

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2008-24882  
(P2008-24882A)

(43) 公開日 平成20年2月7日(2008.2.7)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>CO8L 23/16 (2006.01)</b>	CO8L 23/16	3E084
<b>CO8L 23/22 (2006.01)</b>	CO8L 23/22	4F070
<b>CO8L 23/02 (2006.01)</b>	CO8L 23/02	4J002
<b>CO8K 3/00 (2006.01)</b>	CO8K 3/00	
<b>CO8J 3/24 (2006.01)</b>	CO8J 3/24 Z	
審査請求 未請求 請求項の数 10 O L (全 28 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号 特願2006-201611 (P2006-201611)  
(22) 出願日 平成18年7月25日 (2006.7.25)

(71) 出願人 000004178  
J S R株式会社  
東京都中央区築地五丁目6番10号  
(74) 代理人 100088616  
弁理士 渡邊 一平  
(74) 代理人 100089347  
弁理士 木川 幸治  
(74) 代理人 100135987  
弁理士 菅野 重慶  
(72) 発明者 鼎 健太郎  
東京都中央区築地五丁目6番10号 J S R株式会社内  
(72) 発明者 森岡 誠次  
東京都中央区築地五丁目6番10号 J S R株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 シール材用熱可塑性エラストマー組成物、成形部材、及びコンデンサ

(57) 【要約】

【課題】リサイクル可能であるとともに、強度、柔軟性、耐溶剤性、耐ガス透過性、及びシール性に優れたシール材を製造することができるシール材用熱可塑性エラストマー組成物を提供する。

【解決手段】(A) エチレン・ - オレフィン系共重合ゴム、及びイソブチレン・イソブレン共重合ゴムからなる群より選択される少なくとも一種のゴム成分と、(B) - オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂、 - オレフィン系非晶質熱可塑性樹脂、及び環状オレフィン系熱可塑性樹脂からなる群より選択される少なくとも一種の熱可塑性樹脂成分と、(C) 無機化合物と、を含み、(A) ゴム成分と(B) 熱可塑性樹脂成分の合計100質量%に対する、(A) ゴム成分の含有割合が、10~90質量%である原料組成物を、(D) 架橋剤の存在下に動的に熱処理してなる、可塑剤及び軟化剤を実質的に含有しないシール材用熱可塑性エラストマー組成物である。

【選択図】なし

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

(A) エチレン・ - オレフィン系共重合ゴム、及びイソブチレン - イソプレン共重合ゴムからなる群より選択される少なくとも一種のゴム成分と、

(B) - オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂、 - オレフィン系非晶質熱可塑性樹脂、及び環状オレフィン系熱可塑性樹脂からなる群より選択される少なくとも一種の熱可塑性樹脂成分と、

(C) 無機化合物と、を含み、

前記(A)ゴム成分と前記(B)熱可塑性樹脂成分の合計100質量%に対する、前記(A)ゴム成分の含有割合が、10～90質量%である原料組成物を、

10

(D) 架橋剤の存在下に動的に熱処理してなる、可塑剤及び軟化剤を実質的に含有しないシール材用熱可塑性エラストマー組成物。

## 【請求項 2】

前記(C)無機化合物が、モンモリロナイト、マイカ、タルク、クレー、カオリン、及び黒鉛からなる群より選択される少なくとも一種である請求項1に記載のシール材用熱可塑性エラストマー組成物。

## 【請求項 3】

前記(A)ゴム成分と前記(B)熱可塑性樹脂成分の合計100質量部に対して、

(E) 1～30質量部の水添ジエン系重合体、を更に含有する請求項1又は2に記載のシール材用熱可塑性エラストマー組成物。

20

## 【請求項 4】

前記(D)架橋剤が、有機過酸化物及び/又はフェノール系架橋剤である請求項1～3のいずれか一項に記載のシール材用熱可塑性エラストマー組成物。

## 【請求項 5】

請求項1～4のいずれか一項に記載のシール材用熱可塑性エラストマー組成物を成形してなる成形部材。

## 【請求項 6】

前記シール材用熱可塑性エラストマー組成物を射出成形してなる請求項5に記載の成形部材。

## 【請求項 7】

シール材、又はチューブ材である請求項5又は6に記載の成形部材。

30

## 【請求項 8】

コンデンサ用、バッテリー用、トナーケース用、インクカートリッジを含むインクジェットプリンター用、フラットパネルディスプレイ用、又は筐体用である請求項5～7のいずれか一項に記載の成形部材。

## 【請求項 9】

シール部を有する容器であって、

前記シール部が、請求項1～4のいずれか一項に記載のシール材用熱可塑性エラストマー組成物からなるシール材が配設されることにより構成された容器。

## 【請求項 10】

40

コンデンサ素子と、前記コンデンサ素子を収容する、少なくとも一つの開口部を有する外装ケースと、前記開口部を封止する請求項1～4のいずれか一項に記載のシール材用熱可塑性エラストマー組成物からなるシール材を備えたコンデンサ。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、シール材用熱可塑性エラストマー組成物、成形部材、及びコンデンサに関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

50

種々の電気・機械部品において、少なくともその一部を区画するための部材として各種のシール材が用いられている。一例を挙げると、電解コンデンサ（以下、単に「コンデンサ」という）においては、その一端に開口部を有する金属材料等からなる外装ケース内に、電解液を含浸したコンデンサ素子が収容されるが、その開口部を封止するためにシール材が用いられている。このようなシール材の特性は、電解液の蒸発拡散に伴うコンデンサの性能劣化に関して多大な影響を及ぼすことが知られている。従って、電解液の種類と、それに適応する物性を有するシール材を選択することは、非常に重要である。

#### 【0003】

このようなシール材を構成する材料としては、従来、ブチルゴムを主成分とするゴム材料が多用されてきた（例えば、特許文献1, 2参照）。しかしながら、ブチルゴムを主成分とするゴム材料を用いたシール材は、耐溶剤性が十分とはいえない場合があった。このようなブチルゴムの特性を改良すべく、アルキルフェノールホルマリン樹脂を架橋剤として使用してブチルゴムを架橋した樹脂架橋ブチルゴムをコンデンサ用のシール材として用いることが開示されている（例えば、特許文献3参照）。

10

#### 【0004】

また、耐溶剤性等の向上を目的として、飽和炭化水素系重合体を特定の硬化剤で硬化させた樹脂材料を用いて、コンデンサのシール材を構成する試みがなされている（例えば、特許文献4参照）。しかしながら、樹脂材料を主体とする材料で構成されたコンデンサ用のシール材は、ゴム材料からなるシール材に比べて、柔軟性やシール性が良好であるとはいえなかった。

20

#### 【0005】

一方、ポリオレフィン系の熱可塑性樹脂と、架橋されたブチルゴムを含有する熱可塑性エラストマー組成物、及びそれを用いたコンデンサ用部品（シール材）（例えば、特許文献5参照）、インクジェットプリンター用インクチューブ（チューブ材）（例えば、特許文献6参照）が開示されている。しかしながら、特許文献5で開示された熱可塑性エラストマー組成物からなるシール材であっても、強度、柔軟性、耐溶剤性、耐ガス透過性、及びシール性等の諸特性は、必ずしも満足できるものではなかった。なお、近年の環境保護の観点から、各種の電気・機械部品を構成する材料についても、リサイクル可能であることの重要性が高まりつつある。シール材の構成材料についても例外ではなく、リサイクル可能であることが要求されるが、シール材としての好適な特性を発揮しつつ、同時にリサイクル可能な材料は、これまで見出されていないのが現状であった。

30

#### 【0006】

また、特許文献6で開示された熱可塑性エラストマー組成物からなるチューブ材であっても、柔軟性、非汚染性（オイルブリード）等の諸特性は、必ずしも満足できるものではなかった。

【特許文献1】特開昭55-158621号公報

【特許文献2】特開平1-114030号公報

【特許文献3】特許第3682786号公報

【特許文献4】特開2004-165259号公報

【特許文献5】特開2001-316483号公報

【特許文献6】特開2004-142364号公報

40

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

#### 【0007】

本発明は、このような従来技術の有する問題点に鑑みてなされたものであり、その課題とするところは、リサイクル可能であるとともに、強度、柔軟性、耐溶剤性、耐ガス透過性、及びシール性に優れたシール材を製造することができるシール材用熱可塑性エラストマー組成物、リサイクル可能であるとともに、強度、柔軟性、耐溶剤性、耐ガス透過性、及びシール性に優れた成形部材、並びに、小型であるとともに気密性に優れ、長期間使用可能なコンデンサを提供することにある。

50

## 【課題を解決するための手段】

## 【0008】

本発明者らは上記課題を達成すべく鋭意検討した結果、特定のゴム成分、熱可塑性樹脂成分、及び無機化合物を含む原料組成物を動的に熱処理して架橋するとともに、可塑剤及び軟化剤を実質的に含有させないことによって、上記課題を達成することが可能であることを見出し、本発明を完成するに至った。

## 【0009】

即ち、本発明によれば、以下に示すシール材用熱可塑性エラストマー組成物、成形部材、及びコンデンサが提供される。

## 【0010】

[1] (A) エチレン・ - オレフィン系共重合ゴム、及びイソブチレン - イソプレン共重合ゴムからなる群より選択される少なくとも一種のゴム成分と、(B) - オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂、 - オレフィン系非晶質熱可塑性樹脂、及び環状オレフィン系熱可塑性樹脂からなる群より選択される少なくとも一種の熱可塑性樹脂成分と、(C) 無機化合物と、を含み、前記(A) ゴム成分と前記(B) 熱可塑性樹脂成分の合計100質量%に対する、前記(A) ゴム成分の含有割合が、10~90質量%である原料組成物を、(D) 架橋剤の存在下に動的に熱処理してなる、可塑剤及び軟化剤を実質的に含有しないシール材用熱可塑性エラストマー組成物。

10

## 【0011】

[2] 前記(C) 無機化合物が、モンモリロナイト、マイカ、タルク、クレー、カオリン、及び黒鉛からなる群より選択される少なくとも一種である前記[1]に記載のシール材用熱可塑性エラストマー組成物。

20

## 【0012】

[3] 前記(A) ゴム成分と前記(B) 熱可塑性樹脂成分の合計100質量部に対して、(E) 1~30質量部の水添ジエン系重合体、を更に含有する前記[1]又は[2]に記載のシール材用熱可塑性エラストマー組成物。

## 【0013】

[4] 前記(D) 架橋剤が、有機過酸化物及び/又はフェノール系架橋剤である前記[1]~[3]のいずれかに記載のシール材用熱可塑性エラストマー組成物。

## 【0014】

[5] 前記[1]~[4]のいずれかに記載のシール材用熱可塑性エラストマー組成物を成形してなる成形部材。

30

## 【0015】

[6] 前記シール材用熱可塑性エラストマー組成物を射出成形してなる前記[5]に記載の成形部材。

## 【0016】

[7] シール材、又はチューブ材である前記[5]又は[6]に記載の成形部材。

## 【0017】

[8] コンデンサ用、バッテリー用、トナーケース用、インクカートリッジを含むインクジェットプリンター用、フラットパネルディスプレイ用、又は筐体用である前記[5]~[7]のいずれかに記載の成形部材。

40

## 【0018】

[9] シール部を有する容器であって、前記シール部が、前記[1]~[4]のいずれかに記載のシール材用熱可塑性エラストマー組成物からなるシール材が配設されることにより構成された容器。

## 【0019】

[10] コンデンサ素子と、前記コンデンサ素子を収容する、少なくとも一つの開口部を有する外装ケースと、前記開口部を封止する前記[1]~[4]のいずれかに記載のシール材用熱可塑性エラストマー組成物からなるシール材を備えたコンデンサ。

