

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2018年12月6日(06.12.2018)



(10) 国際公開番号

WO 2018/221331 A1

(51) 国際特許分類:

C09D 123/00 (2006.01) *C09D 175/04* (2006.01)
B32B 27/00 (2006.01) *C09J 11/06* (2006.01)
B32B 27/26 (2006.01) *C09J 123/00* (2006.01)
B32B 27/32 (2006.01) *C09J 123/14* (2006.01)
C09D 5/00 (2006.01) *C09J 123/26* (2006.01)
C09D 7/63 (2018.01) *C09J 123/28* (2006.01)
C09D 123/14 (2006.01) *C09J 163/00* (2006.01)
C09D 123/26 (2006.01) *C09J 175/04* (2006.01)
C09D 123/28 (2006.01) *H01M 2/02* (2006.01)
C09D 163/00 (2006.01)

Yuichi); 〒2990265 千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化学株式会社内 Chiba (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人 S S I N P A T (SSINPAT PATENT FIRM); 〒1410031 東京都品川区西五反田七丁目13番6号 五反田山崎ビル6階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(21) 国際出願番号: PCT/JP2018/019746

(22) 国際出願日: 2018年5月23日(23.05.2018)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2017-107899 2017年5月31日(31.05.2017) JP

(71) 出願人: 三井化学株式会社 (MITSUI CHEMICALS, INC.) [JP/JP]; 〒1057122 東京都港区東新橋一丁目5番2号 Tokyo (JP).

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT,

(72) 発明者: 廣田 義人 (HIROTA Yoshihito); 〒2990265 千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化学株式会社内 Chiba (JP). 伊東 祐一 (ITOU

(54) Title: COMPOSITION, COATING AGENT, ADHESIVE, AND LAMINATE

(54) 発明の名称: 組成物、コーティング剤、接着剤及び積層体

(57) Abstract: The present invention addresses the problem of providing the following: a coating agent that exhibits an excellent low-temperature workability, overcoatability, and adhesion and that provides a coating film that has an excellent adhesiveness for polyolefin resin substrates that have not been preliminarily subjected to a surface treatment such as a corona treatment, and at the same time that has a good adhesiveness for highly polar substrates such as acrylic resins; a decorative film having at least one layer comprising this coating agent; and a molded article decorated with this decorative film. The coating agent according to the present invention contains (A) an olefin polymer having a heat of fusion as measured in accordance with JIS K 7122 in the range from 0 to 50 J/g and a weight-average molecular weight (Mw) as measured by GPC of 1×10^4 to $1,000 \times 10^4$ and (B) a semisolid hydrocarbon having a kinematic viscosity at 200 °C of 1,000 to 100,000 mm²/s.

(57) 要約: 本発明の課題は、コロナ処理等の予備的な表面処理がなされていないポリオレフィン系樹脂基材に対しても優れた密着性を有し、同時に、アクリル系樹脂等のような極性の高い基材に対しても良好な密着性を有する塗膜を与えるとともに、低温施工性、上塗り適性および粘着力に優れたコーティング剤、該コーティング剤よりなる層を少なくとも1層有する加飾フィルム、および該加飾フィルムによって加飾された成形体を提供することにある。本発明のコーティング剤は、JIS K 7122に従って測定した融解熱量が0~50 J/gの範囲にあり、かつGPC法により測定した重量平均分子量 (Mw) が $1 \times 10^4 \sim 1000 \times 10^4$ であるオレフィン重合体 (A) と、200°C動粘度が1,000~100,000 mm²/sの半固体状炭化水素 (B) とを含有する。



WO 2018/221331 A1

LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS,
SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM,
GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

- 一 国際調査報告（条約第21条(3)）

明 細 書

発明の名称：組成物、コーティング剤、接着剤及び積層体

技術分野

[0001] 本発明は組成物、コーティング剤、接着剤及び積層体に関し、より詳細には、塗料、プライマー、接着剤、粘着剤として有用なコーティング剤、加飾フィルム、成形体、包材、電池ケース用包材および電池に関する。

背景技術

[0002] ポリプロピレン、ポリエチレン等のポリオレフィン系樹脂は、安価で成形性、耐薬品性、耐水性、電気特性、安全性など多くの優れた性質を有するため、広く用いられている。しかしながら、ポリオレフィン系樹脂は、極性の低い疎水的な材料であるため、アクリル系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ABS樹脂等の極性樹脂を密着させることは困難である。したがって、ポリオレフィン系樹脂の表面に上記極性樹脂を積層させたり、またインキ、塗料等で加飾を施したりすることは困難なのが現状である。

[0003] また、種々の形状を有する成形体に、意匠層を有するフィルム（加飾フィルム）を貼合して加飾する方法が知られている。一般的に上記意匠層にはウレタン系樹脂やアクリル系樹脂などの極性の高い樹脂が基材として用いられる。したがって、ポリプロピレン等のポリオレフィン系樹脂の成形体に対して加飾フィルムを貼合する場合には、ポリオレフィン系樹脂とウレタン系樹脂やアクリル系樹脂などの極性の高い意匠層とを密着させる接着層が求められる。

[0004] 本出願人は、ポリオレフィン系樹脂に対する優れた密着性と同時に、アクリル系樹脂等のような極性の高い基材に対しても良好な密着性を有する塗膜を与えるコーティング剤として、特定のオレフィン重合体と特定の炭化水素系合成油を含有するコーティング剤を提案している（特許文献1）。

[0005] また、リチウムイオン2次電池の包材（電池ケース用包材）として、基材

であるアルミニウム箔層と、接着剤層と、被着体であるポリプロピレンなどの熱可塑性樹脂製フィルム層（内層）とがこの順で積層された積層体を用いることが知られている。前記接着剤層として、特許文献2～5には、変性オレフィン樹脂とエポキシ化合物またはオキサゾリン化合物とを含む接着剤から得られる層が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：国際公開第2013/164976号パンフレット

特許文献2：特開2001-57181号公報

特許文献3：特開2012-216364号公報

特許文献4：特許第5664836号公報

特許文献5：特許第5700166号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 特許文献1に記載のコーティング剤は、良好な密着性を有するものの、さらなる改良が求められていた。具体的には、低温での施工性（ドライラミネーション等）の向上（ラミネート温度の低減）、プライマーとしての上塗り適性の向上（ハジキなく塗装でき、かつ、密着性が良好）、および、高粘着化（ディスプレイ用粘着テープや粘着シートのように非加熱で感圧接着剤としての使用）などが挙げられる。

[0008] また、前記特許文献2～5に記載の接着剤から得られる接着剤層は、基材や被着体、例えば、アルミニウム箔やポリプロピレンフィルムなどとの接着強度が十分ではなく、低温で接着剤層を形成する際、特に低温（例：80℃以下）養生条件で接着剤を硬化させる際には、得られる接着剤層の接着強度が十分ではなかった。

[0009] 本発明は、コロナ処理等の予備的な表面処理がなされていないポリオレフィン系樹脂基材に対しても優れた密着性を有し、同時に、アクリル系樹脂等

のような極性の高い基材に対しても良好な密着性を有する塗膜を与えるとともに、低温施工性、上塗り適性および粘着力に優れたコーティング剤、該コーティング剤よりなる層を少なくとも1層有する加飾フィルム、および該加飾フィルムによって加飾された成形体を提供することを目的の一つとする。

[0010] また、本発明は、アルミニウム箔等の基材および熱可塑性樹脂製フィルム等の被着体との接着強度に優れる接着剤層、特に低温養生条件下でも接着強度に優れる接着剤層を形成することのできるコーティング剤、および該接着剤層を含む積層体等を提供することも目的の一つとする。

課題を解決するための手段

[0011] 本発明者らは、上記状況に鑑み鋭意検討した結果、特定の低結晶性オレフィン重合体に特定の動粘度を有する半固体状炭化水素を配合してなるコーティング剤により、上記課題を解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0012] 本発明のコーティング剤は、JIS K 7122に従って測定した融解熱量が0～50 J/gの範囲にあり、かつGPC法により測定した重量平均分子量(Mw)が $1 \times 10^4 \sim 1000 \times 10^4$ であるオレフィン重合体(A)と、

200℃動粘度が1,000～100,000 mm²/sの半固体状炭化水素(B)と

を含有することを特徴とする。

発明の効果

[0013] 本発明のコーティング剤は、ポリオレフィン系樹脂基材に対する優れた密着性と同時に、アクリル系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ABS樹脂等のような極性の高い基材に対しても良好な密着性を有する塗膜を与えるとともに、低温施工性、上塗り適性および粘着力に優れている。

[0014] 本発明の加飾フィルムは、ポリオレフィン系樹脂基材に対する優れた密着性と同時に、アクリル系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリカーボネート系樹脂

脂、ABS樹脂等のような極性の高い基材に対しても良好な密着性を有する。

[0015] 本発明の成形体は、上記加飾フィルムによって加飾されているため、加飾フィルムと基材との密着性が高い。

[0016] また、本発明の一実施形態によれば、接着強度および耐薬品性（耐電解液性）に優れる接着剤層を得ることができ、特に、アルミニウム箔層とポリプロピレンなどの熱可塑性樹脂製フィルム層とを高い強度で接着することができる。

[0017] さらに、本発明の一実施形態によれば、接着強度に優れる接着剤層を低温養生条件下でも容易に形成することができ、耐久性に優れ、接着強度の低下が十分に抑制された積層体、包材および電池ケース用包材等を容易に、例えば、ドライラミネート法で形成することができる。

図面の簡単な説明

[0018] [図1]図1は、本発明の電池の一実施形態の概略断面図である。

発明を実施するための形態

[0019] 以下、本発明について詳細に説明する。

[0020] [コーティング剤]

本発明のコーティング剤は、JIS K 7122に従って測定した融解熱量が0～50 J/gの範囲にあり、かつGPC法により測定した重量平均分子量(Mw)が $1 \times 10^4 \sim 1000 \times 10^4$ であるオレフィン重合体(A)と、200℃動粘度が1,000～100,000 mm²/sの半固体状炭化水素(B)とを含有する。

[0021] 本発明のコーティング剤は、さらに、JIS K 0070に従って求まる酸価が10以上であり、かつGPC法により測定した重量平均分子量(Mw)が $1 \times 10^3 \sim 3 \times 10^3$ である粘着付与剤(C)および/または硬化剤(D)を含有してもよく、前記硬化剤(D)を含有する場合、さらに、pKaが11以上である触媒(E)を含有してもよい。

[0022] <オレフィン重合体(A)>

本発明で用いられるオレフィン重合体（A）は、J I S K 7 1 2 2に従って測定した融解熱量が0～50 J/gの範囲にあり、かつGPC法により測定した重量平均分子量（Mw）が $1 \times 10^4 \sim 1000 \times 10^4$ である。すなわち、本発明のコーティング剤では、オレフィン重合体（A）として、ある程度結晶性の低いものが用いられる。なお、本明細書においては、後述する「半固体状炭化水素（B）」との区別のため、オレフィン重合体（A）を、「低結晶性オレフィン樹脂（A）」または「低結晶性オレフィン樹脂」と称する場合がある。

[0023] ここで、融解熱量はJ I S K 7 1 2 2に従って、示差走査熱量測定（DSC測定）によって求めることができ、具体的には、10℃/分の昇温過程で得られるサーモグラムのピーク面積から算出される。その測定に際して、本発明においては、測定前の熱履歴をキャンセルする目的で、測定前に10℃/分で融点+20℃以上に昇温し、その温度で3分保持し、次いで10℃/分で室温以下まで降温後に融解熱量の測定を行う。

[0024] 前記融解熱量は、0 J/g以上50 J/g以下であり、下限は好ましくは3 J/g、より好ましくは5 J/gであり、上限は好ましくは40 J/g以下、より好ましくは30 J/g以下である。50 J/g以下であれば、本発明のコーティング剤を溶媒に溶解させた状態、すなわちワニス状態での安定性が良好であり、固化、析出が起こりにくいため好ましい。一方、塗膜の強度、耐タック性の点からは、融解熱量の下限がより高い方が好ましい。

[0025] 本発明に用いられるオレフィン重合体（A）のGPC法により測定した重量平均分子量は、ポリスチレン換算で 1×10^4 以上 1000×10^4 以下、更に好ましくは 2×10^4 以上 100×10^4 以下、より好ましくは 3×10^4 以上 50×10^4 以下である。重量平均分子量が 1×10^4 以上であると、塗膜の強度を十分高くすることができ、また密着強度が良好であるため好ましい。一方、重量平均分子量が 1000×10^4 以下であればワニス状態での安定性が良好であり、固化、析出が起こりにくいため好ましい。とりわけ、オレフィン重合体（A）の重量平均分子量が小さい値であると（例えば 50×10^4 以

下の場合には)、特に、接着性能が優れる傾向にある。

[0026] 本発明に用いられるオレフィン重合体(A)は、上記の融解熱量及び重量平均分子量の要件を満たす限り特に限定されるものではないが、例えば、 α -オレフィンの単独重合体または2以上の α -オレフィンの共重合体が挙げられる。 α -オレフィンとして、炭素数2~20の α -オレフィンが例示され、例えばエチレン、プロピレン、1-ブテン、オクテン、4-メチル-1-ペンテン等が挙げられる。すなわち、オレフィン重合体(A)として、炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体が挙げられる。

[0027] さらに、オレフィン重合体(A)は、前記 α -オレフィン由来の構成単位を100モル%とした場合に、さらに10モル%以下の範囲で、 α -オレフィン以外の不飽和単量体(以下「他の不飽和単量体」)由来の構成単位を有していても良い。ここで、他の不飽和単量体としては例えばブタジエン、イソプレンなどの共役ポリエン類や、1,4-ヘキサジエン、1,7-オクタジエン、ジシクロペンタジエン、5-エチリデン-2-ノルボルネン、5-ビニル-2-ノルボルネン、5-メチレン-2-ノルボルネン、2,5-ノルボナジエンなどの非共役ポリエン類が挙げられる。オレフィン重合体(A)が2種以上の α -オレフィン由来の構成単位を含む共重合体である場合、ランダム共重合体でもブロック共重合体でもよい。

[0028] さらに上記オレフィン重合体(A)は、例えば上記 α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体または共重合体に、水酸基、無水カルボン酸、-COOX(X:H、M)(Hは水素、Mはアルカリ金属、アルカリ土類金属、アミン類由来の陽イオン)等を含有する不飽和単量体をグラフト反応させて得られる変性オレフィン重合体であってもよく、あるいは、上記 α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体または共重合体をさらにハロゲン化して得られるハロゲン化オレフィン重合体であってもよい。

[0029] このようなオレフィン重合体(A)のうち、本発明で好適に用いられるものとして、以下の(A1)~(A3)からなる群より選ばれる1種以上が挙げられる:

(A1) 炭素数2～20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体（以下「重合体(A1)」と称する。）；

(A2) 炭素数2～20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体であって、その一部または全部が極性基含有単量体でグラフト変性されてなる変性オレフィン系重合体（以下「変性オレフィン系重合体(A2)」と称する。）；

(A3) 炭素数2～20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体であって、その一部または全部がハロゲン化変性されてなるハロゲン化オレフィン系重合体（以下「ハロゲン化オレフィン系重合体(A3)」と称する。）。

[0030] ・重合体(A1)

重合体(A1)としては、前記した炭素数2～20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体が挙げられる。すなわち、本発明においては、炭素数2～20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体を、グラフト変性及びハロゲン化変性等の変性処理を行うことなく、そのまま重合体(A1)としてオレフィン重合体(A)に用いてもよい。その意味で、重合体(A1)は、未変性重合体(A1)と呼ぶこともでき、後述する「変性オレフィン系重合体(A2)」および「ハロゲン化オレフィン系重合体(A3)」と区別される。

[0031] ここで、本発明の好適な態様において、重合体(A1)は、炭素数2～20の α -オレフィン由来の構成単位の合計を100モル%としたときに、プロピレン由来の構成単位を50～100モル%と、プロピレンを除く炭素数2～20の α -オレフィン由来の構成単位を50～0モル%とを含有するプロピレン系重合体(A1'')である。ここで、「プロピレンを除く炭素数2～20の α -オレフィン」の好適な例として、1-ブテン、オクテンなどが挙げられる。ここで炭素数2～20の α -オレフィン由来の構成単位の合計を100モル%としたときに、プロピレン由来の構成単位は好ましくは55～90モル%、より好ましくは60～85モル%、さらに好ましくは60～

80モル%であり、プロピレンを除く炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位は好ましくは45~10モル%、より好ましくは40~15モル%、さらに好ましくは40~20モル%とを含有するプロピレン系重合体がより好ましい。

[0032] 本発明では、このような重合体(A1)を、1種単独で用いてもよく、あるいは、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0033] また、本発明で用いられるこのような重合体(A1)は、オレフィン重合体(A)全体として上記融解熱量および上記重量平均分子量(Mw)を満たす限り、製造方法に限定はなく、従来公知の方法によって得ることができ、例えば、特許3939464号および国際公開2004/87775号パンフレットに記載の方法に従って製造することができる。ここで、本発明において重合体(A1)として好適に用いられるプロピレン・1-ブテン共重合体を例にとると、このようなプロピレン・1-ブテン共重合体は、例えば、 r ac-ジメチルシリレンービス {1-(2-メチル-4-フェニルインデニル)} ジルコニウムジクロライドなどの適当なメタロセン化合物と、アルミノキサンなどの有機アルミニウムオキシ化合物と、必要に応じて用いられるトリブチルアルミニウムなどの有機アルミニウム化合物とからなるメタロセン系触媒存在下で、プロピレンと1-ブテンを共重合させることにより得ることができる。

[0034] ・変性オレフィン系重合体(A2)

変性オレフィン系重合体(A2)としては、前記した炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体であって、その一部または全部が極性基含有単量体でグラフト変性されてなる変性オレフィン系重合体が挙げられる。そして好ましくは当該変性オレフィン系重合体100重量部に対して、極性基含有単量体由来の構成単位を0.1~15重量部、より好ましくは0.5~10重量部含む重合体である。たとえば、本発明においては、炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体(A1a)を、一旦極性基含有単量体でグラフト変性し、これによって得られるグラフト変

