(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号
特許第3558830号
(P3558830)
(45)発行日　平成16年8月25日(2004.8.25)　(24)登録日　平成16年5月28日(2004.5.28)

(51)Int.Cl.[7]	F I
C09J 175/04	C09J 175/04
B29C 47/06	B29C 47/06
B32B 7/12	B32B 7/12
B32B 27/34	B32B 27/34
B32B 27/36	B32B 27/36

請求項の数 1　(全 11 頁)　最終頁に続く

(21)出願番号　特願平9-168446
(22)出願日　平成9年6月25日(1997.6.25)
(65)公開番号　特開平10-72577
(43)公開日　平成10年3月17日(1998.3.17)
審査請求日　平成15年2月12日(2003.2.12)
(31)優先権主張番号　特願平8-166270
(32)優先日　平成8年6月26日(1996.6.26)
(33)優先権主張国　日本国(JP)

(73)特許権者　000001085
株式会社クラレ
岡山県倉敷市酒津１６２１番地
(72)発明者　石黒　通裕
岡山県倉敷市酒津１６２１番地　株式会社クラレ内
(72)発明者　加藤　晋哉
岡山県倉敷市酒津１６２１番地　株式会社クラレ内

審査官　山本　英一

最終頁に続く

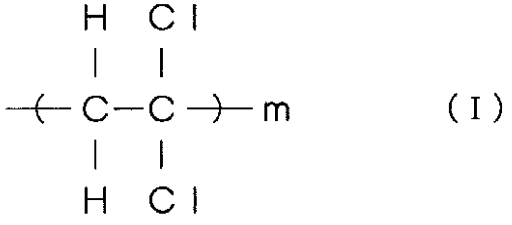
(54)【発明の名称】層間接着剤

(57)【特許請求の範囲】

【請求項１】

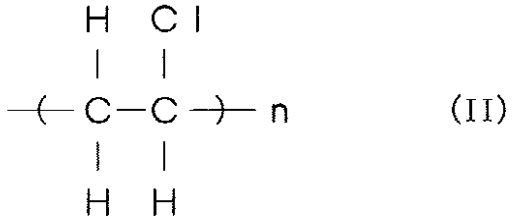
共押出成形法により多層フィルムを製造するに際し、フィルム素材であるポリアミド系ポリマーおよびポリエステル系ポリマーからなる群から選ばれる少なくとも１種類のポリマーと、式（Ｉ）で示される構造単位（Ｉ）および／または式（ＩＩ）で示される構造単位（ＩＩ）を有する塩素含有ビニル系ポリマーとの層間の接着に使用され、かつ平均官能基数ｆが２．００３～２．１である高分子ポリオール単位、有機ジイソシアネート単位および鎖伸長剤単位からなり、測定温度２２０℃、剪断速度１００s^{-1}における溶融粘度ηａが２５０～８００Ｐａ・ｓである熱可塑性ポリウレタンからなることを特徴とする接着剤。

【化１】



（Ｉ）

【化２】



(II)

［但し、ｍおよびｎはそれぞれ塩素含有ビニル系ポリマーの構造単位（Ｉ）および構造単位（ＩＩ）のモル％を表し、ｍ＋ｎ＝１００、０≦ｍ≦１００および０≦ｎ≦１００の関係を有する。］

【発明の詳細な説明】

【０００１】

【発明の属する技術分野】

本発明は、共押出成形法により多層フィルムを製造する際に使用する層間接着剤に関する。

【０００２】

【従来の技術】

従来より包装材料は、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデンなどの塩素含有ポリマーフィルムまたはエバールなどのガスバリアー性ポリマーフィルムと機械的性質に優れたポリアミド系やポリエステル系樹脂フィルム、ヒートシール性に優れたポリエチレンやポリプロピレン系樹脂フィルムなどとの多層構造を有している。多層化に際しては、各フィルム層間の接着が必要であり、従来よりポリウレタン溶液系の接着剤が使用され、特に、塩素含有ポリマーフィルムの接着には２液型のポリウレタン系接着剤が用いられている。また、多層フィルムの素材ポリマーによっては脂肪酸変性オレフィン、エポキシ変性オレフィンなどの接着性樹脂が、共押出成形用の層間接着剤として使用されている。

