

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7438214号
(P7438214)

(45)発行日 令和6年2月26日(2024.2.26)

(24)登録日 令和6年2月15日(2024.2.15)

(51)国際特許分類		F I	
C 0 9 J	7/30 (2018.01)	C 0 9 J	7/30
C 0 9 J	7/38 (2018.01)	C 0 9 J	7/38
C 0 9 J	123/00 (2006.01)	C 0 9 J	123/00
C 0 9 J	109/00 (2006.01)	C 0 9 J	109/00
C 0 9 J	107/00 (2006.01)	C 0 9 J	107/00
請求項の数 11 (全47頁) 最終頁に続く			
(21)出願番号	特願2021-528898(P2021-528898)	(73)特許権者	505005049
(86)(22)出願日	令和1年11月21日(2019.11.21)		スリーエム イノベイティブ プロパティ
(65)公表番号	特表2022-509154(P2022-509154		ズ カンパニー
	A)		アメリカ合衆国, ミネソタ州 5 5 1 3
(43)公表日	令和4年1月20日(2022.1.20)		3-3 4 2 7, セント ポール, ポスト
(86)国際出願番号	PCT/IB2019/060047		オフィス ボックス 3 3 4 2 7, スリー
(87)国際公開番号	WO2020/105000		エム センター
(87)国際公開日	令和2年5月28日(2020.5.28)	(74)代理人	100130339
審査請求日	令和4年11月18日(2022.11.18)		弁理士 藤井 憲
(31)優先権主張番号	18207960.8	(74)代理人	100110803
(32)優先日	平成30年11月23日(2018.11.23)		弁理士 赤澤 太朗
(33)優先権主張国・地域又は機関	欧州特許庁(EP)	(74)代理人	100135909
			弁理士 野村 和歌子
		(74)代理人	100133042
			弁理士 佃 誠玄
		最終頁に続く	

(54)【発明の名称】 共押出ゴム系多層接着剤アセンブリ

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

共押出多層接着剤アセンブリであって、
a) オレフィンからなる群から選択される1つ以上のモノマーの(コ)ポリマーを含む、熱活性化可能な接着剤樹脂層と、
b) ゴム系エラストマー材料を含む感圧接着剤ポリマー発泡体層と、を含み、
前記熱活性化可能な接着剤樹脂層が、前記感圧接着剤発泡体層と直接接触し、前記感圧接着剤発泡体層と直接接触している前記熱活性化可能な接着剤樹脂層の表面と、前記熱活性化可能な接着剤樹脂層と直接接触している前記感圧接着剤発泡体層の表面とが、化学的又は物理的接着促進表面処理を含まない、共押出多層接着剤アセンブリ。

【請求項2】

前記熱活性化可能な接着剤樹脂が、ポリエチレンホモポリマー、ポリプロピレンホモポリマー、エチレン／プロピレンコポリマー、及びこれらの任意の組み合わせ、ブレンド、又は混合物からなる群から選択される(コ)ポリマーを含む、請求項1に記載の多層接着剤アセンブリ。

【請求項3】

前記ゴム系エラストマー材料が、式Q_n-Yの多腕ブロックコポリマー
(式中、
i. Qは、多腕ブロックコポリマーの腕を表し、各腕は、独立して式G-Rを有し、
i i. nは、腕の数を表し、少なくとも3の整数であり、特にnは、3～5であり、好

ましくは、 n は4であり、

$i i i$. Y は、多官能性カップリング剤の残基であり、各 R は、重合共役ジエン、重合共役ジエンの水素化誘導体、又はこれらの組合せを含むゴム状ブロックであり、

各 G は、重合モノビニル芳香族モノマーを含むガラス状ブロックである)

を含む、請求項1または2に記載の多層接着剤アセンブリ。

【請求項4】

前記感圧接着剤ポリマー発泡体層が、炭化水素粘着付与剤を更に含む、請求項1～3のいずれか一項に記載の多層接着剤アセンブリ。

【請求項5】

前記感圧接着剤ポリマー発泡体層が、ポリマー可塑剤を更に含む、請求項1～4のいずれか一項に記載の多層接着剤アセンブリ。

10

【請求項6】

前記感圧接着剤ポリマー発泡体層が、第1の主面及び第2の主面を有し、前記熱活性化可能な接着剤樹脂層が、前記感圧接着剤ポリマー発泡体層の前記第1の主面と直接接触しており、前記多層感圧接着剤アセンブリが、前記感圧接着剤ポリマー発泡体層の前記第2の主面に結合された第2の感圧接着剤層を更に含む、請求項1～5のいずれか一項に記載の多層接着剤アセンブリ。

【請求項7】

前記第2の感圧接着剤層が、ゴム系エラストマー材料からなる群から選択されるポリマー系材料を含む、請求項6に記載の多層接着剤アセンブリ。

20

【請求項8】

前記化学的又は物理的接着促進表面処理が、物理的接着促進表面処理である、請求項1～7のいずれか一項に記載の多層接着剤アセンブリ。

【請求項9】

前記実験セクションに記載された前記静的剪断試験法に従って70℃で測定した場合、2000分超の静的剪断強度値を有する、請求項1～8のいずれか一項に記載の多層接着剤アセンブリ。

【請求項10】

前記熱活性化可能な接着剤樹脂層が、前記感圧ポリマー発泡体層と直接接触する第1の主面と、ゴムシール物品に結合された第2の主面と、を有する、請求項1～9のいずれか一項に記載の多層接着剤アセンブリを含む複合品。

30

【請求項11】

請求項1～10のいずれか一項に記載の多層接着剤アセンブリを製造する方法であって、前記感圧ポリマー発泡体層、前記熱活性化可能な接着剤樹脂層、及び任意に、前記第2の感圧接着剤層をホットメルト共押出しする工程を含む、方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本開示は、概して感圧接着剤 (pressure sensitive adhesive、PSA) の分野に関し、より詳細には、二重機能多層感圧接着剤アセンブリの分野に関する。本開示はまた、このような感圧接着剤アセンブリを製造する方法及びその使用にも関する。

40

【背景技術】

【0002】

接着剤は、多様なマーキング、保持、保護、封止、及び遮蔽目的のために使用されている。接着テープは概して、バックング又は基材と、接着剤とを含む。多くの用途に特に好ましい接着剤の1つのタイプは、感圧接着剤に代表される。

【0003】

感圧テープは、家庭及び職場の実質上至る所に存在する。その最もシンプルな構造において、感圧テープは、接着剤とバックングとを備え、その全体的構造は使用温度にて粘着性があり、また、適度な圧力を用いるだけで様々な基材に接着し、結合を形成する。こう

50

した方法で、感圧テープは、完全で自己完結型の結合システムを構成する。

【0004】

感圧接着剤（PSA）は当業者には周知であり、Pressure-Sensitive Tape Councilによると、PSAは以下を含む特性、即ち、（１）アグレッシブでかつ永久的な粘着力、（２）指圧以下の圧力による粘着力、（３）被着物に留まる十分な能力、及び（４）十分な結合力を有することが知られている。PSAとして良好に機能することが見出されている材料としては、所望のバランスの粘着性、剥離接着性、及び剪断保持力をもたらす、必要な粘弾性特性を示すように設計及び配合されたポリマーが挙げられる。PSAは、通常、室温（例えば、20℃）で粘着性であることを特徴とする。PSAは、それらが表面に粘着又は接着するという理由だけで、組成物を包含しない。

10

【0005】

これらの要求仕様は全般的に、連結性、接着（剥離強度）、及び結合（剪断保持力）を個別に測定するように設計された試験によって、A. V. Pocius in Adhesion and Adhesives Technology: An Introduction, 2nd Ed., Hanser Gardner Publication, Cincinnati, OH, 2002に記載されているように評価される。これらの測定値は総合的に、PSAの特徴付けに使用されることが多い特性のバランスを構成する。

【0006】

長年にわたる感圧テープの使用の拡大に伴い、性能要件はより厳しくなった。例えば、当初は室温で中程度の荷重を支持する用途を意図していた剪断保持力は、操作温度及び荷重に関して多くの用途に対応するため、現在では大幅に増加した。多くの用途で、感圧接着剤は、高温、典型的には70℃～120℃の範囲で荷重を支持することを求められ、これには、高い結合力が要求される。同様に、特に、いわゆる低表面エネルギー（LSE）基材及び中表面エネルギー（MSE）基材等の、各種の接着が困難な表面に対する剥離力及び剪断抵抗に関し、改良され、用途の広い接着特性を有する感圧接着剤に対する必要性が高まってきた。

20

【0007】

その関連において、多層感圧接着剤アセンブリは、接合性能に関してより良好な柔軟性及び汎用性を提供することが知られている。しかしながら、既知の多層感圧接着剤アセンブリは、典型的には、層間の十分な固定がないことに悩まされており、これは特に高温での層間剥離(delamination)につながり得る。これは、特に、典型的には、熱活性化可能なポリオレフィン接着剤及びアクリル型感圧接着剤の層を含むいわゆる二重機能接着テープの場合であり、典型的には不十分な二結合損傷耐性を有する。部分的な解決策は、例えば、米国特許第4,563,388号（Bonkra）、欧州特許第A1-0384598号（Johnsonら）、欧州特許第A1-1262532号（Valdez）、及び米国特許出願公開第2015/0159053（A1）号（Schumannら）に記載されている。記載された解決策は、一般に、複雑かつ高価な製造プロセスを伴う。

30

【0008】

感圧接着剤に関する性能要件の向上に加え、特に、揮発性有機化合物（VOC）下方制御が、例えば、建設市場又は自動車若しくは電子工学産業等における各種の内装用途（労働衛生及び労働安全性）にとって、ますます重要となってきた。既知のアクリレート系感圧接着剤は、典型的には顕著な量の低分子量の有機残留物を含有しており、例えば、重合プロセスから生じる未反応のモノマー、重合開始剤の残留物、原材料由来の不純物、又は製造プロセス中に形成された分解物等が含まれる。VOCとみなされるこれらの低分子残留物は、接着テープの外に拡散することもあり、潜在的に有害となる可能性がある。既知のアクリレート系感圧接着剤にはまた、架橋されていない場合、一般的に、結合力の欠如及び過度の流動性傾向の問題もある。この様相により、架橋されていないアクリレート系感圧接着剤が特にホットメルトプロセスによって製造されている場合、その適用性及加工性が特に問題となる場合がある。

40

【0009】

50

感圧接着剤の製造プロセスにおいて有機溶媒の使用を低減することは、総VOCレベルを低減するための直接的な手段の1つとして、急速に取り上げられるようになった。国際公開第01/44400号(Yang)に記載の、有機不純物に対して特定のスカベンジャーを使用することは、VOCレベルの低減を実現するための別の代替的方法である。しかし、従来技術から公知の、総VOCレベルを低減するための解決方法は、製造プロセスの複雑化及び生産コストの上昇を伴うことが多い。

【0010】

従来技術から公知の感圧接着剤材料は、いわゆるLSE基材及びMSE基材を含む各種の基材に対し、VOCレベル特性の低減と併せて十分な堅牢性及び／又は粘着性をもたらさない場合が多い。特に、観察される総VOCレベルは、例えば、建設市場又は自動車産業若しくは電子工学産業等における各種の内装用途に対する要求事項を満たさない場合が多い。部分的な解決方法は、例えば、米国特許出願公開第2003/0082362(A1)号(Khandpurら)、米国特許出願公開第2004/0082700(A1)号(Khandpurら)、及び米国特許出願公開第2014/0057091(A1)号(Krawinkelら)に記載されている。

【0011】

当該分野において既知の感圧接着剤に関連した技術的利点に異議を唱えるものではないが、堅牢で費用対効果が高く、総VOCレベルを低減する一方で、特に、LSE基材及びMSE基材を含む各種の基材に対し、優れた、多用途の接着特性をもたらす多層感圧接着剤アセンブリに対する必要性は依然として存在する。

【発明の概要】

【0012】

一態様によれば、本開示は共押出多層接着剤アセンブリであって、

a) オレフィンからなる群から選択される1つ以上のモノマーの(コ)ポリマーを含む、熱活性化可能な接着剤樹脂層と、

b) ゴム系エラストマー材料を含む感圧接着剤ポリマー発泡体層と、を含み、

熱活性化可能な接着剤樹脂層が、感圧接着剤発泡体層と直接接触し、感圧接着剤発泡体層と直接接触している熱活性化可能な接着剤樹脂層の表面と、熱活性化可能な接着剤樹脂層と直接接触している感圧接着剤発泡体層の表面とが、化学的又は物理的接着促進表面処理を含まない、共押出多層接着剤アセンブリに関する。

【0013】

別の態様では、本開示は、上記のような共押出多層接着剤アセンブリを製造する方法であって、感圧ポリマー発泡体層及び熱活性化可能な接着剤樹脂層をホットメルト共押出しする工程を含む、方法を対象とする。

【0014】

本開示の更に別の態様では、熱活性化可能な接着剤樹脂層が、感圧ポリマー発泡体層と直接接触する第1の主面と、ゴムシール物品に結合された第2の主面と、を有する、上記のような共押出多層接着剤アセンブリを含む複合品が提供される。

【0015】

更に別の態様によれば、本開示は、工業用途、好ましくは内装用途、より好ましくは建設市場用途及び輸送市場用途のための、上記のような共押出多層感圧接着剤アセンブリの使用に関する。

【図面の簡単な説明】

【0016】

【図1】本開示の一態様による例示的な共押出多層接着剤アセンブリ、及び本開示の別の態様による例示的な複合品を製造する方法を示す。

【図2】当該技術分野において既知のラミネート多層接着剤アセンブリ(laminated multi layer adhesive assembly)、及び当該技術分野において既知の例示的な複合品を製造する方法を示す。

【発明を実施するための形態】

【0017】

第1の態様によれば、本開示は共押出多層接着剤アセンブリであって、

a) オレフィンからなる群から選択される1つ以上のモノマーの(コ)ポリマーを含む、熱活性化可能な接着剤樹脂層と、

b) ゴム系エラストマー材料を含む感圧接着剤ポリマー発泡体層と、を含み、

熱活性化可能な接着剤樹脂層が、感圧接着剤発泡体層と直接接触し、感圧接着剤発泡体層と直接接触している熱活性化可能な接着剤樹脂層の表面と、熱活性化可能な接着剤樹脂層と直接接触している感圧接着剤発泡体層の表面とが、化学的又は物理的接着促進表面処理を含まない、共押出多層接着剤アセンブリに関する。

【0018】

典型的な態様によれば、本開示の共押出多層接着剤アセンブリは、感圧接着剤ポリマー発泡体層及び熱活性化可能な接着剤樹脂層の共押出によって得られる。

【0019】

本開示の文脈では、驚くべきことに、上記の共押出多層接着剤アセンブリが、優れた堅牢性並びに優れた、多用途の接着特性を提供し、特に、LSE基材及びMSE基材を含む様々な種類の基材に関して、全体的なVOCレベルの低下と同様に優れた特性及び性能を提供することが見出された。

【0020】

加えて、本明細書に記載の共押出多層接着剤アセンブリは、LSE及びMSE基材を含む様々な種類の基材、特に自動車用クリア塗料、自動車用ワニス又は自動車用塗料に、驚くほど良好な全体バランスの接着特性及び結合特性（特に剥離力及び静的剪断抵抗に関して）をもたらす。

【0021】

有利には、本開示による多層感圧接着剤アセンブリは、優れた表面及び境界面特性をもたらし、これは、ポリマー発泡体層が膨張性微小球で発泡される実施において特に驚くべきことである。理論に束縛されるものではないが、これらの優れた特性は、共押出プロセス工程が行われる時点で熔融状態である感圧接着剤ポリマー発泡体層及び熱活性化可能な接着剤樹脂層を形成するために使用される化合物に起因すると考えられる。これは、結果として、感圧接着剤ポリマー発泡体層の外面の表面を滑らかにし、感圧接着剤ポリマー発泡体層と熱活性化可能な接着剤樹脂層との間の境界面（間隙の無い境界面）を滑らかにする。本開示による共押出多層感圧接着剤アセンブリの優れた表面及び境界面特性は、結果として、接着するために基材上により良好な濡れをもたらし、したがって接着特性が改善される。

【0022】

更に、本明細書に記載される共押出多層接着剤アセンブリは、例えば70℃及び更に高い高温であっても、耐層間剥離(delamination)及び優れた二結合損傷耐性に対する優れた耐性を提供する。理論に束縛されるものではないが、これらの優れた特性は、熱活性化可能な接着剤樹脂層と、ゴム系エラストマー材料を含む感圧接着剤ポリマー発泡体層との間に存在する優れた固定特性のためであると考えられる。直感に反して、驚くべきことに、これらの優れた特性は、熱活性化可能な接着剤樹脂層表面又は感圧接着剤発泡体層の表面のいずれにも実施されていない化学的又は物理的接着促進表面処理の非存在下で達成されることが見出された。

【0023】

したがって、本開示による共押出多層接着剤アセンブリは、当該技術分野において既知の工業生産規模において、より費用効率が高い。

【0024】

図1は、本開示の一態様による例示的な共押出多層接着剤アセンブリ(A)、及び本開示の別の態様による例示的な複合品(B)を製造する方法を示す。例示的な共押出多層接着剤アセンブリ(A)は、ゴム系エラストマー材料2を含む感圧接着剤ポリマー発泡体層に重ね合わされた、熱活性化可能な接着剤樹脂層1を含み、ゴム系エラストマー材料2は

10

20

30

40

50

、それ自体が、その外面上に剥離ライナー 4 が設けられたゴム系エラストマー材料 3 を含む第 2 の感圧接着剤層に重ね合わされている。多層感圧接着剤アセンブリ (A) は、熱活性化可能な接着剤樹脂層 1、感圧接着剤ポリマー発泡体層 2、及び第 2 の感圧接着剤層 3 の一段階ホットメルト共押出によって得られる。複合品 (B) は、従来の熱ラミネート工程(heat-lamination step) (1 a) による熱活性化可能な接着剤樹脂層 1 に結合されたゴムシール物品 5 を備える。

【0025】

図 2 は、当該技術分野において既知のラミネート多層感圧接着剤アセンブリ(laminated multilayer pressure sensitive adhesive assembly) (D)、及び当該技術分野において既知の例示的な複合品 (E) を製造する方法を示す。図 2 に表示されるような複合品 (E) を製造する方法は、第 3 の感圧接着剤層 6 と、アクリレート系エラストマー材料 7 と、アクリレート系エラストマー材料 8 を含む第 2 の感圧接着剤層との一段階ホットメルト共押出によって得られる多層接着剤アセンブリ (C) を提供する工程を含む。第 2 の感圧接着剤層 8 の外面上には、剥離ライナー 9 が更に設けられている。本方法は、従来のラミネートプロセス (lamination process) に従って、その主面上に設けられた熱活性化可能な接着剤樹脂層 1 を、接着促進プライマー層 (図示せず) を用いて、第 3 の感圧接着剤層 6 に結合する工程 (2 a) を更に含む。この工程により、ラミネート多層接着剤アセンブリ(laminated multilayer adhesive assembly) (D) が得られる。次いで、従来の熱ラミネート工程(heat-lamination step) (2 b) に従って、熱活性化可能な接着剤樹脂層 1 にゴムシール物品 5 を結合し、これにより、複合品 (E) をもたらす。