## 【発明の効果】

50

## 【0020】

本発明のシール材用熱可塑性エラストマー組成物は、リサイクル可能であるとともに、強度、柔軟性、耐溶剤性、耐ガス透過性、及びシール性に優れたシール材を製造することができるという効果を奏するものである。

## 【0021】

また、本発明の成形部材は、リサイクル可能であるとともに、強度、柔軟性、耐溶剤性、耐ガス透過性、及びシール性に優れているという効果を奏するものである。

## 【0022】

本発明のコンデンサは、小型であるとともに気密性に優れ、長期間使用可能であるという効果を奏するものである。

10

## 【発明を実施するための最良の形態】

## 【0023】

以下、本発明の実施の最良の形態について説明するが、本発明は以下の実施の形態に限定されるものではなく、本発明の趣旨を逸脱しない範囲で、当業者の通常の知識に基づいて、以下の実施の形態に対し適宜変更、改良等が加えられたものも本発明の範囲に入ることが理解されるべきである。

## 【0024】

## 1. シール材用熱可塑性エラストマー組成物

本発明のシール材用熱可塑性エラストマー組成物の一実施形態は、(A)エチレン・  
-オレフィン系共重合ゴム、及びイソブチレン-イソプレン共重合ゴムからなる群より選  
20  
択される少なくとも一種のゴム成分(以下、「(A)成分」ともいう)と、(B) -オ  
レフィン系結晶性熱可塑性樹脂、 -オレフィン系非晶質熱可塑性樹脂、及び環状オレフ  
イン系熱可塑性樹脂からなる群より選択される少なくとも一種の熱可塑性樹脂成分(以下  
、「(B)成分」ともいう)と、(C)無機化合物(以下、「(C)成分」ともいう)と  
を含み、(A)成分と(B)成分の合計100質量%に対する、(A)成分の含有割合が  
、10~90質量%である原料組成物を、(D)架橋剤(以下、「(D)成分」ともいう  
)の存在下に動的に熱処理してなる、可塑剤及び軟化剤を実質的に含有しないものである  
。以下、その詳細について説明する。

## 【0025】

## (A)ゴム成分)

本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物を構成する(A)成分は、エチレン  
30  
・ -オレフィン系共重合ゴム、及びイソブチレン-イソプレン共重合ゴムからなる群  
より選択される少なくとも一種のゴム成分である。

## 【0026】

## (エチレン・ -オレフィン系共重合ゴム)

エチレン・ -オレフィン系共重合ゴムは、エチレンに由来する構成単位(a1)と、  
-オレフィンに由来する構成単位(a2)とを含む共重合ゴムであれば特に限定されな  
い。従って、エチレン・ -オレフィン系共重合ゴムは、構成単位(a1)と構成単位(a  
40  
a2)とを含む二元共重合体の他に、他の単量体に由来する構成単位(a3)を更に含む  
三元共重合体であってもよい。更には、構成単位(a1)、及び構成単位(a2)を含む  
ものであれば、4以上の異なる構成単位を含む多元共重合体であってもよい。なお、エチ  
レン・ -オレフィン系共重合ゴムは、一種単独で又は二種以上を組み合わせて用いるこ  
とができる。

## 【0027】

エチレン・ -オレフィン系共重合ゴムに含まれる構成単位(a1)の割合は、全構成  
単位を100mol%とした場合に、35mol%以上であることが好ましい。構成単位  
(a1)の割合が35mol%未満であると、得られるシール材の機械的強度が不十分と  
なる傾向にある。なお、構成単位(a1)の割合が多過ぎる場合には、得られるシール材  
の柔軟性が不十分となる傾向にある。従って、エチレン・ -オレフィン系共重合ゴムに  
50  
含まれる構成単位(a1)の割合は、全構成単位を100mol%とした場合に、40~

90 mol%であることが更に好ましく、45～85 mol%であることが特に好ましい。

【0028】

構成単位(a2)を構成する - オレフィンの具体例としては、プロピレン、1-ブテン、2-ブテン、イソブテン、1-ペンテン、2-メチル-1-ブテン、2-メチル-2-ブテン、3-メチルブテン、1-ヘキセン、4-メチル-1-ペンテン、3-メチル-1-ペンテン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-デセン、1-ウンデセン等を挙げることができる。なかでも、プロピレン、1-ブテンが好ましい。これらの - オレフィンを一種単独で又は二種以上を組み合わせ用いることができる。

【0029】

エチレン・ - オレフィン系共重合ゴムに含まれる構成単位(a2)の割合は、全構成単位を100 mol%とした場合に、5～65 mol%であることが好ましく、10～45 mol%であることが更に好ましく、15～40 mol%であることが特に好ましい。構成単位(a2)の割合が5 mol%未満であると、得られるシール材が所望とするゴム弾性を発揮し難くなる傾向にある。一方、構成単位(a2)の割合が65 mol%超であると、得られるシール材の耐久性が低下する傾向にある。

【0030】

エチレン・ - オレフィン系共重合ゴムが、構成単位(a3)を含むものである場合に、この構成単位(a3)を構成する単量体としては、非共役ジエン化合物を挙げることができる。非共役ジエン化合物の具体例としては、1,4-ヘキサジエン、1,5-ヘキサジエン、1,6-ヘキサジエン等の直鎖の非環状ジエン化合物；5-メチル-1,4-ヘキサジエン、3,7-ジメチル-1,6-オクタジエン、5,7-ジメチルオクタ-1,6-ジエン、3,7-ジメチル-1,7-オクタジエン、7-メチルオクタ-1,6-ジエン、ジヒドロミルセン等の分岐連鎖の非環状ジエン化合物；テトラヒドロインデン、メチルテトラヒドロインデン、ジシクロペンタジエン、ビシクロ[2.2.1]-ヘプタ-2,5-ジエン、5-メチレン-2-ノルボルネン、5-エチリデン-2-ノルボルネン、5-プロペニル-2-ノルボルネン、5-イソプロピリデン-2-ノルボルネン、5-シクロヘキシリデン-2-ノルボルネン、5-ビニル-2-ノルボルネン等の脂環式ジエン化合物等を挙げることができる。なかでも、1,4-ヘキサジエン、ジシクロペンタジエン、5-エチリデン-2-ノルボルネンが好ましい。これらの比較例共役ジエン化合物を一種単独で又は二種以上を組み合わせ用いることができる。

【0031】

エチレン・ - オレフィン系共重合ゴムが、構成単位(a3)を含むものである場合に、このエチレン・ - オレフィン系共重合ゴムに含まれる構成単位(a3)の割合は、全構成単位を100 mol%とした場合に、10 mol%以下であることが好ましく、1～8 mol%であることが更に好ましい。構成単位(a3)の割合が10 mol%超であると、得られるシール材の耐久性が低下する傾向にある。

【0032】

本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物は、ハロゲンを含む原材料を用いなくても、シール材を構成するための材料として、優れた特性を発揮するものである。従って、ハロゲンを含む原材料を用いない本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物によって作製したシール材によりコンデンサを製造した場合には、電解液中にハロゲンが溶出せず、コンデンサの特性が劣化し難くなるといった利点がある。

【0033】

更に、エチレン・ - オレフィン系共重合ゴムとして、これまで述べてきたエチレン・ - オレフィン系共重合ゴムに不飽和モノマーを重合して得られるグラフト重合体を用いることもできる。不飽和モノマーとしては、酢酸ビニル；(メタ)アクリル酸；(メタ)アクリル酸メチル、(メタ)アクリル酸グリシジル、(メタ)アクリルアミド等の(メタ)アクリル酸誘導体；マレイン酸；無水マレイン酸、マレイミド、マレイン酸ジメチル等のマレイン酸誘導体；ブタジエン、イソプレン、クロロプレン等の共役ジエン化合物等を

10

20

30

40

50

挙げることができる。

【0034】

エチレン・ - オレフィン系共重合ゴムの、X線回折測定による結晶化度は、20%以下であることが好ましく、15%以下であることが更に好ましい。エチレン・ - オレフィン系共重合ゴムの結晶化度が20%超であると、得られるシール材の柔軟性が低下する傾向にある。

【0035】

エチレン・ - オレフィン系共重合ゴムのヨウ素価は、5~30であることが好ましく、7~20であることが更に好ましい。エチレン・ - オレフィン系共重合ゴムのヨウ素価が5未満であると、シール材用熱可塑性エラストマー組成物の架橋密度が低下し、シール材の機械的物性が低下する傾向にある。一方、エチレン・ - オレフィン系共重合ゴムのヨウ素価が30超であると、シール材用熱可塑性エラストマー組成物の架橋密度が過度に上昇し、シール材の機械的物性が低下する傾向にある。

10

【0036】

また、油展ゴム（これまで述べてきたエチレン・ - オレフィン系共重合ゴムに鉱物油系軟化剤が添加されたもの）は、鉱物油系軟化剤を含有するものであるため、原則として使用することは好ましくない。但し、本発明の効果を損なわない範囲で、少量使用することができる。

【0037】

エチレン・ - オレフィン系共重合ゴムの極限粘度（デカリン溶媒中、135℃で測定）は、1.8dl/g以上であることが好ましい。エチレン・ - オレフィン系共重合ゴムの極限粘度が1.8dl/g未満であると、機械的強度、ゴム弾性が低下する傾向にある。一方、エチレン・ - オレフィン系共重合ゴムの極限粘度が大き過ぎると、成形加工性が低下する傾向にある。従って、エチレン・ - オレフィン系共重合ゴムの極限粘度は、2.0~7.0dl/gであることが更に好ましく、2.0~6.0dl/gであることが特に好ましい。

20

【0038】

（イソブチレン - イソプレン共重合ゴム）

イソブチレン - イソプレン共重合ゴム（以下、「ブチルゴム」ともいう）は、イソブチレンに由来する構成単位と、イソプレンに由来する構成単位とを含む、不飽和度の低いゴム状無晶形共重合体である。このイソブチレン - イソプレン共重合ゴムは、例えば、イソブチレンと少量のイソプレンを、メチルクロリド中で、無水塩化アルミニウムを触媒として使用して - 100℃程度の低温でスラリー重合した後、乾燥することにより得ることができる。

30

【0039】

イソブチレン - イソプレン共重合ゴムに含まれる、イソプレンに由来する構成単位の割合は、全構成単位を100mol%とした場合に、0.5~15mol%であることが好ましく、0.8~5.0mol%であることが更に好ましい。イソプレンに由来する構成単位の割合が0.5mol%未満であると、架橋反応が遅延する傾向にあり、機械的強度が十分でない場合がある。一方、イソプレンに由来する構成単位の割合が15mol%超であると、シール材用熱可塑性エラストマー組成物の架橋密度が過度に上昇し、シール材の機械的物性が低下する傾向にある。

40

【0040】

（（B）熱可塑性樹脂成分）

本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物を構成する（B）成分は、 - オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂、 - オレフィン系非晶質熱可塑性樹脂、及び環状オレフィン系熱可塑性樹脂からなる群より選択される少なくとも一種の熱可塑性樹脂成分である。

【0041】

（ - オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂）

50

- オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂は、- オレフィンに由来する構成単位 ( b 1 ) を含む重合体である。また、- オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂の、X線回折による結晶化度は50%以上、好ましくは53%以上、更に好ましくは55%以上である。この結晶化度は、密度と密接に関係している。例えば、- オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂がポリプロピレンである場合、型結晶 ( 単斜晶形 ) の密度は  $0.936 \text{ g/cm}^3$ 、スメチカ型微結晶 ( 擬六方晶形 ) の密度は  $0.886 \text{ g/cm}^3$ 、非晶質 ( アタクチック ) 成分の密度は  $0.850 \text{ g/cm}^3$  である。また、- オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂がポリ-1-ブテンである場合、アイソタクチック結晶成分の密度は  $0.91 \text{ g/cm}^3$ 、非晶質 ( アタクチック ) 成分の密度は  $0.87 \text{ g/cm}^3$  である。

