシアネートなどのテトラメチレンジイソシアネート、1,2-ヘキサメチレンジイソシアネート、1,3-ヘキサメチレンジイソシアネート、1,4-ヘキサメチレンジイソシアネート、1,5-ヘキサメチレンジイソシアネート、1,6-ヘキサメチレンジイソシアネート、2,5-ヘキサメチレンジイソシアネートなどのヘキサメチレンジイソシアネート、2-メチル-1,5-ペンタンジイソシアネート、3-メチル-1,5-ペンタンジイソシアネート、リジンジイソシアネートなどが挙げられる。

30

## 【 0 0 6 5 】

前記脂環族ポリイソシアネート類としては、例えば、イソホロンジイソシアネートや、1,2-シクロヘキシルジイソシアネート、1,3-シクロヘキシルジイソシアネート、1,4-シクロヘキシルジイソシアネートなどのシクロヘキシルジイソシアネート、1,2-シクロペンチルジイソシアネート、1,3-シクロペンチルジイソシアネートなどのシクロペンチルジイソシアネート、水素添加キシリレンジイソシアネート、水素添加トリレンジイソシアネート、水素添加ジフェニルメタンジイソシアネート、水素添加テトラメチルキシレンジイソシアネート、4,4'-ジシクヘキシルメタンジイソシアネートなどが挙げられる。

40

## 【 0 0 6 6 】

前記芳香族ポリイソシアネート類としては、例えば、2,4-トリレンジイソシアネート、2,6-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、2,4'-ジフェニルメタンジイソシアネート、2,2'-ジフェニルメタンジイソシアネート、4,4'-ジフェニルエーテルジイソシアネート、2-ニトロジフェニル-4,4'-ジイソシアネート、2,2'-ジフェニルプロパン-4,4'-ジイソシアネート、3,3'-ジメチルジフェニルメタン-4,4'-ジイソシアネート、4,4'-ジフェニルプロパンジイソシアネート、m-フェニレンジイソシアネート、p-フェニレンジイソ

50

シアネート、ナフチレン - 1, 4 - ジイソシアネート、ナフチレン - 1, 5 - ジイソシアネート、3, 3' - ジメトキシジフェニル - 4, 4' - ジイソシアネート、キシリレン - 1, 4 - ジイソシアネート、キシリレン - 1, 3 - ジイソシアネートなどが挙げられる。

【0067】

また、前記多官能性イソシアネート化合物として、前記脂肪族ポリイソシアネート類、脂環族ポリイソシアネート類、芳香族ポリイソシアネート類、芳香脂肪族ポリイソシアネート類による二量体や三量体を用いることができ、具体的には、ジフェニルメタンジイソシアネートの二量体や三量体、トリメチロールプロパンとトリレンジイソシアネートとの反応生成物、トリメチロールプロパンとヘキサメチレンジイソシアネートとの反応生成物、ポリメチレンポリフェニルイソシアネート、ポリエーテルポリイソシアネート、ポリエステルポリイソシアネートなどの重合体などが挙げられる。

10

【0068】

前記多官能性イソシアネート化合物として、市販品を使用することもでき、具体的には、トリメチロールプロパンとトリレンジイソシアネートの三量体付加物として、商品名「コロネートL」（日本ポリウレタン工業社製）や、トリメチロールプロパンとヘキサメチレンジイソシアネートの三量体付加物として、商品名「コロネートHL」（日本ポリウレタン工業社製）等が挙げられる。

【0069】

前記多官能性メラミン化合物としては、メチル化メチロールメラミン、ブチル化ヘキサメチロールメラミンなどが挙げられ、前記多官能性エポキシ化合物としては、ジグリシジルアニリン、グリセリンジグリシジルエーテルなどが挙げられる。これらは、1種または2種以上を組み合わせて使用できる。

20

【0070】

前記架橋剤の種類や添加量は、特に限定されないが、加熱剥離用途に使用する粘着シートとしては、形成した粘着剤層のゲル分率が、50～90重量%になるように配合し、好ましくは60～80重量%になるように配合する。ゲル分率が50重量%未満であると、凝集力不足により、耐熱性が低下する傾向にあり、一方、ゲル分率が90重量%を超えると、粘着力が低く、固定し難くなり、好ましくない。また、被着体選択性の低減を図るためには、粘着剤層のゲル分率と共に、粘着剤組成物に配合する粘着付与樹脂の添加量の調整も重要である。

