

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5148877号
(P5148877)

(45) 発行日 平成25年2月20日 (2013. 2. 20)

(24) 登録日 平成24年12月7日 (2012. 12. 7)

(51) Int. Cl.

F I

C O 9 J 123/02	(2006. 01)	C O 9 J 123/02
C O 9 J 11/08	(2006. 01)	C O 9 J 11/08
C O 9 J 123/16	(2006. 01)	C O 9 J 123/16
C O 9 J 123/18	(2006. 01)	C O 9 J 123/18
C O 9 J 131/04	(2006. 01)	C O 9 J 131/04

請求項の数 37 (全 18 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2006-541259 (P2006-541259)
(86) (22) 出願日	平成16年11月10日 (2004. 11. 10)
(65) 公表番号	特表2007-511658 (P2007-511658A)
(43) 公表日	平成19年5月10日 (2007. 5. 10)
(86) 国際出願番号	PCT/US2004/037657
(87) 国際公開番号	W02005/049754
(87) 国際公開日	平成17年6月2日 (2005. 6. 2)
審査請求日	平成19年11月8日 (2007. 11. 8)
審判番号	不服2011-13370 (P2011-13370/J1)
審判請求日	平成23年6月22日 (2011. 6. 22)
(31) 優先権主張番号	10/715, 157
(32) 優先日	平成15年11月17日 (2003. 11. 17)
(33) 優先権主張国	米国 (US)

(73) 特許権者	507141712
	ウエストレイク ロングビュー コーポレイション
	アメリカ合衆国, テキサス 77056, ヒューストン, ポスト オーク プールバード 2801, スイート 600
(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	100102990
	弁理士 小林 良博

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 改良された性能ウィンドウを有するホットメルト接着剤

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(1) エチレン及び少なくとも1種の - オレフィンからの反復単位を含む少なくとも1種のコポリマー；

(2) 少なくとも1種の粘着付与剤樹脂；並びに

(3) 190 において1000 ~ 5000 g / 10分の範囲のメルトインデックスを有する少なくとも1種のグラフトポリオレフィン
からなる、繊維引き裂け開始が1 . 7 (35 ° F) 未満である接着剤組成物。

【請求項 2】

(1) エチレン及び少なくとも1種の - オレフィンからの反復単位を含む少なくとも1種のコポリマー；

(2) 少なくとも1種の粘着付与剤樹脂；

(3) 190 において1000 ~ 5000 g / 10分の範囲のメルトインデックスを有する少なくとも1種のグラフトポリオレフィン；並びに

(4) 強化材、難燃剤、発泡剤、可塑剤、油、酸化防止剤、安定剤、架橋剤、充填剤、染料及び顔料から選ばれた少なくとも一種の添加剤

からなる、繊維引き裂け開始が1 . 7 (35 ° F) 未満である接着剤組成物。

【請求項 3】

前記 - オレフィンの炭素数が3 ~ 12である請求項 1 又は 2 に記載の接着剤組成物。

【請求項 4】

10

20

前記コポリマーが $0.85 \text{ g/ml} \sim 0.92 \text{ g/ml}$ の範囲の密度を有する請求項 1 又は 2 に記載の接着剤組成物。

【請求項 5】

前記粘着付与剤樹脂が脂肪族樹脂、脂環式樹脂、芳香族炭化水素樹脂、脂肪族 - 芳香族混合樹脂、ポリテルペン、芳香族変性テルペン樹脂、ロジン、ロジンエステル及び水素添加ロジンエステル並びにそれらの混合物からなる群から選ばれた少なくとも 1 種である請求項 1 又は 2 に記載の接着剤組成物。

【請求項 6】

前記粘着付与剤樹脂が部分的又は完全に水素添加されている請求項 5 に記載の接着剤組成物。

10

【請求項 7】

前記粘着付与剤樹脂がエチレンのホモポリマー、コポリマー及びターポリマー、エチレンビニルアセテート、アクリル酸 n - ブチルコポリマー、エチレンメタクリレートコポリマー、エチレンアクリル酸コポリマー並びにトリブロック、ジブロック及びマルチブロックコポリマーからなる群から選ばれた改質剤で改質されている請求項 5 に記載の接着剤組成物。

【請求項 8】

前記粘着付与剤樹脂が少なくとも 1 種の水素添加炭化水素樹脂である請求項 6 に記載の接着剤組成物。

【請求項 9】

20

前記粘着付与剤樹脂が少なくとも 1 種の部分水素添加脂環式炭化水素樹脂である請求項 8 に記載の接着剤組成物。

【請求項 10】

前記粘着付与剤樹脂が $70 \sim 150$ の範囲の環状軟化点を有する請求項 5 に記載の接着剤組成物。

【請求項 11】

前記粘着付与剤樹脂のブルックフィールド粘度計を用いて測定した 177 における粘度が $5,000$ センチポアズ又はそれ以下である請求項 5 に記載の接着剤組成物。

【請求項 12】

前記グラフトポリオレフィンが少なくとも 1 種のポリオレフィンを少なくとも 1 種の不飽和ポリカルボン酸、その無水物又はそのエステルでグラフトすることによって製造される請求項 1 又は 2 に記載の接着剤組成物。

30

【請求項 13】

前記ポリオレフィンがエチレン、プロピレン、1 - ブテン、4 - メチル - 1 - ペンテン、3 - メチル - 1 - ブテン、4,4 - ジメチル - 1 - ペンテン、3 - メチルペンテン - 1、4 - メチルヘキセン - 1、5 - エチルヘキセン - 1、6 - メチルヘプテン - 1、1 - ヘキセン、1 - ヘプテン、1 - オクテン、1 - ノネン、1 - デセン又は 1 - ドデセンから選ばれた少なくとも 1 種のモノマーからの反復単位を含むホモポリマー及びコポリマーから選ばれた少なくとも 1 種である請求項 12 に記載の接着剤組成物。

【請求項 14】

40

前記グラフトポリオレフィンが遊離基源の存在下における前記ポリオレフィンと不飽和ポリカルボン酸、無水物又はエステルとの反応によって製造される請求項 12 に記載の接着剤組成物。

【請求項 15】

前記ポリオレフィンが低粘度ポリオレフィンである請求項 14 に記載の接着剤組成物。

【請求項 16】

前記遊離基源がペルオキシド、アゾ化合物及び照射源からなる群から選ばれる請求項 14 に記載の接着剤組成物。

【請求項 17】

前記遊離基源の量が、ポリオレフィンの重量に基づき、 $0.01 \sim 0.5$ 重量% の範囲

50

である請求項 1 6 に記載の接着剤組成物。

【請求項 1 8】

前記ポリカルボン酸、その無水物又はそのエステル量が、前記ポリオレフィンの重量に基づき、1 重量% ~ 10 重量%の範囲である請求項 1 2 に記載の接着剤組成物。

【請求項 1 9】

前記ポリカルボン酸又は無水物がマレイン酸、無水マレイン酸、フマル酸、シトラコン酸無水物、アコナイトリック・アンハイドライド、イタコン酸無水物及びそれらの混合物からなる群から選ばれた少なくとも 1 種である請求項 1 2 に記載の接着剤組成物。

