(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号
特許第5919295号
(P5919295)
(45)発行日　平成28年5月18日(2016.5.18)　(24)登録日　平成28年4月15日(2016.4.15)

(51)Int.Cl.　FI
C09J 201/00 (2006.01)　C09J 201/00
C09J 191/06 (2006.01)　C09J 191/06
C09J 11/06 (2006.01)　C09J 11/06
C09J 123/08 (2006.01)　C09J 123/08
C09J 123/00 (2006.01)　C09J 123/00

請求項の数 6　(全 23 頁)

(21)出願番号　特願2013-540094 (P2013-540094)
(86)(22)出願日　平成23年11月21日 (2011.11.21)
(65)公表番号　特表2014-500357 (P2014-500357A)
(43)公表日　平成26年1月9日 (2014.1.9)
(86)国際出願番号　PCT/US2011/061578
(87)国際公開番号　WO2012/068573
(87)国際公開日　平成24年5月24日 (2012.5.24)
審査請求日　平成26年11月20日 (2014.11.20)
(31)優先権主張番号　61/415,514
(32)優先日　平成22年11月19日 (2010.11.19)
(33)優先権主張国　米国 (US)

(73)特許権者　514056229
ヘンケル　アイピー　アンド　ホールディング　ゲゼルシャフト　ミット　ベシュレンクテル　ハフツング
ドイツ連邦共和国　４０５８９　デュッセルドルフ　ヘンケルシュトラーセ　６７
(74)代理人　100100158
弁理士　鮫島　睦
(74)代理人　100103115
弁理士　北原　康廣
(72)発明者　ヤユン・リュー
アメリカ合衆国０８８２３ニュージャージー州フランクリン・パーク、サファイア・レイン１８１番

最終頁に続く

(54)【発明の名称】接着剤組成物およびその使用

(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
以下の成分：
ａ．ポリマー成分；
ｂ．ワックス；および
ｃ．テンプレート剤；
を含むホットメルト接着剤組成物であって、
テンプレート剤が、該接着剤のΔＨが該テンプレート剤を含まない接着剤組成物よりも少なくとも５％上昇するような有効量で提供され、
該接着剤組成物中の結晶の平均寸法がテンプレート剤を含まない接着剤組成物よりも少なくとも１０％増大しており、
該接着剤の熱応力（該熱応力は応力結合が破損する温度として定義される）がテンプレート剤を含まない接着剤組成物よりも少なくとも５°Ｆ上昇しており、
該ポリマーが、エチレンビニルアセテート、メタロセンポリオレフィン、エチレンブチルアクリレートまたはそれらの混合物からなる群から選択され、
該ワックスが石油系ワックス、合成ワックス、天然ワックスまたはそれらの混合物であり、
テンプレート剤が脂肪酸または塩、または下記式：
Ａｒ－Ｌ１－Ｘ－Ｌ２－Ｒ
（式中、Ｘは糖または糖アルコールである；

Ａｒは置換または無置換のアリール含有官能基である；
ＲはＨ、アルキル、アルケニル、ヒドロキシル、アルコキシおよびアルキルハライド、または置換または無置換のアリール含有官能基である；そして、Ｌ１およびＬ２は独立してアセタールまたはエーテル官能基である）の構造を有する糖または糖アルコールであり、そして
テンプレート剤が接着剤の総重量に基づいて０．０１重量％以上０．５重量％未満の量で含まれる、該ホットメルト接着剤組成物。

【請求項２】
テンプレート剤のＸが、アロース、アルトロース、フルクトース、ガラクトース、グルコース、グロース、イドース、マンノース、ソルボース、タロース、タガトース、アラビノース、リボース、リブロース、キシロース、キシルロース、リキソース、エリトロース、トレオースソルビトールおよびキシリトールからなる群から選択される請求項１に記載の接着剤。

【請求項３】
テンプレート剤が、Ｌｉ－１２ＯＨステアレート、Ａｌステアレート、Ｍｇステアレート、Ｃａステアレート、１２－ヒドロキシステアリン酸およびそれらの混合物からなる群から選択される請求項１に記載の接着剤。

【請求項４】
請求項１に記載の接着剤を含む物品。

【請求項５】
以下の工程：
ａ）第１成分を溶融するまで加熱する工程；
ａ）該第１成分にテンプレート剤を添加し、均質な第１混合物を形成する工程；
ｂ）該第１混合物に第２成分を添加して第２混合物を形成する工程；および
ｃ）該第２混合物を室温まで冷却する工程；
を含む、請求項１に記載の接着剤中でワックス結晶を形成する方法であって、
第１成分および第２成分がワックスまたはポリマーのいずれかであり、
第１成分が第２成分の結晶化温度よりも低い結晶化温度を有し、
第２成分が残りのワックスまたはポリマーであり、
該ポリマーが、エチレンビニルアセテート、メタロセンポリオレフィン、エチレンブチルアクリレートまたはそれらの混合物からなる群から選択され、
該ワックスが石油系ワックス、合成ワックス、天然ワックスまたはそれらの混合物であり、
テンプレート剤が脂肪酸または塩、または下記式：
Ａｒ－Ｌ１－Ｘ－Ｌ２－Ｒ
（式中、Ｘは糖または糖アルコールである；
Ａｒは置換または無置換のアリール含有官能基である；
ＲはＨ、アルキル、アルケニル、ヒドロキシル、アルコキシおよびアルキルハライド、または置換または無置換のアリール含有官能基である；
Ｌ１およびＬ２は独立してアセタールまたはエーテル官能基である）の構造を有する糖または糖アルコールであり、そして
テンプレート剤が接着剤の総重量に基づいて０．０１重量％以上０．５重量％未満の量で含まれる、該方法。

【請求項６】
脂肪酸または塩が、Ｌｉ－１２ＯＨステアレート、Ａｌステアレート、Ｍｇステアレート、Ｃａステアレートおよび１２－ヒドロキシステアレートからなる群から選択される請求項５に記載の方法。

【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】

関連出願への相互参照

本願は、２０１０年１１月１９日出願の米国特許仮出願Ｎｏ．６１／４１５，５１４の利益を主張するものであり、同出願の内容を参考文献として本明細書に組み込むものとする。

【０００２】

発明の分野

本発明は、テンプレート剤を含むホットメルト接着剤組成物に関するものである。より詳しくは、本発明は、耐熱性が向上したホットメルト接着剤に関するものであり、組立および包装用途に特によく適合したこのような接着剤を製造するものである。

【背景技術】

【０００３】

接着剤は支持体に適用されるものであり、製品の組立および包装などのような様々な商業的用途および工業的用途に広く使用されている。

【０００４】

ホットメルト接着剤は、包装産業において、厚紙ケース、トレー、およびカートンを封止するために広く使用されている。幾つかの用途では、封止された容器が１２５°Ｆでポンと開かないように、高い耐熱性（高温で繊維引き裂けを持続する能力）と十分な強度を有するホットメルト接着剤が必要とされている。

【０００５】

組立および包装用ホットメルト接着剤は典型的にはポリマー、粘着付与剤およびワックスから構成されている。各成分は特定の機能を提供する：ベースポリマーは凝集強さおよび弾性を提供する；粘着付与剤は濡れ性、粘着性および粘弾性を提供する；ワックスは粘性の緩和、硬化速度の制御、ならびに結合強さおよび耐熱性の改善を促進する。

【０００６】

近年、ホットメルト接着剤用途および他の分野の用途において、ワックスの需要が伸びている。ガソリンおよび原料油はより高い金銭的価値および製造効率を有するので、原油価格の上昇に伴い、製油所は次第に、高度に精製されたワックスよりも多くのガソリンおよび原料油を製造している。その代わりに、製油所は、高度に精製されたワックスよりも油含量が多く、かつ汚染物濃度が高い、精製度の低いワックスを大量に製造する傾向にある。このような精製度の低いワックスをホットメルト接着剤に使用することにより、当該接着剤の全体的性能が低下する。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【０００７】

当該分野においては、高耐熱性などの良好な性能を有し、かつ精製度の低いワックスを用いて製造することができるホットメルト接着剤への要求が存在している。本発明はこのような要求を満足させるものである。

【課題を解決するための手段】

【０００８】

本発明はテンプレート剤（templating agent）を含むホットメルト接着剤を提供する。

【０００９】

テンプレート剤は、従来より、接着剤中において均一かつ小さな結晶を形成するために、接着剤用途で大量に使用されている。当該小さな結晶は接着剤の伸びまたは延性を改善させたが、背着剤の熱応力を改善させることはできなかった。驚くべきことに、約０．０１重量％以上０．５重量％未満の範囲でのテンプレート剤の使用は、接着剤中におけるワックス結晶の大きさを増大させる。結晶寸法の増大は、当該接着剤の耐熱性を改善させ、耐熱度を効果的に少なくとも５°Ｆ上昇させた。

