

(19) 대한민국특허청(KR)

(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호

10-2012-0100954

(43) 공개일자

2012년09월12일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)

C09J 201/10 (2006.01)

C09J 133/12 (2006.01)

C09J 171/02 (2006.01)

C09J 5/00 (2006.01)

(21) 출원번호

10-2012-7010922

(22) 출원일자(국제)

2010년09월22일

심사청구일자

없음

(85) 번역문제출일자

2012년04월27일

(86) 국제출원번호

PCT/EP2010/063960

(87) 국제공개번호

WO 2011/051056

국제공개일자

2011년05월05일

(30) 우선권주장

102009046190.6

2009년10월30일

독일(DE)

(71) 출원인

헨켈 아게 운트 코. 카게아아

독일 데-40589 뒤셀도르프 헨켈스트라쎄 67

(72) 발명자

찬더, 라르스

독일 41569 롬머스키르헨 길러 회헤 4

겐취프, 파벨

오스트리아 4823 바트 고이체른 잘스타인 17

(뒷면에 계속)

(74) 대리인

김영, 양영준

전체 청구항 수 : 총 11 항

(54) 발명의 명칭 **실란 가교를 갖는 적층용 접착제**

### (57) 요약

본 발명은 1개 이상의 가수분해성 실란 기를 갖는 1종 이상의 폴리옥시알킬렌 및/또는 폴리(메트)아크릴레이트 예비중합체, 1종 이상의 충전제, 및 보조 물질 및 첨가제를 함유하는 1-성분 수분 경화성 접착제에 관한 것이며, 여기서 예비중합체는 4,000 내지 40,000 g/mol의 분자량을 갖고, 접착제는 2000 내지 10,000 mPas의 점도를 갖는다.

(72) 발명자

**킨첼만, 한스-게오르크**

독일 50259 풀하임 뢰스트라쎄 10

**스트림프, 스벤야**

독일 42657 졸링겐 노이엔캄퍼 스트라쎄 93

**디트게스, 니콜**

독일 42653 졸링겐 란트하우스스트라쎄 10 아

**클라인, 요한**

독일 40593 뒤셀도르프 우르텐바허 악커 20 아

## 특허청구의 범위

### 청구항 1

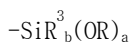
- a) 1개 이상의 가수분해성 실란 기를 갖는 1종 이상의 폴리옥시알킬렌 및/또는 폴리(메트)아크릴레이트 예비중합체,  
b) 충전제 및/또는 안료 1 내지 30 중량%,  
c) 보조 물질 및 첨가제

를 함유하며, 여기서 예비중합체는 4000 내지 40,000 g/mol의 분자량을 갖고, 접착제는 2000 내지 100,000 mPas의 점도를 갖는 것인, 1-성분 수분 경화성 적층용 접착제.

### 청구항 2

제1항에 있어서, 접착제가 하기 화학식 I의 실란 기, 바람직하게는 평균 1.5 내지 3개의 실란 기, 특히 2개의 말단 실란 기를 포함하는 것인 1-성분 접착제.

<화학식 I>



상기 식에서, R은 C(O)R<sup>1</sup> 또는 OR<sup>2</sup>이고, R<sup>1</sup> 및 R<sup>2</sup>는 C<sub>1</sub> 내지 C<sub>10</sub> 알킬이며,

R<sup>3</sup>은 C<sub>1</sub> 내지 C<sub>6</sub> 알킬이고,

a는 1, 2, 3이며, b는 0, 1, 2이다.

### 청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서, 예비중합체가 D<3의 다분산도 (M<sub>w</sub>/M<sub>n</sub>)를 갖는 것인 1-성분 접착제.

### 청구항 4

제1항 내지 제3항 중 어느 한 항에 있어서, 접착제가 2개 이상의 실란 기를 갖는 1종 이상의 폴리옥시알킬렌 중합체 및/또는 폴리(메트)아크릴레이트 중합체 30 내지 95 중량%, 1종 이상의 추가의 접착 촉진제 0.1 내지 10 중량%, 충전제 1 내지 30 중량%, 및 보조 물질 및 첨가제 0.01 내지 25 중량%를 포함하고, 구성성분들의 합계가 100%인 1-성분 접착제.

### 청구항 5

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 접착제가 중금속 촉매를 갖지 않는 것인 1-성분 접착제.

### 청구항 6

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서, 예비중합체가, 폴리에테르 폴리올 또는 폴리(메트)아크릴레이트로부터 OH 기를 과량의 디이소시아네이트와 반응시키고, 임의로 과량의 단량체 디이소시아네이트를 제거하고, 반응 생성물을 NCO 기와 반응성인 기 및 가수분해성 실란 기를 함유하는 화합물과 반응시킴으로써 제조되거나; 또는 폴리에테르 폴리올 또는 폴리(메트)아크릴레이트 폴리올을 반응성 실란 기를 갖는 이소시아네이트실란과 반응시킴으로써 제조되거나; 또는 불포화 기를 갖는 폴리에테르 또는 폴리(메트)아크릴레이트로부터, 중합체 유사 반응에 의한 합성시에 상기 불포화 기에 반응성 실란 기를 말단에서 반응시켜 제조되며, 각 경우에 화학식 I의 반응성 실란 기가 포함된 것인 1-성분 접착제.

### 청구항 7

제6항에 있어서, 아미노실란 또는 히드록시실란, 특히 2급 아미노 기를 갖는 실란을, 반응성 기를 갖는 화합물로서 사용하는 1-성분 접착제.

## 청구항 8

제6항 또는 제7항에 있어서, 상이한 반응성 NCO 기를 갖는 이소시아네이트, 특히 방향족 이소시아네이트, 바람직하게는 비-선형 이소시아네이트를 다이이소시아네이트로서 사용하는 1-성분 접착제.

## 청구항 9

제1항에 있어서, 미분된 형태의, 특히 100 m<sup>2</sup>/g 미만의 표면적 (BET)을 갖는 SiO<sub>2</sub>를 충전제로서 사용하는 1-성분 접착제.

## 청구항 10

금속, 종이, 카드보드, 플라스틱 및/또는 코팅되거나 인쇄된 표면을 갖는 가요성 기재의 접착 결합을 위한 제1항 내지 제9항 중 어느 한 항에 따른 접착제의 용도.

## 청구항 11

제10항에 있어서, 다층 필름을 제조하기 위한 적층용 접착제로서의 접착제의 용도.

## 명세서

### 기술 분야

[0001] 본 발명은 실란 관능성 예비중합체를 기재로 하고 유동가능한 방식으로 적용될 수 있는 1-성분 접착제에 관한 것이다. 이와 같은 접착제는 투명하게 되어 있으며, 기포없이 경화 가능하다. 또한, 본 발명은 상기 실란 관능성 예비중합체를 기재로 하는 가교된 접착제를 적층용 접착 층으로서 포함하는 다층 필름에 관한 것이다.