30

【0071】

なお、前記架橋剤の添加量としては、たとえば、ポリエステル組成物（ポリエステルのみを使用し、分岐型ポリエステルオリゴマーを使用しない場合には、ポリエステルについて意味する。）100重量部に対して、0.001～20重量部が好ましく、より好ましくは0.001～10重量部である。添加量が0.001重量部未満であると、粘着剤層とした場合に、凝集力の向上を図ることができない恐れがあり、20重量部を超えると、得られる粘着剤層が十分な粘着力を得ることができず、粘着力が低下する恐れがあるため、好ましくない。

【0072】

また、本発明の両面粘着シートに用いられる粘着剤層のゲル分率を効率よく調整するため、触媒を適宜使用することができる。触媒としては、たとえば、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、ブチルスズオキシド、ジオクチルスズジウレート等が挙げられる。

40

【0073】

前記触媒の添加量としては、特に制限されないが、ポリエステル組成物（ポリエステル、又は、ポリエステルと分岐型ポリエステルオリゴマーを混合したもの）100重量部に対して、0.01～1重量部が好ましく、より好ましくは0.05～0.5重量部である。添加量が0.01重量部未満であると、触媒添加の効果が得られない場合があり、1重量部を超えると、シェルライフが著しく短くなり、塗布の安定性が低下する場合があり、好ましくない。

50

## 【0074】

また、本発明に用いられる粘着剤層を形成するため、前記ポリエステル系粘着剤組成物に、前記架橋剤と共に、粘着付与樹脂を組み合わせることで、所望の特性を有する粘着剤組成物（粘着剤、粘着剤層）を得ることができる。

## 【0075】

前記粘着付与樹脂としては、特に限定されるものではなく、従来公知のものを使用することができ、例えば、テルペン系粘着付与樹脂、フェノール系粘着付与樹脂、ロジン系粘着付与樹脂、脂肪族系石油樹脂、芳香族系石油樹脂、共重合系石油樹脂、脂環族系石油樹脂、キシレン樹脂、エポキシ系粘着付与樹脂、ポリアミド系粘着付与樹脂、ケトン系粘着付与樹脂、エラストマー系粘着付与樹脂などが挙げられ、特にバイオマス度を向上させるため、植物由来の原料により製造されるロジン系やテルペン系粘着付与樹脂を用いることが好ましい。これらは、1種または2種以上を組み合わせ使用できる。

10

## 【0076】

前記テルペン系粘着付与樹脂として、テルペン樹脂、テルペンフェノール樹脂、及び、芳香族変性テルペン樹脂などが挙げられ、具体的には、 $\alpha$ -ピネン重合体、 $\beta$ -ピネン重合体、ジペンテン重合体や、これらをフェノール変性、芳香族変性、水素添加変性、炭化水素変性したテルペン系樹脂を使用することができる。

## 【0077】

前記フェノール系粘着付与樹脂としては、具体的には、フェノール、*m*-クレゾール、3,5-キシレノール、*p*-アルキルフェノール、レゾルシンなどの各種フェノール類と、ホルムアルデヒドとの縮合物を使用することができる。更に、前記フェノール類とホルムアルデヒドとを、アルカリ触媒下で付加反応させて得られるレゾールや、前記フェノール類とホルムアルデヒドとを、酸触媒下で縮合反応させて得られるノボラック、未変性または変性ロジンやこれらの誘導体などのロジン類に、フェノールを酸触媒下で付加させ、熱重合することにより得られるロジン変性フェノール樹脂などを使用することができる。

20

## 【0078】

前記ロジン系粘着付与樹脂としては、ロジン樹脂、重合ロジン樹脂、水添ロジン樹脂、ロジンエステル樹脂、水添ロジンエステル樹脂、ロジンフェノール樹脂などが挙げられ、具体的には、ガムロジン、ウッドロジン、トール油ロジンなどの未変性ロジン（生ロジン）や、これらを水添化、不均化、重合、その他の化学的に修飾された変性ロジン、これらの誘導体を使用することができる。