【請求項 2 0】

前記ポリカルボン酸エステルがマレイン酸メチル、マレイン酸エチル、マレイン酸ジメチル、フマル酸ジメチル、マレイン酸メチルエチル、マレイン酸ジブチル及びマレイン酸ジプロピルから得られるハーフエステル若しくはフルエステル、又は高い反応温度でこれらの化合物を形成する化合物からなる群から選ばれた少なくとも 1 種である請求項 1 2 に記載の接着剤組成物。

10

【請求項 2 1】

前記グラフトポリオレフィンが押出機又はバンパリーミキサー中で製造される請求項 1 2 に記載の接着剤組成物。

【請求項 2 2】

前記グラフトポリオレフィンが、グラフトポリオレフィンの鹸化価が 3 ~ 60 となるように、少なくとも 1 種のポリカルボン酸、その無水物又はそのエステルと反応させられている請求項 1 2 に記載の接着剤組成物。

20

【請求項 2 3】

前記グラフトポリオレフィンが 150 において 350 ~ 15,000 センチポアズの粘度を有する請求項 1 2 に記載の接着剤組成物。

【請求項 2 4】

前記コポリマーの量が、接着剤組成物の重量に基づき、30 重量% ~ 80 重量%の範囲である請求項 1 又は 2 に記載の接着剤組成物。

【請求項 2 5】

前記グラフトポリオレフィンの量が、接着剤組成物の重量に基づき、2 重量% ~ 25 重量%の範囲である請求項 1 又は 2 に記載の接着剤組成物。

30

【請求項 2 6】

前記粘着付与剤樹脂の量が、接着剤組成物の重量に基づき、15 重量% ~ 45 重量%の範囲である請求項 1 又は 2 に記載の接着剤組成物。

【請求項 2 7】

前記接着剤組成物の繊維引き裂け開始が -3.9 (25°F) 未満の範囲である請求項 1 又は 2 に記載の接着剤組成物。

【請求項 2 8】

前記接着剤組成物の繊維引き裂け開始が -9.4 (15°F) 未満の範囲である請求項 2 7 に記載の接着剤組成物。

【請求項 2 9】

前記接着剤組成物が 43.3 (110°F) より高い剥離接着破壊温度を有する請求項 1 又は 2 に記載の接着剤組成物。

40

【請求項 3 0】

前記接着剤組成物が 43.3 ~ 65.6 (110°F ~ 150°F) の範囲の剥離接着破壊温度を有する請求項 2 9 に記載の接着剤組成物。

【請求項 3 1】

前記接着剤組成物が 82.2 (180°F) より高い剪断接着破壊温度を有する請求項 1 又は 2 に記載の接着剤組成物。

【請求項 3 2】

前記接着剤組成物が 82.2 ~ 115.6 (180°F ~ 240°F) の範囲の剪

50

断接着破壊温度を有する請求項 3 1 に記載の接着剤組成物。

【請求項 3 3】

エチレン及び少なくとも 1 種の - オレフィンからの反復単位を含む少なくとも 1 種の
コポリマー、少なくとも 1 種の粘着付与剤樹脂及び 1 9 0 において 1 0 0 0 ~ 5 0 0 0
g / 1 0 分の範囲のメルトインデックスを有する少なくとも 1 種のグラフトポリオレフィ
ンを接触させることを含んでなる、請求項 1 又は 2 に記載の接着剤組成物の製造方法。

【請求項 3 4】

前記接触を 1 6 0 ~ 2 0 0 の範囲の温度において実施する請求項 3 3 に記載の方法
。

【請求項 3 5】

グラフト化ポリオレフィンがマレイン化ポリエチレンであり、そして前記コポリマーが
0 . 8 5 g / m l ~ 0 . 9 5 g / m l の密度を有する請求項 3 4 に記載の方法。

【請求項 3 6】

前記水素添加炭化水素樹脂が脂環式である請求項 3 5 に記載の方法。

【請求項 3 7】

請求項 1 又は 2 に記載の接着剤組成物及び基材を含んでなる製品。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は接着剤組成物に関する。更に詳しくは、本発明は、エチレン及び少なくとも 1
種の - オレフィンからの反復単位を含む少なくとも 1 種のコポリマー、少なくとも 1 種
の粘着付与剤樹脂並びに少なくとも 1 種のグラフトポリオレフィンを含んでなる接着剤組
成物に関する。

【背景技術】

【0002】

ホットメルト接着剤は種々の包装用途のために当業界において広く用いられている。こ
のような用途のほとんどにおいて、接着剤は速い硬化時間、良好な機械加工性及び良好な
耐接着老化性を有することが要求される。更に、接着剤は可能な限り広い温度範囲にわた
って接着を維持することが望ましい。

【0003】

ほとんどのホットメルト接着剤はポリエチレン又はエチレン - 酢酸ビニルコポリマーを
基剤とする。ポリエチレン及び化学的に改質されたポリエチレン基剤製剤は、優れた高温
特性を有する傾向があるのに対し、エチレン - 酢酸ビニル基剤接着剤は非常に良好な低温
特性を有する傾向がある。これらの 2 種の接着剤のいずれかを使用するかという選択は、
最終用途に必要な特性による。より広い温度特性を得るためにポリエチレン又は化学的に
改質されたポリエチレンとエチレン - 酢酸ビニルとをブレンドしても、相溶性の問題のた
めにそれほど有効でないことが多い。従って、広い温度範囲にわたって良好な接着強度を
有する包装用のホットメルト接着剤はこれまであり得なかった。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

前述の点を考えると、多岐にわたる用途に接着剤を使用できるように、高温及び低温に
おいて優れた接着強度を有するホットメルト接着剤を製造できれば望ましいであろう。

【課題を解決するための手段】

【0005】

意外なことに、少なくとも 1 種のグラフトポリオレフィンと、エチレン及び オレフ
インからの反復単位を含む少なくとも 1 種のコポリマー並びに少なくとも 1 種の粘着付与
剤樹脂とを混和することによって、低温及び高温の両方において優れた接着性を有する接
着剤組成物が得られることを見出した。具体的には、これは、本発明の接着剤組成物の優
れた剪断接着破壊試験 (Shear Adhesion Failure Test ; S

10

20

30

40

50

AFT)、剥離接着破壊試験(Peel Adhesive Failure Test; PAFT)及び繊維引き裂け開始(Onset of Fiber Tear)の値によって示される。

【0006】

本発明の一実施態様によれば、エチレン及び少なくとも1種の - オレフィンからの反復単位を含む少なくとも1種のコポリマー、少なくとも1種の粘着付与剤樹脂並びに少なくとも1種のグラフトポリオレフィンを含む、繊維引き裂け開始が35 ° F未満の接着剤組成物が提供される。

【0007】

本発明の別の実施態様によれば、エチレン及び少なくとも1種の - オレフィンからの反復単位を含む少なくとも1種のコポリマー、少なくとも1種の粘着付与剤樹脂並びに少なくとも1種のグラフトポリオレフィンを含んでなる、剪断接着破壊温度が180 ° Fより高い、接着剤組成物が提供される。