【0026】

図 1 及び図 2 から分かるように、熱活性化可能な多層感圧接着剤アセンブリ (A) は、一段階共押出プロセスによって得られ、一方、熱活性化可能な多層接着剤アセンブリ (D) は、第 1 の共押出工程、続いて接着促進プライマー層によって補助されるラミネート工程(lamination step) (2 a) によって得られる。したがって、本開示による (熱活性化可能な) 共押出多層接着剤アセンブリは、有利には、a) 感圧接着剤ポリマー発泡体層と熱活性化可能な接着剤樹脂層との間に追加の感圧接着剤層を使用する工程、b) 熱活性化可能な接着剤樹脂を別々に押出す工程、c) 熱活性化可能な接着剤樹脂をプライマーする工程、及び d) 熱活性化可能な接着剤樹脂を多層接着剤アセンブリにラミネートする(laminating)工程の追加の工程を必要とせずに、一段階プロセスによって得られる。この低減された製造工程数は、実質的な生産コストの節約に直接つながる。

【0027】

別の有利な態様では、本明細書に記載の共押出多層接着剤アセンブリは、知覚可能な臭いが非常に低いか、又は更には実質的に存在しないことを特徴とする。特定の一態様では、本開示による共押出多層接着剤アセンブリは、全体的なフォギング濃度を低下させることに關して、優れた特性及び性能を更にもたらすことを特徴とする。低いフォギング特性は、典型的には、放出されたガス成分の縮合に対する抵抗が改善されること、並びに対応する感圧接着剤の熱的安定性が改善されることに形を変えることになる。

【0028】

このようなものとして、本開示による共押出多層接着剤アセンブリは、(産業) 内装用途、より特定すると、建設市場用途及び輸送市場用途に特に好適である。自動車用途との関連において、本明細書に記載される多層接着剤アセンブリは、本体上のテープ式シール、ドア上のテープ式シール、外装及び内装部品取り付け、並びにウェザーストリップテープ用途の特定の使用を見出すことができる。

【0029】

本開示との関連において、「低表面エネルギー基材」という表現は、1センチメートル当たり 34 ダイン未満の表面エネルギーを有する基材を指すことを意味する。このような材料に含まれるものは、ポリプロピレン、ポリエチレン (例えば、高密度ポリエチレン即ち HDPE、低密度ポリエチレン即ち LDPE、LLDPE)、及びポリプロピレンのブレンド (例えば、PP/EPDM、TPO) である。

【0030】

本開示との関連において、「中表面エネルギー基材」という表現は、1センチメートル当たり34～70ダイン、典型的には、1センチメートル当たり34～60ダイン、より典型的には1センチメートル当たり34～50ダインの間に含まれる表面エネルギーを有する基材を指すことを意味する。このような材料の中でも、ポリアミド6（PA6）、アクリロニトリルブタジエンスチレン（ABS）、PC/ABSブレンド、PC、PVC、PA、ポリウレタン、PUR、TPE、POM、ポリスチレン、ポリ（メチルメタクリレート）（PMMA）、クリアコート面、特に、自動車のような乗物のクリアコート又は工業用途用のコーティング表面、及び繊維強化プラスチックのような複合材料が挙げられる。

【0031】

表面エネルギーは、典型的には、例えばASTM D7490-08に記載されるような接触角測定から決定される。

【0032】

用語「熱活性化可能な」は、従来、接着技術の技術分野で使用されており、接着特性を発現させるために、接着剤を、典型的には約60℃～200℃の範囲内の熱処理に供する必要がある、熱活性化可能な層が所望の基材に結合できるようにすることを表すことを意味する。

【0033】

本開示との関連において、用語「化学的又は物理的接着促進表面処理」は、基材の表面の化学的又は物理的処理を指して、その基材と別の基材とのより良好な接着を促進することを意味する。化学的又は物理的接着促進表面処理の典型的な例としては、化学洗浄、コロナ表面前処理、プラズマ表面前処理、誘電体バリア表面前処理、火炎表面前処理、プライミング層のコーティング、グラフト化中間層、又は結合層が挙げられるが、これらに限定されない。

【0034】

本明細書で使用する熱活性化可能な接着剤樹脂は、特に限定されない。当該技術分野において一般に知られている任意の熱活性化可能な接着剤樹脂が、それらがオレフィンからなる群から選択される1つ以上のモノマーの（コ）ポリマーを含む限り、本開示との関連において使用されてもよい。好適な熱活性化可能な接着剤樹脂は、本開示を踏まえて、当業者によって容易に特定されるであろう。

【0035】

1つの有利な態様によれば、本明細書で使用するための熱活性化可能な接着剤樹脂は、ポリオレフィンホモポリマー、ポリオレフィン／ポリオレフィンコポリマー（ポリアロマー）、及びこれらの任意の組み合わせ、ブレンド、又は混合物からなる群から選択される（コ）ポリマーを含む。

【0036】

別の有利な態様によれば、熱活性化可能な接着剤樹脂で使用するためのオレフィンモノマーは、エチレン、プロピレン、ブチレン、オクチレン、及びこれらの任意の組み合わせ又は混合物からなる群から選択される。

【0037】

更に別の有利な態様によれば、本明細書で使用するための熱活性化可能な接着剤樹脂が、ポリエチレンホモポリマー、ポリプロピレンホモポリマー、エチレン／プロピレンコポリマー、及び任意の組み合わせ、ブレンド、又はこれらの混合物からなる群から選択される（コ）ポリマーを含む。

【0038】

本開示のより有利な態様では、本明細書で使用するための熱活性化可能な接着剤樹脂は、エチレン／プロピレンコポリマー及び任意の組み合わせ、ブレンド、又はこれらの混合物からなる群から選択される（コ）ポリマーを含む。

【0039】

典型的な態様では、本明細書で使用するための熱活性化可能な接着剤樹脂は、アタクチ

10

20

30

40

50

ック、アイソタクチック、ランダム、ブロック、インパクトコポリマー、及びこれらの任意の組み合わせ、ブレンド又は混合物からなる群から選択される（コ）ポリマーを含む。

【0040】

例示的な一態様によれば、本明細書で使用するための熱活性化可能な接着剤樹脂は、熱活性化可能な接着剤樹脂の重量に基づいて、50重量%以下、40重量%以下、30重量%以下、20重量%以下、又は更には10重量%以下の、特にエチレン含有量を有するプロピレン-エチレンコポリマーを含む。

【0041】

本開示の特に有益な一態様では、本明細書で使用するための熱活性化可能な接着剤樹脂は、プロピレン又はポリエチレンに基づくインパクトコポリマー、特に、エチレン-プロピレンエラストマー相を含むインパクトプロピレンコポリマーを含む。

10

【0042】

本明細書で使用するために好適な市販の熱活性化可能な接着剤樹脂としては、商品名Finapro（商標）のポリプロピレンコポリマー、例えば、商品名Finapro 5660、Finapro 8780、Finapro 5642、及びFinapro 5712（Atofina Petrochemicalsから入手可能）、商標名Eltex P（商標）のエチレン/プロピレンコポリマー、例えばKS414、KS409、又はKL467（Solvay Polymersから入手可能）、商品名Novolen（商標）のもの、例えば、MC3200（Targor GmbH, Ludwigshafen, Germanyから入手可能）、又は商品名PPシリーズのもの（ExxonMobilから入手可能）が挙げられる。

20

【0043】

熱活性化可能な接着剤樹脂層の厚さは、共押出多層接着剤アセンブリの最終用途によって決定される。典型的な態様では、熱活性化可能な接着剤樹脂層の厚さは、30～300マイクロメートルの範囲である。

【0044】

本開示の共押出多層接着剤アセンブリの典型的な態様によれば、本明細書で使用するための熱活性化可能な接着剤樹脂層は、感圧接着剤発泡体層に接着結合されている。

【0045】

本開示の共押出多層接着剤アセンブリは、ゴム系エラストマー材料を含む感圧接着剤ポリマー発泡体層を更に含む。

30

【0046】

本開示との関連において、「ポリマー発泡体」という用語は、ポリマーをベースとする材料を指すことを意味し、その材料は、空隙を、典型的には、少なくとも5体積%、典型的には10体積%～80体積%、又は10体積%～65体積%の量で含む。空隙は、ガスで気泡を形成するといった任意の既知の方法によって得ることができる。あるいは、空隙は、中空ポリマー粒子、中空ガラス微小球、中空セラミック微小球等の中空充填剤の組み込みから生じ得る。別の代替的な態様によれば、空隙は、熱膨張性微小球、好ましくはペンタン充填膨張性微小球の組み込みから生じ得る。本明細書で使用する熱膨張性微小球は、ポリマー溶融物が押出ダイを通過する際に膨張し得る。膨張性微小球を含有するポリマー混合物はまた、これらの膨張温度未満の温度で押出してもよく、後の工程でテープを微小球の膨張温度より高い温度に曝露することによって膨張させてもよい。あるいは、空隙は、化学的発泡剤の分解から生じ得る。

40

【0047】

ポリマー発泡体層は、典型的には、 $0.30 \text{ g/cm}^3 \sim 1.5 \text{ g/cm}^3$ 、 $0.35 \text{ g/cm}^3 \sim 1.10 \text{ g/cm}^3$ 、又は更には $0.40 \text{ g/cm}^3 \sim 0.95 \text{ g/cm}^3$ の間に含まれる密度を有する。この密度は、空隙又は気泡を含めることによって達成される。典型的には、ポリマー発泡体層は、少なくとも5体積%の空隙、例えば15～45体積%、又は20%～45体積%の空隙を含むであろう。

【0048】

50

本開示との関連において、「ゴム系エラストマー材料」という表現は、任意の非アクリル系エラストマー材料を指すことを意味する。このような材料の中には、天然ゴム及び合成ゴムが含まれる。

【0049】

一般的に既知の任意のゴム系エラストマー材料を、本開示との関連において用いることができる。本明細書で使用するのに好適なゴム系エラストマー材料は、本開示を踏まえて、当業者によって容易に特定され得る。

【0050】

例示的な態様によれば、本明細書で使用するためのゴム系エラストマー材料は、天然ゴム、合成ゴム、熱可塑性エラストマー材料、非熱可塑性エラストマー材料、熱可塑性炭化水素エラストマー材料、非熱可塑性炭化水素エラストマー材料、及びこれらの任意の組み合わせ又は混合物からなる群から選択される。

10

【0051】

特定の態様によれば、本明細書で使用するためのゴム系エラストマー材料は、合成ゴム、熱可塑性エラストマー材料、非熱可塑性エラストマー材料、熱可塑性炭化水素エラストマー材料、非熱可塑性炭化水素エラストマー材料、及びこれらの任意の組み合わせ又は混合物からなる群から選択される。

【0052】

本開示の有利な態様では、本明細書で使用するためのゴム系エラストマー材料は、ハロゲン化ブチルゴム、特にブromobutylゴム及びクロロブチルゴム、ハロゲン化イソブチレン-イソプレンコポリマー、ブromoisoprene-イソブレンコポリマー、クロロイソブチレン-イソブレンコポリマー、ブロックコポリマー、オレフィンブロックコポリマー、ブチルゴム、合成ポリイソブレン、エチレン-オクチレンゴム、エチレン-プロピレンゴム、エチレン-プロピレンランダムコポリマー、エチレン-プロピレン-ジエンモノマーゴム、ポリイソブチレン、ポリ(α-オレフィン)、エチレン-α-オレフィンコポリマー、エチレン-α-オレフィンブロックコポリマー、スチレンブロックコポリマー、スチレン-イソブレン-スチレンブロックコポリマー、スチレン-ブタジエン-スチレンブロックコポリマー、スチレン-エチレン/ブタジエン-スチレンブロックコポリマー、スチレン-エチレン/プロピレン-スチレンブロックコポリマー、スチレン-ブタジエンランダムコポリマー、オレフィンポリマー及びオレフィンコポリマー、エチレン-プロピレンランダムコポリマー、エチレン-プロピレン-ジエンターポリマー、並びにこれらの任意の組み合わせ又は混合物からなる群から選択される。

20

30

【0053】

好ましい態様では、本明細書で使用するためのゴム系エラストマー材料は、オレフィンポリマー及びコポリマー、特にオレフィンブロックコポリマー、並びにこれらの任意の組み合わせ、ブレンド又は混合物からなる群から選択される。

【0054】

本開示の特に好ましい態様では、本明細書で使用するためのゴム系エラストマー材料は、式 Q_n-Y の多腕ブロックコポリマー（式中、

i. Q は、多腕ブロックコポリマーの腕を表し、各腕は、独立して式 $G-R$ を有し、

ii. n は腕の数を表し、少なくとも3の整数であり、

iii. Y は、多官能性カップリング剤の残基であり、

各 R は、重合共役ジエン、重合共役ジエンの水素化誘導体、又はこれらの組合せを含むゴム状ブロックであり、各 G は、重合モノビニル芳香族モノマーを含むガラス状ブロックである）を含む（又はそれからなる）。

40

【0055】

典型的な態様では、ゴム状ブロックは、室温未満のガラス転移温度 (T_g) を示す。一態様では、ゴム状ブロックの T_g は約 0°C 未満、又は更には約 -10°C 未満である。別の態様では、ゴム状ブロックの T_g は約 -40°C 未満、又は更には約 -60°C 未満である。

【0056】

50

典型的な態様では、ガラス状ブロックは、室温を超える T_g を示す。いくつかの実施形態では、ガラス状ブロックの T_g は、少なくとも約 40°C 、少なくとも約 60°C 、少なくとも約 80°C 、又は更には少なくとも約 100°C である。

【0057】

用語「ガラス転移温度」及び「 T_g 」は、区別なく用いられ、材料又は混合物のガラス転移温度を指す。特に指示がない限り、ガラス転移温度値は、示差走査熱量計 (DSC) により測定される。

【0058】

本開示の特定の態様では、本明細書で使用するための多腕スチレンブロックコポリマーは、 n が $3 \sim 10$ 又は更には $3 \sim 5$ の範囲であるものである。別の態様では、 n は 4 である一方で、いくつかのその他の実施では、 n は 6 以上に等しい。

【0059】

本明細書で使用する好適なゴム状ブロック R は、重合共役ジエン、重合共役ジエンの水素化誘導体、又はこれらの組合せを含む。典型的な態様では、少なくとも 1 つの腕のゴム状ブロックは、イソプレン、ブタジエン、エチレンブタジエンコポリマー、ポリイソプレン又はポリブタジエンの水素化誘導体、及びこれらの任意の組合せ又は混合物からなる群から選択される重合共役ジエンを含む。有利な態様によれば、各腕のゴム状ブロックは、イソプレン、ブタジエン、エチレンブタジエンコポリマー、ポリイソプレン又はポリブタジエンの水素化誘導体、及びこれらの任意の組合せ又は混合物からなる群から選択される重合共役ジエンを含む。

【0060】

本開示による多層接着剤アセンブリの好ましい態様によれば、多腕ブロックコポリマーのゴム状ブロックのうちの少なくとも 1 つは、イソプレン、ブタジエン、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択される共役ジエンを含む。より好ましくは、多腕ブロックコポリマーのゴム状ブロックの各々は、イソプレン、ブタジエン、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択される共役ジエンを含む。

【0061】

本開示による多層接着剤アセンブリの特に有利な態様によれば、多腕ブロックコポリマーのうちの少なくとも 1 つの腕は、スチレン-イソプレン-スチレン、スチレン-ブタジエン-スチレン、スチレン-エチレン-ブチレン-スチレン、スチレン-エチレン-プロピレン-スチレン、及びこれらの組み合わせからなる群から選択される。より好ましくは、多腕ブロックコポリマーの各腕は、スチレン-イソプレン-スチレン、スチレン-ブタジエン-スチレン、スチレン-エチレン-ブチレン-スチレン、スチレン-エチレン-プロピレン-スチレン、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択される。更により好ましくは、多腕ブロックコポリマーの各腕は、スチレン-イソプレン-スチレン、スチレン-ブタジエン-スチレン、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択される。

【0062】

本明細書で使用するのに好適なガラス状ブロック G は、重合モノビニル芳香族モノマーを含む。典型的な態様では、少なくとも 1 つの腕のガラス状ブロックは、スチレン、スチレン相溶性ブレンド、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択されるモノビニル芳香族モノマーを含む。有利な態様によれば、各腕のガラス状ブロックは、スチレン、スチレン相溶性ブレンド、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択されるモノビニル芳香族モノマーを含む。

【0063】

本開示の有利な実施によれば、本明細書で使用するための多腕ブロックコポリマーは、(多腕) 星形ブロックコポリマーである。本開示による多層接着剤アセンブリのより有利な態様では、多腕ブロックコポリマーは、多モードブロックコポリマーである。本明細書で使用する時、「多モード」という用語は、コポリマーが少なくとも 2 つの異なる分子量を有する末端ブロックを含むことを意味する。このようなブロックコポリマーはまた、

少なくとも1つの「高」分子量末端ブロック、及び少なくとも1つの「低」分子量末端ブロックを有することにより特徴付けることができ、ここで高及び低という用語は互いに相対的に用いられる。特定の一態様では、低分子量末端ブロックの数平均分子量 (M_n) L に対する、高分子量末端ブロックの数平均分子量 (M_n) H の比は、少なくとも約 1.25 である。

【0064】

特定の一態様では、(M_n) H は、約 5000 ~ 約 50000 の範囲である。別の態様では、(M_n) H は、少なくとも約 8000、又は更には少なくとも約 10000 である。別の態様では、(M_n) H は、約 35000 以下である。更に別の態様では、(M_n) L は、約 1000 ~ 約 10000 の範囲である。更に別の態様では、(M_n) L は、少なくとも約 2000、又は更には少なくとも約 4000 である。更に別の態様では、(M_n) L は、約 9000 未満、又は更には約 8000 未満である。

【0065】

別の有益な態様によれば、多腕ブロックコポリマーは非対称なブロックコポリマーである。本明細書で使用する時、「非対称」という用語は、ブロックコポリマーの腕の全てが同一とは限らないことを意味する。一般に、多モードブロックコポリマーは、末端ブロックの分子量が全て同じとは限らないので、多モードブロックコポリマーの全ての腕が同一とは限らないため、非対称なブロックコポリマー（即ち、多モードで非対称なブロックコポリマー）である。一態様では、本開示で使用するためのブロックコポリマーは、多モードで非対称なブロックコポリマーである。

【0066】

本明細書で使用する多腕ブロックコポリマーは、例えば、米国特許第 7,163,741 (B1) 号 (Khandpur ら) に記載されている。多腕ブロックコポリマー、特に多モード非対称ブロックコポリマーの作製方法は、例えば、米国特許第 5,296,547 号 (Nestegard ら)、又は米国特許第 5,393,787 号 (Nestegard ら) に記載されており、これらの内容は参照により本明細書に組み込まれる。