【0042】

従って、- オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂の密度は、 $0.89 \text{ g/cm}^3$  以上、好ましくは  $0.90 \sim 0.94 \text{ g/cm}^3$  である。密度を  $0.89 \text{ g/cm}^3$  以上とすることにより、結晶化度を50%以上とすることができる。なお、- オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂の、結晶化度が50%未満、及び/又は密度が  $0.89 \text{ g/cm}^3$  未満であると、得られるシール材の耐熱性、機械的強度等が低下する傾向にある。

【0043】

構成単位 ( b 1 ) を構成する - オレフィンは、炭素数が2~12のものであることが好ましい。なかでも、プロピレン、1-ブテンが更に好ましい。- オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂に含まれる構成単位 ( b 1 ) の割合は、全構成単位を100mol%とした場合に、80mol%以上であることが好ましく、90~100mol%であることが更に好ましい。80mol%未満であると、機械的強度が十分でない場合がある。

【0044】

- オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂は、構成単位 ( b 1 ) 以外の他の構成単位 ( b 2 ) を含む共重合体であってもよい。この共重合体は、ブロック共重合体とランダム共重合体のいずれであってもよい。但し、- オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂がブロック共重合体である場合、このブロック共重合体の結晶化度を50%以上とするためには、構成単位 ( b 2 ) の割合は、全構成単位を100mol%とした場合に、40mol%以下であることが好ましく、20mol%以下であることが更に好ましい。なお、このブロック共重合体は、例えば、チーグラー・ナッタ触媒を用いたリビング重合により製造することができる。

【0045】

また、- オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂がランダム共重合体である場合、このランダム共重合体の結晶化度を50%以上とするためには、構成単位 ( b 2 ) の割合は、全構成単位を100mol%とした場合に、15mol%以下であることが好ましく、10mol%以下であることが更に好ましい。なお、このランダム共重合体は、例えば、チーグラー・ナッタ触媒、可溶性バナジウム化合物、有機アルミニウム化合物、及び溶媒を含む触媒成分の存在下で、- オレフィン等を重合することにより得ることができる。重合方法としては、中・低圧法等を挙げることができ、気相法 ( 流動床又は攪拌床 )、液相法 ( スラリー法又は溶液法 ) 等で製造することができる。重合時には、必要に応じて、水素ガス等の分子量調節剤を用いてもよい。

【0046】

触媒成分に含まれる可溶性バナジウム化合物としては、 $\text{VOCl}_3$  及び/又は  $\text{VCl}_4$  と、アルコールとの反応生成物を用いることが好ましい。アルコールとしては、メタノール、エタノール、n-プロパノール、イソプロパノール、n-ブタノール、sec-ブタノール、t-ブタノール、n-ヘキサノール、n-オクタノール、2-エチルヘキサノール、n-デカノール、n-ドデカノール等を挙げることができる。これらのうち、炭素数3~8のアルコールが好ましい。

【0047】

触媒成分に含まれる有機アルミニウム化合物としては、トリエチルアルミニウム、トリイソブチルアルミニウム、トリ-n-ヘキシルアルミニウム、ジエチルアルミニウムモノ

10

20

30

40

50

クロリド、ジイソブチルアルミニウムモノクロリド、エチルアルミニウムセスキクロリド、ブチルアルミニウムセスキクロリド、エチルアルミニウムジクロリド、ブチルアルミニウムジクロリド、トリメチルアルミニウムと水との反応生成物であるメチルアルミノキサン等を挙げることができる。これらのうち、エチルアルミニウムセスキクロリド、ブチルアルミニウムセスキクロリド、エチルアルミニウムセスキクロリドとトリイソブチルアルミニウムとの混合物、トリイソブチルアルミニウムとブチルアルミニウムセスキクロリドとの混合物が好ましい。

【0048】

触媒成分に含まれる溶媒としては、炭化水素が好ましい。なかでも、*n*-ペンタン、*n*-ヘキサン、*n*-ヘプタン、*n*-オクタン、イソオクタン、シクロヘキサンが更に好ましい。これらの溶媒を、一種単独で又は二種以上を組み合わせて用いることができる。

10

【0049】

- オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂の、示差走査熱量測定法により測定される最大ピーク温度（融点）は、100 以上であることが好ましく、120 以上であることが更に好ましい。- オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂の融点が100 未満であると、得られるシール材の耐熱性、及び機械的強度が不十分となる傾向にある。

【0050】

また、- オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂のメルトフローレート（MFR）（温度230、荷重2.16 kg）は、0.1~1000 g/10分であることが好ましく、0.5~500 g/10分であることが更に好ましく、1~100 g/10分であることが特に好ましい。- オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂のMFRが0.1 g/10分未満であると、原料組成物の混練加工性、押出加工性等が不十分となる傾向にある。一方、1000 g/10分超であると、得られるシール材の機械的強度が低下する傾向にある。

20

【0051】

従って、- オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂としては、結晶化度が50%以上、密度が0.89 g/cm<sup>3</sup>以上、構成単位（b1）以外の構成単位の含有量が20mol%以下、融点が100 以上、かつ、MFRが0.1~100 g/10分であるものが好ましい。特に、融点が140~170 である、ポリプロピレン及び/又はプロピレンと、エチレンとの共重合体が好ましい。なお、二種以上の- オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂を併用することもできる。

30

【0052】

- オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂の具体例としては、プライムポリマー社、サンアロマー社、及び日本ポリプロ社から発売されているポリプロピレン重合体、プロピレン・エチレンランダム重合体、プロピレン・エチレンブロック重合体等を挙げることができる。より具体的には、商品名「ノパテック」（日本ポリプロ社製）、商品名「ウィンテック」（日本ポリプロ社製）、商品名「ニューフォーマー」（日本ポリプロ社製）、商品名「ニューストレン」（日本ポリプロ社製）、商品名「ニューコン」（日本ポリプロ社製）等を挙げることができる。

【0053】

（- オレフィン系非晶質熱可塑性樹脂）

40

- オレフィン系非晶質熱可塑性樹脂は、- オレフィンに由来する構成単位（b3）を含み、X線回折による結晶化度が50%未満、好ましくは30%以下、更に好ましくは20%以下のものである。また、- オレフィン系非晶質熱可塑性樹脂の密度は、0.85~0.89 g/cm<sup>3</sup>であることが好ましく、0.85~0.88 g/cm<sup>3</sup>であることが更に好ましい。

【0054】

構成単位（b3）を構成する- オレフィンは、炭素数が3以上のものであることが好ましく、炭素数が3~12のものであることが更に好ましい。また、- オレフィン系非晶質熱可塑性樹脂に含まれる構成単位（b3）の割合は、全構成単位を100mol%とした場合に、60mol%以上であることが好ましい。60mol%未満であると、機械

50

的強度が十分でない場合がある。

【0055】

- オレフィン系非晶質熱可塑性樹脂の具体例としては、アタクチックポリプロピレン、アタクチックポリ1-ブテン等の単独重合体；50mol%超のプロピレンと、他の - オレフィン（エチレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、4-メチル-1-ペンテン、1-オクテン、1-デセン等）とからなる共重合体；50mol%超の1-ブテンと、他の - オレフィン（エチレン、プロピレン、1-ペンテン、1-ヘキセン、4-メチル-1-ペンテン、1-オクテン、1-デセン等）とからなる共重合体等を挙げることができる。なかでも、アタクチックポリプロピレン、50mol%超のプロピレンとエチレンとからなる共重合体、50mol%超のプロピレンと1-ブテンとからなる共重合体が特に好ましい。

10

【0056】

アタクチックポリプロピレン、及びアタクチックポリ-1-ブテンは、ジルコノセン化合物-メチルアルミノキサン触媒を用いる重合方法によって製造することができる。なお、アタクチックポリプロピレンは、前述の - オレフィン系結晶性熱可塑性樹脂として例示したポリプロピレンの副生成物として得ることもできる。

【0057】

- オレフィン系非晶質熱可塑性樹脂が共重合体である場合に、この共重合体は、ブロック共重合体とランダム共重合体のいずれであってもよい。但し、 - オレフィン系非晶質熱可塑性樹脂がブロック共重合体である場合、このブロック共重合体に含まれる構成単位（b3）の割合は、全構成単位を100mol%とした場合に、60~100mol%以上であることが好ましい。60mol%未満であると、機械的強度が十分でない場合がある。

20

【0058】

- オレフィン系非晶質熱可塑性樹脂の、GPCによるポリスチレン換算の数平均分子量（Mn）は、1000~20000であることが好ましく、1500~15000であることが更に好ましい。 - オレフィン系非晶質熱可塑性樹脂のMnが1000未満であると、物理特性に劣る傾向にある。一方、Mnが20000超であると、原料組成物の混練加工性、押出加工性等が不十分となる傾向にある。なお、二種以上の - オレフィン系非晶質熱可塑性樹脂を併用することもできる。

30

【0059】

- オレフィン系非晶質熱可塑性樹脂の市販品としては、商品名「ベストプラスト」（デグサ社製）、商品名「APAO」（ハンツマン社製）等を挙げることができる。

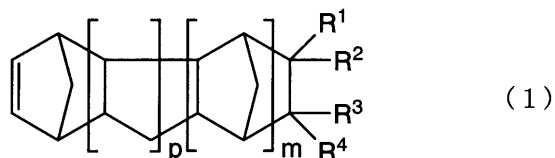
【0060】

（環状オレフィン系熱可塑性樹脂）

環状オレフィン系熱可塑性樹脂の具体例としては、下記一般式（1）で表される環状オレフィンの（共）重合体を挙げることができる。

【0061】

【化1】



40

【0062】

前記一般式（1）中、R<sup>1</sup>~R<sup>4</sup>は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、又は1価の有機基であり、R<sup>1</sup>とR<sup>2</sup>、及びR<sup>3</sup>とR<sup>4</sup>は、いずれも一体化して2価の有機基を形成してもよい。また、R<sup>1</sup>とR<sup>2</sup>、及びR<sup>3</sup>とR<sup>4</sup>は、いずれも、互いに結合して

50

単環構造又は多環構造を形成してもよい。mは、0又は正の整数であり、pは、0又は正の整数である。

【0063】

より具体的な環状オレフィン系熱可塑性樹脂としては、以下に示す(i)~(vii)のいずれかの(共)重合体を挙げることができる。

【0064】

(i) 前記一般式(1)で表される環状オレフィンの開環重合体。

(ii) 前記一般式(1)で表される環状オレフィンと共重合性単量体との開環共重合体。

(iii) 前記(i)又は(ii)の開環(共)重合体の水素添加(共)重合体。

(iv) 前記(i)又は(ii)の開環(共)重合体をフリーデルクラフト反応により環化した後、水素添加して得られた(共)重合体。

(v) 前記一般式(1)で表される環状オレフィンと、不飽和二重結合含有化合物との飽和共重合体。

(vi) 前記一般式(1)で表される環状オレフィンと、ビニル系環状炭化水素系単量体及び/又はシクロペンタジエン系単量体との付加型(共)重合体、並びにその水素添加(共)重合体。

(vii) 前記一般式(1)で表される環状オレフィンと、アクリレートとの交互共重合体。

【0065】

(環状オレフィン)