【００１０】

一実施態様において、当該接着剤は、（１）結晶性または半結晶性ポリマー成分、（２）ワックス、および（３）該接着剤の総重量に基づいて約０．０１重量％以上約０．５重

量％未満のテンプレート剤を含む。当該接着剤のエンタルピー（ΔＨ）の熱はテンプレート剤を含まない接着剤組成物よりも少なくとも５％上昇している；当該接着剤における平均結晶寸法はテンプレート剤を含まない接着剤組成物よりも少なくとも１０％増大している；および当該接着剤の耐熱度はテンプレート剤を含まない接着剤組成物よりも少なくとも５°Ｆ上昇している。

【００１１】

本発明の別の側面は、下式：

Ａｒ－Ｌ１－Ｘ－Ｌ２－Ｒ

（式中、Ｘは糖または糖アルコールである；
Ａｒは置換または無置換のアリール含有官能基である；
ＲはＨ、アルキル、アルケニル、ヒドロキシル、アルコキシおよびアルキルハライド、または置換または無置換のアリール含有官能基である；
Ｌ１およびＬ２は独立してアセタールまたはエーテル官能基である）の構造を有するテンプレート剤を含む接着剤に関する。

【００１２】

本発明のまた別の側面は以下の化合物であるテンプレート剤を含む接着剤に関する：脂肪酸または脂肪酸塩；フェニルエステル類；脂肪族アミン類；パーフルオロアルカン類；ｎ－アルカンアミド類；アリールアミド類；モノ、ジ、トリスおよびポリアミド類；アンモニウムおよびホスホニウム塩；アミノ酸誘導体；ペプチド類；ウレアおよびチオウレア誘導体；ウレタン類；ウレイドーピリミドン類；およびアミノピリミドン類ならびにそれらの対応する誘導体。

【００１３】

さらなる側面においては、当該ホットメルト接着剤は、粘着付与剤、安定剤、可塑剤および／または添加剤をさらに含む。

【００１４】

別の側面は、ΔＨが上昇し、かつ平均結晶寸法が増大した接着剤を形成する方法であって、以下の工程を含む方法に関する：第１成分を溶融状態まで加熱する工程；溶融ポリマーにテンプレート剤を添加し、均質な第１混合物を形成する工程；該第１混合物に第２成分を添加して第２混合物を形成する工程；および該第２混合物を室温まで冷却する工程。第１成分および第２成分はいずれもワックスまたはポリマーであり、第１成分は第２成分の結晶化温度よりも低い結晶化温度を有し、第２成分は残りのワックスまたはポリマー成分である。冷却された接着剤はペレット化することもできるし、または貯蔵または輸送用ブロックに形成することもできる。当該接着剤は再加熱して支持体に適用することができる。

【００１５】

さらなる側面は、ΔＨが上昇し、かつ平均結晶寸法が増大した接着剤を形成する方法であって、以下の工程を含む方法に関する：第１成分を溶融状態まで加熱する工程；該溶融状態にテンプレート剤を添加し、均質な第１混合物を形成する工程；該第１混合物に第２成分を添加して第２混合物を形成する工程；第３成分を添加して第３混合物を形成する工程；および該第３混合物を室温まで冷却する工程。冷却された接着剤はペレット化することもできるし、または貯蔵または輸送用ブロックに形成することもできる。３種の成分はワックス、ポリマーまたは粘着付与剤のいずれかである。テンプレート剤は第１成分への溶解度が最も高い。残りの２種の成分のうち、第２成分は第３成分の結晶化温度よりも低い結晶化温度を有し、第３成分は残りの成分である。

【００１６】

また別の側面は、上記した３成分法であるが、３種の成分の選択方法が異なる方法に関する。第１成分は最も低い融解温度を有する。残りの２種の成分のうち、第２成分は第３成分よりも低い結晶化温度を有する。

【００１７】

本発明のまた別の側面は、本明細書中に説明される接着剤を含む製品に関する。本発明

により包含される製品として、ケース、カートンおよびトレーが挙げられる。
【図面の簡単な説明】
【００１８】
【図１】接着剤配合物中の結晶の倍率２０倍顕微鏡写真である。
【図２】接着剤配合物中の結晶の倍率２０倍顕微鏡写真である。
【図３】接着剤配合物中の結晶の倍率２０倍顕微鏡写真である。
【発明を実施するための形態】
【００１９】
重量％は、特記しない限り、接着剤の総重量に基づく乾燥重量割合を意味するものとする。
【００２０】
少なくとも１種のテンプレート剤を用いて耐熱性が高いホットメルト接着剤を得ることができることを見い出した。本発明の接着剤は、テンプレート剤を含まない接着剤よりも、結晶寸法が大きく、かつ熱応力が増大されている。
【００２１】
本発明は、（ｉ）ポリマー成分、（ｉｉ）ワックスおよび（ｉｉｉ）有効量のテンプレート剤を含むホットメルト接着剤を提供する。ホットメルト接着剤中における有効量のテンプレート剤は当該接着剤のΔＨを、テンプレート剤を含まない接着剤組成物よりも少なくとも５％上昇させる；および当該接着剤中の平均結晶寸法はテンプレート剤を含まない接着剤組成物よりも少なくとも１０％増大している。上記有効量は、テンプレート剤の選択に応じて、当該接着剤の総重量に基づいて約０．０１重量％から約０．５重量％未満まで変化する。
【００２２】
本発明の接着剤は、少なくとも１種のエチレンポリマーを含むことが好ましく、２種またはそれ以上のポリマーのブレンドを含んでもよい。本明細書中、使用されるエチレンコポリマーという用語はエチレンのホモポリマー、コポリマーおよびターポリマーを意味するものである。エチレンポリマーは結晶性ポリマーまたは半結晶性ポリマーである。半結晶性ポリマーという用語は、結晶領域および非晶質領域の両方を含むポリマーを包含するが、完全に非晶質のポリマーを含むものではない。
【００２３】
エチレンコポリマーとして、例えば、エチレンと共重合可能な１種以上の極性モノマーとのコポリマーが挙げられ、当該極性モノマーとしては、ビニルアセテート；無水マレイン酸；もしくはモノカルボン酸の他のビニルエステル；またはアクリル酸、メタクリル酸もしくはそれらとメタノール、エタノールもしくは他のアルコールとのエステルが挙げられる。具体例としては、例えば、エチレンビニルアセテート、エチレンメチルアクリレート、エチレンｎ－ブチルアクリレート、エチレン２－エチルヘキシルアクリレート、エチレンアクリル酸、エチレンメタクリレート、ならびにそれらの混合物およびブレンドが挙げられる。他の具体例としては、再生ポリエチレンテレフタレートおよびポリエチレン、エチレン／α－オレフィン共重合体、ポリー（ブテン－１－ｃｏ－エチレン）、アタクチックポリプロピレン、低密度ポリエチレン、均質線状エチレン／α－オレフィンコポリマー、低メルトインデックスｎ－ブチルアクリレートコポリマー、エチレンビニルエステルコポリマーが挙げられるが、これらに限定されるものではない。本発明の実施に際しては、ランダムおよびブロックコポリマー、ならびにそれらのブレンドを用いてもよい。
【００２４】
本発明の実施に際して使用される好ましい接着剤はまた、ＭＩ（メルトインデックス）が少なくとも約７５０グラム／１０分、好ましくは９００グラム／１０分であり、かつビニルアセテート含量が約２０～約３５重量％である少なくとも１種のエチレンビニルアセテートポリマーを約５～約４０重量％含む。エチレンビニルアセテートコポリマーは、デュポン・ケミカル社（ウィルミントン、ＤＥ）から、商品名エルバクス(Elvax)（Ｒ）（例えば、メルトインデックスが８００であり、かつコポリマー中のビニルアセテート含量

が約２８重量％であるエルバクス（Ｒ）２０５Ｗおよびメルトインデックスが５００であり、かつコポリマー中のビニルアセテート含量が約１８重量％であるエルバクス（Ｒ）４１０）のもとで入手できる。他のエチレンビニルアセテートコポリマーは、エクソン・ケミカル社から、商品名エスコレン（Escorene）（Ｒ）（例えば、ＵＬ７５０５、７７１０、７７４０および８７０５）のもとで入手でき、またミレニアム・ペトロケミカルズ社（Millennium Petrochemicals）（ローリング・メドウズ、ＩＬ）から商品名ウルトラセン（Ultrathene）（Ｒ）（例えば、ＵＥ６４９０４）のもとでも、エー・ティー・ポリマーズ・アンド・フィルム社（AT Polymers & Film Co.）（キャルロッテ、ＮＣ）からＡＴ（Ｒ）コポリマーのもとでも、アトフィナ・ケミカルズ社（Atofina Chemicals）（フィラデルフィア、ＰＡ）からエバタン（Evatane）（Ｒ）のもとでも入手できる。

【００２５】

本発明の接着剤は、また、ＭＩが少なくとも約７５０グラム／１０分、好ましくは９００グラム／１０分であり、かつｎ－ブチルアクリレート含量が約３０～約４０重量％であるエチレンｎ－ブチルアクリレートコポリマーを含んでもよい。エチレンｎ－ブチルアクリレートコポリマーは、アトフィナ・ケミカルズ社（フィラデルフィア、ＰＡ）からロトリル(Lotryl)（Ｒ）ＢＡとして、エクソン・ケミカル社からイネーブル（Enable）（Ｒ）（例えば、メルトインデックスが約３３０グラム／１０分であり、かつコポリマー中のｎ－ブチルアクリレート含量が約３３重量％であるＥＮ３３３３０およびメルトインデックスが約９００であり、かつｎ－ブチルアクリレート含量が約３５重量％であるＥＮ３３９００）として、およびミレニアム・ペトロケミカルズ社からエナセン（Enathene）（Ｒ）（例えば、メルトインデックスが約４００グラム／１０分であり、かつコポリマー中のｎ－ブチルアクリレート含量が約３５重量％であるＥＡ８９８２２）として入手できる。

