

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2005-512854

(P2005-512854A)

(43) 公表日 平成17年5月12日(2005.5.12)

(51) Int. Cl.<sup>7</sup>

B32B 3/10

F1

B32B 3/10

テーマコード(参考)

4F100

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 31 頁)

(21) 出願番号 特願2003-554418 (P2003-554418)  
 (86) (22) 出願日 平成14年11月18日(2002.11.18)  
 (85) 翻訳文提出日 平成16年6月18日(2004.6.18)  
 (86) 国際出願番号 PCT/US2002/036923  
 (87) 国際公開番号 W02003/053668  
 (87) 国際公開日 平成15年7月3日(2003.7.3)  
 (31) 優先権主張番号 10/028,638  
 (32) 優先日 平成13年12月19日(2001.12.19)  
 (33) 優先権主張国 米国(US)

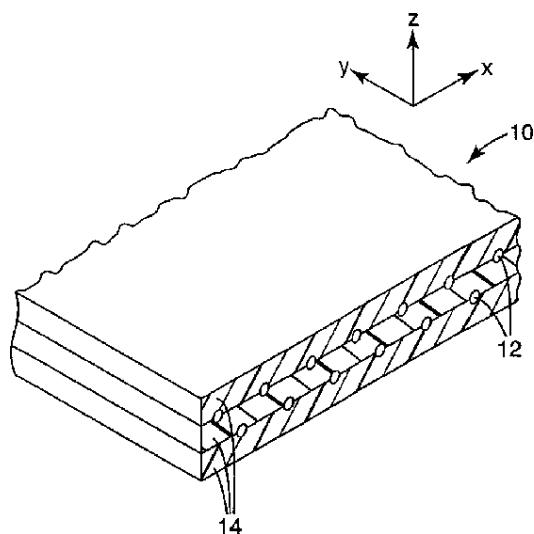
(71) 出願人 599056437  
 スリーエム イノベイティブ プロパティ  
 ズ カンパニー  
 アメリカ合衆国, ミネソタ 55144-  
 1000, セント ポール, スリーエム  
 センター  
 (74) 代理人 100099759  
 弁理士 青木 篤  
 (74) 代理人 100077517  
 弁理士 石田 敬  
 (74) 代理人 100087413  
 弁理士 古賀 哲次  
 (74) 代理人 100111903  
 弁理士 永坂 友康

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ポリマー共押し多層物品

## (57) 【要約】

ポリマー共押し多層ウェブであって、このウェブが、横方向に不連続である少なくとも2つの層であって、それぞれの層が流れ方向には実質的に連続である、複数の異なる相を含む2層と、横方向および流れ方向のいずれの方向にも実質的に連続である少なくとも1つの層と、を含み、ここで前記ウェブが、そのウェブの横方向であるx軸、ウェブの流れ方向であるy軸、およびウェブの厚み方向であるz軸を有して、そして、前記実質的に連続な層では、ウェブのy-z平面の方が、x軸よりもウェルドラインが少ないポリマー共押し多層ウェブについて記載する。



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

ポリマー共押し多層ウェブであって、前記ウェブが、横方向に不連続である少なくとも2つの層であって、それぞれの層が流れ方向には実質的に連続である複数の異なる相を含む2つの層と、

横方向および流れ方向のいずれの方向にも実質的に連続である少なくとも1つの層と、を含み、

ここで前記ウェブが、前記ウェブの横方向であるx軸、前記ウェブの流れ方向であるy軸、前記ウェブの厚み方向であるz軸を有していて、そして、ここで、前記実質的に連続な層では前記ウェブの前記y-z平面にウェルドラインが存在しない、ウェブ。

10

## 【請求項 2】

前記実質的に連続な層が、感圧接着剤、熱可塑性材料、エラストマー材料、溶融加工可能なフォーム、高粘度液体、およびそれらの混合物からなる群より選択される材料を独立して含む、請求項1に記載のウェブ。

## 【請求項 3】

前記不連続な層が、感圧接着剤、熱可塑性材料、エラストマー材料、溶融加工可能なフォーム、高粘度液体、およびそれらの混合物からなる群より選択される材料を独立して含む、請求項1に記載のウェブ。

## 【請求項 4】

前記連続な層がアクリル系感圧接着剤を含み、そして前記不連続な層が、非感圧接着剤、熱可塑性ポリオレフィン、およびそれらの組合せからなる群より選択される材料を独立して含む、請求項1に記載のウェブ。

20

## 【請求項 5】

前記熱可塑性ポリオレフィンが、エチレン酢酸ビニルコポリマー、エチレン/ポリ-オレフィンコポリマー、アミノ相溶化ポリオレフィン、またはエチレン/ポリ-オレフィンとアミノ相溶化ポリオレフィンとのブレンド物である、請求項4に記載のウェブ。

## 【請求項 6】

前記実質的に連続な層が発泡させた感圧接着剤を含み、そして前記不連続な層が、感圧接着剤、熱可塑性プラスチック、およびそれらのホモポリマーおよびコポリマー、ならびにそれらの組合せからなる群より選択される材料を含む、請求項1に記載のウェブ。

30

## 【請求項 7】

前記実質的に連続な層が少なくとも1種のポリオレフィンを含み、そして前記不連続な層が、環状ポリオレフィンまたは環状ポリオレフィンと非環状ポリオレフィンとのブレンド物、ポリアミド、スチレン系ポリマー、およびそれらのホモポリマーおよびコポリマーからなる群より選択される材料を含む、請求項1に記載のウェブ。

## 【請求項 8】

前記実質的に連続な層が多孔質フィルムを含む、請求項1に記載のウェブ。

## 【請求項 9】

前記実質的に連続な層がポリプロピレンとオイルとを含み、そして前記不連続な層が前記連続な層よりも高い引張強さを有している、請求項8に記載のウェブ。

40

## 【請求項 10】

前記不連続な層がポリプロピレンを含む、請求項9に記載のウェブ。

## 【請求項 11】

前記不連続な層が、染料または着色剤を含む、請求項9に記載のウェブ。

## 【請求項 12】

前記不連続な層が、前記少なくとも1層の連続な層と交互になっている、請求項1に記載のウェブ。

## 【請求項 13】

前記ウェブが、それぞれで組になっている不連続な層の間に、2層の実質的に連続な層

50

を有している、請求項 1 に記載のウェブ。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明はポリマー共押し多層ウェブに関するものであり、このウェブには、横方向には不連続であるが、それぞれの層では流れ方向には実質的に連続となっている複数の異なる相 (distinct phase) が含まれている少なくとも 2 つの層と、横方向および流れ方向のいずれの方向にも実質的に連続である少なくとも 1 つの層とが含まれており、ここで前記ウェブは、そのウェブの横方向である x 軸、ウェブの流れ方向である y 軸、ウェブの厚み方向である z 軸を有していて、ここで、その実質的に連続な層では前記ウェブの y - z 平面にウェルドラインが存在しない。

10

【背景技術】

【0002】

多層のシートおよびその他の物品を共押しすることは、当業者には公知である。ポリマーウェブの共押しは、別々の押し機から、多層フィードブロックダイおよびフィルムダイの中、または多層マニホールダイの中に、複数の異なった熔融流れを通過させることによって、実施することができる。このフィードブロック法では、1 つのフィードブロックの中で少なくとも 2 種の異なった材料を合流させ、次いでそれらを層状のスタックとしてダイに供給すると、多層シートとなってダイからでてくる。その一方で多層マニホールダイは、別々の押し機からの個別の熔融流れをダイリップで合流させる。

20

【0003】

従来ポリマーの共押しは特に、少なくとも 1 種のポリマー材料が他のポリマー材料のマトリックスの内部に不連続層として存在するようなポリマーウェブを形成させるために使用されてきた。そのような多層物品の使用例を挙げれば、テープのバックングや医療用物品がある。共押し物品に伴う 1 つの問題点は、それらの物品を形成させるために使用されている公知の装置の設計では、製造される物品には、その物品の y - z 平面上にウェルドラインができてしまうことである。

【0004】

物品の中にあるウェルドラインは、その物品を製造する際に、熔融ポリマーの 2 つの流れが合流しているところである。2 つの流れの先端が十分に接着せずに、流頭間の表面の接着が弱くなっている。ウェルドラインは、2 つの異種のポリマー流れが合流した結果発生する。さらに、それらは、1 つのポリマー流れが分割され、それらが再合流した場合にも起こりうる。ウェルドラインを有する物品のモルホロジーおよび機械的性質は、それらが無いものとは実質的に差がある。一般的に言って、ウェルドラインは材料の配向を示しており、その配向はウェルドラインに平行で、その物品をかなり脆くする原因となる。

30

【0005】

多層の薄膜物品では特に、そのような物品がその y - z 平面にウェルドラインを実質的に有していないのが望ましい。共押し多層物品においては、その x - y 平面にウェルドラインができるのは避けられないが、それは、ウェルドラインは多層ウェブの異なった層の間で形成されるからである。しかしながら、特に望ましくないのは、y - z 平面に存在するウェルドラインである。

40

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

そのようなことから、横方向に不連続である複数の異なる相を含む 2 層以上の層と、横方向および流れ方向のいずれの方向にも実質的に連続である少なくとも 1 つの層とを含み、その物品の実質的に連続な 1 つまたは複数の層がその y - z 平面にウェルドラインを持たないような、ポリマー共押し多層物品や、そのような物品の製造法が必要とされている。

【課題を解決するための手段】

50

## 【0007】

本発明が提供するものはポリマー共押し多層ウェブと、それを製造するための方法であるが、このウェブには、横方向には不連続であるが、それぞれの層では流れ方向には実質的に連続となっている複数の異なる相が含まれている少なくとも2つの層と、横方向および流れ方向のいずれの方向にも実質的に連続である少なくとも1つの層とが含まれており、ここで前記ウェブは、そのウェブの横方向であるx軸、ウェブの流れ方向であるy軸、ウェブの厚み方向であるz軸を有して、ここで、その実質的に連続な層では前記ウェブのy-z平面にウェルドラインが存在しない。

## 【0008】

本発明の少なくとも1つの実施態様の利点は、それらの層を調節しながら共押しすることにある。それらの層は、溶融状態で形成され合流されるので、相互の接着性が改良される。さらに、別個の層に使用する材料が通常は相溶性がない（すなわち、相互に十分に接着しない）ものであっても、この方法では、それらを共押しして、それぞれの材料の特性を持つウェブを製造することが可能となる。

10

## 【0009】

本発明の少なくとも1つの実施態様のさらに別の利点は、不連続層の中に多数の細かい異なる相を含む、共押し物品を製造することが可能な点にある。これは、たとえば、大きな異なる相が少数あるものよりは優れているが、その理由は、大きな異なる相を有するフィルムの性能（たとえば、蒸気透過性）に問題があるからである。本発明の細かい異なる相は、その合計の容積分率が、大きな異なる相が少数ある場合と同一の容積分率であったとしても、個々には目立ちにくい。

20

## 【0010】

本発明の少なくとも1つの実施態様のさらに別の利点は、不連続層および連続層のなかで、横方向に均一性がある点である。

## 【0011】

本発明においては、

「流れ方向のウェブ」とは、ウェブの長手方向、あるいは流れ方向（または縦方向）に延びるウェブの方向を指し、

「横方向のウェブ」とは、その流れ方向とは直角な方向を指す。

## 【発明を実施するための最良の形態】

30

## 【0012】

物品

図1は、本発明の物品10の構成の1つの例を示す断面図である。この物品10は、3つの連続層14の間に交互に入った異なる相12の2つの不連続層を示している。この図には、本発明のウェブまたは物品のx軸、y軸およびz軸もあわせて示した。このx軸はウェブの横方向であり、y軸はウェブの流れ方向であり、そしてz軸はウェブの厚み方向である。