10

【0008】

本発明の別の実施態様によれば、エチレン及び少なくとも1種の - オレフィンからの反復単位を含む少なくとも1種のコポリマー、少なくとも1種の粘着付与剤樹脂並びに少なくとも1種のグラフトポリオレフィンを含む、剥離接着破壊温度が110 ° Fより高い接着剤組成物が提供される。

【0009】

本発明によれば、接着剤組成物及び基材(substrate)を含んでなる製品が提供される。詳細には、この製品はパッケージ又はボール箱であることができる。

20

【0010】

本発明によれば、接着剤組成物の製造方法が提供される。この方法は、エチレン及び少なくとも1種の - オレフィンからの反復単位を含む少なくとも1種のコポリマー、少なくとも1種の粘着付与剤樹脂並びに少なくとも1種のグラフトポリオレフィンを接触させて接着剤組成物を生成せしめることを含んでなる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0011】

本発明においては、

(a) エチレン及び少なくとも1種の - オレフィンからの反復単位を含む少なくとも1種のコポリマー；

30

(b) 少なくとも1種の粘着付与剤樹脂；並びに

(c) 少なくとも1種のグラフトポリオレフィン

を含んでなり、そして35 ° F未満の繊維引き裂け開始を有する接着剤組成物が提供される。

【0012】

エチレン及び少なくとも1種の - オレフィンからの反復単位を含むコポリマーは線状コポリマー、実質的に線状のコポリマー又は分岐コポリマーであることができる。以下、このコポリマーを「エチレンコポリマー」と称するものとする。この用語は、エチレン及び少なくとも1種の - オレフィンからの反復単位を含む任意のコポリマー、ターポリマー又はインターポリマーを意味する。用語「線状エチレンコポリマー」は、エチレンコポリマーが長鎖分岐を有さないことを意味する。用語「実質的に線状のエチレンコポリマー」は、ポリマー主鎖が、炭素原子1000個あたり、0.01~3個の長鎖分岐で置換されていることを意味する。線状又は実質的に線状のポリエチレンは一般に1.5~2.5の多分散度(polydispersity)を有し、これは、線状又は実質的に線状のポリエチレンが狭い分子量分布を有することを意味する。用語「分岐エチレンコポリマー」は、ポリマー主鎖が炭素原子1000個あたり3個より多い長鎖分岐で置換されていることを意味する。

40

【0013】

一般に、 - オレフィンは3~12個、好ましくは3~8個の炭素原子を有する。

50

オレフィンの適当な例としては、 $C_2 \sim C_{10}$ の α -オレフィン、特に1-プロペン、1-ブテン、イソブチレン、1-ヘキセン、4-メチル-1-ペンテン及び1-オクテンが挙げられるが、これらに限定されるものではない。好ましくは α -オレフィンはブテン及びオクテンである。

【0014】

エチレンコポリマーは、 $0.85 \text{ g/ml} \sim 0.92 \text{ g/ml}$ 、好ましくは $0.87 \text{ g/ml} \sim 0.91 \text{ g/ml}$ 、最も好ましくは $0.89 \text{ g/ml} \sim 0.91 \text{ g/ml}$ の範囲の低密度を有する。低密度の線状、実質的に線状又は分岐ポリエチレンを合成するためには、コモノマーを使用しなければならない。

【0015】

エチレンコポリマーは、 $0.85 \text{ g/ml} \sim 0.92 \text{ g/ml}$ の範囲の密度を有するエチレンコポリマーを生成できる当業界で知られた任意の方法によって製造できる。線状及び分岐ポリエチレンはいずれも、気相重合法、懸濁重合法、スラリーループ重合法及び溶液重合法（これらに限定されるものではないが）を含む種々の方法によって製造できる。

【0016】

線状又は実質的に線状のポリエチレンを合成するためには、メタロセン触媒又はシングルサイト系触媒を使用できる。メタロセン触媒はチーグラ-ナッタ触媒の一部である。チーグラ-ナッタ触媒は、重合するモノマー中に可溶及び不溶のキレート化金属（有機金属触媒）を含む。メタロセン触媒は、配位子部分を含むキレート化金属である。配位子部分は、エチレンモノマー中への触媒の溶解性を増す。更に、メタロセン触媒は、狭い分子
20
量分布をもたらす単一の活性部位を含む。 $0.85 \text{ g/ml} \sim 0.92 \text{ g/ml}$ の範囲の密度を有するエチレンコポリマーを生成できる任意のメタロセンを使用できる。

【0017】

米国特許第5,278,272号及び第5,272,236号（いずれも参照することによって本明細書中に組み入れる）は線状及び実質的に線状のエチレンコポリマーの製造方法を開示している。

【0018】

分岐ポリエチレンの合成に関しては、使用触媒は一般にエチレンモノマーに不溶である。種々の触媒を使用できる。一般的な触媒はクロム系触媒である。更に、これらの触媒は、一般的には部位特異的でないので、比較的に広い分子量分布が得られる。米国特許第3
30
,645,992号は、分岐エチレンコポリマーの製造方法を開示しており、この特許を参照することによって本明細書中に組み入れる。

【0019】

一般に、エチレンコポリマーを製造するための重合は、チーグラ-ナッタ又はカミンスキー-シン（Kaminsky-Sinn）型重合反応に関して先行技術においてよく知られた条件、即ち、 $0 \sim 250$ の温度及び大気圧 ~ 1000 気圧（ 100 MPa ）の圧力において実施できる。所望ならば、懸濁、溶液、スラリー、気相又はプロセス条件を使用できる。担体を使用することができるが、触媒は好ましくは均一法で使用する。触媒及びその助触媒成分を重合プロセスに直接添加し且つ縮合モノマーを含む適当な溶媒又は希釈剤を重合プロセスに使用する場合には、活性触媒系、特に非イオン触媒は現場で形成されることは、言うまでもない。しかし、活性触媒は、重合混合物への活性触媒の添加前に適当な溶媒中で別個の工程で形成するのが好ましい。

【0020】

線状ポリエチレンの供給源としては、ExxonのExact（登録商標）ポリエチレン、DowのAffinity（登録商標）ポリエチレン、AtofinaのFinacene（登録商標）ポリエチレン及びMitsui Petrochemical CompanyのTafmer（登録商標）ポリエチレンが挙げられるが、これらに限定されるものではない。分岐エチレンコポリマーの供給源は、Eastman Chemical Company製のEpolene（登録商標）ポリエチレンとして得ることができる。
50

【 0 0 2 1 】

粘着付与剤樹脂はエチレンコポリマー及びグラフトポリオレフィンと相溶性の公知の任意の粘着付与剤樹脂であることができる。「相溶性」とは、異なる接着剤成分と一緒に配合されて均一系を形成することできることを意味する。用語「粘着付与剤 (t a c k i f i e r) 」とは、接着剤組成物に粘着性を付与するのに有用な任意のいくつかの組成物のいずれかを意味する。