【００２６】

エチレンメチルアクリレートコポリマーも有用であり、エクソン・ケミカル社からオプテマ（Optema）（Ｒ）（例えば、メルトインデックスが約２７０グラム／１０分であり、かつコポリマー中のメチルアクリレート含量が約２０重量％であるオプテマ（Ｒ）ＸＳ９３．０４）として入手できる。他の有用なポリマーとしては、レクセン・プロダクツ社（Rexene Products Co.）（ダラス、ＴＸ）から商品名レクスタック（Ｒ）のもとで、クレアノバ社（Creanova）から商品名ベストプラスト（Vestplast）（Ｒ）、イグザクト（Exact）（Ｒ）５００８のもとで入手できる非晶質ポリ－ａ－オレフィンポリマー、エチレン－ブテンポリマー；エクスポール（Exxpol）（Ｒ）ＳＬＰ－０３９４、エチレン－プロピレンポリマー；エグザクト（Ｒ）３０３１、エクソン・ケミカル社から入手できるあらゆるエチレン－ヘキセンポリマー；インサイト（Ｒ）ＳＭ－８４００、ダウケミカル社（ミッドランド、ＭＩ）から入手できるエチレン－オクテンポリマーが挙げられる。本発明の実施に際しては、メチルアクリレートを約１０～約２８重量％含有するエチレンメチルアクリレートポリマーおよび酸価が２５～１５０のエチレンアクリル酸コポリマーを使用してもよい。

【００２７】

別の実施態様においては、ポリマーは、ＥＰ０９１６３３７４．３およびＥＰ０９１６３３８０．０で記載されているように、（１）弾性ゴムまたはエチレン－プロピレンゴムおよびエチレン－プロピレン－ジエンモノマーターポリマーゴムから選択される弾性ゴムおよび（２）半結晶性オレフィン系ポリマーまたは半結晶性オレフィン系ポリマーのブレンドについての、分解されたコポリマーの混合物を含む。さらなる実施態様においては、ポリマーは、ＤＥ１０２０１００３８４８８．７およびＥＰ１０１７６８１３．３で記載されているように、分解されたポリプロピレンコポリマーを含む。

【００２８】

ポリマー成分は通常、約１０重量％～約５０重量％、より好ましくは約２０重量％～約４５重量％、さらに好ましくは約３０重量％～約４２重量％の量で存在している。

【００２９】

好ましい実施態様は、エチレンビニルアセテート、エチレンｎ－ブチルアクリレートま

たはそれらのブレンドを含む。

【００３０】

接着剤はワックス成分も含む。

【００３１】

本発明での使用に適したワックスとして、石油系ワックス、合成ワックス、および天然ワックス、例えば、動物ワックスおよび植物ワックスが挙げられる。

【００３２】

典型的な石油系ワックスとして、パラフィンワックスおよびマイクロクリスタリンワックスが挙げられる。典型的な合成ワックスとして、ポリエチレンワックス、ポリプロピレンワックス、ポリ－α－オレフィンワックス、副生ポリエチレンワックス、フィッシャー－トロプシュワックス、酸化型フィッシャー－トロプシュワックスおよび官能基化ワックス、例えばヒドロキシステアラミドワックスおよび脂肪酸アミドワックスが挙げられる。当該分野においては、「合成高融点ワックス」という専門用語は通常、高密度低分子量ポリエチレンワックス、副生ポリエチレンワックスおよびフィッシャー－トロプシュワックスを包含して用いる。

【００３３】

本発明の実施に際して使用することができるパラフィンワックスとしては、アストル・ワックス・コーポレーション社（Astor Wax Corporation）（ドラビレ、ＧＡ）から入手できるオケリン（Okerin）（Ｒ）２３６ＴＰ；ペンゾイル・プロダクツ社（Pennzoil Products Co.）（ヒューストン、ＴＸ）から入手できるペンレコ（Penreco）（Ｒ）４９１３；モーレ・アンド・ムンガー社（Moore & Munger）（シェルトン、ＣＮ）から入手できるＲ－７１５２パラフィンワックス；およびインターナショナル・ワックス社（International Waxes, Ltd.）（オンタリオ、カナダ）から入手できるパラフィンワックス１２９７、エクソン・モービル社（フェアファックス、ＶＡ）から入手できるパルバン（Parvan）（Ｒ）１４７１、１５８０、およびモーレ・アンド・ムンガー社から入手できるＲ－２５４０；および他のパラフィン系ワックス、例えば、ＣＰホール社（CP Hall）から製品記号１２３０、１２３６、１２４０、１２４５、１２４６、１２５５、１２６０および１２６２のもとで入手できるものが挙げられる。ＣＰホール１２４６パラフィン系ワックスはＣＰホール社（ストー、オハイオ）から入手できる。

【００３４】

本発明で有用なマイクロクリスタリンワックスは、長さが３０～１００炭素数のシクロまたは分枝状アルカンを５０重量％以上有するものである。このようなワックスは一般的には、パラフィンワックスおよびポリエチレンワックスよりも結晶性が小さく、約７０℃よりも高い融点を有する。具体例として、ペトロライト社（Petrolite Corp.）（タルサ、ＯＫ）から入手できるビクトリー（Vistory）（Ｒ）アンバーワックス（Amber Wax）（７０℃融点ワックス）；バレコ社（Bareco）（シカゴ、ＩＬ）から入手できるバレコ（Ｒ）ＥＳ－７９６アンバーワックス（７０℃融点ワックス）；アストル・ワックス・コーポレーション社から入手できるオケリン（Ｒ）１７７（８０℃融点ワックス）；両方ともにペトロライト社（タルサ、ＯＫ）から入手できるバスクアーレ（Basquare）（Ｒ）１７５および１９５アンバーワックス（８０℃融点マイクロクリスタリンワックスおよび９０℃融点マイクロクリスタリンワックス）；インダストリアル・ロウ・マテリアルズ社（Industrial Raw Materials）（スメスポート、ＰＡ）から入手できるインドラミック（Indramic）（Ｒ）９１（９０℃融点ワックス）；およびペトロワックスＰＡ社（ニューヨーク、Ｎ．Ｙ．）から入手できるペトロワックス（Petrowax）（Ｒ）９５０８ライト（９０℃融点ワックス）が挙げられる。

【００３５】

高密度低分子量ポリエチレンワックスとしては、この範疇に含まれる典型的なワックスとして、ペトロライト社（タルサ、オクラホマ）からポリワックス（Polywax）（ＴＭ）５００、ポリワックス（ＴＭ）１５００およびポリワックス（ＴＭ）２０００として入手できるエチレンホモポリマーが挙げられる。ポリワックス（ＴＭ）２０００は、約２００

０の分子量、約１．０のＭｗ／Ｍｎ、約０．９７ｇ／ｃｍ^{3}の１６℃での密度、および約１２６℃の融点を有する。本発明の実施に際して使用される有用なポリエチレンワックスはマーカス（Marcus）ＩＡ３００；ハニーウェル（Honeywell）ＡＣ－８、ＡＣ－９およびＡＣ－１８３３ならびにイノスペック・ロイナ社（Innospec Leuna Gmbh）のビスコワックス（Viscowax）１００および１１１Ｖである。

【００３６】

本発明の実施に際して使用されるフィッシャー－トロプシュワックス（例えば酸化型フィッシャー－トロプシュワックスなどを含む）は約６０℃～約８０℃の融点を有する。融点が約７１℃のフィッシャー－トロプシュワックスが特に好ましい。本発明の実施に際して使用することができるフィッシャー－トロプシュワックスは、エクイロン社（Equillon）からは商品名カリスタ（Calista）ＳＭ１５８のもとで、インターナショナル・グループス社（International Groups, Inc.）からはＩＧＩ１３３９Ａのもとで市販されている。従来（適用温度最高３５０°Ｆ）のホットメルト接着剤に使用されているフィッシャー－トロプシュワックスとしてサゾール社（Sasol）から入手できるパラフリント（Paraflint）Ｈ１およびベーカー・ペトロライト社（Baker Petrolite）社から入手できるバレコ（Bareco）ＰＸ－１０５が挙げられる。

【００３７】

ワックスは典型的には、本発明の配合物中、約５～約６０重量％、より好ましくは約１０～約４５重量％、さらに好ましくは約１５～約３５重量％の量で存在している。好ましいワックスは１２０°Ｆ～２５０°Ｆ、より好ましくは１５０°Ｆ～２３０°Ｆ、最も好ましくは１８０°Ｆ～２２０°Ｆの融解温度を有する。