30

## 【0079】

前記粘着付与樹脂の添加量は、前記ポリエステル組成物（前記ポリエステル、又は、前記ポリエステルと分岐型ポリエステルオリゴマーを混合したもの）100重量部に対して、10～70重量部が好ましく、より好ましくは20～65重量部であり、特に好ましくは20～60重量部である。添加量が10重量部未満であると、所望の粘着力が得られず、更にポットライフ効果も発現されない恐れがあり、一方、添加量が70重量部を超えると、含有する架橋剤に基づく架橋効果が不十分となり、更にポリマー成分（ポリエステル組成物）との相溶性も劣り、粘着力低下など問題が生じ、好ましくない。また、被着体選択性の低減を図るため、前記粘着付与樹脂の添加量を調整しているが、粘着付与樹脂の添加量が多いと、保持力が低下するため、これを抑制するため、粘着剤層のゲル分率を高く調整する必要がある。しかし、ゲル分率を高く調整することにより、粘着力の低下が生じるため、本発明においては、粘着付与樹脂の添加量と、ゲル分率の調整し、これらのバランスを図ることが重要である。

40

## 【0080】

本発明の両面粘着シートに用いられる粘着剤層（粘着剤）の特性を損なわない程度であれば、紫外線吸収剤、光安定剤、剥離調整剤、可塑剤、軟化剤、充填剤、顔料や染料などの着色剤、老化防止剤、界面活性剤などの一般的な添加剤を使用することができる。

## 【0081】

前記粘着剤層は、前記ポリエステル系粘着剤組成物により形成される。前記ポリエステ

50

ル系粘着剤組成物を使用することにより、地球環境にやさしく、粘着特性に優れた粘着剤層を得ることができる。

【0082】

前記粘着剤層の貯蔵弾性率は、動的粘弾性測定装置を用いて、23で周波数1Hzの条件下で測定した際に、 $1 \times 10^4 \sim 1 \times 10^7$  Paであることが好ましく、より好ましくは $1 \times 10^5 \sim 1 \times 10^6$  Paである。貯蔵弾性率が $1 \times 10^4$  Pa未満であると、粘着剤層の凝集力と保持力が低下するという問題が生じ、一方、 $1 \times 10^7$  Paを超えると、粘着剤層が硬くなり、粘着力が低下する問題が生じ好ましくない。

【0083】

前記粘着剤層の厚さとしては、適宜選択することができるが、例えば、5～1000  $\mu$ m程度が好ましく、より好ましくは20～500  $\mu$ mであり、特に好ましくは30～200  $\mu$ m程度である。粘着剤層の厚さが5  $\mu$ m未満であると、十分な粘着力を得にくく、剥離しやすくなる場合があり、厚さが1000  $\mu$ mを超えると、粘着力が経時で上昇し剥がれにくくなる場合があり、好ましくない。なお、粘着剤層としては、単層、積層体のいずれの形態であっても良い。

10

【0084】

本発明の両面粘着シートは、前記粘着剤層のみを両面粘着シート(粘着剤層単層、基材レス)とすることもでき、また、支持体の両面に前記粘着剤層を配置して、両面粘着シートとすることも可能である。なお、本発明の両面粘着シートとしての特性を損なわない範囲であれば、中間層や下塗り層などを有していても、問題ない。

20

【0085】

前記支持体としては、特に限定されず、従来公知のものを使用することができ、プラスチックフィルムや、紙、不織布などの多孔質材料など、各種の支持体(基材)を使用することができる。なお、表面保護用途として使用する場合には、耐久性等の観点から、プラスチックフィルムを用いることが好ましい態様である。前記プラスチックフィルムとしては、たとえば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ-1-ブテン、ポリ-4-メチル-1-ペンテン、エチレン・プロピレン共重合体、エチレン・1-ブテン共重合体、エチレン・酢酸ビニル共重合体、エチレン・エチルアクリレート共重合体、エチレン・ビニルアルコール共重合体等のポリオレフィンフィルム、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、ポリブチレンテレフタレート等のポリエステルフィルム、ポリアクリレートフィルム、ポリスチレンフィルム、また、ナイロン6、ナイロン6,6、部分芳香族ポリアミド等のポリアミドフィルム、ポリ塩化ビニルフィルム、ポリ塩化ビニリデンフィルム、ポリカーボネートフィルム等を挙げることができる。また、植物由来の原料から得られるポリ乳酸やセルロースなどからなる支持体は好適に用いられる。