【０００３】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上記の２液型のポリウレタン系接着剤を使用する場合には、多層化工程で溶剤の大気放出による環境問題が懸念されている。さらに、製造コストの低減化のために、共押出成形法による多層フィルムの製造が望まれているのが実情である。

【０００４】

本発明の目的は、製造工程が簡略化でき、かつ環境への影響の少ない共押出成形法により多層フィルムを製造する際に使用可能な、接着性能、機械的強度、耐熱性、耐寒性、共押出成形性等に優れた層間接着剤を提供することにある。

【０００５】

【課題を解決するための手段】

上記の目的を達成するべく本発明者らが鋭意検討を重ねた結果、塩素含有ビニル系ポリマーとポリアミド系ポリマーまたはポリエステル系ポリマーとの層間接着剤として、構造単位である高分子ポリオール単位が特定の平均官能基数ｆを有しており、かつ特定の溶融粘性を有する熱可塑性ポリウレタンが有用であることを見出し、本発明を完成するに至った。

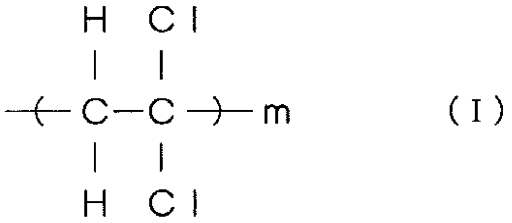
【０００６】

すなわち、本発明は、共押出成形法により多層フィルムを製造するに際し、フィルム素材であるポリアミド系ポリマーおよびポリエステル系ポリマーからなる群から選ばれる少なくとも１種類のポリマーと、式（Ｉ）で示される構造単位（Ｉ）および／または式（ＩＩ）で示される構造単位（ＩＩ）を有する塩素含有ビニル系ポリマーとの層間の接着に使用され、かつ平均官能基数ｆが２．００３～２．１である高分子ポリオール単位、有機ジイ

ソシアネート単位および鎖伸長剤単位からなり、測定温度２２０℃、剪断速度１００ｓ$^{-1}$における溶融粘度ηａが２５０～８００Ｐａ・ｓである熱可塑性ポリウレタンからなることを特徴とする接着剤に関する。

【０００７】

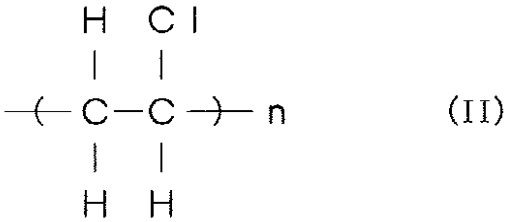
【化３】



（Ｉ）

【０００８】

【化４】



(II)

【０００９】

［但し、ｍおよびｎはそれぞれ塩素含有ビニル系ポリマーの構造単位（Ｉ）および構造単位（ＩＩ）のモル％を表し、ｍ＋ｎ＝１００、０≦ｍ≦１００および０≦ｎ≦１００の関係を有する。］

【００１０】

【発明の実施の形態】

熱可塑性ポリウレタンを構成する高分子ポリオールとしては、ポリエーテル系またはポリエステル系であるのが好ましいが、これらの平均官能基数ｆ（高分子ポリオール１分子当たりの水酸基の数）は２．００３～２．１であることが重要である。かかるｆ値を有する高分子ポリオールは、製造時に官能基の数が３以上の化合物を所定量添加することにより得られる。官能基の数が３以上の化合物としては、例えばトリメチロールプロパン、グリセリン、ペンタエリスリトール等の３官能以上の水酸基含有化合物を使用するのが好ましい。ｆ値が２．００３未満であると、得られる接着剤の接着強力は低く、かかる接着剤が層間接着に使用された多層フィルムには、皺、波打ち、厚み斑等が認められる。ｆ値が２．１を越えると、得られる接着剤を層間接着に使用して多層フィルムを連続成形する場合には、得られる多層フィルムにフィッシュアイなどのブツが発生し、また多層フィルムには皺、波打ち、厚み斑等が認められる。