【００３８】

均質かつシャープな融点を有する接着剤を形成するためには、高度に精製されたワックスが好ましい。精製度の低いワックスは、油含量が高く、汚染物が多い。従って、精製度の低いワックスを用いて製造されたホットメルト接着剤は、融点範囲が広く、熱応力値が低い。驚くべきことに、精製度の低いワックスを含んでいても、有効量のテンプレート剤を用いて製造された接着剤は、改善された熱応力を有する。いかなる特定の理論にも縛られるものではないが、テンプレート剤は炭化水素または有機溶媒中、ナノフィブリル網状構造（nanofibrillar networks）を形成し、網状構造の形成を誘導し、接着剤のレオロジー特性および機械的特性に影響を与えるものと考えられる。

【００３９】

テンプレート剤の好適なひとつの種類として、下式の構造を有する糖または糖アルコールが挙げられる：

　　Ａｒ－Ｌ１－Ｘ－Ｌ２－Ｒ

（式中、Ｘは糖または糖アルコールである；

Ａｒは置換または無置換のアリール含有官能基である；

ＲはＨ、アルキル、アルケニル、ヒドロキシル、アルコキシおよびアルキルハライド、または置換または無置換のアリール含有官能基である；

Ｌ１およびＬ２は独立してアセタールまたはエーテル官能基である）。

【００４０】

糖または糖アルコールは、アロース、アルトロース、フルクトース、ガラクトース、グルコース、グロース、イドース、マンノース、ソルボース、タロース、タガトース、アラビノース、リボース、リブロース、キシロース、キシルロース、リキソース、エリトロース、トレオースソルビトールまたはキシリトールから選択されてよい。

【００４１】

好ましい糖または糖アルコール誘導体として、１，３：２，４ジベンジリデンソルビトール、１，３：２，４（４－メチルジベンジリデン）ソルビトール、ビス（３，４ジメチルベンジリデン）ソルビトール、ビス（４－プロピルベンジリデン）プロピルソルビトールなどが挙げられる。

【００４２】

別の好適な種類のテンプレート剤は脂肪酸および脂肪酸塩である。好ましい脂肪酸および脂肪酸塩として、Ｌｉ－１２ＯＨステアレート、Ａｌステアレート、Ｍｇステアレート、Ｃａステアレート、１２－ヒドロキシステアリン酸などが挙げられる。

【００４３】

好適なテンプレート剤として、フェニルエステル類、脂肪族アミン類、パーフルオロアルカン類、アンモニウムおよびホスホニウム塩、例えばテトラ－ｎ－オクタデシルアンモニウム塩；アミノ酸誘導体；ペプチド類、例えば線状およびシクロペプチド類；ウレアおよびチオウレア誘導体、例えばＮ－フェニル－Ｎ'－（アルコキシカルボニル）フェニルウレア類；ウレタン類、例えばピレン系ウレタン類、Ｌ－アラニンおよびＬ－フェニルアラニンのウレタン誘導体が挙げられる。

【００４４】

テンプレート剤として好適なものとして、ｎ－アルカンアミド類、アリールアミド類；モノ、ジ、トリスおよびポリアミド類およびそれらの誘導体が挙げられる。具体例として、イルガクリア（Irgaclear）ＸＴ３８６などのようなトリアミノベンゼン誘導体、リカクリア（RiKACLEAR）ＰＣ１として入手できるN,N',N''-トリス(2-メチルシクロヘキシル)-1,2,3-プロパントリカルボキサミド、ＮＪＳＴＡＲ　ＮＵ－１００として入手できるN,N'-ジシクロヘキシル-2,6-ナフタレンエンジカルボキサミドなどが挙げられる。

【００４５】

また別の好適なテンプレート剤として、ウレイド－ピリミドンおよびアミノピリミドンならびにそれらの誘導体が挙げられる。ウレイド－ピリミドンおよびその誘導体の具体例として、3-[5-(6-エトキシ-5-オキソヘキシル)-4-オキソ-6-フェニル-1,4-ジヒドロピリミジン-2-イル]-1-{2-[3-(プロプ-1-エン-2-イル)フェニル]プロパン-2-イル}ウレア、エチル6-{2-[({2-[(2-メチルプロプ-2-エノイル)オキシ]エチル}カルバモイル)アミノ]-4-オキソ-6-フェニル-1,4-ジヒドロピリミジン-5-イル}ヘキサノエート、エチル6-(2-{[(2-エトキシ-2-オキソエチル)カルバモイル] アミノ}-4-オキソ-6-フェニル-1,4-ジヒドロピリミジン-5-イル)ヘキサノエート、{[(6-{[(5-“R1”-6-“R2”-4-オキソ-1,4-ジヒドロピリミジン-2-イル)カルバモイル]アミノ}ヘキシル)カルバモイル]オキシ}”Pn”イル N-(6-{[(5-“R1”-6-“R2”-4-オキソ-1,4-ジヒドロピリミジン-2-イル)カルバモイル]アミノ}ヘキシル)カルバメート、3-(6-ヘプチル-5-ヘキシル-4-オキソ-1,4-ジヒドロピリミジン-2-イル)-1-{2-[3-(プロプ-1-エン-2-イル)フェニル]プロパン-2-イル}ウレア、エチル6-[2-({[20-({[5-(6-エトキシ-6-オキソヘキシル)-4-オキソ-6-フェニル-1,4-ジヒドロピリミジン-2-イル]カルバモイル}アミノ)-10,11-ジオクチルイコシル]カルバモイル}アミノ)-4-オキソ-6-フェニル-1,4-ジヒドロピリミジン-5-イル]ヘキサノエートなどが挙げられる。アミノピリミドンおよびその誘導体の具体例として、エチル3-(2-アミノ-6-メチル-4-オキソ-1,4-ジヒドロピリミジン-5-イル)プロパノエート、アルキル官能性2-アミノ-6-ヘプチル-5-ヘキシル-1,4-ジヒドロピリミジン-4-オン、エステル官能性エチル6-(2-アミノ-4-オキソ-6-フェニル-1,4-ジヒドロピリミジン-5-イル)ヘキサノエート、エーテル官能性2-アミノ-5-[2-(2-メトキシエトキシ)エチル]-6-フェニル-1,4-ジヒドロピリミジン-4-オン、エチル 3-{2-[(“R”カルボニル)アミノ]-6-メチル-4-オキソ-1,4-ジヒドロピリミジン-5-イル}プロパノエート、3-{[5-(6-エトキシ-6-オキソヘキシル)-4-オキソ-6-フェニル-1,4-ジヒドロピリミジン-2-イル]カルバモイル}-2-メチルプロパン酸、エチル3-[6-メチル-4-オキソ-2-(3-オキソブタンアミド)-1,4-ジヒドロピリミジン-5-イル]プロパノエート、エチル3-{2-[(2Z)-ブト-2-エンアミド]-6-メチル-4-オキソ-1,4-ジヒドロピリミジン-5-イル}プロパノエート、エチル3-[2-(3-ヒドロキシブタンアミド)-6-メチル-4-オキソ-1,4-ジヒドロピリミジン-5-イル]プロパノエートなどが挙げられる。

【００４６】

テンプレート剤および接着剤の配合（例えば、ポリマーおよびワックス）に応じて、有効量は当該接着剤の総重量に基づいて約０．０１重量％から約０．５重量％未満までで変化する。ソルビトールおよびその誘導体を含む配合物においては、約０．０５～約０．５重量％未満の範囲が好ましい。脂肪酸および脂肪酸塩ならびにそれらの対応する誘導体を

含む配合物においては、約０．０５～約０．３５重量％の範囲が好ましい。接着剤へのテンプレート剤の溶解度が高まるときは、接着剤組成物中にテンプレート剤をより多くの量で含有させることが好ましい。上記にかかわらず、テンプレート剤は、接着剤配合物への当該テンプレート剤の溶解度に応じて、より多くの量で使用してもよい。

【００４７】

本発明の接着剤は粘着付与剤も含むことがある。粘着付与剤成分は通常、約１０重量％～約６０重量、より好ましくは約２０重量％～約５０重量％、さらに好ましくは約２０重量％～約４０重量％の量で存在している。粘着付与性樹脂は典型的には、ＡＳＴＭ法Ｅ２８で測定される環球式軟化点が約７０℃～１５０℃、より好ましくは約９０℃～１３５℃、最も好ましくは約９５℃～１３０℃である。