30

【0086】

前記支持体には、必要に応じて、紫外線吸収剤、光安定剤、酸化防止剤、充填剤、顔料や染料などの通常の粘着テープ用基材(支持体)に用いられる各種添加剤を使用することができる。

【0087】

なお、支持体(基材)として、プラスチック系基材が用いられている場合は、延伸処理等により伸び率などの変形性を制御していてもよい

40

【0088】

前記支持体(基材)の表面は、各種の粘着剤層(熱膨張型微粒子や界面活性剤を含有した粘着剤層なども含む。)との密着性を高めるため、慣用の表面処理、例えば、クロム酸処理、オゾン暴露、火炎暴露、高圧電撃暴露、イオン化放射線処理等の化学的又は物理的方法による酸化処理等が施されていてもよく、下塗り剤によるコーティング処理等が施されていてもよい。また、各種の粘着剤層との間に、剥離性を付与するため、例えば、シリコン系樹脂やフッ素系樹脂等の剥離剤などによるコーティング処理が施されていてもよい。

【0089】

50

前記支持体（基材）の厚さとしては、その材質や形態などに応じて、適宜選択することができるが、例えば、 $1 \sim 1000 \mu\text{m}$ 程度が好ましく、より好ましくは $1 \sim 500 \mu\text{m}$ 程度であり、更に好ましくは $3 \sim 300 \mu\text{m}$ であり、特に好ましいのは、 $5 \sim 250 \mu\text{m}$ である。上記範囲内ないと、作業性や加工性が低下し、好ましくない。

【0090】

前記粘着剤層の形成方法としては、特に制限されないが、たとえば、粘着剤組成物（粘着剤組成物を溶剤に溶解した粘着剤組成物溶液や、熱溶解液）を、前記支持体（基材）に塗布・乾燥して粘着剤層を形成する方法や、剥離ライナー上形成した粘着剤層を移着する方法、粘着剤層形成材を支持体上に押し出し形成塗布する方法、支持体と粘着剤層を二層または多層にて押し出しする方法、支持体上に粘着剤層を単層ラミネートする方法などの公知の粘着シートの製造方法に基づき、行うことができる。また、熱可塑性樹脂からなる支持体とともに、粘着剤層をインフレーション法やTダイ法による二層又は多層による共押し出し成形する方法などを用いることができる。

10

【0091】

前記粘着剤組成物（溶液）を塗布する方法としては、従来公知の方法を採用することができるが、たとえば、ロールコート、グラビアコート、リバースロールコート、ロールブラッシュコート、エアナイフコート、スプレーコート、ダイコーター等による押し出しコートなどが挙げられる。

【0092】

前記剥離ライナーとしては、特に限定されず、従来公知のものを適宜使用することができる。例えば、剥離ライナー用基材の少なくとも片面に、剥離コート層を形成したものをを用いることができる。なお、剥離ライナー用基材は、単層、複数層のいずれの形態も用いることができる。

20

【0093】

前記剥離ライナー用の基材としては、プラスチックフィルム、紙、発泡体、金属箔等の各種薄葉体等を用いることができ、特に好ましくは、プラスチックフィルムである。また、プラスチックフィルムの原料としては、例えば、ポリエチレンテレフタレート等のポリエステルや、ポリプロピレン、エチレン-プロピレン共重合体等のポリオレフィン、ポリ塩化ビニル等の熱可塑性樹脂等が挙げられる。

【0094】

前記剥離ライナー用基材の厚さは、目的に応じて、適宜選択することができる。

30

【0095】

前記剥離コート層としては、特に制限されず、従来公知のものを使用することができるが、例えば、シリコン系、長鎖アルキル系、フッ素系などの適宜な剥離剤からなるコート層を設けることもできる。

【0096】

（粘着力）

本発明の両面粘着シートは、23におけるステンレス板や、アクリル板等に対する剥離角度 $180^\circ$ での粘着力（対SUS粘着力や、対アクリル板粘着力など）が、 $9\text{N}/20\text{mm}$ 以上が好ましく、より好ましくは、 $20\text{N}/20\text{mm}$ 以上である。前記粘着力が $9\text{N}/20\text{mm}$ 未満であると、被着体（ステンレス板や、アクリル板等）に対する粘着力が十分ではなく、使用中に剥離するなどの不具合が生じる恐れがあり、好ましくない。