性オレフィン系重合体 (A 2 m) そのものを変性オレフィン系重合体 (A 2)) としてオレフィン重合体 (A) に用いることができる。ここで、重合体 (A 1 a) としては、上記重合体 (A 1) と同様のものが挙げられる。

[0035] また、変性オレフィン系重合体 (A 2) は、上記のような重合体 (A 1 a) のグラフト変性物、すなわちグラフト変性オレフィン系重合体 (A 2 m) と、未変性の重合体 (A 1 a) とを混合して、変性オレフィン系重合体組成物の形で用いられるものであっても良い。このような場合、グラフト変性オレフィン系重合体 (A 2 m) を得るためのグラフト変性に用いる重合体 (A 1 a) と未変性のまま用いる重合体 (A 1 a) とは同一でも異なってもよい。そしてこの場合が、炭素数 2 ~ 20 の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体であって、その一部が極性基含有単量体でグラフト変性されるものの一例である。

[0036] 上記で用いることのできる重合体 (A 1 a) の重量平均分子量は、対応する変性オレフィン系重合体 (A 2) 全体として前記重量平均分子量を満たせば特に制限はないが、通常 $1 \times 10^4 \sim 1000 \times 10^4$ の範囲であり、好ましくは 2×10^4 以上 100×10^4 以下、より好ましくは 3×10^4 以上 50×10^4 以下である。また J I S K 7 1 2 2 に従って測定される融解熱量は、変性オレフィン系重合体 (A 2) が前記重量平均分子量を満たせば特に制限はないが、前記融解熱量は、 0 J/g 以上 50 J/g 以下であり、下限は好ましくは 3 J/g 、より好ましくは 5 J/g であり、上限は好ましくは 40 J/g 以下、より好ましくは 30 J/g 以下である。また、本発明で用いられる変性オレフィン系重合体 (A 2) において、グラフト変性オレフィン系重合体 (A 2 m) と、任意で用いられる未変性の重合体 (A 1 a) との合計 100 重量部に対し、極性基含有単量体由来の構成単位を 0.1 ~ 15 重量部含むことが好ましい。

[0037] 本発明において、変性オレフィン系重合体 (A 2) を構成するグラフト変性オレフィン系重合体 (A 2 m) を得るために、重合体 (A 1 a) に極性基含有単量体をグラフト共重合する。極性基含有単量体としては、水酸基含有

エチレン性不飽和化合物、アミノ基含有エチレン性不飽和化合物、エポキシ基含有エチレン性不飽和化合物、不飽和カルボン酸とその無水物およびその誘導体、ビニルエステル化合物、塩化ビニル等を挙げることができるが、不飽和カルボン酸およびその無水物が好ましい。

[0038] 水酸基含有エチレン性不飽和化合物としては、たとえば、ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、3-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピル（メタ）アクリレート、3-クロロ-2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、グリセリンモノ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールモノ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパンモノ（メタ）アクリレート、テトラメチロールエタンモノ（メタ）アクリレート、ブタンジオールモノ（メタ）アクリレート、ポリエチレングリコールモノ（メタ）アクリレート、2-（6-ヒドロヘキサノイルオキシ）エチルアクリレート等の水酸基含有（メタ）アクリル酸エステルおよび10-ウンデセン-1-オール、1-オクテン-3-オール、2-メタノールノルボルネン、ヒドロキシスチレン、N-メチロールアクリルアミド、2-（メタ）アクロイルオキシエチルアシッドフォスフェート、グリセリンモノアリルエーテル、アリルアルコール、アリロキシエタノール、2-ブテン-1, 4-ジオール、グリセリンモノアルコール等を挙げることができる。

[0039] アミノ基含有エチレン性不飽和化合物としては、下式で表されるようなアミノ基または置換アミノ基を少なくとも1種類有するビニル系単量体を挙げることができる。

[0040] $-NR_1R_2$

式中、 R_1 は水素原子、メチル基またはエチル基であり、 R_2 は、水素原子、炭素数1~12、好ましくは炭素数1~8のアルキル基、炭素数8~12、好ましくは6~9のシクロアルキル基である。なお、上記のアルキル基、シクロアルキル基は、さらに置換基を有してもよい。

[0041] このようなアミノ基含有エチレン性不飽和化合物としては、例えば、（メ

タ) アクリル酸アミノメチル、(メタ)アクリル酸プロピルアミノエチル、メタクリル酸ジメチルアミノエチル、(メタ)アクリル酸アミノプロピル、メタクリル酸フェニルアミノメチル、メタクリル酸シクロヘキシルアミノエチル等のアクリル酸またはメタクリル酸のアルキルエステル系誘導体類、N-ビニルジエチルアミン、N-アセチルビニルアミン等のビニルアミン系誘導体類、アクリルアミド、メタクリルアミド、N-メチルアクリルアミド、N,N-ジメチルアクリルアミド、N,N-ジメチルアミノプロピルアクリルアミド等のアクリルアミド系誘導体等のイミド類を挙げることができる。

[0042] エポキシ基含有エチレン性不飽和化合物としては、1分子中に重合可能な不飽和結合基及びエポキシ基を少なくとも1個以上有するモノマーが用いられる。

[0043] このようなエポキシ基含有エチレン性不飽和化合物としては、たとえば、グリシジルアクリレート、グリシジルメタクリレート等の不飽和カルボン酸のグリシジルエステル、あるいはマレイン酸、フマル酸、クロトン酸、テトラヒドロフタル酸、イタコン酸、シトラコン酸、エンドーシスービスクロ [2, 2, 1] ヘプト-5-エン-2, 3-ジカルボン酸 (ナジック酸™)、エンドーシスービスクロ [2, 2, 1] ヘプト-5-エン-2-メチル-2, 3-ジカルボン酸 (メチルナジック酸™) 等の不飽和ジカルボン酸のモノグリシジルエステル (モノグリシジルエステルの場合のアルキル基の炭素数 1 ~ 12)、p-スチレンカルボン酸のアルキルグリシジルエステル、アリルグリシジルエーテル、2-メチルアリルグリシジルエーテル、スチレン-p-グリシジルエーテル、3, 4-エポキシ-1-ブテン、3, 4-エポキシ-3-メチル-1-ブテン、3, 4-エポキシ-1-ペンテン、3, 4-エポキシ-3-メチル-1-ペンテン、5, 6-エポキシ-1-ヘキセン、ビニルシクロヘキセンモノオキシド等を挙げることができる。

[0044] 不飽和カルボン酸類としては、たとえば、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、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、ノルボルネンジカルボン酸、ビスクロ [2,

2, 1] ヘプト-2-エン-5, 6-ジカルボン酸等の不飽和カルボン酸またはこれらの誘導体（例えば酸無水物、酸ハライド、アミド、イミド、エステル等）を挙げることができる。

[0045] 不飽和カルボン酸の誘導体としては、例えば、塩化マレニル、マレニルイミド、無水マレイン酸、無水イタコン酸、無水シトラコン酸、テトラヒドロ無水フタル酸、ビスクロ [2, 2, 1] ヘプト-2-エン-5, 6-ジカルボン酸無水物、マレイン酸ジメチル、マレイン酸モノメチル、マレイン酸ジエチル、フマル酸ジエチル、イタコン酸ジメチル、シトラコン酸ジエチル、テトラヒドロフタル酸ジメチル、ビスクロ [2, 2, 1] ヘプト-2-エン-5, 6-ジカルボン酸ジメチル、ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、グリシジル（メタ）アクリレート、メタクリル酸アミノエチルおよびメタクリル酸アミノプロピル等を挙げることができる。

[0046] ビニルエステル化合物としては、たとえば、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、*n*-酪酸ビニル、イソ酪酸ビニル、ピバリン酸ビニル、カプロン酸ビニル、パーサティック酸ビニル、ラウリル酸ビニル、ステアリン酸ビニル、安息香酸ビニル、サリチル酸ビニル、シクロヘキサンカルボン酸ビニル等を挙げることができる。

[0047] これらの極性基含有単量体は単独あるいは複数で使用することができる。

[0048] また、グラフト変性オレフィン系重合体（A 2 m）をそのまま変性オレフィン系重合体（A 2）として用いる場合、上記極性基含有単量体はグラフト変性オレフィン系重合体（A 2 m）100重量部に対し、0.1～15重量部、好ましくは0.5～10重量部となるようにグラフト共重合されるのが好ましい。

[0049] これらの極性基含有単量体の含有率は、オレフィン重合体と極性基含有単量体とをラジカル開始剤などの存在下に反応させる際の仕込み比で調整することができ、¹H NMR測定などの公知の手段で求めることができる。具体的なNMR測定条件としては、以下の様な条件を例示できる。

[0050] ^1H NMR測定の場合、日本電子（株）製ECX400型核磁気共鳴装置を用い、溶媒は重水素化オルトジクロロベンゼンとし、試料濃度 $20\text{ mg}/0.6\text{ mL}$ 、測定温度は 120°C 、観測核は ^1H （ 400 MHz ）、シーケンスはシングルパルス、パルス幅は $5.12\ \mu\text{s}$ （ 45° パルス）、繰り返し時間は 7.0 秒、積算回数は 500 回以上とする条件である。基準のケミカルシフトは、テトラメチルシランの水素を 0 ppm とするが、例えば、重水素化オルトジクロロベンゼンの残存水素由来のピークを 7.10 ppm としてケミカルシフトの基準値とすることでも同様の結果を得ることが出来る。官能基含有化合物由来の ^1H などのピークは、常法によりアサインできる。

[0051] また、上記極性基含有単量体として、上記不飽和カルボン酸およびその無水物など酸性官能基を有する単量体を用いた場合、変性オレフィン系重合体（A2）に導入された官能基の量の目安となる量として、例えば酸価を用いることも可能である。ここで、酸価の測定方法としては、以下のものが挙げられる。

[0052] （酸価の測定）

基本操作はJIS K-2501-2003に準ずる。

[0053] 変性オレフィン重合体 約 10 g を正確に測り取り、 200 mL トールビーカーに投入する。そこに滴定溶剤として、キシレンとジメチルホルムアミドとを $1:1$ （体積比）で混合してなる混合溶媒を 150 mL 添加する。指示薬として $1\text{ w}/\text{v}\%$ のフェノールフタレインエタノール溶液（和光純薬工業社製）を数滴加え、液温を 80°C に加熱して、試料を溶解させる。液温が 80°C で一定になった後、 $0.1\text{ mol}/\text{L}$ の水酸化カリウムの2-プロパノール溶液（和光純薬工業社製）を用いて滴定を行い、滴定量から酸価を求める。

[0054] 計算式は

酸価（ $\text{mg KOH}/\text{g}$ ） = $(EP1 - BL1) \times FA1 \times C1 / SIZE$
である。

[0055] ここで、上記計算式において、EP1は滴定量（ mL ）、BL1はブラン

ク値 (mL)、FA1は滴定液のファクター (1.00)、C1は濃度換算値 (5.611 mg/mL : 0.1 mol/L KOH 1 mLの水酸化カリウム相当量)、SIZEは試料採取量 (g) をそれぞれ表す。

[0056] この測定を3回繰り返して平均値を酸価とする。

[0057] 変性オレフィン系重合体 (A2) の酸価は、0.1~100 mg KOH/gであることが望ましく、0.5~60 mg KOH/gであることがより好ましく、0.5~30 mg KOH/gであることがさらに好ましい。ここで、グラフト変性オレフィン系重合体 (A2m) と未変性の重合体 (A1a) とを混合してなる変性オレフィン系重合体組成物が変性オレフィン系重合体 (A2) として用いられる場合、当該変性オレフィン系重合体組成物全体として上記のような酸価を有することが好ましい。

[0058] また、上記極性基含有単量体として無水マレイン酸を用いる場合には、赤外分光光度計を用いて 1790 cm^{-1} 付近に検出される無水マレイン酸のカルボニル基の吸収に基づいてグラフト量を求めることもできる。

[0059] 上記重合体 (A1a) に、上記極性基含有単量体から選ばれる少なくとも1種の極性基含有単量体をグラフト共重合させる方法として、種々の方法を挙げることができる。たとえば、重合体 (A1a) を有機溶媒に溶解し、上記極性基含有単量体およびラジカル重合開始剤を添加して加熱、攪拌してグラフト共重合反応させる方法、重合体 (A1a) を加熱溶融して、得られる溶融物に上記極性基含有単量体およびラジカル重合開始剤を添加し、攪拌してグラフト共重合させる方法、上記重合体 (A1a)、上記極性基含有単量体およびラジカル重合開始剤を予め混合し、得られる混合物を押出機に供給して加熱混練しながらグラフト共重合反応させる方法、重合体 (A1a) に、上記極性基含有単量体およびラジカル重合開始剤を有機溶媒に溶解してなる溶液を含浸させた後、エチレン・ α -オレフィンランダム共重合体が溶解しない最高の温度まで加熱し、グラフト共重合反応させる方法などを挙げることができる。

[0060] 反応温度は、50℃以上、特に80~200℃の範囲が好適であり、反応

時間は1分～10時間程度である。

- [0061] 反応方式は、回分式、連続式のいずれでも良いが、グラフト共重合を均一に行うためには回分式が好ましい。
- [0062] 使用するラジカル重合開始剤は、上記重合体（A1a）と上記極性基含有単量体との反応を促進するものであれば何でも良いが、特に有機ペルオキシド、有機ペルエステルが好ましい。
- [0063] 具体的には、ベンゾイルペルオキシド、ジクロロベンゾイルペルオキシド、ジクミルペルオキシド、ジ-tert-ブチルペルオキシド、2,5-ジメチル-2,5-ジ（ペルオキシベンゾエート）ヘキシン-3,1,4-ビス（tert-ブチルペルオキシイソプロピル）ベンゼン、ラウロイルペルオキシド、tert-ブチルペルアセテート、2,5-ジメチル-2,5-ジ（tert-ブチルペルオキシ）ヘキシン-3,2,5-ジメチル-2,5-ジ（tert-ブチルペルオキシド）ヘキサン、tert-ブチルベンゾエート、tert-ブチルペルフェニルアセテート、tert-ブチルペルイソブチレート、tert-ブチルペル-sec-オクトエート、tert-ブチルペルピバレート、クミルペルピバレートおよびtert-ブチルペルジエチルアセテートがあり、その他アゾ化合物、たとえば、アゾビス-イソブチルニトリル、ジメチルアゾイソブチルニトリルがある。
- [0064] これらのうちでは、ジクミルペルオキシド、ジ-tert-ブチルペルオキシド、2,5-ジメチル-2,5-ジ（tert-ブチルペルオキシ）ヘキシン-3,2,5-ジメチル-2,5-ジ（tert-ブチルペルオキシ）ヘキサン、1,4-ビス（tert-ブチルペルオキシイソプロピル）ベンゼン等のジアルキルペルオキシドが好ましい。
- [0065] ラジカル重合開始剤は、上記重合体（A1a）100重量部に対して、0.001～10重量部程度の量で使用されることが好ましい。
- [0066] また、上記グラフト変性オレフィン系重合体（A2m）と、未変性の重合体（A1a）とを混合してなる変性オレフィン系重合体組成物を変性オレフィン系重合体（A2）として用いる場合には、グラフト変性オレフィン系重

合体（A 2 m）と未変性の重合体（A 1 a）との合計 100 重量部に対し、グラフトされた極性基含有単量体が、0.1～15 重量部、好ましくは 0.5～10 重量部となるように調製するのが好ましい。

[0067] グラフト反応は前記の通り、有機溶剤中、または無溶媒で行うことができるが、本発明においては変性オレフィン系重合体（A 2）としてグラフト変性オレフィン系重合体（A 2 m）そのものをオレフィン重合体（A）として用いる場合、通常、当該変性オレフィン系重合体（A 2）を有機溶剤に溶解した組成物を接着剤等として使用するの、有機溶剤中で反応した場合はそのまま、またはさらに同種または他種の有機溶剤を加えてコーティング剤等を調製することも可能である。有機溶剤を用いずにグラフト反応を行った場合には、あらかじめ有機溶剤を添加してグラフト生成物を溶解し、本発明のコーティング剤等とする。

[0068] また、重合体（A 1 a）のグラフト変性物であるグラフト変性オレフィン系重合体（A 2 m）と、未変性の重合体（A 1 a）とを混合して変性オレフィン系重合体（A 2）として用いる場合には、あらかじめ混合しておいてからコーティング剤の調製に用いても良いし、コーティング剤の調製時に溶媒中で混合してもよい。

[0069] このように反応時、または反応後に加えて、本発明のコーティング剤を調製するための有機溶媒としては、特に限定されないが、たとえば、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、デカン等の脂肪族炭化水素、シクロヘキサン、シクロヘキセン、メチルシクロヘキサン、エチルシクロヘキサン、デカヒドロナフタリン等の脂環式炭化水素、メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、プロパンジオール、フェノール等のアルコール、アセトン、メチルイソブチルケトン、メチルエチルケトン、ペンタノン、ヘキサノン、イソホロン、アセトフェノン等のケトン系溶媒、メチルセルソルブ、エチルセルソルブ等のセルソルブ類、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸ブチル、プロピオン酸メチル、ギ酸ブチル等のエステル類、トリクロルエ

チレン、ジクロルエチレン、クロルベンゼン等のハロゲン化炭化水素等を挙げることができる。この中では、芳香族炭化水素、脂肪族炭化水素、ケトン類が好ましい。これらは1種単独でも2種以上組み合わせてもよい。

[0070] 以上の方法により、変性オレフィン系重合体(A2)を構成するグラフト変性オレフィン系重合体(A2m)が得られるが、本発明では、このようなグラフト変性オレフィン系重合体(A2m)を、1種単独で用いてもよく、あるいは、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0071] 変性オレフィン系重合体(A2)が、2種以上のグラフト変性オレフィン系重合体(A2m)から構成される場合、好ましくは当該2種以上のグラフト変性オレフィン系重合体(A2m)の合計と、任意で用いられる未変性の重合体(A1a)との合計100重量部に対し、グラフトされた極性基含有単体が、0.1~15重量部、好ましくは0.5~10重量部となるように調製するのが好ましい。