## 【0013】

本発明の多層ウェブは、好ましくは少なくとも3層（連続層および不連続層の両方を含む）、より好ましくは少なくとも5層、さらにより好ましくは少なくとも9層構成となっている。本発明の物品の不連続層の数は最低で2である。本発明の物品の連続層の数は最低で1である。本発明の物品における層の数の、事実上の上限は約50である。

40

## 【0014】

本発明の物品には、図1に示したように、不連続層と交互に配した1層または複数の連続層を含むことができる。最も外側の2つの層は、両方が連続層であっても、両方が不連続層であっても、あるいはそれぞれが片側ずつであってもよい。それぞれの連続層の厚みが、実質的に均等であるのが好ましい。これらの多層は、単一の多層フィルムとして「一体化」されていて、容易には層が分離しないようになっている。

## 【0015】

しかしながら、本発明の物品は、連続層と不連続層が必ず交互になければならないとい

50

う訳ではない。別の方法として、不連続層の間に2つの隣接した連続層があってもよい。たとえば、連続層と不連続層との間に結合層 (tie layer) を使用して、それらを相互に接合、接着させることもできる。この結合層材料には、相溶化剤を含んでいてもよい。相溶化剤の例のいくつかは、国際公開第99/28128号の中に見いだすことができる。それ以外の組合せも、本発明における考慮の対象に含まれる。

#### 【0016】

1つの物品の中においては、それぞれの個々の不連続層は典型的には、同一の材料または材料の組合せを含むが、それぞれ個々の不連続層が、他の不連続層とは異なった材料からできていてもよい。同様に、それぞれの連続層も典型的には同一の材料または材料の組合せを含むが、それぞれの連続層が、他の連続層とは異なった材料または材料の組合せを含んでいてもよい。

10

#### 【0017】

##### 不連続層

本発明の不連続層を形成させるために使用するのに適した材料としては、加熱加工可能、すなわち、ウェブの溶融加工で使用される温度 (たとえば、約50 ~ 約300) で流動性があり、ポンプ輸送可能なものであって、成膜性があるものならば、どのようなものであってもよい。さらに、溶融加工 (たとえば、押し出またはコンパウンディング) の場合に使用される温度で、顕著に分解したりゲル化しないような材料が適している。その加工温度と押出の場合に使用される切断速度において、キャピラリー溶融粘度計で測定して、約10ポアズ ~ 約1,000,000ポアズの溶融粘度を有している材料が好ましい。

典型的には、好適な材料では、温度約175 で、切断速度約100秒の場合にこの範囲の溶融粘度を有する。

20

#### 【0018】

好適な材料としては、感圧接着剤、非感圧接着剤、熱可塑性材料、エラストマー材料、溶融加工可能なフォーム、高粘度液体、およびそれらの混合物などが挙げられるが、これらに限定される訳ではない。

#### 【0019】

「感圧接着剤」(「PSA」)とは、各種の基材に対して、軽く圧力をかけるだけで、恒久的で強力な粘着性を示すような粘着剤を意味する。これは、粘着性、凝集性、伸縮性および弾性の4つの性質のバランスがとれていて、使用温度、通常は室温 (すなわち約20 ~ 約30) では、粘着性を有している。さらに感圧接着剤は通常、数日、場合によっては数ヶ月、数年の単位のオープンタイムタック (すなわち、その粘着剤が室温で粘着性を示しうる期間) を有している。感圧接着剤の定量的評価法として認められているのは、ダールキスト評価基準ライン (Dahlquist criterion line) であって、これは、D. サタス (Satas) 編、『ハンドブック・オブ・プレッシャーセンシティブ・アドヘシブ・テクノロジー (Handbook of Pressure-Sensitive Adhesive Technology)』第2版 (ファン・ノストランド・ラインホルド (Van Nostrand Reinhold)、ニューヨーク州ニューヨーク (New York, NY)、1989) p. 171 ~ 176 に記載されており、そこでは、貯蔵モジュラス ( $G'$ ) が約  $3 \times 10^5$  パスカル (温度約20 ~ 約22 で、10ラジアン/秒で測定) 未満の材料は感圧接着剤としての性質を有するが、この値を超える  $G'$  を持つ材料は適していない、としている。

30

40

#### 【0020】

「非感圧接着剤」とは、粘着性のないポリマー材料、すなわち溶融状態では粘着性があるが感圧性を示さないポリマー材料を意味するか、あるいは室温では粘着性を示しはするが、上記のダールキスト評価基準には適合しないような、その他の材料を意味している。そのような材料は、(約20 ~ 約22 の室温で10ラジアン/秒で測定した場合に) 少なくとも約  $3 \times 10^5$  パスカルの貯蔵モジュラス ( $G'$ ) を有している。それらの材料は粘着性のない熱可塑性材料であってもよく、それらはエラストマー性であっても非エラストマー性であってもよい。それとは別に、それらは非粘着性のエラストマーであっても

50

よい。

【0021】

一般的に言って、必ずというわけではないが、特に有用な感圧接着剤は、ガラス転移温度(T<sub>g</sub>)が約20 未満の非晶質物質である。

【0022】

この感圧接着剤材料としては、単一の感圧接着剤、数種の感圧接着剤の混合物(たとえば、ブレンド物)、または感圧接着剤と非感圧接着剤(たとえば、非粘着性の熱可塑性材料、エラストマー性があってもなくてもよい)との混合物(たとえば、ブレンド物)などが挙げられるが、ただし、その層が感圧接着性を有していなければならない。感圧接着剤ブレンド物のいくつかの例については、PCT国際出願で、国際公開第97/23577号、国際公開第97/23249号、および国際公開第96/25469号に記載がある。同様にして、好適な非感圧接着剤材料層としては、非感圧接着剤の単一材料、数種のそのような材料の混合物、または、感圧接着性のない材料と感圧接着剤との混合物などが挙げられるが、ただし、その層は感圧接着性を有してはならない。

10

【0023】

不連続層において有用な感圧接着剤は、自己粘着性を有していてもよいし、粘着付与剤の添加が必要なものであってもよい。そのような材料を、非限定的に挙げてみると、粘着性付与天然ゴム、粘着性付与合成ゴム、粘着性付与スチレンブロックコポリマー、自己粘着性または粘着性付与アクリレートまたはメタクリレートコポリマー、自己粘着性または粘着性付与ポリ - オレフィン、および自己粘着性または粘着性付与シリコンなどがある。好適な感圧接着剤の例としては、たとえば、米国再発行特許第24,906号(ウルリヒ(Ulrich))、米国特許第4,833,179号(ヤング(Young)ら)、同第5,209,971号(バブ(Babu)ら)、同第2,736,721号(デクスター(Dexter))、および同第5,461,134号(リア(Leir)ら)などが挙げられる。その他にも、エンサイクロペディア・オブ・ポリマー・サイエンス・アンド・エンジニアリング(Encyclopedia of Polymer Science and Engineering)第13巻(ジョン・ワイリー・アンド・サンズ・インコーポレーテッド(John Wiley & Sons, Inc.))、ニューヨーク(New York)、1988年)および、エンサイクロペディア・オブ・ポリマー・サイエンス・アンド・テクノロジー(Encyclopedia of Polymer Science and Technology)第1巻(ジョン・ワイリー・アンド・サンズ・インコーポレーテッド(John Wiley & Sons, Inc.))、ニューヨーク(New York)、1964年)などにも記載されている。

20

30

【0024】

有用な天然ゴム感圧接着剤には一般に、素練り天然ゴム、1種または複数の粘着性付与樹脂、および1種または複数の抗酸化剤が含まれる。有用な合成ゴム粘着剤は一般に、ゴム状エラストマーであって、本来的に粘着性があってもよいし、非粘着性で粘着付与剤が必要なものであってもよい。本来的に粘着性な(すなわち、自己粘着性の)合成ゴム感圧接着剤の例を挙げれば、ブチルゴム、イソプレンが3パーセント未満のイソブチレンコポリマー、ポリイソブチレン、イソプレンのホモポリマー、ポリブタジエン、またはスチレン/ブタジエンゴムなどがある。

40

【0025】

スチレンブロックコポリマー感圧接着剤には一般に、A-BまたはA-B-A型のエラストマーを含むが、ここで本明細書の文脈においては、Aは、熱可塑性ポリスチレンブロックを表し、Bは、ポリイソブレン、ポリブタジエン、またはポリ(エチレン/ブチレン)および粘着付与樹脂のゴム状ブロックを表す。ブロックコポリマー感圧接着剤中で有用な各種のブロックコポリマーの例としては、直鎖状、放射状、星形、およびテーパー状のブロックコポリマーなどがある。具体的な例としては、テキサス州ヒューストン(Houston, Texas)のシェル・ケミカル・カンパニー(Shell Chemicals)の

50

l Co.)からのクレイトン(KRATON)(商標)、およびテキサス州ヒューストン(Houston, Texas)のエニケム・エラストマーズ・アメリカズ・インコーポレーテッド(EniChem Elastomers Americas Inc.)からのユーロプレネ・ゾル(EUROPRENE SOL)(商標)などの商品名で入手可能なコポリマーがある。

**【0026】**

そのようなスチレンブロックコポリマーとともに使用するための粘着性付与樹脂の例を挙げれば、脂肪族オレフィン誘導樹脂、ロジンエステル、水素化炭化水素、ポリテルペン、石油系またはテルペン系原料から誘導したテルペンフェノール樹脂、ポリ芳香族、クマロン・インデン樹脂、およびコールタールまたは石油から誘導され、その軟化点が約85

10

を超えるその他の樹脂などがある。

**【0027】**

(メタ)アクリレート(すなわち、アクリレートおよびメタクリレート、または「アクリル樹脂(acrylic)」)感圧接着剤は一般に、そのガラス転移温度が約-20以下であり、典型的には、たとえば、アクリル酸イソオクチル、アクリル酸2-エチルヘキシル、アクリル酸n-ブチルなどのアルキルエステル成分と、アクリル酸、メタクリル酸、エチレン・酢酸ビニル、およびN-ビニルピロリドンなどの極性成分とを含む。アクリル系感圧接着剤では、約80質量%~約100質量%のアクリル酸イソオクチルと最高約20質量%までのアクリル酸を含むものが好ましい。このアクリル系感圧接着剤は、本来的に粘着性のものでもよいし、あるいはロジンエステル、脂肪族樹脂またはテルペン

20

樹脂のような粘着付与剤を使用して粘着性を付与したものであってもよい。

**【0028】**

ポリ- -オレフィン感圧接着剤は、ポリ(1-アルケン)感圧接着剤とも呼ばれるが、一般に、実質的に非架橋のポリマーか、または、米国特許第5,209,971号(バブ(Babu)ら)に記載されているような、照射により活性化することが可能な官能性基をその上に有していてもよい非架橋のポリマーかのいずれかを含む。有用なポリ- -オレフィンポリマーには、たとえばC<sub>3</sub>~C<sub>18</sub>ポリ(1-アルケン)ポリマーがある。このポリ- -オレフィンポリマーは、本来的に粘着性であるか、および/またはC<sub>5</sub>~C<sub>9</sub>不飽和炭化水素モノマーを重合させることによって得られる樹脂、ポリテルペン、合成ポリテルペン、など、1種または複数の粘着性付与物質を含んでいてもよい。