【００１１】

ポリエーテル系高分子ポリオールとしては、例えばポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリテトラメチレングリコールなどが挙げられる。一方、ポリエステル系高分子ポリオールは、例えばジカルボン酸成分、ジオール成分および上記した３官能以上の水酸基含有化合物から、触媒としてチタン系化合物やスズ系化合物の存在下にエステル化反応を行う通常の方法により製造される。ここで、ジカルボン酸成分としては、例えばコハク酸、アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカン二酸などの脂肪族ジカルボン酸；テレフタル酸、イソフタル酸、フタル酸などの芳香族ジカルボン酸が挙げられ、ジオール成分としては、例えばエチレングリコール、ジエチレングリコール、１，４－ブ

タンジオール、２－メチル－１，３－プロパンジオール、１，６－ヘキサンジオール、１，９－ノナンジオール、３－メチル－１，５－ペンタンジオール、ネオペンチルグリコールなどが挙げられる。これらのジカルボン酸成分およびジオール成分はそれぞれ１種または２種以上の組合わせで用いられる。

【００１２】

そして高分子ポリオールは、熱可塑性ポリウレタンの機械特性、低温特性、共押出成形性の点から数平均分子量が５００～４０００の範囲のものが好ましく、７００～３５００の範囲のものがより好ましい。高分子ジオールの数平均分子量が４０００を越えると、熱可塑性ポリウレタンの共押出成形安定性が悪くなる傾向にあり、また５００未満では熱可塑性ポリウレタンの耐寒性、耐熱性が劣る傾向を呈し、いずれも好ましくない。ここで、数平均分子量はＪＩＳ　Ｋ―１５５７に準拠して測定した水酸基価に基づいて算出した値である。

【００１３】

熱可塑性ポリウレタンを構成する有機ジイソシアネートとしては、通常の熱可塑性ポリウレタンの製造に従来から用いられているいずれもが使用でき、その種類は特に制限されない。分子量５００以下の芳香族ジイソシアネート、脂環式ジイソシアネート、脂肪族ジイソシアネートのうちの１種または２種以上を組合わせて使用するのが好ましい。有機ジイソシアネートとしては、例えば４，４’－ジフェニルメタンジイソシアネート、トリレンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、ジシクロヘキシルメタンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、テトラメチレンジイソシアネートなどが挙げられる。さらに、必要に応じて、トリフェニルメタントリイソシアネートなどの３官能以上のポリイソシアネートを少量併用しても良い。

【００１４】

熱可塑性ポリウレタンを構成する鎖伸長剤としては、通常の熱可塑性ポリウレタンの製造に従来から用いられているいずれもが使用でき、その種類は特に制限されない。そのうちでも、イソシアネート基と反応し得る活性水素原子を分子中に２個有する分子量３００以下の低分子ジオールが好ましい。低分子ジオールとしては、脂肪族ジオール、脂環式ジオールおよび芳香族ジオールのいずれであってもよく、例えば、エチレングリコール、ジエチレングリコール、１，４－ブタンジオール、１，５－ペンタンジオール、２－メチル－１，３－プロパンジオール、１，６－ヘキサンジオール、３－メチル－１，５－ペンタンジオール、ネオペンチルグリコール、１，９－ノナンジオール、２－メチル－１，８－オクタンジオール、シクロヘキサンジオール、シクロヘキサンジメタノール、１，４－ビス（β－ヒドロキシエトキシ）ベンゼンなどが挙げられる。さらに、必要に応じて、トリメチロールプロパン、グリセリン、ペンタエリスリトールなどの３官能以上の低分子ポリオールを少量併用しても良い。

【００１５】

本発明の接着剤を構成する熱可塑性ポリウレタンは、測定温度２２０℃、剪断速度１００s^{-1}における溶融粘度ηａが２５０～８００Ｐａ・ｓであることが必要である。溶融粘度が２５０Ｐａ・ｓ未満であるか８００Ｐａ・ｓを越える場合には、塩素含有ビニル系ポリマーとポリアミド系ポリマーまたはポリエステル系ポリマーとの共押出のバランスが悪く、均一な共押出フィルムは得られない。

【００１６】

熱可塑性ポリウレタンの製造方法は特に制限されないが、高分子ポリオール、有機ジイソシアネートおよび鎖伸長剤を溶融状態で定量ポンプを用いて多軸スクリュー型押出機に供給し、溶融状態で連続的に重合する方法が、重合時の操作性および得られる熱可塑性ポリウレタンの物性などの点から好ましい。