【 0 0 2 2 】

適当な類の粘着付与剤としては、脂肪族樹脂、脂環式樹脂、芳香族炭化水素樹脂、脂肪族 - 芳香族混合樹脂、ポリテルペン、芳香族変性テルペン樹脂、ロジン、ロジンエステル及び水素添加ロジンエステル並びにそれらの混合物が挙げられるが、これらに限定されるものではない。これらの粘着付与剤はまた、異なる水素添加度又は飽和度を有することができ、種々の化合物によって改質されることもできる。改質剤としては、エチレンのホモポリマー、コポリマー及びターポリマー、エチレン - 酢酸ビニル、n - ブチルアクリレートコポリマー、エチレンメタクリレートコポリマー、エチレンアクリル酸コポリマー並びにトリブロック、ジブロック及びマルチブロック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。好ましくは、粘着付与樹脂は少なくとも1種の水素添加炭化水素樹脂であることができ、最も好ましくは、粘着付与剤は少なくとも1種の部分水素添加脂環式炭化水素樹脂であることができる。

【 0 0 2 3 】

粘着付与剤樹脂は環球式軟化点が70 ~ 150、好ましくは90 ~ 140、最も好ましくは100 ~ 135であることを特徴とすることができる。粘着付与剤樹脂は、ブルックフィールド粘度計を用いて測定された、177における粘度が5,000センチポアズ又はそれ以下であることができる。

【 0 0 2 4 】

脂肪族樹脂は、アルカン、アルケン及びアルキンから選ばれた少なくとも1種のモノマーから製造された粘着付与剤と定義する。これらのモノマーは、直鎖又は分岐鎖であることができる。例えば、脂肪族樹脂は、シス - 及びトランス - ピペリレン、イソプレン及びジシクロペンタジエンを重合させることによって製造できる。脂肪族樹脂の例としては、Eastman Chemical製のPiccotac (登録商標) 1095; Kolon Industriesから入手できるHikorez (登録商標) C - 110; 及びGoodyear Chemicalから入手できるWingtack (登録商標) 95が挙げられるが、これらに限定されるものではない。水素添加脂環式樹脂としては、Eastman Chemicalから入手できるEastotac (登録商標) H - 100、Eastotac (登録商標) H - 115、Eastotac (登録商標) H - 130、及びEastotac (登録商標) H - 142が挙げられるが、これらに限定されるものではない。これらの粘着付与剤樹脂は、環球式軟化点が、それぞれ、100、115、130及び142)である。Eastotac (登録商標) 樹脂は、水素添加レベルが異なる、種々の等級 (E、R、L及びW) で入手することができる。

【 0 0 2 5 】

芳香族炭化水素樹脂は1個又はそれ以上の環を有する少なくとも1種の不飽和環状炭化水素モノマーから製造される炭化水素樹脂と定義する。例えば、芳香族炭化水素樹脂は、ルイス酸の存在下におけるインデン又はメチルインデンとスチレン又はメチルスチレンとの重合によって製造できる。芳香族炭化水素樹脂の商業的例としては、Eastman Chemicalから入手できるKristalex (登録商標) 3100及びKristalex (登録商標) 5140が挙げられるが、これらに限定されるものではない。水素添加芳香族樹脂としては、Eastman Chemicalから入手できるRegalrez (登録商標) 1094及びRegalrez (登録商標) 1128が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【 0 0 2 6 】

脂肪族 - 芳香族粘着付与剤樹脂は少なくとも1種の脂肪族モノマー及び少なくとも1種

10

20

30

40

50

の芳香族モノマーから製造される。脂肪族モノマー及び芳香族モノマーについては、本明細書の開示において前に定義した。脂肪族 - 芳香族粘着付与剤樹脂の例としては、Eastman Chemical から入手できる Piccofac (登録商標) 9095 及び Goodyear Chemical から入手できる Wingtack (登録商標) Extra が挙げられるが、これらに限定されるものではない。水素添加脂肪族 - 芳香族樹脂としては、Eastman Chemical から入手できる Regalite (登録商標) V3100 及び Exxon Mobil Chemical から入手できる Escorrez (登録商標) 5600 が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0027】

ポリテルペン樹脂は少なくとも1種のテルペンモノマーから製造される粘着付与剤樹脂と定義する。例えば、 α -ピネン、 β -ピネン、d-リモネン及びジペンテンを塩化アルミニウムの存在下で重合させて、ポリテルペン粘着付与剤樹脂を製造できる。ポリテルペン粘着付与剤樹脂の他の例としては、Arizona Chemical から入手できる Sylvares (登録商標) TR 1100 及び Pinova から入手できる Piccolyte (登録商標) A125 が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0028】

芳香族変性テルペン樹脂の例としては、Arizona Chemical から入手できる Sylvares (登録商標) ZT 105LT 及び Sylvares (登録商標) ZT 115LT が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0029】

ロジン及びロジン誘導体の例としてはガムロジン、ウッドロジン、タル油ロジン、二量化ロジン及び重合ロジンが挙げられる。その例としては、Eastman Chemical から入手できる Foral (登録商標) AX-E、Foralyn (登録商標) 90、Dymerex (登録商標) 樹脂、Polystix (登録商標) 90 及び Permalyn (登録商標) 3100 が挙げられるが、これらに限定されるものではない。他の有用な例は、Arizona Chemical から入手できる Sylvatrac (登録商標) RE4216 及び Sylvatrac (登録商標) RE85 である。当業界で知られた任意のグラフトポリオレフィンの本発明に使用できる。ポリオレフィンは、少なくとも1種の不飽和ポリカルボン酸、その無水物又はそのエステルでグラフト化することができる。不飽和ポリカルボン酸は、少なくとも2つのカルボキシル基を含む有機酸である。グラフト化できるポリオレフィンは炭素数が少なくとも2のオレフィンから得られる。このようなポリオレフィンとしては、エチレン、プロピレン、1-ブテン、4-メチル-1-ペンテン、3-メチル-1-ブテン、4,4-ジメチル-1-ペンテン、3-メチルペンテン-1、4-メチルヘキセン-1、5-エチルヘキセン-1、6-メチルヘプテン-1、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、及び1-ドデセンなどから選ばれた少なくとも1種のモノマーからの反復単位を含むホモポリマー及び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。

【0030】

グラフトポリオレフィンは当業界で知られた任意の方法で製造できる。一実施態様において、ポリオレフィンと不飽和ポリカルボン酸、その無水物又はそのエステルとの反応は遊離基源の存在下で実施できる。反応を容易にするために、低粘度ポリオレフィンを使用できる。これらの低粘度ポリオレフィンは、従来の重合法によって製造される従来型の高分子量ポリオレフィンを熱分解することによって得ることができる。例えば、このような適当な従来型のポリオレフィンの1つは、米国特許第2,969,345号に従って製造される高結晶質ポリプロピレンである。従来型のホモポリマー又はコポリマーの熱分解は、それらを高温で加熱して、ポリオレフィン鎖を外見上はポリマー材料の鎖分岐点において破断させることによって実施できる。分解度を反応時間及び温度によって制御して、190 において100~5,000 cp (ASTM D-1238; 0.04+0.0002 インチのオリフィスを使用) の熔融粘度範囲を有する熱分解低分子量結晶性ポリマー材料が得られる。時間、温度及び攪拌を慎重に制御することによって、出発高分子量ポリオ