[0072] また、本発明の好適な態様において、変性オレフィン系重合体(A2)は、炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位の合計を100モル%としたときに、プロピレン由来の構成単位を50~100モル%と、プロピレンを除く炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位を50~0モル%とを含有する重合体である。ここで、「プロピレンを除く炭素数2~20の α -オレフィン」の好適な例として、1-ブテン、オクテンなどが挙げられる。ここでより好適な態様としては、炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位の合計を100モル%としたときに、プロピレン由来の構成単位の含有量は好ましくは55~90モル%、より好ましくは60~85モル%、さらに好ましくは60~80モル%であり、プロピレンを除く炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位の含有量は好ましくは45~10モル%、より好ましくは40~15モル%、さらに好ましくは40~20モル%である。

[0073] 従って、本発明の(A2)炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体であって、その一部または全部が極性基含有単体でグラフト

ト変性されてなる変性オレフィン系重合体には、当該変性オレフィン系重合体100重量部に対して、極性基含有単量体由来の構成単位を0.1~15重量部含む変性オレフィン系重合体(A2')；当該変性オレフィン系重合体が、炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位の合計を100モル%としたときに、プロピレン由来の構成単位を50~100モル%と、プロピレンを除く炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位を50~0モル%とを含有する重合体である変性オレフィン系重合体、及び前記グラフト量の要件と構成単位の種類・量の要件との両方を満たす変性オレフィン系重合体(A2'')のいずれも含まれる。

[0074] ・ハロゲン化オレフィン系重合体(A3)

ハロゲン化オレフィン系重合体(A3)としては、前記した炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体の一部または全部がハロゲン化変性されてなるハロゲン化オレフィン系重合体が挙げられる。たとえば、本発明においては、炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体(A1b)を、一旦ハロゲン化変性し、これによって得られるハロゲン化変性オレフィン系重合体(A3m)を、ハロゲン化オレフィン系重合体(A3)としてオレフィン重合体(A)に用いることができる。ここで、重合体(A1b)としては、上記重合体(A1)と同様のものが挙げられる。

[0075] 重合体(A3)は、好ましくは炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体であって、その一部または全部がハロゲン化変性されてなるハロゲン化変性オレフィン重合体であり、当該ハロゲン化変性オレフィン重合体100重量部に対してハロゲン含有量が2~40重量部であるハロゲン化変性オレフィン系重合体である。

[0076] また重合体(A3)は、炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位の合計を100モル%としたときに、プロピレン由来の構成単位を50~100モル%と、プロピレンを除く炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位を50~0モル%とを含有するプロピレン系重合体であることが好ま

しい。ここで、「プロピレンを除く炭素数2～20の α -オレフィン」の好適な例として、1-ブテン、オクテンなどが挙げられる。

[0077] 従って、本発明の(A3)炭素数2～20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体であって、その一部または全部がハロゲン化変性されてなるハロゲン化変性オレフィン系重合体には、当該ハロゲン化変性オレフィン系重合体100重量部に対して、ハロゲン含有量が2～40重量部であるハロゲン化変性オレフィン系重合体(A3')；当該ハロゲン化変性オレフィン系重合体が、炭素数2～20の α -オレフィン由来の構成単位の合計を100モル%としたときに、プロピレン由来の構成単位を50～100モル%と、プロピレンを除く炭素数2～20の α -オレフィン由来の構成単位を50～0モル%とを含有する重合体である変性オレフィン系重合体、及び前記ハロゲン化変性量の要件と構成単位の種類・量の要件との両方を満たすハロゲン化変性オレフィン系重合体(A3'')のいずれも含まれる。

[0078] また、ハロゲン化オレフィン系重合体(A3)は、上記のような重合体(A1b)のハロゲン化変性物、すなわちハロゲン化変性オレフィン系重合体(A3m)と、未変性の重合体(A1b)とを混合して、ハロゲン化変性オレフィン系重合体組成物の形で用いられるものであってもよい。このような場合、ハロゲン化変性オレフィン系重合体(A3m)を得るためのハロゲン化変性に用いる重合体(A1b)と未変性のまま用いる重合体(A1b)とは同一でも異なっても良い。そしてこの場合が、炭素数2～20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体の一部が極性基含有単量体でハロゲン化変性されてなるものの一例である。

[0079] 上記で用いることのできる重合体(A1b)の重量平均分子量は、ハロゲン化オレフィン系重合体(A3)全体として前記重量平均分子量を満たせば特に制限はないが、通常 $1 \times 10^4 \sim 1000 \times 10^4$ の範囲であり、好ましくは 2×10^4 以上 100×10^4 以下、より好ましくは 3×10^4 以上 50×10^4 以下である。またJIS K 7122に従って測定される融解熱量は、ハロゲン化オレフィン系重合体(A3)が前記重量平均分子量を満たせば特に制

限はない。ハロゲン化により融解熱量は下がる傾向にあるので、それに応じて用いる重合体（A 1 b）を選択しうる。

[0080] また、ハロゲン化オレフィン系重合体（A 3）は、ハロゲン化変性オレフィン系重合体（A 3 m）と、任意で用いられる未変性の重合体（A 1 b）との合計100重量部に対して、ハロゲンを2～40重量部含むことが好ましい。

[0081] 本発明では、ハロゲン化オレフィン系重合体（A 3）を構成するハロゲン化変性オレフィン系重合体（A 3 m）として、塩素化ポリオレフィンを好適に用いることができる。

[0082] 本発明でハロゲン化変性オレフィン系重合体（A 3 m）として用いられる塩素化ポリオレフィンは、公知の方法でポリオレフィンを塩素化することによって得られる。ここで、ハロゲン化変性オレフィン系重合体（A 3 m）として用いられる塩素化ポリオレフィンは、不飽和カルボン酸およびその無水物（例えば、無水マレイン酸）などの極性基含有単量体によって、さらに変性されたものであってもよい。例えば、ハードレンCY-9122P、ハードレンCY-9124P、ハードレンHM-21P、ハードレンM-28P、ハードレンF-2P及びハードレンF-6P（いずれも東洋紡績（株）製、商品名）等の市販品が好適に用いられる。

[0083] 塩素化ポリオレフィンの塩素含有率は、ハロゲン化変性オレフィン系重合体（A 3 m）として用いられる塩素化変性オレフィン系重合体と、任意で用いられる未変性の重合体（A 1 b）との合計を基準として、10重量%以上40重量%以下が好ましく、更に好ましくは20重量%以上30重量%以下である。上限値以下であると、熱や太陽光、紫外線、雨等の暴露による劣化を抑えることができ、下限値以上であると、十分な密着性が得られるので好ましい。

[0084] 本発明では、このようなハロゲン化変性オレフィン系重合体（A 3 m）を、1種単独で用いてもよく、あるいは、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

- [0085] このようなハロゲン化変性オレフィン系重合体 (A 3 m) は、例えば、塩素系溶媒中にポリオレフィンを溶解し、ラジカル触媒の存在下または不存在下で、塩素含有率が 16 ~ 35 重量%になるまでは塩素ガスを吹き込むことで得ることができる。
- [0086] ここで、塩素化反応の溶媒として用いられる塩素系溶媒としては、例えば、テトラクロロエチレン、テトラクロロエタン、四塩化炭素、クロロホルム等が挙げられる。
- [0087] 上記溶解および塩素化反応を行う温度としては、塩素系溶媒中でポリオレフィンが溶解する温度以上が望ましい。
- [0088] なお、本発明において、オレフィン系重合体 (A) としてハロゲン化オレフィン系重合体 (A 3) を用いてコーティング剤を調製する場合にあっても、ハロゲン化変性を有機溶媒中で行った場合には、そのまま用いることができ、あるいは、同種又は他種の有機溶媒をさらに加えて用いることができ、その際用いる有機溶媒として、変性オレフィン系重合体 (A 2) について用いられるものと同様の溶媒が挙げられる。
- [0089] さらに、本発明においては、オレフィン重合体 (A) として、上記重合体 (A 1)、上記変性オレフィン系重合体 (A 2)、および上記ハロゲン化オレフィン系重合体 (A 3) のうちの 2 種以上をさらに組み合わせて用いてもよい。
- [0090] 本発明で用いられるオレフィン重合体 (A) は、上記重合体 (A 1) と上記変性オレフィン系重合体 (A 2) と上記ハロゲン化オレフィン系重合体 (A 3) とのうち、上記変性オレフィン系重合体 (A 2) と上記ハロゲン化オレフィン系重合体 (A 3) から選ばれることが好ましく、上記変性オレフィン系重合体 (A 2) から選ばれることが更に好ましい。このとき、上記変性オレフィン系重合体 (A 2) には必要に応じ、グラフト変性されなかった未反応の上記重合体 (A 1 a) が含まれていてもいい。
- [0091] なお、本発明で用いられるオレフィン重合体 (A) は、40℃で測定した動粘度が 500000 mm²/s を超えることが好ましい。ここで、動粘度が 5

00000 mm²/s を超える、とは流動性が低く動粘度が測定できないような場合を含む概念である。

[0092] <半固体状炭化水素 (B)>

本発明のコーティング剤は、200℃動粘度が1,000~100,000 mm²/s の半固体状炭化水素 (B) を含有する。これにより、半固体状炭化水素を含有しないコーティング剤と比べて、加飾対象とする基材への密着性が向上するとともに、より多くの種類の基材への加飾が可能となるという効果が得られるのである。また、半固体状炭化水素 (B) は、特許文献1で用いられている40℃動粘度が30~500,000 mm²/s の炭化水素系合成油を用いた場合と比較して、低結晶性オレフィン重合体 (A) の結晶化をより阻害することから、塗工乾燥直後のタック性が向上し、優れた低温施工性、上塗り適性および粘着性が得られるという効果も奏する。加えて、分子量がより大きくなったことから、塗膜の強度が上がり、接着強度が更に向上するという効果も奏する。

[0093] 半固体状炭化水素 (B) としては、上記動粘度を満たす限り特に限定されないものの、炭素数2~20のオレフィンの重合体が好適に挙げられる。その中でも、炭素数2~20のオレフィンを単独重合させて得られるポリマー、または、2種以上のこれらのオレフィンの任意の混合物を共重合させて得られるポリマーが好ましく用いられる。上記炭素数2~20のオレフィンとしては、例えば、エチレン、プロピレン、1-ブテン、イソブテン、1-オクテン、1-デセン、および1-ドデセンなどが好ましく用いられる。半固体状炭化水素 (B) の具体例としては、エチレン-プロピレン共重合体、イソブテン-1-ブテン共重合体、ポリイソブテンなどが挙げられる。

[0094] 本発明では、半固体状炭化水素 (B) として、半固体状ポリイソブテンを用いることが好ましい。これらは、市場から容易に入手できる。例えば、JX日鉱日石エネルギー (株) 製のテトラックス、ハイモール、巴工業 (株) 製のポリイソブチレン等が挙げられる。

[0095] 上述したこれらの半固体状炭化水素 (B) は、1種単独で、あるいは2種

以上を組み合わせ用いることができる。

- [0096] 本発明に用いられる半固体状炭化水素（B）は200℃動粘度が1,000 mm²/s以上100,000 mm²/s以下であり、好ましくは1,100 mm²/s以上80,000 mm²/s以下、更に好ましくは1,200 mm²/s以上60,000 mm²/s以下である。半固体状炭化水素（B）における上記動粘度の下限が大きい値であると、施工時の密着性により優れる傾向にある。
- [0097] 本発明のコーティング剤における半固体状炭化水素（B）の含有量は、オレフィン重合体（A）と半固体状炭化水素（B）との合計100重量部に対し、好ましくは1～90重量部、より好ましくは10～85重量部である。すなわち、オレフィン重合体（A）の含有量は、好ましくは10～99重量部、より好ましくは15～90重量部である。半固体状炭化水素（B）の含有量が上記範囲内であると、密着性に優れ、且つ、経時安定性にも優れる傾向にあり有利である。
- [0098] 金属と樹脂とのラミネート、例えばアルミニウム箔とポリプロピレンフィルムとの接着強度を向上するためには、オレフィン重合体（A）と半固体状炭化水素（B）との合計100重量部に対し、半固体状炭化水素（B）の含有量は10～60重量部が好ましく、20～50重量部であると、より好ましい。すなわちオレフィン重合体（A）の含有量は40～90重量部が好ましく、50～80重量部がより好ましい。
- [0099] 上塗り適性、例えばスプレー塗装した際に均一なプライマー層ないし上塗り層が得られるという観点からは、オレフィン重合体（A）と半固体状炭化水素（B）との合計100重量部に対し、半固体状炭化水素（B）の含有量は20～80重量部が好ましく、35～65重量部であるとより好ましい。すなわちオレフィン重合体（A）の含有量は20～80重量部が好ましく、35～65重量部がより好ましい。
- [0100] ディスプレイ用粘着テープや粘着シートのように非加熱で感圧接着剤として用いる場合、被着体との接着強度を向上するためには、オレフィン重合体（A）と半固体状炭化水素（B）との合計100重量部に対し、半固体状炭

化水素（B）の含有量は50～90重量部が好ましく、70～85重量部であると、より好ましい。すなわちオレフィン重合体（A）の含有量は10～50重量部が好ましく、15～30重量部がより好ましい。

[0101] また、本発明に用いられる半固体状炭化水素（B）は、種々ビニル化合物のグラフト等に変性することができる。上記ビニル化合物としてはスチレン、 α -メチルスチレン等のスチレン類、アクリル酸メチル、アクリル酸ブチル、アクリル酸オクチル等のアクリル酸エステル類；メタアクリル酸メチル、メタアクリル酸ブチル等のメタアクリル酸エステル類；アクリル酸、メタアクリル酸、ケイヒ酸、マレイン酸、無水マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、マレイン酸モノエチル等のカルボキシル基含有ビニル化合物；フマル酸ジメチル、フマル酸ジブチル等の不飽和二塩基酸のジエステル類；アクリル酸グリシジル、アクリル酸- β -メチルグリシジル、メタアクリル酸グリシジル、およびメタアクリル酸- β -メチルグリシジル等のグリシジル基含有ビニル化合物；ヒドロキシエチルアクリレート、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、4-ヒドロキシブチルアクリレート、ラクトン変性ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピルアクリレート等の水酸基含有ビニル化合物；アクリロニトリル、メタアクリロニトリル、ケイヒ酸等の不飽和カルボン酸類；アクリルアミド、メタアクリルアミド、N置換アクリルアミド、N置換メタアクリルアミド、アクリルアミドプロパンスルホン酸等が挙げられる。上記ビニル化合物は、1種単独で用いてもよく、あるいは、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0102] オレフィン重合体（A）と半固体状炭化水素（B）との相溶性が良いものであれば、オレフィン重合体（A）の結晶化速度を低下させる働きをして、その分、被着体界面に対する密着性が良くなるのではないかと考えられる。その結果、オレフィン重合体（A）が本来有する、オレフィン樹脂や極性基含有樹脂や金属との接着性が発現するようになるのではないかと考えている。

[0103] 特にオレフィン重合体（A）が変性オレフィン系重合体（A2）及び／またはハロゲン化オレフィン系重合体（A3）である場合は、半固体状炭化水素（B）が存在すると、基材との接着強度が高くなる。この理由は定かではないが、一つには半固体状炭化水素（B）が存在することで、オレフィン重合体（A）のうち極性基やハロゲン原子を有する分子が動き易くなり、例えば基材が、ヘテロ原子などを含有するものである、あるいは金属であるなどの場合であれば、当該基材と接する部分に極性基やハロゲン原子が偏在化しやすくなり、高い接着強度に繋がるのではないかと考えることも可能である。

[0104] また、半固体状炭化水素（B）の動粘度が高いと接着強度が高い傾向にある。この理由は定かではないが、一つには半固体状炭化水素（B）として動粘度がより高いものを使うことで、半固体状炭化水素（B）が乾燥塗膜からブリードアウトすることが抑制されているのではないかと考えられる。この場合、ブリードアウトにより半固体状炭化水素（B）の添加効果（可塑性を付与し極性基やハロゲン原子を有する分子が動き易くなる）が失われるということがより少なくなり、またオレフィン重合体（A）の表面に半固体状炭化水素（B）のみより構成される層が形成して接着力を低めるということがより少なくなっているのではないかと考えられる。このように半固体状炭化水素（B）の動粘度が高いことで、ブリードアウトによる悪影響をより低減するという絶妙のバランスとなっているのではないかと推定している。

[0105] さらに、半固体状炭化水素（B）がブリードアウトしにくいのではないかとこの考察からは、コーティング剤より成る塗膜と被着体との接着強度が長期間安定でいられる、あるいはコーティング剤を膜にした直後に接着に使用せず、ある程度の時間経過してから接着に使用する場合にも、高い接着強度を発現することが推測される。

[0106] <粘着付与剤（C）>

本発明のコーティング剤は、上記オレフィン重合体（A）および上記半固体状炭化水素（B）に加えて、粘着付与剤（C）を含有してもよい。これに

より、粘着付与剤を含有しないコーティング剤と比べて、加飾対象とする基材への密着性が向上するとともに、より多くの種類の基材への加飾が可能となるという効果が得られるのである。

[0107] ここで、本発明で用いられる粘着付与剤 (C) が有する、J I S K O 0 7 0 に従って求まる酸価は、10以上であり、好ましくは10~40である。粘着付与剤 (C) の酸価がこのような範囲であると、コーティング剤を塗膜としたときに、被着体との親和力が向上し、十分な密着性が得られる点で有利である。なお、この酸価は、実際には、試料1g中に含有する酸などを中和するのに必要とする水酸化カリウムのmg数で表される値である。

[0108] また、本発明で用いられる粘着付与剤 (C) が有する、GPC法により測定した重量平均分子量 (Mw) は、 $0.9 \times 10^3 \sim 3 \times 10^3$ であるところ、下限値は、好ましくは 1×10^3 である。したがって、本発明の好適な態様の一つでは、粘着付与剤 (C) の重量平均分子量は $1 \times 10^3 \sim 3 \times 10^3$ である。粘着付与剤 (C) の重量平均分子量がこのような範囲であると、コーティング剤を塗膜としたときに、オレフィン重合体 (A) および半固体状炭化水素 (B) との良好な相溶性が担保され、経時安定性が良好且つ十分な密着性が得られる点で有利である。