30

**【0029】**

シリコーン感圧接着剤には、2つの主要成分すなわち、ポリマーまたはゴムと、粘着性付与樹脂とが含まれる。このポリマーは典型的には、ポリマー鎖の末端に残存シラノール官能基(SiOH)を含む、高分子量ポリジメチルシロキサンまたはポリジメチルジフェニルシロキサンであるか、または、ポリジオルガノシロキサンのソフトセグメントと尿素末端のハードセグメントを有するブロックコポリマーである。この粘着性付与樹脂は一般に、トリメチルシロキシ基(OSiMe<sub>3</sub>)で末端封鎖され、さらに幾分か残存シラノール官能基を有する、3次元シリケート構造をしている。シリコーン感圧接着剤については、米国特許第2,736,721号(デクスター(Dexter))に記載がある。シリコーン尿素ブロックコポリマー感圧接着剤については、米国特許第5,461,134

40

号(リア(Leir)ら)およびPCT国際出願で、国際公開第96/34028号および同第96/35458号などに記載されている。

**【0030】**

本発明の不連続層において使用可能な、非感圧接着剤ポリマー材料には、弾性または非弾性材料であってもよい1種または複数の熱可塑性材料や、エラストマーが含まれていてもよい。これらは、溶融状態では接着性(すなわち、粘着性)であってもよいし、非接着性(すなわち、非粘着性)であってもよいが、ただし、その接着性の材料が先に定義した感圧性があってはならない。

**【0031】**

熱可塑性材料とは一般に、そのガラス転移温度より十分に高い温度に加熱すると流動し

50

、冷却すると固形物になるような材料である。それらは、エラストマー性であっても、非エラストマー性であってもよい。一般に非エラストマー性と考えられ、本発明において有用な熱可塑性材料の例としては、たとえば、ポリオレフィンたとえば、イソタクチックポリプロピレン、低密度ポリエチレン、線状低密度ポリエチレン、超低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、ポリブチレン、非弾性ポリオレフィンコポリマーまたはターポリマーたとえばエチレン/プロピレンコポリマー、およびそれらのブレンド物、エチレン-酢酸ビニルコポリマーたとえば、デラウェア州ウィルミントン (Wilmington, Delaware) のイー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・インコーポレーテッド (E. I. DuPont de Nemours, Inc.) から商品名エルバックス (ELVAX) (商標) として入手可能なもの；エチレンアクリル酸コポリマー；エチレンメタクリル酸コポリマー、たとえば、イー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・インコーポレーテッド (E. I. DuPont de Nemours, Inc.) から商品名サーリン (SURLYN) (商標) 1702として入手可能なもの；ポリメチルメタクリレート；ポリスチレン；エチレンビニルアルコール；ポリエステル (非晶質ポリエステルを含む)；ポリアミド；フッ素化熱可塑性プラスチック、たとえばポリフッ化ビニリデンおよびフッ素化エチレン/プロピレンコポリマー；ハロゲン化熱可塑性プラスチック、たとえば塩素化ポリエチレン；ポリエーテル-ブロック-アミド、たとえばペンシルバニア州フィラデルフィア (Philadelphia, Pennsylvania) のエルフ・アトケム・ノース・アメリカ・インコーポレーテッド (Elf-Atochem North America, Inc.) から商品名ペバックス (PEBAX) (商標) 5533として入手可能なもの、などが挙げられる。

#### 【0032】

エラストマー性を有する熱可塑性材料は一般に、熱可塑性エラストマー材料と呼ばれている。熱可塑性エラストマー材料は一般に、環境温度では共有結合で架橋されたかのように高いレジリエンスと低いクリープを示すが、熱可塑性の非エラストマーと同様に加工可能で、それらの軟化点よりも高い温度では流動するもの、と定義される。本発明の不連続層において有用な熱可塑性エラストマー材料としては、たとえば、直鎖状、放射状、星形、およびテーパー状のブロックコポリマーで、先に感圧接着剤に関連して列挙したもの (たとえば、スチレン-イソプレノブロックコポリマー、スチレン-(エチレン-ブチレン)ブロックコポリマー、スチレン-(エチレン-プロピレン)ブロックコポリマー、およびスチレン-ブタジエンブロックコポリマー)；ポリエーテルエステル、たとえばイー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・インコーポレーテッド (E. I. DuPont de Nemours, Inc.) から商品名ハイトレル (HYTREL) (商標) G3548として入手可能なもの；ポリエーテルブロックアミド、たとえばペンシルバニア州フィラデルフィア (Philadelphia, Pennsylvania) のエルフ・アトケム (Elf Atochem) からペバックス (PEBAX) (商標) として入手可能なもの；エチレンコポリマー、たとえばエチレン酢酸ビニル、エチレン/プロピレンコポリマーエラストマーまたはエチレン/プロピレン/ジエンターポリマーエラストマー、およびメタロセンポリオレフィンたとえばポリエチレン、ポリ(1-ヘキセン)、エチレンと1-ヘキセンのコポリマーおよびポリ(1-オクテン)；熱可塑性エラストマー性ポリウレタン、たとえばイリノイ州シカゴ (Chicago, Illinois) のモートン・インターナショナル・インコーポレーテッド (Morton International, Inc.) から商品名モルセン (MORTHANE) (商標) PE44-203ポリウレタンとして入手可能なもの、およびオハイオ州クリーブランド (Cleveland, Ohio) のB.F.グッドリッチ・カンパニー (B.F. Goodrich Company) から商品名エステン (ESTANE) (商標) 58237ポリウレタンとして入手可能なもの；ポリビニルエーテル；ポリ- -オレフィン系の熱可塑性エラストマー材料、たとえば、式-( $\text{CH}_2\text{CHR}$ )<sub>x</sub> (ここでRは炭素原子2~10個を含むアルキル基)で表されるもの、メタロセン触媒を用いたポリ- -オレフィンで、たとえば、ミシガン州ミッドランド (Midland, Michigan) のダウ・プラスチック 50

・カンパニー (Dow Plastics Co.) からエンゲージ (ENGAGE) (商標) 8200、エチレン/ポリ- - オレフィンコポリマーとして入手可能なもの、などが挙げられる。

【0033】

本明細書で使用する場合、エラストマーは、熱可塑性エラストマー材料とは区別されていて、それらエラストマーは、化学反応または照射によって架橋する必要があり、それによって架橋ネットワークが形成され、モジュラス、引張強さおよび弾性回復がもたらされる。本発明において有用なエラストマーとしては、たとえば、天然ゴムたとえばCV-60 (調節した粘度を有するグレードのゴム)、およびSMR-5 (リブドスモークドシートゴム); ブチルゴム、たとえばテキサス州ヒューストン (Houston, Texas) のエクソン・ケミカル・カンパニー (Exxon Chemical Co.) から入手可能なエクソン (EXXON) (商標) ブチル (Butyl) 268; 合成ポリイソブレン、たとえばテキサス州ヒューストン (Houston, Texas) のシェル・オイル・カンパニー (Shell Oil Co.) から入手可能なカリフレックス (CARIFLEX) (商標)、および、オハイオ州アクロン (Akron, Ohio) のグッドイヤー・タイヤ・アンド・ラバー・カンパニー (Goodyear Tire and Rubber Co.) から入手可能なネイツイン (NATSYN) (商標) 2210; エチレン-プロピレン; ポリブタジエン; ポリブチレン; ポリイソブチレン、たとえば、エクソン・ケミカル・カンパニー (Exxon Chemical Co.) から入手可能なピスタネックス・MM (VISTANEX MM) L-80; および、スチレン-ブタジエンランダムコポリマーゴムで、たとえば、テキサス州ポートネエセス (Port Neches, Texas) のアメリカン・シンポール・カンパニー (American Synpol Co.) から入手可能なアメリカン・シンポール (AMERIPO L SYNPOL) (商標) 1011Aなどが挙げられる。

【0034】

本発明の不連続層に使用することができる、溶融加工可能なフォームは、国際公開第00/64657号および同第00/74916号に一般的に記載されている。

【0035】

フォームの1つのタイプは、溶融加工可能なポリマーフォームである。溶融加工可能なポリマーフォームは、ある種の上記のポリマー材料と発泡剤 (化学的または物理的) とを組み合わせて製造したものである。得られた混合物を、次いで、当業者公知の各種の方法を用いて発泡剤を活性化させ、それによってポリマー中に多数のセルを形成させる。得られるフォームをより安定にするために、さらに架橋を行わせてもよい。

【0036】

弾性のあるフォームマトリックスを希望する場合に特に有用なフォームについては、同時係属中の米国特許出願第09/325,963号に開示されている。

【0037】

高粘度液状物も、不連続層のための材料としては適している。連続層材料を通過して拡散することで本発明の物品から早々と逃げ出してしまうようなことさえ無ければ、どのような液状物であってもよい。そのようなものとしては、たとえば、各種のシリコンオイル、ミネラルオイル、および室温近辺または以下のところにシャープな溶融温度を示す、特殊化学品などがある。

【0038】

その他の添加剤としては、たとえば、粘度低下用ポリマーがあり、また可塑剤をエラストマーにブレンドして使用することもできる。それらの粘度低下用ポリマーの例を挙げれば、熱可塑性の合成樹脂たとえば、ポリスチレン、低分子量ポリエチレンおよびポリプロピレンポリマーおよびコポリマー、あるいは粘着性付与樹脂のたとえば、オハイオ州アクロン (Akron, Ohio) のグッドイヤー・タイヤ・アンド・ラバー・カンパニー (Goodyear Tire & Rubber Company) から入手可能なウィングタック (WINGTACK) (商標) 樹脂などがある。粘着付与剤の例としては、

脂肪族または芳香族液状粘着付与剤、脂肪族炭化水素樹脂、ポリテルペン樹脂粘着付与剤、および水素化粘着性付与樹脂などが挙げられる。染料、顔料、抗酸化剤、帯電防止剤、接着助剤、粘着防止剤、スリップ剤、耐熱安定剤、耐光安定剤、発泡剤、中空ガラス、崩壊用のデンブンおよび金属塩、またはマイクロ繊維などの添加剤をエラストマー相の中で使用することも可能である。好適な帯電防止剤としては、たとえば米国特許第4,386,125号(シラキ(Shiraki))に記載されているような、エトキシル化アミンまたは4級アミンなどがあるが、この特許にはさらに、好適な粘着防止剤、スリップ剤および潤滑剤なども記載されている。柔軟化剤、粘着付与剤または潤滑剤は、たとえば、米国特許第4,813,947号(コープマン(Korpmann))などに記載があり、クマロン-インデン樹脂、テルペン樹脂、炭化水素樹脂などが挙げられている。これらの薬剤は、粘度低下助剤としても機能することができる。通常よく使用される耐熱安定剤としては、有機ホスフェート、トリヒドロキシブチロフェノン、アルキルジチオカーボネートの亜鉛塩などを挙げるができる。

