(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号
特許第3793342号
(P3793342)
(45)発行日　平成18年7月5日(2006.7.5)　(24)登録日　平成18年4月14日(2006.4.14)

| (51)Int.Cl. | | F I | | |
|---|---|---|---|---|
| C08F 2/44 | (2006.01) | C08F | 2/44 | C |
| C09J 4/02 | (2006.01) | C09J | 4/02 | |
| C09J 7/02 | (2006.01) | C09J | 7/02 | Z |
| C09J 11/08 | (2006.01) | C09J | 11/08 | |

請求項の数 7　(全 20 頁)

(21)出願番号　特願平9-367938
(22)出願日　平成9年12月26日(1997.12.26)
(65)公開番号　特開平11-189610
(43)公開日　平成11年7月13日(1999.7.13)
審査請求日　平成15年6月16日(2003.6.16)

(73)特許権者　000108410
ソニーケミカル株式会社
東京都品川区大崎一丁目１１番２号　ゲートシティ大崎イーストタワー８階
(74)代理人　100102875
弁理士　石島　茂男
(74)代理人　100106666
弁理士　阿部　英樹
(72)発明者　寒川　博司
栃木県鹿沼市さつき町１２－３　ソニーケミカル株式会社　第２工場内
(72)発明者　柴田　一樹
栃木県鹿沼市さつき町１２－３　ソニーケミカル株式会社　第２工場内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】アクリル系エマルジョン、及び粘着テープ

(57)【特許請求の範囲】

【請求項１】

アクリルモノマーに対し、粘着付与剤が異なる割合で溶解されたアクリルモノマー分散液が少なくとも２種類用意され、一方のアクリルモノマー分散液の重合反応が行われた後、他方のアクリルモノマー分散液が加えられ、重合反応が更に行われて得られるアクリル系エマルジョンであって、

前記一方のアクリルモノマー分散液に含まれる粘着付与剤の割合は、前記他方のアクリルモノマー分散液に含まれる粘着付与剤の割合よりも低くされていることを特徴とするアクリル系エマルジョン。

【請求項２】

前記一方のアクリルモノマー分散液の粘着付与剤はキシレン系樹脂を主成分とし、該主成分の重量が、前記一方のアクリルモノマー分散液中のアクリルモノマーの重量に対し、５％以下の割合で含まれていることを特徴とする請求項１記載のアクリル系エマルジョン。

【請求項３】

前記一方のアクリルモノマー分散液の粘着付与剤は、ロジンエステル樹脂を主成分とし、該主成分の重量が、前記一方のアクリルモノマー分散液全体の重量に対して３％以下の割合で含まれていることを特徴とする請求項１記載のアクリル系エマルジョン。

【請求項４】

前記アクリルモノマー分散液中のアクリルモノマーは、多官能性のモノマーを含有しな

いことを特徴とする請求項１乃至請求項３のいずれか１項記載のアクリル系エマルジョン。

【請求項５】

前記各アクリルモノマー分散液は、水性の乳化分散液であることを特徴とする請求項１乃至請求項４のいずれか１項記載のアクリル系エマルジョン。

【請求項６】

請求項１乃至請求項５記載のアクリル系エマルジョンに添加物が添加されて成ることを特徴とする粘着剤組成物。

【請求項７】

請求項１乃至請求項５のいずれか１記載のアクリル系エマルジョンか、又は請求項６記載の粘着剤組成物のいずれか一方又は両方が基体上に塗布あるいは転写されたことを特徴とする粘着テープ。

【発明の詳細な説明】

【０００１】

【発明の属する技術分野】

本発明は、接着性の優れたアクリル系水性エマルジョンの技術分野にかかり、特に、表面が平滑な面でない材料、すなわちウレタンフォーム、ポリオレフィンフォーム、ラバーフォーム等の高分子発泡体や紙、布、不織布などの繊維状の材料、あるいはエンボス加工、研磨処理や化学処理などにより表面が粗面処理された材料など同士の、あるいはそれと他の材料とを接着させる技術分野に関する。

【０００２】

【従来の技術】

溶液重合によって得られる溶剤型のアクリル系粘着剤においてはその組成、分子量、分子量分布等を適切に変えることにより、その粘着特性を用途に合わせてうまくバランスさせて用いられている。しかし近年、溶剤の使用による環境問題がクローズアップされ、溶剤系の粘着剤を水性化しようとした場合、その組成をそのまま、乳化重合によって調製したアクリル系エマルジョンでは、耐水性が良くなかったり、接着性が低下したりする場合が多い。その理由としては、使用された界面活性剤が表面に局在化したり、エマルジョン粒子がその乾燥時に完全に融着、均一化しにくいことなどが知られてきている。

【０００３】

この問題に対して、アクリル系のエマルジョンに粘着付与剤を配合することが１つの有効な解決の手段であることもまた知られている。しかし、水系のアクリル系エマルジョンに油性の樹脂である粘着付与剤を配合するには工夫が必要である。この工夫には、

【０００４】

（１）：粘着付与剤を溶剤に溶かして、それをアクリルエマルジョン粒子に吸収させる方法

（２）：粘着付与剤を機械的に乳化分散させて後にそれをアクリルエマルジョンと混合する方法

等が以前から知られている。

【０００５】

しかし、前者の（１）の場合では、アクリルエマルジョンの安定性が悪くなり、しかも、溶剤が含まれてくるという問題がある。他方、後者の（２）の場合では、粘着付与剤を乳化させるために用いた界面活性剤が余分に含まれてくる点や、乾燥時に粘着付与剤とアクリル樹脂が均一化しにくいため、粘着付与剤の添加効果が十分に発揮できない、という点に問題がある。

【０００６】

これを解決するために、特開昭５４－２３６４１にはアクリルモノマーに粘着付与剤を溶解させておき、それを乳化重合させたアクリル系エマルジョンが提案されている。また、特公平２－３０３５１には、そのようなアクリル系エマルジョンをより安定に製造する方法が提案されている。更に、特開平２－８０４８２には、シードポリマーの存在下に粘

着付与剤を溶解させたアクリルモノマーを乳化重合させれば粘着付与剤が効率よく粒子内に取り込めることが述べられている。

【０００７】

これらの開示では粘着付与剤の粒子がアクリル系エマルジョンなみに細かくなるため、アクリル樹脂と均一化しやすいとしているが、一方で、一般に粘着付与剤は連鎖移動剤として強く働くため、乳化重合時に粘着付与剤を共存させるとアクリル重合体の分子量が低下し、凝集力が極端に低下してしまうという重大な問題がある。このため、上記の開示において共通していえることは、架橋性モノマーを用いて積極的に架橋密度を高めたり、あるいは比較的凝集力の高いモノマーを多く配合することにより凝集力の低下を防いでいることである。

【０００８】

しかし、このような操作は粘着剤の特性バランスをとるうえで大きな制約となる。すなわち、架橋密度が高められたり、あるいは凝集力成分が増えたりするとぬれ性が悪くなり、その結果接着性も低下する。特にポリオレフィン系素材や粗面、特に高分子発泡体に対する接着性が得られにくくなる欠点を有する。

【０００９】

特開平４－１７８４０２にはこの問題が指摘されており、事前に、溶剤に対する膨潤度の高いシードポリマーを調製し、引き続いて粘着付与剤を溶解させたアクリルモノマーを乳化重合すれば、重合中に粘着付与剤がそのシード粒子内に吸収されやすく、その結果、架橋密度を高くすることなく良好な保持力が得られることが述べられている。

しかし、この開示においてはアクリルモノマーの６５％以上がシードポリマーとして事前重合されており、またそこでは多官能性モノマーと連鎖移動剤が併用されて架橋されており、系全体としては結局、架橋密度の高いものとなっている。そのため、この方法においても十分架橋密度が低く、それ故ぬれ性がよく、ポリオレフィン系素材や粗面、特に高分子発泡体に対する接着性を十分に発揮できる粘着剤を与えているとはいえない。