[0109] このような粘着付与剤 (C) としては、上記のような酸価及び重量平均分子量を有する限り特に限定されない。ただ、粘着付与剤 (C) を構成しうる成分のタイプとして、テルペン樹脂；テルペンフェノール共重合体樹脂、芳香族変性テルペン樹脂などの変性テルペン樹脂；並びに、ロジンエステル、変性ロジン樹脂などのロジン樹脂等が挙げられ、その中でもロジンエステル及びその誘導体が好適に挙げられる。ここで、ロジンエステルの誘導体として、重合ロジンエステル、水素化ロジンエステル、ロジン変性マレイン酸樹脂、特殊ロジンエステル、ロジン変性特殊合成樹脂などが挙げられる。本発明では、これらのうち、上記のような酸価及び重量平均分子量を有するものを粘着付与剤 (C) として採用することができ、その具体例として、ハリタック4821，ハリタックPCJ，ハリタックFK125（いずれもハリマ

化成株式会社製)、ペンセル(登録商標)C、ペンセル(登録商標)D-125、スーパーエステルA-125(いずれも荒川化学工業株式会社製)などが挙げられる。また、スーパーエステルW-125およびパインクリスタル(登録商標)KE-359(荒川化学工業株式会社製)、並びに、Sylvalite RE100LおよびSylvalite RE105L(いずれもArizona Chemical社製)もまた、具体例として挙げることができる。

[0110] 本発明のコーティング剤における粘着付与剤(C)の含有割合は、オレフィン重合体(A)と半固体状炭化水素(B)と粘着付与剤(C)との合計100重量%に対し、好ましくは5~40重量%である。粘着付与剤(C)の含有量が上記範囲内であると、十分な密着性が確保できる傾向にあり有利である。

[0111] すなわち、本発明のコーティング剤において、オレフィン重合体(A)と半固体状炭化水素(B)と粘着付与剤(C)との合計100重量%とすると、オレフィン重合体(A)の割合は10~88重量%であり、半固体状炭化水素(B)の割合は85~1重量%であり、粘着付与剤(C)の割合は40~5重量%である。

[0112] なお、本発明では、粘着付与剤(C)に該当するための要件を満たすと同時に、上記半固体状炭化水素(B)に該当するための要件をも満たす成分については、その成分を、粘着付与剤(C)ではなく、半固体状炭化水素(B)に該当するものとして取り扱う。

[0113] <硬化剤(D)>

本発明のコーティング剤は、上記オレフィン重合体(A)および上記半固体状炭化水素(B)に加えて、必要に応じて硬化剤(D)を含んでもよい。本発明のコーティング剤が硬化剤(D)を含むことで、塗膜強度が向上し、密着性、耐熱性、耐薬品性により優れるという利点がある。

[0114] 硬化剤(D)としては、特に限定されないが、たとえば、ポリイソシアネート単量体、ポリイソシアネート変性体を挙げることができる。

- [0115] このうち、ポリイソシアネート単量体は、一分子中に複数のイソシアネート基を有する単量体化合物であり、そのようなポリイソシアネート単量体としては、例えば、芳香族ポリイソシアネート、芳香脂肪族ポリイソシアネート、脂肪族ポリイソシアネートなどが挙げられる。
- [0116] ここで、芳香族ポリイソシアネートとしては、例えば、トリレンジイソシアネート（2，4-または2，6-トリレンジイソシアネートもしくはその混合物）（TDI）、フェニレンジイソシアネート（m-、p-フェニレンジイソシアネートもしくはその混合物）、4，4'-ジフェニルジイソシアネート、1，5-ナフタレンジイソシアネート（NDI）、ジフェニルメタンジイソシアネート（4，4'-、2，4'-または2，2'-ジフェニルメタンジイソシアネートもしくはその混合物）（MDI）、4，4'-トルイジンジイソシアネート（TODI）、4，4'-ジフェニルエーテルジイソシアネートなどの芳香族ジイソシアネートなどが挙げられる。
- [0117] 芳香脂肪族ポリイソシアネートとしては、例えば、キシリレンジイソシアネート（1，3-または1，4-キシリレンジイソシアネートもしくはその混合物）（XDI）、テトラメチルキシリレンジイソシアネート（1，3-または1，4-テトラメチルキシリレンジイソシアネートもしくはその混合物）（TMXDI）、 ω ， ω' -ジイソシアネート-1，4-ジエチルベンゼンなどの芳香脂肪族ジイソシアネートなどが挙げられる。
- [0118] 脂肪族ポリイソシアネートとしては、例えば、トリメチレンジイソシアネート、1，2-プロピレンジイソシアネート、ブ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、1，2-ブチレンジイソシアネート、2，3-ブチレンジイソシアネート、1，3-ブチレンジイソシアネート）、1，5-ペンタメチレンジイソシアネート（PDI）、1，6-ヘキサメチレンジイソシアネート（HDI）、2，4，4-または2，2，4-トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート、2，6-ジイソシアネートメチルカプエートなどの脂肪族ジイソシアネートなどが挙げられる。
- [0119] また、脂肪族ポリイソシアネートには、脂環族ポリイソシアネートが含ま

れる。脂環族ポリイソシアネートとしては、例えば、1, 3-シクロペンタンジイソシアネート、1, 3-シクロペンテンジイソシアネート、シクロヘキサジイソシアネート（1, 4-シクロヘキサジイソシアネート、1, 3-シクロヘキサジイソシアネート）、3-イソシアナトメチル-3, 5, 5-トリメチルシクロヘキシルイソシアネート（イソホロジイソシアネート）（IPDI）、メチレンビス（シクロヘキシルイソシアネート）（4, 4'-、2, 4'-もしくは2, 2'-メチレンビス（シクロヘキシルイソシアネート））、これらのTrans, Trans-体、Trans, Cis-体もしくはCis, Cis-体、あるいは、これらの混合物）（H₁₂MDI）、メチルシクロヘキサジイソシアネート（メチル-2, 4-シクロヘキサジイソシアネート、メチル-2, 6-シクロヘキサジイソシアネート）、ノルボルナンジイソシアネート（各種異性体もしくはその混合物）（NBDI）、ビス（イソシアナトメチル）シクロヘキサン（1, 3-もしくは1, 4-ビス（イソシアナトメチル）シクロヘキサン、またはこれらの混合物）（H₆XDI）などの脂環族ジイソシアネートが挙げられる。

[0120] これらポリイソシアネート単量体は、単独使用または2種類以上併用することができる。

[0121] 一方、ポリイソシアネート変性体としては、上記したポリイソシアネート単量体同士が反応してなる変性体、および、上記したポリイソシアネート単量体と他の化合物とが反応してなる変性体が挙げられ、通常、平均官能基数が2を超過するものを用いることができる。ここで、「他の化合物」とは、上記したポリイソシアネート単量体以外の、上記したポリイソシアネート単量体と反応可能な化合物をいい、その例として、1価のアルコール（以下「モノオール」）、多価のアルコール（以下「ポリオール」）、アミンおよび水など活性水素を有する化合物、並びに、二酸化炭素が挙げられる。

[0122] ここで、本発明で用いるモノオールとしては、例えば、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、ヘプタノール、オクタノール、ノナノール、デカノール、ウンデシルアルコール、ドデシルアルコール（ラウリルアルコー

ル)、トリデシルアルコール、テトラデシルアルコール(ミリスチルアルコール)、ペンタデシルアルコール、ヘキサデシルアルコール(セチルアルコール)、ヘプタデシルアルコール、オクタデシルアルコール(ステアリルアルコール、オクタデカノール)、ノナデシルアルコール、およびそれらの異性体(2-メチル-1-プロパノール(iso-ブタノール)を含む)、さらには、その他のアルカノール(C20~50アルコール)や、例えば、オレイルアルコールなどのアルケニルアルコール、例えば、オクタジエノールなどのアルカジエノール、例えば、ポリエチレンブチレンモノオールなどの脂肪族モノオールが挙げられる。また、モノオールとして、例えば、シクロヘキサノール、メチルシクロヘキサノールなどの脂環族モノオール、例えば、ベンジルアルコールなどの芳香脂肪族モノオールなども挙げられる。

[0123] また、本発明で用いるポリオールとしては、ウレタン樹脂の分野で一般的に用いられている水酸基を2つ以上有する化合物が挙げられ、単量体の形態を有していてもよく、あるいは、重合体の形態を有していてもよい。

[0124] このうち、単量体の形態を有するポリオールの例として、

エチレングリコール、プロピレングリコールなどのアルキレングリコール、シクロヘキサンジオール、シクロヘキサンジメタノール、および、ベンゼンジメタノールなどの2価アルコール；

グリセリン、トリメチロールメタン、トリメチロールエタン、および、トリメチロールプロパンなどの3価アルコール；並びに、

ペンタエリスリトール、ジペンタエリスリトールなど、4つ以上の水酸基を有するアルコール

が挙げられる。なお、本明細書において、このような単量体の形態を有するポリオールは、「低分子量ポリオール」とも呼ばれることがある。

[0125] 一方、重合体の形態を有するポリオールとして、ポリエステルポリオール、ポリエーテルポリオールなど、ウレタン樹脂の分野で一般的に用いられているポリマーポリオールが挙げられる。

[0126] このようなポリイソシアネート変性体の具体例として、上記したポリイソ

シアネート単量体の多量体、アロファネート変性体、ポリオール変性体、ビウレット変性体、ウレア変性体、オキサジアジントリオン変性体、カルボジイミド変性体、ウレトジオン変性体およびウレトニイミン変性体などが挙げられる。

[0127] ここで、上記多量体の例として、ポリイソシアネート単量体の2量体、3量体、5量体、7量体などが挙げられる。このうち、ポリイソシアネート単量体の3量体の例として、イソシアヌレート変性体、イミノオキサジアジンジオン変性体が挙げられる。

[0128] また、上記アロファネート変性体の例として、上記したポリイソシアネート単量体と、モノオール（例えば、オクタデカノールなど上記に例示したモノオール）との反応より生成するアロファネート変性体などが挙げられる。

[0129] 上記ポリオール変性体として、例えば、ポリイソシアネート単量体と低分子量ポリオール（例えば、3価アルコールなど）との反応より生成するポリオール変性体（アルコール付加体）などが挙げられる。

[0130] 上記ビウレット変性体として、例えば、上記したポリイソシアネート単量体と、水やアミン類との反応により生成するビウレット変性体などが挙げられる。

[0131] 上記ウレア変性体として、例えば、上記したポリイソシアネート単量体とジアミンとの反応により生成するウレア変性体などが挙げられる。

[0132] 上記オキサジアジントリオン変性体として、例えば、上記したポリイソシアネート単量体と炭酸ガスとの反応により生成するオキサジアジントリオンなどが挙げられる。

[0133] 上記カルボジイミド変性体として、上記したポリイソシアネート単量体の脱炭酸縮合反応により生成するカルボジイミド変性体などが挙げられる。

[0134] さらに、ポリイソシアネート変性体として、上記したもののほか、ポリメチレンポリフェニルポリイソシアネート（クルードMDI、ポリメリックMDI）なども挙げられる。

[0135] 本発明においては、上述したポリイソシアネート単量体およびポリイソシ

アネート変性体の中でも、特に脂肪族ポリイソシアネートおよびその多量体が好適に使用される。すなわち、本発明の好適な態様では、硬化剤（D）は、脂肪族ポリイソシアネートまたは脂肪族ポリイソシアネートの多量体である。

[0136] これらは1種単独で用いてもよく、あるいは、2種以上の組み合わせとして用いてもよい。

[0137] 本発明のコーティング剤が、硬化剤（D）としてポリイソシアネート単量体またはポリイソシアネート変性体を含む場合における、当該硬化剤（D）の添加量は、オレフィン重合体（A）と半固体状炭化水素（B）との合計を100重量部としたときに、2～30重量部であることが好ましい。

[0138] 上記硬化剤（D）としては、エポキシ化合物およびオキサゾリン化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を用いることもできる。この場合、本発明のコーティング剤は、前記オレフィン重合体（A）として、前記変性オレフィン系重合体（A2）を少なくとも1種含むことが好ましい。これにより、硬化時の体積変化が小さく、低温で硬化可能なコーティング剤を得ることができ、特に、接着強度に優れた接着剤層を得ることができる。

[0139] 前記エポキシ化合物は、1分子中に2個以上のエポキシ基を有する架橋可能な化合物である。このようなエポキシ化合物としては、例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂（水添ビスフェノールA型エポキシ樹脂とは異なる）、ビスフェノールF型エポキシ樹脂などのビスフェノール型エポキシ樹脂；水添ビスフェノール型エポキシ樹脂；ノボラック型エポキシ樹脂；ビフェニル型エポキシ樹脂；スチルベン型エポキシ樹脂；ヒドロキノン型エポキシ樹脂；ナフタレン骨格型エポキシ樹脂；テトラフェニロールエタン型エポキシ樹脂；トリスヒドロキシフェニルメタン型エポキシ樹脂；ジシクロペンタジエンフェノール型エポキシ樹脂；3', 4'-エポキシシクロヘキシルメチル-3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート、2, 2-ビス（ヒドロキシメチル）-1-ブタノールの1, 2-エポキシ-4-（2-オキシラニル）シクロヘキサン付加物などの脂環式エポキシ樹脂；ヘキサヒドロ

無水フタル酸のジグリシジルエステルなどの多塩基酸のポリグリシジルエステル；ソルビトールポリグリシジルエーテル、ソルビタンポリグリシジルエーテル、ペンタエリスリトールポリグリシジルエーテル、トリメチロールプロパンポリグリシジルエーテル、ポリプロピレングリコールジグリシジルエーテル、ジグリセロールポリグリシジルエーテル、グリセロールポリグリシジルエーテル、ヘキサンジオールジグリシジルエーテル、水添ビスフェノールAジグリシジルエーテルおよびシクロヘキサンジメタノールジグリシジルエーテルなどのグリシジルエーテル；ポリブタジエンまたはポリイソプレン等のジエンポリマー型エポキシ樹脂；テトラグリシジルジアミノジフェニルメタン、テトラグリシジルビスアミノメチルシクロヘキサン、ジグリシジルアニリン、テトラグリシジルメタキシリレンジアミンなどのグリシジルアミン型エポキシ樹脂；トリアジンまたはヒダントインなどの複素環含有エポキシ樹脂；が挙げられる。

[0140] 前記エポキシ化合物の中でも、より接着強度に優れる、特に、アルミニウム箔層とポリプロピレンなどの熱可塑性樹脂製フィルム層とをより高い強度で接着することができる接着剤層を得ることができる等の点から、ビスフェノールA型液状エポキシ樹脂、脂環式エポキシ化合物、トリメチロールプロパンポリグリシジルエーテルが好ましい。

[0141] 前記ビスフェノールA型液状エポキシ樹脂としては、常温（25℃）で液状である樹脂であれば特に制限されず、市販品を用いてもよい。

[0142] 該市販品としては、例えば、EPICLON840、840-S、850、850-S、EXA-850CRP、850-LC（DIC（株）製）、JER828EL、827（三菱化学（株）製）、エポミックR-140P（三井化学（株）製）が挙げられる。

[0143] 前記脂環式エポキシ化合物は、エポキシシクロアルキル基またはエポキシシクロアルケニル基を分子内に少なくとも1個有する化合物、または、少なくとも1個のエポキシ基が脂環に単結合で結合した基を分子内に少なくとも1個有する化合物のことをいう。

[0144] 前記脂環式エポキシ化合物としては、例えば、3, 4-エポキシシクロヘキセニルメチル-3', 4'-エポキシシクロヘキセンカルボキシレート、3', 4'-エポキシシクロヘキシルメチル-3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート、3, 4-エポキシシクロヘキシルオクチル-3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート、2-(3, 4-エポキシシクロヘキシル-5, 5-スピロ-3, 4-エポキシ)シクロヘキサン-m-ジオキサン、ビス(3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル)アジペート、ビニルシクロヘキセンジオキサイド、ビス(3, 4-エポキシ-6-メチルシクロヘキシルメチル)アジペート、3, 4-エポキシ-6-メチルシクロヘキシル-3, 4-エポキシ-6-メチルシクロヘキサンカルボキシレート、メチレンビス(3, 4-エポキシシクロヘキサン)、ジシクロペンタジエンジオキサイド、エチレングリコールジ(3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル)エーテル、エチレンビス(3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート)、1, 2, 8, 9-ジオキシリモネン、2, 2-ビス(ヒドロキシメチル)-1-ブタノールの1, 2-エポキシ-4-(2-オキシラニル)シクロヘキサン付加物、特開2008-214555号公報に記載の化合物が挙げられる。

[0145] 前記脂環式エポキシ化合物としては、市販品を用いてもよく、該市販品としては、例えば、セロキサイド2021P、EHPE3150、EHPE3150CE、エポリドGT401(以上、(株)ダイセル製)が挙げられる。

[0146] 前記脂環式エポキシ化合物としては、より接着強度に優れる接着剤層を得ることができる等の点から、2, 2-ビス(ヒドロキシメチル)-1-ブタノールの1, 2-エポキシ-4-(2-オキシラニル)シクロヘキサン付加物が好ましい。

[0147] 前記トリメチロールプロパンポリグリシジルエーテルとしては、例えば、トリメチロールプロパンジグリシジルエーテル、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル、これらの混合物が挙げられる。