40

【0097】

（保持力）

また、本発明の両面粘着シートの保持力としては、前記両面粘着シート（粘着剤層単層）に用いられる粘着剤層の一方の粘着面に、支持体（基材）を貼り合せ、もう一方の粘着面に接着面積が $10\text{mm} \times 20\text{mm}$ になるようにベークライト板を貼り合せた状態で、 $500\text{g}$ の荷重をかけて、 $40 \times 1$ 時間放置した際の、前記ベークライト板のズレ距離が $2.5\text{mm}$ 以下であることが好ましく、より好ましくは、 $1.0\text{mm}$ 以下である。前記ズレ距離（保持力）が $2.5\text{mm}$ を超えると、被着体に対して、固定性に欠ける恐れがあり、好

50

ましくない。

【0098】

本発明の両面粘着シートは、被着体選択性が低減され、様々な被着体に対して、優れた粘着特性を示すため、従来周知の両面粘着シート（テープ、フィルム、ロール体など）として、広く使用することができ、また、使用後に廃棄しても、地球環境に与える負荷が小さいため、使用後に再剥離され、焼却処理される両面粘着シートの用途において、特に好ましく使用することができる。

【実施例】

【0099】

以下に、本発明の実施例を挙げて、本発明をさらに詳しく説明するが、本発明はこれら実施例に制限されるものではない。また、実施例中の「部」とは、「重量部」を示す。また、配合内容及び評価結果については、表1及び2に示した。なお、表1中のポリエステル合成に使用するモノマー成分についてはモル%で記載し、表2中の配合量については、重量部で記載している。また、実施例等で使用する粘着シートとは、粘着剤層単層を意味し、その粘着面の両面に、剥離処理がなされたポリエチレンテレフタレートフィルムを貼着した状態（粘着剤層単層に剥離処理したフィルムを貼り合せた両面セパレータ貼着状態）を意味する。

【0100】

（ポリエステルAの調製）

攪拌機、温度計、流出用冷却機を装備した反応缶内に、ダイマー酸86部、セバシン酸10部、1,3-プロピレングリコール30部、トリメチロールプロパン0.4部、DL-ラクチド50部、及び重合触媒であるテトラブチルチタネートを0.014部、オクチル酸錫を0.014部配合し、窒素雰囲気の下で、5時間かけて250℃まで昇温させた後、1時間反応させ、留出する水を系外に除去し、エステル化反応を行った。更に、30分かけて、10mmHgまで減圧し、250℃で30分間、初期重合を行った。更に、1mmHgまで30分間かけて減圧し、250℃で、後期重合を行い、ポリエステルAを得た。配合及び評価結果を表1に示した。

【0101】

<ポリエステルBの調製>

攪拌機、温度計、流出用冷却機を装備した反応缶内に、L-ラクチド22部、DL-ラクチド15部、ε-カプロラクトン54部、エチレングリコール0.2部、及び重合触媒であるオクチル酸錫を0.026部配合し、窒素雰囲気の下で、1時間かけて180℃まで昇温させた後、3時間反応させ、留出する水を系外に除去し、エステル化反応を行った。更に、10分かけて、1mmHgまで減圧し、180℃で30分間かけて減圧し、残留ラクチドの除去を行い、ポリエステルBを得た。配合及び評価結果を表1に示した。

【0102】

<実施例1>

ポリエステルA100部を、メチルエチルケトン（MEK）75部と酢酸エチル75部の混合溶媒に溶解した後、架橋剤として、多価イソシアヌレート（旭化成ケミカルズ社製、TPA-100）2部、粘着付与樹脂（理化ファインテック徳島社製、リカットPCJ）20部を配合し、この混合物を乾燥後の厚みが100μm（粘着剤層単層）になるように、剥離処理したポリエチレンテレフタレートフィルム（A）（東レ社製、ルミラー25S-10、厚さ25μm）上に塗布し、100℃で3分間乾燥させた。その後、粘着剤層の粘着面の保護のため、剥離処理したポリエチレンテレフタレートフィルム（B）（東レ社製、ルミラー25S-10、厚さ25μm）の剥離処理面に粘着面を貼り合わせ、更に50℃で5日間放置（エージング）し、粘着シートを得た。