【００１０】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は上記従来技術の不都合を解決するために創作されたものであり、その目的は、アクリル系エマルジョン、及びそのアクリル系エマルジョンを用いた粘着組成物、それらを用いた粘着テープの接着性と保持力を向上させることにある。

【００１１】

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するために、請求項１記載の発明は、アクリルモノマーに対し、粘着付与剤が異なる割合で溶解されたアクリルモノマー分散液が少なくとも２種類用意され、一方のアクリルモノマー分散液の重合反応が行われた後、他方のアクリルモノマー分散液が加えられ、重合反応が更に行われて得られるアクリル系エマルジョンであって、前記一方のアクリルモノマー分散液に含まれる粘着付与剤の割合は、前記他方のアクリルモノマー分散液に含まれる粘着付与剤の割合よりも低くされていることを特徴とするアクリル系エマルジョンである。

請求項２記載の発明は、請求項１記載のアクリル系エマルジョンであって、前記一方のアクリルモノマー分散液の粘着付与剤はキシレン系樹脂を主成分とし、該主成分の重量が、前記一方のアクリルモノマー分散液中のアクリルモノマーの重量に対し、５％以下の割合で含まれていることを特徴とするアクリル系エマルジョンである。

請求項３記載の発明は、請求項１記載のアクリル系エマルジョンであって、前記一方のアクリルモノマー分散液の粘着付与剤は、ロジンエステル樹脂を主成分とし、該主成分の重量が、前記一方のアクリルモノマー分散液全体の重量に対して３％以下の割合で含まれていることを特徴とするアクリル系エマルジョンである。

請求項４記載の発明は、請求項１乃至請求項３のいずれか１項記載のアクリル系エマルジョンであって、前記アクリルモノマー分散液中のアクリルモノマーは、多官能性のモノマーを含有しないことを特徴とするアクリル系エマルジョンである。

請求項５記載の発明は、請求項１乃至請求項４のいずれか１項記載のアクリル系エマルジョンであって、前記各アクリルモノマー分散液は、水性の乳化分散液であることを特徴とするアクリル系エマルジョンである。

請求項６記載の発明は、請求項１乃至請求項５記載のアクリル系エマルジョンに添加物が添加されて成ることを特徴とする粘着剤組成物である。

請求項７記載の発明は、請求項１乃至請求項５のいずれか１記載のアクリル系エマルジョンか、又は請求項６記載の粘着剤組成物のいずれか一方又は両方が基体上に塗布あるいは転写されたことを特徴とする粘着テープである。

【００１２】

本発明は上述のように構成されており、アクリルモノマー重量に対し、粘着付与剤が異なる割合で溶解されたアクリルモノマー分散液が少なくとも２種類用意され、一方のアクリルモノマー分散液の重合反応が行われた後、他方のアクリルモノマー分散液が加えられ、重合反応が更に行われてアクリル系エマルジョンが得られている。

【００１３】

図１(ａ)の符号１０は、容器を示しており、その容器１０内には、アクリルモノマーに対する粘着付与剤の割合が小さい水性のアクリルモノマー分散液１４が収容されている。

【００１４】

そのアクリルモノマー分散液１４は、重合反応が行われ、高分子量のアクリル樹脂１５の粒子が得られており、粘着付与剤の割合が高いアクリルモノマー分散液が加えられると、同図(ｂ)に示すように、重合が行われたアクリルモノマー分散液１４中では、液滴１６となって分散する。その状態では、高分子量のアクリル樹脂１５の粒子は直径約０．１～１μｍ程度、液滴１６は直径十～数百μｍ程度の大きさであり、液滴１６から重合が行われたアクリルモノマー分散液１４中に、アクリルモノマーが溶け出すほか、粘着付与剤１７も溶け出す。

【００１５】

その状態で更に重合反応を進行させると、保持力が強く、且つ高分子発泡体に対する粘着性が高いアクリル系エマルジョンが得られるが、その理由は、一応次のように推測されている。

【００１６】

第１の考え方は、図１(ｃ)に示すように、分子量が大きいアクリル樹脂１５の粒子中に、液滴１６から溶けだしたアクリルモノマーが浸透し、そのアクリル樹脂１５の内部に分子量が小さいアクリル樹脂１８が形成され、その際、高分子量のアクリル樹脂１５の周囲に、液滴１６から溶けだし、高濃度に存在する粘着付与剤１７が付着し、アクリル樹脂粒子１２０が形成されるというものである(低分子量のアクリル樹脂１８は、高分子量のアクリル樹脂１５中にある程度均一に分散しているものと思われる)。

【００１７】

このように形成されたアクリル樹脂粒子１２０では、表面に付着した微少な粘着付与剤１７が乾燥時にアクリル樹脂(符号１５、１８)と均一化し易いため、その接着性を高め、他方、アクリル樹脂粒子１２０のうち、高分子量のアクリル樹脂１５が低分子量のアクリル樹脂１８と均一化することにより、保持力を強めると推測される。従って、従来のように架橋剤を用いて架橋密度を上げることなく、強い粘着力と保持力とが得られると言うものである。

【００１８】

第２の考え方は、高分子量のアクリル樹脂１５の粒子の内部に、低分子量のアクリル樹脂１８が形成される際、図１(ｄ)に示すように、高分子量のアクリル樹脂１５中に粘着付与剤１７が分散されたアクリル樹脂粒子１２１が形成されるというものである。

【００１９】

この考え方では、高分子量のアクリル樹脂１５が保持力を強める点で、第１の考え方と同様であるが、分散した粘着付与剤１７が接着性を高める点では相違している。

【００２０】

他の考え方もあるが、いずれにしろ、粘着付与剤が低い割合のアクリルモノマーが重合される際に、アクリルポリマーの分子量が十分に大きくなって保持力を上げ、他方、粘着付与剤が高い割合のアクリルモノマー分散液が重合する際に、分子量の小さなアクリルポリマーが生成され、平均分子量を小さくし、高濃度の粘着付与剤の存在と共に、濡れ性を向上させ、接着性を高めていると考えられる。

【００２１】

また、各アクリルモノマー分散液には、含有量に相違はあるが、粘着付与剤が含有されているため、粘着付与剤がアクリルポリマー同士の相溶性を高め、その結果、乾燥時に均一な皮膜が得られやすくなっていると考えられる。このことは、粘着付与剤を含有させないアクリルモノマー分散液を重合させて得たアクリル系エマルジョンの場合、ポリオレフィン系素材や粗面、特に高分子発泡体に対する接着性が十分に得られないことから推察できる。

【００２２】

ところで、キシレン系樹脂は、ウレタンフォームに適した粘着付与剤であることが知られている。キシレン系樹脂を主成分とする粘着付与剤の場合、従来技術のように、１種類のアクリルモノマー分散液からアクリル系エマルジョンを得る場合、キシレン系樹脂がアクリルモノマー分散液中で、アクリルモノマーに対し、５％以下の割合で含まれていれば、保持力が強く、５％を超えると保持力が低下することが実験により確認されている。

【００２３】

本発明の場合でも、キシレン系樹脂を粘着付与剤の主成分とする場合には、粘着付与剤が異なる割合で含まれた複数のアクリルモノマー分散液のうち、比較的低い割合のアクリルモノマー分散液について、後述する実験結果によると、キシレン系樹脂の重量は、そのアクリルモノマー分散液中のアクリルモノマーの重量に対し、５％以下の割合にした場合に良好な保持力が得られている。

【００２４】

他方、粘着付与剤がロジンエステル樹脂(不均化ロジンエステル)の場合は、ロジンエステルの連鎖移動能(重合阻害能力)が高いので、従来技術のように１種類のアクリルモノマー分散液を重合させてアクリル系エマルジョンを得る場合でも、３％の割合を超えて含有させると保持力が低下することが確認されている。