【００４８】

有用な粘着付与性樹脂としては、あらゆる相溶性樹脂またはそれらの混合物を包含し、具体例として以下のものが挙げられる。例えば、ガムロジン、ウッドロジン、トール油ロジン、蒸留ロジン、水添ロジン、二量体化ロジン（dimerized rosin）、樹脂酸塩、および重合ロジンなどの、天然および変性ロジン；例えば、ペール（pale）、ウッドロジンのグリセロールエステル、水添ロジンのグリセロールエステル、重合ロジンのグリセロールエステル、水添ロジンのペンタエリスリトールエステルおよびロジンのフェノール変性ペンタエリスリトールエステルなどの、天然および変性ロジンのグリセロールおよびペンタエリスリトールエステル；例えばスチレン／テルペンおよびαメチルスチレン／テルペンなどの、天然テルペンのコポリマーおよびターポリマー；ＡＳＴＭ法Ｅ２８－５８Ｔにより測定された軟化点が約７０℃～１５０℃のポリテルペン樹脂；例えば、酸性媒体中での二環式テルペンとフェノールの縮合から生じる樹脂生成物などの、フェノール変性テルペン樹脂およびその水添誘導体；約７０℃～１３５℃の環球式軟化点を有する脂肪族石油炭化水素樹脂；芳香族石油炭化水素樹脂およびその水添誘導体；ならびに脂環式石油炭化水素樹脂およびその水添誘導体。また環式または非環式$Ｃ_5$樹脂および芳香族変性非環式または環式樹脂も挙げられる。本発明を実施するために使用することができる市販のロジン類およびロジン誘導体の具体例として、アリゾナ・ケミカル社（Arizona Chemical）から入手できるシルバライト（SYLVALITE）RE 100L，110L、シルバレス（SYLVARES）RE 115およびシルバレスRE 104；ディー・アール・ティー社から入手できるデルトカール（Dertocal）140；アラカワ・ケミカル社から入手できるライムド・ロジン（Limed Rosin）No.1、GB-120およびペンセル（Pencel）Cが挙げられる。市販のフェノール変性テルペン樹脂の具体例として、いずれもアリゾナ・ケミカル社から入手できるシルバレスTP 2040 HMおよびシルバレスTP 300が挙げられる。

【００４９】

好ましい粘着付与剤は合成炭化水素樹脂である。例えば、脂肪族または脂環式炭化水素、芳香族炭化水素、芳香族変性脂肪族または脂環式炭化水素およびそれらの混合物が挙げられる。

【００５０】

具体例としては、制限されず、脂肪族オレフィン誘導樹脂、例えば、グッドイヤー社（Goodyear）から商品名ウィングタック（Wingtack）$^{（Ｒ）}$エクストラ（Extra）のもとで入手できるもの、およびエクソン社からエスコレッツ（Escorez）$^{（Ｒ）}$１３００シリーズのもとで入手できるものが挙げられる。この種類において共通する$Ｃ_5$粘着付与性樹脂は、約９５℃の軟化点を有する、ピペリレンおよび２－メチル－２－ブテンのジエン－オレフィンコポリマーである。このような樹脂は、商品名ウィングタック９５のもとで市販されている。エクソン社からエスコレッツ２０００シリーズとして入手できる$Ｃ_9$芳香族／脂肪族オレフィン誘導樹脂も有用である。水添炭化水素樹脂が特に有用である。このような水添樹脂としては、エクソン社製のエスコレッツ５０００シリーズなどの水添脂環式樹脂、アラカワ・ケミカル社から入手できるアルコン（Arkon）$^{（Ｒ）}$Ｐ７０，Ｐ９０，Ｐ１１５，Ｐ１２５などの水添$Ｃ_9$および／または$Ｃ_5$樹脂、ヘルクルス・スペシャルティ・ケミカルズ（Hercules Specialty Chemicals）社製のリーガルレッツ（Regalrez）$^{（}$

R）１０１８，１０８５およびリーガライト（Regalite）（R）Rシリーズの樹脂などの水添芳香族炭化水素樹脂が挙げられる。他の有用な樹脂として、日本のヤスハラ・ユシ・コウギョウ・カンパニー社製のクリアロン（Clearon）（R）Ｐ－１０５，Ｐ－１１５およびＰ－１２５などの水添ポリテルペンが挙げられる。このような粘着付与剤の混合物を使用してもよい。

【００５１】

本発明においては、イーストマン社（Eastman）製のイーストタック（Eastotac）シリーズも有用である。具体例として、イーストタック１００、１１５および１３０シリーズの粘着付与剤が挙げられる。

【００５２】

C_9芳香族／脂肪族オレフィン誘導樹脂であって、サートマー社（Sartomer）およびクレイ・バレー社（Cray Valley）から商品名ノルソレン（Norsolene）のもとで入手でき、またルトガーズ（Rutgers）社からＴＫ芳香族炭化水素樹脂シリーズとして入手できる芳香族炭化水素樹脂も有用である。ノルソレンＭ１０９０は９５～１０５℃の環球式軟化点を有する低分子量熱可塑性炭化水素ポリマーであり、クレイ・バレー社から市販されている。

【００５３】

本発明においては、イーストマン・ケミカルズ社製のクリスタレックス（Kristalex）３０８５および３１００、アリゾナ・ケミカル社製のシルバレス（Sylvares）ＳＡ１００などのアルファメチルスチレンもまた粘着付与剤として有用である。このようなアルファメチルスチレンを用いて配合された接着剤は、得られる２５０°Ｆ（１２１℃）での粘度が約１５００ｃＰ未満である。配合物の中には、上記した２種以上の粘着付与性樹脂の混合物を必要とするものがあってもよい。

【００５４】

少量のアルキルフェノール系粘着付与剤を上記したさらなる粘着付与剤とブレンドして、接着剤の高温性能を改善することもできる。接着剤の総重量の２０重量％未満で添加されるアルキルフェノール系粘着付与剤は相溶性があり、適切な組み合わせにおいて、高温接着性能を向上させる。アルキルフェノール系粘着付与剤はアラカワ・ケミカル社からは商品名タマノール（Tamanol）のもとで、スケネクタディー・インターナショナル社（Schenectady International）からは幾つかの製品系統で市販されている。

【００５５】

本発明の接着剤は常套の安定剤または酸化防止剤を含んでもよい。このような化合物は、熱、光、または粘着付与性樹脂のような原材料に由来する残留触媒により生じる分解から接着剤を保護するために添加される。このような化合物は、ホットメルトに少量で添加され、他の物性に影響はない。

【００５６】

本明細書中に記載の接着剤組成物には、酸化防止剤または安定剤が当該接着剤の総重量に基づいて約３重量％以下、より典型的には約０．５重量％の量で含有されてもよい。本発明で含有される適切な安定剤または酸化防止剤の中に、高分子量ヒンダードフェノールまたは多官能性フェノール、例えば硫黄およびリン含有フェノールがある。ヒンダードフェノールは当該分野の当業者によく知られているものであり、そのフェノール性ヒドロキシル基に近接近して立体的に嵩高い基も含有するフェノール系化合物として特徴付けられても良い。一般的には、特に第３ブチル基が、ベンゼン環上、フェノール性ヒドロキシル基に対するオルト位のうちの少なくとも１つに置換されている。このような立体的に嵩高い置換基の当該ヒドロキシル基近傍での存在が、その伸縮振動を阻害し、これに対応してその反応性を阻害するように作用する；このため、このような妨害が当該フェノール系化合物に安定性を提供する。代表的なヒンダードフェノールには、１，３，５‐トリメチル－２，４，６‐トリス（３，５‐ジ‐ｔｅｒｔ‐ブチル‐４‐ヒドロキシベンジル）ベンゼン；ペンタエリスリチルテトラキス‐３（３，５‐ジ‐ｔｅｒｔ‐ブチル‐４‐ヒドロキシフェニル）－プロピオネート；ｎ－オクタデシル－３（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチ

ルー４－ヒドロキシフェニル）－プロピオネート；４，４'－メチレンビス（２，６－ｔｅｒｔ－ブチルーフェノール）：４，４'－チオビス（６－ｔｅｒｔ－ブチル－ｏ－クレゾール）；２，６－ジ－ｔｅｒｔブチルフェノール；６－（４－ヒドロキシフェノキシ）－２，４－ビス（ｎ－オクチルーチオ）－１，３，５トリアジン；ジ－ｎ－オクチルチオ）エチル３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシーベンゾエート；およびソルビトールヘキサ［３－（３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシーフェニル）－プロピオネート］がある。

【００５７】

このような酸化防止剤はチバ・ガイギー社（ホーソーン、ＮＹ）から市販されており、例えば、ヒンダードフェノールであるイルガノクス（Irganox）（Ｒ）５６５、１０１０および１０７６が挙げられる。これらはラジカルスカベンジャーとして作用する一次酸化防止剤であり、単独して使用されてもよいし、またはチバ・ガイギー社から入手できるイルガフォス（Irgafos）（Ｒ）１６８のようなホスフィット酸化防止剤などの他の酸化防止剤と組み合わせて使用されてもよい。他の酸化防止剤としては、アルバマーレ（Albermarle）社製のヒンダードフェノールであるエタノクス（ETHANOX）３３０；モンサント（Monsanto）社製の２，５－ジｔｅｒｔ－アミルヒドロキノンであるサントバール（SANTOVAR）；およびユニロイヤル（Uniroyal）社製のトリス（ｐ－ノニルフェニル）ホスファイトであるナバガード（Navagard）Ｐが挙げられる。