【0103】

<実施例2>

架橋剤として、多価イソシアヌレート（旭化成ケミカルズ社製、TPA-100）8部配合し、粘着付与樹脂（理化ファインテック徳島社製、リカットPCJ）を60部配合し

10

20

30

40

50

た以外は、実施例 1 と同様の方法で、粘着シートを得た。

【0104】

<実施例 3>

架橋剤として、多価イソシアヌレート（旭化成ケミカルズ社製、TPA-100）4部配合し、粘着付与樹脂（理化ファインテック徳島社製、リカットPCJ）を50部配合した以外は、実施例 1 と同様の方法で、粘着シートを得た。

【0105】

<実施例 4>

ポリエステルA 100部と分岐型ポリエステルオリゴマー（ハイパーブランチポリマー Boltorn H40、水酸基価 490 mg KOH/g、重量平均分子量 5100）8部からなるポリエステル組成物を、メチルエチルケトン（MEK）75部と酢酸エチル 75部の混合溶媒に溶解した後、架橋剤として、多価イソシアヌレート（旭化成ケミカルズ社製、TPA-100）6部を配合した以外は、実施例 1 と同様の方法で、粘着シートを得た。

10

【0106】

<比較例 1>

架橋剤として、多価イソシアヌレート（旭化成ケミカルズ社製、TPA-100）1.5部配合した以外は、実施例 1 と同様の方法で、粘着シートを得た。

【0107】

<比較例 2>

架橋反応触媒として、ジオクチルスズジウラリレート（東京ファインケミカル社製社製、エンプライザーOL-1）を0.1部配合した以外は、実施例 2 と同様の方法で、粘着シートを得た。

20

【0108】

<比較例 3>

粘着付与樹脂を配合しなかった以外は、実施例 1 と同様の方法で、粘着シートを得た。

【0109】

<比較例 4>

粘着付与樹脂（理化ファインテック徳島社製、リカットPCJ）を80部配合した以外は、実施例 2 と同様の方法で、粘着シートを得た。

30

【0110】

<比較例 5>

ポリエステルAの代わりに、ポリエステルBを100部、粘着付与樹脂（理化ファインテック徳島社製、リカットPCJ）を60部、架橋剤として、多価イソシアヌレート（旭化成ケミカルズ社製、TPA-100）を2部、架橋反応触媒として、ジオクチルスズジウラリレート（東京ファインケミカル社製社製、エンプライザーOL-1）を0.1部配合した以外は、実施例 1 と同様の方法で、粘着シートを得た。

【0111】

ポリエステルの配合内容および評価結果を表 1 に示し、前記ポリエステルを使用した粘着シートの配合内容及び評価結果を表 2 に示した。

40

【0112】

（ポリエステルの組成）

ポリエステルの組成をクロロホルムDに溶解し、ヴァリアン社製核磁気共鳴分析計（NMR）400-MRを用いて、<sup>1</sup>H-NMR分析を行うことにより、ポリエステルの組成を解析した。

【0113】

（分子量）

数平均分子量（Mn）及び重量平均分子量（Mw）は、ポリエステル組成物（ポリエステル、又は、ポリエステルと分岐型ポリエステルオリゴマーを混合したもの）を乾燥後の厚みが100 μmになるように、剥離処理したポリエチレンテレフタレート（PET）フ

50

フィルム上に塗布し、120 × 2時間乾燥させて溶媒を除去した。この乾燥物を、PET城から剥離し、これを測定片とした。測定片0.01gを秤量して、テトラヒドロフラン（THF）10gに添加し、24時間放置して溶解した。この溶液をゲル・パーミエーション・クロマトグラフィ（GPC）法を用い、標準ポリスチレンにより作成した検量線から、それぞれの分子量を測定した。

（測定条件）

装置名：東ソー社製、HLC-8220GPC

サンプル注入量：20μl

溶離液：THF

流量(流速)：0.300ml/min

測定(カラム)温度：40

カラム：東ソー社製、G6000H<sub>6</sub>

カラムサイズ：7.5mmID×30.0cmL

検出器：示差屈折計（RI）

10

【0114】

（ポリエステルガラス転移温度）

示差走査熱量計（装置名：DSC-220、セイコーインスツルメント社製）を用い、測定条件として、測定試料5mgをアルミパンに入れ、温度条件：-120～150、昇温速度：20 /分にて測定し、ガラス転移温度（T<sub>g</sub>： ）を測定した。