【００２５】

従って、本発明において、アクリルモノマー分散液の一つがロジンエステル樹脂を粘着付与剤の主成分としている場合には、粘着付与剤が異なる割合で含まれるアクリルモノマー分散液のうち、比較的低い割合のアクリルモノマー分散液の粘着付与剤を、そのアクリルモノマー分散液中のアクリルモノマーの重量に対し、３％以下の割合にすることが望ましい。

【００２６】

なお、本発明のアクリル系エマルジョンは水性のものに適しているが、一部有機溶剤を含んだアクリル系エマルジョンにも適用することができる。

【００２７】

【発明の実施の形態】

＜モノマー組成＞

本発明に用いることができるアクリルモノマーは、下記(ａ)～(ｄ)に記載した単量体を含む。

【００２８】

(ａ)：分枝あるいは直鎖の炭素数が２から１０までのアルキル基を有する１種または数種の(メタ)アクリル酸エステル単量体

その単量体は、粘着剤に通常用いられるアクリル酸エステル類あるいはメタクリル酸エステル類であって、それらの代表例としては、エチルアクリレート、プロピルアクリレート、プチルアクリレート、アミルアクリレート、ヘキシルアクリレート、２－エチルヘキシルアクリレート、オクチルアクリレート、ノニルアクリレート、デジルアクリレート等

及びそれらのメタクリレート類などが挙げられる。
　これらのモノマーの選定にあたっては主にそのポリマーのＴｇが考慮される。すなわち、最終的なポリマーのＴｇが－２０℃以下になるように選定されることが好ましい。また、その割合は、９８～６０重量％が望ましい。
【００２９】
　(ｂ)：上記(ａ)のモノマーに共重合可能なエチレン性不飽和単量体
　この単量体は、凝集力付与成分として用いるモノマー群であり、例示すると、メチルメタクリレート、イソボルニルメタクリレート、シクロヘキシルアクリレート、ベンジルメタクリレートなどに代表されるような０℃以上のＴｇのポリマーを与えるようなメタクリレート類及びアクリレート類、酢酸ビニル等に代表されるビニルエステル類、ビニルエーテル類、アクリロニトリル等のビニルシアニド類、塩化ビニルなどのハロゲン化ビニル類、スチレン、メチルスチレン、クロロスチレン等に代表されるスチレン誘導体等が挙げられる。その割合は０～３８重量％が望ましい。
【００３０】
　(ｃ)：カルボン酸基を有するエチレン性単量体
　その単量体を例示すると、メタクリル酸、アクリル酸、イタコン酸、フマル酸、マレイン酸、及びカルボキシル基を有する(メタ)アクリレート類等がある。それらのうち、特にメタクリル酸とアクリル酸が好ましい。
　また、カルボン酸基を有するエチレン性単量体の割合は２～１０重量％が望ましく、より好ましくは３．５～１０重量％である。
【００３１】
　(ｄ)：架橋性単量体
　その単量体としては、２～６官能の多官能性モノマーやＧＭＡ(グリシジルメタクリレート)等が挙げられる。
　そのような架橋性モノマーを通常用いられる比率において配合しすると、架橋密度が高くなるため、ぬれ性が悪くなり、ポリオレフィン系素材や粗面、特に高分子発泡体に対する接着性が低下してしまう。
　但し、最終的な接着剤の保持力をやや改善したい場合には、それらに対する接着性が低下しない程度の量なら加えることができる。そのような配合比率は１．０重量％未満であり、より好ましくは０．３重量％以下である。
【００３２】
　＜粘着付与剤の種類＞
　粘着付与剤はタッキファイヤーとも呼ばれており、粘着性を高めるために粘着剤中に配合されるものである。
【００３３】
　通常用いられる粘着付与剤は、粘着ハンドブック(第２版：日本粘着テープ工業会)の第１００頁乃至第１０１頁に記載されたものの中から選ばれる１種または２種以上のものであって、本発明には、アクリル系エマルジョンの重合体と相溶性の良好なものが適している。例えば、ロジンエステル系樹脂、、テルペンフェノール樹脂、キシレン樹脂、クロマン・インデン樹脂、Ｃ９系石油樹脂等が挙げられる。
【００３４】
　また、それらの軟化点には特に制限はないが、１５０℃以下のものから室温で液状のものが好ましい。軟化点の異なったものや種類の異なったものを数種類を混合して用いても良いし、また各モノマー部位に対して別々に用いても良い。
【００３５】
＜粘着付与剤の添加方法＞
　本発明において粘着付与剤を反応系中に添加する方法としてはアクリルモノマーの乳化重合反応中に、粘着付与剤がモノマー油適中やミセル中に均一に分散し得るような方法において添加されることが好ましい。
【００３６】

その具体的な方法としては、粘着付与剤を予めアクリルモノマー中に溶解せしめておき、それを公知の乳化重合のフィード方法で反応系中に添加することがもっとも簡便でまた効果的でもある。

【００３７】

本発明においては、異なる割合で粘着付与剤が溶解された少なくとも２種類以上のアクリルモノマー分散液のうち、いずれかの割合のアクリルモノマー分散液を重合させた後、順次、他のアクリルモノマー分散液を反応系に添加し、乳化重合を進行させることにより行うことができる。

その場合、各アクリルモノマー分散液において、粘着付与剤の種類を変えてもよいし、また異なる種類の粘着付与剤を混合して用いてもよい。

【００３８】

但し、粘着付与剤の種類によって連鎖移動能の強さが異なっており、連鎖移動能の強いものほど、重合反応を阻害する。従って、最適な含有割合は、粘着付与剤の種類によって異なっている。

【００３９】

粘着付与剤が多すぎ、低分子量のアクリル樹脂しか得られない場合には、保持力が不十分になり、逆に、粘着付与剤が少なすぎると、乾燥時に、高分子量のアクリル樹脂と、低分子量のアクリル樹脂とが混合しにくくなるため、均一な被膜が得られなくなる。その結果、ポリオレフィン系素材や粗面、特に高分子発泡体に対する十分な接着性が得られなくなってしまう。

【００４０】

最適な含有量は、粘着付与剤の割合が異なる２種類以上のアクリルモノマー分散液において、粘着付与剤の主成分がキシレン樹脂系の場合は、少なくとも１種類のアクリルモノマー分散液において、そのアクリルモノマー分散液中のアクリルモノマーの重量に対し、キシレン樹脂が５％以下の割合、望ましくは５％以下且つ０．５％以上の割合に調整する必要がある。

【００４１】

他方、粘着付与剤の主成分が不均化ロジンエステル系の場合は、少なくとも１種類のアクリルモノマー分散液において、そのアクリルモノマー分散液中のアクリルモノマーの重量に対し、粘着付与剤が３％以下の割合、望ましくは３％以下且つ０．３％以上の割合に調整する必要がある。

【００４２】

また、高分子量のアクリル樹脂が十分に保持力を発現するためには、粘着付与剤の割合を少なくしたアクリルモノマー分散液中のアクリルモノマーが、全アクリルモノマーに対して５～９５％の範囲内で含まれていればよい。

【００４３】

そして、粘着付与剤を高い割合で含有させる場合、粘着付与剤の重量は、そのアクリルモノマー分散液のアクリルモノマーの重量に対し、最大１００％の割合まで含有させることができる。

【００４４】

＜粘着付与剤の総添加量＞

先に、各アクリルモノマー分散液の粘着付与剤の割合に関して説明したが、全アクリルモノマーに対する粘着付与剤の割合も重要である。すなわち、本発明においては、粘着付与剤の総重量は、全アクリルモノマーの重量に対し、５～５０％の範囲内であることが好ましい。

【００４５】

粘着付与剤の添加割合が５％未満であると、ポリオレフィン系素材や粗面、特に高分子発泡体に対する良好な接着性が得られず、粘着付与剤の添加による改善効果が認められない。