【００５８】

本発明の接着剤は可塑剤を含有することも好ましく、可塑剤として油が挙げられる。好適な可塑剤としては、ポリブテン類、フタレート類、ベンゾエート類、アジピン酸エステル類などが挙げられる。特に好ましい可塑剤としては、ジーイソーウンデシルフタレート（ＤＩＵＰ）、ジーイソーノニルフタレート（ＤＩＮＰ）、ジオクチルフタレート類（ＤＯＰ）などのフタレート類、鉱油、脂肪族油（aliphatic oils）、オレフィンオリゴマーおよび低分子量ポリマー、植物油、動物油および誘導体が挙げられる。好ましい可塑剤として、パラフィン系石油、ナフテン系石油、芳香油、長鎖部分エーテルエステル、アルキルモノエステル、エポキシ化油、ジアルキルジエステル、芳香族ジエステル、アルキルエーテルモノエステルおよびそれらの混合物が挙げられる。

【００５９】

他の実施態様においては、油は典型的には、接着剤の総重量に基づいて約１～約３０重量％、より好ましくは５～２０重量％で存在している。しかしながら、幾つかの実施態様においては、油は好ましくないことがあり、接着剤の総重量に基づいて５重量％未満、好ましくは３重量％未満、より好ましくは１重量％未満、より好ましくは０．５重量％未満で存在しているか、または本質的にでさえ、油を含まない。

【００６０】

接着剤の予定される最終用途に応じて、ホットメルト接着剤に常套的に添加される顔料、染料、蛍光剤および充填剤などの他の添加剤を少量で、すなわち約１０重量％以下で本発明の配合物に混和してもよい。これらのような添加剤は当該分野において当業者に既知のものである。

【００６１】

本発明の接着剤組成物は成分を約２５０°Ｆ超の温度、典型的には約３００°Ｆにて溶融体中、均質なブレンド物が得られるまで、ブレンドすることにより製造される。ブレンド方法は様々な方法が当該分野において知られており、均質なブレンド物が製造されるあらゆる方法が満足できるものである。

【００６２】

当該接着剤は常套の低温適用法を目的として配合されることが好ましく、すなわち約３５０°Ｆ～約２００°Ｆ以上の温度で配合物を適用することができる。接着剤は広範な温度条件に曝されるときでさえ、優れた接着結合を提供する。当該接着剤は優れた耐熱性を有する。

【００６３】

本発明のホットメルト接着剤は、例えば、包装、加工（converting）、製本、袋エンディング（bag ending）における用途および不織布品における用途を見い出す。当該接着剤は、ケース、カートン、およびトレーの作製材料としての特定の用途、および例えば、セリアル、クラッカーおよびビール製品の包装におけるヒートシール用途を含む封止用接着剤としての特定の用途を見い出す。本発明は、例えば、カートン、ケース、ボックス、袋、トレーなどの容器を包含する。

【００６４】

結合されるべき支持体としては、未使用および再生クラフト紙、高密度および低密度クラフト紙、チップボードならびに様々な種類の処理済および被覆済のクラフト紙およびチップボードが挙げられる。包装用途には複合材料も使用される。このような複合材料として、アルミニウム箔に積層されたチップボードであって、さらにポリエチレン、マイラー、ポリプロピレン、ポリビニリデンクロライド、エチレンビニルアセテートおよび様々な他の種類のフィルムなどのフィルム材料に積層されたものが挙げられる。さらには、このようなフィルム材料は、チップボードまたはクラフト紙に直接的に結合していてもよい。非常に多くの支持体、特に複合材料が包装産業において実用性を満たしているので、前記した支持体は決して完全な例示を表すものではない。

【００６５】

当該分野の当業者に明らかなように、本発明の目的および範囲から逸脱しなければ、本発明の多くの変更および変形が可能である。本明細書中に記載される特定の実施態様は実施例のみにより提示されるものであり、本発明は添付の特許請求の範囲の用語および当該特許請求の範囲が求める同等の十分な範囲によってのみ限定されるべきものである。

【実施例】

【００６６】

実施例１．パラフィンワックス

３つの比較用接着剤試料（比較試料１、比較試料１ａおよび比較試料２）および４つの接着剤試料（試料Ａ～Ｄ）を表１に載せる。各試料はテンプレート剤の割合（％　テンプレート剤）とともに載せる。ワックス、粘着付与剤および酸化防止剤を、これらが均質混合物に溶解されるまで２５０°Ｆに加熱した。その後、テンプレート剤を４００°Ｆで添加し、溶解するまで混合した。その後、ポリマーを２５０°Ｆで添加し、溶解するまで混合した。

【００６７】

熱応力を、応力結合が破損する温度として定義する。特定寸法の２枚の段ボール板紙間で、接着剤の複合構造物を形成することにより（２×１／２''圧縮）、熱応力を測定した。試験は３回行った。その後、この複合体を形成する接着剤ビーズを、約１００グラムのカンチレバー応力の下、１３０°Ｆ～１５０°Ｆで２４時間置く。試験結果を合格（両者の結合が合格した（Ｐ））、不合格（両者の結合が破損した（Ｆ））として記録した。

【表１】

表１－接着剤の配合

(% ﾃﾝﾌﾟﾚｰﾄ剤)	比較試料 1 (0)	試料 A (0.25)	試料 B (0.49)	比較試料 1a (0.65)	比較試料 2 (0)	試料 C (0.25)	試料 D (0.49)
ﾊﾟﾙﾊﾞﾝ 1471[a]	30	30	30	30	--	--	--
ﾊﾟﾙﾊﾞﾝ 1580[b]	--	--	--	--	30	30	30
ｼﾙﾊﾞﾗｲﾄ RE 110L[c]	5	5	5	5	5	5	5
ｸﾘｽﾀﾚｯｸｽ 3100[d]	10	10	10	10	10	10	10
ﾉﾙﾊﾞﾚｽ (Novares) TK110H[e]	10	10	10	10	10	10	10
ﾉﾙｿﾚﾝ A110[f]	10	10	10	10	10	10	10
ﾐﾘﾁｸｽ (Millithix) 925S[g]	0	0.25	0.50	0.65		0.25	0.50
UL 8705[h]	35	35	35	35	35	35	35
総重量	100	100.25	100.50	100.65	100	100.25	100.50
130°F での熱応力試験	2F	2F	3P	2F	2F	2F	3P
135°F での熱応力試験			3P	2F			

[a] エクソン・モービル社から入手されたパラフィンワックス

[b] エクソン・モービル社から入手されたパラフィンワックス

[c] アリゾナ・ケミカル社から入手されたロジンエステル

[d] イーストマン・ケミカル社から入手されたアルファメチルスチレン粘着付与剤

[e] ルトガーズ社から入手された炭化水素粘着付与剤

[f] クレー・バレイ社から入手された炭化水素粘着付与剤

[g] ミリケン社（Milliken）から入手された１，３：，２，４ジベンジリデンソルビトール

[h] エクソン・モービル社から入手されたＥＶＡポリマー

【００６８】

表１より、テンプレート剤は有効量で使用されるとき、接着剤の熱応力性能を改善できることが示された。テンプレート剤濃度が０．４９重量％のとき、当該接着剤の１３０°Ｆ（試料Ｄの１３５°Ｆでも）での熱応力試験は合格であった。しかし、濃度が０．６５重量％に上昇すると（比較試料１ａ）、耐熱度の改善は実現されなかった。

【００６９】

上記接着剤試料をＱ１００変調ＤＳＣ（ＴＡインスツルメント社）で評価した。試料を、まず、２５℃から２５０℃まで１０Ｃ／分の速度で加熱し、等温で３分間維持した後、－４０℃に４０°／分の速度で冷却した。初期溶融ピークを算出し、ΔＨ値を得た。表２に示すように、接着剤中のテンプレート剤の量を増加させることにより、溶融過程のエンタルピーの熱が増加した。しかし、テンプレート剤を接着剤の総重量に基づいて０．５重量％より単に多く増加させても、溶融エンタルピーをさらに増加させることはできない。

【表２】

表２－DSC 評価

	ピーク (℃)	開始 (℃)	ΔH (J/g)
比較試料 1 (図 1)	68.7	63.4	81.9
試料 A	68.5	63.9	85.8
試料 B (図 2)	69.1	67.7	89.2
比較試料 1a (図 3)	68.4	64.3	86.2

【００７０】

図１、図２および図３はそれぞれ比較試料１、試料Ｂおよび比較試料１ａの倍率２０倍の横断面顕微鏡写真である。テンプレート剤の添加により、テンプレート剤を全く含まないものよりも（図１）、大きさが約２０ミクロン超の結晶が多く存在する（図２）。しかし、テンプレート剤を０．５重量％超で含む接着剤配合物は結晶領域の減小をもたらした（図３）。

【００７１】

このようにＤＳＣ評価と顕微鏡分析との両方により、有効量のテンプレート剤を用いて調製された接着剤は、当該有効量以外の量でテンプレート剤を用いて調製された接着剤よりも、結晶量の増加および結晶寸法の増大をもたらすことが示された。