### 배경 기술

[0002] 수분 경화성 탄성 접착제 및 실란트가 많은 분야에서 공업용으로 이용되고 있다. 이러한 맥락에서, 바람직하게는 이와 같은 접착제의 결합을 프라이머 또는 코로나 처리 또는 플라즈마 처리와 같은 물리적인 방법을 사용한 전처리를 반드시 수행할 필요없이 다양한 기재 상에서 수행할 수 있어야 한다. 이러한 유형의 반응성 폴리우레탄 예비중합체를 기재로 하는 접착제 및 실란트가 공지되어 있다. 제조법의 결과로서, 이러한 접착제 및 실란트는 소량의 단량체 이소시아네이트를 여전히 함유하는 경우가 많다. 그러나, 이는 건강 측면에서 매우 부적절하다. 또한, PU계 접착제가 광에 노출시 색채 안정성에 대한 요건을 충족하지 못하는 것으로 나타나는 경우도 많다. 더욱이, 이소시아네이트 기로 인하여 고습도에서는 접착 층에 기포가 형성된다.

[0003] 적층용 접착제는 가요성 기재, 예를 들면 플라스틱 또는 금속으로 제조된 필름, 종이 또는 섬유 재료의 접착 결합에 사용된다. 이와 같은 접착제는 기재에 대해 우수한 접착력을 제공하도록 되어 있으며; 상기 접착제는 박층으로 적용가능할 필요가 있다. 신속한 접착 결합이 확보되므로, 대기 시간 없이 가능한 한 바로 추가의 가공이 가능해진다. 즉, 접착제의 응집이 가교 이전에도 높게 되어 있다.

[0004] 다양한 조성의 중합체를 기재로 하는 중합체 백본을 포함하고 수분 경화성 실란 기를 추가로 함유하는 접착제 조성물이 공지되어 있다. 예를 들어서, US 4,222,925는 쇠 상에 알콕시실란 기를 함유하는 폴리우레탄 예비중합체뿐만 아니라 소량의 γ-아미노프로필트리메톡시실란을 포함하는 혼합물을 함유하는 밀봉용 화합물을 개시하고 있다. 가요성 필름의 접착 결합에 대한 용도는 개시하지 않고 있다.

[0005] DE 10237271은 알콕시실란 말단의 중합체를 함유하는 중합체 화합물을 개시하고 있다. 산, 염기, 유기금속 화합물 또는 유기 아미노 화합물이 촉매로서 포함될 수 있다. 가소제 또는 충전제가 중합체 화합물에 추가로 포함될 수 있다. 특히, 폴리올레핀, 폴리아크릴레이트, 폴리에스테르, 폴리에테르 또는 폴리우레탄이 중합체로서 열거되어 있으나, 더 이상의 상세한 설명은 하지 않고 있다.

[0006] EP 1303569는 중합체 주쇄 상에 2개 이상의 SiOR 기를 갖는 중합체를 개시하고 있다. 중합체 구조로서 폴리올레핀, 폴리아크릴레이트, 폴리에스테르, 폴리에테르, 폴리우레탄 및 기타 유형들이 열거되어 있으나, 이들을 그 파라미터에 관하여 상세히 설명하지는 않고 있다. 접착제, 페인트 또는 발포체 전구체에 결합제를 사용할 수 있다. 접착제에 관한 더욱 상세한 설명은 없다.

[0007] DE 10 2006 059473도 알려져 있다. 여기에는 실란 관능성 폴리옥시알킬렌 예비중합체와 실란 관능성 폴리올레

핀으로 이루어진 1-성분 접착제 및 실란트 화합물이 개시되어 있다. 다양한 첨가제가 상기 화합물에 첨가되며, 그 예로는 비극성 가소제 및 공지된 접착부여 수지를 들 수 있다.

- [0008] 기존의 종래 기술에 의한 적층용 접착제는 기계적 특성이 불충분한 경우가 많다는 단점을 갖는다. 접착 결합의 급속한 형성이 이루어지지 않는다. 또한, 이러한 접착제는 박층 두께로 적용될 수 있도록 저점도를 갖게 되어 있다. 특히 실란트의 가교 밀도가 높을 때 우수한 탄성도 존재하지 않는 경우가 많다. 이와 같은 접착제를 폴리우레탄을 기재로 하여 제조할 경우, 신속한 경화는 가능하지만, 필요한 신속 반응성 NCO 기로 인해서 접착 필름에 기포가 고도하게 발생한다. 또한, 이와 같은 접착제는 투명 무색이 아닌 경우가 많다.

## 발명의 내용

### 해결하려는 과제

- [0009] 그러므로, 본 발명의 목적은 가능한 한 고온에서 적용하기 쉽고 가요성 필름의 결합없는 접착 결합을 생성하는 접착제를 제공하는 것이다. 접착 결합시에 접착 층에 기포가 발생하지 않도록 되어 있으며, 상기 층은 또한 광 및 대기의 영향에 노출될 때 영구적으로 탈색이 일어나지 않도록 되어 있다. 상기 접착 층은 기재에 신속한 응집 연결을 생성하도록 되어 있다. 본 발명의 다른 목적은 상기 접착제를 다양한 기재 상에 프라이머없이 적용할 수 있으며 상기 기재에 우수한 접착력을 제공하는 것이다.

### 과제의 해결 수단

- [0010] 이와 같은 목적은 1개 이상의 가수분해성 실란 기를 갖는 1종 이상의 폴리옥시알킬렌 및/또는 폴리(메트)아크릴레이트 예비중합체, 1종 이상의 충전제, 보조 물질 및/또는 첨가제를 함유하는 1-성분 수분 경화성 적층용 접착제에 의해 달성되며, 여기서 상기 예비중합체는 4000 내지 40,000 g/mol의 분자량을 갖고 상기 접착제는 2000 내지 100,000 mPas의 점도를 갖는다.

### 발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0011] 본 발명에 따른 1-성분 접착제는 1개 이상의 가수분해성 실란 기를 갖는 폴리옥시알킬렌 예비중합체를 함유할 수 있다. 이러한 예비중합체는 이론적으로 선형 또는 분지형일 수 있고, 여러 개의 실란 기를 포함할 수도 있다. 그러나, 상기 실란 기가 중합체 쇠에 대하여 말단에 위치하는 것이 바람직하다. 이러한 유형의 폴리에테르계 실란 함유 예비중합체는 다양한 방식으로 제조될 수 있다.

- [0012] 상기 중합체 백본은 폴리옥시알킬렌 쇠를 기재로 하여 구성된다. 상기 쇠는 그 쇠 말단에 차후 추가의 반응에 의해서 실란 기로 전환되는 관능기를 가질 수 있다. 예를 들면 폴리에테르 폴리올이 출발 중합체로서 적당하다.