前記一般式(1)における1価の有機基としては、炭素数1~30の炭化水素基、炭化水素基以外の1価の極性基を挙げることができる。1価の極性基としては、カルボキシル基、水酸基、アルコキシカルボニル基、アリロキシカルボニル基、アミノ基、アミド基、シアノ基等を挙げることができる。なお、これらの極性基は、メチレン基等の連結基を介して結合していてもよい。また、カルボニル基、エーテル基、シリルエーテル基、チオエーテル基、イミノ基等の極性を有する2価の有機基からなる連結基を介して結合した炭化水素基等も、極性基の具体例として挙げることができる。これらの極性基のうち、カルボキシル基、水酸基、アルコキシカルボニル基、アリロキシカルボニル基が好ましく、アルコキシカルボニル基、アリロキシカルボニル基が特に好ましい。前記一般式(1)で表される環状オレフィンは、一種単独で用いてもよいし、二種以上を併用してもよい。

【0066】

前記一般式(1)で表される環状オレフィンとしては、例えば、以下の化合物を例示することができる。なお、環状オレフィンは、これらの化合物に限定されるものではない。

【0067】

ビスクロ[2.2.1]ヘプト-2-エン、トリシクロ[4.3.0.1<sup>2</sup>.<sup>5</sup>]-8-デセン、トリシクロ[4.4.0.1<sup>2</sup>.<sup>5</sup>]-3-ウンデセン、テトラシクロ[4.4.0.1<sup>2</sup>.<sup>5</sup>.1<sup>7</sup>.<sup>10</sup>]-3-ドデセン、ペンタシクロ[6.5.1.1<sup>3</sup>.<sup>6</sup>.0<sup>2</sup>.<sup>7</sup>.0<sup>9</sup>.<sup>13</sup>]-4-ペンタデセン、5-メチルビスクロ[2.2.1]ヘプト-2-エン、5-エチルビスクロ[2.2.1]ヘプト-2-エン、5-メトキシカルボニルビスクロ[2.2.1]ヘプト-2-エン、5-メチル-5-メトキシカルボニルビスクロ[2.2.1]ヘプト-2-エン、5-シアノビスクロ[2.2.1]ヘプト-2-エン、8-メトキシカルボニルテトラシクロ[4.4.0.1<sup>2</sup>.<sup>5</sup>.1<sup>7</sup>.<sup>10</sup>]-3-ドデセン、8-エトキシカルボニルテトラシクロ[4.4.0.1<sup>2</sup>.<sup>5</sup>.1<sup>7</sup>.<sup>10</sup>]-3-ドデセン、8-n-プロポキシカルボニルテトラシクロ[4.4.0.1<sup>2</sup>.<sup>5</sup>.1<sup>7</sup>.<sup>10</sup>]-3-ドデセン、8-イソプロポキシカルボニルテトラシクロ[4.4.0.1<sup>2</sup>.<sup>5</sup>.1<sup>7</sup>.<sup>10</sup>]-3-ドデセン、8-n-ブトキシカルボニルテトラシクロ[4.4.0.1<sup>2</sup>.<sup>5</sup>.1<sup>7</sup>.<sup>10</sup>]-3-ドデセン、8-メチル-8-メトキシカルボニルテトラシクロ[4.4.0.1<sup>2</sup>.<sup>5</sup>.1<sup>7</sup>.<sup>10</sup>]-3-ドデセン、8-メチル-8-エトキシカルボニルテトラシクロ[4.4.0.1<sup>2</sup>.<sup>5</sup>.1<sup>7</sup>.<sup>10</sup>]-3

10

20

30

40

50

- ドデセン、8 - メチル - 8 - n - プロポキシカルボニルテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 - メチル - 8 - イソプロポキシカルボニルテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 - メチル - 8 - n - ブトキシカルボニルテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、5 - エチリデンビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、8 - エチリデンテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、5 - フェニルビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、8 - フェニルテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、5 - フルオロビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 - フルオロメチルビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 - トリフルオロメチルビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 - ペンタフルオロエチルビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 , 5 - ジフルオロビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 , 6 - ジフルオロビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 , 5 - ビス (トリフルオロメチル) ビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 , 6 - ビス (トリフルオロメチル) ビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 , 5 , 6 - トリフルオロビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 , 5 , 6 - トリス (フルオロメチル) ビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 , 5 , 6 , 6 - テトラフルオロビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 , 5 , 6 , 6 - テトラキス (トリフルオロメチル) ビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 , 5 - ジフルオロ - 6 , 6 - ビス (トリフルオロメチル) ビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 , 5 , 6 - トリフルオロ - 5 , 6 - ビス (トリフルオロメチル) ビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 , 5 , 6 - トリフルオロ - 5 - トリフルオロメチルビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 - フルオロ - 5 - ペンタフルオロエチル - 6 , 6 - ビス (トリフルオロメチル) ビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 , 6 - ジフルオロ - 5 - ヘプタフルオロ - i s o - プロピル - 6 - トリフルオロメチルビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 - クロロ - 5 , 6 , 6 - トリフルオロビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 , 6 - ジクロロ - 5 , 6 - ビス (トリフルオロメチル) ビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 , 5 , 6 - トリフルオロ - 6 - トリフルオロメトキシビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、5 , 5 , 6 - トリフルオロ - 6 - ヘプタフルオロプロポキシビシクロ [ 2 . 2 . 1 ] ヘプト - 2 - エン、8 - フルオロテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 - フルオロメチルテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 - ジフルオロメチルテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 - トリフルオロメチルテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 - ペンタフルオロエチルテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 , 8 - ジフルオロテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 , 9 - ジフルオロテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 , 8 - ビス (トリフルオロメチル) テトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 , 9 - ビス (トリフルオロメチル) テトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 - メチル - 8 - トリフルオロメチルテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 , 8 , 9 - トリフルオロテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 , 8 , 9 , 9 - テトラフルオロテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 , 8 , 9 , 9 - テトラキス (トリフルオロメチル) テトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 , 8 - ジフルオロ - 9 , 9 - ビス (トリフルオロメチル) テトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 , 9 - ジフルオロ - 8 , 9 - ビス (トリフルオロメチル) テトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 , 8 , 9 - トリフルオロ - 9 - トリフルオロメチルテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 , 8 , 9 - トリフルオロ - 9 - トリフルオロメトキシテトラシクロ [

4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 , 8 , 9 - トリフルオロ - 9 -  
 ペンタフルオロプロポキシテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ド  
 デセン、8 - フルオロ - 8 - ペンタフルオロエチル - 9 , 9 - ビス ( トリフルオロメチル  
 ) テトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 , 9 - ジフル  
 オロ - 8 - ヘプタフルオロ i s o - プロピル - 9 - トリフルオロメチルテトラシクロ [ 4  
 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 - クロロ - 8 , 9 , 9 - トリフル  
 オロテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 , 9 - ジク  
 ロロ - 8 , 9 - ビス ( トリフルオロメチル ) テトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup>  
 . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 - ( 2 , 2 , 2 - トリフルオロエトキシカルボニル ) テトラ  
 シクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup> . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン、8 - メチル - 8 - ( 2 ,  
 2 , 2 - トリフルオロエトキシカルボニル ) テトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> . 5 . 1<sup>7</sup>  
 . 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセン。

10

## 【0068】

前記一般式 ( 1 ) 中、R<sup>1</sup> 及び R<sup>3</sup> は、それぞれ独立に、水素原子、又は炭化水素基で  
 あることが好ましい。炭化水素機の炭素数は、1 ~ 10 であることが好ましく、1 ~ 4 で  
 あることが更に好ましく、1 又は 2 であることが特に好ましい。R<sup>1</sup> 及び R<sup>3</sup> は、アルキ  
 ル基であることが特に好ましく、メチル基であることが最も好ましい。

## 【0069】

また、前記一般式 ( 1 ) 中、R<sup>2</sup> 及び R<sup>4</sup> は、それぞれ独立に、水素原子、又は 1 価の  
 有機基であり、かつ、R<sup>2</sup> 及び R<sup>4</sup> のうちの少なくともいずれかが、水素原子、又は前記  
 1 価の極性基であることが好ましい。

20

## 【0070】

前記一般式 ( 1 ) 中、m は、0 ~ 3 の整数であることが好ましく、p は、0 ~ 3 の整数  
 であることが好ましい。m + p の値が、0 ~ 4 であることが好ましく、0 ~ 2 であること  
 が更に好ましく、m = 1、p = 0 であることが特に好ましい。m = 1、p = 0 である環状  
 オレフィン、ガラス転移温度が高く、かつ機械的強度も優れた環状オレフィン系熱可塑  
 性樹脂が得られる点で最も好ましい。

## 【0071】

更に、R<sup>2</sup> 及び R<sup>4</sup> のうちの少なくともいずれかが、下記一般式 ( 2 ) で表される極性  
 基である環状オレフィン、高いガラス転移温度と低い吸湿性、各種材料との優れた密着  
 性を有する環状オレフィン系熱可塑性樹脂が得られる点で好ましい。

30



## 【0072】

前記一般式 ( 2 ) 中、R は炭化水素基である。R の炭素数は、1 ~ 12 であることが好  
 ましく、1 ~ 4 であることが更に好ましく、1 又は 2 であることが特に好ましい。なお、  
 R は、アルキル基であることが好ましい。また、前記一般式 ( 2 ) 中、n は 0 ~ 5 の整数  
 である。n の値が小さい環状オレフィンほど、ガラス転移温度が高い環状オレフィン系熱  
 可塑性樹脂が得られるため好ましく、n = 0 である環状オレフィンは、その合成が容易で  
 ある点で特に好ましい。特に、前記一般式 ( 2 ) で表される極性基は、アルキル基である  
 R<sup>1</sup> 及び R<sup>3</sup> が結合している炭素原子に結合していることが、吸湿性の低い環状オレフィ  
 ン系熱可塑性樹脂が得られる点で好ましい。

40

## 【0073】

前記 ( i ) 開環重合体は、メタセシス触媒の存在下で、前述の環状オレフィンを開環重  
 合させることにより得ることができる。また、前記 ( i i ) 開環共重合体は、前述の環状  
 オレフィンと共重合性単量体とを開環共重合させることにより得ることができる。

## 【0074】

( i i ) 開環共重合体を得るに際して用いられる前記共重合性単量体としては、シクロ  
 オレフィンを挙げることができる。このシクロオレフィンの炭素数は、4 ~ 20 であるこ  
 とが好ましく、5 ~ 12 であることが更に好ましい。共重合性単量体のより具体的な例と  
 しては、シクロブテン、シクロペンテン、シクロヘブテン、シクロオクテン、ジシクロペ

50

ンタジエン等を挙げることができる。これらのシクロオレフィン、一種単独で用いても、二種以上を併用してもよい。なお、環状オレフィン系熱可塑性樹脂の市販品としては、商品名「ARTON」（JSR社製）、商品名「TOPAS」（独Ticona社製）、商品名「アベル」（三井化学社製）、商品名「ゼオネックス」（日本ゼオン社製）、及び商品名「ゼオノア」（日本ゼオン社製）等を挙げることができる。

**【0075】**

（ゴム成分と熱可塑性樹脂成分の割合）

本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物中の（A）成分の含有割合は、（A）成分と（B）成分の合計量を100質量%とした場合に、10～90質量%、好ましくは15～85質量%、更に好ましくは20～85質量%である。（A）成分の含有割合が10質量%未満であると、得られるシール材用熱可塑性エラストマー組成物の柔軟性及びゴム弾性が低下する。一方、（A）成分の含有割合が90質量%超であると、得られるシール材用熱可塑性エラストマー組成物の相構造（モルホロジー）が、動的架橋型熱可塑性エラストマー組成物の特徴である良好な海島構造（熱可塑性樹脂が海（マトリックス）、架橋したゴムの粒子が島（ドメイン））になり難く、流動性及び成形加工性が低下する。

