

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6243236号  
(P6243236)

(45) 発行日 平成29年12月6日(2017.12.6)

(24) 登録日 平成29年11月17日(2017.11.17)

(51) Int. Cl.		F I
<b>C09J 123/08</b>	<b>(2006.01)</b>	C09J 123/08
<b>C08L 23/08</b>	<b>(2006.01)</b>	C08L 23/08
<b>C08L 51/06</b>	<b>(2006.01)</b>	C08L 51/06
<b>C08L 23/16</b>	<b>(2006.01)</b>	C08L 23/16
<b>C08L 53/02</b>	<b>(2006.01)</b>	C08L 53/02

請求項の数 12 (全 15 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2014-9139 (P2014-9139)  
 (22) 出願日 平成26年1月22日(2014.1.22)  
 (65) 公開番号 特開2015-137301 (P2015-137301A)  
 (43) 公開日 平成27年7月30日(2015.7.30)  
 審査請求日 平成28年11月24日(2016.11.24)

(73) 特許権者 000000941  
 株式会社カネカ  
 大阪府大阪市北区中之島二丁目3番18号  
 (72) 発明者 齋藤 有弘  
 大阪府摂津市鳥飼西5-1-1 株式会社  
 カネカ内  
 (72) 発明者 中山 亮二  
 大阪府摂津市鳥飼西5-1-1 株式会社  
 カネカ内  
 審査官 吉岡 沙織

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物およびホットメルト接着フィルム

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記、(A)、(B)を含むホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。  
 5～95重量部の、融点が100以上130未満であるエチレン-オレフィン共重合体(A)、95～5重量部の、融点が130以上160以下であるエチレン-オレフィン共重合体(B)(ここで、(A)と(B)を合わせて100重量部とする)。

【請求項2】

(A)と(B)の合計100重量部に対し、さらに、スチレン系熱可塑性エラストマー(C)1～60重量部を含むことを特徴とする請求項1に記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

【請求項3】

(A)と(B)の合計100重量部に対し、さらに、粘着付与剤(D)1～60重量部を含むことを特徴とする請求項1または2に記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系接着樹脂組成物。

【請求項4】

80における周波数10Hz、せん断モードで測定した貯蔵弾性率G'(80)が0.8MPa以上、かつ110における周波数10Hz、せん断モードで測定した貯蔵弾性率G'(110)が0.8MPa未満であることを特徴とする請求項1から3のいずれかに記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

【請求項5】

前記エチレン - オレフィン共重合体 ( A ) の引張弾性率が 3 0 0 M P a 以上 7 0 0 M P a 以下、前記エチレン - オレフィン共重合体 ( B ) の引張弾性率が 1 0 M P a 以上 2 0 0 M P a 以下であることを特徴とする、請求項 1 から 4 のいずれかに記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

【請求項 6】

前記 ( A ) および / または ( B ) が、 ( a ) 不飽和カルボン酸又はその誘導体および ( b ) 芳香族ビニル単量体でグラフト変性された変性エチレン - オレフィン共重合体であることを特徴とする、請求項 1 から 5 のいずれかに記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

【請求項 7】

前記 ( A ) および / または ( B ) が、エチレン - プロピレン共重合体であることを特徴とする、請求項 1 から 6 のいずれかに記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

【請求項 8】

前記 ( A ) および / または ( B ) 中のエチレン含量が 3 ~ 2 0 重量%であることを特徴とする、請求項 1 から 7 のいずれかに記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

【請求項 9】

前記スチレン系熱可塑性エラストマーが、スチレン含量が 2 0 重量%以下であることを特徴とする、請求項 1 から 8 のいずれかに記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

【請求項 1 0】

前記スチレン系熱可塑性エラストマーが、水素添加スチレン - イソプレンブロックコポリマー及び水素添加スチレン - ブタジエンブロックコポリマー、水素添加スチレン - ブタジエンランダムコポリマーから選ばれた少なくとも一種であることを特徴とする、請求項 1 から 9 のいずれかに記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

【請求項 1 1】

前記粘着付与剤が、テルペン樹脂、芳香族変性テルペン樹脂、脂環族系石油樹脂のいずれかであることを特徴とする、請求項 1 から 1 0 のいずれかに記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

【請求項 1 2】

請求項 1 から 1 1 のいずれか一項に記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物からなり、その厚みが 2 0 ~ 2 0 0 μ m であることを特徴とするホットメルト接着フィルム。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【 0 0 0 1】

本発明はホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物に関する。さらに詳しくは低温接着性と優れた耐熱性を有するホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物に関する。また、ホットメルト接着フィルムに関する。

【背景技術】

【 0 0 0 2】

熱可塑性エラストマー、オレフィン系重合体、ビニル系重合体およびエンジニアリングプラスチック等の熱可塑性樹脂は、物性、成形性および表面特性等に優れているため、目的に応じて塊状、シート状、フィルム状等に加工して自動車、家電、エレクトロニクス、建築、雑貨等の分野で多く使用されている。そして、これらの成形品は、所望形状の製品とするため、あるいは性能の高度化、機能の多様化を図るため複数の成形品を接着させ、複合化することが行われている。中でも、力学的な物性に富む樹脂製の成形品を基材と

10

20

30

40

50

し、その外層に表面特性、耐候性、装飾性に優れる表皮材、加飾シートを積層することが幅広く行われており、積層体は自動車内装、住宅内装、家電機器の筐体などに多く利用されている。しかしながら、このような積層体は一般に各層間の接着力に乏しく、接着層を設けて積層される例が多い。接着剤としては、溶剤型接着剤とホットメルト型接着剤使用されているが、溶剤型接着剤は、塗布むらが出やすいこと、有機溶剤の使用により環境、衛生上の悪影響を生じるといった欠点を有する。そのため、簡便かつ接着強度の優れたホットメルト接着剤が求められている。