【0067】

一般に、本明細書で使用するための多官能性カップリング剤は、任意のポリアルケニルカップリング剤、又はリビングポリマーのカルバニオンと反応して架橋ポリマーを形成することができる官能基を有することが知られている他の物質であってよい。ポリアルケニルカップリング剤は、脂肪族、芳香族又は複素環式であってもよい。例示的な脂肪族ポリアルケニルカップリング剤としては、ポリビニル及びポリアルキルアセチレン、ジアセチレン、ホスフェート、ホスファイト、並びにジメタクリレート（例えば、エチレンジメタクリレート）が挙げられるが、これらに限定されない。例示的な芳香族ポリアルケニルカップリング剤としては、ポリビニルベンゼン、ポリビニルトルエン、ポリビニルキシレン、ポリビニルアントラセン、ポリビニルナフタレン、及びジビニルジュレンが挙げられるが、これらに限定されない。例示的なポリビニル基としては、ジビニル基、トリビニル基、及びテトラビニル基が挙げられるが、これらに限定されない。一態様では、ジビニルベンゼン (DVB) を使用してもよく、*o*-ジビニルベンゼン、*m*-ジビニルベンゼン、*p*-ジビニルベンゼン、及びこれらの混合物を含んでもよい。例示的な複素環式ポリアルケニルカップリング剤としては、ジビニルピリジン、及びジビニルチオフェンが挙げられるが、これらに限定されない。その他の例示的な多官能性カップリング剤としては、ハロゲン化ケイ素、ポリエポキシド、ポリイソシアネート、ポリケトン、ポリ無水物、及びジカルボン酸エステルが挙げられるが、これらに限定されない。

【0068】

典型的な態様によれば、上記のようなゴム系エラストマー材料は、例えば、感圧接着剤ポリマー発泡体の重量に基づいて、最大 80 重量% の量で使用される。例示的な一態様では、ゴム系エラストマー材料の量は、例えば、感圧接着剤ポリマー発泡体の重量に基づいて、20 重量% ~ 80 重量%、20 重量% ~ 70 重量%、25 重量% ~ 60 重量%、30 重量% ~ 60 重量%、又は更には 35 重量% ~ 60 重量% の範囲である。

【0069】

共押出多層接着剤アセンブリの特定の一態様では、感圧接着剤ポリマー発泡体層は、任意に、炭化水素粘着付与剤を更に含んでもよい。本明細書で使用するために好適な炭化水素粘着付与剤は、特に限定されない。

【0070】

典型的には、従来の感圧接着剤組成物に含まれる任意の炭化水素粘着付与剤を、本開示との関連において使用してもよい。有用な炭化水素粘着付与剤は、典型的には、(コ)ポリマー材料と混和性があるように選択される。本明細書で使用する好適な炭化水素粘着付与剤は、本開示を踏まえて当業者によって、容易に特定され得る。

【0071】

固体又は液体の炭化水素粘着付与剤のいずれかを加えてもよいが、固体の炭化水素粘着付与剤が好ましい。固体粘着付与剤は、概して、 $10,000\text{ g/mol}$ 以下の数平均分子量(Mw)、及び約 70°C より高い軟化点を有する。液体粘着付与剤は、約 0°C ～約 20°C の軟化点を有する粘着性材料である。

【0072】

好適な粘着付与樹脂としては、ポリテルペン(例えば、 α ピネン系樹脂、 β ピネン系樹脂、及びリモネン系樹脂)及び芳香族変性ポリテルペン樹脂(例えば、フェノール変性ポリテルペン樹脂)等のテルペン樹脂；クマロンーインデン樹脂；並びにC5系炭化水素樹脂、C9系炭化水素樹脂、C5/C9系炭化水素樹脂、及びジシクロペンタジエン系樹脂等の石油系炭化水素樹脂を挙げることができる。これらの粘着付与樹脂は、添加される場合、水素化され、特定の感圧接着剤組成物に対するこれらの色の寄与を低減することができる。上に詳しく述べたVOC要件を満たす限り、及び好ましくは上に詳しく述べたFOGレベル要件をも満たす限り、様々な粘着付与剤の組合せを、所望に応じて使用することができる。

【0073】

炭化水素樹脂である粘着付与剤は、様々な石油系原材料から調製することができる。これらの原材料は、脂肪族炭化水素(主に、C5モノマーと、存在するいくつかの他のモノマー、例えばトランス-1,3-ペンタジエン、シス-1,3-ペンタジエン、2-メチル-2-ブテン、ジシクロペンタジエン、シクロペンタジエン、及びシクロペンテンの混合物等)、芳香族炭化水素(主に、C9モノマーと、存在するいくつかの他のモノマー、例えばビニルトルエン、ジシクロペンタジエン、インデン、メチルスチレン、スチレン、及びメチルインデンの混合物等)、又はこれらの混合物でよい。C5モノマーから誘導された粘着付与剤は、C5系炭化水素樹脂と呼ばれ、一方で、C9モノマーから誘導されたものは、C9系炭化水素樹脂と呼ばれる。いくつかの粘着付与剤は、C5モノマーとC9モノマーとの混合物由来であるか、又はC5系炭化水素粘着付与剤とC9系炭化水素粘着付与剤とのブレンドである。これらの粘着付与剤は、C5/C9系炭化水素粘着付与剤と呼ぶことができる。これらの樹脂のいずれかは、部分的又は完全に水素化し、これらの色、これらの熱安定性、又はこれらのプロセス適合性を改善することができる。

【0074】

C5系炭化水素樹脂は、Eastman Chemical Companyから商標名PICCOTAC及びEASTOTACで、Cray Valleyから商標名WINGTACKで、Neville Chemical Companyから商標名NEVTAC LXで、及びKolon Industries, Inc. から商標名HIKOREZで市販されている。C5系炭化水素樹脂は、Eastman Chemicalから商標名EASTOTACKで様々な水素化度のものが市販されている。

【0075】

C9系炭化水素樹脂は、Eastman Chemical Companyから商標名PICCO、KRISTLEX、PLASTOLYN、及びPICCOTAC、及びENDEXで、Cray Valleyから商標名NORSOLENEで、Ruetgers N. V. から商標名NOVAREZで、並びにKolon Industries, In

10

20

30

40

50

c. から商標名HIKOTACで市販されている。これらの樹脂は、部分的又は完全に水素化することができる。水素化の前には、C9系炭化水素樹脂は、プロトン核磁気共鳴により測定した場合、芳香族が約40%であることが多い。水素化C9系炭化水素樹脂は、例えば、Eastman Chemicalから商標名REGALITE及びREGALREZで市販されており、これらは50～100%（例えば、50%、70%、90%、及び100%）水素化されている。部分的に水素化された樹脂は、典型的にはいくつかの芳香環を有する。

【0076】

様々なC5/C9系炭化水素粘着付与剤は、Arakawaから商標名ARKONで、Zeonから商標名QUINTONEで、Exxon Mobil Chemicalから商標名ESCOREZで、並びにNewport Industriesから商標名NURES及びH-REZ（Newport Industries）で市販されている。本開示との関連において、本明細書で使用する好適な炭化水素粘着付与剤は、Exxon Mobil Chemicalから商標名ESCOREZで市販されているC5/C9系炭化水素粘着付与剤の中から有利に選択することができる。

10

【0077】

本開示の多層感圧接着剤アセンブリの好ましい態様によれば、本明細書で使用する炭化水素粘着付与剤は、脂肪族炭化水素樹脂、脂環式炭化水素樹脂、芳香族変性脂肪族及び脂環式樹脂、芳香族樹脂、水素化炭化水素樹脂、テルペン及び変性テルペン樹脂、テルペンフェノール樹脂、ロジンエステル、並びにこれらの任意の組合せ又は混合物からなる群から選択される。

20

【0078】

本開示の有利な態様では、粘着付与樹脂は、C5系炭化水素樹脂、C9系炭化水素樹脂、C5/C9系炭化水素樹脂、及びこれらの任意の組合せ又は混合物からなる群から選択される。別の有利な態様では、粘着付与樹脂は、水素化テルペン樹脂、水素化ロジン樹脂、水素化C5系炭化水素樹脂、水素化C9系炭化水素樹脂、水素化C5/C9系炭化水素樹脂、及びこれらの任意の組合せ又は混合物からなる群から選択される。

【0079】

本開示による共押出多層接着剤アセンブリの有益な態様では、本明細書で使用するための炭化水素粘着付与剤は、実験セクションに記載された重量減少試験法に従って熱重量分析により測定した場合、1000ppm未満、800ppm未満、600ppm未満、400ppm未満、又は更には200ppm未満の、揮発性有機化合物（VOC）値を有する。

30

【0080】

別の有益な態様によれば、本明細書で使用するための炭化水素粘着付与剤は、実験セクションに記載された重量減少試験法に従って熱重量分析により測定した場合、1500ppm未満、1000ppm未満、800ppm未満、600ppm未満、又は更には500ppm未満の、揮発性フォギング化合物（FOG）値を有する。

【0081】

有利には、本明細書で使用するための炭化水素粘着付与剤は、実験セクションに記載のオープンガス放出試験法に従って減量分析により測定した場合、1重量%未満、0.8重量%未満、0.6重量%未満、0.5重量%未満、0.4重量%未満、0.3重量%未満、0.2重量%未満、又は更には0.1重量%未満のガス放出値を有する。

40

【0082】

有利な態様によれば、本明細書で使用するための感圧接着剤ポリマー発泡体層は、実験セクションに記載の重量減少試験法に従って熱重量分析により測定される場合、1000ppm未満の揮発性有機化合物（VOC）値を有する第1の炭化水素粘着付与剤を含み、第1の炭化水素粘着付与剤は、好ましくは少なくとも60℃のTgを有し、好ましくは、第1の炭化水素粘着付与剤は、ゴム状ブロックと主に相容性である。

【0083】

50

有利な態様では、第1の炭化水素粘着付与剤は、主にゴム状ブロックの少なくとも一部と相溶性である。別の有利な態様では、第1の炭化水素粘着付与剤は、主に多腕ブロックコポリマーの各ゴム状ブロックと相溶性である。

【0084】

本明細書で使用する時、粘着付与剤は、ブロックと混和性である場合、そのブロックと「相溶性がある」。一般的に、ブロックと粘着付与剤との混和性は、そのブロックのT_gに対する粘着付与剤の効果を測定することにより決定できる。粘着付与剤がブロックと混和性である場合、粘着付与剤はそのブロックのT_gを変化させる（例えば、上昇させる）。粘着付与剤は、少なくともブロックと混和性がある場合、そのブロックと「主に相溶性がある」が、他のブロックとも混和性である場合がある。例えば、主にゴム状ブロックと相溶性がある粘着付与剤は、ゴム状ブロックと混和性があるが、ガラス状ブロックとも混和性があることもある。

10

【0085】

一般的に、比較的低い溶解度パラメータを有する樹脂は、ゴム状ブロックと会合する傾向があるが、ガラス状ブロックにおけるそれらの溶解度は、これらの樹脂の分子量又は軟化点が低下するにつれて増加する傾向がある。

【0086】

主にゴム状ブロックと相溶性がある例示的な第1の炭化水素粘着付与剤は、ポリマーテルペン、ヘテロ官能性テルペン、クマロンーインデン樹脂、ロジン酸、ロジン酸エステル、不均化ロジン酸エステル、水素化C5脂肪族樹脂、C9水素化芳香族樹脂、C5/C9脂肪族/芳香族樹脂、ジシクロペンタジエン樹脂、C5/C9及びジシクロペンタジエン前駆体から生じる水素化炭化水素樹脂、水素化スチレンモノマー樹脂、並びにこれらの任意のブレンドからなる群から有利に選択される。

20

【0087】

別の有利な態様によれば、本明細書で使用するための感圧接着剤ポリマー発泡体は、実験セクションに記載の重量減少試験法に従って熱重量分析により測定される場合、1000 ppm未満の揮発性有機化合物（VOC）値を有する第2の炭化水素粘着付与剤を任意に含んでもよく、第2の炭化水素粘着付与剤は、好ましくは少なくとも60℃のT_gを有し、好ましくは、第2の炭化水素粘着付与剤は、ガラス状ブロックと主に相溶性である。

【0088】

好ましい態様では、主に、ガラス状ブロックと相溶性である第2の炭化水素粘着付与剤は、有利には、クマロンーインデン樹脂、ロジン酸、ロジン酸のエステル、不均化ロジン酸エステル、C9芳香族、スチレン、α-メチルスチレン、純粋モノマー樹脂、及びC9/C5芳香族変性脂肪族炭化水素、並びにこれらのブレンドからなる群から選択される。

30

【0089】

本明細書で使用するための感圧接着剤ポリマー発泡体の一態様では、第1及び/又は第2の炭化水素粘着付与剤は、少なくとも65℃、又は更には少なくとも70℃のT_gを有する。別の態様では、第1及び第2の炭化水素粘着付与剤の両方は、少なくとも65℃、又は更には少なくとも70℃のT_gを有する。

【0090】

本明細書で使用する感圧接着剤ポリマー発泡体の別の態様では、第1及び/又は第2の炭化水素粘着付与剤は、少なくとも約115℃、又は更には少なくとも約120℃の軟化点を有する。更に別の態様では、第1及び第2の炭化水素粘着付与剤の両方は、少なくとも約115℃、又は更には少なくとも約120℃の軟化点を有する。

40

【0091】

本開示で使用するための感圧接着剤ポリマー発泡体の典型的な態様によれば、全てのブロックコポリマーの総重量と全ての炭化水素粘着付与剤の総重量との比は、2.4:1~1:2.4、2:1~1:2、1.5:1~1:1.5、1.2:1~1:1.2、1.15:1~1:1.15、又は更には1.1:1~1:1.1の範囲である。

【0092】

50

感圧接着剤ポリマー発泡体の典型的な態様によれば、炭化水素粘着付与剤のいずれかは、例えば、感圧接着剤ポリマー発泡体の重量に基づいて、最大80重量%の量で使用される。一態様では、粘着付与剤は、感圧接着剤ポリマー発泡体の重量に基づいて、最大70重量%、最大60重量%、最大55重量%、最大50重量%、又は更には最大45重量%の量で使用することができる。粘着付与剤の量は、例えば、感圧接着剤ポリマー発泡体の重量に基づいて、例えば、20重量%～70重量%、25重量%～60重量%、又は更には25重量%～50重量%の範囲であり得る。

【0093】

共押出多層接着剤アセンブリの特定の一態様では、感圧接着剤ポリマー発泡体層は、任意に、ポリマー可塑剤を更に含んでもよい。本明細書で使用するための好適なポリマー可塑剤は、特に限定されない。

【0094】

典型的には、従来の感圧接着剤組成物に含まれる任意のポリマー可塑剤を、本開示との関連において使用してもよい。本明細書で使用するために好適なポリマー可塑剤は、本開示を踏まえて、当業者によって容易に特定され得る。

【0095】

典型的な態様では、本明細書で使用するためのポリマー可塑剤は、少なくとも10,000 g/mol、少なくとも15,000 g/mol、少なくとも20,000 g/mol、又は更には少なくとも30,000 g/molの重量平均分子量 M_w を有する。

【0096】

ポリマー可塑剤の重量平均分子量 M_w は、当業者に公知の任意の方法、例えば、サイズ排除クロマトグラフィー（SEC）としても知られているゲル浸透クロマトグラフィー（GPC）により、又は光散乱技術により決定することができる。特に指示しない限り、ポリマー可塑剤の重量平均分子量 M_w は、ASTM D4001-13に従って光散乱により測定される。

【0097】

別の典型的な態様では、本明細書で使用するためのポリマー可塑剤は、100,000 g/mol以下、90,000 g/mol未満、80,000 g/mol未満、70,000 g/mol未満、60,000 g/mol未満、50,000 g/mol未満、又は更には40,000 g/mol未満の重量平均分子量 M_w を有する。

【0098】

更に別の態様では、本明細書で使用するためのポリマー可塑剤は、10,000～80,000 g/mol、20,000～70,000 g/mol、25,000～65,000 g/mol、25,000～60,000 g/mol、30,000～60,000 g/mol、又は更には30,000～55,000 g/molの重量平均分子量 M_w を有する。

【0099】

有利な態様によれば、使用するためのポリマー可塑剤は、ポリイソブチレン可塑剤、液状ポリブタジエン可塑剤、液体ポリイソプレン可塑剤、液体イソブレンーブタジエンスチレンコポリマー可塑剤、エチレンプロピレンジエンモノマー可塑剤、液体炭化水素樹脂、及びこれらの任意の組み合わせ又は混合物又は水素添加形態からなる群から選択される。

【0100】

有利なことには、本明細書で使用するポリマー可塑剤は、実験セクションに記載の重量減少試験法に従って熱重量分析により測定した場合、1000 ppm未満、800 ppm未満、600 ppm未満、400 ppm未満、又は更には200 ppm未満の揮発性有機化合物（VOC）値を有する。

【0101】

更に有利なことに、本明細書で使用するポリマー可塑剤は、実験セクションに記載の重量減少試験法に従って熱重量分析により測定した場合、2500 ppm未満、2000 ppm未満、1500 ppm未満、1000 ppm未満、800 ppm未満、600 ppm

10

20

30

40

50

未満、又は更には500ppm未満の揮発性フォギング化合物（FOG）値を有する。

【0102】

また更に有利なことに、本明細書で使用するポリマー可塑剤は、実験セクションに記載のオープンガス放出試験法に従って減量分析により測定した場合、1重量%未満、0.8重量%未満、0.6重量%未満、0.5重量%未満、0.4重量%未満、0.3重量%未満、0.2重量%未満、又は更には0.1重量%未満のガス放出値を有する。

【0103】

本開示において使用するための感圧接着剤ポリマー発泡体の特に好ましい実施によれば、ポリマー可塑剤はポリイソブチレン可塑剤である。本明細書で 사용할 ことができるポリイソブチレン可塑剤の典型的な例としては、BASFから商標名OPPANOL、特にOPPANOL Bシリーズで市販されているものの中から選択されるものが挙げられるが、これらに限定されない。

10

【0104】

典型的な態様によれば、ポリマー可塑剤は、例えば、感圧接着剤ポリマー発泡体の重量に基づいて、最大40重量%の量で使用される。

【0105】

別の態様では、ポリマー可塑剤は、感圧接着剤ポリマー発泡体の重量に基づいて、最大35重量%、最大30重量%、又は最大25重量%の量で使用してもよい。ポリマー可塑剤の量は、例えば、感圧接着剤ポリマー発泡体の重量に基づいて、1重量%～40重量%、2重量%～30重量%、5重量%～30重量%、又は更には10重量%～25重量%の範囲であり得る。

20

【0106】

共押出多層接着剤アセンブリの別の典型的な態様によれば、感圧接着剤ポリマー発泡体は、任意の成分として、充填材料、特に粒状充填材料を更に含んでもよい。

【0107】

当業者に一般的に公知の任意の充填材料を、本開示との関連において使用してもよい。本明細書で使用する ことができる充填材料の典型的な例としては、膨張パーライト、微小球、膨張性微小球、セラミック球、ゼオライト、粘土系充填剤、ガラスビーズ、中空無機ビーズ、シリカ系充填剤、疎水性シリカ系充填剤、親水性シリカ系充填剤、ヒュームドシリカ、繊維、特にガラス繊維、炭素繊維、グラファイト繊維、シリカ繊維、セラミック繊維、導電性及び／又は熱伝導粒子、ナノ粒子、特にシリカナノ粒子、並びにこれらの任意の組合せからなる群から選択されるものが挙げられるが、これらに限定されない。

30

【0108】

本開示の典型的な態様では、感圧接着剤ポリマー発泡体は、好ましくは、微小球、膨張性微小球、好ましくはペンタン充填膨張性微小球、ガス状空隙、ガラスビーズ、ガラス微小球、ガラスバブル、及びこれらの任意の組み合わせ又は混合物からなる群から選択される粒状充填材料を更に含む。より典型的には、感圧接着剤ポリマー発泡体は、膨張性微小球、ガラスバブル、及びこれらの任意の組み合わせ又は混合物からなる群から選択される粒状充填材料を含む。