- [0013] 예를 들면, 폴리옥시알킬렌 폴리올을 실란 기를 갖는 본 발명에 따른 예비중합체에 폴리올로서 사용한다. 이러한 폴리올은 폴리에틸렌 옥사이드, 폴리프로필렌 옥사이드 또는 폴리-THF를 기재로 하는 공지된 폴리에테르 폴리올일 수 있으며; 상이한 분자들과의 혼합물도 사용할 수 있다. 폴리프로필렌 글리콜을 기재로 하는 이관능성 또는 삼관능성 폴리에테르 폴리올이 특히 적당하다. 이와 같은 폴리올은 당업계에서 잘 알려져 있다. 본 발명에 따르면, 상이한 분자량을 갖는 몇 가지 폴리에테르 폴리올의 혼합물도 사용할 수 있다. 이러한 폴리에테르 폴리올은 독립적으로 또는 혼합물로서 실란 기에 의해 관능화될 수 있다. 예를 들면, 히드록시 관능성 폴리에테르를 불포화 염소 화합물, 예컨대 알릴 클로라이드와 함께 에테르 합성 반응으로 반응시켜서 말단 올레핀계 이중 결합을 갖는 폴리에테르를 생성하고, 이어서 이를 가수분해성 기, 예컨대  $\text{HSi}(\text{OCH}_3)_3$ 을 포함하는 히드로실란과 함께 예컨대 제8족 전이 금속 화합물의 촉매 작용 하에 히드로실릴화 반응으로 반응시켜서 실란 말단의 폴리에테르를 수득한다.

- [0014] 다른 방법에서는, 올레핀계 불포화 기를 함유하는 폴리에테르를 예를 들어 3-메르캅토프로필트리아알콕시실란과 같은 메르캅토실란과 반응시킨다.

- [0015] 또 다른 방법에서는, 먼저 OH 함유 폴리에테르를 과량의 디이소시아네이트 또는 폴리이소시아네이트와 반응시킨 후에, 아미노 관능성, 히드록시 관능성 또는 메르캅토 관능성 실란과 반응시켜서 실란 말단의 예비중합체를 수득한다. 공지된 지방족 또는 방향족 디이소시아네이트가 이소시아네이트로서 적당하며, 그 예로는 1,6-헥사메틸렌 디이소시아네이트(HDI), 1-이소시아네이트-3,3,5-트리메틸-5-이소시아네이트메틸시클로hex산(IPDI), 크실릴렌 디이소시아네이트(XDI), 테트라메틸크실릴렌 디이소시아네이트(TMXDI), 2,4- 또는 2,6-톨루일렌 디이소시아

네이트(TDI), 2,4'-디페닐메탄 디이소시아네이트, 2,2'-디페닐메탄 디이소시아네이트, 또는 4,4'-디페닐메탄 디이소시아네이트(MDI), 및 그들의 이성질체 혼합물을 들 수 있다. 그 양은 NCO 말단의 예비중합체를 얻을 수 있도록 선택된다. 이어서, 반응 생성물을 가수분해성 기뿐만 아니라 NCO 기와 반응하는 기를 포함하는 실란과 추가로 반응시킨다.

- [0016] 또 다른 가능성은 히드록시 관능성 폴리에테르와 이소시아네이트 관능성 실란을 반응시키는 것이다. 당업자라면 실란, 방법 및 반응 조건을 어떻게 선택해야 할지를 잘 알 것이다.
- [0017] 히드록시 관능성 폴리에테르를 실란 말단의 예비중합체를 제공하는 반응에 의해 사용할 경우, 바람직한 실시양태는 DMC 촉매 반응에 의해 제조된 폴리에테르 폴리올을 사용한다. 이러한 폴리에테르 폴리올은 좁은 다분산도로 잘 알려져 있으며, 이관능성이 아닌 화합물의 분율도 극히 낮다.
- [0018] 본 발명에 따른 적층용 접착제의 다른 실시양태는 폴리아크릴레이트를 기재로 하는 예비중합체를 사용하며, 이러한 예비중합체도 중합체쇄 상에 1개 이상의 가수분해성 실란 기를 포함하도록 되어 있다. 또한, 본 발명에 있어서, "폴리아크릴레이트 중합체"는 메타크릴레이트 중합체 및 공중합체로도 이해된다. 또한, 폴리에테르와 폴리아크릴레이트의 혼합된 블록 공중합체도 사용할 수 있다.
- [0019] 본 발명에 의해 적합한 폴리(메트)아크릴레이트는 알콜 잔기에 1 내지 12개의 탄소 원자를 갖는 1종 이상의 알킬(메트)아크릴레이트 에스테르의 중합 생성물이다. 소량의 (메트)아크릴산 또는 기타 공중합성 단량체, 예를 들면 스티렌, 비닐 에스테르, 아크릴아미드가 임의로 포함될 수 있다.  $C_1$  내지  $C_8$  (메트)아크릴레이트 에스테르가 특히 적합하다. 이와 같은 중합체가 당업자에게 잘 알려져 있으며 다양한 방식으로 제조될 수 있다. 또한, 이와 같은 중합체를 다양한 화학 조성으로 시판 제품으로서 입수할 수 있다.
- [0020] 본 발명에 의해 적합한 아크릴레이트 공중합체는 2개 이상, 바람직하게는 2개 내지 5개의 가수분해성 실란 기를 포함하도록 되어 있다. 이러한 실란 기는 전술한 바와 같은 가수분해성 잔기를 갖는 실란 기이다. 이 경우에도,  $C_1$  내지  $C_4$  알콕시 기를 갖는 디알콕시실란 기 또는 트리알콕시실란 기가 특히 바람직하다.
- [0021] 다양한 제조 방법을 사용해서 실란을 기본 중합체 구조에 결합시킬 수 있다. 예를 들면, 불포화 잔기 및 가수분해성 기를 함유하는 실란으로 중합을 수행할 수 있다. 이 경우에는, 실란 기가 중합체쇄 전체에 걸쳐 통계적으로 분포된다.
- [0022] 다른 절차는 불포화 기를 갖는 아크릴레이트 중합체를 생성하고, 이어서 불포화 이중 결합을 실란과 반응시키는 방식으로 수행한다. 이 경우에, 이와 같은 불포화 기, 및 결국 실란 기를 아크릴레이트 공중합체 상의 말단에 얻을 수 있다.
- [0023] 또 다른 절차는 OH 기를 함유하는 아크릴레이트 중합체를 제조하는 것을 포함한다. 즉, 이러한 중합체를 직접 이소시아네이트실란과 반응시키거나; 과량의 디이소시아네이트와 반응시키고, 차후에 미반응된 이소시아네이트 기를 친핵성 기를 추가로 함유하는 실란과 반응시킨다.
- [0024] 본 발명의 또 다른 실시양태는 가수분해성 실란 기를 포함하는 아크릴레이트 블록 공중합체를 사용한다. 가수분해성 실란 기는 외부에 위치한 아크릴레이트 블록에 위치하는 것이 바람직하다. 이와 같은 중합체가 예컨대 DE 10 2008 002 016에 개시되어 있다. 1개 이상의 반응성 실란 기를 갖는 폴리(메트)아크릴레이트 공중합체도 시판되고 있다.
- [0025] 본 발명에 따른 바람직한 실시양태에서, (메트)아크릴레이트 중합체 또는 폴리에테르 중합체의 분자량 (GPC에 의해 측정된 수 평균 분자량  $M_n$ )은 2000 내지 75,000 g/mol이다. 특히 바람직한 분자량 범위는 4000 내지 50,000 g/mol이고, 매우 특히 바람직하게는 40,000 g/mol 이하이다. 이러한 분자량은 우수한 가공성을 제공하기 때문에 특히 유리하다. 다분산도 D ( $M_w/M_n$ 으로 측정함)가 3 미만, 바람직하게는 2 미만, 특히 1.5 미만인 중합체를 사용하는 것이 매우 바람직하다.
- [0026] 또한, 고분자량을 갖는 중합체를 사용할 수도 있다. 본 발명에 따른 조성물의 점도가 예를 들면 고분자량 또는 강한 내부 결합력에 기인하여 원하는 점도보다 높을 경우에, 반응성 희석제 또는 가소제를 첨가함으로써 가공 점도를 조정하여 원하는 특성을 나타내는 조성물을 제조할 수 있다.
- [0027] 개별적으로 폴리에테르 또는 폴리(메트)아크릴레이트를 기재로 하거나 이의 상이한 조성 또는 분자량을 갖는 혼합물을 기재로 하는 실란 함유 중합체를 사용할 수 있다. 이러한 맥락에서, 중합체의 상용성에 주의를 기울여야 한다. 중합체 자체에 의해 상용성이 영향을 받을 수 있으며; 예를 들면 단량체 성분으로서 장쇄 알킬 아크



