

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 3 部門第 3 区分

【発行日】平成 26 年 4 月 10 日 (2014.4.10)

【公開番号】特開 2013-60521 (P2013-60521A)

【公開日】平成 25 年 4 月 4 日 (2013.4.4)

【年通号数】公開・登録公報 2013-016

【出願番号】特願 2011-199501 (P2011-199501)

【国際特許分類】

C 0 8 L 23/10 (2006.01)

C 0 8 L 23/26 (2006.01)

C 0 9 J 123/10 (2006.01)

C 0 9 J 123/26 (2006.01)

C 0 9 J 151/06 (2006.01)

【 F I 】

C 0 8 L 23/10

C 0 8 L 23/26

C 0 9 J 123/10

C 0 9 J 123/26

C 0 9 J 151/06

【手続補正書】

【提出日】平成 26 年 2 月 26 日 (2014.2.26)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(A) プロピレン由来の骨格含有量が 50 mol % を超え、且つ 190 で測定した熔融粘度が

100,000 mPa・s 以下である低粘度プロピレン系ベースポリマー 50 ~ 99 重量 % と、

(B) 変性プロピレン系エラストマー 1 ~ 50 重量 %

から構成される樹脂組成物 (ここで、成分 (A) および成分 (B) の合計量は 100 重量 % である。) であって、

成分 (B) が、DSC により測定される融点 (Tm) が 120 以上であるポリプロピレン (B1) 0 ~ 40 重量 %、並びに DSC により測定される融点が 120 未満または融点が観測されない、プロピレンとエチレンと必要に応じて炭素数 4 ~ 10 の - オレフィンとからなる共重合体 (B2) 60 ~ 100 重量 % からなる樹脂組成物 (B') (ここで、成分 (B1) および成分 (B2) の合計量は 100 重量 % である。) を変性して得られる 変性樹脂組成物 であることを特徴とする樹脂組成物。

【請求項 2】

前記成分 (A) が、プロピレン由来の骨格含有量が 50 mol % を超え、エチレンおよび炭素数 4 ~ 8 の - オレフィンからなる群より選択される 1 種以上に由来する骨格含有量が 50 mol % 未満であるプロピレン単独重合体、二元共重合体または三元共重合体であり、190 で測定した熔融粘度が 2,000 ~ 50,000 mPa・s を満たすことを特徴とする請求項 1 に記載の樹脂組成物。

【請求項 3】

前記成分(A)が、プロピレン単独重合体であることを特徴とする請求項2に記載の樹脂組成物。

【請求項4】

前記成分(B)が、前記成分(B')に炭素数3～10の不飽和カルボン酸、その酸無水物およびそのエステルからなる群から選ばれる少なくとも一種の化合物をグラフト重合して得られる変性プロピレン系エラストマーであることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の樹脂組成物。

【請求項5】

前記成分(B)が次の要件(R-1)および要件(R-2)の一つ以上を満たすことを特徴とする請求項1～4のいずれかに記載の組成物。

(R-1) ASTM D2240に記載の方法で測定した表面硬度(ショアーD)が40以下である。

(R-2) 変性により導入された極性基の含有量が、0.01～10重量%の範囲である。

【請求項6】

前記した樹脂組成物(B')が、ポリプロピレン(B1)5～40重量%、およびDSCにより測定される融点が120未満または融点が観測されない、プロピレンとエチレンと炭素数4～10の α -オレフィンとの三元共重合体(B2)60～95重量%からなる樹脂組成物(B')(ここで、成分(B1)および成分(B2)の合計量は100重量%である。)であることを特徴とする請求項1～5のいずれかに記載の樹脂組成物。

【請求項7】

前記成分(B2)が、プロピレン由来の構成単位を45.0～89.0モル%、エチレン由来の構成単位を8.0～25.0モル%、および炭素数4～20の α -オレフィン由来の構成単位を1.0～30.0モル%量を含むプロピレン・エチレン・ α -オレフィン共重合体(ここで、プロピレン由来の構成単位、エチレン由来の構成単位および炭素数4～20の α -オレフィン由来の構成単位の合計は100モル%である。)であることを特徴とする請求項1～6のいずれかに記載の樹脂組成物。

【請求項8】

請求項1～7のいずれかに記載の樹脂組成物を含んでなるホットメルト接着剤。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0008

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0008】

〔1〕(A)プロピレン由来の骨格含有量が50mol%を超え、且つ190で測定した熔融粘度が100,000mPa・s以下である低粘度プロピレン系ベースポリマー50～99重量%と、(B)変性プロピレン系エラストマー1～50重量%から構成される樹脂組成物(ここで、成分(A)および成分(B)の合計量は100重量%である。)であって、

成分(B)が、DSCにより測定される融点(Tm)が120以上であるポリプロピレン(B1)0～40重量%、並びにDSCにより測定される融点が120未満または融点が観測されない、プロピレンとエチレンと必要に応じて炭素数4～10の α -オレフィンとからなる共重合体(B2)60～100重量%からなる樹脂組成物(B')(ここで、成分(B1)および成分(B2)の合計量は100重量%である。)を変性して得られる変性樹脂組成物であることを特徴とする樹脂組成物。