【００１７】

本発明の接着剤を構成する熱可塑性ポリウレタンは、必要に応じて酸化防止剤、耐光安定剤、滑剤、顔料などの添加剤の１種または２種以上を、本発明の効果を損なわない範囲内で含有していてもよい。

【００１８】
本発明の接着剤は、ポリアミド系ポリマーまたはポリエステル系ポリマーと前記の塩素含有ビニル系ポリマーとを共押出して多層フィルムを製造するに際して、層間接着剤として使用される。
【００１９】
ポリアミド系ポリマーとしては、ポリマー主鎖に－ＣＯ－ＮＨ－結合を有し、加熱溶融できるものであれば特に制限されず、例えば、３員環以上のラクタムを開環重合させることによって得られるポリアミド、ω－アミノ酸の重縮合により得られるポリアミド、ジカルボン酸とジアミンとの重縮合により得られるポリアミドなどを挙げることができる。ポリアミドの原料として用いられるラクタムとしては、例えば、ε－カプロラクタム、エナントラクタム、カプリルラクタム、ラウリルラクタム、α－ピロリドン、α－ピペリドンなどを挙げることができる。ω－アミノ酸としては、例えば、６－アミノカプロン酸、７－アミノヘプタン酸、９－アミノノナン酸、１１－アミノウンデカン酸などを挙げることができる。ジカルボン酸としては、マロン酸、ジメチルマロン酸、コハク酸、３，３－ジエチルコハク酸、グルタル酸、２，２－ジメチルグルタル酸、アジピン酸、２－メチルアジピン酸、トリメチルアジピン酸、ピメリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、スベリン酸などの脂肪族ジカルボン酸；１，３－シクロペンタンジカルボン酸、１，４－シクロヘキサンジカルボン酸などの脂環式ジカルボン酸；テレフタル酸、イソフタル酸、２，６－ナフタレンジカルボン酸、２，７－ナフタレンジカルボン酸、１，４－ナフタレンジカルボン酸、１，４－フェニレンジオキシジ酢酸、１，３－フェニレンジオキシジ酢酸、ジフェン酸、４，４’－オキシジ安息香酸、ジフェニルメタン－４，４’－ジカルボン酸、ジフェニルスルホン－４，４’－ジカルボン酸、４，４’－ビフェニルジカルボン酸などを挙げることができる。ジアミンとしては、エチレンジアミン、プロピレンジアミン、１，４－ブタンジアミン、１，６－ヘキサンジアミン、１，８－オクタンジアミン、１，９－ノナンジアミン、１，１０－デカンジアミン、１，１２－ドデカンジアミン、２－メチル－１，５－ペンタンジアミン、３－メチル－１，５－ペンタンジアミン、２，２，４－トリメチル－１，６－ヘキサンジアミン、２，４，４－トリメチル－１，６－ヘキサンジアミン、２－メチル－１，８－オクタンジアミン、５－メチル－１，９－ノナンジアミンなどの脂肪族ジアミン；シクロヘキサンジアミン、メチルシクロヘキサンジアミン、イソホロンジアミンなどの脂環式ジアミン；ｐ－フェニレンジアミン、ｍ－フェニレンジアミン、キシリレンジアミン、４，４’－ジアミノジフェニルメタン、４，４’－ジアミノジフェニルスルホン、４，４’－ジアミノジフェニルエーテルなどの芳香族ジアミンなどを挙げることができる。ポリアミド系ポリマーは極限粘度（９８％濃硫酸を溶媒として測定）が０．５～２．５ｄｌ／ｇのものが好ましく、０．８～２．０ｄｌ／ｇのものがより好ましい。
【００２０】
ポリエステル系ポリマーとしては、実質的にジオール単位およびジカルボン酸単位から構成されるポリマーを用いることができる。ジオール単位としては、例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、１，３－プロパンジオール、１，４－ブタンジオール、１，５－ペンタンジオール、ネオペンチルグリコール、１，６－ヘキサンジオール、１，７－ヘプタンジオール、１，８－オクタンジオール、１，９－ノナンジオール、１，１０－デカンジオール、３－メチル－１，５－ペンタンジオール、２－メチル－１，８－オクタンジオールなどの脂肪族ジオール；シクロヘキサンジメタノール、シクロヘキサンジオールなどの脂環式ジオールから誘導される単位を挙げることができる。ジカルボン酸単位としては、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸などの脂肪族ジカルボン酸；シクロヘキサンジカルボン酸などの脂環式ジカルボン酸；フタル酸、テレフタル酸、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸などの芳香族ジカルボン酸；これらのエステル形成性誘導体などから誘導される単位を挙げることができる。これらのなかでも、ポリエチレンテレフタレートやポリブチレンテレフタレートなどのように、脂肪族ジオール単位および芳香族ジカルボン酸単位からなるものが好ましい。ポリエ