このようなホットメルト型接着剤としては、エチレン系共重合体、スチレン系ブロック共重合体およびオレフィン系（共）重合体からなる群から選ばれる１種以上のベースポリマーと粘着付与樹脂、結晶性極性基含有化合物を含有するもの（特許文献１）、アモルファスポリ - オレフィン、粘着付与樹脂およびポリプロピレン系ワックスを必須成分とするもの（特許文献２）、スチレン - エチレンプロピレン - スチレンブロック共重合ゴムあるいはスチレン - ブタジエン - スチレンブロック共重合ゴムに、粘着付与樹脂成分およびプロセスオイルなどの液状可塑剤を添加してなるもの（特許文献３、４）、変性ポリオレフィンと粘着付与剤を配合してなるもの（特許文献５）、スチレン系ブロック共重合体と酸変性ワックスを配合してなるもの（特許文献６）、酸変性ポリプロピレンと酸変性スチレン系ブロック共重合体を配合してなるもの（特許文献７）、スチレン系ブロック共重合体と粘着付与剤、エチレン系重合体を配合してなるもの（特許文献８、９、１０）などが提案されている。

しかしながら、そのようなホットメルト型接着剤を、８０程度の実用的な耐熱性が要求される自動車内装材などに適用する場合、高温雰囲気下での表皮の浮き、剥がれなどの問題が生じる場合がある。接着時の加熱温度を比較的高温とし圧力をかけることで、樹脂基材への接着性を高めることができる場合もあるが、積層体の用途が意匠性を必要とする自動車内装、住宅内装、家電機器筐体など場合には、成形部材が損傷し、意匠性が損なわれるという問題が生じる。このようなことから、意匠性を損なわない程度の低温接着性と、実用的な耐熱性を両立可能なホットメルト型接着剤が求められている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【０００３】

【特許文献１】特開平１０ - １６８４１７号公報

【特許文献２】特開２００４ - ２８４５７５号公報

【特許文献３】特開平３ - １６００８３号公報

【特許文献４】特開平８ - ６０１２１号公報

【特許文献５】特開平６ - ２９３８４５号公報

【特許文献６】特開２００７ - １６９５３１号公報

【特許文献７】特開２００８ - １６３１２１号公報

【特許文献８】特開平１１ - １３１０３７号公報

【特許文献９】特開平１０ - ２７９７７４号公報

【特許文献１０】特開平１０ - ２６５７５１号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【０００４】

本発明の目的は、自動車内装、住宅内装、家電機器筐体用の積層体の製造において、意匠性への配慮から低温で接着させた場合にも、極性、非極性材料のいずれの基材に対しても十分な接着性を持ち、かつそれぞれの用途での要求耐熱性を満足できる積層体を製造でき、特に８０程度の高温化において優れた耐熱性を有するホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物およびそれからなるホットメルト型接着フィルムを提供することである

【課題を解決するための手段】

【０００５】

本発明者らは、鋭意検討した結果、特定の範囲の融点を有するエチレン - オレフィン共重合体からなる樹脂組成物が上記の低温接着性と耐熱性の両立という課題を解決することを見だし、以下の本発明を完成するに至った。

【0006】

すなわち本発明は、以下の構成よりなる。

1) 下記、(A)、(B)を含むホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。融点が100以上130未満であるエチレン - オレフィン共重合体(A)5~95重量部、融点が130以上160以下であるエチレン - オレフィン共重合体(B)5~95重量部。(ここで、(A)と(B)を合わせて100重量部とする。)

2) (A)と(B)の合計100重量部に対し、さらに、スチレン系熱可塑性エラストマー(C)1~60重量部を含むことを特徴とする1)に記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

3) (A)と(B)の合計100重量部に対し、さらに、粘着付与剤(D)1~60重量部を含むことを特徴とする1)または2)に記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

4) 80における周波数10Hz、せん断モードで測定した貯蔵弾性率 $G'$ (80)が0.8MPa以上、かつ110における周波数10Hz、せん断モードで測定した貯蔵弾性率 $G'$ (110)が0.8MPa未満であることを特徴とする1)から3)のいずれかに記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

5) 前記エチレン - オレフィン共重合体(A)の引張弾性率が300MPa以上700MPa以下、前記エチレン - オレフィン共重合体(B)の引張弾性率が10MPa以上200MPa以下であることを特徴とする、1)から4)のいずれかに記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

6) 前記(A)および/または(B)が、(a)不飽和カルボン酸又はその誘導体および(b)芳香族ビニル単量体でグラフト変性された変性エチレン - オレフィン共重合体であることを特徴とする、1)から5)のいずれかに記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

7) 前記(A)および/または(B)が、エチレン - プロピレン共重合体であることを特徴とする、1)から6)のいずれかに記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

8) 前記(A)および/または(B)中のエチレン含量が3~20重量%であることを特徴とする、1)から7)のいずれかに記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

9) 前記スチレン系熱可塑性エラストマーが、スチレン含量が20重量%以下であることを特徴とする、1)から8)のいずれかに記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

10) 前記スチレン系熱可塑性エラストマーが、水素添加スチレン - イソプレンブロックコポリマー及び水素添加スチレン - ブタジエンブロックコポリマー、水素添加スチレン - ブタジエンランダムコポリマーから選ばれた少なくとも一種であることを特徴とする、1)から9)のいずれかに記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

11) 前記粘着付与剤(D)が、テルペン樹脂、芳香族変性テルペン樹脂、脂環族系石油樹脂のいずれかであることを特徴とする、1)から10)のいずれかに記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物。

12) 1)から11)のいずれか一項に記載のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物からなり、その厚みが20~200 $\mu$ mであることを特徴とするホットメルト接着フィルム。

【発明の効果】

【0007】

本発明の接着性樹脂組成物は、従来困難であった、ポリオレフィン系樹脂などの非極性樹脂、アクリル系樹脂、ポリカーボネート樹脂などの極性樹脂いずれに対しても、優れた

接着力を確保することができる。特に低温、低圧の接着加工で使用可能であることから、真空成形や真空圧空成形、圧空成形、ホットスタンプ成形などを用い、複雑な3次元形状の成形品と表皮材を積層する用途に使用でき、自動車内装、住宅内装、家電機器筐体の成形品加飾用途に好適に用いることができる。

【発明を実施するための形態】

【0008】

以下に本発明の詳細について述べる。

(エチレン-オレフィン共重合体(A)、(B))

本発明のエチレン-オレフィン共重合体(A)は、融点が100以上130度未満であり、エチレン-オレフィン共重合体(B)は、融点が130以上160度以下である。ここで、融点とは、示差走査型熱量計にて窒素雰囲気下にて、10/分での昇温後に降温過程を経た後、再び10/分にて昇温した際に得られる融解吸熱カーブより、観測されたピークのピークトップとして定義される温度を、融点とする。