10

#### 【0039】

各種の添加剤を不連続層の中に加えて、仕上がりのウェブの性質を変更させることができる。たとえば、添加剤を配合して、不連続層の異なる相と、連続層との相互の間の接着性を改善することもできる。共押し出したウェブを、繊維質のウェブの上に積層することも可能である。そのような繊維質ウェブは、不織ウェブたとえば、圧縮(consolidated)またはボンデッドカードウェブ、メルトブローンウェブ、スパンボンドウェブなどであるのが好ましい。繊維質ウェブは、接着剤、加熱接着、押し出し、超音波溶着などの方法によって、共押し出しウェブに接着または積層させることができる。

20

#### 【0040】

用途によっては、短繊維またはマイクロ繊維を使用して、不連続層の異なる相を補強することも可能である。それらの繊維としては、ポリマー繊維、ミネラルウール、ガラス繊維、炭素繊維、シリケート繊維などを挙げるができる。さらに、ある種の粒子たとえば炭素や顔料を使用することもできる。中空ガラスや発泡剤を使用して、繊維の密度を下げ、価格の高い成分を減らしてコストを引き下げたり、具体的な物品の総質量を減らしたりすることができる。好適な中空ガラスについては、米国特許第4,767,726号(マーシャル(Marshall))および同第3,365,315号(ベック(Beck))らに記載がある。

30

#### 【0041】

溶融加工可能な材料の中に気泡を発生させるために使用される発泡剤は当業者には公知であり、例をあげればアゾジカルボンアミド、たとえばサフォーム・リック-50(SAFAM RIC-50)(商標)のような重炭酸ナトリウムベースの化学的発泡剤などがある。さらに、充填剤をある程度の量で使用してコストを削減することが可能である。充填剤は、粘着防止剤として機能させることも可能であるが、たとえば二酸化チタンや炭酸カルシウムなどが挙げられる。

#### 【0042】

不連続層の異なる相は、各種の断面形状を有していてもよい。たとえば、異なる相の断面形状が、円形、楕円形、あるいはスリット状であってもよい。異なる相の断面の形状は、その異なる相を形成させるために使用される材料の粘度によって決まってくる。たとえば、粘度がより高い材料を使用すると、異なる相はほとんど円形の断面形状を維持するのに対し、より粘度の低い材料を使用すると、より楕円に近い形状となる。さらに、異なる相の断面の形状は、多層フィルムを「引落す(drawn-down)」際の影響も受ける。「引落し」は、ポリマー溶融物(溶融材料)がダイから出てきて、冷却ロール(ロールスタックとも呼ばれる水冷ロールで、溶融しているウェブを成形・急冷して室温のウェブにするもの)によって引っ張られてより薄い材料となる場合に起きる。フィルムを「引落す」ことによって最終的な厚みとする。これは、形状を整える工程である。さらに、異なる相の断面の形状は、物品を製造する際に使用する装置のオリフィスの形状によっても影響を受ける。たとえば、オリフィスを円形、楕円形、スリット状などにすることができ

40

50

る。

【0043】

オリフィスの数または本発明の不連続層の異なる相の数は、不連続層1層あたり約2つのオリフィスまたは異なる相から、前記不連続層の幅2.54センチメートルあたり、約20のオリフィスまたは異なる相までの範囲とすることができる。

【0044】

それぞれの不連続層を形成させるためのダイの中のオリフィスの数には、実用面での限界が存在する。1つの限界は、ダイの加工の点にある。ダイを使用して本発明の物品を形成させるために、ダイの中では、ダイの穴またはオリフィスの間に、支持用の鉄またはその他の材料が必要である。オリフィスの数に限界がある別の要因は、あまりにも穴を多くすると、層が最終的には、不連続ではなく実質的に連続になってしまう点にある。層における異なる相が、分離された状態で維持されず、事実上合流してしまうのである。

【0045】

連続層

本発明の連続層に適した材料は、先に不連続層について述べてきたのと同じ材料でもよい。そのため、本発明のウェブまたは物品を形成することが可能な材料としては、きわめて多くの組合せが可能である。しかしながら、隣接した層は、類似のポリマー溶解粘度を有する材料を用いて形成させるのが好ましい。不連続層は、連続層のポリマー溶解粘度よりも、やや高めのポリマー溶解粘度を有する材料からできているのが最も好ましい。異なった層（不連続層および連続層）を構成する材料が、そのポリマー溶解粘度が互いの2倍または1/2の範囲内になるようにするのが、最も好ましい。

【0046】

1層または複数の連続層は、実質的にその厚みが均一であるのが好ましい。

【0047】

本発明のウェブの連続層は、実質的にそのy-z平面にはウェルドラインを有していない（図1に示した座標軸で、y-z平面を定義する）。

【0048】

応用例

本発明の物品は、多くの用途で使用するのに適している。

【0049】

本発明の1つの用途は、繊維（または異なる相）で強化したPSAである。これについては実施例1~4を参照されたい。繊維を含む異なる相の不連続層によって、PSAに顕著な架橋を与えない場合でも、PSAの剪断性能が向上する。連続層のための材料として特に好ましいものとしては、アクリル樹脂、ブロックコポリマー、天然および合成ゴム、およびポリオレフィン系のPSAがある。連続層で使用するために有用なその他の具体的なPSAは、米国特許第5,804,610号のパウチ重合法によって製造することができる。不連続層として好ましい材料としては、高モジュラスPSA、熱可塑性プラスチック（たとえばポリオレフィン、ポリアミド、ポリエステル、スチレン系ポリマー）、それらのホモポリマーおよびコポリマーなどが挙げられる。特に有用なポリオレフィンのコポリマーは、エチレン酢酸ビニル（EVA）である。

【0050】

第2の応用例は、繊維（または異なる相）で強化した低表面エネルギーPSAである。これについては、実施例5~7を参照されたい。低表面エネルギーPSAとは、低表面エネルギー材料、たとえば新規なクリティカルペイント（critical paint）表面へ接着するように設計されたものである。本発明の不連続層の異なる相は、（室温および高温における）剪断特性が向上し剥離強さが上昇した、より表面エネルギーの低いPSAを与える。

【0051】

本発明のまた別の用途は、繊維（または異なる相）で強化した感圧接着性（PSA）フォームである。これについては、実施例8~10を参照されたい。このフォーム材料には

10

20

30

40

50

、埋め込みになったポリマーの異なる相が含まれ、それによって、フォーム材料だけから作ったものよりも、引張強さの良好な物品が得られる。膨張性微少球 (expandable microspherule)、化学的発泡剤および/または物理的 (ガス状) 発泡剤などを使用して、ポリマー (単一または複数) の連続層を発泡させることができる。連続層のために使用可能な材料の例は、米国特許第 6, 103, 152 号 (ゲールセン (Gehlsen) ら) に見いだすことができる。特に好適な P S A を挙げると、アクリル樹脂、ブロックコポリマー、天然および合成ゴム、およびポリアルフアオレフィン系の P S A がある。その不連続層は、よりモジュラスの高い P S A、熱可塑性プラスチック、それらのホモポリマーおよびコポリマーなどから作ることができる。好ましい実施態様の 1 例は、連続層にアクリル P S A (米国特許第 5, 804, 610 号に従って製造)、不連続層を構成する異なる相にエチレン酢酸ビニル (E V A) を含み、膨張性微少球を用いた発泡方法を使用して製造した物品である。

10

#### 【0052】

用途の 1 つは、コンフォーマブルフィルムである。これについては、実施例 11 ~ 12 を参照されたい。コンフォーマブルフィルムは、たとえば、自動車を塗装する際に自動車の一部をマスキングするための、塗装用マスキングフィルムとして使用することができる。コンフォーマブルフィルムを使用するさらに別の例としては、たとえば自動車やトラックのような被着体に貼り付けるグラフィックフィルムがある。例に挙げたいずれの用途においても、コンフォーマブルフィルムは、良好な応力緩和性と低い歪み回復性を有していて、フィルムを被着体の不規則な表面に貼り付けることができ、その被着体表面から離層したり剥離したりしないのが望ましい。

20

#### 【0053】

コンフォーマブルフィルムにおいては、不連続層には、熱可塑性のホモポリマーまたはコポリマー、またはそれらの混合物もしくはブレンド物を含んでいてもよく、またこの不連続層を、これもまた熱可塑性のホモポリマーまたはコポリマー (およびそれらの混合物またはブレンド物) を含む連続層の間において、コンフォーマブルフィルムを形成させることができる。連続層のために特に好適な材料としては、ポリオレフィン同士のブレンド物または、ポリオレフィンと軟質エラストマーたとえば、エラストマー性ブロックコポリマー、天然および合成ゴムなどとの組合せなどがある。不連続層のための材料の例をいくつか挙げれば、モジュラスがより高い熱可塑性プラスチック、たとえばポリアミド、スチレン系ポリマー、環状ポリオレフィン、それらのホモポリマーおよびコポリマー、などがある。特に好ましい組合せの 1 つは、連続層としてのイソタクチックポリプロピレンと軟質エラストマー性ポリプロピレンのブレンド物と、不連続層としてのノルボルネン - エチレン環状ポリオレフィンコポリマーの組合せである。不連続層を構成する材料は、高いガラス転移温度 ( $T_g$ ) を有しているか、半晶質 ( $T_m$  を有する) であるのが好ましい。

30

#### 【0054】

本発明のコンフォーマブルフィルムは、なじみやすさ、高い応力緩和、低い歪み回復率の望ましい組合せを示すのが好ましい。さらに、これらのコンフォーマブルフィルムは、高温での収縮も低くなっている。異なる相が、コンフォーマブルフィルムにより優れた寸法安定性を与えている。

40

#### 【0055】

コンフォーマブルフィルムに使用可能な材料の例のいくつかは、米国特許出願公開第 01 - 0008687 - A1 号に一般的に記載されている。

#### 【0056】

強化多孔質フィルムは、本発明の物品のさらに別の実施態様の例である。これについては、実施例 14 を参照されたい。これらのフィルムにおいては、強度のある異なる相の材料または不連続層の材料を、より弱い連続層材料の中に組み込んで、得られるフィルムの流れ方向の強度を上げることが可能である。連続層を製造するために使用可能な材料の例は、米国特許第 4, 539, 256 号 (シップマン (Shipman))、米国特許第 4, 867, 881 号 (キンザー (Kinzer))、米国特許第 4, 726, 989 号 (ム

50

ロジンスキー ( M r o z i n s k i ) )、米国特許第 5, 7 2 6, 9 8 9 号および米国特許第 5, 1 2 0, 5 9 4 号 ( ムロジンスキー ( M r o z i n s k i ) ) などに開示されている。得られる物品の流れ方向の強度を上げる働きをする不連続層に好適な材料は、連続層を形成させるのに使用される材料よりは強度のあるものであれば、何でもよい。

【 0 0 5 7 】

あるいは、化粧フィルム ( d e c o r a t i v e f i l m ) の中の不連続層の異なる相を、化粧の目的で使用することもできる。これについては、実施例 1 3 を参照されたい。たとえば、異なる相にはダイや着色剤が含まれていてもよい。それらにはさらに、たとえば油分を吸収する多孔質物質が含まれていてもよい。強化された多孔質フィルムは、顔面の脂肪を除去するためのクロスとして使用することができる。たとえば人の皮膚の上の脂肪分に暴露させたり接触させたりすると、その異なる相が黒く変色するようにできる。この不連続層に使用することが可能な材料の例を挙げると、ポリエチレン、ポリプロピレン、ナイロンおよびポリエステルなどがあるが、これらに限定される訳ではない。連続層のために好適な材料の例を挙げると、ポリプロピレン / ミネラルオイルブレンド物やポリエチレン / ミネラルオイルブレンド物などがあるが、これらに限定される訳ではない。