10

**【0076】**

（（C）無機化合物）

本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物に含有される（C）成分は、無機化合物である。この（C）成分を含有させることにより、本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物を用いて得られるシール材の耐ガス透過性を極めて優れたものとすることができる。

20

**【0077】**

含有させることのできる（C）成分の種類は特に限定されるものではないが、具体的には、モンモリロナイト、サポナイト、ベントナイト、ヘクトライト、バイデライト、ステキブサイト、ノントロナイト等のスメクタイト系粘土化合物；これらのスメクタイト系粘土化合物を有機変性させたもの；パーミキュライト、ハロイサイト、カオリナイト、膨潤性マイカ等の層状粘土化合物；タルク；クレー等を好適例として挙げることができる。これらの無機化合物は、天然物であっても合成物であってもよい。また、本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物の用途に応じて、これらの無機化合物を焼成して不純物を除去した焼成無機化合物を用いることも好ましい。なお、これらの無機化合物は、一種単独で又は二種以上を組み合わせて用いることができる。

30

**【0078】**

（C）成分の形状についても特に制限はなく、例えば、繊維状、フレーク状、球状、棒状、針状、中空状等の形状の（C）成分を用いることができる。但し、熱可塑性エラストマー組成物に分散させた際における物理特性への影響を極力抑えるとともに、熱可塑性エラストマー組成物の内部でのガス分子拡散を効果的に妨げるといった効果を向上させるためには、薄片状又は板状の（C）成分を用いることが好ましい。

**【0079】**

（C）成分の形状が薄片状又は板状である場合に、この薄片状又は板状の（C）成分のアスペクト比は、1.5～50であることが好ましく、2～30であることが更に好ましく、2～15であることが特に好ましい。アスペクト比が1.5未満であると、耐ガス透過性への効果が小さくなる傾向にある。一方、アスペクト比が50超であると、（C）成分の最大長さが過大となり強度低下傾向にある。なお、本明細書にいう「アスペクト比」とは、無機化合物の面方向の最大長さを、最小長さで除した値（＝最大長さ／最小長さ）をいう。

40

**【0080】**

（C）成分の形状が薄片状又は板状である場合に、この薄片状又は板状の（C）成分の最大長さは、0.1～50μmであることが、熱可塑性エラストマー組成物に分散させた際における物理特性への影響を極力抑えるとともに、熱可塑性エラストマー組成物の内部

50

でのガス分子拡散を効果的に妨げるといった効果を向上させることが可能となるために好ましい。なお、熱可塑性エラストマー組成物に分散させた際における物理特性への影響をより抑えるとともに、熱可塑性エラストマー組成物の内部でのガス分子拡散を効果的に妨げるといった効果を更に向上させるためには、薄片状又は板状の(C)成分の最大長さは、 $0.5 \sim 30 \mu\text{m}$ であることが更に好ましく、 $1 \sim 15 \mu\text{m}$ であることが特に好ましい。

【0081】

(C)成分の含有割合は、(A)成分と(B)成分の合計100質量部に対して、5~200質量部とすることが好ましく、10~100質量部とすることが更に好ましく、10~50質量部とすることが更に好ましい。5質量部未満であると、耐ガス透過性の向上が不十分となる場合がある。一方、200質量部超であると、ゴム弾性を失う傾向にある。

10

【0082】

((D)架橋剤)

本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物を製造するために用いられる(D)成分は、架橋剤である。(D)成分の種類は、特に限定されない。但し、(B)成分の融点以上の温度における動的熱処理により、少なくとも(A)成分を架橋し得る化合物であることが好ましい。

【0083】

(D)成分の具体例としては、有機過酸化物、フェノール樹脂架橋剤、硫黄、硫黄化合物、p-キノン、p-キノンジオキシムの誘導体、ビスマレイミド化合物、エポキシ化合物、シラン化合物、アミノ樹脂、ポリオール架橋剤、ポリアミン、トリアジン化合物、金属石鹸等を挙げることができる。なかでも、有機過酸化物、フェノール樹脂架橋剤が好ましい。これらを一種単独で又は二種以上を組み合わせて用いることができる。

20

【0084】

有機過酸化物としては、1,3-ビス(t-ブチルパーオキシイソプロピル)ベンゼン、2,5-ジメチル-2,5-ビス(t-ブチルパーオキシ)ヘキシン-3、2,5-ジメチル-2,5-ビス(t-ブチルパーオキシ)ヘキセン-3、2,5-ジメチル-2,5-ビス(t-ブチルパーオキシ)ヘキサン、2,2'-ビス(t-ブチルパーオキシ)-p-イソプロピルベンゼン、ジクミルパーオキシド、ジ-t-ブチルパーオキシド、t-ブチルパーオキシド、p-メンタンパーオキシド、1,1-ビス(t-ブチルパーオキシ)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサン、ジラウロイルパーオキシド、ジアセチルパーオキシド、t-ブチルパーオキシベンゾエート、2,4-ジクロロベンゾイルパーオキシド、p-クロロベンゾイルパーオキシド、ベンゾイルパーオキシド、ジ(t-ブチルパーオキシ)パーベンゾエート、n-ブチル-4,4-ビス(t-ブチルパーオキシ)バレレート、t-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート等を挙げることができる。なかでも、1,3-ビス(t-ブチルパーオキシイソプロピル)ベンゼン、2,5-ジメチル-2,5-ジ(t-ブチルパーオキシ)ヘキシン-3、2,5-ジメチル-2,5-ジ(t-ブチルパーオキシ)ヘキサン、 $\quad$ 、 $\quad$ -ビス(t-ブチルパーオキシ)ジイソプロピルベンゼン、ジクミルパーオキサイド、ジ-t-ブチルパーオキサイドが好ましい。これらを一種単独で又は二種以上を組み合わせて用いることができる。

30

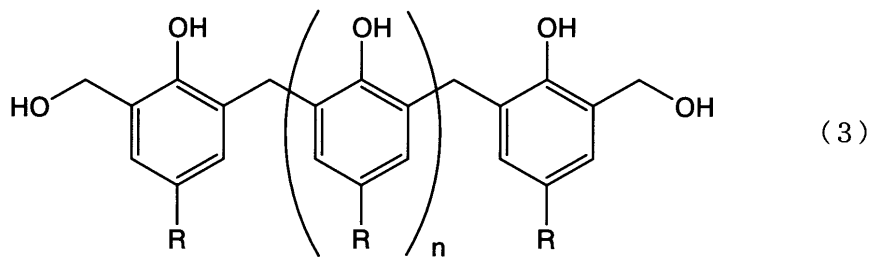
40

【0085】

フェノール樹脂架橋剤としては、例えば、下記一般式(3)で表されるp-置換フェノール系化合物、o-置換フェノール・アルデヒド縮合物、m-置換フェノール・アルデヒド縮合物、臭素化アルキルフェノール・アルデヒド縮合物等を挙げることができる。なかでも、p-置換フェノール系化合物が好ましい。これらを一種単独で又は二種以上を組み合わせて用いることができる。

【0086】

## 【化 2】



10

## 【0087】

前記一般式(3)中、Rは炭素数1～15の飽和炭化水素基であり、nは0～10の整数である。なお、p-置換フェノール系化合物は、アルカリ触媒の存在下における、p-置換フェノールとアルデヒド(好ましくはホルムアルデヒド)との縮合反応により得ることができる。

## 【0088】

フェノール系架橋剤の市販品としては、商品名「タッキロール201」(アルキルフェノールホルムアルデヒド樹脂、田岡化学工業社製)、商品名「タッキロール250-I」(臭素化率4%の臭素化アルキルフェノールホルムアルデヒド樹脂、田岡化学工業社製)、商品名「タッキロール250-II」(臭素化アルキルフェノールホルムアルデヒド樹脂、田岡化学工業社製)、商品名「PR-4507」(群栄化学工業社製)、商品名「ST137X」(ローム&ハース社製)、商品名「スミライトレジンPR-22193」(住友デュレズ社製)、商品名「タマノル531」(荒川化学社製)、商品名「SP1059」、商品名「SP1045」、商品名「SP1055」、商品名「SP1056」(以上、スケネクタディ社製)、商品名「CRM-0803」(昭和ユニオン合成社製)を挙げることができる。なかでも、「タッキロール201」が好ましく使用される。

20

## 【0089】

架橋剤の使用量は、シール材用熱可塑性エラストマー組成物を製造するための原料組成物に含まれる(A)成分と(B)成分の合計100質量部に対して、0.01～20質量部とすることが好ましく、0.1～15質量部とすることが更に好ましく、1～10質量部とすることが更に好ましい。

30

## 【0090】

架橋剤として有機過酸化物を使用する場合において、この有機過酸化物の使用量は、シール材用熱可塑性エラストマー組成物を製造するための原料組成物に含まれる(A)成分と(B)成分の合計100質量部に対して、0.05～10質量部とすることが好ましく、0.1～5質量部とすることが更に好ましい。有機過酸化物の使用量が10質量部超であると、架橋度が過度に高くなり、成形加工性が低下し、得られるシール材用熱可塑性エラストマー組成物の機械的物性が低下する傾向にある。一方、有機過酸化物の使用量が0.05質量部未満であると、架橋度が不足し、得られるシール材用熱可塑性エラストマー組成物のゴム弾性及び機械的強度が低下する傾向にある。

40

## 【0091】

また、架橋剤としてフェノール樹脂架橋剤を使用する場合において、このフェノール樹脂架橋剤の使用量は、シール材用熱可塑性エラストマー組成物を製造するための原料組成物に含まれる(A)成分と(B)成分の合計100質量部に対して、0.2～10質量部とすることが好ましく、0.5～5質量部とすることが更に好ましい。フェノール樹脂架橋剤の使用量が10質量部超であると、成形加工性が低下する傾向にある。一方、フェノール樹脂架橋剤の使用量が0.2未満であると、架橋度が不足し、得られるシール材用熱可塑性エラストマー組成物のゴム弾性及び機械的強度が低下する傾向にある。

## 【0092】

50

架橋剤とともに、架橋助剤及び/又は架橋促進剤を用いると、架橋反応を穏やかに行うことができ、均一な架橋を形成することができるために好ましい。架橋剤として有機過酸化物を用いる場合には、架橋助剤として、硫黄、硫黄化合物（粉末硫黄、コロイド硫黄、沈降硫黄、不溶性硫黄、表面処理硫黄、ジペンタメチレンチウラムテトラスルフィド等）、オキシム化合物（*p*-キノンオキシム、*p*, *p*'-ジベンゾイルキノンオキシム等）、多官能性モノマー類（エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ジエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、トリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、テトラエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ポリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、ジアリルフタレート、テトラアリルオキシエタン、トリアリルシアヌレート、*N*, *N*'-*m*-フェニレンビスマレイミド、*N*, *N*'-トルイレンビスマレイミド、無水マレイン酸、ジビニルベンゼン、ジ（メタ）アクリル酸亜鉛等）等を用いることが好ましい。なかでも、*p*, *p*'-ジベンゾイルキノンオキシム、*N*, *N*'-*m*-フェニレンビスマレイミド、ジビニルベンゼンが好ましい。これらを一種単独で又は二種以上を組み合わせる用いることができる。なお、*N*, *N*'-*m*-フェニレンビスマレイミドは、架橋剤としての作用を示すものであるため、架橋剤として単独で使用することもできる。