10

20

30

40

50

レフィンよりも比較的狭い分子量範囲を有する熱分解ポリオレフィンが得られる。分解は 290 ~ 425 の温度において実施できる。

【0031】

次いで、これらの低粘度ポリオレフィンは、遊離基源の存在下で一般には 300 未満、好ましくは 150 ~ 250 の温度において不飽和ポリカルボン酸、それらの無水物又はエステルと反応させることができる。適当な遊離基源としては、ペルオキシド、例えばジ-tert-ブチルペルオキシド、tert-ブチルヒドロペルオキシド、クメンヒドロペルオキシド、p-メタンペルオキシド、p-メタンヒドロペルオキシド化合物；アゾ化合物、例えばアゾビス（イソブチロニトリル）；並びに照射源、例えばコバルト、ウラン、トリウム及び紫外線が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

10

【0032】

好ましくは、低粘度ポリオレフィンの重量に基づき、1 ~ 10 %の不飽和ポリカルボン酸、その無水物又はエステルを使用できる。遊離基源の量は、低粘度ポリオレフィンの重量に基づき、0.01 ~ 0.5 %の範囲であることができる。反応は、約 10 分 ~ 約 2 時間程度の接触時間を用いて回分式又は連続式で実施できる。

【0033】

適当な不飽和ポリカルボン酸及び無水物としては、マレイン酸、無水マレイン酸、フマル酸、シトラコン酸無水物、アコナイトリック・アンハイドライド (aconitric anhydride)、イタコン酸無水物及びそれらの混合物が挙げられるが、これらに限定されるものではない。適当なエステルは、例えばマレイン酸メチル、マレイン酸エチル、マレイン酸ジメチル、フマル酸ジメチル、マレイン酸メチルエチル、マレイン酸ジブチル、マレイン酸ジプロピルなどから得られるハーフエステル若しくはフルエステル、又は例えばクエン酸のような、高温でこれらの化合物を形成する化合物である。

20

【0034】

ポリオレフィンの反応は、押出機又はバンバリーミキサー中で実施できる。グラフトポリオレフィンの製造方法は、米国特許第 3,480,580 号、第 3,481,910 号、第 3,856,889 号に開示されており、これらの開示を参照することによって本明細書中に組み入れる。

【0035】

一実施態様において、グラフトポリオレフィンは、鹸化価が 3 ~ 60、好ましくは 3 ~ 10、より好ましくは 3 ~ 7 となるような程度まで反応させる。グラフトポリオレフィンの鹸化価は ASTM D-1994-95 によって測定した。

30

【0036】

本発明の接着剤組成物中に使用するグラフトポリオレフィンは 150 において 350 ~ 15,000 センチポアズの粘度を有することができる。グラフトポリオレフィンの粘度は 150 において 2,000 ~ 8,000 センチポアズの範囲であることもできる。グラフトポリオレフィンの粘度は ASTM D-3236 によって測定した。

【0037】

本発明の接着剤組成物に使用するグラフトポリオレフィンは 190 において 100 ~ 5,000 g / 10 分の範囲のメルトインデックスを有することができる。グラフトポリオレフィンのメルトインデックスは 190 において 1,000 ~ 5,000 g / 10 分又は 190 において 2,000 ~ 4,000 g / 10 分の範囲であることもできる。メルトインデックスの測定には ASTM D-1238 を用いた。エチレンコポリマー、粘着付与剤樹脂及びグラフトポリオレフィンの量は、35 ° F 未満の繊維引き裂け開始を得るのに十分なものである。本発明の一実施態様において、エチレンコポリマーの量は、接着剤組成物の重量に基づき、30 重量% ~ 80 重量%、好ましくは 50 重量% ~ 70 重量%の範囲であることができる。グラフトポリオレフィンの量は、接着剤組成物の重量に基づき、2 重量% ~ 25 重量%、好ましくは 5 重量% ~ 15 重量%の範囲であることができる。粘着付与剤樹脂の量は、接着剤組成物の重量に基づき、15 重量% ~ 45 重量%、好ましくは 25 重量% ~ 35 重量%の範囲であることができる。

40

50

【0038】

所望の性質を得るために又は分解を防止するために、或いは任意の他の目的で、本発明の接着剤組成物には種々の添加剤を添加できる。このような添加剤としては、強化材、難燃剤、発泡剤、常用の粘着付与剤、可塑剤、油、酸化防止剤、ポリマー、硬化性/反応性モノマー、架橋剤、充填剤、染料及び顔料が挙げられるが、これらに限定されるものではない。可能な配合成分の数のために、本発明に従って製造される接着剤組成物の性質は、使用する基材の組合せが何であっても、粘着性、剥離、強度、剪断強度及び耐溶剤性に関するほとんどの予測可能な要件を満たすために変化させることができる。

【0039】

本発明の接着剤は安定剤又は酸化防止剤を含むこともできる。これらの添加剤は、熱、光不飽和度又は原料からの残留触媒によって開始される酸素との反応によって引き起こされる接着剤の分解を防ぐ。適当な安定剤及び酸化防止剤としては、ヒンダードフェノール及び多官能価フェノール、例えば硫黄及び燐含有フェノールが挙げられるが、これらに限定されるものではない。代表的なヒンダードフェノールとしては以下のものが挙げられるが、これらに限定されるものではない：4,4'-チオビス(6-tert-ブチル-o-クレゾール)；6-(4-ヒドロキシフェノキシ)-2,4-ビス(n-オクチル-チオ)-1,3,5-トリアジン；1,3,5-トリメチル-2,4,6-トリ(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン；2,6-ジ-tert-ブチルフェノール；亜鉛ジブチルジチオカルバメート；4,4'-メチレン-ビス-(2,6-ジ-tert-ブチルフェノール)；テトラキス[メチレン-3-(3',5'-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)-プロピオネート]-メタン；ペンタエリスリトールテトラキス-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；ラウリルステアリルチオジプロピオネート；ソルビトールヘキサ[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]；ジラウリル3,3'-チオジプロピオネート；2,6-ジ-tert-ブチル-p-クレゾール；オクタデシル-3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェノール)-プロピオネートなど。酸化防止剤の有用な例としては、Irganox(登録商標)565、1010及び1076、Irgafos(登録商標)168、Cyanox(登録商標)DLTDP及び1212が挙げられるが、これらに限定されるものではない。これらの安定剤及び酸化防止剤は、使用する場合には、一般に0.1重量%~1.5重量%、より好ましくは0.25重量%~1.0重量%の量で存在する。

【0040】

本発明の別の実施態様においては接着剤組成物の製造方法が提供される。この方法は、少なくとも1種のエチレンコポリマー、少なくとも1種の粘着付与剤樹脂、及び少なくとも1種のグラフトポリオレフィンを接触させることを含む。この接触は当業界で知られた任意の方法で実施できる。

【0041】

一実施態様において、エチレンコポリマー、グラフトポリオレフィン及び粘着付与剤樹脂は160~200の温度において溶融させ、均質混合物が得られるまで混合する。この型の材料の種々の混合方法は当業界に知られており、均質混合物を製造する任意の方法で充分である。一般に、これらの成分は容易にブレンドするので、必要なのは、攪拌機を装着した加熱容器だけである。例えば、Cowles攪拌機は、これらの接着剤組成物を製造するのに有効な混合を提供する。本発明の接着剤組成物の製造には、ヘキサン、ヘプタン、ミネラルスピリット、キシレン、トルエン、ベンゼン、塩素化炭化水素(これらに限定されるものではない)のような溶剤は必要ないが、所望ならば使用できる。