10

【 0 0 5 8 】

より一般的には、本発明は、強化または強度増強用の異なる相を含む熱可塑性材料を提供することができる。そのようにして得られる物品の 1 例がごみ袋であって、それは、袋の内容物のために高い引張応力にさらされる。通常異なる相が、流れ方向の強度を与える。

20

【 0 0 5 9 】

製造方法

本発明の物品を製造するために使用される装置については、本出願譲受人の同時係属出願中で、並行して出願された米国特許出願第 1 0 / 0 2 8, 0 5 2 号に記載されている。

【 0 0 6 0 】

フィルムは、一体化した多層フィルム構造として、押出される。この方法で調製した共押しフィルムは、単一層フィルムと似た外見をしている。場合によっては、押し出し工程の後で、( 上記の装置を使用して ) いくつかの後工程を実施することも可能である。たとえば、ウェブを 1 軸または、順次または同時のいずれでもよいが 2 軸延伸することも可能であるし、また、( たとえば加熱、電磁線照射などによって ) 硬化させることも可能であるし、あるいは各種の粘着性低下剤を振りかけてもよい。

30

【 0 0 6 1 】

2 軸延伸や加熱硬化させることによって、改良された物理的性質をさらにそのフィルムに与えることも可能である。2 軸延伸では、互いに直角な 2 方向、通常はその流れ方向と横方向とにフィルムを延伸する。典型的な操作では、新しく押し出されてきた熔融フィルムを、冷却ロールの中に供給して、急冷した非晶質フィルムとし、これに短時間熱をかけて流れ方向に引張り、次いでテンターにかけて、そこで中程度の加熱をしながら、横方向に引張する。流れ方向の延伸は、2 組のニップロールの間を通過させることによって実施できるが、その場合第 2 組目では、第 1 組よりも回転速度を高くしておく。

【 0 0 6 2 】

延伸した共押しフィルムの加熱硬化または熱安定化は、延伸させた方向に拘束しながら、少し加熱してから冷却することによって実施される。

40

【 実施例 】

【 0 0 6 3 】

本発明を以下の実施例によってさらに詳しく説明するが、それらは、本発明の範囲を限定しようとするものではない。実施例においては、特に断らない限り、部、比率およびパーセントはすべて質量基準である。

【 0 0 6 4 】

以下の試験方法を使用して、実施例における感圧接着剤、フォーム、コンフォーマブルフィルム、および多孔質フィルムなど、本発明の各種の実施態様の特性を測定した。

50

## 【 0 0 6 5 】

## 試験方法

## 180度剥離接着試験

2枚のライナーの間の共押し感圧接着剤(PSA)試料から試料を、12.7センチメートル(cm)×2.54cmの大きさの条片に切り出した。片側のライナーを除去して、PSAの表面を露出させ、次いでそれを、アルミニウムコーティングしたポリエステルフィルム(厚み、25マイクロメートル(μm)、独国フライブルグ(Freiburg, Germany)のトリコン・フェレデルングス・GmbH(Tricon Veredelungs GmbH)からの、製品番号7KF002R0250.023.001)のアルミニウム側に積層させた。次いで、PSAの他の側のライナーを除去し、その表面を、あらかじめ清浄化しておいた12cm×5cmの試験表面パネルに粘着させた。この試験表面パネルは、(a)ステンレス鋼(SS)、(b)低表面エネルギー粉体クリアコート(PCC)または(c)注型ポリプロピレン(PP)のいずれかであり、それらについては表Aに記載する。

10

## 【 0 0 6 6 】

## 【表1】

表A

試験表面	メーカー
SS	独国デュッセルドルフ(Duesseldorf, Germany)のシューマッハー・シュタールバウ(Schumacher Stahlbau)
PCC	独国ブッペルタール(Wuppertal, Germany)のPPG・インダストリーズ・ラッケ・GmbH(PPG Industries Lacke GmbH)からの、エンビラクリル(Enviracryl) PCC10106
PP	米国ミネアポリス(Minneapolis, USA)のプレジジョン・パンチ・アンド・プラスチック(Precision Punch & Plastics)からのPPパネルズナチュラル(PP Panels natural)

20

30

## 【 0 0 6 7 】

SS試験表面とPP試験表面のいずれについても清浄化しておいたが、それには、a)メチルエチルケトン(MEK)で飽和させたティッシュで拭き、b)ジアセトンアルコールで飽和させたティッシュで拭き、そしてc)水とイソプロパノールが容積比で1:1の混合物で飽和させたティッシュで拭いた。PCC試験表面は、イソプロパノールに浸漬させたティッシュで1回拭き、次いで、イソプロパノール/水の50:50混合物で2回拭いて清浄化した。試料フィルムは、試験表面パネルの上に、2.05キログラム(kg)の加重で硬質ゴムロールを2パスさせることで、ロール押しつけをした。(試料を貼り付けた)この試験表面パネルを次いで、室温(約21)で約24時間コンディショニングさせた。コンディショニングさせた試料/パネルの組合せを、剥離試験機に取り付けて、同一の試料を試験パネルから180度の角度、速度30cm/分で剥離させた。その結果は、表のなかでは、ニュートン/デシメートル(N/dm)の単位で示した。その数値は、3回の試験の平均値である。特に記さない限り、破壊モードは接着層破壊であった。

40

## 【 0 0 6 8 】

室温および高温における剪断強さ試験

50

静的剪断力は、P S A 複合材料の試料の1つの表面からライナーを除去し、その露出した表面を、厚み0.025ミリメートル(mm)のアルミニウムコーティングしたポリエステルフィルム片(厚み25 $\mu$ m、製品番号7KF002R0250.023.001)で12.7cm $\times$ 1.27cmの大きさに切断したものに、積層することによって、測定した。その試料の一端を、2.54cmのオーバーラップを持たせて、あらかじめ清浄化させておいた、S S パネルまたはP C C パネルにいずれかからなるパネルに粘着させた。得られるオーバーラップの面積は、1.27cm $\times$ 2.54cmとなった。

#### 【0069】

室温試験：試料を相対湿度(RH)50%、23 $^{\circ}$ Cで20分間コンディショニングさせてから、250グラム(g)の重りを試料の接着させていない方の末端に取り付けた。次いでパネルを鉛直から約2度傾けて吊り下げて、剪断モードでの破壊が起きるようにした。試料がパネルから剥がれるまでの時間を分の単位で測定した。この試験は、10,000分で終了させた。報告されている数値は、3回の試験の平均値を表している。

10

#### 【0070】

高温試験：試料を強制空気循環炉中で、70 $^{\circ}$ Cで20分間コンディショニングさせてから、その炉の中で、重りを取り付けて、約2度の傾きで吊り下げた。この場合には、得られるオーバーラップの面積は2.54cm $\times$ 2.54cmとなった。さらに、吊り下げる重りを(1)1000グラム(g)として、試験を10,000分で止めるか、または(2)2000gとして、試験を20,000分で止めるかのいずれかとした。

#### 【0071】

密度

フォームの密度は、不規則的または規則的な形状をしている固形対象物の容積を測定するための、ガス置換装置(アキュピク・1330・ガス・ピクノメーター(AccuPyc 1330 Gas Pycnometer))、独国メンヘングラードバッハ(Moenchengladbach, Germany)のマイクロメリティクス(Micromeritics)から入手可能)を使用して測定した。この装置は、実際のセル室容積を測定するために、較正を行った。およそ幅40mm、長さ140mmの試料を、秤量してから、巻いてセル室の中に入れた。セル室を窒素で10回追い出して、窒素以外のガスをすべて置換した。試料について10回測定したが、ソフトウェアが自動的にそれぞれの試験サイクルでの試料の密度を計算した。試験はすべて、一定の温度21.8 $^{\circ}$ Cで実施した。

20

30

#### 【0072】

引張試験

引張試験を用いて、コンフォーマブルフィルム試料についての応力-歪みデータを得た。間隔を正確に定めた1組のカミソリの刃を有する特殊なカッターを用いて、幅1.27cm(0.5インチ)のフィルム試料を切り出した。試料は、インストロン(INSTRON)(商標)引張試験機(モデル1122)(マサチューセッツ州カントン(Canton, MA)のインストロン・コーポレーション(Instron Corporation)から商品として入手可能)を使用して、25 $^{\circ}$ Cで試験した。それぞれの試料の厚みを測定し、インストロン(INSTRON)(商標)引張試験機に入力すると、引張試験の結果が、試料の断面積を基準にして表示することができる。すべての試料について、試験機のグリップの間の最初の距離を5.1cm(2インチ)とし、グリップの移動速度30.5cm/分(12インチ/分)で試験した。試料は、その流れ方向(DD)の向きで試験した。弾性モジュラス、得られた最大応力、および破断時伸びの数値を報告した。

40

#### 【0073】

応力緩和試験

フィルムが時間とともに緩和する、あるいは応力を失う傾向について調べるために、応力緩和試験を行った。この試験はインストロン(INSTRON)(商標)引張試験機(モデル1122)を用いて実施し、2つのグリップの間の最初の距離を5.1cm(2インチ)とし、グリップの移動速度を1.27メートル(m)/分(50インチ/分)一定

50

にして試験した。グリップのそれぞれに、それぞれのフィルムの端部を取り付けた。フィルムに歪みをかけて、(以下に説明するように)最初の長さの57%の伸びになるようにした。伸びが57%となる点に達したら、インストロン(INSTRON)(商標)のグリップの動きを止めて、歪み速度ゼロとし、その応力を3分間測定した。

#### 【0074】

所定の伸びを57%とした理由は、平坦なポリマーフィルムが、半球状の突起に沿うようにするのに必要な計算上の伸びが57%に相当するからである。半球状の突起によって、なじみやすさの極端なケースを代表させている。残存応力率は、3分における応力を57%伸びにおける最大応力で割り算して、100倍したものである。

#### 【0075】

##### ネッキング試験

それぞれの試料におけるネッキングの大きさは、その試料の応力・歪み曲線を精査することによって求めた。この曲線は、30.5cm/分(12インチ/分)で操作したインストロン(INSTRON)(商標)機械的試験法により、標準の引張/伸び試験法で得られたものである。試料は、幅1.27cm(0.5インチ)、ゲージ長さ5.1cm(2インチ)のものであった。試料の厚みは、加工条件によって変化するので、オハイオ州ペーンズビル(Painesville, Ohio)のオノ・ソッキ(Ono Sokki)から入手可能なオノ・ソッキ・リニア・シックネス・ゲージ(Ono Sokki Linear Thickness Gage)を使用して測定した。ネッキングパーセントを求めるには、最大応力の点における応力値(S1)と、それに続く最小応力の点における応力値(S2)とに注目する。ネッキングを、 $100 \times (S1 - S2) / S1$ と定義し、パーセント・ネッキングとして報告する。

#### 【0076】

##### 収縮

プラスチックフィルムの無拘束での線熱収縮を、ASTM D1204に従って測定した。幅約25.4mm、長さ約101.6mmのフィルム試料をダイを用いて切り出した。その長さ方向を、フィルムを製造した時の方向、すなわち流れ方向(DD)と平行な方向にした。長さ方向に約75mm離して、ノッチを入れて参照点とした。それぞれのフィルム試料を無拘束の状態、予め149にセットしてある炉の中に10分間置いた。取り出してから、フィルムの収縮をDD方向で測定した。DD収縮%は、ノッチ間での距離の変化をノッチ間の最初の距離で割り算して100倍したものである。大きい方の数値を報告した。