10

20

30

40

50

## 【0093】

架橋剤として有機過酸化物を使用する場合における、架橋助剤の使用量は、原料組成物に含まれる（A）成分と（B）成分の合計100質量部に対して、10質量部以下とすることが好ましく、0.2～5質量部とすることが更に好ましい。架橋助剤の使用量が10質量部超であると、架橋度が過度に高くなり、成形加工性が低下し、得られるシール材用熱可塑性エラストマー組成物の機械的物性が低下する傾向にある。

## 【0094】

（（E）水添ジエン系重合体）

本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物には、更に（E）水添ジエン系重合体（以下、「（E）成分」ともいう）を含有させることが好ましい。（E）成分としては、共役ジエンの重合体を水素添加したものであればよいが、これ以外にも、共役ジエンと芳香族ビニル化合物とのランダム共重合体や、下記（e）～（i）に示す重合体ブロックから選択される二以上の重合体ブロックを含むブロック共重合体を水素添加したものが好ましい。

## 【0095】

（e）芳香族ビニル化合物単位の割合が80質量%以上である芳香族ビニル化合物重合体ブロック

（f）共役ジエン単位の割合が80質量%以上である共役ジエン重合体ブロック

（g）1, 2-及び3, 4-結合含量の合計が25質量%未満である共役ジエン重合体ブロック

（h）1, 2-及び3, 4-結合含量の合計が25質量%以上、90質量%以下である共役ジエン重合体ブロック

（i）芳香族ビニル化合物と共役ジエンのランダム共重合体ブロック

## 【0096】

上記（i）に示すランダム共重合体ブロックには、芳香族ビニル化合物単位の含量が、一分子中で連続的に変化する、いわゆるテーパータイプのものが含まれる。また、上記「（e）～（i）に示す重合体ブロックから選択される二以上の重合体ブロックを含むブロック共重合体」の例としては、（e）-（f）、（e）-（g）、（e）-（h）、（e）-（i）、（g）-（h）、（g）-（i）、[（e）-（f）]<sub>x</sub>-Y、[（e）-（g）]<sub>x</sub>-Y、[（e）-（h）]<sub>x</sub>-Y、[（e）-（i）]<sub>x</sub>-Y、[（g）-（h）]<sub>x</sub>-Y、[（g）-（i）]<sub>x</sub>-Y、（e）-（f）-（g）、（e）-（f）-（i）、（e）-（f）-（e）、（e）-（g）-（e）、（e）-（h）-（e）、（e）-（h）-（g）、（e）-（i）-（e）、[（e）-（f）-（g）]<sub>x</sub>-Y、[（e）-（f）-（i）]<sub>x</sub>-Y、[（e）-（f）-（e）]<sub>x</sub>-Y、[（e）-

(g) - (e)] x - Y、[(e) - (h) - (e)] x - Y、[(e) - (h) - (g)] x - Y、[(e) - (i) - (e)] x - Y、(e) - (f) - (e) - (f)、(f) - (e) - (f) - (e)、(e) - (g) - (e) - (g)、(g) - (e) - (g) - (e)、[(e) - (f) - (e) - (f)] x - Y、(e) - (f) - (e) - (f) - (e)、[(e) - (f) - (e) - (f) - (e)] x - Y、[(f) - (e)] x - Y、[(g) - (e)] x - Y、[(h) - (e)] x - Y、[(i) - (e)] x - Y、(f) - (e) - (f) - (g)、(f) - (e) - (f) - (i)、(f) - (e) - (f) - (e)、(f) - (e) - (g) - (e)、(g) - (e) - (h) - (e)、(g) - (e) - (h) - (g)、(g) - (e) - (i) - (e)、[(g) - (e) - (f) - (g)] x - Y、[(h) - (e) - (f) - (i)] x - Y、[(h) - (e) - (f) - (e)] x - Y、[(h) - (e) - (g) - (e)] x - Y、[(h) - (e) - (h) - (e)] x - Y、[(h) - (e) - (h) - (g)] x - Y、[(h) - (e) - (i) - (e)] x - Y、(h) - (e) - (f) - (e) - (f)、(h) - (f) - (e) - (f) - (e)、(h) - (e) - (g) - (e) - (g)、(h) - (g) - (e) - (g) - (e)、[(h) - (e) - (f) - (e) - (f)] x - Y、(h) - (e) - (f) - (e) - (e) - (e)、[(h) - (e) - (f) - (e) - (f) - (e) - (f) - (e)] x - Y等を挙げることができる(但し、x = 2であり、Yはカップリング剤の残基である)。

10

## 【0097】

なお、得られる水添ジエン系重合体の形状をペレット形状にする場合には、水添変性重合体の外側のブロック成分として、(e)重合体ブロック及び/又は(g)重合体ブロックを含むことが好ましい。

20

## 【0098】

(E)成分を製造するのに用いられる芳香族ビニル化合物としては、スチレン、*m*-メチルスチレン、*p*-メチルスチレン、*t*-ブチルスチレン、ジビニルベンゼン、*N,N*-ジメチル-*p*-アミノエチルスチレン、2,4-ジメチルスチレン、*N,N*-ジエチル-*p*-アミノエチルスチレン、2,4-ジメチルスチレン、ビニルナフタレン、ビニルアントラセン等を挙げることができる。なかでも、スチレン、*m*-メチルスチレンが好ましい。

## 【0099】

また、(E)成分を製造するのに用いられる共役ジエンとしては、1,3-ブタジエン、イソプレン、2,3-ジメチル-1,3-ブタジエン、1,3-ペンタジエン、2-メチル-1,3-ペンタジエン、1,3-ヘキサジエン、4,5-ジメチル-1,3-オクタジエン、クロロプレン等を挙げることができる。なかでも、1,3-ブタジエン、イソプレンが好ましい。

30

## 【0100】

水添前重合体を構成する、共役ジエン単量体と芳香族ビニル単量体の組成割合(共役ジエン化合物/芳香族ビニル化合物(質量比))は、特に限定はないが、通常、共役ジエン/芳香族ビニル化合物 = 5/95 ~ 100/0、好ましくは共役ジエン/芳香族ビニル化合物 = 5/95 ~ 95/5、更に好ましくは共役ジエン/芳香族ビニル化合物 = 30/70 ~ 92/8である。

40

## 【0101】

(E)成分は、水添前重合体に含まれる共役ジエンに由来する二重結合の80%以上が飽和されたものであることが好ましく、90%以上が飽和されたものであることが好ましい。飽和の割合が80%未満であると、耐候性等が低下する場合がある。また、(E)成分の重量平均分子量は、5000 ~ 10000000であることが好ましく、10000 ~ 5000000であることが更に好ましい。

## 【0102】

上記カップリング剤としては、例えば、ハロゲン化合物、エポキシ化合物、カルボニル化合物、ポリビニル化合物等を挙げることができる。より具体的には、例えば、メチルジ

50

クロロシラン、メチルトリクロロシラン、ブチルトリクロロシラン、テトラクロロシラン、ジブromoエタン、エポキシ化大豆油、ジビニルベンゼン、テトラクロロ錫、ブチルトリクロロ錫、テトラクロロゲルマニウム、ビス(トリクロロシリル)エタン、アジピン酸ジエチル、アジピン酸ジメチル、ジメチルテレフタル酸、ジエチルテレフタル酸、ポリイソシアネート等を挙げることができる。

#### 【0103】

(E)成分の製造方法において、ミクロ構造、即ち、1, 2 - 又は3, 4 - 結合の含量は、ルイス塩基を炭化水素溶媒とともに用いることにより制御することができる。かかるルイス塩基としては、例えば、エーテル及びアミン等を挙げることができ、より具体的には、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、プロピルエーテル、ブチルエーテル、高級エーテル、テトラヒドロフルフリルメチルエーテル、テトラヒドロフルフリルエチルエーテル、1, 4 - ジオキサン、ビス(テトラヒドロフルフリル)ホルマール、2, 2 - ビス(2 - テトラヒドロフルフリル)プロパン、エチレングリコールジブチルエーテル、ジエチレングリコールジメチルエーテル、プロピレングリコールジエチルエーテル、及びプロピレングリコールエチルプロピルエーテル等のポリアルキレングリコールのエーテル誘導体等；テトラメチルエチレンジアミン、ピリジン、トリブチルアミン等の第3級アミン等を挙げることができる。

10

#### 【0104】

(E)成分の具体例としては、水添スチレン - ブタジエンブロック共重合体、水添スチレン - イソプレンブロック共重合体、水添スチレン - ブタジエン - イソプレンブロック共重合体、水添ブタジエンブロック共重合体等を挙げることができる。なかでも、水添スチレン - ブタジエンブロック共重合体、水添スチレン - ブタジエン - イソプレンブロック共重合体、水添ブタジエンブロック共重合体が好ましい。(E)成分の市販品としては、クラレ社製のセプトン(商品名)、ハイブラー(商品名)、旭化成社製のタフテック(商品名)、JSR社製のダイナロン(商品名)、クレイトンポリマーズ社製のクレイトン(商品名)等を挙げることができる。

20

#### 【0105】

(E)成分の含有割合は、(A)成分と(B)成分の合計量100質量部に対して、1 ~ 30質量部であることが好ましく、5 ~ 15質量部であることが更に好ましい。1質量部未満であると、最終的に得られるシール材用熱可塑性エラストマー組成物の柔軟性が低下する傾向にある。一方、30質量部超であると、最終的に得られるシール材用熱可塑性エラストマー組成物の耐熱性が低下する場合がある。

30

#### 【0106】

(添加剤、充填剤)

本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、各種の添加剤及び/又は充填剤を含有させることができる。添加剤としては、老化防止剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、帯電防止剤、耐候剤、非ハロゲン系難燃剤、充填剤、防菌・防かび剤、ブロッキング剤、シール性改良剤、熱安定剤、光安定剤、銅害防止剤等の安定剤、金属不活性剤、結晶核剤、粘着付与剤、発泡助剤、着色剤(染料、顔料等)等を挙げることができる。

40

#### 【0107】

また、最終製品の装着性等の摺動特性を向上させるため、本発明の効果を損なわない範囲で滑剤成分を添加することができる。滑剤成分としては、金属石鹸、オレフィン樹脂ワックス、脂肪酸、脂肪酸アミド、脂肪アルコール、脂肪酸エステル等を挙げることができる。また、滑剤成分は、最終製品の通常使用温度下において固形状のもの、又は高粘度特性を示すものが好ましい。液状のものや低粘度特性のものでは、シール材用熱可塑性エラストマー組成物からの溶出に起因する肉痩せ等の不具合が生じ易く、長期間にわたってシール性を維持できなくなる場合がある。

#### 【0108】

また、充填剤としては、フェライト等の金属粉末、ガラス繊維、金属繊維等の無機繊維

50

、炭素繊維、アラミド繊維等の有機繊維、複合繊維、チタン酸カリウムウイスキー等の無機ウイスキー、ガラスビーズ、ガラスバルーン、ガラスフレーク、マイカ、炭酸カルシウム、タルク、湿式シリカ、乾式シリカ、アルミナ、アルミナシリカ、ケイ酸カルシウム、ハイドロタルサイト、カオリン、けい藻土、グラファイト、軽石、エポ粉、コットンフロク、コルク粉、硫酸バリウム、フッ素樹脂、ポリマービーズ、カーボンブラック、セルロースパウダー、ゴム粉、木粉等を挙げることができる。

【0109】

(その他の重合体成分)