【0042】

本発明の別の実施態様において、接着剤組成物の製造方法が提供される。この方法は、160~200の範囲の温度において0.85g/ml~0.92g/mlの密度を有する少なくとも1種のエチレンコポリマー、マレイン化ポリエチレン及び少なくとも1種の水素添加炭化水素樹脂を接触させて接着剤組成物を生成させることを含む。

【0043】

本発明の別の実施態様において、接着剤組成物の製造方法が提供される。この方法は、160 ~ 200 の範囲の温度において0.85 g/ml ~ 0.92 g/mlの密度を有する少なくとも1種のエチレンコポリマー、マレイン化ポリエチレン及び少なくとも1種の部分水素添加脂環式炭化水素樹脂を接触させて、接着剤組成物を生成させることを含む。

【0044】

本発明の更に別の実施態様において、接着剤組成物の製造方法が提供される。この方法は、1) 0.85 g/ml ~ 0.92 g/mlの密度を有する少なくとも1種のエチレンコポリマー、マレイン化ポリエチレン及び少なくとも1種の部分水素添加炭化水素樹脂を160 ~ 200 の範囲の温度において加熱してメルトを生成させ；そして2) メルトを混合して接着剤組成物を生成させることを含む。

10

【0045】

次に、本発明の接着剤組成物は、メルト相である間に基材表面に押出することによって基材に適用し、次いで、第2の基材又は同一基材の第2の表面である別の表面と接触させることができる。適当な基材としては、紙、段ボール、チップボード、カードストック・フィルム及びフィルム材料が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0046】

本発明の接着剤組成物は、グラフトポリオレフィンを含まない接着剤に比べて、改良された性質を有する。本発明の接着剤組成物の繊維引き裂け開始は35 °F未満、好ましくは25 °F未満、最も好ましくは15 °F未満であることができる。

20

【0047】

本発明の接着剤組成物の剪断接着破壊試験(SAFT)は、180 °Fより高い、好ましくは180 °F ~ 240 °Fの範囲である。

【0048】

本発明の接着剤組成物の剥離接着破壊試験(PAFT)は110 °Fより高い、好ましくは110 °F ~ 150 °Fの範囲である。

【実施例】

【0049】

本発明を、その好ましい実施態様に関する以下の実施例によって更に説明することができるが、これらの実施例は単に説明のために記載するのであって、本発明の範囲を限定することを目的としないことは言うまでもない。

30

【0050】

いくつかの接着剤組成物を以下のようにして製造した。成分は全て1ポイント反応器に装入した。次いで、反応器を15 ~ 20分にわたって177 に置いた。オープン中で予熱した後、接着剤組成物を、機械的攪拌機且つ200 に設定された加熱用ブロックを用いて、30 ~ 40分間混合した。接着剤組成物を剥離紙上にデカントし、冷却した。

【0051】

接着剤組成物の性能は段ボールの低温試験、PAFT(剥離接着破壊温度)及びSAFT(剪断接着破壊温度)によって測定した。

40

【0052】

段ボールの低温試験は繊維引き裂け開始によって測定した。この試験は以下のようにして行った。約10 ~ 15 gの接着剤組成物を含むアルミニウム秤量皿を177 に15 ~ 20分間置いた。加熱後、接着剤の少量のアリコート、約0.5 ~ 1 gを2インチ×2.5インチの寸法の厚紙の試験片上にデカントした。同じ寸法の厚紙の第2の試験片を直ちに上に置き、指圧を軽く加え、接着層を冷却させた。サンプルを70 °F / 相対湿度50%において一晚コンディショニングした。次いで、接着されたサンプルを、所定の温度の冷凍室に入れ、30分間状態調整した。サンプルを手で引き離し、繊維引裂け%を記録した。種々の温度を評価した。繊維引き裂け開始が起こる温度を記録した。Jefferson Smurfitからの再生及び未使用厚紙を評価した。

50

【 0 0 5 3 】

P A F Tの結果は、A S T M D - 4 4 9 8に従って測定したものである。4 0 1 bのK r a f t紙を用いて接着サンプルを作った。接着層の厚さは約0 . 0 1 0 " ~ 0 . 0 1 5 "であった。接着サンプルをオープン中に入れ、A S T M法に従って1 0 0 gの重りをつるした。オープンの初期温度は3 0 であつた。次いで、接着層を0 . 5 /分の加熱速度に供した。破壊までの時間を記録し、剥離接着破壊温度に換算した。

【 0 0 5 4 】

S A F Tの結果は、A S T M D - 4 4 9 8に従って測定したものである。4 0 1 bのK r a f t紙を用いて接着サンプルを作った。接着層の厚さは約0 . 0 1 0 " ~ 0 . 0 1 5 "であった。接着サンプルをオープン中に入れ、A S T M法に従って5 0 0 gの重りをつるした。オープンの初期温度は3 0 であつた。次いで、接着層を0 . 5 /分の加熱速度に供した。破壊までの時間を記録し、剪断接着破壊温度に換算した。

10

【 0 0 5 5 】

線状又は分岐ポリエチレン(P E)を用いて接着剤組成物を製造した。以下は具体的な接着剤の例及び対応する結果である。

【 0 0 5 6 】

【表 1】

接着剤配合物						
接着剤	基剤ポリマー の種類	基剤ポリマー (部)	粘着付与剤 樹脂	粘着付与剤 樹脂 (部)	添加剤	添加剤 (部)
比較# 1	線状 PE d=0.9035 g/mL	70	Eastotac® H-130R	30		
比較# 2	線状 PE d=0.9035 g/mL	70	Eastotac® H-130W	30		
比較# 3	線状 PE d=0.9035 g/mL	65	Eastotac® H-130R	30	Epolene® C-15 (非マレイン化 ポリエチレン)	5
本発明# 4	線状 PE d=0.9035 g/mL	65	Eastotac® H-130R	30	Epolene® C-18 (マレイン化 ポリエチレン)	5
比較# 5	線状 PE d=0.9070 g/mL	73	Exxon Escorez® 5637	27		
比較# 6	分岐 PE d=0.9060 g/mL	73	Eastotac® H-115W	27		
本発明# 7	分岐 PE d=0.9060 g/mL	73	Eastotac® H-115W	22	Epolene® C-18 (マレイン化 ポリエチレン)	5
本発明# 8	線状 PE d=0.9035 g/mL	64.5	Eastotac® H-130R	27.5	Epolene® C-18 (マレイン化 ポリエチレン)	7.5
比較# 9	線状 PE d=0.9039 g/mL	69.5	Eastotac® H-130R	30		
本発明# 10	線状 PE d=0.9039 g/mL	64.5	Eastotac® H-130R	27.5	Epolene® C-18 (マレイン化 ポリエチレン)	7.5