#### 【0077】

##### 多孔質フィルムの引張試験

引張試験を用いて、多孔質フィルムについての応力-歪みデータを得た。間隔を正確に定めた1組のカミソリの刃を有する特殊なカッターを用いて、幅2.54cmの多孔質フィルム試料を切り出した。ミネソタ州イーデン・プレーリー(Eden Prairie, Minnesota)のMTS・システムズ・コーポレーション(MTS Systems Corp.)から入手可能な、シンテック(SINTECH)(商標)モデル20を使用して、試料を試験した。その生データを、MTS・システムズ・コーポレーション(MTS Systems Corp.)からのテストワークス・フォア・ウィンドウズ(TESTWORKS FOR WINDOWS)(商標)バージョン3.06ソフトウェアパッケージを使用して解析した。それぞれの試料の厚みを測定して、テストワークス・フォア・ウィンドウズ(TESTWORKS FOR WINDOWS)(商標)プログラムに入力すれば、引張の結果を、試料の断面積基準で表示することが可能となる。これらの試験では、22.7kg(50ポンド)のロードセルを使用した。すべての試料について、クロスヘッド速度12.7cm/分(5インチ/分)で試験した。試料は、流れ方向(DD)、および横方向(CD)の両方で試験した。

#### 【0078】

##### ガーレー(Gurley)空気流通試験

10

20

30

40

50

この数値は、50立方センチメートル(cc)の空気がフィルムを通過するのに必要な時間を秒の単位で測定したもので、ASTM D-726の方法Bに従ったものである。試験開始から100秒の間に空気の流通が観察されなかった場合には、10,000秒/50ccよりも大きいという数値を与えた。

【0079】

【表2】

#### 使用した材料

材料	内容
PSA A	実質的に米国特許第5,804,610号の教示に従って製造したもので、用いた材料は、(1)アクリレートモノマーのアクリル酸イソオクチル(10A)、モノマー成分の98質量パーセント(2)極性モノマーのアクリル酸(AA)、モノマー成分の2質量パーセント、(3)光開始剤、イルガキュア(IRGACURE)(商標)651(2,2-ジメトキシ-2-フェニルアセトフェノン、スイス国バーゼル(Basel, Switzerland)のチバ・スペシャルティ・ケミカルズ(Ciba Specialty Chemicals)から入手可能)、モノマー成分100部に対して0.15質量パーセントの量で使用、および(4)連鎖移動剤、イソオクチルチオグリコレート(IOTG、仏国ムーレンクス(Mourenx, France)のアトフィナ・ファイン・ケミカルズ(Atofina Fine Chemicals)から入手可能)、モノマー成分100部に対して0.02質量パーセントの量で使用。材料20gを入れるパウチはその重さが0.8gであって、これは、ウィスコンシン州チペワフォールズ(Chippewa Falls, Wisconsin)のハンツマン・パッケージング・コーポレーション(Huntsman Packaging Corp.)、パフォーマンス・フィルムズ・ディビジョン(Performance Films Division)からVA-24として入手可能な、25 $\mu$ mの厚みのエチレン酢酸ビニル(EVA)から作ったものである。中圧水銀ランプからの17.125W/cm <sup>2</sup> の紫外線(UV)照射に暴露させて、重合させた。
PSA B	PSA Aと同様にして製造したが、ただし、10A/AAの比が94/6で、IOTGを、モノマー成分100部に対して0.02質量パーセントの量で存在させた。
PSA C	PSA Aと同様にして製造したが、ただし、モノマー成分は、アクリル酸2-エチルヘキシル(2-EHA)、アクリル酸ブチル(BA)、ベオバ(VEOVA)(商標)9(炭素原子数11を含む高度に分岐した3級構造を有する合成飽和モノカルボン酸であるバーサティック(VERSATIC)(商標)9のビニルエステル、ベオバ(VEOVA)(商標)9のホモポリマーのT <sub>g</sub> は70°C、オランダ国アン・フーグブリート・Rt(AN Hoogvliet Rt, The Netherlands)のレゾリューション・パフォーマンス・プロダクツ(Resolution Performance Products)から入手可能)およびAAで、それらの比率は質量部で45/30/25/5であった。このPSAは、すでに出願済みの、欧州特許出願番号第01204789.0号に従って製造した。さらに、光開始剤としてイルガキュア(IRGACURE)(商標)184(1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、チバ・スペシャルティ・ケミカルズ(Ciba Specialty Chemicals)から入手可能)をモノマー成分100部に対して0.2質量パーセントの量で存在させたが、IOTGは存在させなかった。
シェルフレックス(SHELLFLEX)(商標)371	10%の芳香族を含むナフテン系オイルで、テキサス州ヒューストン(Houston, Texas)のシェル・ケミカル・カンパニー(Shell Chemical Co.)から入手可能。
エルバックス(ELVAX)(商標)260	エチレン酢酸ビニルコポリマー(EVA)で、デラウェア州ウィルミントン(Wilmington, Delaware)のデュポン・パッケージング・アンド・インダストリアル・ポリマーズ(Dupont Packaging and Industrial Polymers)から入手可能、メルトフローインデックス6dg/分(ASTM D1238)、酢酸ビニル含量=28質量%。

10

20

30

40

【表 3】

エルバックス (ELVAX) (商標) 350	エチレン酢酸ビニルコポリマー (EVA) で、デラウェア州ウィルミントン (Wilmington, Delaware) のデュポン・パッケージング・アンド・インダストリアル・ポリマーズ (Dupont Packaging and Industrial Polymers) から入手可能、メルトフローインデックス=19dg/分 (ASTM D1238)、酢酸ビニル含量=28質量%。
相溶化剤 A	0.9質量%アミノ化したアミノ化ポリエチレンで、無水マレイン酸官能化ポリエチレン (フサボンド (FUSABOND) (商標) MB-226D、デュポン・パッケージング・アンド・インダストリアル・ポリマーズ (Dupont Packaging and Industrial Polymers) から入手可能) と、3-ジメチルアミノプロピルアミン (ウィスコンシン州ミルウォーキー (Milwaukee, Wisconsin) のアルドリッチ・ケミカル・カンパニー (Aldrich Chemical Co.) から入手可能) とを350°Cで10分間、2軸スクリュウ押出機中で溶解混合して製造した。
EMS発泡剤	マイクロパール (Micropearl) F-100D加熱発泡性マイクロカプセルで、アクリロニトリルとアクリル系モノマーとからのコポリマー、独国ハンブルグ (Hamburg, Germany) のレーマン・アンド・ボス・カンパニー (Lehmann & Voss Co.) 製。
レックスフレックス (REXFLEX) (商標) W101	著しくアタクチックなポリプロピレン、ニュージャージー州ウッドベリー (Woodbury, New Jersey) のハンツマン・ポリプロピレン・コーポレーション (Huntsman Polypropylene Corp.) から入手可能。
フィナ (FINA) (商標) 3374	イソタクチックポリプロピレン、テキサス州ダラス (Dallas, Texas) のフィナ・オイル・アンド・ケム (Fina Oil & Chem) から入手可能。
トパス (TOPAS) (商標) 6017	環状ポリオレフィン、ノルボルネンとエチレンからのコポリマー、Tg=180°C (356°F)、独国フランクフルト (Frankfurt, Germany) のチコナ・GmbH (Ticona GmbH) から入手可能。
DS-5D45	ポリプロピレンホモポリマー、ニュージャージー州サマセット (Somerset, New Jersey) のユニオン・カーバイド (Union Carbide) から入手可能。
PP1024	ポリプロピレンホモポリマー、テキサス州ヒューストン (Houston, Texas) のエクソン・モービル・ケミカル (Exxon Mobil Chemical) から入手可能。
レマフィン (REMAFIN) (商標) ブルー-AP Y5014A	青色濃縮物、ノースカロライナ州シャーロット (Charlotte, North Carolina) のクラリアント (Clariant) から入手可能。
スーパーラ (SUPERLA) (商標) 白色ミネラルオイル#31	白色ミネラルオイル、カリフォルニア州サンフランシスコ (San Francisco, California) のシェブロン・テキサコ・コーポレーション (Chevron Texaco Corporation) から入手可能。
ミラッド (MILLAD) (商標) 3905	成核添加物、ジベンジリデンソルビタール、サウスカロライナ州スパータンバーグ (Spartanburg, South Carolina) のミリケン・ケミカル (Milliken Chemical) から入手可能。
ミラッド (MILLAD) (商標) 3988	成核添加物、3, 4-ジメチルベンジリデンソルビタール、ミリケン・ケミカル (Milliken Chemical) から入手可能。
エンゲージ (ENGAGE) (商標) 8200	エチレン/ポリ- $\alpha$ -オレフィンコポリマー、デラウェア州ウィルミントン (Wilmington, Delaware) のデュポン・ダウ・エラストマー (Dupont-Dow Elastomer) から入手可能。

10

20

30

40

## 【0080】

実施例 1 ~ 4 および比較例 1 ~ 2

これらは、各種の P S A の性質に及ぼす、複数の異なる相を有する多層の効果について説明するものである。

## 【0081】

50

実施例 1 においては、PSA A を、単軸スクリュウ押出機（4つのゾーンを有する 50 mm ボンノット（BONNOT）（商標）2WPKR、オハイオ州ユニオンタウン（Uniontown, Ohio）のボンノット・マニファクチャリング（Bonnot Manufacturing）から入手可能）でそのゾーン温度を 165 から 177 へと増加させながら操作して、同方向回転 2 軸押出機（25 mm ウェルナー・アンド・プライデラー（Werner and Pfleiderer）モデル ZSK-25、10 バレル、長さ：直径比（L/D）= 40 : 1、ニュージャージー州ラムゼー（Ramsey, New Jersey）のウェルナー・アンド・プライデラー（Werner and Pfleiderer）から入手可能）の中に供給し、次いで、9 層ダイ（同時係属出願中で、並行して出願された米国特許出願第 10/028,052 号に記載）の 5 つの連続第 1 チャンバーの中に供給した。熱可塑性プラスチックのエンゲージ（ENGAGE）（商標）8200 と青色顔料のレマフィン（REMAFIN）（商標）ブルー APY 5014A とを 97/3 の質量比でブレンドしたプレミックスを、単軸スクリュウ押出機（キリオン（KILLION）（商標）モデル KLB-075、19 mm、4 ゾーン、L/D = 32 : 1、ニュージャージー州シーダー・グローブ（Cedar Grove, New Jersey）のキリオン・エクストルーダー・インコーポレーテッド（Killion Extruder Inc.）から入手可能）で、そのゾーン温度を 182 から 243 へと増加させながら操作して、ダイの 4 つの不連続第 2 チャンバーの中に供給した。それぞれの第 2 チャンバーは、直径が約 76  $\mu\text{m}$ （30 ミル）の円形開口部で、中心 - 中心間の距離が約 3.8 mm（150 ミル）の列を有していた。この穴の列は、互い違いになっていて、1 列と 3 列は 67 穴、2 列と 4 列は 66 穴であった。連続流と不連続流は、ダイの中で合流され、幅 25 cm（10 インチ）のオリフィスの出口を通過して、4 つの不連続層と 5 つの連続層を含む PSA 複合材料が形成された。この複合材料を、シリコンコート紙剥離ライナーのシリコン側の上に落下流延させ、別のライナーのシリコン表面で挟んで、冷却ロールの上に通した。ダイと冷却ロールの温度はそれぞれ、204 と 10 に設定し、ラインスピードは約 21 メートル/分（m/分）であった。この PSA 複合材料は、全体の厚みを測定すると 60  $\mu\text{m}$  で、計算上の連続層材料と不連続層材料の重量比は 90.5 : 9.5 であった。