【００７２】

実施例２．ポリエチレンワックス

比較試料３（比較３）および試料ＥおよびＦを表１の接着剤と同様にして調製した。接着剤の成分を表３に載せる。

【表３】

表３－接着剤の配合

(% ﾃﾝﾌﾟﾚｰﾄ剤)	比較試料 3 (0)	試料 E (0.15)	試料 F (0.25)
ﾏｰｶｽ IA300[i]	24.0	24.0	24.0
ｼﾙﾊﾞﾗｲﾄ RE100L[c]	57.6	57.6	57.6
ｲﾙｶﾞﾉｸｽ 1010FF[j]	0.3	0.3	0.3
ｲﾙｶﾞﾌｫｽ 168[j]	0.3	0.3	0.3
Li-12OH ｽﾃｱﾚｰﾄ[k]	0	0.18	0.3
UL7740[l]	11.4	11.4	11.4
UL7710[l]	26.4	26.4	26.4
総重量	120.00	120.18	120.30
125°F での熱応力試験	3P	3P	2P1F
130°F での熱応力試験	1P2F	2P1F	1P2F

[i] マーカス・オイル・アンド・ケミカル社（Marcus Oil and Chemical）から入手されたポリエチレンワックス

[c] アリゾナ・ケミカル社から入手されたロジンエステル

[j] チバ社から入手された酸化防止剤

[k] Ｈ．Ｌ．ブラッチフォード社（H.L.Blachford LTD）から入手されたテンプレート剤

[l] エクソンモービル社から入手されたＥＶＡポリマー

【００７３】

実施例２では、０．１５％Ｌｉ－１２ＯＨステアレート（試料Ｅ）の使用が、テンプレート剤を全く含まない接着剤（比較試料３）と比較して、接着剤の熱応力性能を改善させた。さらに、Ｌｉ－１２ＯＨステアレートテンプレート剤を０．２５重量％で含む接着剤（試料Ｆ）は熱応力結果が低下する。このように、有効量のテンプレート剤を用いるときだけ、熱応力の改善が得られ、好ましい形態学的変化および物性変化が誘導される。テンプレート剤の有効量はテンプレート剤および接着剤の配合（例えば、ポリマーおよびワックス）に依存するが、典型的には、接着剤の総重量に基づいて約０．０１重量％以上０．５重量％未満の範囲内である。

【００７４】

実施例３．方法の評価

テンプレート剤を含む接着剤を製造する方法を評価した：

方法Ａ：（１）粘着付与剤、酸化防止剤およびワックスまたはポリマーのいずれか（結晶化開始温度がより高い方の成分）を３５０°Ｆで溶融させる；（２）テンプレート剤を４００°Ｆで添加する；および（３）ポリマーまたはワックスの残り（結晶化開始温度がより低い方の成分）を３５０°Ｆで添加し均質にする。

方法Ｂ：（１）粘着付与剤、酸化防止剤およびワックスまたはポリマーのいずれか（結晶化開始温度がより低い方の成分）を３５０°Ｆで溶融させる；（２）テンプレート剤を４００°Ｆで添加する；および（３）ポリマーまたはワックスの残り（結晶化開始温度がより高い方の成分）を３５０°Ｆで添加し均質にする。

方法Ｃ：（１）ワックス、粘着付与剤、酸化防止剤およびポリマーを３５０°Ｆで溶融させる；および（２）テンプレート剤を４００°Ｆで添加する。

方法Ｄ：酸化防止剤を、３成分：ワックス、ポリマーまたは粘着付与剤のうちの１成分（テンプレート剤が他の２成分よりも当該成分に最も高い溶解度を有するもの）と共に溶融させる；（２）残りの２成分のうちの１成分（より低い結晶化温度を有するもの）を３００°Ｆで添加する；および（３）最後に残った成分を３００°Ｆで添加する。

【００７５】

試料を調製するために使用された接着剤成分および方法を表４に示す。

【表４】

表４－接着剤の配合および方法の評価

	比較試料 4	試料 G	試料 H	試料 I	試料 J
方法	A	A	B	C	D
ﾏｰｶｽ IA300 [i]	24	24	24	24	24
UL7740 [l]	11.4	11.4	11.4	11.4	11.4
UL7710 [l]	26.4	26.4	26.4	26.4	26.4
ｼﾙﾊﾞ ﾗｲﾄ RE100L [c]	57.6	57.6	57.6	57.6	57.6
ｲﾙｶﾞ ﾉｸｽ 1010FF [j]	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
ｲﾙｶﾞ ﾌｫｽ 168 [j]	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
ﾐﾘﾁｸｽ 925S [g]	0	0.3	0.3	0.3	0.3
総重量	120	120.30	120.30	120.30	120.30
125°F での熱応力試験	2P1F	2P1F	3P	1P2F	3P
130°F での熱応力試験	1P2F		2P1F		2P1F

[i] マーカス・オイル・アンド・ケミカル社から入手されたポリエチレンワックス

[l] エクソンモービル社から入手されたＥＶＡポリマー

[c] アリゾナ・ケミカル社から入手されたロジンエステル

[j] チバ社から入手された酸化防止剤

[g] ミリケン社から入手された１，３：，２，４ジベンジリデンソルビトール

【００７６】
表４における熱応力試験結果より、方法ＢおよびＤは１２５°Ｆおよび１３０°Ｆにおいて対照配合物よりも熱応力を改善させることが示された。
【００７７】
接着剤の熱応力性能を結晶の大きさと相関させるために、表４の試料を表２の試料と同様の方法においてＤＳＣによりΔＨについて試験した。
【表５】

表５－方法の評価におけるDSC評価

	ピーク (℃)	開始 (℃)	ΔH (J/g)
比較試料 4	111.5	89.9	44.7
方法 A (試料 G)	111.6	91.5	·49.3
方法 B (試料 H)	115.8	91.7	54.1
方法 C (試料 I)	111.2	91.0	47.3
方法 D (試料 J)	113.5	91.0	51.1

【００７８】
発熱量の増加により示されるように、方法ＢおよびＤの使用により、より大きな結晶寸法およびより高い結晶濃度がもたらされた。このことはまた、表４に示された良好な熱応力性能と相関する。
【００７９】
実施例４．３００°Ｆでの接着剤の調製
試料Ｋを、３００°Ｆとすること以外、方法Ｂで記載された同様の方法により調製した。
【表６】

表６－３００°Ｆで方法Ｂを用いて調製された接着剤の配合

(%テンプレート剤)	比較試料 5 (0)	試料 K (0.25)
マーカス IA300[i]	24	24
UL7740[l]	11.4	11.4
UL7710[l]	26.4	26.4
シルバライト RE100L[c]	57.6	57.6
イルガノクス 1010FF[j]	0.3	0.3
イルガフォス 168[j]	0.3	0.3
ゲニセット(Geniset) D-LM[m]	0	0.3
総重量	120.00	120.30
125°F での熱応力試験	3P	3P
130°F での熱応力試験	1P2F	3P

[i] マーカス・オイル・アンド・ケミカル社から入手されたポリエチレンワックス
[l] エクソンモービル社から入手されたＥＶＡポリマー
[c] アリゾナ・ケミカル社から入手されたロジンエステル
[j] チバ社から入手された酸化防止剤

[m]リカ・ケミカル社から入手されたジベンジリデンソルビトール

【００８０】

方法Ｂにおけるテンプレート剤としてのジベンジリデンソルビトールの添加は熱応力性能を５°Ｆ改善させた。

【００８１】

実施例５．Ａｒ－Ｌ１－Ｓ－Ｌ２－Ｒテンプレート剤

比較試料６（比較６）および試料Ｌ～Ｏを３５０°Ｆで方法Ａにより調製した。

【表７】

表７－Ar-L1-S-L2-R およびポリエチレンワックスを含むポリオレフィンを基材とした接着剤

(% ﾃﾝﾌﾟﾚｰﾄ剤)	比較試料 6 (0)	試料 L (0.25)	試料 M (0.5)	試料 N (0.25)	試料 O (0.5)
ﾋﾞｽｺﾜｯｸｽ III V [n]	24	24	24	24	24
ｱﾌｨﾆﾃｨ(AFFINITY) GA 1900 [o]	24	24	24	24	24
ｱﾌｨﾆﾃｨ GA 1950 [p]	24	24	24	24	24
ｲｰｽﾄﾀｯｸ H-130L [q]	29.04	29.04	29.04	29.04	29.04
ｲｰｽﾄﾀｯｸ H-100W [r]	18	18	18	18	18
ｴﾀﾉｸｽ 310 [s]	0.72	0.72	0.72	0.72	0.72
ｲﾙｶﾞﾌｫｽ 168 [t]	0.24	0.24	0.24	0.24	0.24
G2 [u]	0	0.3	0.6		
G3 [v]				0.3	0.6
130°F での熱応力	2P1F	3P	3P	3P	3P
135°F での熱応力	1P2F	3P	3P	3P	3P
140°F での熱応力	-	3F	1P2F	1P2F	3P
145°F での熱応力	-	-	-	-	1P2F