20

【0115】

（ポリエステル及びポリエステル組成物の水酸基価）

250ml三角フラスコに試料として、ポリエステル又はポリエステル組成物を約0.5g採取し、重量を測定した。ついで、無水酢酸と無水ピリジンを1：10（質量比）に調整・混合した溶液20.00mlを採取し、前記三角フラスコに入れ、冷却器を取り付けて、20分間、攪拌しながら還流させた後、室温まで冷却した。更に、前記三角フラスコ内に冷却器を通じてアセトン20ml、蒸留水20mlを加えた。これにフェノールフタレイン指示薬を入れて、1.00N（規定）の水酸化ナトリウム水溶液により、滴定した。なお、別途測定したブランク（試料を含まない）の測定結果を差し引き、水酸基価（mg KOH/g）を算出した。

30

【0116】

（ポリエステル及びポリエステル組成物の酸価）

試料として、ポリエステル又はポリエステル組成物0.2gを20mlのクロロホルムに溶解し、指示薬としてフェノールフタレインを用いて、0.1N（規定）の水酸化カリウムエタノール溶液で滴定し、酸価（mg KOH/g）を算出した。

【0117】

（バイオマス度）

使用原料全体の重量に対する植物由来の使用原料の重量割合を算出したものを、バイオマス度（%）として、評価した。

バイオマス度（%）= 100 × （植物由来の使用原料の重量） / （使用原料全体の重量）

40

【0118】

（ゲル分率）

実施例及び比較例で得られた粘着シート（粘着剤層の厚さは50μm）を5cm×5cm角に切り出した。切り出したサンプルを、重さがわかっているテフロン（登録商標）シートで包み、重量を秤量し、トルエン中に23 で7日間放置して、サンプル中のゾル分を抽出した。その後、120 で2時間乾燥し、乾燥後の重量を秤量した。ゲル分率を下記の式にて算出した。

ゲル分率（%）= （乾燥後の重量 - テフロンシート重量） / （乾燥前の重量 - テフロンシート重量） × 100

【0119】

50

(対SUS粘着力)

実施例及び比較例の粘着シートから、前記剥離処理を行ったポリエチレンテレフタレート(PET)フィルムAを剥離し、そこに剥離処理を施していないポリエチレンテレフタレート(PET)フィルム(東レ社製、ルミラー25S-10、厚さ25 $\mu$ m)を貼り合せ、これを縦100mm横(幅)20mmにカットし、続いて、前記剥離処理を行ったポリエチレンテレフタレート(PET)フィルムBを剥離し、そこにステンレス板(ニッカル商工社製、BA304、厚さ0.5mm)を、2kgローラを1往復させて、貼着し、試験用サンプルとした。前記試験用サンプルを、引張圧縮試験機(ミネベア社製、TG-1kN)にて、180°ピール接着力(粘着力)(N/20mm)を、引張速度:300mm/min、温度:23 $\pm$ 2、湿度:65 $\pm$ 5%RHにて、前記ステンレス板から、前記剥離処理を施していないPETフィルム及び粘着剤層を剥離する際の粘着力を、1面(前記PETフィルム(A)面側を、ステンレス板とした場合)の粘着力とした。

10

また、前記PETフィルム(B)面側を、ステンレス板として、測定した場合の粘着力2面の粘着力とした。

【0120】

(対アクリル板粘着力)

上記ステンレス板に代えて、アクリル板(三菱レイヨン社製、アクリライト、厚さ2mm)を使用した以外は、上記対SUS粘着力と同様の方法にて、試験用サンプルを作製し、評価した。

【0121】

20

(保持力)

厚さが100 $\mu$ mの両面粘着シート(粘着剤層単独)の片面に、剥離処理を施していないPETフィルム(東レ社製、ルミラー25S-10、厚さ25 $\mu$ m)を、2kg圧でローラを1往復して貼り合せ(圧着して)、次いで、前記粘着剤層の前記PETフィルムと反対面に、接着面積が10mm $\times$ 20mmになるようにベークライト板(厚さ1mm)を、2kg圧でローラを1往復して貼り合せて(圧着して)、試験用サンプルとした。この試験用サンプルを、23 $\pm$ 5 $\pm$ 5%RH雰囲気下で24時間放置した後、更に40 $\pm$ 5%RHで1時間放置した後、500gの荷重をかけて、40 $\pm$ 5%RH $\times$ 1時間放置した際の、ズレ距離(mm)を測定した。