【0009】

例えば、加飾シートを表面に積層する自動車内装用途などでは一般的に80以上の高温下でも優れた接着性を保持することが要求される。また、当該用途の製品は、例えば真空成型や真空圧空成形により表皮材を基材成形品に接着・積層されるが、その際、表皮材にダメージを与えないために接着層は100から130の温度範囲で成形されることが多い。このような状況下において、上記融点のエチレン-オレフィン共重合体(A)、(B)を配合することで、上記接着性と耐熱性を両立することが可能となる。エチレン-オレフィン共重合体(A)の融点は好ましくは105以上125以下、さらには110以上125以下が好ましい。エチレン-オレフィン共重合体(B)の融点は好ましくは130以上155以下、さらには135以上150以下が好ましい。

【0010】

エチレン-オレフィン共重合体(A)の引張弾性率は300MPa以上700MPa以下が好ましく、さらには350MPa以上600MPa以下であることが好ましい。エチレン-オレフィン共重合体(B)の引張弾性率は10MPa以上200MPa以下であることが好ましく、さらには10MPa以上100MPa以下が好ましい。引張弾性率が上記範囲にあることで、接着性と耐熱性を両立することが容易となる。ここで、引張弾性率とは、JIS K7113に記載の2(1/3)号ダンベルを試験片として、オートグラフにて1mm毎分で引張試験を行った際の、ひずみが0.0005のときの応力と、ひずみが0.0025のときの応力とから求めた値である。

一般に、ホットメルト接着剤は、その融点以上の温度で軟化させて接着させた後、融点以下に冷却し固化させて用いるため、接着温度と必要な耐熱温度が近い場合は、その設計が難しい。しかしながら、上記要件を満たす変性エチレン-オレフィン共重合体を用いることで、低温加工での接着性と、得られる積層体中で接着層の耐熱性を両立させることが可能となる。

このようなエチレン-オレフィン共重合体(A)、(B)は、上記特性を満たせば特に制約はないが、エチレン-オレフィン共重合体(A)としては密度が0.88g/cm<sup>3</sup>~0.90g/cm<sup>3</sup>であるエチレンと-オレフィンとのランダム共重合体、エチレン-オレフィン共重合体(B)としては、密度が0.86g/cm<sup>3</sup>~0.88g/cm<sup>3</sup>であるエチレンと-オレフィンとのランダム共重合体が好適に使用される。ここで、密度とは、JIS K7112に準拠して測定されたものである。

上記のようなエチレン-オレフィンランダム共重合体を形成する-オレフィンとしては、通常炭素数3~20の-オレフィン、例えばプロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、4-メチル-1-ペンテン、1-オクテン、1-デセン、1-テトラデセン、1-オクタデセンが挙げられるが、グラフト変性の際、ポリオレフィン上にラジカルが発生しやすくなる点および耐熱性の観点から、プロピレンであることが好ましい。エチレン-プロピレン共重合体中のエチレンとプロピレンの含有比率としては、エチレン-オレフィン共重合体(A)の場合はプロピレン含量が90~97重量%、エチレン含量が3~10重

10

20

30

40

50

量%、エチレン - オレフィン共重合体 ( B ) の場合はプロピレン含量が 80 ~ 90 重量%、エチレン含量が 10 ~ 20 重量%、であることが接着性と耐熱性を両立し易い傾向にあるという点から好ましい。さらに、エチレン含量が上記範囲より多いと後述する変性を実施する場合にエチレン部分で架橋反応が先行し、低温接着性が低下するだけでなく、接着性フィルムとして良好な外観のものとして取得できない可能性がある。これらエチレン - オレフィン共重合体には、上述の熱特性を損なわない範囲であれば、他のジエン、ビニルエステルなどを第 3 成分として共重合してもよい。これらは、粒子状のものであってもペレット状のものであってもよく、その大きさや形はとくに制限されるものではない。

#### 【 0011 】

また、エチレン - オレフィン共重合体 ( A )、( B ) はどちらか一方または両者が ( a ) 不飽和カルボン酸および/またはその誘導体、( b ) 芳香族ビニル単量体で変性されたものであってもよく、両者が混合されたものを同時に変性したものであっても良い。変性エチレン - オレフィン共重合体の製造には、熔融混練による方法、溶液による方法、懸濁法などの一般的なラジカルグラフト法によって行うことができる。この中で、経済的で、簡便かつ生産性に富む点では熔融混練法が好ましい。

#### 【 0012 】

ラジカル重合開始剤としては、有機過酸化物が一般的に用いられ、例えば水素引き抜き能が高いものとして、1, 1 - ビス ( t - ブチルパーオキシ ) - 3, 3, 5 - トリメチルシクロヘキサン、1, 1 - ビス ( t - ブチルパーオキシ ) シクロヘキサン、n - ブチル - 4, 4 - ビス ( t - ブチルパーオキシ ) バレレート、2, 2 - ビス ( t - ブチルパーオキシ ) プタンなどのパーオキシケタール; ジクミルパーオキシサイド、2, 5 - ジメチル - 2, 5 - ジ ( t - ブチルパーオキシ ) ヘキサン、1, 3 - ジ ( t - ブチルパーオキシイソプロピル ) ベンゼン、t - ブチルクミルパーオキシサイド、ジ - t - ブチルパーオキシサイド、2, 5 - ジメチル - 2, 5 - ジ ( t - ブチルパーオキシ ) ヘキシン - 3 などのジアルキルパーオキシサイド; ベンゾイルパーオキシサイドなどのジアシルパーオキシサイド; t - ブチルパーオキシオクテート、t - ブチルパーオキシイソブチレート、t - ブチルパーオキシラウレート、t - ブチルパーオキシ - 3, 5, 5 - トリメチルヘキサノエート、t - ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート、2, 5 - ジメチル - 2, 5 - ジ ( ベンゾイルパーオキシ ) ヘキサン、t - ブチルパーオキシアセテート、t - ブチルパーオキシベンゾエート、ジ - t - ブチルパーオキシイソフタレートなどのパーオキシエステルが好ましい。これらは、2 種以上を組み合わせて用いてもよい。