릴레이트 부분을 갖는 아크릴레이트가 보다 큰 비극성 특성을 갖는다. 그러나, 실란 반응성 폴리에테르가 결합체로서 특히 바람직하다.

[0028] 반응성 실란 기는 가수분해성 잔기를 함유하도록 되어 있다. 이와 같은 잔기의 예로서는  $-Cl$ ,  $-OH$ ,  $-O-C(=O)R^1$ ,  $-OR^1$ 을 들 수 있으며, 여기서  $R^1$ 은 1 내지 20개의 탄소 원자를 갖는 탄화수소 잔기를 나타낸다. 바람직한 실시양태에 따르면, 이와 같은 잔기는 하기 화학식 I로 표시된다.

[0029] <화학식 I>

[0030]  $-SiR_b^3(OR)_a$

[0031] 상기 식에서, R은  $C(O)R^1$  또는  $OR^2$ 이고,  $R^1$  및  $R^2$ 는  $C_1$  내지  $C_{10}$  알킬이며,

[0032]  $R^3$ 은  $C_1$  내지  $C_6$  알킬이고,

[0033] a는 1, 2, 3이며, b는 0, 1, 2이다.

[0034]  $C_1$  내지  $C_4$  알콜 잔기 또는  $C_2$  및  $C_3$  카르복실산 잔기가 R로서 특히 바람직하다. 이러한 잔기들은 규소 원자 상에 단독으로 또한 혼합되어 포함될 수 있다. 이와 같은 가수분해성 잔기들의 수는 1 내지 3, 특히 2 또는 3이다. 예를 들면, 메톡시, 에톡시, 프로폭시 또는 부톡시 기를 갖는 트리알콕시실란 또는 디알콕시실란 기가 적당하다. 또한, 0, 1 또는 2개의 알킬 기가 규소 원자 상에 포함될 수 있으며, 그 구체적인 예로는 메틸, 에틸, 프로필 또는 부틸 기를 들 수 있다.

[0035] 반응성 실란 기는 중합체 쇄 상에 공유 결합된다. 반응성 실란 기는 예를 들어 알킬렌 기를 통해서 결합되는 방식으로 존재할 수 있지만, 존재하는 헤테로원자를 통한 결합도 가능하다. 예를 들면, 이러한 결합은 질소 원자, 황 원자 또는 산소 원자를 통해서 발생할 수 있다. 또한, 실란 기의 반응성에 영향을 미칠 수 있는 다른 헤테로원자가 실란 기 근처에 존재할 수도 있다.

[0036] 전술한 바와 같이, 실란 기는 폴리에테르 예비중합체의 제조시에 다양한 방법에 의해 도입할 수 있다. 바람직한 실시양태에서, OH 관능성 폴리에테르를 과량의 디이소시아네이트와 반응시켜서 말단 NCO 관능성 예비중합체를 생성한 다음, 이것을 그 자체로서 잘 알려진 실란 화합물과 반응시키며, 상기 실란 화합물은 하나 이상의 실란 기 및 이소시아네이트 기와 반응성인 추가의 친핵성 관능기를 함유한다. 또한, 상기 화합물에 2 또는 3개의 실란 기가 포함될 수도 있다. 상기 반응성 화합물의 분자량은 1000 g/mol 미만, 특히 500 g/mol 미만이다.

[0037] 친핵성 기는 예를 들어 알킬 기에 대하여 말단에 존재하거나, 실란에 대하여  $\alpha$  위치에 존재한다. 친핵성 치환기를 함유하는 실란의 예로서는, 3-메르캅토프로필트리메톡시실란, 3-아미노프로필트리메톡시실란, N-(2-아미노에틸)-3-아미노프로필트리메톡시실란, 또는 N-(2-아미노에틸)-3-아미노프로필메틸디에톡시실란, 상응하는 에톡시실란 또는 프로폭시실란, 및 유사한 알킬디알콕시실란, 예를 들면 메틸-, 에틸-, 부틸디알콕시실란을 들 수 있다. NCO 기를 함유하는 실란의 예로서는 트리메톡시실릴프로필이소시아네이트, 트리메톡시실릴펜틸이소시아네이트, 트리메톡시실릴부틸이소시아네이트, 및 상응하는 에톡시- 또는 프로폭시실란, 또는 유사한 메틸디알콕시 치환 실란을 들 수 있다. 혼합된 알콕시 기를 갖는 실란도 적당하다.

[0038] 다른 실시양태는 NCO 기를 추가로 함유하는 가수분해성 기를 갖는 실란 화합물을 사용한다. 그 예로서는, 이소시아네이트알킬트리알콕시실란 또는 이소시아네이트알킬디알콕시실란을 들 수 있고; 구체적으로 메톡시, 에톡시 또는 프로폭시 기가 포함될 수 있다.