【0109】

存在する場合、本明細書で使用するための充填材料は、任意の好適な量で、感圧接着剤ポリマー発泡体中で使用されてもよい。例示的な一態様では、充填材料は、感圧接着剤ポリマー発泡体の重量に基づいて、最大30重量%、最大25重量%、又は更には最大20重量%の量で存在する。別の例示的な態様では、この量は、典型的には、感圧接着剤ポリマー発泡体の重量に基づいて、少なくとも1重量%、又は少なくとも3重量%である。

40

【0110】

更なる例示的な態様によれば、充填材料は、感圧接着剤ポリマー発泡体の重量に基づいて、2重量%～30重量%、2重量%～20重量%、又は更には2重量%～15重量%の範囲の量で存在する。

【0111】

50

共押出多層接着剤アセンブリの典型的な態様では、本明細書で使用するための感圧接着剤ポリマー発泡体層は、ポリ（メタ）アクリレートを含まない。

【0112】

共押出多層接着剤アセンブリの有利な態様によれば、本明細書で使用するための感圧接着剤ポリマー発泡体層は、

a) 感圧接着剤ポリマー発泡体の総重量に基づいて、20重量%～80重量%、20重量%～70重量%、25重量%～60重量%、30重量%～60重量%、又は更には35重量%～60重量%のゴム系エラストマー材料と、

b) 任意に、感圧接着剤ポリマー発泡体の総重量に基づいて、20重量%～70重量%、25重量%～60重量%、又は更には25重量%～50重量%の炭化水素粘着付与剤と、

c) 任意に、感圧接着剤ポリマー発泡体の総重量に基づいて、1重量%～40重量%、2重量%～30重量%、5重量%～30重量%、又は更には10重量%～25重量%のポリマー可塑剤、特にポリイソブチレン可塑剤と、

d) 任意に、感圧接着剤ポリマー発泡体の重量に基づいて、2重量%～30重量%、2重量%～20重量%、又は更には2重量%～15重量%の、好ましくは膨張性微小球及びガラスバブルの群から選択される粒状充填材料と、を含む。

【0113】

共押出多層接着剤アセンブリの別の有利な態様によれば、本明細書で使用するための感圧接着剤ポリマー発泡体層は、架橋添加剤を含まず、特に多官能性（メタ）アクリレート化合物を含まない。

【0114】

特定の一態様では、感圧接着剤ポリマー発泡体層は、架橋添加剤（架橋剤とも称される）を更に含む。本明細書で使用するのに好適な架橋添加剤は、特に限定されず、本開示を踏まえて、当業者によって容易に特定され得る。

【0115】

本明細書で使用するのに好適な架橋添加剤としては、多官能性（メタ）アクリレート及び多官能性マレイミド化合物が挙げられるが、これらに限定されない。本明細書で使用するのに特に好適な架橋添加剤は、複数の（メタ）アクリロイル基を含む。

【0116】

複数の（メタ）アクリロイル基を有する架橋剤は、ジ（メタ）アクリレート、トリ（メタ）アクリレート、テトラ（メタ）アクリレート、ペンタ（メタ）アクリレート等でもよい。これらの架橋剤は、例えば、（メタ）アクリル酸と多価アルコール（即ち、少なくとも2つのヒドロキシル基を有するアルコール）とを反応させることにより形成することができる。多価アルコールは、多くの場合、2つ、3つ、4つ、又は5つのヒドロキシル基を有する。架橋剤の混合物もまた使用してもよい。

【0117】

一態様では、架橋剤は、少なくとも2つの（メタ）アクリロイル基を含有する。2つのアクリロイル基を有する例示的な架橋剤としては、1，2-エタンジオールジアクリレート、1，3-プロパンジオールジアクリレート、1，9-ノナンジオールジアクリレート、1，12-ドデカンジオールジアクリレート、1，4-ブタンジオールジアクリレート、1，6-ヘキサンジオールジアクリレート、ブチレングリコールジアクリレート、ビスフェノールAジアクリレート、ジエチレングリコールジアクリレート、トリエチレングリコールジアクリレート、テトラエチレングリコールジアクリレート、トリプロピレングリコールジアクリレート、ポリエチレングリコールジアクリレート、ポリプロピレングリコールジアクリレート、ポリエチレン／ポリプロピレンコポリマージアクリレート、ポリブタジエンジ（メタ）アクリレート、プロポキシ化グリセリントリ（メタ）アクリレート、及びネオペンチルグリコールヒドロキシピバレートジアクリレート変性カプロラクトンが挙げられるが、これらに限定されない。

【0118】

3つ又は4つの（メタ）アクリロイル基を有する例示的な架橋剤としては、トリメチロ

10

20

30

40

50

ールプロパントリアクリレート（例えば、C y t e c I n d u s t r i e s , I n c . (S m y r n a , G A) から商標名 T M P T A - N で、及び S a r t o m e r (E x t o n , P A) から商標名 S R - 3 5 1 で市販されている）、トリメチロールプロパントリメタクリレート（例えば、S a r t o m e r (E x t o n , P A) から商標名 S R - 3 5 0 で市販されている）、ペンタエリスリトールトリアクリレート（例えば、S a r t o m e r から商標名 S R - 4 4 4 で市販されている）、トリス（2-ヒドロキシエチルイソシアヌレート）トリアクリレート（例えば、S a r t o m e r から商標名 S R - 3 6 8 で市販されている）、ペンタエリスリトールトリアクリレートとペンタエリスリトールテトラアクリレートとの混合物（例えば、C y t e c I n d u s t r i e s , I n c . から商標名 P E T I A（テトラアクリレートのトリアクリレートに対する比がおよそ 1 : 1）で、及び商標名 P E T A - K（テトラアクリレートのトリアクリレートに対する比がおよそ 3 : 1）で市販されている）、ペンタエリスリトールテトラアクリレート（例えば、S a r t o m e r から商標名 S R - 2 9 5 で市販されている）、ジートリメチロールプロパントラアクリレート（例えば、S a r t o m e r から商標名 S R - 3 5 5 で市販されている）、並びにエトキシ化ペンタエリスリトールテトラアクリレート（例えば、S a r t o m e r から商標名 S R - 4 9 4 で市販されている）が挙げられるが、これらに限定されない。5 個の（メタ）アクリロイル基を有する例示的な架橋剤としては、ジペンタエリスリトールペンタアクリレート（例えば、S a r t o m e r から商標名 S R - 3 9 9 で市販されている）が挙げられるが、これに限定されない。

【0119】

特定の一態様では、架橋剤は、少なくとも 2 つの（メタ）アクリロイル基を含有するポリマー材料である。例えば、架橋剤は、少なくとも 2 つのアクリロイル基を有するポリ（アルキレンオキサイド）（例えば、S a r t o m e r から市販されている S R 2 1 0、S R 2 5 2、及び S R 6 0 3 などのポリエチレングリコールジアクリレート）、又は少なくとも 2 つの（メタ）アクリロイル基を有するポリウレタン（例えば、S a r t o m e r からの C N 9 0 1 8 などのポリウレタンジアクリレート）であることができる。架橋剤の分子量が増加するにつれて、得られるアクリルコポリマーは、破断点前により高い伸びを有する傾向がある。ポリマー架橋剤は、それらの非ポリマー対応物と比較して、より大きな重量パーセント量で使用される傾向がある。

【0120】

架橋の更に他の方法では、熱架橋剤を、好適な促進剤及び遅延剤と任意選択で組み合わせて、使用することができる。本明細書で使用する好適な熱架橋剤としては、イソシアネート、より詳細には、ブロッキング剤を含まない三量体化イソシアネート及び／若しくは立体障害イソシアネート、又はエポキシドアミン架橋剤系等のエポキシド化合物が挙げられるが、これらに限定されない。有利な架橋剤系及び方法は、例えば、D E 2 0 2 0 0 9 0 1 3 2 5 5 (U 1) 号、欧州特許第 2 3 0 5 3 8 9 (A 1) 号、欧州特許第 2 4 1 4 1 4 3 (A 1) 号、欧州特許第 2 1 9 2 1 4 8 (A 1) 号、欧州特許第 2 1 8 6 8 6 9 号、欧州特許第 0 7 5 2 4 3 5 (A 1) 号、欧州特許第 1 8 0 2 7 2 2 (A 1) 号、欧州特許第 1 7 9 1 9 2 1 (A 1) 号、欧州特許第 1 7 9 1 9 2 2 (A 1) 号、欧州特許第 1 9 7 8 0 6 9 (A 1) 号、及び D E 1 0 2 0 0 8 0 5 9 0 5 0 (A 1) 号の記述に記載されており、これらの関連内容は参照により本明細書に組み込まれる。特に有利な架橋剤系及び方法は、欧州特許第 0 7 5 2 4 3 5 (A 1) 号及び欧州特許第 1 9 7 8 0 6 9 (A 1) 号に記載されている。本明細書で使用する好適な促進剤及び遅延剤系は、例えば、米国特許第 (A 1) 2 0 1 1 / 0 2 8 1 9 6 4 号の記述に記載されており、その関連内容は、参照により本明細書に明示的に組み込まれる。本明細書で使用する好適な熱架橋剤としては、エポキシクロヘキシル誘導体、特にエポキシクロヘキシルカルボキシレート誘導体が挙げられ、(3, 4-エポキシクロヘキサン)メチル 3, 4-エポキシクロヘキシルカルボキシレートが特に好ましく、C y t e c I n d u s t r i e s I n c . から商標名 U V A C U R E 1 5 0 0 で市販されている。特定の態様によれば、本明細書で使用するためのゴム系エラストマー材料は、エポキシド基と架橋可能な（コ）ポリマー又はコポリ

マーを含み得る。それに対応して、使用されるモノマー又はコモノマーの少なくとも一部は、有利には、エポキシド基と架橋可能な官能性モノマーであり得る。酸基（特にカルボン酸基、スルホン酸基、若しくはホスホン酸基）及び／又はヒドロキシル基及び／又は酸無水物基及び／又はエポキシド基及び／又はアミン基を有するモノマー、特にカルボン酸基を含有するモノマーを好適に使用することができる。好適な官能性モノマーは、例えば、米国特許第 2 0 0 5 / 0 2 8 8 4 3 6 (A 1) 号に記載されている。

【0 1 2 1】

架橋添加剤は、存在する場合、例えば、感圧接着剤ポリマー発泡体の重量に基づいて、最大 4 0 重量%の量で使用することができる。特定の一態様では、架橋添加剤は、感圧接着剤ポリマー発泡体の重量に基づいて、0 . 1 重量%～1 0 重量%、0 . 5 重量%～8 重量%、1 重量%～6 重量%、又は更には 2 重量%～5 重量%の範囲の量で使用することができる。

10

【0 1 2 2】

熱架橋添加剤、湿気架橋添加剤、又は感光性架橋添加剤に加えて、 γ 線又は電子ビーム放射線等、高エネルギー電磁放射線を使用して架橋が達成されてもよい。

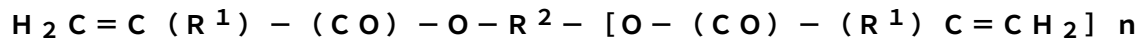
【0 1 2 3】

本開示の有利な態様では、本明細書で使用する架橋添加剤は、化学線、より好ましくは電子ビーム照射により活性化される／活性化可能である。より好ましい態様では、架橋添加剤は、多官能性（メタ）アクリレート化合物の群から選択される。例示的な多官能性（メタ）アクリレート化合物は、好ましくは、少なくとも 2 個の（メタ）アクリロイル基、特に 3 個又は 4 個の（メタ）アクリロイル基、より特定すると、3 個の（メタ）アクリロイル基を含む。

20

【0 1 2 4】

別の有利な態様では、多官能性（メタ）アクリレート化合物は、以下の式を有する：



（式中、 R^1 は水素又はメチルであり、 n は 1、2、3 又は 4 であり、 R^2 は、アルキレン、アリーレン、ヘテロアルキレン、又はこれらの任意の組合せである）。

【0 1 2 5】

更に別の有利な態様によれば、本明細書で使用する架橋添加剤は、1，6-ヘキサンジオールジ（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、及びこれらの任意の組合せ又は混合物からなる群から選択される多官能性（メタ）アクリレート化合物である。

30

【0 1 2 6】

本開示を踏まえて当業者には明らかとなるように、他の添加剤を、任意に感圧接着剤ポリマー発泡体に含めて、任意の所望される特性を達成してもよい。このような添加剤としては、更なる粘着付与剤、顔料、強化剤、補強剤、難燃剤、抗酸化剤、重合開始剤、及び様々な安定剤が挙げられるが、これらに限定されない。添加剤は、典型的には、所望の最終特性を得るのに十分な量で添加される。

【0 1 2 7】

本開示の典型的な一態様では、共押出多層接着剤アセンブリは、熱活性化可能な接着剤樹脂層及び感圧接着剤ポリマー発泡体層を含む二層共押出多層接着構造体の形態である。

40

【0 1 2 8】

熱活性化可能な接着剤樹脂層の厚さは、共押出多層接着剤アセンブリの最終用途によって決定される。典型的な態様では、熱活性化可能な接着剤樹脂層の厚さは、3 0～3 0 0 マイクロメートルの範囲である。別の典型的な態様によれば、感圧接着剤ポリマー発泡体層は、1 0 0～6 0 0 0 マイクロメートル、4 0 0～3 0 0 0 マイクロメートル、又は更には 8 0 0～2 0 0 0 マイクロメートルの範囲の厚さを有する。

【0 1 2 9】

本開示による共押出多層接着剤アセンブリは、その最終的な用途及び所望の特性に応じて、かつそれが少なくとも上記のような共押出熱活性化可能な接着剤樹脂層及び共押出感

50

圧接着剤ポリマー発泡体層を含むことを条件として、任意の好適な種類の設計又は構成を有し得る。

【0130】

例示的な態様によれば、本開示の共押出多層接着剤アセンブリは、2つ以上の重ね合わされた層、即ち、熱活性化可能な接着剤樹脂層と、感圧接着剤ポリマー発泡体層と、任意に、例えば更なる感圧接着剤層及び／又はバックング層などの隣接する層とを含む多層構造体の形態をとってもよい。2つの物体を互いに接着するための二層接着テープとして、このような接着剤多層構造体又はテープを有利に使用してもよい。それに関連して、本明細書で使用するのに好適な層又はバックング層は、少なくとも部分的に感圧接着剤特性を発揮しても、又はしなくてもよい。

10

【0131】

したがって、本開示の有利な態様では、感圧接着剤ポリマー発泡体層が、第1の主面及び第2の主面を有し、熱活性化可能な接着剤樹脂層が、感圧接着剤ポリマー発泡体層の第1の主面と直接接触して（結合して）おり、多層感圧接着剤アセンブリが、感圧接着剤ポリマー発泡体層の第2の主面に結合された第2の感圧接着剤層を更に含む。

【0132】

この有利な実施によれば、多層接着剤アセンブリは、有利には、感圧接着剤ポリマー発泡体層、熱活性化可能な接着剤樹脂層及び第2の感圧接着剤層のホットメルト共押出によって得られ、第2の感圧接着剤層が、好ましくは、感圧接着剤ポリマー発泡体層の第2主面と直接接触しており、感圧接着剤ポリマー発泡体層の第2の主面と、感圧接着剤ポリマー発泡体層の第2の主面と直接接触している第2の感圧接着剤層の表面とが、好ましくは、化学的又は物理的接着促進表面処理を含まない。

20

【0133】

多層感圧接着剤アセンブリの有利な態様によれば、本明細書での使用のための第2の感圧接着剤層は、1500マイクロメートル未満、1000マイクロメートル未満、800マイクロメートル未満、600マイクロメートル未満、400マイクロメートル未満、200マイクロメートル未満、150マイクロメートル未満、又は更には100マイクロメートル未満の厚さを有する。更に有利には、本明細書で使用するための第2の感圧接着剤層は、20～1500マイクロメートル、20～1000マイクロメートル、20～500マイクロメートル、30～400マイクロメートル、30～250マイクロメートル、40～200マイクロメートル、又は更には50～150マイクロメートルの範囲の厚さを有する。

30

【0134】

共押出多層接着剤アセンブリに含まれる様々な層及び他の任意の層の厚さは、所望の実施及び関連特性に応じて広範囲に変化し得る。一例として、厚さは、25～6000マイクロメートル、40～3000マイクロメートル、50～3000マイクロメートル、50～2000マイクロメートル、又は50～1500マイクロメートルの範囲で、各層に対して独立して選択することができる。

【0135】

共押出多層接着剤アセンブリがスキン／コア型共押出多層接着剤アセンブリの形態を取り、感圧ポリマー発泡体層が、多層接着剤アセンブリのコア層であり、かつ熱活性化可能な接着剤樹脂層が多層接着剤アセンブリのスキン層である特定の実施によれば、熱活性化可能な接着剤樹脂層は、感圧性ポリマー発泡体／コア層と比較してより小さい厚さを有することが好ましい。

40

【0136】

共押出多層接着剤アセンブリが、感圧接着剤ポリマー発泡体層の第2の主面に結合された第2の感圧接着剤スキン層を更に含む特定の実施では、このような多層接着剤アセンブリは、感圧接着剤ポリマー発泡体層が、熱活性化可能な接着剤樹脂層と第2の感圧接着剤（スキン）層との間に挟まれている、三層設計を反映する。この特定の多層接着剤アセンブリは、有利には、スキン／コア／スキン多層アセンブリの形態をとってもよく、ここで

50

は、感圧接着剤ポリマー発泡体層は、多層接着剤アセンブリのコア層であり、スキン層は、熱活性化可能な接着剤樹脂層及び第2の感圧接着剤層である。

【0137】

多層接着剤アセンブリの特定の一態様では、感圧接着剤ポリマー発泡体層と第2の感圧接着剤層とは、同一の感圧接着剤組成を有し、上記のような感圧接着剤組成を含む。代替的態様では、感圧接着剤ポリマー発泡体層と第2の感圧接着剤層とは、異なる感圧接着剤組成を有する。

【0138】

本明細書で使用するための第2の感圧接着剤層を形成するのに好適な組成物は、特に限定されず、本開示を踏まえて、当業者によって容易に特定され得る。

【0139】

共押出多層接着剤アセンブリの例示的な態様によれば、第2の感圧接着剤層が、ゴム系エラストマー材料、ポリアクリレート、ポリウレタン、ポリオレフィン、ポリアミド、ポリエステル、ポリエーテル、ポリイソブチレン、ポリスチレン、ポリビニル、ポリビニルピロリドン、シリコーン、及びこれらの任意の組み合わせ、コポリマー、又は混合物からなる群から選択されるポリマー系材料を含む。

【0140】

有利な態様では、第2の感圧接着剤層が、ゴム系エラストマー材料からなる群から選択されるポリマー系材料を含む。より有利には、第2の感圧接着剤層は、感圧接着剤ポリマー発泡体層との関連において上述したような組成を有する。