[n]イノスペック社から入手されたポリエチレンワックス

[o]ダウ・ケミカル社から入手されたポリオレフィンポリマー

[p]ダウ・ケミカル社から入手されたポリオレフィンポリマー

[q]イーストマン・ケミカル・カンパニー社から入手された粘着付与剤

[r]アルベマーレ・カンパニー社から入手された粘着付与剤

[s]アルベマーレ社から入手されたヒンダードフェノール

[t]チバ・ガイギー社から入手されたホスフィット酸化防止剤

[u]カルボシンス・リミテッド社から入手されたメチル-4,6-0-ベンジリデン-a-d-ガラクトピラノシド

[v]カルボシンス・リミテッド社から入手されたメチル-4,6-0-ベンジリデン-b-d-ガラクトピラノシド

【００８２】

実施例６．アミドテンプレート剤

試料Ｐ～Ｔを３５０°Ｆで方法Ａにより調製した。

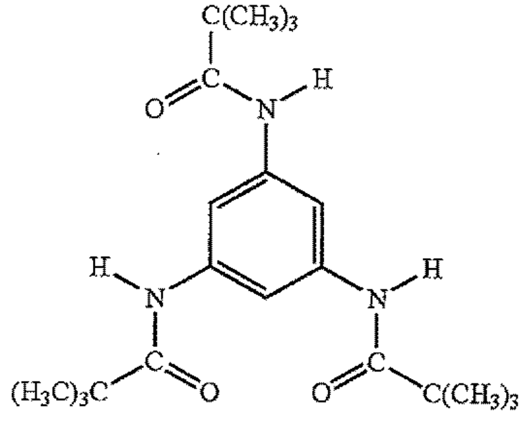
【表８】

表８－アミドおよびポリエチレンワックスを含むポリオレフィンを基材とした接着剤

(% テンプレート剤)	比較試料６ (0)	試料 P (0.5)	試料 Q (0.5)	試料 R (0.5)	試料 S (0.25)	試料 T (0.5)
ビスコワックス III V	24	24	24	24	24	24
アフィニティ GA 1900	24	24	24	24	24	24
アフィニティ GA 1950	24	24	24	24	24	24
イーストタック H-130L	29.04	29.04	29.04	29.04	29.04	29.04
イーストタック H-100W	18	18	18	18	18	18
エタノクス 310	0.72	0.72	0.72	0.72	0.72	0.72
イルガフォス 168	0.24	0.24	0.24	0.24	0.24	0.24
イルガクリア XT 386 [w]	0	0.6				
G28 [x]			0.6			
G27 [y]				0.6		
G17 [z]					0.3	0.6
NJSTAR NU-100 [aa]						
130°F での熱応力	2P1F	3P	3P	3P	3P	3P
135°F での熱応力	1P2F	2P1F	2P1F	2P1F	3P	2P1F
140°F での熱応力	-	3F	3F	3F	1P2F	1P2F

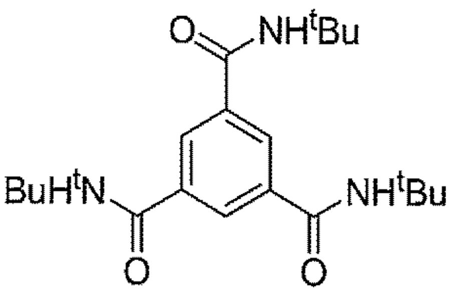
[w] イルガクリアXT-386はビー・エイ・エス・エフ社から入手される（以下に示される構造）。

【化１】



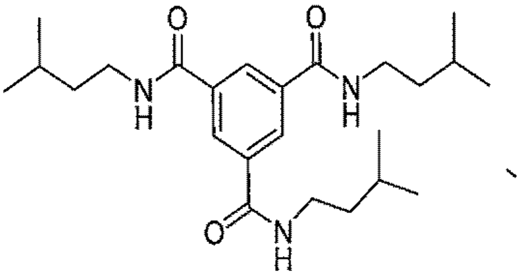
[x] 会社内で製造されたN, N', N''トリt-ブチルベンゼン-1,3,5トリカルボキサミド（以下に示される構造）

【化２】



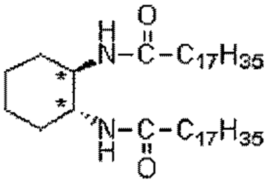
[y]会社内で製造されたN, N', N''トリ(3-メチル-ブチル)ベンゼン-1,3,5トリカルボキサミド　（以下に示される構造）

【化３】



[z]会社内で製造されたN-[2-(ステアリオニルアミノ)シクロヘキシル]ステアリンビスアミド　（以下に示される構造）

【化４】



[a a]リカ・インターナショナル・リミテッド社から入手されたNJSTART NU-100

【００８３】

実施例７．ウレイドーピリミドンテンプレート剤

試料Ｕを３５０°Ｆで方法Ａにより調製した。

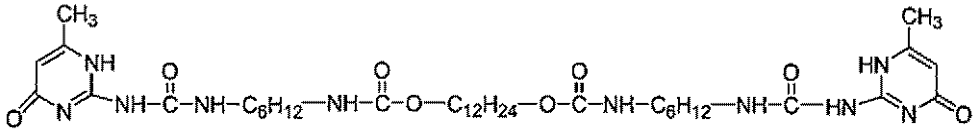
【表９】

表９－ウレイド‐ピリミドンおよびポリエチレンワックスを含むポリオレフィンを基材とした接着剤

(% ﾃﾝﾌﾟﾚｰﾄ剤)	比較試料 6 (0)	試料 U (0.5)
ﾋﾞｽｺﾜｯｸｽ III V	24	24
ｱﾌｨﾆﾃｨ GA 1900	24	24
ｱﾌｨﾆﾃｨ GA 1950	24	24
ｲｰｽﾄﾀｯｸ H-130L	29.04	29.04
ｲｰｽﾄﾀｯｸ H-100W	18	18
ｴﾀﾉｸｽ 310	0.72	0.72
ｲﾙｶﾞﾌｫｽ 168	0.24	0.24
SPM1A-C12 [bb]	0	0.6
熱応力 24 時間		
130°F	2P1F	3P
135°F	1P2F	3P
140°F	-	1P2F
DSC 評価		
ΔH (J/g)	39.4	44.1
ﾋﾟｰｸ(°C)	91.7	91.9

ｂｂスプラポリクス（Suprapolix）社から入手されたウレイドピリミドン。当該ウレイドピリミドンのポリオレフィンへの溶解性が低いため、ＳＰＭ１Ａ－Ｃ１２は、過剰量のＳＰＭ１Ａを$HOC_{12}H_{24}OH$と反応させてＳＰＭ１ＡのC_{12}誘導体として会社内で製造した。

【化５】



【００８４】

ポリエチレンワックスおよびポリオレフィンを含む接着剤にＡｒ－Ｌ１－Ｓ－Ｌ２－Ｒ、アミドおよびウレイド－ピリミドンをテンプレート剤として添加することにより、接着剤の熱応力性能は、テンプレート剤を全く含まない接着剤よりも少なくとも５°Ｆ改善した。対応する当該接着剤のΔＨ値もまた比較試料６よりも少なくとも５％上昇した。試料Ｌ～Ｕの平均結晶寸法は比較試料６よりも少なくとも１０％増大した。

【図１】

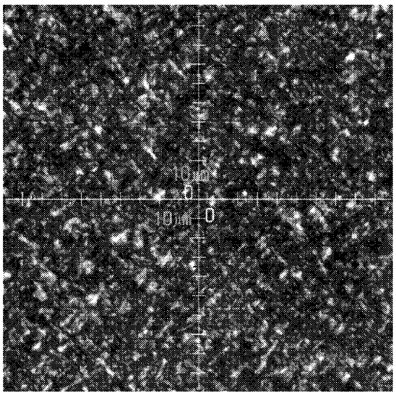


Figure 1.

【図２】

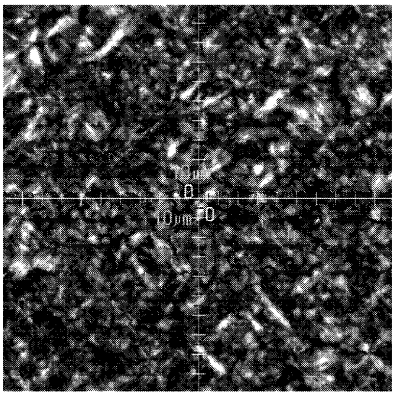


Figure 2.

【図３】

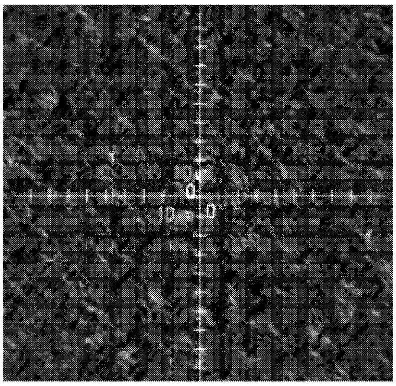


Figure 3

フロントページの続き

(72)発明者　チャールズ・ダブリュー・ポール
アメリカ合衆国０７９４０ニュージャージー州マディソン、シェイディローン・ドライブ１３番
(72)発明者　アリソン・ユエ・シャオ
アメリカ合衆国０８５０２ニュージャージー州ベル・ミード、メドウ・ラーク・レイン７６番
(72)発明者　アンドレア・キーズ・イオディス
アメリカ合衆国０８８４４ニュージャージー州ヒルズバラ、バナー・ドライブ２番

審査官　磯貝　香苗

(56)参考文献　特表２００１－５２３２８０（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
ＣＯ９Ｊ　１／００－２０１／１０