#### 【 0013 】

前記ラジカル重合開始剤の添加量は、エチレン - オレフィン共重合体 100 重量部に対して、0.01 ~ 10 重量部の範囲内にあることが好ましく、0.01 ~ 5 重量部の範囲内にあることがより好ましく、0.01 ~ 2 重量部の範囲内にあることが更に好ましい。0.01 重量部未満では変性が十分に進行せず、10 重量部を超えると架橋反応による流動性の低下やゲル分の増加により、接着性が低下することがある。

#### 【 0014 】

( a ) 不飽和カルボン酸及び/又はその誘導体としては、特に制限されないが、例えば無水物、アミド、イミド、エステルなどであり、単独または 2 種以上が好適に用いられる。不飽和カルボン酸としては、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、エンド - ビシクロ [ 2.2.1 ] - 5 - ヘプテン - 2, 3 - ジカルボン酸 ( エンディック酸 )、フマル酸、テトラヒドロフタル酸、イタコン酸、シトラコン酸、クロトン酸、イソクロトン酸、ナジック酸等が挙げられ、不飽和カルボン酸の誘導体の具体例としては、塩化マレニル、マレイミド、無水マレイン酸、無水エンディック酸、アクリル酸メチル、アクリル酸アミド、メタクリル酸メチル、メタクリル酸グリシジル、メタクリル酸アミド、無水シトラコン酸、無水イタコン酸、無水ナジック酸、マレイン酸モノメチル、マレイン酸ジメチル、フマル酸モノメチル、フマル酸ジメチル等が挙げられる。これら不飽和カルボン酸又はその誘導体のうち、好ましくは、アクリル酸、メタクリル酸、無水マレイン酸、メタクリル酸グリシジルであり、安価な点から、より好ましくは、無水マレイン酸、メタクリル酸グリ

10

20

30

40

50

シジルであり、変性後の乾燥工程での除去が容易な点で、メタクリル酸グリシジルが特に好ましい。

【0015】

(a) 不飽和カルボン酸及び/又はその誘導体の添加量は、エチレン - オレフィン共重合体100重量部に対して、0.1~10重量部であることが好ましく、0.1~8重量部であることがより好ましく、0.1~6重量部であることが更に好ましく、0.1~5重量部であることが特に好ましい。添加量0.1重量部よりも少ない場合は接着性が十分に改善されない傾向があり、添加量が10重量部を超える場合はグラフトに寄与しないフリーポリマーの副生が増大する傾向や、好適な形状や外観を有するシート状あるいはフィルム状接着剤組成物として取得できない傾向がある。

10

【0016】

不飽和カルボン酸及び/又はその誘導体のグラフト率を向上させる目的で、(b) 芳香族ビニル単量体を添加することが好ましい。また、芳香族ビニル単量体を共存させることで、ポリオレフィンの主鎖切断による機械的特性が低下するのを抑えることができ、接着剤組成物の耐熱性を保つことができる。

【0017】

(b) 芳香族ビニル単量体としては、特に制限されないが、好ましくは炭素数4~20、より好ましくは6~15の芳香族ビニル単量体である。例示するならば、スチレン；o-メチルスチレン、m-メチルスチレン、p-メチルスチレン、  
-メチルスチレン、ジメチルスチレン、トリメチルスチレンなどのメチルスチレン；o-クロロスチレン、m-クロロスチレン、p-クロロスチレン、  
-クロロスチレン、  
-クロロスチレン、ジクロロスチレン、トリクロロスチレンなどのクロロスチレン；o-ブロモスチレン、m-ブロモスチレン、p-ブロモスチレン、ジブロモスチレン、トリブロモスチレンなどのブロモスチレン；o-フルオロスチレン、m-フルオロスチレン、p-フルオロスチレン、ジフルオロスチレン、トリフルオロスチレンなどのフルオロスチレン；o-ニトロスチレン、m-ニトロスチレン、p-ニトロスチレン、ジニトロスチレン、トリニトロスチレンなどのニトロスチレン；o-ヒドロキシスチレン、m-ヒドロキシスチレン、p-ヒドロキシスチレン、ジヒドロキシスチレン、トリヒドロキシスチレンなどのビニルフェノール；o-ジビニルベンゼン、m-ジビニルベンゼン、p-ジビニルベンゼンなどのジビニルベンゼン；o-ジイソプロペニルベンゼン、m-ジイソプロペニルベンゼン、p-ジイソプロペニルベンゼンなどのジイソプロペニルベンゼン；などの1種または2種以上が挙げられる。これらのうちスチレン、  
-メチルスチレン、p-メチルスチレンなどのメチルスチレン、ジビニルベンゼン単量体またはジビニルベンゼン異性体混合物が安価であるという点で好ましい。

20

30

【0018】

前記(b) 芳香族ビニル単量体の添加量は、エチレン - オレフィン共重合体100重量部に対して、0.1~10重量部であることが好ましく、0.1~8重量部であることがより好ましく、0.1~6重量部であることが更に好ましく、0.1~5重量部であることが特に好ましい。添加量が0.1重量部よりも少ない場合はエチレン - オレフィン共重合体に対する不飽和カルボン酸及び/又はその誘導体のグラフト率が劣る傾向がある。一方、添加量が10重量部を超えると不飽和カルボン酸及び/又はその誘導体グラフト効率が飽和域に達するとともに、過剰な架橋反応が進行して、接着性が低下する恐れがある。

40

【0019】

エチレン - オレフィン共重合体(A)および(B)の組成比は、好ましくは(A)が5~95重量部、(B)が5~95重量部であり、より好ましくは(A)が5~50重量部、(B)が50~95重量部であり、更に好ましくは(A)5~30重量部、(B)が70~95重量部であり、特に好ましくは(A)が5~20重量部、(B)が80~95重量部である。(A)が5重量部より少ない場合は、耐熱性に劣る傾向があり好ましくない。また、(A)が95重量部より多い場合は、接着の際に、基材へのぬれ性が悪くなる

50

傾向があり好ましくない。

【0020】

溶融混練時の添加順序及び方法については、エチレン - オレフィン共重合体とラジカル重合開始剤を溶融混練した混合物に不飽和カルボン酸及び/又はその誘導体、あるいは芳香族ビニル単量体を加え溶融混練する添加順序がよく、この添加順序で行うことでグラフトに寄与しない低分子量体の生成を抑制することができる。なお、そのほか必要に応じ添加される材料の混合や溶融混練の順序及び方法はとくに制限されるものではない。