[0039] 실란 기의 수는 중합체 쇄당 1개 이상이어야 하지만, 10개 정도로 많은 실란 기가 포함될 수도 있다. 바람직하게는, 평균 약 1.5개 내지 약 3개의 실란 기가 포함될 수 있다. 구체적인 실시양태에서, 평균 2개의 실란 기가 폴리에테르 쇄에 대하여 말단으로 포함될 수 있다.

[0040] 상기 실란 반응성 폴리옥시알킬렌 예비중합체 또는 폴리(메트)아크릴레이트는 일반적으로 실온 (25°C)에서 높은 점성을 갖는다. 점도는 1000 내지 100,000 mPas일 수 있다 (브룩필드 점도 측정법에 의해 측정함, EN ISO 2555). 본 발명에 따라 적합한 상응하는 수의 실란 기를 포함하는 폴리에테르가 다양한 분자량 또는 쇄 구조를 갖는 형태로 시판되고 있다.

[0041] 본 발명에 따른 1-성분 적층용 접착제는 1종 이상의 미분된 안료 또는 충전제를 추가로 함유해야 한다. 이와

같은 충전제는 미분된 높은 표면적을 갖는 충전제 또는 안료로서 이해된다. 소위 나노충전제가 특히 적합하다. 이와 같은 충전제의 예로서는, Si, Ti, Zr, Ba, Ca, Mg, Fe 등을 기재로 하는 산화물 또는 산화물/수산화물 화합물을 들 수 있다. 이와 같은 충전제/안료는 특히 무색이다. 본 발명에 따르면, 상기 안료가 결합체에 분산될 때 투명한 것이 유리하다. 이러한 특성은 선택된 입자 크기에 의해 영향을 받을 수 있다. 표면적은 예컨대 BET 표면적 (DIN 66131에 의해 측정함)으로서 측정된다. 본 발명에 의해 적합한 미분된 안료 또는 충전제는 1그램당 5 내지 100 m<sup>2</sup>, 특히 10 내지 50 m<sup>2</sup>의 표면적을 갖는다. 충전제 및/또는 안료의 양은 1 내지 30 중량%, 특히 2 내지 15 중량%이다.

[0042] 본 발명의 구체적인 실시양태는 규산을 사용하여 실시한다. 이러한 유형의 규산을 직접 사용하거나, 상기 충전제를 표면 처리한다. 규산은 고도로 분산된다. 입자 직경은 투명한 코팅이 형성되도록 선택된다. 접착 층의 응집은 충전제, 특히 규산의 양에 의해 강화된다. 이와 같은 충전제가 당업자에게 잘 알려져 있으며, 시판되고 있다.

[0043] 또한, 본 발명에 따른 접착제는 보조 물질 및 첨가제를 추가로 함유할 수 있다. 이러한 보조 물질 및 첨가제의 예로서는, 가소제, 안정화제, 항산화제, 충전제, 희석제 또는 반응성 희석제, 건조제, 접착 촉진제, 및 UV 안정화제, 촉매, 안료를 들 수 있다.

[0044] 적당한 액체 가소제의 예로서는 화이트 오일(white oil), 나프텐 미네랄 오일, 폴리프로필렌, 폴리부틸렌, 폴리이소프렌 올리고머, 수소화 폴리이소프렌 및/또는 폴리부타디엔 올리고머, 벤조에이트 에스테르, 프탈레이트, 아디페이트, 식물성 오일 또는 동물성 오일 및 그들의 유도체, 파라핀계 탄화수소 오일, 폴리프로필렌 글리콜 및 폴리부틸렌 글리콜, 액체 폴리에스테르, 글리세롤 에스테르, 또는 바람직하게는 8 내지 36개의 탄소원자를 갖는 지방산을 들 수 있다.

[0045] 본 발명의 목적에 있어서, "안정화제"는 항산화제, UV 안정화제, 또는 가수분해 안정화제로서 이해된다. 그 예로서는 시판되는 통상의 입체 장애 페놀 및/또는 티오에테르 및/또는 치환된 벤조트리아졸 및/또는 HALS (입체 장애 광 안정화제) 유형의 아민을 들 수 있다. 본 발명의 맥락에서, 실릴 기를 함유하고 가교 또는 경화시에 최종 생성물로 반응하는 UV 안정화제를 사용하는 것이 바람직하다. 벤조트리아졸, 벤조페논, 벤조에이트, 아크릴레이트, 입체 장애 페놀, 인 및/또는 황을 첨가할 수도 있다. 본 발명에 따른 제제는 약 3 중량% 이하, 바람직하게는 약 2 중량% 이하의 안정화제를 함유할 수 있다.

[0046] 실란 기 부류의 가수분해성 기의 가수분해성 절단 및 Si-OH 기의 실록산 기로의 후속 축합 반응 (가교 반응 또는 접착 촉진 작용)에 촉매 작용을 할 수 있는 모든 공지된 화합물을 촉매로서 사용할 수 있다. 그 예로서는, 티타네이트, 예컨대 테트라부틸 티타네이트 또는 티타늄 테트라아세틸아세토네이트; 비스무트 화합물, 예컨대 비스무트 트리스-2-에틸헥사노에이트; 주석 카르복실레이트, 예컨대 디부틸주석 디라우레이트(DBTL), 디부틸주석 디아세테이트, 또는 디부틸주석 디에틸헥사노에이트; 주석 산화물, 예컨대 디부틸주석 옥시드 및 디옥틸주석 옥시드; 유기알루미늄 화합물, 예컨대 알루미늄 트리스아세틸아세토네이트; 칼레이트 화합물, 예컨대 지르코늄 테트라아세틸아세토네이트; 아민 화합물 또는 이 화합물과 카르복실산과의 염, 예컨대 옥틸아민, 시클로헥실아민, 벤질아민, 디부틸아민, 모노에탄올아민, 트리에탄올아민, 디에틸렌트리아민, 트리에틸렌테트라아민, 트리에틸렌디아민, 구아니딘, 모르폴린, N-메틸모르폴린, 및 1,8-디아자비시클로-(5,4,0)-운데센-7(DBU); 아미노 기를 갖는 실란 접착 촉진제를 들 수 있다. 한 실시양태는 금속 촉매가 없는 방식으로 수행하며; 다른 실시양태는 Sn 또는 Pb와 같은 중금속을 함유하지 않는 촉매를 사용한다. 몇 가지 촉매들의 혼합물을 총 중량을 기준으로 하여 촉매 0.01 내지 약 5 중량%, 특히 0.1 내지 4 중량%, 구체적으로 0.5 내지 3 중량%로 사용하는 것이 바람직하다.