〔2〕前記成分(A)が、前記成分(A)が、プロピレン由来の骨格含有量が50mol%を超え、エチレンおよび炭素数4～8の α -オレフィンからなる群より選択される1種以上に由来する骨格含有量が50mol%未満であるプロピレン単独重合体、二元共重合体または三元共重合体であり、190で測定した熔融粘度が2,000～50,000mPa・sを満たすことを特徴とする前記〔1〕に記載の樹脂組成物。

〔 3 〕前記成分（ A ）が、プロピレン単独重合体であることを特徴とする前記〔 2 〕に記載の樹脂組成物。

〔 4 〕前記成分（ B ）が、前記成分（ B' ）に炭素数 3 ～ 10 の不飽和カルボン酸、その酸無水物およびそのエステルからなる群から選ばれる少なくとも一種の化合物をグラフト重合して得られる変性プロピレン系エラストマーであることを特徴とする前記〔 1 〕～〔 3 〕のいずれかに記載の樹脂組成物。

〔 5 〕前記成分（ B ）が次の要件（ R-1 ）および要件（ R-2 ）の一つ以上を満たすことを特徴とする前記〔 1 〕～〔 4 〕のいずれかに記載の樹脂組成物。

（ R-1 ） A S T M D 2 2 4 0 に記載の方法で測定した表面硬度（ショアー D ）が 40 以下である。

（ R-2 ）変性により導入された極性基の含有量が、 0.01 ～ 10 重量％の範囲である。

〔 6 〕前記した樹脂組成物（ B' ）が、ポリプロピレン（ B 1 ） 5 ～ 40 重量％、および D S C により測定される融点が 120 未満または融点が観測されない、プロピレンとエチレンと炭素数 4 ～ 10 の α -オレフィンとの三元共重合体（ B 2 ） 60 ～ 95 重量％からなる樹脂組成物（ B' ）（ここで、成分（ B 1 ）および成分（ B 2 ）の合計量は 100 重量％である。）であることを特徴とする前記〔 1 〕～〔 5 〕のいずれかに記載の樹脂組成物。

〔 7 〕前記成分（ B 2 ）が、プロピレン由来の構成単位を 45.0 ～ 89.0 モル％、エチレン由来の構成単位を 8.0 ～ 25.0 モル％、および炭素数 4 ～ 20 の α -オレフィン由来の構成単位を 1.0 ～ 30.0 モル％量を含むプロピレン・エチレン・ α -オレフィン共重合体（ここで、プロピレン由来の構成単位、エチレン由来の構成単位および炭素数 4 ～ 20 の α -オレフィン由来の構成単位の合計は 100 モル％である。）であることを特徴とする前記〔 1 〕～〔 6 〕のいずれかに記載の樹脂組成物。

〔 8 〕前記〔 1 〕～〔 7 〕のいずれかに記載の樹脂組成物を含んでなるホットメルト接着剤。

【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】 0010

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0010 】

以下、本発明について具体的に説明する。

発明の樹脂組成物は、ポリオレフィン系基材のみならず金属に対しても良好な接着力を示すという点において、（ A ）プロピレン由来の骨格含有量が 50 mol％を超え、且つ 190 で測定した溶融粘度が 100,000 mPa・s 以下である低粘度プロピレン系ベースポリマー 50 ～ 99 重量％、好ましくは 60 ～ 98 重量％、より好ましくは 70 ～ 97 重量％、特に好ましくは 75 ～ 95 重量％、（ B ）変性プロピレン系エラストマー 1 ～ 50 重量％、好ましくは 2 ～ 40 重量％、より好ましくは 3 ～ 30 重量％、特に好ましくは 5 ～ 25 重量％から構成される樹脂組成物（ここで、成分（ A ）および成分（ B ）の合計量は 100 重量％である。）であって、成分（ B ）が、D S C により測定される融点（ T m ）が 120 以上であるポリプロピレン（ B 1 ） 0 ～ 40 重量％、並びに D S C により測定される融点が 120 未満または融点が観測されない、プロピレンとエチレンと必要に応じて炭素数 4 ～ 10 の α -オレフィンとからなる共重合体（ B 2 ） 60 ～ 100 重量％からなる樹脂組成物（ B' ）（ここで、成分（ B 1 ）および成分（ B 2 ）の合計量は 100 重量％である。）を変性して得られる変性樹脂組成物である。

【手続補正 4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】 0013

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 1 3 】

2. 変性プロピレン系エラストマー (B)