【0021】

溶融混練時の加熱温度は、150～240 であることが、エチレン - オレフィン共重合体が十分に溶融し、過剰な熱分解あるいは架橋反応が併発しないという点で好ましい。また溶融混練の時間（ラジカル重合開始剤を混合してからの時間）は、通常30秒間～60分間である。

【0022】

また、前記の溶融混練の装置としては、一軸又は多軸押出機、パンバリーミキサー、プラストミル、加熱ロールニーダー、などを使用することができる。生産性の面から減圧装置を装備した単軸あるいは二軸押出機を用いる方法が好ましい。また、各々の材料を十分に均一に混合するために、前記溶融混練を複数回繰返してもよい。

変性エチレン - オレフィン共重合体中の不飽和カルボン酸及び/またはその誘導体の含有量は、ベース樹脂100重量部に対して、0.01～5重量%であることが好ましい。ここで、前記含有量とは、ベース樹脂の主鎖に対して、グラフト共重合により導入された不飽和カルボン酸および/またはその誘導体の量である。0.01重量%より少ないと被着体の種類によっては接着性が不十分となる場合があり、5重量%より多いと溶融混練中にグラフト鎖が反応して一部架橋を起こし、成形性が劣ると同時にフィッシュアイ、ブツなどにより製品外観が悪化し、且つ、かつ接着性も低下する。

【0023】

（スチレン系熱可塑性エラストマー（C））

本発明のスチレン系熱可塑性エラストマー（C）は、スチレン、その同族体もしくはその類似体含有する熱可塑性エラストマーをいう。スチレン系熱可塑性エラストマーとして知られるものは、特に限定されることなく使用できる。スチレン、その同族体もしくはその類似体のブロックを、少なくとも一つの末端ブロックとして含み、共役ジエンもしくはその水添物のエラストマーブロックを少なくとも一つ中間ブロックとして含むブロック共重合体または、芳香族ビニル化合物と共役ジエン化合物とのランダム共重合体を挙げることができる。

本発明のスチレン系熱可塑性エラストマー（C）の好ましい具体例として、スチレン - ブタジエンジブロックコポリマー、スチレン - ブタジエン - スチレントリブロックコポリマー、スチレン - イソプレンジブロックコポリマー、スチレン - イソブレン - スチレントリブロックコポリマー、水素添加スチレン - ブタジエンジブロックコポリマー、水素添加スチレン - ブタジエン - スチレントリブロックコポリマー、水素添加スチレン - イソプレンジブロックコポリマー、水素添加スチレン - イソブレン - スチレントリブロックコポリマー、水素添加スチレン - ブタジエンランダムコポリマー、スチレン - イソブチレンジブロックコポリマー、スチレン - イソブチレン - スチレントリブロックコポリマーなどが挙げられる。さらに、スチレンブロックの中にはスチレンのほかに、スチレンと - メチルスチレン等の芳香族系ビニル化合物の共重合体が含まれていてもよい。スチレン含量としては、1～20重量%が好ましく、より好ましくは5～20重量%であり、特に好ましくは、10～15重量%である。20重量%よりも多いと接着強度が低下して好ましくない。また、1重量%よりも低い場合は、耐熱性の観点から好ましくない。

【0024】

これらのスチレン系熱可塑性エラストマーの中でも、耐熱性および耐候性が良好なものとなる点から、その共役ジエンを主体とする重合体ブロックにおける不飽和二重結合の一部または全部が水素添加されていることが好ましく、水素添加スチレン - イソブレン - ス

10

20

30

40

50



チレントリブロックコポリマー (SEPS)、水素添加スチレン-ブタジエン-スチレントリブロックコポリマー (SEBS)、水素添加スチレン-ブタジエンランダムコポリマー (HSBR)、スチレン-イソブチレン-チレントリブロック共重合体 (SIBS) が挙げられる。さらに好ましくは、耐熱性と耐候性の観点から、水素添加スチレン-イソブチレン-スチレントリブロックコポリマー (SEPS)、水素添加スチレン-ブタジエン-スチレントリブロックコポリマー (SEBS)、水素添加スチレン-ブタジエンランダムコポリマー (HSBR) が好ましい。

上述のスチレン系熱可塑性エラストマーは市販されているアサプレン、タフプレン、アサフレックス、タフテック [旭化成工業 (株) 製]; ダイナロン、JSR-TR [JSR (株) 製]; クレイトン [クレイトンポリマー社製]; クインタック [日本ゼオン社製]; ハイブラー、セプトン [クラレ (株) 製]; シプスター [(株) カネカ製] を例示できる。これらの市販品は、各々単独で又は組み合わせて使用することができる。

#### 【0025】

スチレン系熱可塑性エラストマー (C) の量としては、1~60重量部が好ましい。より好ましくは5~40重量部であり、さらに好ましくは10~30重量部である。1重量部よりも少ないと、接着強度が低調となることがあり好ましくない。また、60重量部を超える場合は、組成物の高温領域での弾性が低下し耐熱性の観点から、好ましくない。

#### 【0026】

(粘着付与剤 (D))

本発明の粘着付与剤 (D) としては、種々のものがあるが、例えば、石油樹脂 (脂肪族系、脂環族系、芳香族系等)、テルペン樹脂 (-ピネン、-ピネン、リモネンなどの重合体)、芳香族炭化水素変性テルペン樹脂、ロジン系樹脂 (ガムロジン、トール油ロジン、ウッドロジン、水添ロジン、不均化ロジン、重合ロジン、マレイン化ロジン、ロジンエステル等)、テルペンフェノール樹脂などが挙げられ、これらは単独あるいは2種以上をあわせて用いることができる。これらの中でも、変性エチレン-オレフィンを使用する場合、変性エチレン-オレフィン中のエポキシ基と反応する構造を含まない脂環族系石油樹脂、テルペン樹脂 (-ピネン、-ピネン、リモネンなどの重合体)、芳香族変性テルペン樹脂が好ましく、中でも濡れ性、ハンドリング性、耐熱性の観点から芳香族変性テルペン樹脂がより好ましく、入手のしやすさからスチレン変性テルペン樹脂が特に好ましい。