- [0148] 前記トリメチロールプロパンポリグリシジルエーテルとしては、市販品を用いてもよく、該市販品としては、例えば、EX-321L（ナガセケムテックス（株）製）等が挙げられる。
- [0149] 前記オキサゾリン化合物は、1分子中に2個以上のオキサゾリン基を有する架橋可能な化合物である。このようなオキサゾリン化合物としては、例えば、オキサゾリン基含有モノマーの重合体、オキサゾリン基含有モノマーと他のモノマーとの共重合体などのオキサゾリン基含有ポリマーが挙げられる。
- [0150] 前記オキサゾリン基含有モノマーとしては、例えば、2-ビニル-2-オキサゾリン、2-ビニル-4-メチル-2-オキサゾリン、2-ビニル-5-メチル-2-オキサゾリン、2-イソプロペニル-2-オキサゾリン、2-イソプロペニル-4-メチル-2-オキサゾリン、2-イソプロペニル-5-エチル-2-オキサゾリン、2-イソプロペニル-2-オキサゾリン、2-イソプロペニル-4, 4-ジメチル-2-オキサゾリンが挙げられる。これらは1種単独を使用してもよく、2種以上を使用してもよい。
- [0151] 前記他のモノマーとしては、例えば、アルキル（メタ）アクリレート（アルキル基の炭素数1～14程度）；アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、マレイン酸、フマル酸、クロトン酸、スチレンスルホン酸およびその塩（ナトリウム塩、カリウム塩、アンモニウム塩、第三級アミン塩等）などの不飽和カルボン酸類；アクリロニトリル、メタクリロニトリルなどの不飽和ニトリル類；（メタ）アクリルアミド、N-アルキル（メタ）アクリルアミド、N, N-ジアルキル（メタ）アクリルアミド、（アルキル基：メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、2-エチルヘキシル基、シクロヘキシル基等）などの不飽和アミド類；酢酸ビニル、プロピオン酸ビニルなどのビニルエステル類；メチルビニルエーテル、エチルビニルエーテルなどのビニルエーテル類；エチレン、プロピレンなどの α -オレフィン類；塩化ビニル、塩化ビニリデン、フッ化ビニルなどの含ハロゲン α , β -不飽和モノマー類；スチレン、 α -

メチルスチレンなどの α , β -不飽和芳香族モノマーが挙げられる。これらは1種単独を使用してもよく、2種以上を使用してもよい。

[0152] 前記オキサゾリン化合物としては、より接着強度に優れる接着剤層を得ることができる等の点から、2-イソプロペニル-2-オキサゾリンを含有するオキサゾリン化合物が好ましい。市販品としては、例えば、日本触媒（株）製「エポクロス」シリーズが挙げられる。

[0153] 前記エポキシ化合物のエポキシ当量およびオキサゾリン化合物のオキサゾリン当量は、より接着強度および耐薬品性、耐電解液性に優れる接着剤層を得ることができる等の点から、好ましくは100g/eq以上、より好ましくは125g/eq以上であり、また、好ましくは1,600g/eq以下、より好ましくは500g/eq以下である。

[0154] 前記当量は、JIS K7236に基づいて測定することができる。

[0155] 本発明のコーティング剤が、硬化剤（D）として、エポキシ化合物およびオキサゾリン化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を含む場合、当該硬化剤（D）は、硬化剤（D）中のエポキシ基およびオキサゾリン基当量/重合体（A）中のエポキシ基またはオキサゾリン基に対し反応性の官能基の当量が、好ましくは0.01以上、より好ましくは0.1以上となり、また、好ましくは50以下、より好ましくは30以下、さらに好ましくは20以下、特に好ましくは10以下となるように配合することが望ましい。硬化剤（D）の配合量が前記範囲にあると、より接着強度および耐薬品性、耐電解液性に優れる接着剤層を得ることができる。

[0156] <触媒（E）>

本発明のコーティング剤は、pKaが11以上である触媒（E）を含有してもよい。この場合、本発明のコーティング剤は前記硬化剤（D）を含有することが好ましく、さらに前記硬化剤（D）はエポキシ化合物およびオキサゾリン化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物であることがより好ましい。

[0157] 前記触媒（E）を用いることで、低温でも効率よく架橋反応を促進でき、

耐薬品性、耐電解液性に優れる接着剤層を形成でき、接着強度に優れる、特に、アルミニウム箔層とポリプロピレンなどの熱可塑性樹脂製フィルム層とを高い強度で接着することができる接着剤層を得ることができる。

- [0158] 触媒 (E) は、1種単独で使用してもよく、2種以上を使用してもよい。
- [0159] 前記触媒 (E) としては、 pK_a が 11 以上の化合物であれば特に制限されないが、前記硬化剤 (D) の架橋反応を促進できる化合物であることが好ましく、このような化合物としては、例えば、1, 8-ジアザビシクロ [5. 4. 0] ウンデセン-7 (DBU)、1, 6-ジアザビシクロ [3. 4. 0] ノネン-5 等の強塩基性第三級アミン、ホスファゼン塩基を有するホスファゼン触媒が挙げられ、DBU、ホスファゼン触媒が好ましい。
- [0160] なお、前記 pK_a は、25℃、水溶液中における酸解離定数のことである。また、例えば、リン酸には、3つの pK_a 、つまり、 pK_{a_1} 、 pK_{a_2} および pK_{a_3} があるが、本発明における pK_a は、 pK_{a_1} 、つまり、第一酸解離定数のことをいう。
- [0161] 前記触媒 (E) の配合量は、本発明のコーティング剤の不揮発分 (溶媒以外の成分) 100質量%に対し、好ましくは 1ppm 以上、より好ましくは 100ppm 以上であり、また、好ましくは 1質量%以下、より好ましくは 0.3質量%以下である。触媒 (E) の配合量が前記範囲にあると、硬化速度に優れるコーティング剤が得られ、また、耐薬品性、耐電解液性および接着強度に優れる接着剤層を得ることができる。
- [0162] <溶媒>
- 本発明のコーティング剤は、上記オレフィン重合体 (A) および上記半固体炭化水素 (B) などに加えて、必要に応じて溶媒を含んでもよい。
- [0163] 該溶媒としては、特に限定されないが、たとえば、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、デカン等の脂肪族炭化水素、シクロヘキサン、シクロヘキセン、メチルシクロヘキサン等の脂環式炭化水素、メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、プロパンジオール、フェノール

等のアルコール、アセトン、メチルイソブチルケトン（MIBK）、メチルエチルケトン（MEK）、ペンタノン、ヘキサノン、イソホロン、アセトフェノン等のケトン系溶媒、メチルセルソルブ、エチルセルソルブ等のセルソルブ類、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸ブチル、プロピオン酸メチル、ギ酸ブチル等のエステル類、トリクロルエチレン、ジクロルエチレン、クロルベンゼン等のハロゲン化炭化水素、エクソール、アイソパー等の石油系溶剤等を挙げることができる。その中でも、トルエン、メチルシクロヘキサン/MIBK混合溶剤、メチルシクロヘキサン/MEK混合溶剤、メチルシクロヘキサン/酢酸エチル混合溶剤、シクロヘキサン/MEK混合溶剤、シクロヘキサン/酢酸エチル混合溶剤、エクソール/シクロヘキサノン混合溶剤、ミネラルスピリット/シクロヘキサノン混合溶剤が好適に使用される。また、水などに分散せしめたものを使用してもよい。

[0164] これらは1種単独で用いてもよく、あるいは、2種以上の組み合わせとして用いてもよい。

[0165] 本発明のコーティング剤が溶媒を含む場合において、オレフィン重合体（A）と半固体状炭化水素（B）と溶媒との合計を100重量%とした場合におけるオレフィン重合体（A）と半固体状炭化水素（B）との合計量は、通常、5～50重量%程度、好ましくは8～40重量%の割合である。

[0166] <その他の構成成分>

本発明のコーティング剤は、上記オレフィン重合体（A）と、上記半固体状炭化水素（B）の他に、他のオレフィン系樹脂（F）を含んでもよい。この「他のオレフィン系樹脂（F）」としては、上記オレフィン重合体（A）および上記半固体状炭化水素（B）の何れにも該当しない限り特に制限はないものの、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ1-ブテン、ポリ4-メチル-1-ペンテンの単独重合体、エチレン、プロピレン、4-メチル-1-ペンテン等の α -オレフィン同士のランダムあるいはブロック共重合体、エチレン・プロピレン共重合体、エチレン・オクテン共重合体、プロピレン・オクテン共重合体、エチレン・プロピレン・1-ブテン共重合体、エチレン

・プロピレン・ターポリマー、環状ポリオレフィン、エチレン・酢酸ビニル、エチレン・不飽和カルボン酸の共重合体、エチレン・ビニルアルコール、アイオノマー樹脂等が挙げられる。

[0167] また、必要に応じて、酸化チタン（ルチル型）、酸化亜鉛などの遷移金属化合物、カーボンブラック等の顔料、揺変剤、増粘剤、上記粘着付与剤（C）に該当しないその他の粘着付与剤（以下、「その他の粘着付与剤」）、消泡剤、表面調整剤、沈降防止剤、酸化防止剤、耐候剤、熱安定剤、光安定剤、顔料分散剤、帯電防止剤などの塗料用添加剤を添加しても良い。ここで、「その他の粘着付与剤」として、例えば、テルペン樹脂；テルペンフェノール共重合体樹脂、芳香族変性テルペン樹脂、水添テルペン樹脂などの変性テルペン樹脂；脂肪族飽和炭化水素樹脂（荒川化学工業社製 アルコン）、高級炭化水素樹脂（三井化学社製 F T R シリーズ）、ロジン変性フェノール樹脂、並びに、ロジンエステル、変性ロジン樹脂などのロジン樹脂等のうち、上記粘着付与剤（C）には該当しないものを採用しうる。

[0168] これら他のオレフィン系樹脂（F）、酸化チタン（ルチル型）、酸化亜鉛などの遷移金属化合物、カーボンブラック等の顔料、揺変剤、増粘剤、上記「その他の粘着付与剤」、消泡剤、表面調整剤、沈降防止剤、酸化防止剤、耐候剤、熱安定剤、光安定剤、顔料分散剤、帯電防止剤などの塗料用添加剤は、通常、本発明のコーティング剤の目的を損なわない範囲で添加することができる。

[0169] 例えば、他のオレフィン系樹脂（F）を添加する場合、上記オレフィン重合体（A）100重量部に対し、好ましくは0を超えて50重量部以下、より好ましくは1～30重量部、より好ましくは1～10重量部である。

[0170] また、他のオレフィン系樹脂（F）を含まないことも一つの実施態様である。

[0171] [用途]

本発明のコーティング剤はプライマーや塗料、ホットメルト接着剤、ドライミネート用接着剤、粘着シート、ディスプレイ用粘着テープ、光学透明

両面テープとして用いるのに好適である。本発明のコーティング剤をプライマーや塗料、ホットメルト接着剤、ドライラミネート用接着剤として使用する場合、アクリル樹脂、PET、ポリカーボネート、ABS、COC、塩化ビニル、ポリプロピレン、表面処理ポリエチレン、ポリスチレン等の熱可塑性樹脂、及びアルミニウムや銅、SUSなどの金属材料を被着体として使用することが出来る。具体的にはこれら熱可塑性樹脂の射出成形体、フィルム、もしくはこれら金属の成形体、金属箔に本発明のコーティング剤を塗工、乾燥し、得られた塗膜上に更に他のコーティング剤を塗工・乾燥もしくは他の熱可塑性樹脂フィルム、成形体および金属箔、成形体を貼合して使用することが出来る。

[0172] 本発明のコーティング剤の塗膜を形成する方法としては特に制限がなく、公知の方法で行うことが出来る。例えば、ダイコート法、フローコート法、スプレーコート法、バーコート法、グラビアコート法、グラビアリバースコート法、キスリバースコート法、マイクログラビアコート法、ロールコート法、ブレードコート法、ロッドコート法、ロールドクターコート法、エアナイフコート法、コンマロールコート法、リバースロールコート法、トランスファーロールコート法、キスロールコート法、カーテンコート法及びディッピングコート法等の方法で塗布した後、自然乾燥あるいは加熱強制乾燥等、適宜の方法によって乾燥させることで塗膜を得ることが出来る。

[0173] 本発明の加飾フィルムは、本発明のコーティング剤から得られる層を有する以外に特に制限は無く、公知の意匠性を有するフィルムと組み合わせて用いる事ができる。例えば、予め印刷・塗装・蒸着等で加飾されたフィルム、もしくはこれらの組み合わせによって加飾されたフィルムを意匠層とし、これと、本発明のコーティング剤から得られる層とを積層させて用いることが出来る。

[0174] 言い換えると、本発明の加飾フィルムは、上述の本発明のコーティング剤から得られる層、を少なくとも1層有している。そして、その典型的な態様において、本発明の加飾フィルムは、予め印刷・塗装・蒸着等で加飾された

フィルムなどの意匠性を有するフィルムからなる意匠層と、本発明のコーティング剤から得られる層とを有している。なお、本明細書における以下の記載では、この層を、その形状に着目して「塗膜」と呼ぶ場合がある。またその機能に着目して「接着層」と呼ぶ場合がある。

[0175] ここで、該意匠層を有するフィルムの材質としては、アクリルフィルム、PETフィルム、ポリカーボネートフィルム、COCフィルム、塩化ビニルフィルム、無延伸ポリプロピレン（Cast Polypropylene；以下「CPP」）フィルム等の熱可塑性フィルム、並びに、上記熱可塑性フィルムにアルミニウム等金属を蒸着させた蒸着フィルムが挙げられる。

[0176] 本発明の加飾フィルムの製造方法としては、加飾フィルムに本発明のコーティング剤から得られる層（塗膜）が具備されていればよく、特に制限は無い。具体的には、意匠層を有する加飾フィルムの被着体と相對峙する面に、本発明の塗膜をドライラミネートする方法、本発明の塗膜に印刷等で直接意匠層を設ける方法、上記フィルムにクリア層、塗料層、本発明の塗膜からなる層（すなわち、本発明のコーティング剤から得られる層）を順次印刷等で形成していく方法等が挙げられる。

[0177] 本発明の塗膜を有する加飾フィルムは、例えば、真空成形法、圧空真空成形法等の既存の真空成形方法、インサート成形法及びインモールド成形法、また、特許第3733564に記載の「真空成形装置」によるTOM工法等を利用することで、複雑な三次元構造を有する成形体に加飾を施すことができる。

[0178] 本発明で用いられる、該加飾フィルムの被着体としては、例えば、PP等のポリオレフィン材料、HIPS、PS、ABS、PC、PC・ABSアロイ、PET、アクリル樹脂や、ED鋼板、Mg合金、SUS、アルミニウム合金などの金属材料、ガラスが好適に挙げられる。また、上記樹脂と上記金属材料などが複合化された被着体であっても構わない。

[0179] 該加飾方法によって得られる成形体としては、例えば、自動車内外装用部材；AV機器等の各種フロントパネル；ボタン、エンブレム等の表面化粧材

；携帯電話等の筐体、ハウジング、表示窓、ボタン等の各種部品；家具用外装材；浴室、壁面、天井、床等の建築用内装材；サイディング等の外壁、塀、屋根、門扉、破風板等の建築用外装材；窓枠、扉、手すり、敷居、鴨居等の家具類の表面化粧材；各種ディスプレイ、レンズ、ミラー、ゴーグル、窓ガラス等の光学部材；電車、航空機、船舶等の自動車以外の各種乗り物の内外装用部材；及び瓶、化粧品容器、小物入れ等の各種包装容器、包装材料、景品、小物等の雑貨等のその他各種用途に好適に使用することができる。

[0180] <積層体>

本発明の一実施形態における積層体（以下「本積層体」ともいう。）は、基材と、前記本コーティング剤の硬化物からなる接着剤層とを含めば特に制限されず、これら以外の層を含んでもよい。

[0181] 本積層体において、接着剤層は、基材の片面に存在していてもよく、両面に存在していてもよく、これらの面の全面に存在していてもよく、一部に存在していてもよい。

[0182] 本積層体の製造方法としては、特に制限されず、従来公知の方法を採用することができるが、基材上に本コーティング剤から塗膜を形成する塗膜形成工程および該塗膜を硬化させる養生工程を含む方法が好ましい。

[0183] 本積層体の製造方法は、その全ての工程を低温（約120℃以下、好ましくは100℃以下）で行うことが、基材や被着体が有する特性を損なうことなく積層体を得ることができ、基材や被着体の選択自由度が増す等の点から好ましく、また、本コーティング剤を用いることで、このような低温で積層体を製造しても、接着強度および耐薬品性（耐電解液性）に優れる積層体を得ることができる。

[0184] 前記塗膜形成工程としては、基材上に本コーティング剤を塗布して、必要により該コーティング剤を乾燥させることで塗膜を形成する方法、および、本コーティング剤に基材を浸漬し、基材を取り出し、必要により該コーティング剤を乾燥させることで基材上に塗膜を形成する方法が好ましい。

[0185] 前記塗布の方法としては、特に制限されず、従来公知の方法、例えば、ダ

イコート法、フローコート法、スプレーコート法、バーコート法、グラビアコート法、グラビアリバーコート法、キスリバーコート法、マイクログラビアコート法、ロールコート法、ブレードコート法、ロッドコート法、ロールドクターコート法、エアナイフコート法、コンマロールコート法、リバーコート法、スロールコート法、トランスファーロールコート法、キスロールコート法、カーテンコート法、印刷法などの塗布方法を採用することができる。

[0186] 前記基材としては、特に制限されず、前記接着剤層を形成したい基材であれば特に制限されないが、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレンなどのポリオレフィン、ABS樹脂、ポリカーボネート（PC）、PETなどのポリエステル樹脂、ポリフェニレンサルファイド（PPS）、ナイロンなどのポリアミド樹脂、または、アクリル樹脂などの樹脂からなる樹脂製基材；透明蒸着PETなどのバリアフィルム；ED鋼板、Mg合金、SUS（ステンレス）、アルミニウム、アルミニウム合金またはガラスなどの無機材料からなる無機基材；前記樹脂と無機材料が複合化された基材；加飾フィルム；が挙げられる。これらの中でも、金属箔、ポリオレフィン製基材および加飾フィルムが好ましく、アルミニウム箔およびポリオレフィン製基材がより好ましい。

[0187] なお、前記基材の接着剤層と接する面には、接着強度向上のため、コロナ処理などの従来公知の表面処理を施してもよい。

[0188] 前記加飾フィルムとしては、公知の意匠性を有するフィルムが挙げられ、具体的には、予め印刷・塗装・蒸着などで前記樹脂製基材や金属箔が加飾されたフィルム、意匠性を有するフィルムと前記樹脂製基材や金属箔との積層体等が挙げられる。