【0141】

共押出多層接着剤アセンブリの別の有利な態様によれば、第2の感圧接着剤層は、式 $L-(G)_m$ の直鎖状ブロックコポリマー〔式中、 L は、重合オレフィン、重合共役ジエン、重合共役ジエンの水素化誘導体、又はこれらの任意の組合せを含むゴム状ブロックであり、各 G は、重合モノビニル芳香族モノマーを含むガラス状ブロックであり、 m は1又は2である〕を更に含む。本明細書で使用するのに好適なゴム状ブロック L は、重合オレフィン、重合共役ジエン、重合共役ジエンの水素化誘導体、又はこれらの任意の組合せを含み、ここで、 m は、有利には、1又は2である。

【0142】

特定の一態様では、 m は1であり、直鎖状ブロックコポリマーは、1つのゴム状ブロック L 及び1つのガラス状ブロック G を含むジブロックコポリマーである。別の特定の態様では、 m は2であり、直鎖状ブロックコポリマーは、2つのガラス状末端ブロック及び1つのゴム状中間ブロックを含み、即ち、直鎖状ブロックコポリマーは、トリブロックコポリマーである。

【0143】

更に別の態様では、ゴム状ブロック L は、重合共役ジエン、重合共役ジエンの水素化誘導体、又はこれらの任意の組合せを含む。更に別の態様では、共役ジエンは4～12個の炭素原子を含む。例示的な共役ジエンとしては、ブタジエン、イソプレン、エチルブタジエン、フェニルブタジエン、ビペリレン、ペンタジエン、ヘキサジエン、エチルヘキサジエン、及びジメチルブタジエンが挙げられるが、これらに限定されない。重合共役ジエンは、個別に又は互いのコポリマーとして使用してもよい。好ましくは、直鎖状ブロックコポリマーのゴム状ブロック L は、イソプレン、ブタジエン、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択される共役ジエンを含む。有利な態様では、ゴム状ブロック L は、イソブチレンなどの重合オレフィンを含む。

【0144】

一態様では、少なくとも1つのガラス状ブロック G は、重合モノビニル芳香族モノマーを含む。別の態様では、トリブロックコポリマーの両方のガラス状ブロックは、重合モノビニル芳香族モノマーを含む。更に別の態様では、直鎖状ブロックコポリマーは、2つのガラス状ブロックを含む。更に別の態様によれば、モノビニル芳香族モノマーは、8～18個の炭素原子を含む。例示的なモノビニル芳香族モノマーとしては、スチレン、ビニル

10

20

30

40

50

ピリジン、ビニルトルエン、 α -メチルスチレン、メチルスチレン、ジメチルスチレン、エチルスチレン、ジエチルスチレン、 ϵ -ブチルスチレン、ジ-n-ブチルスチレン、イソプロピルスチレン、他のアルキル化スチレン、スチレン類似体、及びスチレン同族体が挙げられるが、これらに限定されない。更に別の態様では、モノビニル芳香族モノマーは、スチレン、スチレン相容性モノマー又はモノマーブレンド、及びこれらの任意の組合せからなる群から選択される。

【0145】

本明細書で使用するとき、「スチレン相容性モノマー又はモノマーブレンド」は、重合又は共重合することができ、優先的にポリスチレン又はブロックコポリマーのポリスチレン末端ブロックと会合する、モノマー又はモノマーのブレンドを指す。相容性は、モノマー-スチレンとの実際の共重合；相容性モノマー若しくはブレンド、又はホットメルト若しくは溶媒処理中のポリスチレン相中の重合モノマー若しくはブレンドの溶解性；又は処理後の放置中のスチレン富化相領域との、モノマー若しくはブレンドの会合から生じ得る。

【0146】

有利な一態様では、直鎖状ブロックコポリマーはジブロックコポリマーである。別の有利な態様では、ジブロックコポリマーは、スチレン-イソプレン、及びスチレン-ブタジエンからなる群から選択される。有利な態様では、直鎖状ブロックコポリマーはトリブロックコポリマーである。更に別の有利な態様では、トリブロックコポリマーは、スチレン-イソプレン-スチレン、スチレン-ブタジエン-スチレン、スチレン-エチレン-ブチレン-スチレン、スチレン-エチレン-プロピレン-スチレン、スチレン-イソブチレン-スチレン、及びこれらの任意の組合せからなる群から選択される。ジブロック及びトリブロックコポリマーは、例えば、商標名 V E C T O R で、D e x c o P o l y m e r L P (H o u s t o n , T e x a s) から入手可能なもの；及び商標名 K R A T O N で、K r a t o n P o l y m e r s U . S . L L C (H o u s t o n , T e x a s) から入手可能なものが、市販されている。製造及び／又は購入されたとき、トリブロックコポリマーは、ジブロックコポリマーのいくつかの部分も含有し得る。

【0147】

共押出多層接着剤アセンブリの別の有利な態様によれば、第2の感圧接着剤層は、実験セクションに記載された環球法によって測定した場合、好ましくは少なくとも150℃の軟化点値(RBSP)を有する、ガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂を更に含んでもよい。

【0148】

本開示との関連においては、「ガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂」という表現は、ガラス状ブロックと相溶性がある(ここで、用語「相溶性がある」は上記で定義されている)芳香族樹脂を指すことを意味する。

【0149】

有利な態様では、少なくとも150℃の軟化点値(RBSP)を有するガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂は、多腕ブロックコポリマーの各ガラス状ブロックG及び任意の直鎖状ブロックコポリマーのガラス状ブロックGと相溶性がある。

【0150】

好ましくは、上に詳しく述べた軟化点要件を満たす場合、典型的には、従来の感圧接着剤組成物に含まれる任意のガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂を、本開示との関連において使用してもよい。本明細書で使用するためのガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂は、本開示を踏まえて当業者によって、容易に特定され得る。

【0151】

第2の感圧接着剤の有利な態様によれば、本明細書で使用するためのガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂は、実験セクションに記載された環球法により測定した場合、少なくとも155℃、少なくとも160℃、少なくとも165℃、少なくとも170℃、少なくとも180℃、少なくとも190℃、又は更には少なくとも200℃の軟化点値(RBSP)を有する。

【0152】

第2の感圧接着剤の別の有利な態様によれば、本明細書で使用するためのガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂は、30,000 g/mol以下、25,000 g/mol以下、20,000 g/mol以下、15,000 g/mol以下、又は更には10,000 g/mol以下の重量平均分子量 M_w を有する。

【0153】

好ましい態様では、本開示による第2の感圧接着剤は、少なくとも100℃、少なくとも110℃、少なくとも120℃、少なくとも130℃、少なくとも140℃、少なくとも150℃、又は更には少なくとも160℃のガラス転移温度(T_g)を有するガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂を含む。

【0154】

第2の感圧接着剤の例示的な態様によれば、本明細書で使用するためのガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂は、10,000 g/mol以下、9,000 g/mol未満、8,000 g/mol未満、6,000 g/mol未満、4,000 g/mol未満、又は更には2,000 g/mol未満の重量平均分子量 M_w を有する。

【0155】

第2の感圧接着剤の別の例示的な態様によれば、本明細書で使用するためのガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂は、少なくとも1,000 g/mol、少なくとも2,000 g/mol、少なくとも3,000 g/mol、又は更には少なくとも4,000 g/molの重量平均分子量 M_w を有する。

【0156】

本開示の更に別の例示的な態様によれば、第2の感圧接着剤は、1,000~9,500 g/mol、又は更には2,000~9,000 g/molの範囲に含まれる重量平均分子量 M_w を有するガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂を含む。

【0157】

典型的な態様によれば、本明細書で使用するためのガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂は、本質的に炭化水素芳香族樹脂であるが、その開示はそれに限定されるものではない。

【0158】

本開示の好ましい態様では、本明細書で使用するためのガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂は、炭化水素芳香族樹脂、アリーレンオキサイド樹脂、C9系炭化水素芳香族樹脂、C9系水素添加炭化水素芳香族樹脂、ポリアリーレンオキサイド樹脂、特に、ポリフェニレンオキサイド又はポリフェニレンエーテル、インデンクマロン樹脂、C9と無水マレイン酸とのコポリマーに基づく芳香族樹脂、及びこれらの任意の組み合わせ又は混合物からなる群から選択される。更に好ましい態様では、本明細書で使用するためのガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂は、炭化水素芳香族樹脂、アリーレンオキサイド樹脂、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択される。

【0159】

第2の感圧接着剤の有利な態様によれば、本明細書で使用するためのガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂は、C9系炭化水素芳香族樹脂、C9系水素添加炭化水素芳香族樹脂、ポリアリーレンオキサイド樹脂、特に、ポリフェニレンオキサイド、又はポリフェニレンエーテルからなる群から選択される。

【0160】

第2の感圧接着剤の特に有利な態様によれば、本明細書で使用するためのガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂は、C9系炭化水素芳香族樹脂の群から選択される。

【0161】

第2の感圧接着剤の別の特に有利な態様によれば、本明細書で使用するためのガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂は、ポリフェニレンオキサイド、又はポリフェニレンエーテルの群から選択される。

【0162】

好ましい態様では、本明細書で使用するための第2の感圧接着剤は、実験セクションに記載された重量減少試験法に従って熱重量分析によって測定した場合、1000 ppm未

10

20

30

40

50

満、800ppm未満、600ppm未満、500ppm未満、又は更には400ppm未満の揮発性有機化合物（VOC）値を有するガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂を含む。

【0163】

別の好ましい態様では、本開示で使用するための第2の感圧接着剤は、実験セクションに記載された重量減少試験法に従って熱重量分析によって測定した場合、1500ppm未満、1000ppm未満、800ppm未満、600ppm未満、又は更には500ppm未満の揮発性フォギング化合物（FOG）値を有するガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂を含む。

【0164】

典型的な態様によれば、本開示による第2の感圧接着剤は、感圧接着剤の総重量に基づいて重量%で表して、20重量%以下、18重量%以下、15重量%以下、又は更には12重量%以下である量のガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂を含む。

10

【0165】

第2の感圧接着剤の別の典型的な態様によれば、ガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂の総量は、第2の感圧接着剤の総重量に基づいて重量%で表して、2重量%以上、4重量%以上、又は更には5重量%以上である。

【0166】

第2の感圧接着剤の好ましい態様によれば、ガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂の総量は、第2の感圧接着剤の総重量に基づいて重量%で表して、0.5～35重量%、1～30重量%、2～25重量%、又は更には5～25重量%の範囲に含まれる。

20

【0167】

本開示の典型的な一態様では、第2の感圧接着剤層は、微小球、膨張性微小球、好ましくはペンタン充填膨張性微小球、ガス状空隙、ガラスビーズ、ガラス微小球、ガラスバブル、及びこれらの任意の組合せ又は混合物からなる群から選択される充填材料を一切含まない。

【0168】

共押出多層接着剤アセンブリの有利な態様によれば、第2の感圧接着剤層は、

a) 第2の感圧接着剤の総重量に基づいて、20重量%～80重量%、20重量%～70重量%、25重量%～60重量%、30重量%～60重量%、又は更には35重量%～60重量%のゴム系エラストマー材料と、

30

b) 任意に、第2の感圧接着剤の総重量に基づいて、20重量%～70重量%、25重量%～60重量%、又は更には25重量%～50重量%の炭化水素粘着付与剤と、

c) 任意に、第2の感圧接着剤の総重量に基づいて、2重量%～20重量%、4重量%～15重量%、5重量%～12重量%、又は更には5重量%～10重量%のポリマー可塑剤と、

d) 任意に、第2の感圧接着剤の総重量に基づいて、20重量%～80重量%、20重量%～70重量%、25重量%～60重量%、30重量%～60重量%、又は更には35重量%～60重量%の直鎖状ブロックコポリマーと、

e) 任意に、第2の感圧接着剤の総重量に基づいて、0.5～35重量%、1～30重量%、2～25重量%、又は更には5～25重量%のガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂と、を含む。

40

【0169】

例示的な一態様では、本開示による共押出多層接着剤アセンブリは、特に化学線で、より特定すると電子ビーム照射又はUV照射で架橋される。典型的な態様によれば、共押出多層接着剤アセンブリは、電子ビーム照射で架橋され、電子ビーム照射の線量は、典型的には50kGy～150kGyである。更なる特定の態様では、電子ビーム照射は、共押出多層接着剤アセンブリ中で対称の照射プロファイルを達成するように両側から実施される。

【0170】

電子ビーム照射ベースの架橋を実施している間、好適な電子ビームの加速張力を選択す

50

ることと併せて好適な電子ビーム照射線量を見出すことは、当業者の実践の範囲内である。好適な加速張力は、典型的には、対応する共押出多層接着剤アセンブリのコーティング重量に対して選択され、適合される。例示的な電子ビーム加速張力は、典型的には、 $25 \sim 1200 \text{ g/m}^2$ のコーティング重量を有する層に対して $140 \sim 300 \text{ kV}$ である。両側から照射されると、層は最大 1800 g/m^2 のコーティング重量を有し得る。

【0171】

本開示の特定の一態様によれば、共押出多層接着剤アセンブリは、架橋添加剤、特に多官能性（メタ）アクリレート又は多官能性マレイミド化合物を、より特定すると、感圧接着剤発泡体層及び／又は第2の感圧接着剤層及び／又は熱活性化可能な接着剤樹脂層内に更に含む。

【0172】

本開示による共押出多層接着剤アセンブリでは、熱活性化可能な接着剤樹脂層は、感圧接着剤発泡体層と直接接触し、感圧接着剤発泡体層と直接接触している熱活性化可能な接着剤樹脂層の表面と、熱活性化可能な接着剤樹脂層と直接接触している感圧接着剤発泡体層の表面とが、任意位の化学的又は物理的接着促進表面処理を含まない。

【0173】

化学的及び物理的接着促進表面処理は周知であり、多層接着剤アセンブリの当業者によって実践される。典型的なプライマー組成物は、例えば、米国特許第5,677,376号（Groves）及び同第5,605,964号（Groves）に記載されている。代替的な化学的又は物理的接着促進表面処理は、例えば、米国特許第4,563,388号（Bonkら）、欧州特許第A1-0384598号（Johnsonら）、欧州特許第A1-1262532号（Valdez）、及び米国特許出願公開第2015/0159053（A1）号（Schumannら）に記載されている。

【0174】

有利な一態様によれば、本開示の共押出多層接着剤アセンブリは、物理的接着促進表面処理からなる群から選択され、特に、コロナ表面前処理、プラズマ表面前処理、誘電体バリア表面前処理、火炎表面前処理、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択される、化学的又は物理的接着促進表面処理を含まない。

【0175】

別の有利な態様では、本開示の共押出多層接着剤アセンブリは、化学的接着促進表面処理からなる群から選択され、特に、プライミング層、グラフト化中間層、特に（メタ）アクリル酸エステルモノマー又は（メタ）アクリルアミドモノマーに基づく電離放射線グラフト化プライミング層、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択される、化学的又は物理的接着促進表面処理を含まない。

【0176】

有利な態様によれば、共押出多層接着剤アセンブリは、実験セクションに記載された静的剪断試験法に従って 70°C で測定した場合、 2000 分超、 4000 分超、 6000 分超、 8000 分超、又は更には 10000 分超の静的剪断強度値を有する。

【0177】

別の有利な態様によれば、共押出多層接着剤アセンブリは、実験セクションに記載された静的剪断試験法に従って 90°C で測定した場合、 2000 分超、 4000 分超、 6000 分超、 8000 分超、又は更には 10000 分超の静的剪断強度値を有する。

【0178】

更に別の有利な態様によれば、共押出多層接着剤アセンブリは、実験セクションに記載された剪断接着損傷温度試験法に従って測定した場合、 80°C 超、 90°C 超、 100°C 超、 110°C 超、 120°C 超、又は更には 130°C 超の剪断接着損傷温度（SAFT）値を有する。

【0179】

本開示の別の態様では、熱活性化可能な接着剤樹脂層が、感圧ポリマー発泡体層と直接接触する第1の主面と、ゴムシール物品に結合された第2の主面と、を有する、上記のよ

10

20

30

40

50

うな共押出多層接着剤アセンブリを含む複合品が提供される。

【0180】

本明細書で使用するためのゴムシール物品は、特に限定されない。当技術分野において一般に知られる任意のゴムシール物品を、本開示との関連において使用することができる。本明細書で使用するのに好適なゴムシール物品は、当業者によって容易に特定され得る。当業者には明らかであるように、ゴムシール物品は、封止用途に使用されるゴム（エラストマー）材料に基づく物品を指定することを意味する。本明細書で使用するための例示的なゴムシール物品としては、自動車産業で使用するためのゴムシール物品が挙げられるが、これらに限定されない。封止用途に使用するための例示的なゴム材料としては、EPDM、熱可塑性エラストマー（TPE）、熱可塑性加硫物（TPV）、及び商品名Fortrex（商標）（Cooper Standardから入手可能）で既知のものが挙げられるが、これらに限定されない。

10

【0181】

複合品の別の有利な態様によれば、本明細書で使用するためのゴムシール物品は、外装部品及び内装部品取り付けゴムシール物品及びウェザーストリップゴムシール物品、特に自動車産業で使用するためのものからなる群から選択される。

【0182】

複合品の更に別の有利な態様によれば、本明細書で使用するためのゴムシール物品は、サンルーフシール、ドリップレールシール、ウォーターボックスシール、トランクシール、挟持保護シール、締付け保護シール、後部窓シール、ヘッドライトシール、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択される。

20

【0183】

本開示の特に有利な態様では、複合品に使用するためのゴムシール物品は、自動車用途、特に自動車用ドア又は自動車車体における使用のためのウェザーストリップゴムシールである。

【0184】

別の態様では、本開示は、上記のような共押出多層接着剤アセンブリを製造する方法であって、感圧ポリマー発泡体層、熱活性化可能な接着剤樹脂層、及び任意に、第2の感圧接着剤層をホットメルト共押出しする工程を含む、方法を対象とする。

【0185】

ホットメルト共押出は、当業者に周知の技術である。例示的なホットメルト共押出プロセスは、例えば、米国特許第2003/0082362（A1）号（Khandpurら）、米国特許第2004/0082700（A1）号（Khandpurら）に記載されており、これらの内容は参照により本明細書に完全に組み込まれる。

30

【0186】

ホットメルト共押出プロセスは、典型的には、ホットメルト組成物、一般的には、通常の室温を著しく上回る加工温度で基材又は薄層のキャリア上に押出コーティングすることができるが、ポリマー材料が室温で有用な感圧接着特性を保持する、融解粘度プロファイルを有するポリマー又はブレンドされたポリマー材料を形成することを含む。

【0187】

例示的なプロセスは、典型的には、各層の様々な成分をホットメルト化合物に配合することを含む。（例えば、ブロックコポリマー、ポリマー可塑剤、及び炭化水素粘着付与剤など）。当該技術分野において周知のように、配合は、典型的には、ロールミリング又は押出機（例えば、単軸スクリュウ、二軸スクリュウ、遊星押出機、リング押出機、ディスクスクリュウ、往復式単軸、ピンバレル単軸等）で行われる。混練機又はミキサー等の市販の装置を使用して、接着剤組成物のバッチを配合してもよい。配合後、様々な調製された組成物を共押出ダイに通して所望の共押出多層接着剤アセンブリに共押出しする。多層押出物の加工は、カレンダー又は別のタイプのコーティング装置を通じて継続される。接着剤の粘着挙動のため、これは、ライナー上にコーティングされ、ロールは押出接着剤に付着しない材料でコーティングされる。