他方、粘着付与剤の添加割合が５０％以上であると、タックや凝集力が低下し、粘着剤

としての特性バランスが悪くなる。

【００４６】

＜乳化重合方法＞

本発明のアクリル系エマルジョンは粘着付与剤を添加すること以外については、公知の乳化重合の方法で調整することができる。

【００４７】

段階的にアクリルモノマー分散液を添加する方法では、最初に重合反応を進行させるアクリルモノマー分散液に、粘着付与剤の含有割合が最も小さいものを用いると安定なアクリル系エマルジョンを得られ易い。

但し、必ずしもその必要はなく、重合が安定に進行する限り、適当な割合で粘着付与剤を含有するアクリルモノマー分散液を最初に重合させることができる。

【００４８】

また、最初に重合させるアクリルモノマー分散液は、一括して全部重合させてもよいし、あるいは、その一部を先行重合させて粒子核を作った後、引き続いて残部を滴下又は段階的に加え、重合反応を進行させてもよい。

【００４９】

また、重合反応が行われたアクリルモノマー分散液に、粘着付与剤の割合が異なるアクリルモノマー分散液を加える場合、加えるアクリルモノマー分散液は、そのまま滴下してもよいし(モノマー滴下法)、あるいは界面活性剤を用い、予め乳化させた後、加えるようにしてもよい(乳化モノマー滴下法)。

【００５０】

粘着付与剤の割合が異なるアクリルモノマー分散液を加えるタイミングとしては最初に重合させるアクリルモノマー分散液の重合反応がほぼ終了した後にすることが好ましい。

【００５１】

また、パワーフィード法を用いれば、加えるアクリルモノマー分散液の粘着付与剤の濃度を連続的に変化させながら重合反応を進行させることが可能となる。

【００５２】

以上説明したように、重合反応が行われたアクリルモノマー分散液に対し、粘着付与剤の割合が異なるアクリルモノマー分散液を加える方法は、段階的であると、連続的であるとを問わない。また、段階的に加える方法と連続的に加える方法を組合わせたり、その他の方法であっても本発明に含まれる。

【００５３】

＜界面活性剤と反応開始剤＞

界面活性剤としてはアクリル系モノマーの重合に好適とされ、一般に用いられているものの中から適宜選ぶことができる。その添加量は、アクリルモノマーの総重量に対し、通常では０．５％以上８％以下の割合がよいが、更に狭い範囲、具体的には１％以上４％以下の割合であることが好ましい。

【００５４】

界面活性剤の種類としては、反応系、アニオン系、ノニオン系、アニオン－ノニオン系などのものを１種あるいは数種混合して用いることができる。それらの界面活性剤は水側に溶解させても、アクリルモノマー側に溶解させてもよい。また、水側とアクリルモノマー側に適量ずつ振り分けて溶解させてもよい。更に、モノマーを事前乳化する場合にはこれらの乳化剤の全量あるいはその一部をそのために用い、残量を水側に溶解させておくことができる。

【００５５】

反応開始剤としては、ＫＰＳ(過硫酸カリウム)やＡＰＳ(過硫酸アンモニウム)等に代表される水系の過硫酸塩を用いることができる。また、それらをレドックス系で用いてもよい。

【００５６】

反応開始剤の量は、通常０．０５～１．０重量％の範囲内から選べばよい。これらの反

応開始剤は水側に溶解させてもよいし、モノマーを事前に乳化させる場合はそれに溶解させてもよい。また、水側と乳化モノマー側に適量ずつ振り分けて溶解させてもよい。

【００５７】

＜固形分＞

本発明のアクリル系エマルジョンの固形分含有量は、通常３０重量％以上７０重量％以下の範囲内が好適である。さらに、好適に用いられる固形分含有量は４５重量％～７０重量％である。その範囲内において塗工に適切な粘度特性が得られ易く、また乾燥時間にとって好都合である。

【００５８】

＜配合＞

本発明のアクリル系エマルジョンは、基材上にそのままコーティングして粘着テープを製造することができる。また、種々の添加物を添加し、粘着剤組成物を作製することができる。更に、粘着剤組成物を基材上にコーディングし、あるいは転写し、粘着テープを製造することができる。

【００５９】

本発明のアクリル系エマルジョンに対する添加物には、増粘剤、消泡剤、レベリング剤等があり、それらを適量加え、塗工特性を改善することができる。また、別の添加物には、水分散の粘着付与剤、成膜助剤、可塑剤、軟化剤、架橋剤、他のアクリルエマルジョン等があり、本発明のエマルジョンの特性を損なわない範囲において適量加え、接着特性のバランスを調製することができる。

【００６０】

水系の架橋剤を添加物として多く加えることは、接着性の低下を招くので好ましくないが、接着性の低下が僅かな程度にとどまる量であれば、架橋剤を加えても良い。そのような水系の架橋剤の例としては日本ポリウレタン工業(株)のアクアネート、第一工業製薬(株)のエラストロンＢＮ、日清紡(株)のカルボライト等を挙げることができる。また、それらを添加する重量はアクリル樹脂の重量に対して１．０％未満、好ましくは０．３％以下である。

【００６１】

＜塗工＞

本発明のアクリル系エマルジョン及びその組成物は、通常のロールコーター、ナイフコーター、コンマコーター、ファウンテンコーターなどを用いて、フィルム、紙、布、不織布からなる基材にコーティングし、乾燥することにより粘着テープを製造することができる。また、同様に、離型紙上に塗布、乾燥後それを基材上に転写し、両面粘着テープを製造することができる。あるいは、本発明のアクリル系エマルジョン又は、その粘着剤組成物中に心材をディッピングした後、乾燥し、両面粘着テープを製造することもできる。

【００６２】

また、本発明のアクリル系エマルジョン及びその配合物は、建築用材料、内装材、断熱材、壁材などの被着体の一方または両方に塗布し、乾燥した後、該被着体を圧着接着させるコンタクト接着剤として用いることができる。そのようなコンタクト接着剤も、添加物が添加されていない場合は本発明のアクリル系エマルジョンに含まれ、添加物が添加されている場合は、本発明の粘着剤組成物に含まれる。

【００６３】

＜ウレタン接着性＞

ウレタン被着性は、接着困難な材質との接着性を示すものであり、図２(ｂ)に示すように、それぞれ幅２０ｍｍにカットされたポリエステルフィルム２１、粘着テープ２２、被着体２３を用意し、ポリエステルフィルム２１と被着体２３とを粘着テープ２２によって、幅方向両端を揃えて仮接着し試験片２０を形成する。

【００６４】

その試験片２０は、ポリエステルフィルム２１側を試験台２９上に向けて載置し、幅方向両側にスペーサ$24_1$、$24_2$を配置した後、試験片２０の被着体２３上にローラ２６を

乗せる。図２(ａ)はその状態の斜視図であり、図２(ｂ)は、図２(ａ)のＡ－Ａ線截断面図に相当する。

【００６５】

被着体２３としては５ｍｍ厚の市販のポリエステル系ウレタンフォーム(密度０．０３１の連続気泡)とポリエーテル系ウレタンフォーム(密度０．０２２の連続気泡)の２種を用いた。ポリエステルフィルム２１と粘着テープ２２の厚みは合計して０．１５～０．２ｍｍである。また、スペーサ$24_1$、$24_2$は１．２ｍｍ厚である。

【００６６】

ローラ２６を押圧し、ローラ２６の端部がスペーサ$23_1$、$24_2$に当接した状態で、図２(ｃ)に示すように、１往復転がり移動させると、被着体２３は８０％圧縮された状態で、粘着テープ２２に押圧される。

【００６７】

その後、ポリエステルフィルム２１側を上にし、試験台２９上で室温にて２４時間放置した後、図３に示すように、テンシロン型引張試験機で、１００ｍｍ／分の速度で引っ張り、そのときに要した力を測定した(Ｔ型９０°ピール時の応力を測定)。