[0189] ここで、意匠性を有するフィルムとしては、アクリルフィルム、PETフィルム、PCフィルム、COC（環状オレフィンコポリマー）フィルム、塩化ビニルフィルム、ABSフィルムなどの熱可塑性フィルムに意匠性を付与したフィルムが挙げられる。

[0190] なお、前記接着剤層または前記塗膜に、従来公知の方法で意匠性を付与し

てもよい。

- [0191] 意匠性を付与する方法（加飾を施す方法）としては、例えば、真空成形法、圧空真空成形法などの既存の真空成形方法、インサート成形法、インモールド成形法、特許第3733564号公報に記載の「真空成形装置」によるTOM工法などが挙げられる。これらの方法によれば、複雑な三次元構造を有する積層体にも意匠性を付与することができる。
- [0192] 前記基材の厚みは、好ましくは1 μ m以上、より好ましくは5 μ m以上であり、また、好ましくは500 μ m以下、より好ましくは100 μ m以下である。
- [0193] 前記基材上に設けたコーティング剤を乾燥させる方法としては、コーティング剤付基材を常温（約20 $^{\circ}$ C）、常圧下で放置する方法、減圧下で前記コーティング剤を乾燥させる方法、前記コーティング剤を加熱する方法が挙げられる。この加熱は、一段階で行っても、二段階以上で行ってもよい。
- [0194] 該加熱の条件としては、溶媒等の揮発成分が揮発する条件である限り特に制限されないが、例えば120 $^{\circ}$ C以下、好ましくは100 $^{\circ}$ C以下で、例えば40 $^{\circ}$ C以上で、例えば3秒間以上、好ましくは1分間以上の時間、また、例えば1時間以下の時間加熱する条件が挙げられる。
- [0195] 本積層体は、通常、接着剤層を所望の被着体に接着させて使用する。つまり、本積層体は、基材、接着剤層および被着体がこの順で積層された接着体であってもよい。
- [0196] 該被着体としては、前記基材と同様のものが挙げられる。
- [0197] 前記接着体の製造方法としては、基材と被着体との間に本コーティング剤を塗布し、必要により前記乾燥工程を経た後、養生工程を行ってもよいが、前記乾燥工程の前、または、前記塗膜形成工程の後に、コーティング剤または塗膜と被着体とを接触させ、次いで、前記養生工程を行う、いわゆるドライミネート法が望ましい。
- [0198] 前記養生工程としては、前記塗膜を加熱する方法が挙げられる。この加熱は、一段階で行っても、二段階以上で行ってもよい。

[0199] 該加熱の条件としては、適宜の条件が選択されるが、低温、例えば80℃以下、好ましくは70℃以下、特に好ましくは60℃以下で、また、例えば40℃以上で、例えば1日間以上、好ましくは3日間以上の時間、また、例えば7日間以下の時間養生する方法（低温養生法）、高温、例えば100℃以上、好ましくは120℃以上で、また、例えば200℃以下で、例えば0.1秒間以上、好ましくは0.5秒間以上の時間、また、例えば60秒間以下の時間養生する方法（高温養生法）が挙げられる。これらの中でも、基材や被着体が有する特性を損なうことなく積層体を得ることができ、また、基材や被着体の選択自由度が増す等の点から、低温養生法が好ましい。

[0200] 基材と被着体とを接着させる際には、基材と被着体との間に圧力をかけながら接着させてもよい。

[0201] 該圧力としては、例えば0.1MPa以上、好ましくは0.2MPa以上であり、また、好ましくは2MPa以下である。

[0202] 前記接着剤層の厚みは、所望の用途等に応じて適宜選択すればよく、特に制限されないが、例えば0.2μm以上、好ましくは1μm以上であり、また、例えば100μm以下、好ましくは20μm以下である。

[0203] 前記積層体は、例えば、自動車内外装用部材；AV機器などの各種フロントパネル；ボタン、エンブレムなどの表面化粧材；携帯電話、カメラなど情報家電の筐体；ハウジング、表示窓、ボタンなどの各種部品；家具用外装材；浴室面、壁面、天井、床などの建築用内装材；サイディングなどの外壁、塀、屋根、門扉、破風板などの建築用外装材；窓枠、扉、手すり、敷居、鴨居、家具類の表面化粧材などの内装材；各種ディスプレイ、レンズ、ミラー、ゴーグル、窓ガラスなどの光学部材；電車、航空機、船舶などの自動車以外の各種乗り物の内外装用部材；瓶、化粧品容器、小物入れなどの各種容器；包装材料；その他各種物品に使用することができる。

[0204] <包材>

本発明の一実施形態における包材は、内層と接着剤層と基材とがこの順で積層された積層体を含む。なお、該接着剤層は、前記本コーティング剤の硬

化物からなる層である。

- [0205] 該包材は、前記接着剤層を有するため、基材と内層との接着強度に優れ、また、耐薬品性、耐電解液性に優れる。このため、該包材を長期間にわたって使用しても、基材と内層との接着強度の低下を有効に防止することができ、長期信頼性に優れる包材を得ることができる。
- [0206] 前記包材は、内層と接着剤層と基材とがこの順で積層されていれば特に制限されず、従来公知の層をこれらの層間または積層体の表面に用いてもよい。
- [0207] このような包材は、接着強度および耐薬品性（電解液性）に優れる電池ケース用包材や、接着強度および耐アルカリ性に優れる高アルカリ溶液用包材、さらには、接着強度および耐アルコール性に優れるアルコール含有溶液用包材に好適に用いられる。
- [0208] 前記内層は、前記積層体の欄に記載した被着体に相当し、該被着体と同様の層が挙げられ、特に限定されないが、前記包材を高アルカリ溶液用包材やアルコール含有溶液用包材として用いる場合、該包材に耐薬品性（電解液性）、ヒートシール性等を付与するため、好ましくは、未延伸ポリプロピレンフィルム、低密度リニアポリエチレンなどの熱可塑性のポリオレフィンフィルムなどが使用される。
- [0209] 前記基材としては、前記積層体の欄に記載した基材と同様の基材が挙げられ、特に限定されない。
- [0210] 前記包材の厚みは、所望の用途に応じ適宜選択すればよいが、例えば30 μm 以上であり、また、例えば200 μm 以下である。
- [0211] 前記包材は、内層に收容物、例えば、高アルカリ溶液やアルコール含有溶液が接触するように、内層を内側にした袋状にして用いてもよい。
- [0212] なお、前記高アルカリ溶液としては、pHが、例えば9以上、好ましくは10以上である溶液が挙げられる。具体的には、例えば、アルカリ洗剤や毛髪処理剤などが挙げられる。
- [0213] また、前記アルコール含有溶液としては、メタノール、エタノール、プロ

パノール、エチレングリコールなどを含む溶液が挙げられる。該アルコール含有溶液中のアルコール濃度は、例えば3質量%以上、好ましくは5質量%以上であり、また、例えば95質量%以下、好ましくは80質量%以下である。

[0214] <電池ケース用包材>

本発明の一実施形態における電池ケース用包材は、内層と内側接着剤層と基材と外側接着剤層と外層とがこの順で積層された積層体を含む。なお、該内側接着剤層は、前記本コーティング剤の硬化物からなる層である。

[0215] 該電池ケース用包材は、前記接着剤層を有するため、基材と内層との接着強度に優れ、また、耐電解液性に優れる。このため、電池ケース用包材を長期間にわたって使用しても、基材と内層との接着強度の低下を有効に防止することができ、長期信頼性に優れる電池ケース用包材を得ることができる。

[0216] 前記電池ケース用包材は、内層と内側接着剤層と基材と外側接着剤層と外層とがこの順で積層されていれば特に制限されず、従来公知の層をこれらの層間または積層体の表面に用いてもよい。

[0217] 前記内層は、前記積層体の欄に記載した被着体に相当し、該被着体と同様の層が挙げられ、特に限定されないが、電池ケース用包材に耐薬品性（電解液性）、ヒートシール性等を付与するために、未延伸ポリプロピレンフィルムなどの熱可塑性のポリオレフィンフィルムなどを使用することが好ましい。

[0218] 前記基材としては、前記積層体の欄に記載した基材と同様の基材が挙げられ、特に限定されないが、好ましくは金属箔、さらに好ましくは、アルミニウム箔、SUS箔が挙げられる。また、基材表面は耐食性等の観点から化成処理を施していてもよい。

[0219] 前記外側接着剤層は、外層と基材とが接着するような層であればよく、前記本コーティング剤の硬化物からなる層であってもよく、ドライラミネート用接着剤、無溶剤型接着剤などの従来公知の接着剤を用いて得られる層であってもよい。

[0220] 前記外層としては、特に限定されないが、電池製造時のヒートシール工程における耐熱性や加工時の成形性、耐ピンホール性、流通時の絶縁性等を付与するために、好ましくは、ポリエステルフィルム、ポリアミドフィルム、ポリプロピレンフィルムなどの延伸もしくは未延伸フィルムを単層または2層以上積層した多層フィルムが使用される。

[0221] 前記電池ケース用包材の厚みは、例えば60 μ m以上、また、例えば160 μ m以下である。

[0222] <電池>

本発明の一実施形態における電池は、前記電池ケース用包材と、該電池ケース用包材に包装される電解液とを備え、前記電池ケース用包材の内層の少なくとも一部が前記電解液に接触している電池である。該電池としては、特に制限されないが、例えば、リチウムイオン2次電池が挙げられる。以下、前記電池を、その一実施形態を示す図1を参照して説明する。

[0223] 図1に示すように、電池10は、電池ケース用包材1と、電池ケース用包材1に包装される電解液11とを備える。また、電池10は、電池ケース用包材1内に收容される正極17、負極18およびセパレータ19を備える。

[0224] 該電池では、電池ケース用包材1における内層3の内面に電解液11が接触するように、電池ケース用包材1が袋状に構成されており、該電池ケース用包材1は、その内側から、内層3、内側接着剤層5、基材2、外側接着剤層6および外層4がこの順で積層された積層体である。

[0225] 前記電解液11としては、特に限定されず、例えば、エチレンカーボネート、ジエチルカーボネート、ジメチルカーボネート、6フッ化リン酸リチウムなどのリチウム塩などを含有する電解液が挙げられる。

[0226] 正極17および負極18は、電解液11に接触するように、かつ、セパレータ19を介して互いに間隔を隔てて対向配置されている。

実施例

[0227] 以下、実施例に基づいて本発明をより具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に何ら限定されるものではない。

[0228] <プロピレン含量、エチレン含量の測定>

^{13}C -NMRを利用して求めた。

[0229] <融点、融解熱量の測定>

示差走査熱量計 (TA Instruments 製; DSC-Q1000) を用いて、融点および融解熱量を求めた。10°C/min で 30°C から 180°C まで昇温後、180°C で 3 分間保持し、10°C/min で 0°C まで降温し、再度 10°C/min で 150°C まで昇温する過程において、2 度目の昇温時のサーモグラムより、JIS K 7122 に準じて融点と融解熱量を求めた。

[0230] <200°C 動粘度の測定>

JIS K 2283 に基づいて 200°C 動粘度を求めた。

[0231] <重量平均分子量 (Mw) の測定>

ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (島津製作所社製; LC-10 series) を用いて、以下の条件で、成分 (A) に相当する低結晶性オレフィン樹脂及び成分 (B) に相当または類似する炭化水素系重合体の重量平均分子量 (Mw) を測定した。

[0232] ・検出器: 島津製作所社製; C-R4A

・カラム: TSKG 6000H-TSKG 4000H-TSKG 3000H-TSKG 2000H (東ソー社製)

・移動相: テトラヒドロフラン

・温度: 40°C

・流量: 0.8 ml/min

単分散標準ポリスチレンより作成した検量線を用いて、Mw を算出した。

[0233] <極性基含有単量体のグラフト量の測定>

^1H -NMR による測定から求めた。

[0234] <塩素含有量>

JIS K 7229 に準じ、次式により塩素含有量を求めた。

[0235] 塩素含有量 (質量%) = $\{(A - B) \times F\} / S \times 100$

A : 試料の滴定に要した 0.0282 N 硝酸銀水溶液の量 (mL)

B : 空試料の滴定に要した 0.0282 N 硝酸銀水溶液の量 (mL)

F : 0.0282 N 硝酸銀水溶液の力価

S : 試料の質量 (mg)

[低結晶性オレフィン樹脂]

<製造例 1-1 : 熱可塑性樹脂 (A-1) の合成 >

十分に窒素置換した 2 リットルのオートクレーブに、ヘキサンを 900 mL、1-ブテンを 90 g 仕込み、トリイソブチルアルミニウムを 1 ミリモル加え、70°C に昇温した後、プロピレンを供給して全圧 7 kg/cm²G にし、メチルアルミノキサン 0.30 ミリモル、rac-ジメチルシリレンービス {1-(2-メチル-4-フェニルインデニル)} ジルコニウムジクロライドを Zr 原子に換算して 0.001 ミリモル加え、プロピレンを連続的に供給して全圧を 7 kg/cm²G に保ちながら 30 分間重合を行った。重合後、脱気して大量のメタノール中でポリマーを回収し、110°C で 12 時間減圧乾燥した。得られたプロピレン/1-ブテン共重合体 (以下「熱可塑性樹脂 (A-1)」ともいう。) の融点は 78.3°C、融解熱量は 29.2 J/g、Mw は 330,000、プロピレン含有量は 67.2 モル%であった。

[0236] <製造例 1-2 : 熱可塑性樹脂 (A-2) の合成 >

十分に窒素置換した 2 リットルのオートクレーブに、ヘキサンを 900 mL、1-ブテンを 80 g 仕込み、トリイソブチルアルミニウムを 1 ミリモル加え、70°C に昇温した後、プロピレンを供給して全圧 7 kg/cm²G にし、メチルアルミノキサン 0.30 ミリモル、rac-ジメチルシリレンービス {1-(2-メチル-4-フェニルインデニル)} ジルコニウムジクロライドを Zr 原子に換算して 0.001 ミリモル加え、プロピレンを連続的に供給して全圧を 7 kg/cm²G に保ちながら 30 分間重合を行った。重合後、脱気して大量のメタノール中でポリマーを回収し、110°C で 12 時間減圧乾燥した。得られたプロピレン/1-ブテン共重合体 (以下「熱可塑性樹脂 (A-2)」ともいう。) の融点は 89.2°C、融解熱量は 31.5 J/g、Mw は 33

0, 000、プロピレン含有量は73.5モル%であった。

[0237] <製造例1-3：熱可塑性樹脂(A-3)の合成>

製造例1-1で得られた熱可塑性樹脂(A-1)3kgを10Lのトルエンに加え、窒素雰囲気下で145℃に昇温し、該共重合体をトルエンに溶解させた。さらに、攪拌下で無水マレイン酸382g、ジ-tert-ブチルパーオキシド175gを4時間かけて系に供給し、続けて145℃で2時間攪拌を行った。冷却後、多量のアセトン投入して変性された共重合体を沈殿させた。これをろ過し、アセトンで洗浄した後、真空乾燥した。得られた無水マレイン酸変性プロピレン/1-ブテン共重合体(以下「熱可塑性樹脂(A-3)」ともいう。)の融点は75.8℃、融解熱量は28.6J/g、Mwは110,000、無水マレイン酸のグラフト量は変性共重合体100重量%に対して1重量%であった。

[0238] <製造例1-4：熱可塑性樹脂(A-4)の合成>

製造例1-2で得られた熱可塑性樹脂(A-2)3kgを10Lのトルエンに加え、窒素雰囲気下で145℃に昇温し、該共重合体をトルエンに溶解させた。さらに、攪拌下で無水マレイン酸382g、ジ-tert-ブチルパーオキシド175gを4時間かけて系に供給し、続けて145℃で2時間攪拌を行った。冷却後、多量のアセトン投入して変性された共重合体を沈殿させた。これをろ過し、アセトンで洗浄した後、真空乾燥した。得られた無水マレイン酸変性プロピレン/1-ブテン共重合体(以下「熱可塑性樹脂(A-4)」ともいう。)の融点は85.9℃、融解熱量は29.9J/g、Mwは110,000、無水マレイン酸のグラフト量は変性共重合体100重量%に対して1重量%であった。

[0239] <使用した低結晶性オレフィン樹脂の詳細>

後述する実施例および比較例で用いた成分(A)に相当する低結晶性オレフィン樹脂の物性を下記表1に示す。

[0240]

[表1]

表 1

	名称等	融点 (°C)	融解熱量 (J/g)	Mw	*1
A-1	プロピレン/1-ブテン共重合体	78.3	29.2	330,000	67.2
A-2	プロピレン/1-ブテン共重合体	89.2	31.5	330,000	73.5
A-3	無水マレイン酸変性プロピレン/1-ブテン共重合体	75.8	28.6	110,000	1
A-4	無水マレイン酸変性プロピレン/1-ブテン共重合体	85.9	29.9	110,000	1
A-5	塩素化ポリオレフィン (*2)	—	0	85,000	24

表 1 中の記号の内容は以下のとおりである。

*1 : A-1、A-2については、プロピレン含量 (モル%)

A-3、A-4については、無水マレイン酸グラフト量 (wt%)

A-5 については、塩素含有量 (wt%)

*2 : 東洋紡 (株) 製「ハードレンCY-9124P」

[炭化水素系重合体]

<製造例 2-1 : 炭化水素系重合体 (B-1) の合成>

充分窒素置換した攪拌翼付連続重合反応器に、脱水精製したヘキサン 1 L を加え、96 mmol/L に調整したエチルアルミニウムセスキクロリド ($Al(C_2H_5)_{1.5} \cdot Cl_{1.5}$) のヘキサン溶液を 500 mL/h の量で連続的に 1 時間供給した後、更に触媒として 16 mmol/L に調整した $VO(OC_2H_5)Cl_2$ のヘキサン溶液を 500 mL/h、ヘキサンを 500 mL/h の量で連続的に供給した。一方、重合器上部から、重合液器内の重合液が常に 1 L になるように重合液を連続的に抜き出した。次にバブリング管を用いてエチレンガスを 47 L/h、プロピレンガスを 47 L/h、水素ガスを 20 L/h の量で供給した。共重合反応は、重合器外部に取り付けられたジャケットに冷媒を循環させることにより 35°C で行った。得られた重合溶液は、塩酸で脱灰した後に、大量のメタノールに投入して析出させた後、130°C で 24 時間減圧乾燥を行った。得られたエチレン/プロピレン共重合体 (以下「炭化水素系重合体 (B-1)」ともいう。) のエチレン含量は 55.9 モ