テルペンフェノール樹脂や、ロジン系樹脂は、その構造上、低酸価、低水酸基価とすることが困難であるため、熔融混練、変性樹脂中のエポキシ基と反応して、フィッシュアイ、ゲルが増加するだけでなく、樹脂組成物が増粘し、フィルム成形性が悪く傾向がある。低温加工での接着性、耐熱性、接着剤樹脂組成物のハンドリングの観点から、環球法による軟化点が90~180、好ましくは100~170、より好ましくは110~160、更に好ましくは110~140の範囲ものを用いることが好ましい。軟化点が90よりも低いものであると接着剤組成物の耐熱性が低下するとともに、スチレン系熱可塑性エラストマーやエチレン-オレフィン共重合体との熔融混練が困難となるばかりか、接着剤樹脂組成物の常温タックが強くなりすぎてフィルム成形が困難となる。また、軟化点が180よりも高いものであると、低温での接着性に劣るため不適である。粘着付与剤としては、単独あるいは2種以上をあわせて用いることができる。

粘着付与剤 (D) の量としては、1~60重量部が好ましい。より好ましくは10~55重量部であり、さらに好ましくは20~55重量部である。1重量部よりも少ないと、接着強度が低調となることがあり好ましくない。また、60重量部を超える場合は、組成物の凝集力が乏しくなり、耐熱性が低下するとともに、樹脂組成物のタックが強くなりすぎて、造粒および成形時の取扱いが困難となるため、好ましくない。

(ホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物の貯蔵弾性率  $G'$ )

本発明のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物の80における貯蔵弾性率  $G'$  は、好ましくは、0.8MPa以上であり、より好ましくは0.9MPa以上、さらに好ましくは1.0MPa以上である。0.8MPa未満であるものは、耐熱性の観点か

10

20

30

40

50

ら不適である。

また、ホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物の110における貯蔵弾性率 $G'$ は、好ましくは0.8MPaであり、より好ましくは0.6MPa未満であり、さらに好ましくは0.5MPa未満である。0.8MPa以上である場合は、低温での接着の際の基材へのぬれの観点から不適である。貯蔵弾性率 $G'$ は、動的粘弾性測定装置にて、せん断モード、測定周波数10Hz、昇温速度4 /分の条件にて測定される。

【0027】

(接着剤樹脂組成物の製造方法)

本発明のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物の製造方法として、公知のいずれの方法を用いても良いが、均一に混合するのが容易であるという点からは、特に溶融混練が好ましい。溶融混練の装置としては、一軸又は多軸押出機、バンバリーミキサー、プラストミル、加熱ロールニーダー、などを使用することができる。生産性の面から減圧装置を装備した単軸あるいは二軸押出機を用いる方法が好ましい。また、各々の材料を十分に均一に混合するために、前記溶融混練を複数回繰返してもよい。

なお、本発明のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物には必要に応じて他の熱可塑性樹脂や、酸化防止剤、金属不活性剤、燐系加工安定剤、紫外線吸収剤、紫外線安定剤、蛍光増白剤、金属石鹸、制酸吸着剤などの安定剤、または架橋剤、連鎖移動剤、核剤、滑剤、可塑剤、充填材、強化材、顔料、染料、難燃剤、帯電防止剤などの添加剤を本発明の効果を損なわない範囲内で添加してもよい。

これらの安定剤および添加剤を用いる場合は、予めスチレン系熱可塑性エラストマーまたは、エチレン-オレフィン共重合体に添加されているものであってもよく、エチレン-オレフィン共重合体の溶融変性の際に添加されるものであってもよく、エチレン-オレフィン共重合体(A)、エチレン-オレフィン共重合体(B)、スチレン系熱可塑性エラストマー(C)、粘着付与剤(D)の各成分を溶融混練する際に添加されるものであってもよく、また、接着性樹脂組成物を製造したのちに適宜の方法で添加されるものであってもよい。

【0028】

(ホットメルト接着フィルムの製造方法)

本発明のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物は、熱溶着性を有するフィルム状成形体(ホットメルト接着フィルム)にすることができる。厚みは用途に応じて適宜調整されればよいが、所望の接着性と耐熱性が得られ易いとの観点から、20~200 $\mu\text{m}$ 、さらには30~100 $\mu\text{m}$ であることが好ましい。本発明でいう熱溶着性とは、熱で溶けて被着体と接合する性質のことである。本発明のホットメルト接着フィルムの製造方法は、特に限定されるものではないが、例えば本発明の接着性樹脂組成物を溶融混練により得た後に、各種の押出成形機、射出成形機、カレンダー成形機、インフレーション成形機、ロール成形機、あるいは加熱プレス成形機などを用いてフィルム状に成形加工することが可能である。

本発明のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物を用いれば、比較的低い処理温度で種々の被着体を接着させて多層積層体を得ることが可能になる。本発明のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物が接着可能な材料としては、紙、木綿、麻、布、木板などのセルロース系高分子材料、ポリプロピレン、ポリエチレンなどのポリオレフィン系樹脂、ポリスチレン、スチレン-ブタジエンブロック共重合体(SBS樹脂)、スチレン-アクリロニトリル共重合体(AS樹脂)、アクリロニトリル-エチレン/プロピレン-スチレン共重合体(AES樹脂)、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体(ABS樹脂)などのスチレン系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、(メタ)アクリル系樹脂、ポリエステル系樹脂、ナイロン、ポリウレタンなどのポリアミド系樹脂、フェノール樹脂、エポキシ樹脂等の合成高分子材料、金、銀、銅、鉄、錫、鉛、アルミニウムなどの金属材料が挙げられる。被着体の材料として、異なる2種類以上の材料を混合、複合してもよい。また、積層体が発明のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物からなる接着層を介して、異なる2つの被着体が接着してなるものである場合、2つの被

着体を構成する材料は、同じ種類の材料でも異なる種類の材料のいずれでもよい。本発明のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物は、特に被着体の表面処理をすることなく、強力な接着が可能であるが、必要に応じて、プラズマやレーザーなどによる表面改質、表面酸化、エッチングなどの表面処理等を実施してもよい。