#### 【0082】

実施例 2 は実施例 1 と同様にして実施したが、ただし、第 2 チャンバーにおける材料の組成を変更した。第 2 チャンバーの材料は、相溶化剤 A とエンゲージ（ENGAGE）（商標）8200 の 50 : 50 質量パーセント予備混合物に、青色顔料を添加したもので、エンゲージ 8200 / 相溶化剤 A / 青色顔料の質量比が 48.5 / 48.5 / 5.3 のものである。この PSA 複合材料は、全体の厚みを測定すると 60  $\mu\text{m}$  で、計算上の連続層材料と不連続層材料の質量比は 90.5 : 9.5 であった。

#### 【0083】

実施例 3 は実施例 2 と同様にして実施したが、ただし、第 2 チャンバー材料の含量を合計で 50% 減少させた。この PSA 複合材料は、全体の厚みを測定すると 60  $\mu\text{m}$  で、計算上の連続層材料と不連続層材料の質量比は 95 : 5 であった。

#### 【0084】

実施例 4 は実施例 3 と同様にして実施したが、ただし PSA A に代えて、PSA B を用いた。

#### 【0085】

比較例 1 および 2 は、実施例 1 および 4 と実施的に同様に実施したが、ただし、第 2 チャンバー材料を使用しなかった。

#### 【0086】

すべての実施例において、20 分のコンディショニングの後で SS に対する剥離強さを測定し、24 時間のコンディショニングの後で SS に対する室温剪断保持力、PCC に対する剥離強さを測定した。結果を表 1 に示す。

#### 【0087】

10

20

30

40

50

【表 4】

表 1

実施例	連続層	不連続層	質量比	厚み ( $\mu\text{m}$ )	剥離 (対SS) (N/dm)	室温剪 断 (対SS) (分)	剥離 (対PCC) (N/dm)	剥離 (対PCC) (N/dm)
1	PSA A	エンゲージ (ENGAGE™) 8200	90.5/9.5	60	50	6013	---	---
2	PSA A	エンゲージ (ENGAGE™) 8200/相溶 化剤	90.5/9.5	60	53	5223	72	85
3	PSA A	エンゲージ (ENGAGE™) 8200/相溶 化剤	95/5	60	69	10,000 +	63	60 <sup>1</sup>
CE1	PSA A	なし	100/0	60	48	72	47	43
4	PSA B	エンゲージ (ENGAGE™) 8200/相溶 化剤	95/5	60	66	10,000 +	---	---
CE2	PSA B	なし	100/0	60	56	147	---	---

<sup>1</sup>凝集フィルム

## 【0088】

表からも明らかなように、本発明の試料の室温での剪断時間はポリマーの不連続領域の多層を含まない試料に比較すれば長くなっており、またSSとPCCのいずれに対しても剥離強さが大きくなっている。

## 【0089】

実施例1～3および比較例1および2は、電子線照射によりさらに架橋させた。独国チュービンゲン(Tuebingen, Germany)のポリマー・フィジーク(Polymer Physik)から入手可能で、175kVで使用されるEBV(商標)2502-0300の電子照射源を使用して、試料に60kGy(6Mrads)の暴露をさせた。これらの実施例では、次いでPCCに対する剥離強さおよびPCCに対する室温剪断保持力の試験を行った。結果を表2に示す。

## 【0090】

10

20

30

40

【表 5】

表2

実施例	連続層	不連続層	質量比	厚み ( $\mu\text{m}$ )	剥離 (対PCC) (N/dm)	室温剪断 (対PCC) (分)
1	PSA A	エンゲージ (ENGAGE™) 8200	90.5/9.5	60	---	10,000+
2	PSA A	エンゲージ (ENGAGE™) 8200 ／相溶化剤	90.5/9.5	60	43	10,000+
3	PSA A	エンゲージ (ENGAGE™) 8200 ／相溶化剤	95/5	60	50	10,000+
CE1	PSA A	なし	100/0	60	18	6736

10

20

## 【0091】

表からも明らかなように、本発明の試料の室温での剪断時間はポリマーの不連続領域の多層を含まない試料に比較すれば長くなっており、また粉体クリアコートに対する剥離強さも、多層不連続領域を有さない試料ほど大きくは低下していない。

## 【0092】

実施例 5 ~ 7、比較例 3

実施例 5 ~ 7 は、多層不連続層と組合せて低表面エネルギー感圧接着剤を使用した場合の効果を説明するものである。

## 【0093】

実施例 5 は、実施例 1 と同様にして実施したが、ただし、いくつかの材料と加工条件を変更した。連続層材料を PSA C とし、不連続層材料はエルバックス (ELVAX) (商標) 260 とした。PSA C は 166 に加熱し、エルバックス (ELVAX) (商標) 260 は 193 に加熱した。ダイと冷却ロールの温度はそれぞれ、204 および 70 に設定し、ラインスピードは約 20 メートル / 分 (m / 分) であった。この PSA 複合材料は、全体の厚みを測定すると 50  $\mu\text{m}$  で、計算上の連続層の PSA C と不連続層のエルバックス (ELVAX) (商標) 260 の質量比は 97.5 : 2.5 であった。試料を、195 キロボルト (kV)、60 キログレイ (kGy) (6 メガラド (Mrad)) に設定した条件下で、電子ビーム照射を行って、架橋させた。

30

40

## 【0094】

実施例 6 および 7 は、実施例 5 と同様にして実施したが、ただし、PSA C とエルバックス (ELVAX) (商標) 260 の質量比をそれぞれ、95.0 : 5.0 および 89.9 : 10.1 とした。

## 【0095】

比較例 3 は実施例 5 と実質的に同じであるが、ただし、ダイの第 2 のチャンバーのセットには材料を何も押出さなかった。

50

## 【0096】

これらの実施例については、20分のコンディショニングの後でPCCに対する剥離強さを、20分のコンディショニングの後でポリプロピレン（PP）に対する剥離接着を測定し、そしてPCCに対する高温剪断保持力を1000g（PCC-1）および2000g（PCC-2）の荷重で測定した。結果を表3に示す。

## 【0097】

## 【表6】

表3

実施例	連続層	不連続層	質量比	厚み ( $\mu\text{m}$ )	剥離 (対 PCC) (N/dm)	剥離 (対PP) (N/dm)	高温剪 断(対 PCC-1) (分)	高温剪 断(対 PCC-2) (分)
5	PSA C	エルバックス (ELVAX™)	97.5/2.5	50	46	35	10,000+	20,000+
6	PSA C	エルバックス (ELVAX™)	95.0/5.0	50	46	34	10,000+	20,000+
7	PSA C	エルバックス (ELVAX™)	89.1/10.1	50	46	32	10,000+	20,000+
CE 3	PSA C	なし	100/0	50	46	30 <sup>1</sup>	10,000+	< 100

<sup>1</sup>剥離試験の間、テープは繰り返し粘着・剥離を示した。

## 【0098】

表からも明らかのように、本発明の構成では、不連続層を有する類似の構成の場合よりも、高温剪断保持力が高くなっている。

## 【0099】

実施例8～10および比較例4

実施例8～10は、多層不連続層と組み合わせた発泡感圧接着剤の効果を説明するものである。

## 【0100】

実施例8は、実施例1と同様にして実施したが、ただし、いくつかの材料と加工条件を変更した。連続層に使用した材料はPSA Cおよび発泡剤のEMS発泡剤であり、不連続層のための材料はエルバックス（ELVAX）（商標）350であった。発泡剤を、100質量パーセントPSA Cあたり2.5質量パーセントの量で、2軸スクリュウ押出機の第8パレルポートの中に添加した。このPSA Cと発泡剤の混合物は104に加熱し、エルバックス（ELVAX）（商標）350は193に加熱した。ダイと冷却ロールの温度をそれぞれ177と38に設定し、ラインスピードを約1.5m/分とした。このPSA複合材料は、全体の厚みを測定すると900 $\mu\text{m}$ 、密度が0.57g/ccであり、計算上の連続層のPSA Cと不連続層のエルバックス（ELVAX）（商標）350の質量比は97.5:2.5であった。試料を、250kV、60kGy（6メガラド（Mrad））に設定した条件下で、電子ビーム照射を行って、架橋させた。

## 【0101】

実施例9および10は、実施例8と同様にして実施したが、ただし、連続層材料と不連

続層材料の質量比をそれぞれ、95 : 5 および 90 : 10 とし、そのフォーム密度は、表 4 に示したものであった。

【0102】

比較例 4 は実施例 7 と実質的に同じであるが、ただし、ダイの第 2 のチャンパートには材料を何も押出さなかった。

【0103】

すべての実施例について、厚み、密度および引張性質、すなわち弾性モジュラス、最大力および伸びについて試験した。結果を表 4 に示す。

【0104】

【表 7】

10

表 4

実施例	連続層	不連続層	質量比	厚み ( $\mu\text{m}$ )	密度 ( $\text{g/cc}$ )	弾性モジュラス (MPa)	最大力 (MPa)	伸び (%)
8	PSA C	エルバックス (ELVAX™)	97.5/2.5	887	0.57	2.36	0.90	> 1400
9	PSA C	エルバックス (ELVAX™)	95/5	540	0.94	1.98	1.28	710
10	PSA C	エルバックス (ELVAX™)	90/10	985	0.59	3.70	1.00	540
CE4	PSA C	なし	100/0	908	0.56	1.18	0.21	> 1400

20

30

【0105】

上記の表にみられるように、本発明のフォームは、繊維質層を有さないフォームと比較して密度と伸びは同等であるが、強度が高い。また、本発明のフォームは、伸びを変えて製造することも可能である。

【0106】

実施例 11 ~ 12 および比較例 5

実施例 11 - 12 は、複数の不連続ポリマー領域を有するコンフォーマブルポリプロピレンフィルムの効果を説明するものである。

【0107】

実施例 11 は、実施例 1 と同様にして実施したが、ただし、いくつかの材料と加工条件を変更した。連続層材料は、60 質量%のレキセン (REXENE) (商標) W101 と 40 質量%のフィナ (FINA) (商標) 3374 との予備混合ブレンド物であり、不連続層材料は、90 質量%のトパス (TOPAS) (商標) 6017 と 10 質量%のフィナ (FINA) (商標) 3374 との予備混合ブレンド物であった。連続層材料を 232 に加熱し、不連続層材料を 299 に加熱した。ダイと冷却ロールの温度をそれぞれ 266 と 10 に設定し、ラインスピードを約 20 m/分とした。このフィルム複合材料は、全体の厚みを測定すると 75  $\mu\text{m}$  で、計算上の連続層ポリマーと不連続層ポリマー材料の質量比は 95.0 : 5.0 であった。この試料は、試験に先立って、149 で 10 分間アニールした。