ル%、重量平均分子量は14,000、40℃動粘度は37,500 mm²/s、200℃動粘度は132 mm²/sであった。

[0241] <製造例2-2：炭化水素系重合体(B-5)の合成>

JXエネルギー社製ポリイソブチレン「テトラックス4T」（以下「炭化水素系重合体(B-2)」ともいう。）10kgを10Lのトルエンに加え、窒素雰囲気下で145℃に昇温し、該共重合体をトルエンに溶解させた。さらに、攪拌下で無水マレイン酸100g、ジ-tert-ブチルパーオキシド60gを4時間かけて系に供給し、続けて145℃で2時間攪拌を行った。冷却後、多量のアセトン投入し変性された共重合体を沈殿させ、ろ過し、アセトンで洗浄した後、真空乾燥した。得られた無水マレイン酸変性ポリイソブチレン（以下「炭化水素系重合体(B-5)」ともいう。）の重量平均分子量は41,000、200℃動粘度は1,400 mm²/s、無水マレイン酸のグラフト量は変性共重合体100重量%に対して0.5重量%であった。

[0242] <製造例2-3：炭化水素系重合体(B-6)の合成>

炭化水素系重合体(B-2)をJXエネルギー社製ポリイソブチレン「テトラックス5T」（以下「炭化水素系重合体(B-3)」ともいう。）に変更したこと以外は製造例2-2と同様にして、無水マレイン酸変性ポリイソブチレン（以下「炭化水素系重合体(B-6)」ともいう。）を得た。得られた炭化水素系重合体(B-6)の重量平均分子量は48,000、200℃動粘度は5,800 mm²/s、無水マレイン酸のグラフト量は変性共重合体100重量%に対して0.5重量%であった。

[0243] <製造例2-4：炭化水素系重合体(B-7)の合成>

炭化水素系重合体(B-2)をJXエネルギー社製ポリイソブチレン「テトラックス6T」（以下「炭化水素系重合体(B-4)」ともいう。）に変更したこと以外は製造例2-2と同様にして、無水マレイン酸変性ポリイソブチレン（以下「炭化水素系重合体(B-7)」ともいう。）を得た。得られた炭化水素系重合体(B-7)の重量平均分子量は55,000、200℃動

粘度は12,000 mm²/s、無水マレイン酸のグラフト量は変性共重合体100重量%に対して0.5重量%であった。

[0244] 後述する実施例および比較例で用いた成分(B)に相当または類似する炭化水素系重合体の物性を下記表2に示す。

[0245] [表2]

表2

	名称等	Mw	200℃ 動粘度 (mm ² /s)	無水マレイン酸 グラフト量 (wt%)
B-1	エチレン/プロピレン共重合体 (*3)	14,000	132	—
B-2	半固体状ポリイソブチレン (*4)	59,000	16,500	—
B-3	半固体状ポリイソブチレン (*5)	69,000	30,500	—
B-4	半固体状ポリイソブチレン (*6)	80,000	50,500	—
B-5	無水マレイン酸変性ポリイソブチレン (*7)	41,000	1,400	1
B-6	無水マレイン酸変性ポリイソブチレン (*8)	48,000	5,800	1
B-7	無水マレイン酸変性ポリイソブチレン (*9)	55,000	12,000	1

表2中の記号の内容は以下のとおりである。

*3: 製造例2-1で得られたエチレン/プロピレン共重合体

*4: J X日鉱日石エネルギー(株)製「テトラックス4T」

*5: J X日鉱日石エネルギー(株)製「テトラックス5T」

*6: J X日鉱日石エネルギー(株)製「テトラックス6T」

*7: 製造例2-2で得られた無水マレイン酸変性物(半固体状)

*8: 製造例2-3で得られた無水マレイン酸変性物(半固体状)

*9: 製造例2-4で得られた無水マレイン酸変性物(半固体状)

[粘着付与剤]

後述する実施例または比較例で用いた成分(C)に相当する粘着付与剤は以下のとおりである。

[0246] (C-1) 荒川化学工業(株)製「スーパーエステルW-125」(ロジンエステル、Mw:2,500、酸価(mgKOH/g):14.3)

[硬化剤]

後述する実施例または比較例で用いた成分（D）に相当する硬化剤は以下のとおりである。

[0247] （D-1）Covestro社製「Desmodur N 3300」（HDIトリマー、NCO含量（%）：21.8）

（D-2）ダイセル化学工業社製「EHPE 3150」（脂環式エポキシ樹脂、エポキシ当量（g/eq）：180）

[触媒]

後述する実施例または比較例で用いた成分（E）に相当する触媒は以下のとおりである。

[0248] （E-1）サンプロ（株）製「DBU」（1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]ウンデセン-7、pKa：12.5）

[実施例1]

熱可塑性樹脂（A-3）80gおよび炭化水素系重合体（B-2）20gを400gのトルエンに溶解させて、変性オレフィン重合体ワニス（1）を調製した。得られた変性オレフィン重合体ワニス（1）500gに、硬化剤（D-1）5gを混合し、ラミネート用接着剤組成物を調製した。次いで、ラミネート用接着剤組成物をトルエンで希釈し、バーコーターを用いて、得られる塗膜付箔の坪量が 3.3 g/m^2 になるように、厚さ $40\text{ }\mu\text{m}$ のアルミニウム箔（A1箔、表面未処理）のツヤ面上に常温下において塗布し、溶媒を揮散させることで、塗膜付箔を得た。その後、得られた塗膜付箔の塗膜面と、厚さ $60\text{ }\mu\text{m}$ の未延伸ポリプロピレンフィルム（CPP、片面コロナ処理品）におけるコロナ処理面とを $40\text{ }^\circ\text{C}$ のホットステージ上で貼り合わせ、 $60\text{ }^\circ\text{C}$ で3日間養生することにより、前記塗膜を硬化させ、A1箔およびCPP間を接着させることで、A1箔、接着剤層およびCPPがこの順で積層した積層体（複合フィルム）を得た。

[0249] [実施例2]

硬化剤（D-1）を硬化剤（D-2）に変更し、更に触媒（E-1）50

0 ppmを添加したこと以外は実施例1と同様にして複合フィルムを得た。

[0250] [実施例3]

熱可塑性樹脂(A-3) 80gおよび炭化水素系重合体(B-2) 20gを、熱可塑性樹脂(A-3) 70gおよび炭化水素系重合体(B-5) 30gに変更したこと以外は実施例1と同様にして複合フィルムを得た。

[0251] [実施例4]

熱可塑性樹脂(A-3) 80gおよび炭化水素系重合体(B-2) 20gを、熱可塑性樹脂(A-3) 50gおよび炭化水素系重合体(B-6) 50gに変更したこと以外は実施例1と同様にして複合フィルムを得た。

[0252] [実施例5]

熱可塑性樹脂(A-3) 80gおよび炭化水素系重合体(B-2) 20gを、熱可塑性樹脂(A-3) 50gおよび炭化水素系重合体(B-7) 50gに変更したこと以外は実施例1と同様にして複合フィルムを得た。

[0253] [実施例6]

熱可塑性樹脂(A-3)を熱可塑性樹脂(A-4)に変更し、40℃の貼り合せ温度を70℃に変更したこと以外は実施例1と同様にして複合フィルムを得た。

[0254] [実施例7]

熱可塑性樹脂(A-3)を熱可塑性樹脂(A-4)に変更し、40℃の貼り合せ温度を70℃に変更したこと以外は実施例2と同様にして複合フィルムを得た。

[0255] [実施例8]

熱可塑性樹脂(A-3)を熱可塑性樹脂(A-5)に変更したこと以外は実施例1と同様にして複合フィルムを得た。

[0256] [比較例1]

炭化水素系重合体(B-2)を炭化水素系重合体(B-1)に変更したこと以外は実施例1と同様にして複合フィルムを得た。

[0257] [比較例2]

炭化水素系重合体（B-2）を炭化水素系重合体（B-1）に変更したこと以外は実施例6と同様にして複合フィルムを得た。

[0258] [比較例3]

炭化水素系重合体（B-2）を炭化水素系重合体（B-1）に変更したこと以外は実施例2と同様にして複合フィルムを得た。

[0259] [比較例4]

炭化水素系重合体（B-2）を炭化水素系重合体（B-1）に変更したこと以外は実施例7と同様にして複合フィルムを得た。

[0260] [比較例5]

炭化水素系重合体（B-2）を炭化水素系重合体（B-1）に変更したこと以外は実施例8と同様にして複合フィルムを得た。

[0261] [複合フィルムの評価]

<AL/PPP接着強度>

実施例1～8および比較例1～5の複合フィルムを、長さ60mm、幅15mmの大きさに切り出して試験片を作製した。この試験片について、万能引張測定装置を用いて、クロスヘッド速度50mm/分にて、180°剥離試験を実施して、複合フィルムの初期接着強度を測定した。測定した初期接着強度に応じて、以下の基準にて評価を行った。結果を表3に示す。

[0262] (評価基準)

◎：11N/15mm以上

○：7N/15mm以上、11N/15mm未満

△：5N/15mm以上、7N/15mm未満

×：5N/15mm未満

[0263]

[表3]

表 3

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5
熱可塑性樹脂 重量%	(A-3) 80	(A-3) 80	(A-3) 70	(A-3) 50	(A-3) 50	(A-4) 80	(A-4) 80	(A-5) 80	(A-3) 80	(A-4) 80	(A-3) 80	(A-4) 80	(A-5) 80
炭化水素系重合体 重量%	(B-2) 20	(B-2) 20	(B-5) 30	(B-6) 50	(B-7) 50	(B-2) 20	(B-2) 20	(B-2) 20	(B-1) 20	(B-1) 20	(B-1) 20	(B-1) 20	(B-1) 20
硬化剤 重量%	(D-1) 5	(D-2) 5	(D-1) 5	(D-1) 5	(D-1) 5	(D-1) 5	(D-2) 5	(D-1) 5	(D-1) 5	(D-1) 5	(D-2) 5	(D-2) 5	(D-1) 5
触媒 ppm	-	(E-1) 500	-	-	-	(E-1) 500	(E-1) 500	-	-	-	(E-1) 500	(E-1) 500	-
貼付合せ温度 (°C)	40	40	40	40	40	70	70	40	40	70	40	70	40
AL/CPPI接着強度	◎	◎	○	○	○	◎	◎	○	x	x	x	x	x

[実施例 9]

熱可塑性樹脂 (A-3) 45 g、炭化水素系重合体 (B-2) 45 g および粘着付与剤 (C-1) 10 g を 400 g のトルエンに溶解させて、変性オレフィン重合体ワニス (2) を調製した。得られた変性オレフィン重合体ワニス (2) 40 g をキシレン 60 g で希釈し、スプレー塗装用プライマー組成物を調製した。次いで、スプレー塗装用プライマー組成物を、硬質 PP の板 (厚さ 2 mm) に対してスプレーで塗装し、室温で 5 分間乾燥することで、硬質 PP 上に 10 μ m のプライマー層を得た。更に 2 液のホワイトベースウレタン塗料 (日本ペイント・オートモーティブコーティングス社製 F 287 / F 271 = 4 / 1) をプライマー層の上にスプレーで塗装し、80°C で 30 分間処理することで 10 μ m の上塗り層を設け、プライマー / 塗料積層膜を得た。

[0264] [実施例 10]

熱可塑性樹脂 (A-3) を熱可塑性樹脂 (A-1) に変更したこと以外は実施例 9 と同様にしてプライマー / 塗料積層膜を得た。

[0265] [比較例 6]

熱可塑性樹脂 (A-3) 45 g および炭化水素系重合体 (B-2) 45 g を、熱可塑性樹脂 (A-3) 72 g および炭化水素系重合体 (B-1) 18 g に変更したこと以外は実施例 9 と同様にしてプライマー / 塗料積層膜を得た。

[0266] [比較例 7]

炭化水素系重合体 (B-2) を炭化水素系重合体 (B-1) に変更したこと以外は実施例 9 と同様にしてプライマー / 塗料積層膜を得た。

[0267] [比較例 8]

炭化水素系重合体 (B-2) を炭化水素系重合体 (B-1) に変更したこと以外は実施例 10 と同様にしてプライマー / 塗料積層膜を得た。

[0268] [プライマー / 塗料積層膜の評価]

<スプレー適性>

実施例 9～10 および比較例 6～8 のプライマー／塗料積層膜を作成する際に使用したスプレー塗装用プライマー組成物について、スプレー塗装を行った際の糸引き（プライマー組成物が PP 基材に塗着する前に空気中で糸状に析出する現象）の状態を以下の基準で評価した。結果を表 4 に示す。

[0269] （評価基準）

○：糸引きが全く発生せず、平滑なプライマー層が得られる。

△：糸引きの発生は顕著に見られないが、プライマー層に僅かな糸状異物が認められる。

×：糸引きが発生し、平滑なプライマー層が得られない。

[0270] <上塗りのハジキ>

実施例 9～10 および比較例 6～8 のプライマー／塗料積層膜の作成において、2液のホワイトベースウレタン塗料を各々のプライマー層上にスプレー塗装した際の外観状態を以下の基準で評価した。結果を表 4 に示す。

[0271] （評価基準）

○：塗装が均一に行われ、平滑な上塗り層が全面に塗着できる。

△：塗装は均一に行われたが、微小なクラックやボイドが上塗り層に認められる。

×：ハジキが発生し（2液のホワイトベースウレタン塗料がプライマー層上ではじかれて均一な塗装ができない）、平滑で均一な上塗り層が得られない。

[0272] <接着性>

実施例 9～10 および比較例 6～8 で作成したプライマー／塗料積層膜に対して、JIS K5600-5-6 に準じて基盤目テープ剥離試験を行い、剥離数を記録し、密着性を以下の基準で評価した。結果を表 4 に示す。

[0273] （評価基準）

○：剥離なし

×：1個以上の剥離あり

[0274]

[表4]

表4

	実施例9	実施例10	比較例6	比較例7	比較例8
熱可塑性樹脂	(A-3)	(A-1)	(A-3)	(A-3)	(A-1)
重量%	45	45	72	45	45
炭化水素系重合体	(B-2)	(B-2)	(B-1)	(B-1)	(B-1)
重量%	45	45	18	45	45
粘着付与剤	(C-1)	(C-1)	(C-1)	(C-1)	(C-1)
重量%	10	10	10	10	10
スプレー適性	○	○	△	○	○
上塗りのハジキ	○	○	×	×	×
接着性 (テープ剥離試験)	○	○	○	×	×

[実施例11]

熱可塑性樹脂 (A-3) 20g および炭化水素系重合体 (B-2) 80g を 400g のトルエンに溶解させて、変性オレフィン重合体ワニス (1) を調製した。得られた変性オレフィン重合体ワニス (1) を、バーコーターを用いて、得られる塗膜付箔の坪量が 8g/m² になるように、厚さ 40μm のアルミニウム箔 (A1箔、表面未処理) のツヤ面上に常温下において塗布し、100℃で1分間の乾燥により溶媒を揮散させることで、塗膜付箔を得た。その後、得られた塗膜付箔の塗膜面を、厚さ 2mm のガラス板に 23℃、0.1MPa で 10 秒間圧着させ、ガラス、粘着剤層および A1箔がこの順で積層した積層体 (粘着フィルム積層体) を得た。

[0275] [実施例12]

炭化水素系重合体 (B-2) を炭化水素系重合体 (B-3) に変更したこと以外は実施例 11 と同様にして粘着フィルム積層体を得た。

[0276] [実施例13]

炭化水素系重合体 (B-2) を炭化水素系重合体 (B-4) に変更したこと以外は実施例 11 と同様にして粘着フィルム積層体を得た。

[0277] [実施例14]

熱可塑性樹脂 (A-3) 20g および炭化水素系重合体 (B-2) 80g を、熱可塑性樹脂 (A-3) 30g および炭化水素系重合体 (B-4) 70g

gに変更したこと以外は実施例11と同様にして粘着フィルム積層体を得た。
。

[0278] [比較例9]

熱可塑性樹脂(A-3)20gおよび炭化水素系重合体(B-2)80gを、熱可塑性樹脂(A-3)80gおよび炭化水素系重合体(B-1)20gに変更したこと以外は実施例11と同様にして粘着フィルム積層体を得た。
。

[0279] [比較例10]

炭化水素系重合体(B-2)を炭化水素系重合体(B-1)に変更したこと以外は実施例11と同様にして粘着フィルム積層体を得た。

[0280] [AL/ガラス粘着強度]

実施例11~14および比較例9, 10の粘着フィルム積層体を、長さ60mm、幅15mmの大きさに切り出して試験片を作製した。この試験片について、万能引張測定装置を用いて、クロスヘッド速度100mm/分にて、180°剥離試験を実施して、粘着フィルム積層体の粘着強度を測定した。測定した粘着強度に応じて、以下の基準にて評価を行った。結果を表5に示す。

[0281] (評価基準)

- ◎ : 7 N / 15 mm 以上
- : 5 N / 15 mm 以上、7 N / 15 mm 未満
- △ : 3 N / 15 mm 以上、5 N / 15 mm 未満
- × : 3 N / 15 mm 未満

[0282]

[表5]

表5

	実施例11	実施例12	実施例13	実施例14	比較例9	比較例10
熱可塑性樹脂	(A-3)	(A-3)	(A-3)	(A-3)	(A-3)	(A-3)
重量%	20	20	20	30	80	20
炭化水素系重合体	(B-2)	(B-3)	(B-4)	(B-4)	(B-1)	(B-1)
重量%	80	80	80	70	20	80
貼り合せ温度 (°C)	23	23	23	23	23	23
AL/ガラス粘着強度	○	◎	○	◎	×	×
N/15mm	6	7	5	8	0.1	0.5