#### 【0029】

このようにして得られた積層体は例えば以下の用途に使用することができる。被着体として表皮材及び成形品を使用する用途、例えば自動車等の内装材料（自動車内装用天井材、自動車内装用ドア部材、自動車内装用ダッシュボード部材、インパネ等）、家電部品（パソコン筐体、薄型テレビのフレーム等）、住居資材（内装壁板、化粧フィルム等）として好適に使用することができる。ここで用いられる表皮材とは、予めフィルム、シート、発泡体、各種不織物、織物に成形されたものであり、例えば、ポリ塩化ビニル、各種ポリオレフィン、ABSから製造される高分子製加飾シート、ポリエステル不織布、起毛ニット、ファブリック、ポリウレタンレザー、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリブチレン、およびこれらオレフィンの共重合体を主成分として製造されるポリオレフィン系発泡体などが挙げられる。また、ここで用いられる成形品としては、ABS、PC/ABS、ポリオレフィン、ガラス繊維強化ポリオレフィン、ガラス繊維強化ナイロンなどの各種高分子材料の射出成形品、木材チップ、木質粉などを熱硬化性樹脂やポリオレフィン樹脂で熱プレス成形により固めた木質成形品や木質ボードが挙げられる。本発明のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物は、100～130程度の比較的低い温度で強力な接着が可能であり、表皮材及び成形品の素材の風合い、感触等を損なうことなく製造でき、加飾シートを表皮材とする成形品加飾の用途に好適である。

#### 【0030】

本発明のホットメルト接着剤用ポリオレフィン系樹脂組成物からなる接着層を介して、加飾シート等の表皮材と基材となる成形品を接着する多層積層体を製造するにあたっては、熱ラミネート、真空成形、真空圧空成形、熱プレス、熱ロール、ホットスタンプ成形など、種々の成形方法を採用できる。中でも真空成形、真空圧空成形、ホットスタンプ成形は、表皮材とアールを有する成形品の接着に適用できる点で好ましい。アールを有する成形品とは、上に例示したような材質の成形品のうち、表皮材と接着する面として、平面円弧状の面を有する成形品を指し、自動車内装や家電筐体の形状骨格をなす成形品である。積層体の製造方法としては、例えば表皮材に接着フィルムを加熱ラミネートしておき、これを各成形に付すことで、成形体の形状に沿って表皮材を積層することができる。熱プレスや熱ロールは、このような成形品の円弧形状を損なう可能性があり好ましくない。特に、真空圧空成形は、表皮と成形品の接着の際、圧空圧をかけることにより、成形品の端部から成形品裏側にかけて表皮材を巻き込ませることができ、さらには、深絞り形状の成形品を被着体とした積層体を製造にも適用できる。

真空成形、真空圧空成形、ホットスタンプ成形を用いる場合、表皮材の成形品への追従性から、接着フィルムの厚みは、25 $\mu\text{m}$ ～100 $\mu\text{m}$ が好ましく、30 $\mu\text{m}$ ～75 $\mu\text{m}$ の厚みがより好ましい。25 $\mu\text{m}$ 未満であると、成形品への接着面積が乏しくなり、接着強度が不十分なものとなり好ましくなく、100 $\mu\text{m}$ を超えると熱伝導性が低下し、表皮材加熱時に所定時間内で充分軟化せず、接着強度が低下する。また、この厚みとすることで、外観の良好な積層体を得られるだけでなく、積層体を高温雰囲気下に置いた場合に表皮材、成形品が膨張、収縮することによって生じる、表皮材のめくれ、横ずれなどの外観不良の発生を抑えることができる。真空圧空成形で得られた積層体は、表皮材が成形品端部から裏面にかけて巻き込んでいることにより、より高温雰囲気下での外観維持が可能である。

#### 【実施例】

#### 【0031】

以下に具体的な実施例および比較例によって本発明をさらに詳細に示すが、本発明は下記実施例に限定されるものではない。下記実施例および比較例中「部」および「%」は、それぞれ「重量部」および「重量%」を表す。

## 【 0 0 3 2 】

(グラフト量分析)

グラフト量の測定については、得られた変性エチレン - プロピレン共重合体ペレットを 110 に加熱したキシレンに溶解した後、そのキシレン溶液を N, N - ジメチルホルムアミド中に滴下し再沈殿物させ、得られた再沈殿物について滴定を行うことにより得た。滴定は、電位差滴定装置 ( 京都電子工業 ( 株 ) 製、A T - 7 0 0 ) を用いて、J I S K 7 2 3 6 に準拠して、過塩素酸による滴定でエポキシ基の定量をすることで行った。

## 【 0 0 3 3 】

(融点の測定)

示差走査型熱量計 ( ( 株 ) 島津製作所製、D T G - 5 0 ) を用い、試料を窒素雰囲気下、220 まで、10 / 分で昇温させた後、40 まで降温した後、220 まで再度 10 / 分で昇温下時に得られた融解吸熱カーブより、観測されたピークのピークトップとして定義される温度を融点とした。

10

## 【 0 0 3 4 】

(貯蔵弾性率 G' の測定)

6 mm x 5 mm x 2 mm の角柱状試験片を用いてせん断モード、測定周波数 10 Hz、昇温速度 4 / 分、測定温度範囲 - 70 ~ 150 の条件にて動的粘弾性測定装置 ( アイティー計測制御株式会社製、D V A - 2 0 0 ) にて測定を実施し、80 および 110 の貯蔵弾性率 G' をそれぞれ記録した。

## 【 0 0 3 5 】

(接着サンプルの作製)

ラミネーター ( フジプラ株式会社製、L A M I P A C K E R L P D 3 2 0 4 ) を用いて、厚み 0.3 mm の A B S 樹脂シート上に接着フィルムをラミネートして接着剤付表皮材とした後、この表皮材を、真空ラミネーター ( ( 株 ) エヌピーシー製、M o d u l e L a m i n a t o r L M - 5 0 x 5 0 - S ) を用いて、P P 基材と接着した。真空ラミネーターの条件は、以下の様に調整した。

温度：150、圧力：2気圧、真空時間：6秒、プレス時間：16秒、保持時間：0秒  
このとき、接着剤層の温度は、114 ~ 118 の範囲まで上昇した。

20

## 【 0 0 3 6 】

得られた積層体を 25 mm 幅にカットし、23 雰囲気中において、引張速度 100 m m / 分で表皮材を積層体に対して 180 度方向に剥離し、強度 ( N / 25 mm ) と破壊状態を試験した。材料破断 ( 表皮材の A B S 樹脂シートの破壊 )、界面剥離 ( 成形品の P P 基材界面からの接着層の剥離 ) で表記した。