[0047] 또한, 본 발명에 따른 접착제는 접착 촉진제를 추가로 함유할 수 있다. 이러한 접착 촉진제는 기재 표면과의 반응에 참여할 수 있는 반응성 물질이거나, 기재 상에서 점착성을 증가시키는 물질일 수 있다.

[0048] 유기관능성 실란, 예컨대 히드록시 관능성, (메트)아크릴옥시 관능성, 메르캅토 관능성, 아미노 관능성, 또는 에폭시 관능성 실란이 접착 촉진제로서 바람직하다. 이들은 임의로 중합체 네트워크내로 혼입될 수 있다. 메르캅토 관능성 실란의 예로는 3-메르캅토프로필트리메톡시실란 또는 3-메르캅토프로필트리메톡시실란을 들 수 있다. (메트)아크릴옥시 관능성 실란의 예로는 3-아크릴옥시프로필트리알콕시실란 또는 3-메타크릴옥시프로필트리알콕시실란을 들 수 있다. 에폭시 관능성 실란의 예로는 3-글리시딜옥시메틸트리메톡시실란, 3-글리시딜메틸트리메톡시실란, 또는 2-글리시독시에틸트리메톡시실란을 들 수 있다. 아미노 관능성 실란의 예로는, 3-아미노프로필메틸디메톡시실란, N-(2-아미노에틸)-3-아미노프로필트리메톡시실란(DAMO), N,N-디(2-아미노에틸)-3-아미노프로필트리메톡시실란, N-(2-아미노에틸)-N'-(2-아미노에틸)-3-아미노프로필트리메톡시실란, 비스-(트리에



톡시실릴프로필)아민, N-(n-부틸)-3-아미노프로필트리에톡시실란, 또는 그들의 혼합물을 들 수 있다. 또한, 이에 상응하는 유사한 에톡시 또는 프로폭시 유도체 및 알킬디알콕시 유도체 또는 반응성 프로필기 대신에 다른 알킬 기로 치환된 유도체도 적당하다. 전술한 바와 같은 아미노실란을 접착 촉진제 성분으로서 사용할 수도 있다. 이와 같은 접착 촉진제는 문헌을 통해 잘 알려져 있다.

- [0049] 전술한 접착 촉진제는 결합제 조성물에 바람직하게는 0.1 내지 10 중량%의 양으로, 더욱 바람직하게는 0.5 내지 5 중량%, 특히 바람직하게는 1 중량% 초과와 양으로 사용된다.
- [0050] 또한, 개질된 또는 개질되지 않은 수지 산 또는 에스테르, 폴리아민, 폴리아미노아미드, 무수물, 및 무수물 함유 공중합체 또는 폴리에폭시 수지를 소량으로 사용하는 것도 접착 촉진제로서 적당하다. 전형적인 접착부여 수지 (접착부여제), 예컨대 수지 산 유도체가 5 내지 20 중량%의 농도로 사용되며; 전형적인 접착 촉진제, 예컨대 폴리아민, 폴리아미노아미드, 또는 레조르시놀 유도체가 0 내지 10 중량% 범위로 사용된다.
- [0051] 가수분해성 실란 화합물이 특히 건조제로서 적합하다. 그 예로서는, 카르바메이트프로필트리에톡시실란, 알킬트리에톡시실란, 알킬트리에톡시실란, 비닐트리에톡시실란, 페닐트리에톡시실란, 테트라에톡시실란, 비닐트리에톡시실란, 비닐트리아세톡시실란, 또는 이소옥틸트리에톡시실란을 들 수 있다. 또한, 이들은 접착제가 보다 높은 가교 밀도를 나타내도록 한다. 그 결과, 가교 후에, 보다 높은 모듈러스 또는 더 큰 경도를 갖는 생성물을 얻게 된다. 그러므로, 이러한 특성은 사용량에 따라 조절된 양상으로 영향을 받을 수 있다.
- [0052] 본 발명에 따른 접착제의 바람직한 실시양태는 하기 성분들을 함유할 수 있다:
- [0053] 2개 이상의 실란 기, 특히 2 내지 4개의 실란 기를 갖는 1종 이상의 폴리옥시알킬렌 중합체 및/또는 폴리(메트)아크릴레이트 중합체 30 내지 95 중량%, 바람직하게는 60 내지 90 중량%,
- [0054] 1종 이상의 추가의 접착 촉진제 0.1 내지 10 중량%, 특히 0.5 내지 5 중량%,
- [0055] 충전제 1 내지 30 중량%, 바람직하게는 2 내지 15 중량%, 및
- [0056] 보조 물질 및 첨가제, 특히 촉매, 접착 촉진제, 안정화제 및/또는 가소제 0.01 내지 25 중량%.
- [0057] 상기 구성성분들의 합계는 100 중량%와 같다.
- [0058] 본 발명에 따른 접착제는 상기 성분들을 혼합함으로써 제조할 수 있다. 여기서 혼합은 고온에서 보다 쉽게 흐름가능한 조성물이 혼합되도록 수행하는 것이 유리하다. 또한, 조성물을 압출기에서 연속적으로 제조할 수도 있다. 첨가 및 혼합 순서는 점도, 조도 및 각 성분들의 양에 좌우된다. 고형물을 액체 성분들에 균일하게 분산 또는 용해시킨다. 각각의 성분들이 분리되지 않도록 충분한 혼합을 확보해야 한다. 우수한 저장 안정성을 확보하기 위해 각각의 성분들을 건조시키는 것이 유용할 수 있다. 제조 방식은 이론적으로 알려져 있으며; 당업자라면 원료의선택에 따라서 제조 방식을 쉽게 결정할 수 있을 것이다.
- [0059] 본 발명에 따른 1-성분 수분 경화성 적층용 접착제는 실온에서 흐름가능하되 높은 점도를 나타낸다. 본 발명에 따르면, 본 발명의 접착제는 20 내지 30℃의 온도에서 2000 내지 100,000 mPas의 점도를 나타내는 것이 유용하다. 상기 점도는 예비중합체의 선택 및 충전제의 양에 의해 영향을 받는다.
- [0060] 본 발명에 따른 접착제를 승온으로, 예컨대 30 내지 60℃로 가열할 수 있다. 이로써 점도는 저하되고, 보다 쉽게 가공 (펌핑 또는 적용)할 수 있다. 본 발명에 따른 접착제는 박층으로 적용되기 때문에, 박층이 적용된 후에 저온으로 빠르게 냉각되므로 재차 높은 점도를 나타낸다.
- [0061] 또한, 소량의 용매를 첨가함으로써 적용시 점도를 감소시킬 수 있으나, 본 발명에 따른 접착제가 유기 또는 무기 용매를 함유하지 않는 실시양태가 본 발명에 있어 더욱 유리하다. 이러한 사용 방식을 고속으로 적용하여 접착 결합시킬 수 있는데, 그 이유는 적용된 접착 층으로부터 용매를 플래쉬오프시킬 필요가 없기 때문이다.
- [0062] 접착 결합된 적층체를 제조하는 방법은 이론적으로 공지되어 있다. 여기서 본 발명에 따른 1-성분 접착제를 박층으로 균일하게 적용할 필요가 있다. 이론적으로 적용은 인쇄, 분무, 블레이딩 또는 롤링에 의해 수행할 수 있지만, 접착제에 대하여 보다 높은 점도가 필요할 경우에는 롤러 적용법을 선택하는 것이 유용하다.
- [0063] 일반적인 실시양태에 의하면, 접착제가 승온에서 적용된다. 이에 의하면, 예컨대 2 내지 20  $\mu\text{m}$ 의 박층으로 적용이 가능하다. 용매 비함유 형태의 경우에는, 제2 필름 형태의 기재를 적용 직후에 제1 기재에 대하여 결합시킨다. 이러한 결합은 임의로 고압에 의해서 수행할 수 있다. 또한, 본 발명에 따른 접착제를 사용해서 즉각 연속적으로 여러 개의 층들을 접착 결합시킬 수 있다. 용매 함유 접착제를 사용할 경우에는, 접착 결합시키기