請求の範囲

[請求項1] J I S K 7 1 2 2 に従って測定した融解熱量が0～50 J/g の範囲にあり、かつGPC法により測定した重量平均分子量 (Mw) が $1 \times 10^4 \sim 1000 \times 10^4$ であるオレフィン重合体 (A) と、
200℃動粘度が1,000～100,000 mm²/s の半固体状炭化水素 (B) と
を含有するコーティング剤。

[請求項2] 前記オレフィン重合体 (A) が、以下の (A1) ～ (A3) からなる群より選ばれる1種以上であることを特徴とする請求項1に記載のコーティング剤：

(A1) 炭素数2～20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体；

(A2) 炭素数2～20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体であって、その一部または全部が極性基含有単量体でグラフト変性されてなる変性オレフィン系重合体；

(A3) 炭素数2～20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体であって、その一部または全部がハロゲン化変性されてなるハロゲン化オレフィン系重合体。

[請求項3] 前記 (A2) が以下の (A2') であり、前記 (A3) が以下の (A3') であることを特徴とする請求項2に記載のコーティング剤：

(A2') 炭素数2～20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体であって、その一部または全部が極性基含有単量体でグラフト変性されてなる変性オレフィン系重合体であり、当該変性オレフィン系重合体100重量部に対して、極性基含有単量体由来の構成単位を0.1～15重量部含む変性オレフィン系重合体；

(A3') 炭素数2～20の α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体であって、その一部または全部がハロゲン化変性されてなるハロゲン化変性オレフィン重合体であり、当該ハロゲン化変性オレフィ

ン重合体100重量部に対してハロゲン含有量が2~40重量部であるハロゲン化変性オレフィン系重合体。

[請求項4]

前記(A1)が以下の(A1'')であり、前記(A2')が以下の(A2'')であり、前記(A3')が以下の(A3'')であることを特徴とする請求項3に記載のコーティング剤：

(A1'') プロピレン由来の構成単位を50~100モル%、炭素数2~20の α -オレフィン(ただしプロピレンを除く)由来の構成単位を50~0モル%(ここでプロピレンと炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位との合計を100モル%とする)含有するプロピレン系重合体；

(A2'') プロピレン由来の構成単位を50~100モル%、炭素数2~20の α -オレフィン(ただしプロピレンを除く)由来の構成単位を50~0モル%(ここでプロピレンと炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位との合計を100モル%とする)含有するプロピレン系重合体であって、その一部または全部が極性基含有単量体でグラフト変性されてなる変性オレフィン系重合体であり、当該変性オレフィン系重合体100重量部に対して、極性基含有単量体由来の構成単位を0.1~15重量部含む変性オレフィン系重合体；

(A3'') プロピレン由来の構成単位を50~100モル%、炭素数2~20の α -オレフィン(ただしプロピレンを除く)由来の構成単位を50~0モル%(ここでプロピレンと炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位との合計を100モル%とする)含有するプロピレン系重合体であって、その一部または全部がハロゲン化変性されてなるハロゲン化変性オレフィン系重合体であり、当該ハロゲン化変性オレフィン系重合体100重量部に対してハロゲン含有量が2~40重量部であるハロゲン化オレフィン系重合体。

[請求項5]

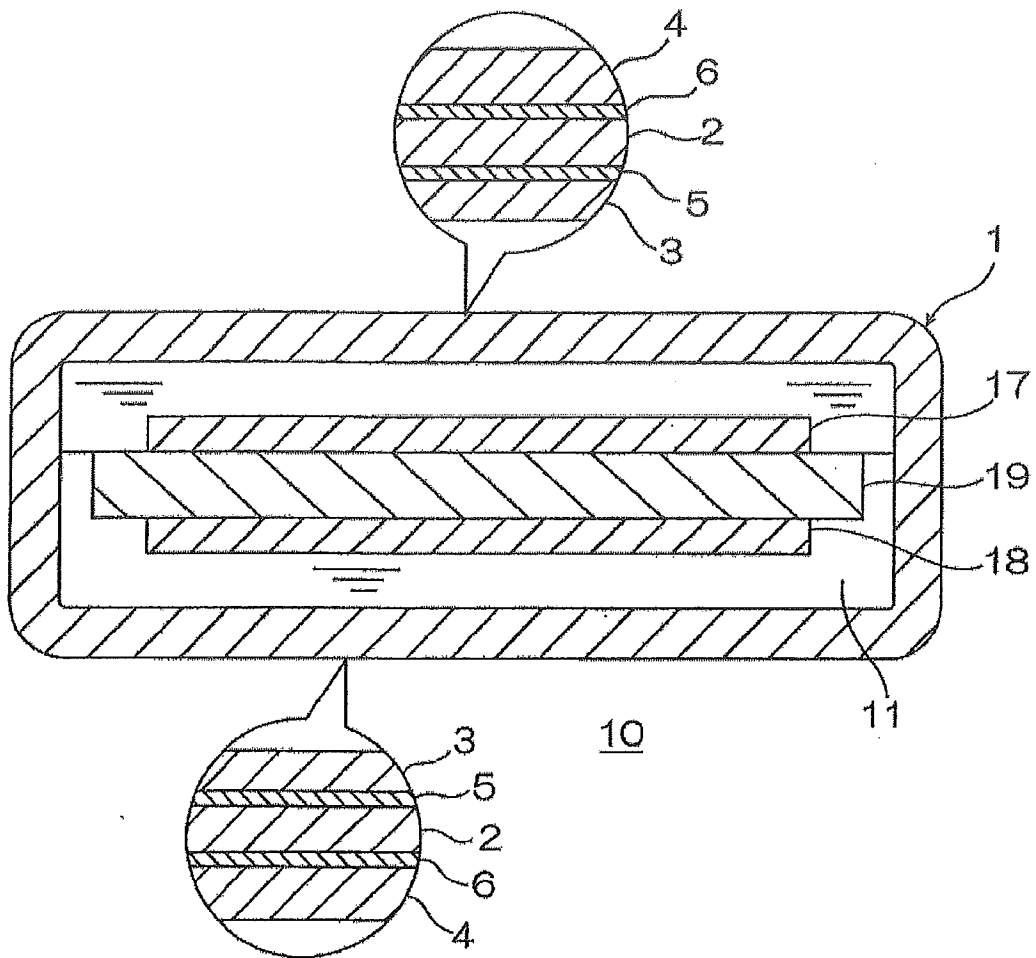
前記極性基含有単量体が、不飽和カルボン酸及び不飽和カルボン酸無水物から選ばれる1種以上である請求項2~4のいずれか1項に記

載のコーティング剤。

- [請求項6] 前記半固体状炭化水素 (B) が、炭素数 2 ~ 20 のオレフィンの重合体である請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載のコーティング剤。
- [請求項7] 前記オレフィン重合体 (A) の含有量が 10 ~ 99 重量部であり、前記半固体状炭化水素 (B) の含有量が 1 ~ 90 重量部 (ただし (A) と (B) との合計を 100 重量部とする) である請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載のコーティング剤。
- [請求項8] J I S K 0070 に従って求まる酸価が 10 以上であり、かつ G P C 法により測定した重量平均分子量 (Mw) が $1 \times 10^3 \sim 3 \times 10^3$ である粘着付与剤 (C) をさらに含有するとともに、
前記オレフィン重合体 (A) の含有割合が 10 ~ 88 重量% であり、前記半固体状炭化水素 (B) の含有割合が 1 ~ 85 重量% であり、前記粘着付与剤 (C) の含有割合が 5 ~ 40 重量% (ただし (A) と (B) と (C) との合計を 100 重量% とする) である請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載のコーティング剤。
- [請求項9] 前記粘着付与剤 (C) が、ロジンエステルおよびその誘導体である請求項 8 に記載のコーティング剤。
- [請求項10] 硬化剤 (D) をさらに含有する請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載のコーティング剤。
- [請求項11] 前記硬化剤 (D) が、脂肪族ポリイソシアネートおよび脂肪族ポリイソシアネートの多量体から選ばれる 1 種以上である請求項 10 に記載のコーティング剤。
- [請求項12] 前記硬化剤 (D) が、エポキシ化合物およびオキサゾリン化合物から選ばれる 1 種以上である請求項 10 に記載のコーティング剤。
- [請求項13] p K a が 11 以上である触媒 (E) をさらに含有する請求項 10 ~ 12 のいずれか 1 項に記載のコーティング剤。
- [請求項14] プライマーである請求項 1 ~ 13 のいずれか 1 項に記載のコーティング剤。

- [請求項15] 塗料である請求項1～13のいずれか1項に記載のコーティング剤。
。
- [請求項16] ホットメルト接着剤または感圧接着剤である請求項1～13のいずれか1項に記載のコーティング剤。
- [請求項17] 請求項1～13のいずれか1項に記載のコーティング剤から得られる層を少なくとも1層有する加飾フィルム。
- [請求項18] 請求項17に記載の加飾フィルムによって加飾された成形体。
- [請求項19] 前記加飾が、真空圧空成形装置によって行われた請求項18に記載の成形体。
- [請求項20] 内層と接着剤層と基材とがこの順で積層された積層体を含み、該接着剤層が、請求項1～13のいずれか1項に記載のコーティング剤の硬化物からなる層である包材。
- [請求項21] 内層と内側接着剤層と基材と外側接着剤層と外層とがこの順で積層された積層体を含み、該内側接着剤層が、請求項1～13のいずれか1項に記載のコーティング剤の硬化物からなる層である電池ケース用包材。
- [請求項22] 請求項21に記載の電池ケース用包材と、前記電池ケース用包材に包装される電解液とを備え、前記電池ケース用包材の内層の少なくとも一部が前記電解液に接触している電池。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/019746

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. See extra sheet

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl. C09D123/00, B32B27/00, B32B27/26, B32B27/32, C09D5/00,
C09D7/63, C09D123/14, C09D123/26, C09D123/28, C09D163/00,
C09D175/04, C09J11/06, C09J123/00, C09J123/14, C09J123/26,
C09J123/28, C09J163/00, C09J175/04, H01M2/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2018
Registered utility model specifications of Japan	1996-2018
Published registered utility model applications of Japan	1994-2018

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2013/164976 A1 (MITSUI CHEMICALS, INC.) 07 November 2013, claims 1-13, paragraphs [0024]- [0136], examples & US 2015/0087769 A1, claims 1-13, [0037]-[064], examples & EP 2845875 A1 & CN 104271660 A & KR 10-2014-0146659 A & TW 201350547 A	1-22
Y	WO 2014/123183 A1 (MITSUI CHEMICALS, INC.) 14 August 2014, claims 1-17, paragraphs [0007]-[0195], examples & US 2015/0367601 A1, claims 1-17, paragraphs [0007]-[0216], examples & EP 2955212 A1 & CN 104903416 A & KR 10-2015-0093782 A & TW 201437308 A	1-22
Y	JP 2015-137333 A (MITSUI CHEMICALS, INC.) 30 July 2015, claims 1-18, paragraphs [0005]-[0131], examples (Family: none)	1-22

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
15 August 2018 (15.08.2018)

Date of mailing of the international search report
28 August 2018 (28.08.2018)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/019746

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2016/080297 A1 (MITSUI CHEMICALS, INC.) 26 May 2016, claims 1-15, paragraphs [0004]-[0137], examples & US 2017/0321093 A1, claims 1-16, paragraphs [0005]-[0203], examples & EP 3222686 A1 & KR 10-2017-0071531 A & CN 107001841 A & TW 201627429 A	1-22
Y	JP 2016-132716 A (MITSUI CHEMICALS, INC.) 25 July 2016, claims 1-15, paragraphs [0005]-[0224], examples (Family: none)	1-22
Y	JP 2016-020402 A (SOKEN CHEMICAL & ENGINEERING CO., LTD.) 04 February 2016, paragraphs [0068], [0069] & WO 2016/006352 A1 & TW 201612008 A & CN 106536665 A & KR 10-2017-0031101 A	1-22
Y	WO 1999/045064 A1 (KUREHA CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.) 10 September 1999, page 10 & EP 1061099 A1, paragraph [0022] & KR 10-2001-0041455 A & TW 553994 B & CN 1292015 A	1-22
Y	JP 2003-019778 A (ASAHI KASEI CORPORATION) 21 January 2003, paragraphs [0021]-[0025] (Family: none)	1-22
A	JP 7-048553 A (TOHO CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.) 21 February 1995, entire text (Family: none)	1-22
A	JP 2009-524705 A (3M INNOVATIVE PROPERTIES COMPANY) 02 July 2009, entire text & US 2009/0026934 A1 & WO 2007/087281 A1 & EP 1976952 A1 & KR 10-2008-0088606 A & CN 101370889 A	1-22
A	JP 2011-524919 A (TESA SE) 08 September 2011, entire text & US 2011/0076905 A1 & WO 2009/147098 A1 & EP 2288657 A1 & CN 102056981 A & KR 10-2011-0025748 A	1-22
P, A	WO 2017/126520 A1 (MITSUI CHEMICALS, INC.) 27 July 2017, entire text & TW 201736552 A	1-22

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/019746

CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C09D123/00 (2006.01) i, B32B27/00 (2006.01) i, B32B27/26 (2006.01) i,
B32B27/32 (2006.01) i, C09D5/00 (2006.01) i, C09D7/63 (2018.01) i,
C09D123/14 (2006.01) i, C09D123/26 (2006.01) i, C09D123/28 (2006.01) i,
C09D163/00 (2006.01) i, C09D175/04 (2006.01) i, C09J11/06 (2006.01) i,
C09J123/00 (2006.01) i, C09J123/14 (2006.01) i, C09J123/26 (2006.01) i,
C09J123/28 (2006.01) i, C09J163/00 (2006.01) i, C09J175/04 (2006.01) i,
H01M2/02 (2006.01) i S

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. 特別ページ参照

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C09D123/00, B32B27/00, B32B27/26, B32B27/32, C09D5/00, C09D7/63, C09D123/14, C09D123/26, C09D123/28, C09D163/00, C09D175/04, C09J11/06, C09J123/00, C09J123/14, C09J123/26, C09J123/28, C09J163/00, C09J175/04, H01M2/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2018年
日本国実用新案登録公報	1996-2018年
日本国登録実用新案公報	1994-2018年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	WO 2013/164976 A1（三井化学株式会社）2013.11.07, 請求項1-13、[0024]-[0136]、実施例 & US 2015/0087769 A1 Claims 1-13, [0037]-[064], Examples & EP 2845875 A1 & CN 104271660 A & KR 10-2014-0146659 A & TW 201350547 A	1-22

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー	の日の後に公表された文献
「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの	「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）	「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日 15.08.2018	国際調査報告の発送日 28.08.2018
--------------------------	--------------------------

国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/J P） 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 安孫子 由美	4Z	3444
	電話番号 03-3581-1101 内線 3480		

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	WO 2014/123183 A1 (三井化学株式会社) 2014. 08. 14, 請求項 1 - 17、[0007] - [0195]、実施例 & US 2015/0367601 A1 Claims 1-17, [0007]-[0216], Examples & EP 2955212 A1 & CN 104903416 A & KR 10-2015-0093782 A & TW 201437308 A	1-22
Y	JP 2015-137333 A (三井化学株式会社) 2015. 07. 30, 請求項 1 - 18、【0005】 - 【0131】、実施例 (ファミリーなし)	1-22
Y	WO 2016/080297 A1 (三井化学株式会社) 2016. 05. 26, 請求項 1 - 15、【0004】 - 【0137】、実施例 & US 2017/0321093 A1 Claims 1-16, [0005]-[0203], Examples & EP 3222686 A1 & KR 10-2017-0071531 A & CN 107001841 A & TW 201627429 A	1-22
Y	JP 2016-132716 A (三井化学株式会社) 2016. 07. 25, 請求項 1 - 15、【0005】 - 【0224】、実施例 (ファミリーなし)	1-22
Y	JP 2016-020402 A (綜研化学株式会社) 2016. 02. 04, 【0068】 【0069】 & WO 2016/006352 A1 & TW 201612008 A & CN 106536665 A & KR 10-2017-0031101 A	1-22
Y	WO 1999/045064 A1 (呉羽化学工業株式会社) 1999. 09. 10, 第 10 頁 & EP 1061099 A1 [0022] & KR 10-2001-0041455 A & TW 553994 B & CN 1292015 A	1-22
Y	JP 2003-019778 A (旭化成株式会社) 2003. 01. 21, 【0021】 - 【0025】 (ファミリーなし)	1-22
A	JP 7-048553 A (東邦理化学工業株式会社) 1995. 02. 21, 全文 (ファミリーなし)	1-22
A	JP 2009-524705 A (スリーエム イノベイティブ プロパティズ カンパニー) 2009. 07. 02, 全文 & US 2009/0026934 A1 & WO 2007/087281 A1 & EP 1976952 A1 & KR 10-2008-0088606 A & CN 101370889 A	1-22

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2011-524919 A (テーザ・ソシエタス・ヨーロピア) 2011.09.08, 全文 & US 2011/0076905 A1 & WO 2009/147098 A1 & EP 2288657 A1 & CN 102056981 A & KR 10-2011-0025748 A	1-22
P, A	WO 2017/126520 A1 (三井化学株式会社) 2017.07.27, 全文 & TW 201736552 A	1-22

発明の属する分野の分類

C09D123/00(2006.01)i, B32B27/00(2006.01)i, B32B27/26(2006.01)i, B32B27/32(2006.01)i,
C09D5/00(2006.01)i, C09D7/63(2018.01)i, C09D123/14(2006.01)i, C09D123/26(2006.01)i,
C09D123/28(2006.01)i, C09D163/00(2006.01)i, C09D175/04(2006.01)i,
C09J11/06(2006.01)i, C09J123/00(2006.01)i, C09J123/14(2006.01)i,
C09J123/26(2006.01)i, C09J123/28(2006.01)i, C09J163/00(2006.01)i,
C09J175/04(2006.01)i, H01M2/02(2006.01)i