本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物には、(A)成分、(B)成分、及び必要に応じて用いられる(E)成分以外にも、その他の重合体成分が含有されていてもよい。含有させることのできるその他の重合体成分の種類は、得られるシール材用熱可塑性エラストマー組成物の機械的強度、柔軟性等を阻害しないものであれば、特に限定されない。

10

【0110】

その他の重合体成分としては、アイオノマー樹脂、アミノアクリルアミド重合体、ポリエチレン及びその無水マレイン酸グラフト重合体、ポリイソブチレン、エチレン・ビニルアルコール共重合体、エチレン・酢酸ビニル共重合体、ポリエチレンオキサイド、エチレン・アクリル酸共重合体、ポリプロピレン及びその無水マレイン酸グラフト重合体、ポリイソブチレン及びその無水マレイン酸グラフト重合体、塩素化ポリプロピレン、4-メチルペンテン-1樹脂、ポリスチレン、ABS樹脂、ACS樹脂、AS樹脂、AES樹脂、ASA樹脂、MBS樹脂、アクリル樹脂、メタクリル樹脂、ポリアミド樹脂、ポリカーボネート、ビニルアルコール樹脂、ビニルアセタール樹脂、ポリエーテル樹脂、ポリエチレンテレフタレート、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ジエン共重合体ゴム、ニトリルゴム及びその水素添加物、アクリルゴム、シリコーンゴム、ブチルゴム、天然ゴム、シンジオタクチック1,2-ポリブタジエン、単純ブレンド型オレフィン系熱可塑性エラストマー、インプラント型オレフィン系熱可塑性エラストマー、動的架橋型オレフィン系熱可塑性エラストマー、ポリウレタン系熱可塑性エラストマー、ポリエステル系熱可塑性エラストマー、ポリアミド系熱可塑性エラストマー、フッ素系熱可塑性エラストマーを挙げることができる。これらの重合体成分は、一種単独で又は二種以上を組み合わせて用いることができる。

20

30

【0111】

(シール材用熱可塑性エラストマー組成物)

本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物は、可塑剤を実質的に含有しないものである。従って、可塑剤の揮発等に起因する肉痩せ等の不具合が生じ難く、長期間にわたって優れたシール性を発揮するものである。また、本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物は、軟化剤を実質的に含有しないものである。従って、長期間にわたってシール特性を維持できるため、内封する物質の透過減量を少なくすることができる。ここで、本明細書にいう、可塑剤及び軟化剤を「実質的に含有しない」とは、可塑剤及び軟化剤の合計の含有割合が、シール材用熱可塑性エラストマー組成物の全体に対して、5.0質量%以下、好ましくは2.0質量%以下、更に好ましくは1.0質量%以下であることをいう。なお、最も好ましい可塑剤及び軟化剤の含有割合は、0.1質量%以下である(即ち、全く含まれていない)。

40

【0112】

なお、本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、微量の可塑剤を含有させることもできる。含有させることのできる可塑剤としては、ジメチルフタレート、ジエチルフタレート、ジブチルフタレート、ジイソブチルフタレート、ジオクチルフタレート、ブチルオクチルフタレート、ジ-(2-エチルヘキシル)フタレート、ジイソオクチルフタレート、ジイソデシルフタレート等のフタル酸エステル類;ジメチルアジペート、ジイソブチルアジペート、ジ-(2-エチルヘキシル)アジペート、ジイソオクチルアジペート、ジイソデシルアジペート、オクチルデシルア

50

ジペート、ジ - ( 2 - エチルヘキシル ) アゼレート、ジイソオクチルアゼレート、ジイソブチルアゼレート、ジブチルセバケート、ジ - ( 2 - エチルヘキシル ) セバケート、ジイソオクチルセバケート等の脂肪酸エステル類；トリメリット酸イソデシルエステル、トリメリット酸オクチルエステル、トリメリット酸 n - オクチルエステル、トリメリット酸系イソノニルエステル等のトリメリット酸エステル類の他、ジ - ( 2 - エチルヘキシル ) フマレート、ジエチレングリコールモノオレート、グリセリルモノリシノレート、トリラウリルホスフェート、トリスチアリルホスフェート、トリ - ( 2 - エチルヘキシル ) ホスフェート、トリクレジルホスフェート、エポキシ化大豆油、ポリエーテルエステル等を挙げることができる。一方、使用することが好ましくない可塑剤及び軟化剤としては、アロマティック油、ナフテン油、パラフィン油、ホワイトオイル、ペトロラタム、ギルソナイト等の石油系軟化剤；ひまし油、綿実油、菜種油、パーム油、椰子油、ロジン等の植物油系軟化剤を挙げることができる。

10

#### 【 0 1 1 3 】

本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物のメルトフローレート ( M F R ) は、温度 2 3 0 、荷重 2 1 N の条件において、 0 . 1 g / 1 0 分以上であることが好ましく、 1 . 0 g / 1 0 分以上であることが更に好ましく、 2 . 0 g / 1 0 分以上であることが特に好ましく、 3 . 0 g / 1 0 分以上であることが最も好ましい。M F R が 0 . 1 g / 1 0 分未満であると、各種成形方法による加工性等が不十分となる傾向にある。

#### 【 0 1 1 4 】

本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物は、流動性にも優れたものである。従って、金型を使用して各種の成形体を製造した場合であっても、金型汚染が発生し難く、長期間にわたって金型を使用することができる。また、本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物は、リサイクル可能なものであるため、材料を無駄なく使用することができる。

20

#### 【 0 1 1 5 】

( シール材用熱可塑性エラストマー組成物の製造方法 )

本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物は、( A ) 成分、( B ) 成分、及び ( C ) 成分を含有する原料組成物に ( D ) 架橋剤を加え、動的に熱処理することによって製造することができる。ここで、「動的に熱処理する」とは、剪断力を加えること、及び加熱することの両方を行うことをいう。そして、このような動的な熱処理によって得られる本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物は、具体的には、( B ) 成分を海相とし、この海相中に、( A ) 成分の粒子が島相として分散している、いわゆる海島構造を構成している。

30

#### 【 0 1 1 6 】

原料組成物を調製するに際しては、( A ) 成分及び ( B ) 成分は、そのまま用いてもよいし、それぞれ同一又は異なる添加剤等を含む組成物として調製したものを用いてもよい。( A ) 成分の形状は、ペール状、クラム状、ペレット状、粉体状 ( ペール状ゴム又はクラム状ゴムの粉碎品を含む ) のいずれであってもよい。また、形状の異なる複数の ( A ) 成分を組み合わせて用いてもよい。

#### 【 0 1 1 7 】

「動的に熱処理する」ために用いる装置としては、溶融混練装置等を好適例として挙げることができる。この溶融混練装置による処理は、連続式及びバッチ式のいずれの方式でもよい。溶融混練装置の具体例としては、開放型のミキシングロール、非開放型のバンバリミキサ、一軸押出機、二軸押出機、連続式混練機、加圧ニーダー等を挙げることができる。これらのうち、経済性、処理効率等の観点から、一軸押出機、二軸押出機、連続式混練機等の連続式の溶融混練装置を用いることが好ましい。また、型式が同一の又は異なる連続式の溶融混練装置を二台以上組み合わせて用いてもよい。

40

#### 【 0 1 1 8 】

二軸押出機の L / D 比 ( スクリュー有効長さ L と外径 D との比 ) は、3 0 以上であることが好ましく、3 6 ~ 6 0 であることが更に好ましい。また、二軸押出機としては、例え

50

ば、二本のスクリューが噛み合うもの、噛み合わないもの等の任意の二軸押出機を使用することができるが、二本のスクリューの回転方向が同一方向でスクリューが噛み合うものがより好ましい。このような二軸押出機としては、例えば、商品名「PCM」（池貝社製）、商品名「KTX」（神戸製鋼所社製）、商品名「TEX」（日本製鋼所社製）、商品名「TEM」（東芝機械社製）、商品名「ZSK」（ワーナー社製）等を挙げることができる。

#### 【0119】

連続式混練機のL/D比（スクリュー有効長さLと外径Dとの比）は、5以上であることが好ましく、10以上であることが更に好ましい。このような連続式混練機としては、商品名「ミクストロンKTX・LCM・NCM」（神戸製鋼所社製）、商品名「CIM・CMP」（日本製鋼所社製）等を挙げることができる。

10

#### 【0120】

動的に熱処理するに際しての処理温度は、120～350 とすることが好ましく、150～290 とすることが更に好ましい。処理時間は、20秒間～320分間とすることが好ましく、30秒間～25分間とすることが更に好ましい。また、負荷する剪断力は、ずり速度で10～20000/secとすることが好ましく、100～10000/secとすることが更に好ましい。

#### 【0121】

### 2. 成形部材

次に、本発明の成形部材について説明する。本発明の成形部材の一実施形態は、これまで述べてきたシール材用熱可塑性エラストマー組成物を成形してなるものである。従って、本実施形態の成形部材は、リサイクル可能であるとともに、強度、柔軟性、耐溶剤性、耐ガス透過性、及びシール性に優れたものであり、シール材、チューブ材として好適である。

20

#### 【0122】

本実施形態の成形部材は、上述のような特性を生かし、コンデンサ用、バッテリー用、トナーケース用、インクカートリッジを含むインクジェットプリンター用、FPD（フラットパネルディスプレイ）用、家庭用電化製品若しくはAV機器等の筐体用の各種成形部材（シール材、チューブ材）として好適である。また、本実施形態の成形部材を配設することによりシール部を構成すれば、優れたシール性等を有するシール部を備えた容器を提供することができる。

30

#### 【0123】

なお、本実施形態の成形部材は、例えば射出成形、プレス成形、押出成形等の各種成形方法によって製造することができる。特に、射出成形することによって製造すれば、より耐ガス透過性に優れた成形部材とすることができるために好ましい。これは、本実施形態のシール材用熱可塑性エラストマー組成物を射出成形すると、含有する（C）成分が配向するためであると推測される。

#### 【0124】

### 3. コンデンサ

次に、本発明のコンデンサについて説明する。図1は、本発明のコンデンサの一実施形態を模式的に示す断面図である。図1に示すコンデンサ5は、コンデンサ素子4と、外装ケース3と、シール材1とを備えたものである。コンデンサ素子4には、外部に電気を取り出すためのリード線2が配設されている。また、外装ケース3は、一以上の開口部6を有し、その内部にコンデンサ素子4を収容し得るものである。そして、シール材1は、コンデンサ素子4をその内部に収容した外装ケース3の開口部6を封止するように配設されている。

40

#### 【0125】

本実施形態のコンデンサ5のシール材1は、前述のシール材用熱可塑性エラストマー組成物からなるシール材である。このため、このシール材1は、リサイクル可能であるとともに、強度、柔軟性、耐溶剤性、耐ガス透過性、及びシール性に優れたものである。従っ

50

て、このシール材 1 を備えた本実施形態のコンデンサ 5 は、気密性に優れたものである。また、シール材 1 のシール性は極めて優れているため、外装ケース 3 内に封入される電解液等が劣化・漏洩等し難い。従って、本実施形態のコンデンサ 5 は、長期間使用可能であるといった特性を有するものである。更に、シール材 1 は、その形状を薄くした場合であっても、十分なシール性が発揮される。従って、このシール材 1 を用いた本実施形態のコンデンサ 5 は、その全体構造を小型化することができる。

#### 【 0 1 2 6 】

本実施形態のコンデンサ 5 は、例えば、以下に示す方法により製造することができる。先ず、リード線 2 を接続した陽極箔と陰極箔を、セパレータを介して捲回することにより、コンデンサ素子 4 を作製する。このコンデンサ素子 4 を、電解液を含浸させた後にアルミニウム等の金属材料からなる外装ケース 3 内に収納する。次いで、外装ケース 3 の開口部にシール材 1 を配置し、開口部 6 を外側から絞る等の形状加工を行うことにより、コンデンサ 5 を製造することができる。