40

50

【0188】

より特定した態様では、本開示は、上記のような共押出多層接着剤アセンブリを製造する方法を対象とし、この方法は、

a) ゴム系エラストマー材料、任意に、炭化水素粘着付与剤、任意に、ポリマー可塑剤、及び任意に、粒状充填材料を配合することにより、感圧接着剤ポリマー発泡体層のホットメルト化合物を形成する工程と、

b) 熱活性化可能な層のホットメルト化合物を提供する工程と、

c) 任意選択により、第2の感圧接着剤層のホットメルト化合物を準備する工程と、

d) 感圧ポリマー発泡体層、熱活性化可能な接着剤樹脂層、及び任意に、第2の感圧接着剤層をホットメルト共押出し、それによりホットメルト共押出多層接着剤アセンブリを形成する工程と、

e) 任意に、工程d)で得られたホットメルト共押出多層接着剤アセンブリを、特に、化学線、より特定すると電子ビーム照射によって架橋する工程と、を含む。

【0189】

共押出多層接着剤アセンブリを製造する方法の例示的な態様によれば、感圧ポリマー発泡体層のホットメルトは、膨張性微小球、膨張した微小球、ガラスバブル、これらの任意の組合せ又は混合物からなる群から選択される充填材料を含む。この特定の実施によれば、共押出多層接着剤アセンブリを製造する方法は、任意に、膨張性微小球を膨張させるか、又は更に膨張させる工程を任意に含んでもよい。

【0190】

特定の態様では、共押出多層接着剤アセンブリを製造する方法は、マルチスクリュートホットメルト押出加工工程、特に二軸ホットメルト押出加工工程又は遊星ローラ押出工程を含む。

【0191】

共押出多層接着剤アセンブリを製造する方法の特定の態様では、押出プロセス中に、配合された接着剤溶融物に真空が適用される。真空は、発泡剤を添加する前に、スキン配合溶融物及び／又はコア配合溶融物に対して区別なく適用することができる。

【0192】

共押出多層接着剤アセンブリを製造する方法の別の例示的な態様によれば、化学共留剤(chemical entrainer)が、配合された接着剤溶融物に添加され、後に押出プロセスにおいて除去される。本明細書で使用する好適な共留剤は、熱の作用下で揮発性の化学物質を放出する液体、気体又は化合物である。

【0193】

別の特定の態様では、共押出多層感圧接着剤アセンブリを製造する方法は、工程d)で得られたホットメルト共押出多層感圧接着剤アセンブリを、化学線、特に電子ビーム照射で架橋する工程を含み、化学線架橋工程は、閉鎖面(CF)又は開放面(OF)条件のいずれかの下で適用される。「閉鎖面」照射方法によれば、工程d)で得られたホットメルト共押出多層接着剤アセンブリの一面又は両面はライナーで覆われ、照射線量はライナーを介して適用される。「開放面」照射方法によれば、工程d)で得られたホットメルト共押出多層接着剤アセンブリの一面又は両面は露出され(即ち、ライナーで覆われていない)、照射線量は露出した接着剤表面上に直接適用される。

【0194】

典型的には、ホットメルト共押出多層接着剤アセンブリは、基材上に堆積され、次いで、特に化学線で、より特定すると電子ビーム照射で後硬化される。

【0195】

共押出多層接着剤アセンブリの製造との関連において、多層アセンブリの様々な層は、単一のプロセス工程の一部として調製される。

【0196】

本開示の共押出多層接着剤アセンブリは、接着剤をコーティングした物品を製造するために、様々な基材上でコーティング／適用することができる。基材は、可撓性又は非可撓

10

20

30

40

50

性であることができ、ポリマー材料、紙、ガラス若しくはセラミック材料、金属、又はこれらの組合せから形成することができる。発泡体裏材を使用してもよい。他の基材の例としては、ステンレス鋼、金属又は金属酸化物をコーティングしたポリマー材料、金属又は金属酸化物をコーティングしたガラス等の金属が挙げられるが、これらに限定されない。

【0197】

別の態様では、本開示は、ゴムシール複合品を製造する方法であって、

a) 上記のような多層接着剤アセンブリを提供する工程であって、熱活性化可能な接着剤樹脂層が、感圧ポリマー発泡体層と直接接触する第1の主面と、第2の主面と、を有する、多層接着剤アセンブリを提供する工程と、

b) ゴムシール物品を、熱活性化可能な接着剤樹脂層の第2の主面に熱ラミネートする(heat-laminating)工程と、を含む、方法を対象とする。

10

【0198】

別の態様によれば、本開示は、工業用途、好ましくは内装用途、より好ましくは建設市場用途及び輸送市場用途のための、上記のような共押出多層接着剤アセンブリの使用を対象とする。

【0199】

有利には、上記のような共押出多層接着剤アセンブリは、輸送市場用途、特に、自動車及び航空宇宙用途、より特定すると、自動車産業用の本体上のテープ式シール、ドア上のテープ式シール、外装部品及び内装部品取り付け、並びにウェザーストリップテープ用途に使用される。

20

【0200】

項目1は、共押出多層接着剤アセンブリであって、

a) オレフィンからなる群から選択される1つ以上のモノマーの(コ)ポリマーを含む、熱活性化可能な接着剤樹脂層と、

b) ゴム系エラストマー材料を含む感圧接着剤ポリマー発泡体層と、を含み、

熱活性化可能な接着剤樹脂層が、感圧接着剤発泡体層と直接接触し、感圧接着剤発泡体層と直接接触している熱活性化可能な接着剤樹脂層の表面と、熱活性化可能な接着剤樹脂層と直接接触している感圧接着剤発泡体層の表面とが、化学的又は物理的接着促進表面処理を(実質的に)含まない、共押出多層接着剤アセンブリである。

【0201】

30

項目2は、感圧接着剤ポリマー発泡体層と、熱活性化可能な接着剤樹脂層との(ホットメルト)共押出によって得られる、項目1に記載の多層接着剤アセンブリである。

【0202】

項目3は、熱活性化可能な接着剤樹脂層が、感圧接着剤発泡体層に接着結合されている、項目1又は2に記載の多層接着剤アセンブリである。

【0203】

項目4は、熱活性化可能な接着剤樹脂が、ポリオレフィンホモポリマー、ポリオレフィン／ポリオレフィンコポリマー(ポリアロマー)、及びこれらの任意の組み合わせ、ブレンド又は混合物からなる群から選択される(コ)ポリマーを含む、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

40

【0204】

項目5は、オレフィンモノマーが、エチレン、プロピレン、ブチレン、オクチレン、及びこれらの任意の組み合わせ又は混合物からなる群から選択される、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0205】

項目6は、熱活性化可能な接着剤樹脂が、ポリエチレンホモポリマー、ポリプロピレンホモポリマー、エチレン／プロピレンコポリマー、及びこれらの任意の組み合わせ、ブレンド、又は混合物からなる群から選択される(コ)ポリマーを含む、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0206】

50

項目 7 は、熱活性化可能な接着剤樹脂が、エチレン／プロピレンコポリマー、及びこれらの任意の組み合わせ、ブレンド又は混合物からなる群から選択される（コ）ポリマーを含む、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0207】

項目 8 は、熱活性化可能な接着剤樹脂が、アタクチック、アイソタクチック、ランダム、ブロック、インパクトコポリマー、及びこれらの任意の組み合わせ、ブレンド又は混合物からなる群から選択される（コ）ポリマーを含む、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0208】

項目 9 は、熱活性化可能な接着剤樹脂が、熱活性化可能な接着剤樹脂の重量に基づいて、50重量%以下、40重量%以下、30重量%以下、20重量%以下、又は更には10重量%以下の、特にエチレン含有量を有するプロピレン－エチレンコポリマーを含む、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

10

【0209】

項目 10 は、熱活性化可能な接着剤樹脂が、プロピレン又はポリエチレンに基づくインパクトコポリマー、特に、エチレン－プロピレンエラストマー相を含むインパクトプロピレンコポリマーを含む、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0210】

項目 11 は、ゴム系エラストマー材料が、天然ゴム、合成ゴム、熱可塑性エラストマー材料、非熱可塑性エラストマー材料、熱可塑性炭化水素エラストマー材料、非熱可塑性炭化水素エラストマー材料、及びこれらの任意の組み合わせ又は混合物からなる群から選択される、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

20

【0211】

項目 12 は、ゴム系エラストマー材料が、合成ゴム、熱可塑性エラストマー材料、非熱可塑性エラストマー材料、熱可塑性炭化水素エラストマー材料、非熱可塑性炭化水素エラストマー材料、及びこれらの任意の組み合わせ又は混合物からなる群から選択される、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0212】

項目 13 は、ゴム系エラストマー材料が、ハロゲン化ブチルゴム、特にプロモブチルゴム及びクロロブチルゴム、ハロゲン化イソブチレン－イソプレンコポリマー、プロモ－イソブチレン－イソプレンコポリマー、クロロ－イソブチレン－イソプレンコポリマー、ブロックコポリマー、オレフィンブロックコポリマー、ブチルゴム、合成ポリイソブレン、エチレン－オクチレンゴム、エチレン－プロピレンゴム、エチレン－プロピレンランダムコポリマー、エチレン－プロピレン－ジエンモノマーゴム、ポリイソブチレン、ポリ（ α －オレフィン）、エチレン－ α －オレフィンコポリマー、エチレン－ α －オレフィンブロックコポリマー、スチレンブロックコポリマー、スチレン－イソブレン－スチレンブロックコポリマー、スチレン－ブタジエン－スチレンブロックコポリマー、スチレン－エチレン／ブタジエン－スチレンブロックコポリマー、スチレン－エチレン／プロピレン－スチレンブロックコポリマー、スチレン－ブタジエンランダムコポリマー、オレフィンポリマー及びオレフィンコポリマー、エチレン－プロピレンランダムコポリマー、エチレン－プロピレン－ジエンターポリマー、並びにこれらの任意の組み合わせ又は混合物からなる群から選択される、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

30

【0213】

項目 14 は、ゴム系エラストマー材料が、オレフィンポリマー及びコポリマー、特に、オレフィンブロックコポリマー、及びこれらの任意の組み合わせ、ブレンド又は混合物からなる群から選択される、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0214】

項目 15 は、ゴム系エラストマー材料が、式 $Q_n - Y$ の多腕ブロックコポリマー（式中、
i . Q は、多腕ブロックコポリマーの腕を表し、各腕は、独立して式 $G - R$ を有し、
i i . n は、腕の数を表し、少なくとも 3 の整数であり、特に n は、3～5 であり、好

50

iii. Yは、多官能性カップリング剤の残基であり、

【 0 2 1 5 】

【 0 2 1 6 】

【 0 2 1 7 】

【 0 2 1 8 】

【 0 2 1 9 】

【0 2 2 0】

【 0 2 2 1 】

【 0 2 2 2 】

【 0 2 2 3 】

50

ppm未満、400ppm未満、又は更には200ppm未満の揮発性有機化合物（VOC）値を有する、項目21～23のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0224】

項目25は、炭化水素粘着付与剤が、実験セクションに記載の重量減少試験法に従って熱重量分析により測定した場合、1500ppm未満、1000ppm未満、800ppm未満、600ppm未満、又は更には500ppm未満の揮発性フォギング化合物（FOG）値を有する、項目21～24のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0225】

項目26は、感圧接着剤ポリマー発泡体層が、ポリマー可塑剤を更に含み、特に、少なくとも10,000g/mol、少なくとも15,000g/mol、少なくとも20,000g/mol、又は更には少なくとも30,000g/molの重量平均分子量 M_w を有する、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0226】

項目27は、ポリマー可塑剤が、100,000g/mol以下、90,000g/mol未満、80,000g/mol未満、70,000g/mol未満、60,000g/mol未満、50,000g/mol未満、又は更には40,000g/mol未満の重量平均分子量 M_w を有する、項目26に記載の多層接着剤アセンブリである。

【0227】

項目28は、ポリマー可塑剤が、10,000～80,000g/mol、20,000～70,000g/mol、25,000～65,000g/mol、25,000～60,000g/mol、30,000～60,000g/mol、又は更には30,000～55,000g/molの範囲の重量平均分子量 M_w を有する、項目26又は27に記載の多層接着剤アセンブリである。

【0228】

項目29は、ポリマー可塑剤が、実験セクションに記載された重量減少試験法に従って熱重量分析により測定した場合、1000ppm未満、800ppm未満、600ppm未満、400ppm未満、又は更には200ppm未満の揮発性有機化合物（VOC）値を有する、項目26～28のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0229】

項目30は、ポリマー可塑剤が、実験セクションに記載された重量減少試験法に従って熱重量分析により測定した場合、2500ppm未満、2000ppm未満、1500ppm未満、1000ppm未満、800ppm未満、600ppm未満、又は更には500ppm未満の揮発性フォギング化合物（FOG）値を有する、項目26～29のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0230】

項目31は、ポリマー可塑剤が、ポリイソブチレン可塑剤、液状ポリブタジエン可塑剤、液体ポリイソプレン可塑剤、液体イソブレンーブタジエンスチレンコポリマー可塑剤、エチレンプロピレンジエンモノマー可塑剤、液体炭化水素樹脂、及びこれらの任意の組み合わせ又は混合物又は水素添加形態からなる群から選択される、項目26～30のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0231】

項目32は、ポリマー可塑剤が、ポリイソブチレン可塑剤である、項目26～31のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0232】

項目33は、感圧接着剤ポリマー発泡体層が、好ましくは、微小球、膨張性微小球、好ましくはペンタン充填膨張性微小球、ガス状空隙、ガラスビーズ、ガラス微小球、ガラスバブル、及びこれらの任意の組合せ又は混合物からなる群から選択される、粒状充填材料を更に含む、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0233】

項目34は、粒状充填材料が、膨張性微小球、ガラスバブル、及びこれらの任意の組合

10

20

30

40

50

せ又は混合物からなる群から選択される、項目 3 3 に記載の多層接着剤アセンブリである。

【0 2 3 4】

項目 3 5 は、感圧接着剤ポリマー発泡体層が、感圧接着剤ポリマー発泡体の総重量に基づいて、20重量%～80重量%、20重量%～70重量%、25重量%～60重量%、30重量%～60重量%、又は更には35重量%～60重量%のゴム系エラストマー材料を含む、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0 2 3 5】

項目 3 6 は、感圧接着剤ポリマー発泡体層が、感圧接着剤ポリマー発泡体の総重量に基づいて、20重量%～70重量%、25重量%～60重量%、又は更には25重量%～50重量%の炭化水素粘着付与剤を含む、項目 2 1～3 5 のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

10

【0 2 3 6】

項目 3 7 は、感圧接着剤ポリマー発泡体層が、感圧接着剤ポリマー発泡体の総重量に基づいて、1重量%～40重量%、2重量%～30重量%、5重量%～30重量%、又は更には10重量%～25重量%のポリマー可塑剤、特にポリイソブチレン可塑剤を含む、項目 2 6～3 6 のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0 2 3 7】

項目 3 8 は、感圧接着剤ポリマー発泡体層が、

a) 感圧接着剤ポリマー発泡体の総重量に基づいて、20重量%～80重量%、20重量%～70重量%、25重量%～60重量%、30重量%～60重量%、又は更には35重量%～60重量%のゴム系エラストマー材料と、

20

b) 任意に、感圧接着剤ポリマー発泡体の総重量に基づいて、20重量%～70重量%、25重量%～60重量%、又は更には25重量%～50重量%の炭化水素粘着付与剤と、

c) 任意に、感圧接着剤ポリマー発泡体の総重量に基づいて、1重量%～40重量%、2重量%～30重量%、5重量%～30重量%、又は更には10重量%～25重量%のポリマー可塑剤、特にポリイソブチレン可塑剤と、

d) 任意に、感圧接着剤ポリマー発泡体の重量に基づいて、2重量%～30重量%、2重量%～20重量%、又は更には2重量%～15重量%の、好ましくは膨張性微小球及びガラスバブルの群から選択される粒状充填材料と、を含む、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

30

【0 2 3 8】

項目 3 9 は、感圧接着剤ポリマー発泡体層が、ポリ（メタ）アクリレート（実質的に）含まない、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0 2 3 9】

項目 4 0 は、感圧接着剤ポリマー発泡体層が、任意の架橋添加剤、特に多官能性（メタ）アクリレート化合物を（実質的に）含まない、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0 2 4 0】

項目 4 1 は、感圧接着剤ポリマー発泡体層が、架橋添加剤、特に多官能性（メタ）アクリレート又は多官能性マレイミド化合物を更に含む、項目 1～3 9 のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

40

【0 2 4 1】

項目 4 2 は、感圧接着剤ポリマー発泡体層が、100～6000マイクロメートル、400～3000マイクロメートル、又は更には800～2000マイクロメートルの範囲の厚さを有する、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0 2 4 2】

項目 4 3 は、感圧接着剤ポリマー発泡体層が、第 1 の主面及び第 2 の主面を有し、熱活性化可能な接着剤樹脂層が、感圧接着剤ポリマー発泡体層の第 1 の主面と直接接触して（結合して）おり、多層感圧接着剤アセンブリが、感圧接着剤ポリマー発泡体層の第 2 の主面に結合された第 2 の感圧接着剤層を更に含む、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤

50

アセンブリである。

【0243】

項目44は、感圧接着剤ポリマー発泡体層、熱活性化可能な接着剤樹脂層及び第2の感圧接着剤層のホットメルト共押出によって得られ、第2の感圧接着剤層が、好ましくは、感圧接着剤ポリマー発泡体層の第2主面と直接接触しており、感圧接着剤ポリマー発泡体層の第2の主面と、感圧接着剤ポリマー発泡体層の第2の主面に直接接触している第2の感圧接着剤層の表面とが、化学的又は物理的接着促進表面処理を（実質的に）含まない、項目43に記載の多層接着剤アセンブリである。

【0244】

項目45は、第2の感圧接着剤層が、ゴム系エラストマー材料、ポリアクリレート、ポリウレタン、ポリオレフィン、ポリアミド、ポリエステル、ポリエーテル、ポリイソブチレン、ポリスチレン、ポリビニル、ポリビニルピロリドン、シリコーン、及びこれらの任意の組み合わせ、コポリマー、又は混合物からなる群から選択されるポリマー系材料を含む、項目43又は44に記載の多層接着剤アセンブリである。

10

【0245】

項目46は、第2の感圧接着剤層が、ゴム系エラストマー材料からなる群から選択されるポリマー系材料を含む、項目45に記載の多層接着剤アセンブリである。

【0246】

項目47は、第2の感圧接着剤層が、項目11～42のいずれかに記載の組成を有する、項目46に記載の多層接着剤アセンブリである。

20

【0247】

項目48は、第2の感圧接着剤層が、式 $L-(G)_m$ の直鎖状ブロックコポリマー〔式中、Lは、重合オレフィン、重合共役ジエン、重合共役ジエンの水素化誘導体、又はこれらの任意の組合せを含むゴム状ブロックであり、各Gは、重合モノビニル芳香族モノマーを含むガラス状ブロックであり、mは1又は2である〕を更に含む、項目47に記載の多層接着剤アセンブリである。

【0248】

項目49は、直鎖状ブロックコポリマーのゴム状ブロックが、イソプレン、ブタジエン、エチルブタジエンコポリマー、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択される共役ジエンを含む、項目48に記載の多層接着剤アセンブリである。