注：接着剤配合物は全てIrganox 1010 酸化防止剤を0.5部含んでいた。

【0057】

接着試験の結果を表IIに示す。

【0058】

10

20

30

40

【表 2】

表II－接着剤の結果				
接着剤	PAFT, ° F	SAFT, ° F	繊維の引き裂け 開始 (° F) (未使用厚紙)	繊維の引き裂け 開始 (° F) (再生厚紙)
比較 # 1	127.3 ±4.5	記録せず	45－50	45－50
比較 # 2	128.4 ±5.3	記録せず	45－50	45－50
比較 # 3	124.5 ±2.7	記録せず	45－50	45－50
本発明 # 4	138.0 ±3.4	記録せず	15－20	15－20
比較 # 5	128.9 ±3.4	220.9 ±7.3	45－50	45－50
比較 # 6	119.6 ±0.4	197 ±16.6	25－30	25－30
本発明 # 7	124.5 ±3.4	206 ±17.0	0－5	0－5
本発明 # 8	136.5 ±5.4	記録せず	10－15	10－15
比較 # 9	130.8 ±4.6	211.9 ±2.8	35－40	35－40
本発明 # 10	143.8 ±4.5	216.8 ±5.1	0－5	0－5

【0059】

比較接着剤 # 1 及び # 2 は、線状 PE 及び粘着付与剤樹脂を含む。PAFT 値は許容できるものであったが、段ボール (corrugated cardboard) 上の低温性能が不十分であった。本発明の接着剤 # 4 に示されるように、マレイン化ポリエチレンの混和は、接着剤の性能ウィンドウを広げた。PAFT 値及び低温性能は共に劇的に改良された。繊維引き裂け開始は、マレイン化 PE を含まない比較接着剤 # 1 及び # 2 が 45 ~ 50 ° F であったのに比較して、本発明の接着剤 # 3 は 15 ~ 20 ° F であった。

【0060】

比較のために、非マレイン化 PE を含む接着剤を評価した。Eastman Chemical Company から入手した Epolene (登録商標) C15 非マレイン化 PE を用いて、比較接着剤 # 3 を合成した。PAFT 及び低温の結果から、接着性が改良されなかったことがわかる。

【0061】

比較接着剤 # 5 は、線状 PE 及び Exxon Escorez (登録商標) 5637 粘着付与剤樹脂を含む接着剤組成物であった。線状 PE を含む接着剤は、接着剤 # 1 ~ # 4 よりも高い密度を有する。PAFT の結果は、許容できるものであったが、低温性能は不十分であった。

【0062】

接着剤 # 6 及び # 7 は、分岐 PE 中への粘着付与剤樹脂の使用を示した。本発明の接着剤 # 7 へのマレイン化 PE の添加は、接着剤の温度性能、特に 0 ~ 5 ° F の範囲の低温性能を広げた。

【0063】

接着剤 # 8 ~ # 10 は、より低い密度を有する線状 P E を基材とした。この場合もやはり、マレイン化 P E の混和が接着剤の性能ウィンドウを広げたことは明らかである。比較接着剤 # 9 が 130.8 ± 4.6 の P A F T 及び $35 \sim 40^\circ \text{F}$ の繊維引き裂け開始を有するのに比較して、本発明の接着剤 # 8 及び # 10 は、P A F T がそれぞれ 136.5 ± 5.8 及び $143.8^\circ \text{F} \pm 4.5$ であり、繊維引き裂け開始がそれぞれ $10 \sim 15^\circ \text{F}$ 及び $0 \sim 5^\circ \text{F}$ であった。

【0064】

本明細書において、本発明の代表的な好ましい実施態様を開示した。具体的な用語を用いたが、それらは一般的且つ説明的な意味でのみ用い、限定のために用いるのではなく、本発明の範囲は添付した「特許請求の範囲」に記載したものである。

以下に、本発明及びその関連態様を列挙する。

態様 1 . (1) エチレン及び少なくとも 1 種の - オレフィンからの反復単位を含む少なくとも 1 種のコポリマー；

(2) 少なくとも 1 種の粘着付与剤樹脂；並びに

(3) 190 において $1000 \sim 5000 \text{ g} / 10 \text{ 分}$ の範囲のメルトインデックスを有する少なくとも 1 種のグラフトポリオレフィン
を含んでなる接着剤組成物。

態様 2 . 前記 - オレフィンの炭素数が $3 \sim 12$ である態様 1 に記載の接着剤組成物。

態様 3 . 前記コポリマーが $0.85 \text{ g} / \text{ml} \sim 0.92 \text{ g} / \text{ml}$ の範囲の密度を有する態様 1 に記載の接着剤組成物。

態様 4 . 前記粘着付与剤樹脂が脂肪族樹脂、脂環式樹脂、芳香族炭化水素樹脂、脂肪族 - 芳香族混合樹脂、ポリテルペン、芳香族変性テルペン樹脂、ロジン、ロジンエステル及び水素添加ロジンエステル並びにそれらの混合物からなる群から選ばれた少なくとも 1 種である態様 1 に記載の接着剤組成物。

態様 5 . 前記粘着付与剤樹脂が部分的又は完全に水素添加されている態様 4 に記載の接着剤組成物。

態様 6 . 前記粘着付与剤樹脂がエチレンのホモポリマー、コポリマー及びターポリマー、エチレンビニルアセテート、アクリル酸 n - ブチルコポリマー、エチレンメタクリレートコポリマー、エチレンアクリル酸コポリマー並びにトリブロック、ジブロック及びマルチブロックコポリマーからなる群から選ばれた改質剤で改質されている態様 4 に記載の接着剤組成物。

態様 7 . 前記粘着付与剤樹脂が少なくとも 1 種の水素添加炭化水素樹脂である態様 5 に記載の接着剤組成物。

態様 8 . 前記粘着付与剤樹脂が少なくとも 1 種の部分水素添加脂環式炭化水素樹脂である態様 7 に記載の接着剤組成物。

態様 9 . 前記粘着付与剤樹脂が $70 \sim 150$ の範囲の環球式軟化点を有する態様 4 に記載の接着剤組成物。

態様 10 . 前記粘着付与剤樹脂のブルックフィールド粘度計を用いて測定した 177 における粘度が $5,000$ センチポアズ又はそれ以下である態様 4 に記載の接着剤組成物。

態様 11 . 前記グラフトポリオレフィンが少なくとも 1 種のポリオレフィンを少なくとも 1 種の不飽和ポリカルボン酸、その無水物又はそのエステルでグラフトすることによって製造される態様 1 に記載の接着剤組成物。

態様 12 . 前記ポリオレフィンがエチレン、プロピレン、1 - ブテン、4 - メチル - 1 - ペンテン、3 - メチル - 1 - ブテン、4,4 - ジメチル - 1 - ペンテン、3 - メチルペンテン - 1、4 - メチルヘキセン - 1、5 - エチルヘキセン - 1、6 - メチルヘプテン - 1、1 - ヘキセン、1 - ヘプテン、1 - オクテン、1 - ノネン、1 - デセン又は 1 - ドデセンから選ばれた少なくとも 1 種のモノマーからの反復単位を含むホモポリマー及びコポリマーから選ばれた少なくとも 1 種である態様 11 に記載の接着剤組成物。