에 앞서 휘발성 성분들을 증발시키기 위한 준비가 이루어져야 한다.

- [0064] 상승된 점도 및 높은 점착력에 기인하여 제조 직후에 기재들 사이에 우수한 연결이 이루어진다. 기재는 추가의 가공 단계 동안에도 서로에 대하여 미끄럼 방지식으로 접착 결합된 상태를 유지하므로, 추가의 가공을 즉시 수행할 수 있다. 최종 가공은 기재 상에 또는 환경에 존재하는 수분에 의해서 일어난다.
- [0065] 바람직한 실시양태는 예를 들면 다음과 같은 추가의 특징들을 갖는 전술한 바와 같은 형태들이다:
- [0066] - 트리알콕시실란 기 또는 알킬디알콕시실란 기, 특히  $C_1$ ,  $C_2$ ,  $C_3$  내지  $C_4$  알칸올이 가수분해성 실란 기로서 포함되는 1-성분 접착제;
- [0067] - 촉매, 접착 촉진제, 안료, 및/또는 안정화제가 보조 물질 및 첨가제로서 포함되는 1-성분 접착제;
- [0068] - 용매 비함유 및/또는 중금속 촉매 비함유 1-성분 접착제;
- [0069] - NCO 기를 함유하지 않는 1-성분 접착제;
- [0070] - 2개 이상의 실란 기를 갖는 1종 이상의 예비중합체 60 내지 90 중량%, 실란계 접착 촉진제 0.5 내지 5 중량%, 충전제 2 내지 15 중량%, 및 촉매, 접착 촉진제, 및/또는 안정화제 0.01 내지 25 중량%를 포함하며, 상기 구성 성분들의 합계가 100%와 같은 것인 1-성분 접착제;
- [0071] - 고온에서 적용될 수 있는 적층용 1-성분 접착제로서의 본 발명에 따른 1-성분 접착제의 용도.
- [0072] 또한, 본 발명은 가요성 기재의 접착 결합을 위한 본 발명에 따른 접착제의 용도를 제공한다. 여기서 공지된 필름 또는 웹 형태의 기재를 사용할 수 있다. 이들은 예를 들어 금속 호일, 종이 웹, 플라스틱 필름으로 제조될 수 있다. 이들은 전사 또는 코팅될 수 있다. 이러한 필름들을 서로 적층할 수 있으며, 이들을 다른 기재, 예컨대 페이퍼보드, 카드보드, 또는 가요성을 나타내지만 원칙적으로 치수 안정성이 있는 유사한 기재 상에 부착할 수 있다.
- [0073] 여기서, 접착 결합하기 이전에 기재의 표면을 처리할 수도 있다. 일반적으로, 접착 손실 성분들을 세정 제거한다. 또한, 임의로 표면을 활성화시키거나 기재 상에 프라이머를 적용할 수도 있다.
- [0074] 그러나, 특별히 프라이머의 사용은 본 발명에 따른 접착제의 용도 맥락에서 불필요하다.
- [0075] 기재를 표면 상에서 코팅하거나 전사할 수 있다. 전사된 표면을 접착제로 코팅하거나, 코팅된 표면에 대하여 제2 기재 표면으로서 접착 결합시킨다. 본 발명에 따르면, 상기 접착제가 무색 투명한 것이 유리하다. 임의의 인쇄된 이미지가 나쁜 영향을 받는 것은 아니다.
- [0076] 본 발명에 의해 제조된 필름 기재는 다양한 형태의 포장재에 사용될 수 있다. 이러한 포장재는 식품 포장재, 의료 용도에 사용되는 포장재, 또는 다른 필름 포장재일 수 있다. 또한, 본 발명에 의해 접착 결합된 기재를 포장 물품의 제조 후에 멸균할 수도 있다. 이러한 멸균 작업은 방사선에 의해 또는 기재 상에서 온도 및 수분의 작용에 의해 수행할 수 있다.
- [0077] 본 발명에 따른 접착제는 박층으로 적용될 수 있다. 이는 신속한 적용 방법을 가능하게 하며, 접착 결합을 이룬 후에 우수한 점착력 및 응집력을 얻을 수 있다. 본 발명에 따른 접착제의 선택을 통해서 경화 후에 무색 층을 형성하는 투명한 접착 층이 얻어진다. 이소시아네이트, 또는 물과 빠르게 반응하는 다른 반응성 기를 피함으로써, 접착 결합된 기재에서 기포가 결합으로서 형성되지 않도록 확보할 수 있다.
- [0078] **실란 개질된 예비중합체 1**
- [0079] 폴리프로필렌 글리콜 12000 (OH가 = 9.6) 328 g(28 mmol)을 500 ml 반응기에서 진공 하에 80℃에서 건조시켰다. 80℃에서 질소 분위기 하에, 비스무트(III) 옥타노에이트 0.07 g(보르치캐트(BorchKat) 24) 0.07 g을 첨가하고, 이어서 이소시아네이트프로필트리에톡시실란(% NCO = 19.9) 14 g(67 mmol)을 혼합해 넣었다. 80℃에서 1시간 동안 교반시킨 후에, 수득한 중합체를 냉각시키고 비닐트리에톡시실란 7.1 g 및 70 중량% 비스(1,2,2,6,6-펜타메틸-4-피페리딜)세바케이트와 30 중량% 메틸-1,2,2,6,6-펜타메틸-4-피페리딜 세바케이트(티누빈(Tinuvin) 765)의 혼합물 5.3 g을 여기에 첨가하였다. 생성물을 수분 밀폐 방식으로 질소 분위기 하에 유리 용기 내에 저장한 다음에, 일반적인 절차에 따라서 경화성 조성물로 후처리하였다.
- [0080] **실란 개질된 예비중합체 2**
- [0081] 폴리프로필렌 글리콜 12000 (OH가 = 9.7) 326 g(28 mmol)을 500 ml 3구 플라스크에서 진공 하에 80℃에서 건조