【００６８】

＜保持力＞

図４(ａ)、(ｂ)に示すように、ステンレス板３３上に、幅２５ｍｍの両面粘着テープ３０とポリエステルフィルム３１をこの順で配置し、ステンレス板３３と両面粘着テープ３０との応力のかかる部分の接触面積が２５×２５$mm^2$になるように、端部に切れ込み３８を入れる。図４(ｂ)は、図４(ａ)のＢ－Ｂ線截断面図に相当する。

【００６９】

次いで、ポリエステルフィルム３１上に圧着器(東洋精機製作所(株)：電動式圧着装置)のローラを配置し、荷重１９．６１±０．４９Ｎ(２０００±５０ｇ)、圧着スピード３００ｍｍ／分の条件で、ローラを１往復させた後、４０℃の雰囲気中で、ステンレス板３３を垂直に固定し、ポリエステルフィルム３１を１ｋｇの荷重を負荷した。

【００７０】

図４(ｃ)は、ポリエステルフィルム３１が荷重により、ずれた状態を示しており、６０分経過後、ポリエステルフィルム３１が落下していないものは、そのずれ量Ｓ(このずれ量Ｓは、荷重がかからないポリエステルフィルム残部３１'と、荷重をかけられたポリエステルフィルム３１との間の距離である。)にて保持力を示し、６０分経過時までに落下したものは、その落下までの時間で保持力を示すものとする。

【００７１】

本発明のアクリル系エマルジョン及びその配合物である粘着剤組成物から調製される粘着剤の良好な保持力とは前記の保持力の定義において、落下までの時間が６０分以上であり、ずれ量Ｓが０．１ｍｍから２５ｍｍまでの範囲にあるものをいう。より好ましくはそのずれ量Ｓが０．１ｍｍから１０ｍｍまでの範囲である。

【００７２】

＜屈曲性＞

先ず、図５(ａ)に示すように、０．５ｍｍのアルミ板４１と、それぞれ幅２０ｍｍにカットした両面粘着テープ４２と被着体４３(５ｍｍ厚のポリエステル系ウレタンフォーム、又はポリエーテル系ウレタンフォーム)とを用意し、両面粘着テープ４２と被着体４３との幅方向の端部を揃え、両面粘着テープ４２が長さ１０ｍｍでアルミ板４１上に接触するように、アルミ板４１、粘着テープ４２、被着体４３の順に配置する。

【００７３】

そして、被着体４３上にローラを配置し、「ウレタン接着性」で説明した場合と同じ条件で、１．２ｍｍ厚のスペーサーを介して、ローラを１往復させた(８０％圧縮)。

【００７４】

次いで、アルミ板４１側を上にした状態で室温にて２４時間放置した後、被着体４３の、アルミ板４１端部からはみ出した部分をアルミ板４１裏面方向に１８０°曲げ、両面粘

着テープ４５によってアルミ板４１に固定した。
【００７５】
図５(ｂ)はその状態を示しており、室温で２４時間放置した後、被着体４３のローラで圧着した部分の浮き(被着体４３端部と両面粘着テープ４２との間の距離)を測定した。
【００７６】
図５(ｃ)、(ｄ)の符号Ｔは、その浮き量を示しており、浮き量Ｔが２ｍｍ未満と優秀な場合が同図(ｃ)、浮き量Ｔが２ｍｍ～１０ｍｍの範囲内である良好な場合が同図(ｄ)、浮き量Ｔの大きさが１０ｍｍを越え、その角度θが９０°以上となった不良の場合が同図(ｅ)である。
【００７７】
【実施例】
＜実施例１＞
２エチルヘキシルアクリレート(５１．８ｇ)、エチルアクリレート(３２．８ｇ)、メタクリル酸(５．４ｇ)を混合し、そこへストレートキシレン樹脂Ｈ(三菱ガス化学)の２．６４ｇ(アクリルモノマー重量に対し、２．９３％の割合になる。以下粘着付与剤の割合はアクリルモノマーの重量に対する比率で示す。)を溶解し、モノマー溶液を作製した。
【００７８】
それとは別に、イオン交換水(７３ｇ)に界面活性剤(ニューコール７０７ＳＦの３．０ｇとニューコール２７１Ａの１．９１ｇ；日本乳化剤(株))を溶解し、引き続いてＡＰＳ(過硫酸アンモニウム)の０．４５ｇを溶解した。
これに上記のモノマー溶液を加え、ホモジナイザーを用いて乳化分散させ、アクリルモノマー分散液Ａを調製した。
【００７９】
キシレン樹脂Ｈの量を１５．２ｇ(１６．８９％)とした以外は上記と全く同様にしてアクリルモノマー分散液Ｂを調製した。
【００８０】
一方、１リットルのセパラブルフラスコにイオン交換水７４ｇとアクリルモノマー分散液Ａの一部(アクリルモノマー分散液Ａの１／１０の量)を入れ、窒素還流下、攪拌しながら８０℃に昇温すると、反応溶液は青っぽく変化し、重合反応の開始が確認された。
【００８１】
その後、アクリルモノマー分散液Ａの残部(９／１０の量)をチューブポンプを用いて反応系中に９０分間にわたって滴下した(１段目の重合)。
【００８２】
残部の滴下終了後、引き続いてアクリルモノマー分散液Ｂを１００分にわたって反応系中に滴下した(２段目の重合)。滴下終了後、同温度での攪拌を２時間継続した後、室温に冷却し、反応を停止させた。次いで、アンモニア水を用いてＰＨ６～７になるように中和し、その後、１００メッシュの金網を通して濾過し、キシレン樹脂が含有された乳白色のアクリル系エマルジョンを得た。
【００８３】
このアクリル系エマルジョンをシリコーン系剥離紙上にナイフコーターを用いてコーティングし、８０℃のオーブン中で約１０分間乾燥させた。次にこの粘着剤を平米あたり１４ｇの不織布基材の両面に転写させ、総厚みが１３０μｍの両面粘着テープを作製した。
【００８４】
この粘着フィルムの保持力試験、ウレタンフォームに対する接着性試験、及び屈曲性試験を行ったところ、下記表１の結果を得た。
【００８５】
【表１】

表１　粘着付与剤の２段添加により合成したアクリル系エマルジョンの特性

| | 粘着付与剤の添加割合（×1/100） | | | Ａ液とＢ液の重量比率 | 膜厚 | ｳﾚﾀﾝﾌｫｰﾑ接着力① | ｳﾚﾀﾝﾌｫｰﾑ接着力② | 保持力 | 屈曲性 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | Ａ液 | Ｂ液 | 平均 | 1段目： 2段目 | μｍ | (g/2cm) | (g/2cm) | (mm) | 外観 |
| 実施例１ | 2.93 | 16.89 | 9.91 | 50/50 | 130 | 190(AF) | 150(AF) | 0.9 | 優 |
| 実施例２ | 5.95 | 13.88 | 9.91 | 50/50 | (＊2) 57 | 160(CF) | 140(CF) | 2.5 | (＊3) ― |
| 実施例３ | (＊1) 1.47 | 16.89 | 9.91 | 50/50 | 120 | 230(CF) | 230(CF) | 8 | 良 |
| 実施例４ | 2.93 | 9.91 | 6.42 | 50/50 | 125 | 180(AF) | 120(AF) | 0.8 | 優 |
| 実施例５ | 2.93 | 16.89 | 6.42 | 75/25 | 130 | 230(AF) | 120(AF) | 1.2 | 優 |

＊１：不均化ロジンエステル　＊２：片面粘着テープ　＊３：片面粘着テープのため評価できない
Ａ液：アクリルモノマー分散液Ａ，　Ｂ液：アクリルモノマー分散液Ｂ
接着力①：ポリエステル系　接着力②：ポリエーテル系