10

#### 【 実施例 】

#### 【 0 1 2 7 】

以下、本発明を実施例に基づいて具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。なお、実施例、比較例中の「部」及び「%」は、特に断らない限り質量基準である。また、各種物性値の測定方法、及び諸特性の評価方法を以下に示す。

#### 【 0 1 2 8 】

[ 引張試験 ] : J I S K 6 2 5 1 に準拠して、引張強度  $T_B$  ( M P a )、及び引張伸び  $E_B$  ( % ) を測定した。

20

#### 【 0 1 2 9 】

[ 硬度 ] : J I S K 6 2 5 3 に準拠して硬度 ( H S ( デュロ A ) ) を測定した。

#### 【 0 1 3 0 】

[ 溶剤透過試験 ] : カップ法による測定値から、透過量を算出した。具体的には、内径 3 5 m m、深さ 2 0 m m のカップに  $\gamma$ -ブチロラクトンを入れ、シート状に成形した試料でカップを封ずる。このカップを 8 0 % のオープン内に静置し、2 4 時間毎にカップの質量を測定する。オープンに入れる前のカップの質量を「初期質量」とし、下記式 ( 4 ) より透過度 ( ( m g · m m ) / ( m <sup>2</sup> · h ) ) を算出した。

透過度 = { [ 初期質量 ( m g ) - t 日数後の質量 ( m g ) ] × 試料厚み ( m m ) } / { カップ口面積 ( m <sup>2</sup> ) × 試験時間 ( h ) } . . . ( 4 )

30

#### 【 0 1 3 1 】

[ リサイクル特性 ] : 加工温度付近の温度 ( 1 6 0 ~ 2 5 0 ° C ) において塑性変形特性を有するか否かを観察し、塑性変形特性が認められる場合を「○ ( リサイクル特性良好 )」、塑性変形特性が認められない場合を「× ( リサイクル特性不良 )」と評価した。

#### 【 0 1 3 2 】

##### ( 実施例 1 )

1 5 0 g に加熱した加圧型ニーダー ( 容量 1 0 リットル、モリヤマ社製 ) にブチルゴム ( 商品名「 B u t y l 2 6 8 」、J S R 社製 ) 7 5 部、及び板状フィラー ( ケイ酸マグネシウム ( タルク )、商品名「 ミストロンベパ」、シエラ タルク社製 ) 2 0 部数を添加、及び混練した。その後、ポリプロピレン ( 商品名「 P M 9 0 0 A 」、サンアロマー社製 ) 2 5 部を更に投入した。ポリプロピレンが溶融して各成分が均一に分散するまで、4 0 r p m ( ずり速度 2 0 0 / s e c ) で 1 5 分間混練することにより、溶融状態の混練物を得た。得られた溶融状態の混練物を、フィーダルーダー ( モリヤマ社製 ) を用いてペレット化した混練物を得た。ペレット化した混練物 1 0 0 部、及び粉状に粉碎した架橋剤 ( 商品名「 タッキロール 2 0 1 」、田岡化学社製 ) 2 部をヘンシェルミキサーに投入し、3 0 秒間混合した。その後、二軸押出機 ( 同方向完全噛合い型スクリュウ、L / D = 3 3 . 5、池貝社製 ) を使用し、2 0 0 ° C、滞留時間 1 分 3 0 秒、3 0 0 r p m ( ずり速度 4 0 0 / s e c )、で動的熱処理を行いながら押し出して、ペレット状の熱可塑性エラストマー組成物 ( 実施例 1 ) を得た。

40

50

## 【 0 1 3 3 】

得られた熱可塑性エラストマー組成物を、射出成形機（型番「N - 1 0 0」、日本製鋼所社製）を使用して射出成形することによって、1 2 0 mm × 1 2 0 mm × 2 mmのシート状の、物性評価用の試験片を作製した。作製した試験片の引張強度 $T_B$ は5 MPa、引張伸び $E_B$ は4 1 0 %、硬度HSは7 6ポイント、溶剤透過試験により測定した透過量は2 3 0 (mg · mm) / (m<sup>2</sup> · h)、及びリサイクル特性の評価結果は「 」であった。

## 【 0 1 3 4 】

（実施例 2 ~ 4、比較例 1）

表 1 に示す配合処方とすること以外は、前述の実施例 1 の場合と同様にして、ペレット状の熱可塑性エラストマー組成物（実施例 2 ~ 4、比較例 1）を得た。なお、使用した各種成分・添加剤の商品名及び製造元を表 2 に示す。得られた熱可塑性エラストマー組成物を、前述の実施例 1 の場合と同様にして射出成形することにより、物性評価用の試験片を作製した。作製した試験片の各種物性値の測定結果、及び特性の評価結果を表 1 に示す。

10

## 【 0 1 3 5 】

（比較例 2）

1 0 0 に加熱したバンパリーミキサ（容量 1 . 7 リットル、神戸製鋼所社製）に、表 1 に示す配合処方に従って架橋剤以外の各種成分・添加剤を投入し、各成分が均一に分散するまで、6 0 r p mで約 1 0 分間混練することにより、配合ゴム組成物を得た。得られた配合ゴム組成物 3 0 8 . 5 部に対して、架橋剤（商品名「タッキロール 2 0 1」、田岡化学社製）1 2 部を、6 インチロール（関西ロール社製）を用いて添加することにより、架橋剤入り配合ゴム組成物（比較例 2）を得た。なお、使用した各種成分・添加剤の商品名及び製造元を表 2 に示す。

20

## 【 0 1 3 6 】

得られた架橋剤入り配合ゴム組成物を、プレス機（関西ロール社製）と金型モールドを用いて、2 0 0 × 4 5 分間プレス成形することによって、1 2 0 mm × 1 2 0 mm × 2 mmのシート状の、物性評価用の試験片を作製した。作製した試験片の各種物性値の測定結果、及び特性の評価結果を表 1 に示す。

## 【 0 1 3 7 】

（比較例 3）

表 1 に示す配合処方とすること以外は、前述の比較例 2 の場合と同様にして架橋剤、架橋助剤以外の各種成分・添加剤を添加、混練し、配合ゴム組成物を得た。得られた配合ゴム組成物 1 8 6 . 2 部に対して、架橋剤（2）（商品名「パークミル D - 4 0」、日本油脂社製）8 . 2 部と、架橋助剤（商品名「バルノック D G M」、大内新興化学工業社製）2 . 5 部を、6 インチロール（関西ロール社製）を用いて添加することにより、架橋剤入り配合ゴム組成物（比較例 3）を得た。なお、使用した各種成分・添加剤の商品名及び製造元を表 2 に示す。得られた架橋剤入り配合ゴム組成物を、前述の比較例 2 の場合と同様にして 1 7 0 × 2 0 分間プレス成形することによって、物性評価用の試験片を作製した。作製した試験片の各種物性値の測定結果、及び特性の評価結果を表 1 に示す。

30

## 【 0 1 3 8 】

40

【表 1】

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	比較例1	比較例2	比較例3
配合処方(部)							
ブチルゴム	75	75	75	75	75	100	
エチレンプロピレンゴム							100
ポリプロピレン	25	25	25	25	25		
酸化亜鉛						5	5
ステアリン酸						2	0.5
カーボンブラック						50	40
板状ファイラー	20					30	40
焼成クレー		20	40			120	
マイカ				20			
老化防止剤(1)						1.5	
老化防止剤(2)							0.7
架橋剤(1)	5	5	5	5	5	12	
架橋剤(2)							8.2
共架橋剤							2.5
合計	125	125	145	125	105	320.5	196.9
評価							
引張試験	5	9	7	5	11	7	13
引張強度 $T_B$ (MPa)							
引張伸び $E_B$ (%)	410	330	250	110	440	300	280
硬度 HS(デュロA)	76	82	83	85	79	85	71
溶剤透過試験(透過度 $(\text{mg}\cdot\text{mm}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ )	230	268	238	180	350	225	3500
リサイクル特性	○	○	○	○	○	x	x

【 0 1 3 9 】

10

20

30

40

【表 2】

	商品名	製造元	備考
ブチルゴム	Butyl268	JSR	ML <sub>1+8</sub> (125°C):51、不飽和度:1.5%
エチレンプロピレンゴム	EP57C	JSR	ML <sub>1+4</sub> (100°C):40、C <sub>2</sub> (エチレン)含有量:66%
ポリプロピレン	PM900A	サンアロマー	MFR(温度230°C、荷重2.16kg):30(g/10分)、密度:0.90(g/cm <sup>3</sup> )
酸化亜鉛	3号亜鉛華	白水化学	
ステアリン酸	ルナック S-30	花王	
カーボンブラック	シーストS	東海カーボン	
板状ファイラー	ミストロンベーパー	シエラ タルク	
焼成クレー	バーゲスKE	バーゲスピグメント	
老化防止剤(1)	ノクラックNS-6	大内新興化学工業	
老化防止剤(2)	ノクラックRD	大内新興化学工業	
架橋剤(1)	タッキロール201	田岡化学	
架橋剤(2)	ジビニルベンゼン	新日鐵化学	
共架橋剤	バルノックDGM	大内新興化学工業	

表 1 に示すように、実施例 1 ~ 4 の熱可塑性エラストマー組成物を用いれば、比較例 1 ~ 3 の熱可塑性エラストマー組成物及びゴム組成物を用いた場合に比して、溶剤透過性が低いとともに、引張強度及び引張伸び（柔軟性）に優れたリサイクル可能なシール材を製造できることが明らかである。

【産業上の利用可能性】

【0141】

本発明のシール材用熱可塑性エラストマー組成物は、リサイクル可能であるとともに、強度、柔軟性、耐溶剤性、耐ガス透過性、及びシール性に優れたシール材やチューブ材等の成形部材を製造することができるものである。従って、本発明のシール材用熱可塑性エラストマー組成物からなるシール材を用いれば、小型であるとともに気密性に優れ、長期使用可能なコンデンサを提供することができる。

10

【図面の簡単な説明】

【0142】

【図 1】本発明のコンデンサの一実施形態を模式的に示す断面図である。

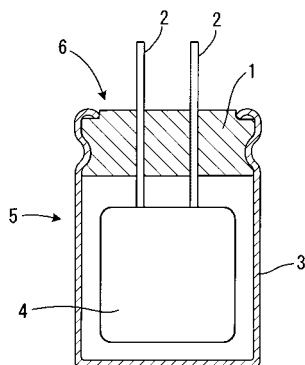
【符号の説明】

【0143】

- 1 シール材
- 2 リード線
- 3 外装ケース
- 4 コンデンサ素子
- 5 コンデンサ
- 6 開口部

20

【図 1】



## フロントページの続き

(51)Int.Cl.	F I			テーマコード(参考)
<b>H 0 1 G 9/10 (2006.01)</b>	H 0 1 G	9/10	E	
<b>B 6 5 D 39/04 (2006.01)</b>	B 6 5 D	39/04	A	

Fターム(参考) 3E084 AA02 AA12 AA23 AB01 BA01 CA01 EA02 EC03 FA09 FD08  
4F070 AA12 AA16 AC22 AC23 AC24 AC37 AE08 BA02 GA05 GA06  
GA07 GC07  
4J002 BB15W BB17X BB18W BK00X CC033 DA026 DJ006 DJ036 DJ046 DJ056  
EJ017 EJ037 EJ047 EK037 EK047 EK057 EK087 FD010 FD016 FD143  
FD147 FD150