本発明の樹脂組成物に係る変性プロピレン系エラストマー (B) は、DSCにより測定される融点 (Tm) が 120 以上であるポリプロピレン (B 1) 0 ~ 40 重量%、並びにDSCにより測定される融点が 120 未満または融点が観測されない、プロピレンとエチレンと必要に応じて炭素数 4 ~ 10 の - オレフィンとからなる共重合体 (B 2) 60 ~ 100 重量%からなる樹脂組成物 (B') (ここで、成分 (B 1) および成分 (B 2) の合計量は 100 重量%である。) を変性して得られる変性樹脂組成物として定義される。以下、各構成成分について説明する。

【 手 続 補 正 5 】

【 補 正 対 象 書 類 名 】 明 細 書

【 補 正 対 象 項 目 名 】 0 0 2 2

【 補 正 方 法 】 変 更

【 補 正 の 内 容 】

【 0 0 2 2 】

各モノマー由来の構成単位が上記範囲にあると、共重合体 (B 2) が前記ポリプロピレン (B 1) に相容し易くなるので、機械物性 (柔軟性と強度のバランス) に優れ、結果として被着体への接着性に優れる。本発明の樹脂組成物およびホットメルト接着剤においては、特に共重合体 (B 2) に占めるエチレン由来骨格の量が 8 . 0 モル%を下回らず、好ましくは 8 . 5 モル%を下回らず、より好ましくは 10 . 0 モル%を下回らないことがポリオレフィン系基材および金属への接着性に共に優れた効果を発現する重要な因子であることを本発明者らは見出している。なお、エチレンと炭素原子数 4 ~ 20 の - オレフィンの含有量が上記範囲にあって、且つエチレン含量の方が - オレフィン含量に比べて多い場合は、後述する共重合体 (B 2) の製造の際に生産性が向上 (具体的には、高い分子量のものが得られる、触媒活性が高い等の特徴) する等の利点も存在する。

【 手 続 補 正 6 】

【 補 正 対 象 書 類 名 】 明 細 書

【 補 正 対 象 項 目 名 】 0 0 2 4

【 補 正 方 法 】 変 更

【 補 正 の 内 容 】

【 0 0 2 4 】

本発明の樹脂組成物に係る共重合体 (B 2) は、示差走査熱量計 (DSC) により測定した融点 (Tm) が、120 未満であるか、または融点が観測されない。なお、融点 (Tm) を決定する際のDSC測定条件は次の通りである ; 23 ± 2 で72時間以上の状態調節を実施した後の試験体にて、- 40 以下まで冷却してから昇温速度 10 / min で測定したときに得られた吸熱曲線を解析してTmを求めた。また融点が観測されないとは、- 40 ~ + 200 の範囲において、結晶融解熱量が 1 J / g 以上の結晶融解ピークが観測されないこととして定義される。

【 手 続 補 正 7 】

【 補 正 対 象 書 類 名 】 明 細 書

【 補 正 対 象 項 目 名 】 0 0 2 5

【 補 正 方 法 】 変 更

【 補 正 の 内 容 】

【 0 0 2 5 】

本発明の樹脂組成物に係る共重合体 (B 2) は、上記特性に加えて、¹³C - NMRにより算出したアイソタクティックトライアド分率 (mm) が通常 85 % 以上、好ましくは 88 % 以上である。mm値がこのような範囲にある共重合体 (B 2) は、ポリプロピレン (B 1) との相容性が良好になることに加え、共重合体 (B 2) の機械物性が良好となる。なお、mm値がこのような範囲にない場合には、ポリプロピレン (B 1) との相容性の低下、および機械物性の低下に加え、ガラス転移温度 (Tg) が高くなり、低温特性の低

下も発生する。なお、本発明に係る共重合体（Ｂ２）の m/m 値は、国際公開番号２００４／０８７７７５号パンフレットの２１頁７行目から２６頁６行目までに記載された方法で求められる。

【手続補正８】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】００２６

【補正方法】変更

【補正の内容】

【００２６】

さらに、本発明の樹脂組成物に係る共重合体（Ｂ２）は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）によって測定された分子量分布（ M_w/M_n 、 M_w ：重量平均分子量、 M_n ：数平均分子量、いずれもポリスチレン換算）が３．５以下、好ましくは３．０以下である。 M_w/M_n がこのような範囲にあることは、材料のべた付きが少ないことを意味する。例えば、本発明の樹脂組成物やホットメルト接着剤を調製する際に、ホットメルト接着剤の構成成分である共重合体（Ｂ２）や変性プロピレン系エラストマー（Ｂ）の、高温環境下で使用した際のべた付きを抑えるので成形作業性の向上につながるの好ましい。

【手続補正９】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】００３６

【補正方法】変更

【補正の内容】

【００３６】

３．樹脂組成物およびこれを含んでなるホットメルト接着剤

本発明のホットメルト接着剤は、上記樹脂組成物を含んでなり、必要に応じて次の述べる粘着付与剤を配合することができる。

【手続補正１０】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】００４２

【補正方法】変更

【補正の内容】

【００４２】

ホットメルト接着剤組成物がこのような組成で形成されることによって、柔軟性、機械物性、耐熱性、接着特性などの諸物性をバランスすることができる。