【００８６】
上記表から分かるように、この実施例１の粘着テープは、粘着性、保持力、屈曲性ともに良好であった。
【００８７】
【実施例】
＜実施例２＞
実施例１におけるアクリルモノマー分散液Ａ中のキシレン樹脂の割合を５．９５％に増加させ、逆にアクリルモノマー分散液Ｂ中のキシレン樹脂の割合を１３．８８％に低下させた。この場合、アクリルモノマー分散液Ａとアクリルモノマー分散液Ｂとを合計したキシレン樹脂の量は、合計のアクリルモノマーの重量に対し、９．９１％の割合となり、実施例１と同じ割合になっている。その他の条件は、実施例１と全く同様にしてアクリル系エマルジョンを作製した。
【００８８】
そのアクリル系エマルジョンを２５μｍ厚のＰＥＴフィルム上にコーティングし１００℃で５分間乾燥させ、片面粘着テープを作製した。その特性評価結果は上記表１に示す。
【００８９】
実施例１に比べ、ウレタン接着性はＡＦ(界面破壊)からＣＦ(凝集破壊)へと変わり、また保持力もやや低下した。このことより、１段目に重合させるアクリルモノマー分散液のキシレン樹脂割合を大きくすると凝集力が低下してしまう傾向があることが分かった。しかし、この性能はまだ実用上満足のいくものであった。
【００９０】
【実施例】
＜実施例３＞
実施例１のアクリルモノマー分散液Ａ中のキシレン樹脂の代わりにロジンエステルＫＥ３６４ｃ(荒川化学(株))を１．４７％の割合で含有させた以外は、実施例１と全く同様の条件でアクリル系エマルジョンを作製し、引き続いてその両面粘着テープを作製、評価した。評価結果は上記表１に示す。
【００９１】
表１から分かるように、この実施例３の両面粘着テープは、優れたウレタン接着性を示している。１段目の重合に用いるアクリルモノマー分散液では、添加する粘着付与剤の種類は、ロジンエステルの方がキシレン樹脂よりも小さい割合で同等の効果があることが分かる。

【００９２】
【実施例】
＜実施例４＞
実施例１のアクリルモノマー分散液Ａ中のキシレン樹脂の濃度は変えず、アクリルモノマー分散液Ｂ中のキシレン樹脂の割合を９．９１％に減らした。その場合は、全アクリルモノマーの重量に対し、キシレン樹脂の総重量は、６．４２％の割合になる。
【００９３】
それ以外の条件は実施例１と同様にしてアクリル系エマルジョンを作製し、引き続き両面粘着テープを作製し、評価した。評価結果は上記表１に示す。
ウレタン接着性はＡＦモードとなりやや低下したがまだ満足のいく範囲内であり、一方、保持力と屈曲性は大変良好であった。
【００９４】
【実施例】
＜実施例５＞
実施例１のアクリルモノマー分散液Ａの重量とアクリルモノマー分散液Ｂの重量とが７５：２５の比率になるように、アクリルモノマー分散液Ａの重量を５割増加させ、逆に、アクリルモノマー分散液Ｂの重量は半分に減らした。
キシレン樹脂の総重量は、アクリルモノマーの全重量に対し、６．４２％の割合となっている。
【００９５】
実施例１と同様の条件でアクリル系エマルジョンを作製し、引き続いてその両面粘着テープを作製、評価した。評価結果を表１に示す。ウレタン接着性、保持力、屈曲性ともに良好であった。
【００９６】
【実施例】
＜実施例６＞
キシレン樹脂の重量割合が、２．９３％、９．９１％、１６．８９％の３種類のアクリルモノマー分散液Ａ～Ｃを用意した。各アクリルモノマー分散液Ａ～Ｃを、重量比率が３３：３３：３３となるようにした。この場合、キシレン樹脂の総量は、９．９１％となる。
【００９７】
各アクリルモノマー分散液Ａ～Ｃのうち、２種類のアクリルモノマー分散液Ａ、Ｂを、実施例１と同様の条件で重合させた後、その溶液に、最もキシレン樹脂の割合が大きいアクリルモノマー分散液Ｃを加え、重合させた。
【００９８】
このように、キシレン樹脂の割合が異なるアクリルモノマー分散液Ａ～Ｃを３段階に分けて重合させ、アクリル系エマルジョンを作製した後、同様に、両面粘着テープを作製、評価した。評価結果を下記表２に示す。
【００９９】
【表２】

表２
粘着付与剤の３段階添加法、又はパワーフィードにより重合したアクリル系エマルジョンの特性

| | | 粘着付与剤の添加割合（×1/100） | | | | A液、B液、C液の重量比率 | 膜厚 | ｳﾚﾀﾝﾌｫｰﾑ接着力① | ｳﾚﾀﾝﾌｫｰﾑ接着力② | 保持力 | 屈曲性 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | A液 | B液 | C液 | 平均 | | μm | (g/2cm) | (g/2cm) | (mm) | 外観 |
| 実施例６ | ３段添加 | 2.93 | 9.91 | 16.89 | 9.91 | 33/33/33 | 130 | 190(AF) | 130(AF) | 1.0 | 優 |
| 実施例７ | ３段添加 | 2.93 | 16.89 | 39.73 | 19.85 | 33/33/33 | 130 | 270(CF) | 300(CF) | 63分 | 優 |
| 実施例８ | *4 PF | 2.93～16.89 | | | 9.91 | 連続変化 | 120 | 170(AF) | 170(AF) | 1.8 | 良 |

＊４：パワーフィード
Ａ液：アクリルモノマー分散液Ａ
Ｂ液：アクリルモノマー分散液Ｂ
Ｃ液：アクリルモノマー分散液Ｃ
接着力①：ポリエステル系　　接着力②：ポリエーテル系

【０１００】
表２から分かるように、ウレタン接着性、保持力、屈曲性ともに良好であった。
【０１０１】
【実施例】
＜実施例７＞
アクリルモノマー分散液ＢとアクリルモノマーＣ中に含まれるキシレン樹脂の量をそれぞれ１６，８９％と３９．７３％とにし、キシレン樹脂の総重量の割合を１９．８５％とした以外は、実施例６と同様にして３段階で重合させることにより、アクリル系エマルジョンを作製し、引き続きその両面粘着テープを作製、評価した。
【０１０２】
その結果は、上記表２に示す。表２から分かるように、保持力はやや弱いが６０分以上であり、実用上最低限の性能は有していた。一方、ウレタン接着性は非常に優れており、屈曲性も良好であった。
【０１０３】
【実施例】
＜実施例８＞
実施例１と全く同様にしてアクリルモノマー分散液Ａ、Ｂを作製し、１リットルのセパラブルフラスコにイオン交換水７４ｇとアクリルモノマー分散液Ａの一部(１／１０の量)を入れ、窒素環流下、攪拌しながら８０℃に昇温したところ、反応溶液は青っぽく変化し、重合反応の開始が確認された。
【０１０４】
その後、チューブポンプを用い、アクリルモノマー分散液Ａの残部(９／１０の量)にアクリルモノマー分散液Ｂを連続的に加え、混合液を作製しながら、同時に別のチューブポンプを用い、その混合液を、上記アクリルモノマー分散液Ａの重合反応系中に一定速度で１８０分間にわたって連続的に滴下した。
【０１０５】
アクリルモノマー分散液Ａの残部に対するアクリルモノマー分散液Ｂの添加速度と、アクリルモノマーＡの反応系に対する混合分散液の滴下速度の比を１：１．９に設定し、それぞれの滴下終了時刻が一致するようにした。
【０１０６】

滴下終了後、同温度での攪拌をさらに２時間継続した後、室温まで冷却し、反応を停止させた。次いで、アンモニア水を用いてＰＨ６～７になるよう中和し、１００メッシュの金網で濾過し、乳白色のアクリル系エマルジョンを得た。実施例１と同様に、両面粘着テープを作製し、評価した。評価結果は表２に示す。ウレタン接着性、保持力、屈曲性ともに良好であった。