30

【0249】

項目50は、直鎖状ブロックコポリマーのゴム状ブロックが、イソプレン、ブタジエン、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択される共役ジエンを含む、項目48又は49に記載の多層接着剤アセンブリである。

【0250】

項目51は、直鎖状ブロックコポリマーのうちの少なくとも1つのガラス状ブロックが、スチレン、スチレン相溶性ブレンド、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択されるモノビニル芳香族モノマーである、項目48～50のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0251】

項目52は、直鎖状ブロックコポリマーが、2つのガラス状ブロックを含む、項目48～51のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

40

【0252】

項目53は、直鎖状ブロックコポリマーが、スチレンーイソブレンーすチレン、スチレンーブタジエンーすチレン、スチレンーエチレンーブタジエンーすチレン、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択される、項目48～52のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0253】

項目54は、直鎖状ブロックコポリマーが、スチレンーイソブレンーすチレンブロックコポリマーである、項目48～53のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

50

【0254】

項目55は、第2の感圧接着剤層が、実験セクションに記載された環球法により測定した場合、好ましくは、少なくとも150℃、少なくとも155℃、少なくとも160℃、少なくとも165℃、少なくとも170℃、少なくとも180℃、少なくとも190℃、又は更には少なくとも200℃の軟化点値(RBSP)を有するガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂を更に含む、項目48～54のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0255】

項目56は、ガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂が、少なくとも100℃、少なくとも110℃、少なくとも120℃、少なくとも130℃、少なくとも140℃、少なくとも150℃、又は更には少なくとも160℃のガラス転移温度(T_g)を有する、項目55に記載の多層接着剤アセンブリである。

10

【0256】

項目57は、ガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂が、1,000～9,500 g/mol、又は更には2,000～9,000 g/molの範囲の重量平均分子量M_wを有する、項目55又は56に記載の多層接着剤アセンブリである。

【0257】

項目58は、ガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂が、本質的に炭化水素芳香族樹脂である、項目55～57のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0258】

項目59は、ガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂が、炭化水素芳香族樹脂、アリーレンオキシド樹脂、C9系炭化水素芳香族樹脂、C9系水素添加炭化水素芳香族樹脂、ポリアリーレンオキシド樹脂、特にポリフェニレンオキシド又はポリフェニレンエーテル、インデンクマロン樹脂、C9と無水マレイン酸とのコポリマーに基づく芳香族樹脂、及びこれらの任意の組み合わせ又は混合物からなる群から選択される、項目55～58のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

20

【0259】

項目60は、ガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂が、炭化水素芳香族樹脂、アリーレンオキシド樹脂、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択される、項目55～59のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0260】

項目61は、ガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂が、C9系炭化水素芳香族樹脂、C9系水素添加炭化水素芳香族樹脂、ポリアリーレンオキシド樹脂、特に、ポリフェニレンオキシド、又はポリフェニレンエーテルからなる群から選択される、項目55～60のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

30

【0261】

項目62は、ガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂が、C9系炭化水素芳香族樹脂の群から選択される、項目55～61のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0262】

項目63は、ガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂が、ポリフェニレンオキシド、又はポリフェニレンエーテルの群から選択される、項目55～62のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

40

【0263】

項目64は、ガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂が、実験セクションに記載された重量減少試験法に従って熱重量分析により測定した場合、1000 ppm未満、800 ppm未満、600 ppm未満、500 ppm未満、又は更には400 ppm未満の揮発性有機化合物(VOC)値を有する、項目55～63のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0264】

項目65は、ガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂が、実験セクションに記載された重量減少試験法に従って熱重量分析により測定した場合、1500 ppm未満、1000 ppm

50

m未満、800ppm未満、600ppm未満、又は更には500ppm未満の揮発性フォギング化合物（FOG）値を有する、項目55～64のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0265】

項目66は、第2の感圧接着剤層が、

a) 第2の感圧接着剤の総重量に基づいて、20重量%～80重量%、20重量%～70重量%、25重量%～60重量%、30重量%～60重量%、又は更には35重量%～60重量%のゴム系エラストマー材料と、

b) 任意に、第2の感圧接着剤の総重量に基づいて、20重量%～70重量%、25重量%～60重量%、又は更には25重量%～50重量%の炭化水素粘着付与剤と、

c) 任意に、第2の感圧接着剤の総重量に基づいて、2重量%～20重量%、4重量%～15重量%、5重量%～12重量%、又は更には5重量%～10重量%のポリマー可塑剤と、

d) 任意に、第2の感圧接着剤の総重量に基づいて、20重量%～80重量%、20重量%～70重量%、25重量%～60重量%、30重量%～60重量%、又は更には35重量%～60重量%の直鎖状ブロックコポリマーと、

e) 任意に、第2の感圧接着剤の総重量に基づいて、0.5～35重量%、1～30重量%、2～25重量%、又は更には5～25重量%のガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂と、を含む、項目43～65のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0266】

項目67は、第2の感圧接着剤層が、微小球、膨張性微小球、好ましくはペンタン充填膨張性微小球、ガス状空隙、ガラスビーズ、ガラス微小球、ガラスバブル、及びこれらの任意の組合せ又は混合物からなる群から選択される充填材料を実質的に含まない、項目43～66のいずれかに記載の多層アセンブリである。

【0267】

項目68は、第2の感圧接着剤層が、20～1500マイクロメートル、20～1000マイクロメートル、20～500マイクロメートル、30～400マイクロメートル、30～250マイクロメートル、40～200マイクロメートル、又は更には50～150マイクロメートルの範囲の厚さを有する、項目43～67のいずれかに記載の多層アセンブリである。

【0268】

項目69は、スキン／コア／スキン多層接着剤アセンブリの形態であり、感圧接着剤ポリマー発泡体層が、多層接着剤アセンブリのコア層であり、熱活性化可能な接着剤樹脂層が、多層接着剤アセンブリの第1のスキン層であり、第2の感圧接着剤層が、多層接着剤アセンブリの第2のスキン層である、項目43～68のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0269】

項目70は、特に化学線、より特定すると電子ビーム照射又はUV照射で架橋されている、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0270】

項目71は、架橋添加剤、特に、多官能性（メタ）アクリレート又は多官能性マレイミド化合物を、より特定すると第2の感圧接着剤層又は熱活性化可能な接着剤樹脂層内に更に含む、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0271】

項目72は、化学的又は物理的接着促進表面処理が、物理的接着促進表面処理からなる群から選択され、特に、コロナ表面前処理、プラズマ表面前処理、誘電体バリア表面前処理、火炎表面前処理、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択される、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0272】

項目73は、化学的又は物理的接着促進表面処理が、化学的接着促進表面処理からなる

10

20

30

40

50

群から選択され、特に、プライミング層、グラフト化中間層、特に（メタ）アクリル酸エステルモノマー又は（メタ）アクリルアミドモノマーに基づく電離放射線グラフト化プライミング層、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択される、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0273】

項目74は、実験セクションに記載された静的剪断試験法に従って70℃で測定した場合、2000分超、4000分超、6000分超、8000分超、又は更には10000分超の静的剪断強度値を有する、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0274】

項目75は、実験セクションに記載された静的剪断試験法に従って90℃で測定した場合、2000分超、4000分超、6000分超、8000分超、又は更には10000分超の静的剪断強度値を有する、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0275】

項目76は、実験セクションに記載された剪断接着損傷温度試験法に従って測定した場合、80℃超、90℃超、100℃超、110℃超、120℃超、又は更には130℃超の剪断接着損傷温度（SAFT）値を有する、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリである。

【0276】

項目77は、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリを含む複合品であって、熱活性化可能な接着剤樹脂層が、感圧ポリマー発泡体層と直接接触する第1の主面と、ゴムシール物品に結合された第2の主面と、を有する、複合品である。

【0277】

項目78は、ゴムシール物品が、外装部品及び内装部品取り付けゴムシール物品及びウェザーストリップゴムシール物品、特に自動車産業で使用するのためのものからなる群から選択される、項目77に記載の複合品である。

【0278】

項目79は、ゴムシール物品が、サンルーフシール、ドリップレールシール、ウォーターボックスシール、トランクシール、挟持保護シール、締付け保護シール、後部窓シール、ヘッドライトシール、及びこれらの任意の組み合わせからなる群から選択される、項目77又は78に記載の複合品である。

【0279】

項目80は、ゴムシール物品が、自動車用途、特に自動車用ドア又は自動車車体における使用のためのウェザーストリップゴムシールである、項目77～79のいずれかに記載の複合品である。

【0280】

項目81は、前記項目のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリを製造する方法であって、感圧ポリマー発泡体層、熱活性化可能な接着剤樹脂層、及び任意に、第2の感圧接着剤層をホットメルト共押出しする工程を含む、方法である。

【0281】

項目82は、

a) ゴム系エラストマー材料、任意に、炭化水素粘着付与剤、任意に、ポリマー可塑剤、及び任意に、粒状充填材料を配合することにより、感圧接着剤ポリマー発泡体層のホットメルト化合物を形成する工程と、

b) 熱活性化可能な層のホットメルト化合物を提供する工程と、

c) 任意に、第2の感圧接着剤層のホットメルト化合物を提供する工程と、

d) 感圧ポリマー発泡体層、熱活性化可能な接着剤樹脂層、及び任意に、第2の感圧接着剤層をホットメルト共押出し、それによりホットメルト共押出多層接着剤アセンブリを形成する工程と、

10

20

30

40

50

e) 任意に、工程 d) で得られたホットメルト共押出多層接着剤アセンブリを、特に、化学線、より具体的には電子ビーム照射によって架橋する工程と、を含む、項目 8 1 に記載の方法である。

【0282】

項目 8 3 は、マルチスクリュートホットメルト押出加工工程、特に二軸ホットメルト押出加工工程又は遊星ローラ押出工程を含む、項目 8 1 又は 8 2 に記載の方法である。

【0283】

項目 8 4 は、工程 d) で得られたホットメルト共押出多層接着剤アセンブリを、化学線、特に電子ビーム照射で架橋する工程を含み、化学線架橋工程が、閉鎖面 (CF) 又は開放面 (OF) 条件のいずれかの下で適用される、項目 8 1 ~ 8 3 のいずれかに記載の方法である。

10

【0284】

項目 8 5 は、ゴムシール複合品を製造する方法であって、

a) 項目 1 ~ 7 6 のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリを提供する工程であって、熱活性化可能な接着剤樹脂層が、感圧ポリマー発泡体層と直接接触する第 1 の主面と、第 2 の主面と、を有する、多層接着剤アセンブリを提供する工程と、

b) ゴムシール物品を、熱活性化可能な接着剤樹脂層の第 2 の主面に熱ラミネートする (heat-laminating) 工程と、を含む、方法である。

【0285】

項目 8 6 は、工業用途、好ましくは内装用途、より好ましくは建設市場用途及び輸送市場用途のための、項目 1 ~ 7 6 のいずれかに記載の多層接着剤アセンブリの使用である。

20

【0286】

項目 8 7 は、輸送市場用途、特に、自動車及び航空宇宙用途、より特定すると、自動車産業用の本体上のテープ式シール、ドア上のテープ式シール、外装部品及び内装部品取り付け、並びにウェザーストリップテープ用途のための、項目 8 6 に記載の使用である。

【実施例】

【0287】

以下の実施例により本開示を更に説明する。これらの実施例は、単に例示目的のみのものであり、添付の特許請求の範囲を限定することを意味するものではない。

【0288】

30

適用される試験方法：

TGA 試験法

TGA (熱重量分析) 測定は、Texas Instruments の Q5000 IR 装置で実施される。試料を白金皿に秤量し、オートサンプラーを用いて装置のオープンに置く。オープンを通る窒素の流量は、25 mL / 分であり、残部の窒素の流量は、10 mL / 分である。温度は 30 °C で平衡化し、15 分間保持する。次いで、60 °C / 分の勾配で温度を 90 °C まで上昇させる。次いで、90 °C を 30 分間保持する。次の工程で、60 °C / 分の勾配で温度を 120 °C まで上昇させる。120 °C を 60 分間保持する。90 °C で 30 分間の減量 (VOC 分析) 及び 120 °C で 60 分間の減量 (FOG 分析) が記録される。

40

【0289】

次いで、温度を 10 °C / 分の勾配で 800 °C まで上昇させることによって、試験を終了する。次いで、温度を 600 °C で平衡化し、オープンを空気でパージし、温度を 10 °C / 分の勾配で 900 °C まで上昇させる。

【0290】

オープンガス放出試験法

原材料試料のガス放出の測定は、選択した原材料 10 g をアルミニウムカップに 0.1 mg の精度で秤量することによって達成する。この工程の前に、0.1 mg の範囲の精度でアルミニウムカップを先に秤量しておく。次いで、秤量した試験試料を強制空気オープン中に 120 °C で 2 時間、又は 160 °C で 2 時間置く。試料をオープンから取り出したら

50

、周囲温度（ $23^{\circ}\text{C} + / - 2^{\circ}\text{C}$ ）で30分間放冷した後、充填したアルミニウムカップを再度秤量する。オープン乾燥前後の試料の減量を計算し、%単位で記録する。

【0291】

VDA試験法278に従った有機排出物の昇温脱離分析

VDA法278は、自動車の内装の製造に使用される非金属のトリム部分からの有機排出物の決定のために使用される試験法である（VDAは、「Verband der Automobilindustrie」の略である。the German Association of Automobilists）。この方法は、排出された有機化合物を以下の2つのグループに分類する。

VOC値－最大 $n-C_{25}$ 揮発性及び半揮発性化合物の合計、並びに

FOG値－ $n-C_{14} \sim n-C_{32}$ 半揮発性及び重質化合物の合計。

【0292】

VOC値及びFOG値の測定のために、 $30\text{mg} + / - 5\text{mg}$ の接着剤試料を空のガラス試料管に直接、秤量する。試料から揮発性及び半揮発性有機化合物をガス流に抽出し、二次トラップに再度集めた後、分析用GCに注入する。VDA278試験のために、本明細書では自動化昇温脱離装置（Markes International Ultra-UNITY system）が使用される。

【0293】

試験法は、以下の2つの抽出段階を含む。

－VOC分析。これは、試料を 90°C で30分間、脱着し、最大 $n-C_{25}$ のVOCを抽出することを要する。この後、試料1g当たりgトルエン当量として各化合物の半定量分析を行う。

－FOG分析。これは、試料を 120°C で60分間、脱着し、 $n-C_{14} \sim n-C_{32}$ の範囲の半揮発性化合物を抽出することを要する。この後、試料1g当たりgヘキサデカン当量として各化合物の半定量分析を行う。

【0294】

表記のVOC値は、1試料当たり2回の測定値の平均である。VDA278試験法に示されるように、より高い値の測定値が結果として示される。FOG値を求めるために、VOC分析後、脱着管に第2の試料を保持し、 120°C まで60分間、再加熱する。

【0295】

$300\text{MM}/\text{分}$ での 90° 剥離試験（FINAT試験方法NO. 2, 8TH EDITION 2009に従う）

本開示による多層感圧接着剤アセンブリの、幅 10mm 及び長さ 120mm 超のストリップを、試料材料から縦方向に切り出す。

【0296】

試験試料の調製のために、熱活性化可能な接着剤樹脂層側を、次の寸法 $22\text{cm} \times 1.6\text{cm}$ 、厚さ 0.13mm を有するコーティングされたアルミニウムストリップ（Alcanから入手可能）で被覆し、2バールの荷重下にて 180°C で10秒間熱プレスした。この工程の間、熱活性化可能な層は熔融し、コーティングされたアルミニウムストリップに接着する。次いで、各アセンブリの感圧接着剤側を、ライナーを除去した後、軽い指圧を使用してきれいな試験パネル上に置く。次に、標準FINAT試験ローラー（重量 6.8kg ）を用いて、試験試料を1秒当たりおよそ 10mm の速度で2回回転させて、接着剤の塊と表面との間に密着接触を得る。感圧接着剤アセンブリストリップを試験パネルに適用した後、試験に先立って周囲室温（ $23^{\circ}\text{C} + / - 2^{\circ}\text{C}$ 、相対湿度 $50\% + / - 5\%$ ）にて24時間、試験試料を滞留させる。

【0297】

剥離試験のために、第1の工程において、Zwick引張試験機（Model Z020、Zwick/Roell GmbH, Ulm, Germanyより市販）の下方可動掴み具に、試験試料を締め付け固定する。多層感圧接着剤フィルムストリップを 90° の角度にて折り返し、その自由端を、 90° 測定に一般に利用される構成において、引張試

10

20

30

40

50

験機の上方掴み具内に把握する。毎分300mmの掴み具分離速度に、引張試験機を設定する。試験結果を、10mm当たりのニュートン(N/10mm)で表す。引用した剥離値は、2回の90°剥離測定値の平均である。

【0298】

500Gによる、70℃又は90℃における静的剪断試験(FINAT試験方法NO. 8、8TH EDITION 2009)

試験は、70℃又は90℃で実施する。試験片を12.7mm×25.4mmの寸法に切り出す。多層アセンブリの熱活性化可能な接着剤樹脂層側を、幅16mmのコーティングされたアルミニウムストリップ(Alcanから入手可能)上に置き、2バールの荷重下にて180℃で10秒間熱プレスした。この工程の間、熱活性化可能な層は熔融し、コーティングされたアルミニウムストリップに接着する。感圧接着剤側を、次の寸法: 50mm×50mm×1mmを有する試験基材パネル(クリアコートCC5)上に適用させる。ループがアルミニウムストリップの自由端で形成され、2つのクランプで固定する。

【0299】

次に、標準FINAT試験ローラー(重量6.8kg)を用いて、試験試料を1秒当たりおよそ10mmの速度で2回回転させて、接着剤の塊と表面との間に密着接触を得る。感圧接着剤アセンブリストリップを試験パネルに適用した後、試験に先立って周囲室温(23℃+/-2℃、相対湿度50%+/-5%)にて24時間、試験試料を滞留させる。

【0300】

次いで、自動時間記録計を備える70℃又は90℃の垂直な剪断スタンド(+2°の配置)に各試料を入れる。オープンに10分滞留させた後、アルミニウムプレートの孔の中に500gの重りを掛ける。損傷までの時間を測定し、分単位で記録する。目標値は10,000分である。1つの試験片につき、2つの試料を測定する。「10000+」という記録時間は、接着剤が10000分後に損傷しないことを示す。

【0301】

環球法

ガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂の軟化点値は、試験法ASTM E28-14に従って求められる。

【0302】

剪断接着損傷温度(SAFT)

SAFT試験のための試料調製は、70℃又は90℃での静的剪断試験について上述した通りである。試験片をプログラム可能な空気強制オープンに吊るし、500gの重りをループに吊るす。開始温度は23℃であり、温度は、130℃に達するまで1時間毎に10℃上昇させる。重量低下の温度を℃で記録する。

【0303】

試験に使用される試験基材:

本開示による多層感圧接着剤の接着剤及びアセンブリを、次の自動車用クリアコートパネル:PPG Industriesから入手可能なCeramiClear5(「CC5」)コーティングパネル上のそれらの接着特性について試験する。