ステル系ポリマーは極限粘度（テトラフルオロエチレンとフェノールの等重量混合液を溶媒として測定）が０．５～０．９ｄｌ／ｇのものが好ましく、０．６～０．７ｄｌ／ｇのものがより好ましい。

【００２１】

前記の塩素含有ビニル系ポリマーとしては、例えばポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデンなどを挙げることができる。これらは重合度が１００～５０００の範囲のものが好ましく、１０００～３０００の範囲のものがより好ましい。塩素含有ビニル系ポリマーは成形加工助剤として通常用いられている、アジピン酸ジオクチル、アゼライン酸ジオクチル、セバシン酸ジオクチル、フタル酸ジブチル、フタル酸ジオクチル、クエン酸アセチルトリブチルなどの可塑剤を含んでいてもよい。

【００２２】

【実施例】

以下、実施例により本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例によって何ら限定されるものではない。

【００２３】

以下の参考例、実施例および比較例では、それぞれの化合物を下記の表１に示す略号で記載する。

【００２４】

【表１】

略　号	化　合　物　名
ＭＰＤ	：３－メチル－１，５－ペンタンジオール
ＢＤ	：１，４－ブタンジオール
ＴＭＰ	：トリメチロールプロパン
ＡＡ	：アジピン酸
ＭＤＩ	：４，４′－ジフェニルメタンジイソシアネート
ＰＶＣ	：ポリ塩化ビニル
ＰＶＤＣ	：ポリ塩化ビニリデン
ＰＡ	：ナイロン６
ＰＥＴ	：ポリエチレンテレフタレート
ＰＯＨ	：高分子ジオール
ＴＰＵ	：熱可塑性ポリウレタン

【００２５】

参考例１～６　　〈ポリエステル系高分子ポリオールの製造〉

下記の表２に示すジカルボン酸成分、ジオール成分およびＴＭＰをモル比で、１対１．１７対｛０．１２２×（ｆ－２）｝となるように反応釜に仕込み、２１０℃の高温下で水を留出させることによりエステル化反応せしめた。水の留出がほぼ停止した時点で、酸価を測定して３０以下であることを確認し、テトライソプロピルチタネートを１５ｐｐｍ添加した。次いで、２２０℃に昇温し、減圧度４０００Ｐａで脱水し、更に減圧度１３０Ｐａ以下で脱グリコール反応によりエステル交換せしめた後、水酸基価を測定し、目標とする数平均分子量であることを確認した。次いで、１００℃に保ち、３％の水を加え、２時間撹拌後、減圧にして水を除去して所望のポリエステル系高分子ポリオールを得た。得られたポリエステル系高分子ポリオールの数平均分子量を併せて下記の表２に示す。

【００２６】

【表２】

例	略号	f値	ジオール成分	ジカルボン酸成分	数平均分子量
参考例1	POH－1	2.01	MPD	AA	2000
参考例2	POH－2	2.03	MPD	AA	2000
参考例3	POH－3	2.05	MPD	AA	2000
参考例4	POH－4	2.03	BD	AA	2000
参考例5	POH－5	2.00	MPD	AA	2000
参考例6	POH－6	2.20	MPD	AA	2000