시켰다. 80℃에서 질소 분위기 하에, 비스무트(III) 옥타노에이트 0.07 g(보르치캐트 24) 0.07 g을 첨가하고, 이어서 이소시아네이트메틸디메톡시실란(% NCO = 24.9) 11.4 g(68 mmol)을 혼합해 넣었다. 80℃에서 1시간 동안 교반시킨 후에, 수득한 중합체를 냉각시키고 비닐트리메톡시실란 7.0 g 및 70 중량% 비스(1,2,2,6,6-펜타메틸-4-피페리딜)세바케이트와 30 중량% 메틸-1,2,2,6,6-펜타메틸-4-피페리딜 세바케이트(티누빈 765)의 혼합물 5.3 g을 여기에 첨가하였다. 생성물을 수분 밀폐 방식으로 질소 분위기 하에 유리 용기 내에 저장한 다음에, 일반적인 절차에 따라서 경화성 조성물로 후처리하였다.

실시에 (% 단위로 표시된 양):

	실시에 1	실시에 2	실시에 3	실시에 4	실시에 5
실란 개질된 예비중합체 1	41.5	55.0	55.0	83.0	73.0
예비중합체 2	41.5	28.0	28.0		
메사몰(Mesamoll)					10.0
촉매(Sn계)			0.03	0.03	0.03
에어로실(Aerosil) 0X50	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0
아미노실란 1	5.0	5.0		5.0	
아미노실란 2					5.0
트리메톡시비닐실란	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
점도, mPas(25℃)	32,000	45,000	42,000	7000	5000

아미노실란 1: 아미노메틸-3-아미노프로필트리메톡시실란

아미노실란 2: N-(2-아미노에틸)-3-아미노프로필트리메톡시실란

에어로실 0X50: SiO<sub>2</sub>, 표면적 50 m<sup>2</sup>/g

[0082]

[0083] 상기 성분들을 혼합하고 탈기시켰다. 접착제는 수분의 부재 하에서 저장 안정성이 있었다.

[0084] 비교 실시예 1: UR6082는 헨켈 캄파니(Henkel company)의 2-성분 폴리우레탄 접착제이다.

[0085] 비교 실시예 2: 충전제가 없는 실시예 1.

[0086] 여러 가지 필름 기재를 접착제를 사용해서 접착 결합시켰다. 기재를 실온에서 경화시키고 1일 간격으로 파단 강도를 측정하였다.

베이스	경화제	MR	캐리어 웹	제2 웹	적용 중량 (g/m <sup>2</sup> )	캐리어 웹상의 코로나 전처리	제2 웹상의 코로나 전처리	적용 메카니즘에서의 온도 (°C)	CA (1일, 2일, 3일, 7일, 10일, 14일)	비등후 CA (7일, 14일)
비교 실시예 1	UR 6082	100: 40	OPP	OPP	2.0	√	√	45	√	√
비교 실시예 1	UR 6082	100: 40	PET/AI 예비복합체	PE	2.0	x	√	45	√	√
실시예1	--	--	OPP	OPP	2.0	√	√	33	√	√
실시예1	--	--	PET/AI 예비복합체	PE	2.0	x	√	33	√	√
실시예2	--	--	OPP	OPP	2.0	√	√	40	√	√
실시예2	--	--	PET/AI 예비복합체	PE	2.0	x	√	40	√	√
실시예3	--	--	OPP	OPP	2.0	√	√	33	√	√
실시예3	--	--	PET/AI 예비복합체	PE	2.0	x	√	33	√	√
실시예4	--	--	PET/AI 예비복합체	PE	2.0	x	√	33	√	√
실시예5	--	--	PET/AI 예비복합체	PE	2.0	√	x	33	√	√
비교 실시예 2	--	--	OPP	OPP	2.0	√	√	33		√
비교 실시예 2	--	--	PET/AI 예비복합체	PE	2.0	x	√	33		√

[0087]

베이스	층	1일후 CA	2일후 CA	3일후 CA
비교 실시예 1	OPP - OPP	0.54 CS, 양면 접착성	2.85, 공압출 인열	3.07, 공압출 인열
비교 실시예 1	PET/AI (예비복합체) - PE	1.57 CS, PE상에서 AaS, 약간 접착성	3.44 CS, PE상에서 AaS, 약간 접착성	5.72 CS, PE상에서 AaS
실시예 1	OPP - OPP	2.83, 공압출 인열	1.96, 공압출 인열	2.23, 공압출 인열
실시예 1	PET/AI (예비복합체) - PE	2.36 CS, PE상에서 AaS, 접착성	1.50 CS, PE, 약간 접착성	1.17 CS, PE상에서 AaS
실시예 2	OPP - OPP	0.99 CS, 양면 접착성	3.29, 공압출 인열	2.75, 공압출 인열
실시예 2	PET/AI (예비복합체) - PE	1.83 CS, PE상에서 AaS, 약간 접착성	1.52 CS, PE상에서 AaS, 약간 접착성	1.15 CS, PE상에서 AaS
실시예 3	OPP - OPP	3.54, 공압출 인열	2.99, 공압출 인열	2.05, 공압출 인열
실시예 3	PET/AI (예비복합체) - PE	1.98 CS, PE상에서 AaS, 약간 접착성	1.23 CS, PE상에서 AaS, 약간 접착성	0.97 CS, PE상에서 AaS
실시예 4	PET/AI (예비복합체) - PE	0.93 CS, 양면 약간 접착성	2.23 CS, AI상에서 AaS	2.16 CS, PE상에서 AaS
실시예 5	PET/AI (예비복합체) - PE	0.89 CS, PE상에서 AaS, 접착성	2.08 CS, AI상에서 AaS	2.5 CS, PE상에서 AaS
비교 실시예 2	PET/AI (예비복합체) - PE	0.6 CS, 접착성	1.5 CS, AI상에서 AaS	
비교 실시예 2	OPP - OPP	0.25 CS, 접착성	1.5 CS, PE상에서 AaS	

CA: 복합체 접착력: 90°당김 시험, 측정값 N/15 mm

AaS: 분리후 접착

CS: 복합체 분리

[0088]

[0089]

OPP/OPP 및 PE/OPP 기재를 사용한 접착 결합은 우수하였다.

[0090]

비교 실험은 1일 경과 후에 불량한 접착 결합 거동을 나타내었다.