【0122】

30

【表 1】

ポリエステル配合内容(mol%比) 及びポリエステルの評価結果		ポリエステル	
		A	B
乳酸成分	ダイマー酸	30	
	セバシン酸	10	
グリコール成分	1,3-プロピレングリコール	39	
	エチレングリコール		0.2
	トリメチロールプロパン	1	
乳酸	DL-ラクチド	20	51
共重合成分	$\epsilon$ -カプロラクトン		49
Tg	(°C)	-54	-39
水酸基価	mgKOH/g	6.0	0.6
酸価	mgKOH/g	0.6	1.1
重量平均分子量(Mw)		153,000	83,000
数平均分子量(Mn)		29,000	49,000
分散度(Mw/Mn)		5.3	1.7

10

20

30

【 0 1 2 3 】

【表 2】

ポリエステル系粘着剤 組成物の評価結果		実施例				比較例				
		1	2	3	4	1	2	3	4	5
ポリエステル	A	100	100	100	100	100	100	100	100	
	B									100
分岐型ポリエステルオリゴマー	H40				8					
粘着付与樹脂	PCJ	20	60	50	20	20	60	0	80	60
架橋剤	TPA-100	2	8	4	6	1.5	8	2	8	2
触媒	OL-1						0.1			0.1
粘着剤層の ゲル分率	重量%	53	82	68	65	43	94	53	82	68
対 SUS 粘着力(1面)	N/20mm	9.8	9.0	9.5	9.0	凝集 破壊	8.5	5.5	8.3	4.8
対 SUS 粘着力(2面)	N/20mm	9.5	9.2	9.5	9.1	凝集 破壊	8.3	5.3	8.0	5.0
対アクリル板 粘着力(1面)	N/20mm	9.9	9.2	9.3	9.1	凝集 破壊	8.5	5.5	8.3	4.8
対アクリル板 粘着力(2面)	N/20mm	9.7	9.0	9.1	9.2	凝集 破壊	8.5	5.5	8.3	5.4
保持力	mm	2	2	0	1	落下	1	1	落下	落下
バイオマス度	重量%	97	94	96	89	97	94	97	95	67

## 【 0 1 2 4 】

表 2 の評価結果より、実施例 1 ~ 4 の全てにおいて、粘着剤層のゲル分率の値は所望の範囲に含まれ、対 SUS 等の粘着力や保持力も所望の範囲に含まれ、優れた粘着特性を有することが確認できた。また、バイオマス度も 89 ~ 97 重量%と非常に高い値を示し、地球環境に優しく、いわゆるカーボンニュートラルである植物由来の材料への代替の実現を可能にしていることが確認できた。

## 【 0 1 2 5 】

一方、比較例 1 では架橋剤の添加量が少ないため、粘着剤層のゲル分率が所望の値を得ることができず、対 SUS 等の粘着力測定時に、凝集破壊が生じ、更に実施例と比較しても保持力が劣り、試験用サンプル自体が落下してしまい、安定した粘着力が得られないことが確認された。比較例 2 においては、架橋反応触媒の添加などにより、架橋反応が進行しすぎて、粘着剤層のゲル分率が所望の範囲を超え、対 SUS 等の粘着力が、小さくなり安定した粘着力が得られないことが確認された。また、比較例 3 においては粘着付与樹脂を含有せず、比較例 4 においては、粘着付与樹脂の添加量が所定量より多いため、共に対 SUS 等の粘着力が小さくなり、比較例 4 においては、保持力も劣り、試験用サンプル自

体が落下してしまい、安定した粘着力が得られないことが確認された。比較例 5 においては、二塩基酸を使用していないポリエステルを用いたため、対 SUS 等の粘着力が非常に小さい値を示し、保持力も劣り、試験用サンプル自体が落下してしまい、安定した粘着力が得られないことが確認された。更にバイオマス度も 67 重量%と小さく、カーボンニュートラルである植物由来の材料への代替が実現できないものとなった。