【００２７】
下記の実施例および比較例において、熱可塑性ポリウレタンの溶融粘度の測定、共押出成形性および積層体の接着強力の評価は以下の方法で行った。
【００２８】
〈溶融粘度の測定〉
熱可塑性ポリウレタンペレットを、９０℃の温度で減圧乾燥機にて乾燥し、次いで、高下式フローテスター［（株）島津製作所製］にて、測定温度２２０℃、予熱時間３６０秒、ダイス口径が１mm、ダイス厚みが１０mm、荷重０．９８～４．９MPaの条件で数点測定して、グラフ上から剪断速度１００s^{-1}における溶融粘度（Pa・s）を求めた。
【００２９】
〈共押出成形性の評価〉
塩素含有ビニル系ポリマーとしては信越化学工業（株）製のポリ塩化ビニルＴＫ－５００またはｓｏｌｖａｙ社製のポリ塩化ビニリデンＩＸＡＮ　ＰＶ８９２を、ポリアミド系ポリマーとしては宇部興産（株）製のＵＢＥナイロン３０３５ＪＵ６を、ポリエステル系ポリマーとしては、（株）クラレ製のクラペット１０３０を使用し、下記の実施例または比較例で得られた熱可塑性ポリウレタンを用い、それぞれのポリマーを溶融状態にて共押出機より押出し、ダイス部から、ポリアミド系ポリマーまたはポリエステル系ポリマー層（６０μm）／熱可塑性ポリウレタン層（２０μm）／塩素含有ビニル系ポリマー層（６０

μｍ）の順に積層した３層構造の共押出積層体を得た。それぞれのポリマーの押出最高温度は、塩素含有ビニル系ポリマーが１９０℃、ポリアミド系ポリマーが２４０℃、ポリエステル系ポリマーが２６０℃、熱可塑性ポリウレタンが２１５℃とした。積層体の厚みの均一性を、皺、波打ち、１０％以上の厚み斑の何れかが認められた場合に「×」と評価し、平滑な積層体が得られた場合に「○」と評価した。また、共押出成形の連続運転性を、共押出成形を３時間継続して実施した後に得られる積層体にフィッシュアイなどの直径１０μ以上のブツが確認された場合に「×」と評価し、ブツが認められなった場合に「○」と評価した。

【００３０】

〈積層体の接着強力の評価〉

上記の積層体を１０ｍｍ×１００ｍｍの短冊状に切り出し、端部をジメチルホルムアミド中に３時間浸漬して剥離させ、引張試験機にてＴ剥離強度を測定した（測定温度：２３℃、湿度：６５％ＲＨ、剥離スピード：２００ｍｍ／分）。Ｔ剥離強度が５００ｇ／ｃｍ以上であった場合に「○」と評価し、５００ｇ／ｃｍ未満の場合に「×」と評価し、積層体の厚み斑が大きく測定不能であった場合に「－」と表記した。

【００３１】

実施例１

体積計量ポンプを用いて溶融状態のＰＯＨ－１、ＭＤＩおよびＢＤを表３に示すモル比でそれぞれ同方向２軸押出機（プラスチック工学研究所（株）製「ＢＰ－３０－Ｓ」、φ３０ｍｍ、スクリュー長さ１０８０ｍｍ）に連続的に供給し、２３０～２６０℃の温度で溶融重合し、押出機の先端部からストランド状に押出し、水冷してペレット状に切断した。次いで、得られたペレットを８０℃で５時間乾燥し、熱可塑性ポリウレタンを得た。得られた熱可塑性ポリウレタンの溶融粘度の測定、共押出成形性および積層体の接着強力の評価を上記の方法により行った。それらの結果を表３に示す。

共押出成形性の評価では、平滑で、かつ長時間運転してもブツなどの発生がない良好な積層体を得ることができた。

【００３２】

実施例２～４

実施例１と同様にしてポリエステル系高分子ポリオール、ＭＤＩおよびＢＤを表３に示すモル比でそれぞれ溶融重合し、ペレット化し、熱可塑性ポリウレタンを得た。得られた熱可塑性ポリウレタンの溶融粘度の測定、共押出成形性および積層体の接着強力の評価を同様にして行った。それらの結果を表３に示す。共押出成形性の評価では、いずれも良好な積層体を得ることができた。