40

【0108】

50

実施例 12 は、実施例 11 と同様にして実施したが、ただし、計算上の連続層ポリマーと不連続層ポリマー材料の質量比を 90.0 : 10.0 とした。

【0109】

比較例 5 は実施例 11 と実質的に同じであるが、ただし、不連続層材料を存在させなかった。

【0110】

試料について、モジュラスおよび破断時伸びの引張性質、応力緩和、ネッキングおよび収縮を試験した。結果を表 5 に示す。

【0111】

【表 8】

10

表 5

実施例	連続層	不連続層	質量比	モジュラス MPa(kpsi)	伸び (%)	相対応力 (%)	ネッキング (%)	収縮 (%)
11	レキセン (REXENE™) /フィナ (FINA™)	トパス (TOPAS™)/ フィナ (FINA™)	95/5	257(37.3)	333	49.3	0	0
12	レキセン (REXENE™) /フィナ (FINA™)	トパス (TOPAS™)/ フィナ (FINA™)	90/10	255(37)	10	50.8	0	0
CE5	レキセン (REXENE™) /フィナ (FINA™)	なし	100/0	177(25.6)	596	51.1	0	28

20

30

【0112】

上記の表にみられるように、少量の不連続層材料によって、なじみやすさを維持しながら寸法安定性が向上している。

【0113】

実施例 13

この実施例では、化粧膜について説明する。

【0114】

ポリマーの DS-5D45、および成核剤のミラッド(MILLAD)(商標)3905 からなる連続層材料を、質量部でそれぞれ 54.8 および 0.2 の割合で供給した。この連続層材料を同方向回転 2 軸押出機(40mmベルストーフ(Berstorf)モデル ZE40、8 パレル、それぞれ L/D = 5 : 1、ケンタッキー州フローレンス(Florence, Kentucky)のベルストーフ・コーポレーション(Berstorf Corporation)から入手可能)の供給口にフィードした。次いで、希釈剤のスーパーラ(SUPERLA)(商標)白色ミネラルオイル #31(オイル)の 45 質量部を押出機のパレル 3 に添加して、第 1 の熔融液を形成させた。この第 1 の熔融液を次いで、実施例 1 のマルチ-マニホールダイの第 1 チャンバーに送り込んで、ポリマーの連続層を形成させた。質量部でそれぞれ 60 対 5 の DS-5D45 とレマフィン(REMAFIN)(商標)ブルー APY5014A の混合物を、第 2 の押出機の供給口にフィードした。この第 2 の押出機は、同方向回転 2 軸押出機(25mmベルストーフ(Ber

40

50

storf)モデルZE25、6バレル、それぞれのL/D=5:1、ケンタッキー州フローレンス(Florence, Kentucky)のベルストーフ・コーポレーション(Berstorf Corporation)から入手可能)であった。さらなる希釈剤のオイルを35質量部、第2の押出機のバレル2にフィードして、第2の熔融液を形成させた。この第2の熔融液は次いで、ダイの第2チャンバーに入って、不連続ポリマー領域の層を形成した。この連続層および不連続層は、ダイの中で合流し、多層複合材料の流れが幅25cm(10インチ)のオリフィスの出口を通過してから、冷却ロールの上に落下流延され、不連続層材料の多層を含む複合材料を形成させた。ダイと冷却ロールの温度をそれぞれ215と65に設定し、ラインスピードを約10m/分とした。この複合材料フィルムの全体の厚みを測定すると190 $\mu$ mであった。次いでこの複合材料フィルムを長さ方向延伸機に導入した後で、横方向延伸機に導入し、流れ方向での延伸比約1.7:1、横方向の延伸比2.0:1として、多孔質膜を形成させた。この膜は、白色を背景にブルーの線が入った視覚的に訴求感のあるフィルムとなった。人の顔から脂肪を拭き取るのに使用すると、そのブルーの線の外観が黒ずむので、脂肪がうまく除去できたことが視覚的に確認できる。

10

【0115】

実施例14および比較例6

ここでは、複数の不連続ポリマー領域が、多孔質膜の総合的な強度に与える影響について説明する。

【0116】

実施例14は実施例13と同様の方法で実施したが、ただし、材料といくつかの加工方法を変更した。連続層材料は、DS-5D45、ミラッド(MILLAD)(商標)3988、およびオイルからなっていて、それぞれ質量部で64.9、0.1および35の比率であった。不連続層材料は、ポリマーのPP1024だけで構成した。ダイの温度は246に設定し、ラインスピードは約5m/分とした。その複合材料フィルムを、流れ方向に約1.7:1に延伸し、横方向に2.0:1に延伸して、実質的にその流れ方向には連続である、多くの非多孔質ポリマー不連続領域を有する、多孔質膜を形成した。

20

【0117】

比較例6は、実施例14と同様にして実施したが、ただし、第2チャンバーにはいかなる材料も通過させなかった。

30

【0118】

試料について、多孔質フィルムの引張特性の流れ方向(DD)モジュラスおよび横方向(CD)モジュラス、ならびにガーレー通気性を試験した。結果を表6に示す。

【0119】

【表 9】

表 6

実施例	連続層	不連続層	質量比	厚み ( $\mu\text{m}$ )	DDモジュラス (MPa)	CDモジュラス (MPa)	ガーレー (秒)
14	DS5D45/ミラッド (MILLAD™)/ オイル	PP1024	93/7	137	473	903	81
CE 6	DS5D45/ミラッド (MILLAD™)/ オイル	なし	100/0	130	363	715	110

10

## 【0120】

20

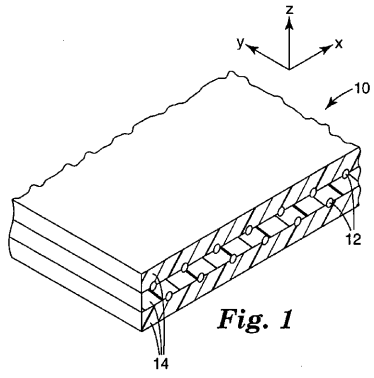
上記の表にみられるように、多くの不連続ポリマー領域が存在すると、流れ方向のウェブおよび横方向のウェブのいずれの方向でもモジュラスが約30%上昇するが、しかもガーレー通気性の値からわかるように、良好な多孔度は維持されている。

## 【図面の簡単な説明】

## 【0121】

【図1】本発明の実施態様に従って作製した多層ポリマーウェブの斜視図であって、ウェブの断面を示している。

【 図 1 】



## 【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International Application No PCT/US 02/36923
<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> IPC 7 B32B3/18 B32B27/00 B29C47/06		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 B32B B29C		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal, WPI Data		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A Y	WO 92 12857 A (DOW CHEMICAL CO) 6 August 1992 (1992-08-06) page 30, line 25-33 page 26, line 5-10-29 -page 27, line 27-29 page 24, line 36 -page 25, line 7-14-25-30 page 14-15 -page 18, line 30-34 page 10, line 19-24 -page 13, line 26-33	1-3,12, 13 9-11 4,6
A	page 8, line 22-33 -page 9, paragraph 1; claims 1,3,4,6,7; figures 3,8	4
Y	US 5 605 717 A (SIMMONS GEORGE R ET AL) 25 February 1997 (1997-02-25) column 3, line 60-62 -column 6, line 4-12-36; claims 1,3	4,6
	--- -/-- ---	
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in 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 document 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 16 April 2003		Date of mailing of the international search report 06/05/2003
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer Derz, T

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/US 02/36923

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 3 759 647 A (SCHRENK W ET AL) 18 September 1973 (1973-09-18)	1-3,7
A	column 8, line 40-57 -column 3, line 20-30; figures 11,,3 ---	4
X	DE 39 40 237 A (INT PATENTMANAGEMENT CORP) 6 June 1991 (1991-06-06) claims 1,5; figures 2,5 ---	1-3
X	US 5 110 669 A (DUBOUCHET CHRISTIAN ET AL) 5 May 1992 (1992-05-05) column 3, line 70 -column 4, line 10; figure 7 column 10, line 60 -column 11, line 17; claims 1-5,8-14 ---	1
X	US 3 982 877 A (WYETH NATHANIEL CONVERS ET AL) 28 September 1976 (1976-09-28) column 12, line 45-65; claim 1; figures 2-4 ---	1-3
A	WO 95 16754 A (MINNESOTA MINING & MFG) 22 June 1995 (1995-06-22) page 7-11 -page 13, line 20-23; claims 1-11; figure 1 -----	1-4

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No  
PCT/US 02/36923

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 9212857	A	06-08-1992	US 5217794 A	08-06-1993
			AT 170455 T	15-09-1998
			AU 1151392 A	27-08-1992
			CA 2100061 A1	23-07-1992
			CN 1063449 A	12-08-1992
			DE 69130118 D1	08-10-1998
			DE 69130118 T2	20-05-1999
			EP 0647183 A1	12-04-1995
			FI 933294 A	21-07-1993
			JP 6506408 T	21-07-1994
			MX 9200263 A1	01-07-1992
			US 5316703 A	31-05-1994
			WO 9212857 A1	06-08-1992
US 5605717	A	25-02-1997	WO 9638285 A2	05-12-1996
US 3759647	A	18-09-1973	US 3565985 A	23-02-1971
			US 3576707 A	27-04-1971
DE 3940237	A	06-06-1991	DE 3940237 A1	06-06-1991
			DE 8915983 U1	11-02-1993
US 5110669	A	05-05-1992	NONE	
US 3982877	A	28-09-1976	US 3935358 A	27-01-1976
			NL 7406043 A	10-11-1975
WO 9516754	A	22-06-1995	EP 0734425 A1	02-10-1996
			JP 9506564 T	30-06-1997
			WO 9516754 A1	22-06-1995
			US 5589122 A	31-12-1996
			US 5599602 A	04-02-1997

## フロントページの続き

(81)指定国 AP(GH,GM,KE,LS,MW,MZ,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM),EP(AT, BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,IE,IT,LU,MC,NL,PT,SE,SK,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW, ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EC,EE,ES, FI,GB,GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KP,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,MA,MD,MG,MK,MN,MW,MX,MZ,N O,NZ,OM,PH,PL,PT,RO,RU,SC,SD,SE,SG,SI,SK,SL,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,UZ,VC,VN,YU,ZA,ZM,ZW

(74)代理人 100082898

弁理士 西山 雅也

(72)発明者 コラージャ,リチャード エー.

アメリカ合衆国,ミネソタ 5 5 1 3 3 - 3 4 2 7,セント ポール,ポスト オフィス ボック  
ス 3 3 4 2 7

(72)発明者 エクステイン,アクセル

アメリカ合衆国,ミネソタ 5 5 1 3 3 - 3 4 2 7,セント ポール,ポスト オフィス ボック  
ス 3 3 4 2 7

(72)発明者 フロイド,ロバート エム.

アメリカ合衆国,ミネソタ 5 5 1 3 3 - 3 4 2 7,セント ポール,ポスト オフィス ボック  
ス 3 3 4 2 7

Fターム(参考) 4F100 AK01A AK01B AK01C AK01D AK02A AK02B AK03A AK03B AK07A AK07B  
AK07C AK12A AK12B AK25C AK25G AK46A AK46B AK62A AK62B AK68A  
AK68B AL01A AL01B AL05A AL05B AL09A AL09B AL09C BA03 BA04  
BA07 BA08 CA13A CA13B CB05A CB05B CB05C DC21A DC21B DJ01A  
DJ01B DJ01C EJ05 EJ53 JB16A JB16B JB16C JK02A JK02B