態様 13 . 前記グラフトポリオレフィンが遊離基源の存在下における前記ポリオレフィ

10

20

30

40

50

ンと不飽和ポリカルボン酸、無水物又はエステルとの反応によって製造される態様 1 1 に記載の接着剤組成物。

態様 1 4 . 前記ポリオレフィンが低粘度ポリオレフィンである態様 1 3 に記載の接着剤組成物。

態様 1 5 . 前記遊離基源がペルオキシド、アゾ化合物及び照射源からなる群から選ばれる態様 1 3 に記載の接着剤組成物。

態様 1 6 . 前記遊離基源の量が、ポリオレフィンの重量に基づき、0.01 ~ 0.5 重量%の範囲である態様 1 5 に記載の接着剤組成物。

態様 1 7 . 前記ポリカルボン酸、その無水物又はそのエステルの量が、前記ポリオレフィンの重量に基づき、1 重量% ~ 10 重量%の範囲である態様 1 1 に記載の接着剤組成物。

10

態様 1 8 . 前記ポリカルボン酸又は無水物がマレイン酸、無水マレイン酸、フマル酸、シトラコン酸無水物、アコナイトリック・アンハイドライド、イタコン酸無水物及びそれらの混合物からなる群から選ばれた少なくとも 1 種である態様 1 1 に記載の接着剤組成物。

態様 1 9 . 前記ポリカルボン酸エステルがマレイン酸メチル、マレイン酸エチル、マレイン酸ジメチル、フマル酸ジメチル、マレイン酸メチルエチル、マレイン酸ジブチル及びマレイン酸ジプロピルから得られるハーフエステル若しくはフルエステル、又は高い反応温度でこれらの化合物を形成する化合物からなる群から選ばれた少なくとも 1 種である態様 1 1 に記載の接着剤組成物。

20

態様 2 0 . 前記グラフトポリオレフィンが押出機又はバンパリーミキサー中で製造される態様 1 1 に記載の接着剤組成物。

態様 2 1 . 前記グラフトポリオレフィンが、グラフトポリオレフィンの鹸化価が 3 ~ 60 となるように、少なくとも 1 種のポリカルボン酸、その無水物又はそのエステルと反応させられている態様 1 1 に記載の接着剤組成物。

態様 2 2 . 前記グラフトポリオレフィンが 150 において 350 ~ 15,000 センチポアズの粘度を有する態様 1 1 に記載の接着剤組成物。

態様 2 3 . 前記コポリマーの量が、接着剤組成物の重量に基づき、30 重量% ~ 80 重量%の範囲である態様 1 に記載の接着剤組成物。

態様 2 4 . 前記グラフトポリオレフィンの量が、接着剤組成物の重量に基づき、2 重量% ~ 25 重量%の範囲である態様 1 に記載の接着剤組成物。

30

態様 2 5 . 前記粘着付与剤樹脂の量が、接着剤組成物の重量に基づき、15 重量% ~ 45 重量%の範囲である態様 1 に記載の接着剤組成物。

態様 2 6 . 前記接着剤組成物の繊維引き裂け開始が 25 °F 未満の範囲である態様 1 に記載の接着剤組成物。

態様 2 7 . 前記接着剤組成物の繊維引き裂け開始が 15 °F 未満の範囲である態様 2 6 に記載の接着剤組成物。

態様 2 8 . 前記接着剤組成物が 110 °F より高い剥離接着破壊温度を有する態様 1 に記載の接着剤組成物。

態様 2 9 . 前記接着剤組成物が 110 °F ~ 150 °F の範囲の剥離接着破壊温度を有する態様 2 8 に記載の接着剤組成物。

40

態様 3 0 . 前記接着剤組成物が 180 °F より高い剪断接着破壊温度を有する態様 1 に記載の接着剤組成物。

態様 3 1 . 前記接着剤組成物が 180 °F ~ 240 °F の範囲の剪断接着破壊温度を有する態様 3 0 に記載の接着剤組成物。

態様 3 2 . エチレン及び少なくとも 1 種の - オレフィンからの反復単位を含む少なくとも 1 種のコポリマー、少なくとも 1 種の粘着付与剤樹脂及び 190 において 1000 ~ 5000 g / 10 分の範囲のメルトインデックスを有する少なくとも 1 種のグラフトポリオレフィンを接触させることを含んでなる接着剤組成物の製造方法。

態様 3 3 . 前記接触を 160 ~ 200 の範囲の温度において実施する態様 3 2 に記

50

載の方法。

態様 3 4 . エチレン及び少なくとも 1 種の - オレフィンからの反復単位を含む、 0 . 8 5 g / m l ~ 0 . 9 5 g / m l の密度を有する少なくとも 1 種のコポリマー、マレイン化ポリエチレン及び少なくとも 1 種の水素添加炭化水素樹脂を、 1 6 0 ~ 2 0 0 の範囲の温度において接触させて接着剤組成物を生成することを含んでなる接着剤組成物の製造方法。

態様 3 5 . 前記水素添加炭化水素樹脂が脂環式である態様 3 4 に記載の方法。

態様 3 6 . 1) エチレン及び少なくとも 1 種の - オレフィからの反復単位を含む少なくとも 1 種のコポリマー、マレイン化ポリエチレン及び少なくとも 1 種の粘着付与剤樹脂を 1 6 0 ~ 2 0 0 の範囲の温度において加熱し ; 2) 前記コポリマー、前記マレイン化ポリエチレン及び前記粘着付与剤樹脂を混合して接着剤組成物を生成せしめることを含んでなる接着剤組成物の製造方法。

態様 3 7 . 前記コポリマーが 0 . 8 5 g / m l ~ 0 . 9 2 g / m l の範囲の密度を有する態様 3 6 に記載の方法。

態様 3 8 . 前記粘着付与剤が水素添加炭化水素樹脂である態様 3 7 に記載の方法。

態様 3 9 . 態様 1 に記載の接着剤組成物及び基材を含んでなる製品。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.

F I

C 0 9 J 133/02	(2006.01)	C 0 9 J 133/02
C 0 9 J 133/08	(2006.01)	C 0 9 J 133/08
C 0 9 J 151/06	(2006.01)	C 0 9 J 151/06
C 0 9 J 153/00	(2006.01)	C 0 9 J 153/00
C 0 9 J 157/02	(2006.01)	C 0 9 J 157/02
C 0 9 J 193/04	(2006.01)	C 0 9 J 193/04

(74)代理人 100128495

弁理士 出野 知

(74)代理人 100093665

弁理士 蛸谷 厚志

(72)発明者 マーティン, ローラ リー

アメリカ合衆国, テネシー 3 7 6 1 7, ブラウントビル, チャイルドレス フェリー 9 2 1

(72)発明者 オース, スティーブン デール

アメリカ合衆国, テネシー 3 7 6 6 4, キングSPORT, アローヘッド ドライブ 4 1 7

合議体

審判長 吉水 純子

審判官 野田 定文

審判官 小川 進

(56)参考文献 特開平 1 0 - 7 2 5 7 4 (J P , A)

特開昭 6 1 - 1 6 2 5 3 9 (J P , A)

特開平 1 0 - 2 6 5 7 5 0 (J P , A)

(58)調査した分野(Int.Cl., D B名)

C09J 1/00 -201/10