【０１０７】

【実施例】

以下、比較例及び参考例について説明する。

＜比較例１～３＞

同じ割合でキシレン樹脂を含むアクリルモノマー分散液Ａ、Ｂを用いた他は実施例１と同等な方法で、アクリル系エマルジョンを作製した。

【０１０８】

粘着付与剤の割合がゼロ(全く含有しない)の場合を比較例１とし、２．９３％の割合の場合を比較例２とし、４．９６％の割合の場合を比較例３とした。その結果を下記表３に示す。

【０１０９】

【表３】

**表３　粘着付与剤の均一添加により合成したエマルジョンの特性**

| | 粘着付与剤の添加割合（×1/100） | 膜厚 | ｳﾚﾀﾝﾌｫｰﾑ接着力① | ｳﾚﾀﾝﾌｫｰﾑ接着力② | 保持力 | 屈曲性 |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | 平　均 | (μm) | (g/2cm) | (g/2cm) | (mm) | (外観) |
| 比較例１ | 添加せず | 110 | 80(AF) | 30(AF) | 0.1 | 不可(AF) |
| 比較例２ | 2.93 | 115 | 110(AF) | 60(AF) | 0.4 | 不可(AF) |
| 比較例３ | 4.96 | 110 | 125(AF) | 110(AF) | 2.5 | 不可(AF) |
| 比較例４ | 9.91 | 122 | 300(CF) | 300(CF) | 6分10秒 | 不可(CF) |
| 比較例５ | 16.88 | 130 | 220(CF) | 220(CF) | 2分50秒 | 不可(CF) |

接着力①：ポリエステル系　接着力②：ポリエーテル系

【０１１０】

上記表３から分かるように、比較例１～３については、保持力は良好であったが、ウレタン接着性と屈曲性は全く満足のいくものではない。

【０１１１】

粘着付与剤として用いたキシレン樹脂の割合が大きくなるに連れ、ウレタン接着力は、ＡＦ破壊モードのまま徐々に改善されるが、それは満足のいくまでには至らなかった。また屈曲性には全く改善が認められず、一方、保持力は徐々に低下した。

【０１１２】

＜比較例４＞

キシレン樹脂の割合を、９．９１％(実施例１の総重量の割合と同じ値である。)にし、その割合のアクリルモノマー分散液Ａ、Ｂを調整し、実施例１と同様に、アクリル系エマルジョンを作製した。

【０１１３】

ウレタン接着性はＡＦ破壊モードからＣＦ破壊モードへと変化し、優れた接着性を与えたが、そのときの保持力は極端に低下し(６分４０秒)その点で全く実用に適さないものであった。

【０１１４】

＜比較例５＞

キシレン樹脂の割合を１６．７８％(実施例１のアクリルモノマー分散液Ｂの割合と同じ値である。)とし、その割合のアクリルモノマー分散液Ａ、Ｂを調整し、実施例１と同様に、アクリル系エマルジョンを作製した。

【０１１５】

比較例４の粘着テープに比べ、接着力も保持力もともに減少しさらに実用上適さないものとなってしまった。

【０１１６】

以上説明した比較例１～５の結果から、粘着付与剤を同じ割合で含むアクリルモノマー分散液を段階的に重合させても、ウレタン接着性が改善できる添加割合では、保持力が大幅に低下してしまい、また、屈曲性も得られないことがわかった。すなわち、粘着付与剤の割合が同じアクリルモノマー分散液を用いた場合には、アクリル系エマルジョン、そのアクリル系エマルジョンを用いた粘着剤組成物、それらアクリル系エマルジョン又は粘着剤組成物が用いられた粘着テープは、３つの特性のバランスがとれず、満足な特性ではなかった。

【０１１７】

＜比較例６＞

粘着付与剤の割合がゼロのアクリルモノマー分散液Ａと、キシレン樹脂が１９．８２％の割合で含まれるアクリルモノマー分散液Ｂを調整した。この場合のキシレン樹脂の重量は、アクリルモノマーの総重量に対し、９．９１％となる。

【０１１８】

他の条件は実施例１と同様にしてアクリル系エマルジョンを作製し、引き続いてその両面粘着テープを作製、評価した。その結果を下記表４に示す。

【０１１９】

【表４】

**表４　２段目のみに粘着付与剤を添加し合成したアクリル系エマルジョンの特性**

| | 粘着付与剤の添加割合（×1/100） | | | Ａ液とＢ液の重量比率 | 膜厚 | ｳﾚﾀﾝﾌｫｰﾑ接着力① | ｳﾚﾀﾝﾌｫｰﾑ接着力② | 保持力 | 屈曲性 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | Ａ液 | Ｂ液 | 合 計 | Ａ液：Ｂ液 | μｍ | (g/2cm) | (g/2cm) | (mm) | (外観) |
| 比較例６ | 0.00 | 19.82 | 9.91 | 50/50 | 130 | 70 | 50 | 0.3 | 不可(AF) |

Ａ液：アクリルモノマー分散液Ａ，　Ｂ液：アクリルモノマー分散液Ｂ

接着力①：ポリエステル系　接着力②：ポリエーテル系

【０１２０】

この表４から分かるように、保持力は良好であるが、ウレタン接着性は低く、また屈曲性も悪く実用に適さない。このように、１段目の重合反応に用いるアクリルモノマー分散液Ａに粘着付与剤を全く添加しない場合は、ウレタン接着性の改善が認められなかった。

【０１２１】

【実施例】

以下、ロジンエステル樹脂を粘着付与剤とした場合の参考例について説明する。

【０１２２】

＜参考例１＞

２エチルヘキシルアクリレート(８２ｇ)、酢酸ビニル(１５ｇ)、アクリル酸(３ｇ)を混合し、そこへロジンエステルＫＥ３６４ｃ(荒川化学(株)製)の３．１ｇ(３．１％)を溶解し、モノマー溶液を調整した。

【０１２３】

別にイオン交換水(８３ｇ)に界面活性剤(ニューコール７０７ＳＦの３．３３ｇとニューコール２７１Ａの２．１３ｇ；日本乳化剤(株)製)を溶解し、引き続いてＡＰＳ(過硫酸アンモニウム)の０．５ｇを溶解した。これに、上記のモノマー溶液を加え、ホモジナイ

ザーを用いて乳化分散させ、アクリルモノマー分散液Ａを調製した。

【０１２４】

一方、１リットルのセパラブルフラスコにイオン交換水３６ｇと上記モノマー分散液Ａの一部(３６ｇ)を入れ、窒素環流下、攪拌しながら８０℃に昇温させ、反応を開始させた。反応溶液は青っぽく変化し、重合の開始が確認された。

【０１２５】

その後、チューブポンプを用い、上記アクリルモノマーＡの反応系中に、アクリルモノマー分散液Ａの残部を１２０分間にわたって滴下した。その滴下が終了した後、同温度での攪拌をさらに２時間継続し、室温に冷却して反応を停止させた。

【０１２６】

得られた溶液をアンモニア水を用いて中和(ＰＨ６～７)し、その後、１００メッシュの金網で濾過し、乳白色のアクリル系エマルジョンを得た。

【０１２７】

このアクリル系エマルジョンをシリコーン系剥離紙上にナイフコーターを用いてコーティングし、８０℃のオーブン中で約１０分間乾燥させ、乾燥皮膜を得た。次に、この乾燥皮膜を２５μｍのポリエステルフィルムに転写し、片面粘着テープを作製した。

この粘着テープの特性を下記表５に示す。

【０１２８】

【表５】

**表５　ロジンエステルＫＥ364cを添加し合成したアクリル系エマルジョンの特性**

| | 粘着付与剤添加量<br>(%／モノマー) | 膜厚 | ｳﾚﾀﾝﾌｫｰﾑ<br>接着力① | ｳﾚﾀﾝﾌｫｰﾑ<br>接着力② | 保持力 | 屈曲性 |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | 合 計 | μｍ | (g/2cm) | (g/2cm) | (mm) | (外観) |
| 参考例１ | 3.1 | (*2) 55 | ― | 75(CF) | 0.25 | ― |
| 参考例２ | 5.3 | (*2) 60 | ― | 25(CF) | 6分 | ― |