【0304】

上に列挙した自動車用クリアコートとしては、アクリル樹脂及びポリエステルが挙げられ、これらは単独で、あるいはヒドロキシ官能基若しくはグリシジル官能基又はカルバミン酸残基(基)を含むコポリマー、又はアクリル酸エステル及びメタクリル酸エステルとヒドロキシル基、遊離酸基、及び更なるモノマー(例えば、スチレン)とのコポリマーの混合物と一緒に使用される。パネルを、90°剥離強度及び剪断試験に先立って、必要な寸法に切断する。

【0305】

試験前に、自動車のクリアコートでコーティングしたパネルを、イソプロピルアルコールと蒸留水との1:1の混合物で洗浄する。次いで、試験パネルをティッシュペーパーで拭いて乾燥させる。

10

20

30

40

50

【0306】

使用する原材料：

使用される原材料及び市販の接着テープを、下記の表1にまとめる。

【0307】

【表1】

名称	説明	供給元
EX4011	1100マイクロメートルの厚さの黒色アクリル発泡体テープ	3M
GTE6212	1200マイクロメートルの厚さの黒色アクリル発泡体テープ	3M
ACX 7065	1200マイクロメートルの厚さの黒色アクリル発泡体テープ	Tesa
Kraton D1340	多モード非対称SIS星形ブロックコポリマー	Kratonポリマー
Kraton D1161	直鎖状ブロックコポリマー(15%スチレン、19%ジブロック)	Kratonポリマー
Escorez 1304	脂肪族炭化水素樹脂	Exxon Mobil
Escorez 5340	脂環式炭化水素樹脂	Exxon Mobil
Escorez 5320	脂環式炭化水素樹脂	Exxon Mobil
Escorez 5615	脂肪族/芳香族炭化水素樹脂	Exxon Mobil
Regalite R9100	部分水素化樹脂	Eastman
Regalite R1090	完全水素化樹脂	Eastman
Regalite 1125	完全水素化樹脂	Eastman
Piccotac 1020E	液状脂肪族系炭化水素樹脂	Eastman
Novares C120	インデンクマロン樹脂	Ruttgers
Novares C140	インデンクマロン樹脂	Ruttgers
Novares T140M	ガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂; 140℃のRBSP	Ruttgers
Novares TN170	ガラス状ブロック相溶性芳香族樹脂; 170℃のRBSP、120℃のTg	Ruttgers
Plastolyn R 1140	完全水素化樹脂	Eastman
Nyplast 222B	鉱油	Nynas
Glissopal 1000	Mw=1600g/molのポリイソブチレン	BASF
Glissopal V1500	Mw=4140g/molのポリイソブチレン	BASF
Oppanol B10N	Mw=36000g/molのポリイソブチレン	BASF
Oppanol B12N	Mw=51000g/molのポリイソブチレン	BASF
EMS FN100MD	膨張性微小球	Lehmann & Voss
Irganox 1010	熱安定剤	BASF
Renol Schwarz	EVA中のカーボンブラックマスターバッチ	Clariant

表1：原材料の一覧

【0308】

低VOCに関する原材料のスクリーニング：

あらかじめガス放出挙動及び熱安定性に関して原材料をスクリーニングするために、前述の試験法の部分に記載のオープンガス放出試験を、120℃及び160℃で実施する。結果を下記の表2に示す。

【0309】

【表2】

原材料	120℃、2時間の減量(%)	160℃、2時間の減量(%)
Regalite 9100	0.15	2.53
Regalite 1090	0.25	4.99
Escorez 5615	0.04	0.21
Escorez 1304	0.06	0.52
Piccotac 1020E	0.20	1.12
Oppanol B10N	0.05	0.22
Oppanol B12N	-	0.07

表2

【0310】

表2において、粘着付与炭化水素樹脂Escorez 5615及びEscorez 1304は、120℃で非常に低いガス放出を示し、160℃で非常に良好な熱安定性を示す。対照的に、Regalite R9100及びR1090は、120℃でより高いガス放出挙動を示し、160℃で有意な減量を示す。160℃における減量は、ホットメル

ト型プロセスにおいて高温で加工されたときの原材料の熱安定性及び挙動の良好な指標を提供する。

【0311】

可塑剤に関しては、ポリイソブチレン樹脂Oppanol B10N及びB12Nの両方は、液体炭化水素樹脂Piccotac 1020Eと比較したとき、非常に低いガス放出挙動を示し、160℃で優れた熱安定性を示す。これらの知見に基づいて、低VOC挙動に関する事前選択が想定され得る。

【0312】

改善した低VOC挙動に関する原材料のプレスクリーニングの別の方法は、上述の試験法の項に記載のTGA（熱重量分析）測定によるものである。TGA測定の結果は下記の表3に見出され、値は2回の測定の平均である。これらにはまた、既存で市販のアクリル系接着剤ベースの発泡体テープとの比較も含まれる。

【0313】

【表3】

原材料	90℃、30分の減量(ppm)	120℃、60分の減量(ppm)
ACX 7065	1974±13	5732±112
Kraton D1340	326±76	234±99
Kraton D1161	669±47	253±101
Regalite 9100	1353±223	10905±1325
Regalite 1090	2409±457	20792±284
Regalite 1125	1472±134	2037±296
Escorez 1304	296±64	1476±155
Escorez 5615	258±153	727±180
Escorez 5340	335±35	590±43
Escorez 5320	334±1	1124±68
Plastolyn R1140	344±15	541±10
Novares C120	1000±29	5849±116
Novares C140	757±2	1376±113
Nyplast 222B	1225±231	16817±1664
Glissopal 1000	8730±622	18363±658
Glissopal V1500	2310±148	4419±206
Oppanol B10N	558±75	1707±274
Oppanol B12N	285±34	538±25

表3

【0314】

表3から、重量平均分子量Mwに関係するポリマー可塑剤のガス放出の違いを、更に確認できる。51000g/molのポリイソブチレン可塑剤Oppanol B12Nのガス放出は90℃及び120℃において非常に低いのに対し、ポリイソブチレンの重量平均分子量Mwがそれぞれ1600及び4140g/molであるGlissopal 1000及びV1500は、非常に高い量の揮発性有機化合物を有する。

【0315】

現在市販されているアクリル系PSA発泡体テープは、TGA試験方法で分析したときに、高レベルのVOC及びFog値を示す。アクリル系PSA発泡体テープACX 7065は、90℃で30分後に1974ppmの減量、及び120℃で更に60分後に5732ppmの減量を有する。

【0316】

オープンガス放出試験結果とTGA試験結果の組合せは、低VOC多層感圧接着剤アセンブリの原材料の好ましい選択を明確に示す。

【0317】

調製例（三層共押出PSAアセンブリ）：

第2の感圧接着剤層

（「スキン層」）の調製

表4に記載されるような組成を有する感圧スキン接着剤配合物を、11個の加熱ゾーン

及び46のL/D（長さ／直径）比を有する25mmの共回転二軸押出機（Werner & Pfleiderer, Stuttgart, Germany製のZSK25）中で配合する。

【0318】

【表4】

	スキン1 (S1)		スキン2 (S2)		スキン3 (S3)	
Kraton D1340	31.85	ブレンド 1	31.85	ブレンド 1	31.85	ブレンド 1
Kraton D1161	13.65		13.65		13.65	
Irganox 1010	1.35		1.35		1.35	
Escorez 5615	36.50		36.50		44	
Novares TN170	7.50		—		—	
Novares T140M	—		7.50		—	
Oppanol B12N	7.35		7.35		7.35	

表4

【0319】

第2の感圧接着剤層（「スキン層」）を作製するための温度プロファイル及び押出条件は、スキン層1～3について表5に記載されている。これらのスキン層を製造するために、二軸押出機のスクリュウ速度を300rpmに設定する。

【0320】

第1の工程では、Kraton D1340、Kraton 1161及びIrganox 1010を、混転ミキサー内でブレンドして、結果としてブレンド1を得る。次いで、ブレンド1を、K-Tronからのロスインウェイト式二軸フィーダー（loss in weight twin screw feeder）を使用して、ゾーンZ2で二軸押出機に供給する。粘着付与剤樹脂Escorez 5615を、Brabenderから入手可能なロスインウェイト式スクリュウフィーダーを同様に使用して、ゾーンZ2で添加する。Novares TN170及びT140Mを、Brabenderからのロスインウェイト式フィーダー及びCoperionからの側方スタッパーを使用して、ゾーン4に供給する。Oppanol B12Nを、20Lドラム式アンローダ（Robatech RMC20として入手可能）を使用してゾーンZ6に供給する。

【0321】

【表5】

ゾーン(バレル)	温度 (°C)	説明
Z1	50	
Z2	30	ブレンド1(Kraton1340、Kraton 1161、Irganox1010)及びEscorez 5615の供給
Z3	50	
Z4	130	側方スタッパーを有するロスインウェイト式フィーダーを用いたNovares TN170及びT140Mの供給。
Z5	160	
Z6	160	ドラム式アンローダRMC 20を使用するOppanol B12Nの供給
Z7	160	
Z8	160	
Z9	160	
Z10	160	
Z11	160	
ギアポンプ	165	
ホース	170	
三層ダイの外側チャンネル	160	三層接着剤アセンブリのコーティング

表5

【0322】

PSAポリマー発泡体層

感圧接着剤ポリマー発泡体層配合物を表 6 に記載し、13 個の加熱ゾーン及び 46 の L / D（長さ / 直径）比を有する 26 mm の共回転二軸押出機（Werner & Pfleiderer, Stuttgart, Germany 製の ZSK 25）中で配合する。

【0323】

【表 6】

	発泡体 1	
Kraton D1340	45	ブレンド 2
Irganox 1010	1.35	
カーボンブラック MB	0.40	
Escorez 5615	40	
Oppanol B12N	15	
EMS	3.25	

表 6

【0324】

発泡体 1 の作製についての押出成形機の温度プロファイル及び押出条件は、後に表 7 に記載される。二軸押出機は、370 rpm の速度で操作される。第 1 の工程では、Kraton D1340 を、Irganox 1010 及びカーボンブラック MB と、混転ミキサー内でブレンドして、結果としてブレンド 2 を得る。次いで、ブレンド 2 を、ロスインウェイト式フィーダー（Brabender）を使用して、ゾーン Z1 で二軸押出機に供給する。炭化水素粘着付与剤樹脂 Escorez 5615 を、Brabender から入手可能なロスインウェイト式スクリュウフィーダーを同様に使用して、ゾーン Z1 で添加する。ゾーン Z6 では、可塑剤 Oppanol B12N を、20 L ドラム式アンローダ（SM Klebetechnik からの GX 23）を使用して供給する。次いで、膨張性微小球 FN100MD を、ロスインウェイト式二軸フィーダー（Brabender の MiniTwin）によって供給された、Werner & Pfleiderer からの側方スタッパーを介してゾーン Z10 に最終的に添加する。押出機とダイとの間で、接着剤溶融物は（150℃で）加熱したホースを通してギアポンプ（150℃）によって計量し、それは押出機とダイとの間に接合点を形成する。コーティングダイの温度を、160℃に設定する。膨張性微小球を、三層ダイを押出線の端部に通過させた後のみ膨張させ、三層多層感圧アセンブリをもたらす。

【0325】

10

20

30

40

50

【表 7】

ゾーン(バレル)	温度(°C)	説明
Z1	40	Brabenderからのロスインウェイト式二軸フィーダーを使用して、ブレンド2(Kraton D1340、Irganox 1010及びカーボンブラックMB)の供給。Brabenderからのロスインウェイト式フィーダーを使用するEscorez 5615の供給。
Z2	50	
Z3	70	
Z4	120	
Z5	140	
Z6	150	20Lドラム式アンローダ(SM KlebetechnikからのGX23)を使用するOppanol B12Nの供給。
Z7	150	
Z8	150	
Z9	150	
Z10	150	Brabenderからのグラビメトリックロスインウェイト式二軸フィーダー及びWerner & Pfleidererからの二軸側方スタッパーを使用するEMS FN100MDの供給。
Z11	120	
Z12	120	
Z13	120	
ギアポンプ	150	
ホース	150	
三層ダイの中間チャンネル	160	微小球のコーティング及び膨張

表 7

【0326】

熱活性化可能な接着剤層(H1)

熱活性化可能な接着剤層(H1)は、22mmの直径及び26のL/D比を有する標準的な単軸押出機によって押し出される衝撃ポリプロピレン(Exxon Mobileから市販されているPP7035E4)である。単軸押出機には、5つの加熱ゾーンが設けられている。熱活性化可能な接着剤層を作製するための温度プロファイル及び押出条件を、表8に記載する。押出機のスクリュウ速度を74rpmに設定し、4.3kg/時の熔融スループットをもたらす。ポリプロピレン溶融物は、三層マニホールダイの第2の外側チャンネルを通過する。

【0327】

【表 8】

ゾーン(バレル)	温度(°C)
Z1(ホッパー)	冷却
Z2	180
Z3	220
Z4	220
Z5	220
ホース	220
三層ダイの外側チャンネル	160

表 8

【0328】

調製例

本開示による多層接着剤アセンブリ(実施例1~3)として、三層の共押出テープを、熱活性化可能な接着剤樹脂層と、第2の感圧接着剤層とを、三層マルチマニホールフィルムダイに通してポリマー発泡体層の対向する両側面に共押出しすることによって調製する。三層共押出感圧接着剤アセンブリを、キャストイングロールと、第2のチルロールによって取り込まれたシリコーン処理PETライナーとの間でキャストイングする。チルロールは、約13°Cの温度で水により冷却される。共押出接着剤アセンブリを冷却すると、

シリコンコーティングされたPETライナーに接着し、巻き取りステーションで巻き上げられる。三層共押出接着剤アセンブリは、既に、巻き取られたときに十分な寸法安定性を有し、追加のインライン電子ビーム架橋が任意に検討された。

【0329】

機械的試験に使用される三層接着剤アセンブリの実施例は、下記の表9に記載されている。本明細書では、三層共押出感圧接着剤アセンブリは、開放面電子ビーム照射条件（OF）に曝露される。これらの条件下で、多層アセンブリは、第1の感圧接着剤層の上の剥離ライナーを除去した後、両面から電子ビームが放たれる。電子ビーム照射は、両面から250kVの加速張力及び80kGyの線量で行われる。

【0330】

表9は、熱活性化可能な接着剤樹脂層（HAAL）が以下のように積層された、2つの比較のプライマーされていないラミネート接着剤アセンブリ(unprimed laminated adhesive assemblies)（CE1～CE2）を更に含む：

1）HAALが、三層のEX4011の両面アクリル発泡体テープ（比較例CE1）のVR1側にラミネートされており(laminated)、

2）HAALが、アクリル系ポリマー発泡体層、二層GTE6212片面コーティングアクリル発泡体テープ上に直接ラミネートされている(laminated)（比較例CE2）。

【0331】

これらのアセンブリは、電子ビーム架橋に曝露されない。

【0332】

【表9】

実施例	「スキン」層	発泡体層	熱活性化可能な層
例1	S1	発泡体1	H1
例2	S2	発泡体1	H1
例3	S3	発泡体1	H1
CE1	上記のようにラミネート		H1
CE2	上記のようにラミネート		H1

表9

【0333】

多層接着剤アセンブリの実施例の機械的試験結果：

90°剥離強度、90℃での静的剪断（SS）、及びSAFT試験結果

実施例の90°剥離試験結果、90℃での静的剪断試験結果、及びSAFT試験結果を以下の表10に示す。

【0334】

【表10】

実施例番号	CC5に対する90°剥離強度(N/cm)	損傷モード	90℃におけるCC5上の静的剪断(分)	損傷モード	SAFT(℃)
実施例1 (共押出)	42	FS	>10000		>130
実施例2 (共押出)	46	FS	>10000		>130
実施例3 (共押出)	32	PO	>10000		>130
比較例1 (ラミネート)	4	2B	33	2B	n.d.
比較例2 (ラミネート)	8	2B	73	2B	n.d.

表10

2Bは、二結合、例えばコアからのHAALの層間剥離(delamination)を示す。

FSは、発泡体の分割を示す。

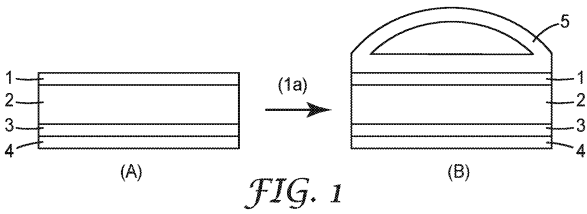
POは、ポップオフを示す。

【 0 3 3 5 】

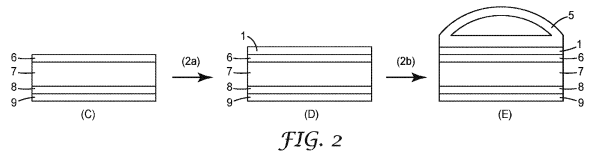
本開示による全ての共押出された実施例の剥離強度、静的剪断、及び S A F T 性能は、自動車用クリアコート（C e r a m i C l e a r 5）上で非常に高い。対照的に、共押出されていないがラミネートされた接着剤アセンブリ (laminated adhesive assemblies) である比較例 C E 1 及び C E 2 については、二結合損傷で数分後に 9 0 ° C の静的剪断試験において構造は不合格であった。これは、熱活性化可能な接着剤層が、高温でコアから層間剥離する (delaminating) ためである。比較例はまた、不良な 9 0 ° 剥離接着性能を示す。

【 図 面 】

【 図 1 】



【 図 2 】



10

20

30

40

50

フロントページの続き

(51)国際特許分類

C 0 9 J 153/02 (2006.01)

F I

C 0 9 J 153/02

(74)代理人 100171701

弁理士 浅村 敬一

(72)発明者 ビーバー, ピエール

ドイツ, ノイス 4 1 4 5 3, カールーシュルツーシュトラッセ 1

(72)発明者 マツァイト, ニクラス

ドイツ, ケルン 5 0 7 3 3, エッシャー ストラッセ 3 0

(72)発明者 ステッグマイヤー, ペトラ

ドイツ, ノイス 4 1 4 5 3, カールーシュルツーシュトラッセ 1

(72)発明者 エックハルト, ドリーン

ドイツ, ノイス 4 1 4 5 3, カールーシュルツーシュトラッセ 1

(72)発明者 ワイド, ロバート ディー.

アメリカ合衆国, ミネソタ州 5 5 1 1 9, メープルウッド ティンバー トレイル イー. 2 3 1 5

(72)発明者 クルーンカー, アイケ

ドイツ, ノイス 4 1 4 5 3, カールーシュルツーシュトラッセ 1

審査官 橋本 栄和

(56)参考文献 特表 2 0 0 3 - 5 2 2 2 4 9 (J P, A)

実開昭 5 5 - 1 1 1 9 3 7 (J P, U)

特表 2 0 1 8 - 5 0 2 1 7 6 (J P, A)

特開 2 0 1 7 - 1 6 0 4 3 2 (J P, A)

特表 2 0 1 6 - 5 0 7 3 9 6 (J P, A)

特開 2 0 0 1 - 2 8 8 4 3 6 (J P, A)

特開平 0 8 - 0 0 3 5 2 3 (J P, A)

特開平 0 6 - 0 1 7 0 1 5 (J P, A)

(58)調査した分野 (Int.Cl., D B名)

C 0 9 J 7 / 3 0

C 0 9 J 7 / 3 8

C 0 9 J 1 2 3 / 0 0

C 0 9 J 1 0 9 / 0 0

C 0 9 J 1 0 7 / 0 0

C 0 9 J 1 5 3 / 0 2