30

(耐熱クリープ試験) また同様に、上記の 25 mm 幅にカットした積層体を、基材が水平方向となるようにオープン内に固定し、加飾フィルムの一端に 100 g の分銅を取り付け、80 の雰囲気中で 24 時間経過後の剥離の状況を評価した。その際、分銅と接着端面を結ぶ直線と基材のなす角度は 90 度となる。試験は、N = 5 で実施した。評価基準としては、x : N = 5 とともに剥離距離が 10 mm 以上 ( 評価不良 )、 : N = 5 とともに剥離距離が 10 mm 未満 ( 評価良 ) で判定した。

## 【 0 0 3 7 】

(引張弾性率の測定)

加熱プレス機 ( ( 株 ) 神藤金属工業所製：製品名圧縮成型機 N S F - 5 0 ) にて、所定の加熱温度 ( 200、5 MP a ) の条件で加熱プレスをして、接着性樹脂組成物の約 2 mm 厚のシートを得た。これを J I S K 7 1 1 3 で規定される 2 ( 1 / 3 ) 号ダンベルの大きさに切削し、オートグラフ ( ( 株 ) 島津製作所製：A G S - X ) を用い、下記条件にて応力 - ひずみを調べ、規程された 2 点のひずみ 1 = 0.0005、および 2 = 0.0025 に対応する応力をそれぞれ 1 および 2 とするとき、応力の差 ( 2 - 1 ) をひずみの差 ( 2 - 1 ) で除した値を引張弾性率とし、三回の測定の平均値を採用した。

40

試験温度：23、試験速度：1 mm / m i n、初期チャック間距離：27 mm

50

## 【0038】

(密度の測定)

密度測定器(ミラージュ貿易(株):比重計ED-120T)にて、樹脂ペレットの密度をJIS K7112のA法(水中置換法)に準拠して測定を行った。測定は三回を行い、その平均値を採用した。

## 【0039】

(製造例1)

エチレン-プロピレン共重合体(ダウ・ケミカル日本(株)製:Versify3000;融点118、密度0.891g/cm<sup>3</sup>、引張弾性率440MPa、エチレン含量5%)100部、1,3-ジ(t-ブチルパーオキシイソプロピル)ベンゼン(1分間半減期175)0.5部をシリンダー温度200、回転数150rpmに設定した二軸押出機(46mm、L/D=60、(株)神戸製鋼所製、製品名HYPERKTX46)に供給して熔融混練した後、次いで、シリンダー途中よりメタクリル酸グリシジル3部、スチレン3部を加え熔融混練して変性エチレン-プロピレン共重合体A1を得た。得られた変性エチレン-プロピレン共重合体A1中のメタクリル酸グリシジルのグラフト量は、0.8wt%であった。

上記製造例で得た変性エチレン-オレフィン共重合体A1と、下記実施例で使用したエチレン-オレフィン共重合体B1の物性(密度、融点、引張弾性率、グラフト量、エチレン含量)を表1に示した。

## 【0040】

【表1】

	変性エチレン- αオレフィン共重 合体A1	エチレン-αオレ フィン共重合体B 1
融点 °C	118	140
密度 g/cm <sup>3</sup>	0.89	0.87
引張弾性率 MPa	440	66
グラフト量 重量%	0.8	-
エチレン含量 %	5	12

## 【0041】

実施例1、および比較例1~2

(1)ホットメルト型接着フィルムの製造

(実施例1)

製造例1で得られた変性エチレン-プロピレン共重合体A1、10部と、未変性エチレン-プロピレン共重合体B1(ダウ・ケミカル日本(株)製:Versify4301)90部を、シリンダー温度180に設定した二軸押出機(44mm、L/D=38.5、(株)日本製鋼所製、製品名TEX44XCT)で熔融混練して、接着性樹脂組成物を得た。この接着樹脂組成物をTダイによって厚み60μmのフィルム状に成形し、ホットメルト型接着フィルムを得、上記接着評価と耐熱試験の項目に従って評価した結果を表2に記載した。

(比較例1)

製造例1で得られた変性エチレン-プロピレン共重合体A1、100部をTダイによって厚み60μmのフィルム状に成形し、ホットメルト型接着フィルムを得、上記接着評価と耐熱試験の項目に従って評価した結果を表2に記載した。

(比較例2)

未変性エチレン - プロピレン共重合体 B 1 (ダウ製: Versify 4301) を T ダイによって厚み 60  $\mu\text{m}$  のフィルム状に成形し、ホットメルト型接着フィルムを得、上記接着評価と耐熱試験の項目に従って評価した結果を表 2 に記載した。

【 0 0 4 2 】

【 表 2 】

	実施例	比較例		
	1	1	2	
変性エチレン- $\alpha$ オレフィン共重合体 A1 <sup>1)</sup>	10	100		
エチレン- $\alpha$ オレフィン共重合体 B1 <sup>2)</sup>	90		100	
80°C の貯蔵弾性率(G') [MPa]	1.5	18	0.31	
110°C の貯蔵弾性率(G') [MPa]	0.18	4.3	0.21	
接着評価	180度剥離[N/25mm]	-	8	-
	剥離状態	材料破断	界面剥離	材料破断
80°C耐熱クリープ試験		○	×	×

10

- 1) (株)ダウ・ケミカル日本製: Versify3000のメタクリル酸グリシジルおよびスチレン変性品(製造例1に記載)  
 2) (株)ダウ・ケミカル日本製: Versify4301

---

フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I			
C 0 8 J	5/18	(2006.01)	C 0 8 J	5/18	C E S
C 0 9 J	7/00	(2006.01)	C 0 9 J	7/00	
C 0 9 J	123/16	(2006.01)	C 0 9 J	123/16	
C 0 9 J	125/04	(2006.01)	C 0 9 J	125/04	
C 0 9 J	125/10	(2006.01)	C 0 9 J	125/10	
C 0 9 J	11/08	(2006.01)	C 0 9 J	11/08	

(56)参考文献 特開平09 - 067480 (JP, A)  
特開2002 - 012840 (JP, A)  
国際公開第2011 / 129080 (WO, A1)  
特開平10 - 072574 (JP, A)  
特表平08 - 503722 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)  
C 0 9 J 1 2 3 / 0 8  
C 0 8 J  
C 0 8 L