＊２：片面粘着テープ

Ａ液：アクリルモノマー分散液Ａ，　Ｂ液：アクリルモノマー分散液Ｂ

接着力①：ポリエステル系　接着力②：ポリエーテル系

【０１２９】

この表５から分かるように、保持力は０．２５ｍｍと良好であるが、ウレタンフォームへの接着性は不十分である。

【０１３０】

＜参考例２＞

ロジンエステルＫＥ３６４ｃの量を５．３ｇ(５．３％)に増やした以外は上記参考例１と全く同様の条件で、アクリル系エマルジョンを作製し、引き続いてその片面粘着テープを作製した。

【０１３１】

測定結果は上記表５に示す。保持力は６分しかなく、アクリルポリマーの凝集力が弱すぎるため、ウレタン接着性もまたＣＦモードで２５ｇしかなく全く不十分であった。

【０１３２】

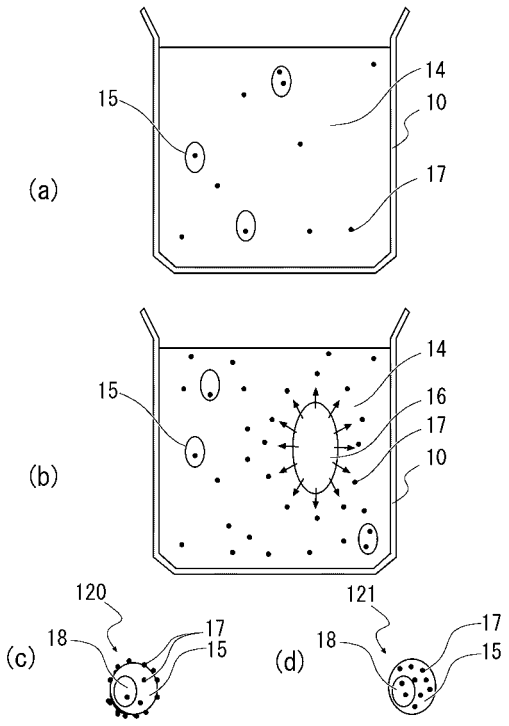
ロジンエステルの連鎖移動性はキシレン樹脂よりも強いため、参考例１と２のように、３．１％の割合ではまだ保持力は得られるが、５．３％の割合では保持力が得られなくなっている。

【０１３３】

以上の参考例１、２から分かるように、本発明において、ロジンエステル樹脂を、一つのアクリルモノマー分散液の粘着付与剤の主成分とする場合には、３％以下の割合にすることが望ましい。

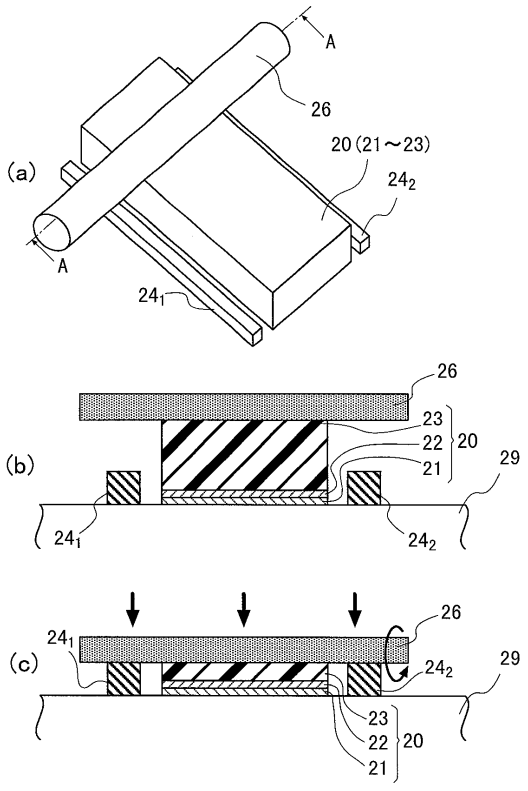
【０１３４】
【発明の効果】
本発明によれば、従来のようにアクリルポリマー全体の架橋密度を上げることなく保持力を得ているので、良好なぬれ性が得られる。特に、ポリオレフィン系素材や粗面、特に高分子発泡体に対する接着性が良好であり、また、良好な保持力が得られている。
また、本発明のアクリル系エマルジョンは水性であるから、環境問題が生じるおそれがない。
【図面の簡単な説明】
【図１】(ａ)～(ｄ)：本発明のアクリル系エマルジョン中のアクリル樹脂の成長状態を説明するための図
【図２】(ａ)～(ｃ)：ウレタン接着性を測定する際の試料片の作製方法を説明するための図
【図３】ウレタン接着性の測定方法を説明するための図
【図４】(ａ)～(ｃ)：保持力の測定方法を説明するための図
【図５】(ａ)～(ｅ)：屈曲性の測定方法を説明するための図
【符号の説明】
１４、１６……粘着付与剤の割合が異なるアクリルモノマー分散液
１７……粘着付与剤

【図１】



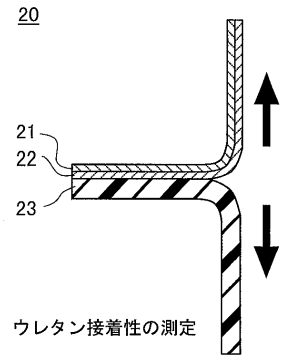

アクリル樹脂粒子の成長状態

【図２】



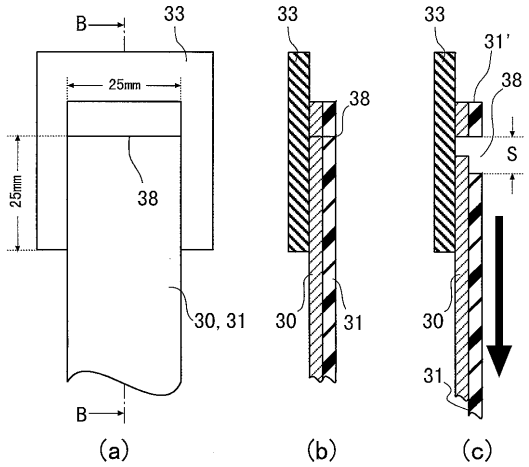

ウレタン接着性の試験片作製

【図３】



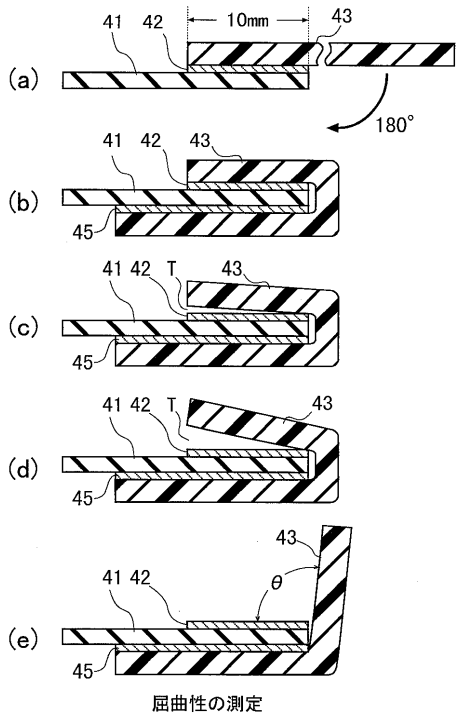

ウレタン接着性の測定

【図４】




保持力の測定

【図５】




屈曲性の測定

フロントページの続き

審査官　▲吉▼澤　英一

(56)参考文献　特開平０９－１１１２１８（ＪＰ，Ａ）
特開平０２－０８０４８２（ＪＰ，Ａ）
特開昭６４－０７９２８１（ＪＰ，Ａ）
特開昭５８－１８５６６８（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
C08F　2/00-2/60
C09J　1/00-201/10