【００３３】

比較例１および３

実施例１と同様にして高分子ポリオール、ＭＤＩおよびＢＤを表３に示すモル比でそれぞれ溶融重合し、ペレット化し、熱可塑性ポリウレタンを得た。得られた熱可塑性ポリウレタンの溶融粘度の測定、共押出成形性および積層体の接着強力の評価を同様にして行った。それらの結果を表３に示す。共押出成形性の評価では、いずれも積層体全体に皺が寄り、良好な積層体を得ることができなかった。

【００３４】

比較例２および４

実施例１と同様にして高分子ポリオール、ＭＤＩおよびＢＤを表３に示すモル比でそれぞれ溶融重合し、ペレット化し、熱可塑性ポリウレタンを得た。得られた熱可塑性ポリウレタンの溶融粘度の測定、共押出成形性および積層体の接着強力の評価を同様にして行った。それらの結果を表３に示す。共押出成形性の評価では、いずれも熱可塑性ポリウレタンの吐出安定性が不良で、積層体の厚み変動が大きく筋状の皺が入り、かつ成形開始後３時間で熱可塑性ポリウレタン層中にブツの発生も認められ、良好な積層体を得ることができなかった。

【００３５】

比較例５
実施例１と同様にして高分子ポリオール、ＭＤＩおよびＢＤを表３に示すモル比でそれぞれ溶融重合し、ペレット化し、熱可塑性ポリウレタンを得た。得られた熱可塑性ポリウレタンの溶融粘度の測定、共押出成形性および積層体の接着強力の評価を同様にして行った。それらの結果を表３に示す。共押出成形性の評価では、熱可塑性ポリウレタンの吐出安定性が不良で、積層体の厚み変動が大きく、かつ成形開始後１０分間で熱可塑性ポリウレタン層中にブツの発生も認められ、良好な積層体を得ることができなかった。
【００３６】
【表３】

例	熱可塑性ポリウレタン			共押出成形性		積層体の接着強力		
	POH 種類 (f値)	POH / MDI / BD (モル比)	溶融粘度 (Pa・s)	厚み均一性	連続運転性	PVC/TPU/PA	PVDC/TPU/PA	PVDC/TPU/PET
実施例1	POH-1 (2.01)	1.0 / 4.3 / 3.3	430	○	○	○	○	○
実施例2	POH-2 (2.03)	1.0 / 3.3 / 2.3	450	○	○	○	○	○
実施例3	POH-3 (2.05)	1.0 / 2.3 / 1.3	500	○	○	○	○	○
実施例4	POH-4 (2.03)	1.0 / 3.4 / 2.4	550	○	○	○	○	○
比較例1	POH-1 (2.01)	1.0 / 2.2 / 1.2	210	×	○	−	−	−
比較例2	POH-3 (2.05)	1.0 / 5.2 / 4.2	1000	×	×	−	−	−
比較例3	POH-5 (2.00)	1.0 / 4.3 / 3.3	200	×	○	×	×	×
比較例4	POH-6 (2.20)	1.0 / 2.3 / 1.3	1300	×	×	−	−	−
比較例5	POH-6 (2.20)	1.0 / 1.8 / 0.8	650	×	×	○	○	○

【００３７】

【発明の効果】

本発明によれば、製造工程が簡略化でき、かつ環境への影響の少ない共押出成形法により多層フィルムを製造する際に使用可能な、接着性能の優れた層間接着剤が提供される。また本発明の層間接着剤は機械的強度、耐熱性、耐寒性、共押出成形性等に優れる。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.[7]		FI		
	Ｂ３２Ｂ 27/40		Ｂ３２Ｂ 27/40	
//	Ｃ０８Ｇ 18/65		Ｃ０８Ｇ 18/65	Ｚ
	Ｂ２９Ｌ 9:00		Ｂ２９Ｌ 9:00	

(56)参考文献 特開平０２－２７４７８７（ＪＰ，Ａ）
特開平０２－２７４７８８（ＪＰ，Ａ）
特開昭６１－０５１３１９（ＪＰ，Ａ）
特開昭５７－００６７２６（ＪＰ，Ａ）
特開昭６１－２５４３３９（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.[7]，ＤＢ名)

C09J175/04 - 175/16
B29C 47/06
B32B 7/12 - 7/14
B32B 27/34 - 27/36 103
B32B 27/40
C08G 18/65 - 18/66
B29L 9:00