(19)日本国特許庁(JP)　(12)公表特許公報(A)　(11)特許出願公表番号
特表2008-506821
(P2008-506821A)
(43)公表日　平成20年3月6日(2008.3.6)

(51)Int.Cl.		F I		テーマコード（参考）
C09J 201/02	(2006.01)	C09J 201/02		4F100
C09J 201/06	(2006.01)	C09J 201/06		4H017
C09J 11/06	(2006.01)	C09J 11/06		4J040
C09K 3/10	(2006.01)	C09K 3/10	Z	
B32B 27/00	(2006.01)	C09K 3/10	E	

審査請求 未請求　予備審査請求 未請求　（全 25 頁）　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2007-521817 (P2007-521817)
(86)(22)出願日　平成17年6月16日 (2005.6.16)
(85)翻訳文提出日　平成19年3月22日 (2007.3.22)
(86)国際出願番号　PCT/EP2005/006455
(87)国際公開番号　WO2006/010408
(87)国際公開日　平成18年2月2日 (2006.2.2)
(31)優先権主張番号　102004035542.8
(32)優先日　平成16年7月22日 (2004.7.22)
(33)優先権主張国　ドイツ(DE)

(71)出願人　391008825
ヘンケル　コマンディットゲゼルシャフト　アウフ　アクチエン
Ｈｅｎｋｅｌ　ＫＧａＡ
ドイツ連邦共和国　デュッセルドルフ　ヘンケルシュトラーセ　６７
Ｈｅｎｋｅｌｓｔｒａｓｓｅ　６７，Ｄ－４０５８９　Ｄｕｅｓｓｅｌｄｏｒｆ，Ｇｅｒｍａｎｙ
(74)代理人　100081422
弁理士　田中　光雄
(74)代理人　100101454
弁理士　山田　卓二
(74)代理人　100083356
弁理士　柴田　康夫

最終頁に続く

(54)【発明の名称】２成分結合剤

(57)【要約】
本発明は、少なくとも成分（Ａ）および（Ｂ）を含んでなる結合剤系であって、ａ）成分（Ａ）は、少なくとも２つの環状カーボネート基を有する化合物または２以上の少なくとも２つの環状カーボネート基を有する化合物の混合物であり、およびｂ）成分（Ｂ）は、少なくとも２つの（－ＮＨＲ－）原子団を有する化合物または２以上の少なくとも２つの（－ＮＨＲ－）原子団を有する化合物の混合物〔式中、ＲはＨ、アルキル基またはアリール基である〕である、結合剤系に関する。成分（Ａ）は、≧１，０００ｇ／ｍｏｌの平均分子量（M_n）を有する。該結合剤系は、２成分接着剤またはシーラントとしての使用に特に適当であり、および種々の基材に対する非常に良好な接着性を特徴とする。

【特許請求の範囲】
【請求項１】
少なくとも成分（Ａ）および（Ｂ）を含んでなる結合剤系であって、
ａ）成分（Ａ）として、少なくとも２つの環状カーボネート基を有する化合物または２以上の少なくとも２つの環状カーボネート基を有する化合物の混合物と、
ｂ）成分（Ｂ）として、少なくとも２つの（－ＮＨＲ－）原子団を有する化合物または２以上の少なくとも２つの（－ＮＨＲ－）原子団を有する化合物の混合物〔式中、ＲはＨ、アルキル基またはアリール基である〕とを含んでなり、
成分（Ａ）は、≧１，０００ｇ／ｍｏｌの平均分子量（$Ｍ_n$）を有する、結合剤系。
【請求項２】
成分（Ａ）は、１，５００ｇ／ｍｏｌ～１００，０００ｇ／ｍｏｌ、特に好ましくは２０００ｇ／ｍｏｌ～５０，０００ｇ／ｍｏｌの平均分子量（$Ｍ_n$）を有する、請求項１に記載の結合剤系。
【請求項３】
成分（Ａ）は、好ましくは環状カーボネート基を有するポリマーであり、該ポリマーは、脂肪化合物、ポリエーテル、ポリエーテルポリオール、ポリエステル、ポリエステルポリオール、ポリカーボネート、ポリカルボン酸、ポリアクリレート、ポリメタクリレート、ポリアミド、ポリアミン、ポリウレタンまたはそれらの混合物の群から選択される、請求項１または２に記載の結合剤系。
【請求項４】
成分（Ａ）は、環状ヒドロキシアルキルカーボネートと、無水物基、$Ｃ_1$～$Ｃ_4$アルキルエステル基またはイソシアネート基を有するポリマーとの反応生成物である、請求項１～３のいずれかに記載の結合剤系。
【請求項５】
環状ヒドロキシアルキルカーボネートは、５員または６員のカーボネート環を有し、特に好ましくはグリセリンカーボネートである、請求項４に記載の結合剤系。
【請求項６】
成分（Ａ）は、エポキシド基を有するポリマーへの二酸化炭素の付加生成物である、請求項１または２に記載の結合剤系。
【請求項７】
成分（Ａ１）として、＜１０００ｇ／ｍｏｌの平均分子量を有する環状カーボネート基を有する化合物が、成分（Ａ）に基づいて６０重量％の量でさらに存在する、請求項１～６のいずれかに記載の結合剤系。
【請求項８】
成分（Ｂ）は、成分（Ｂ１）として、６０ｇ／ｍｏｌ～５００ｇ／ｍｏｌ、好ましくは６０ｇ／ｍｏｌ～３００ｇ／ｍｏｌの平均分子量（$Ｍ_n$）を示し、または成分（Ｂ２）として、≧５００ｇ／ｍｏｌの平均分子量（$Ｍ_n$）を示し、ここで成分（Ｂ）は、成分（Ｂ１）または（Ｂ２）のいずれかとして、あるいは（Ｂ１）と（Ｂ２）との混合物として存在する、請求項１～７のいずれかに記載の結合剤系。
【請求項９】
成分（Ｂ２）は、８００ｇ／ｍｏｌ～２，０００，０００ｇ／ｍｏｌ、特に好ましくは１，０００ｇ／ｍｏｌ～１，５００，０００ｇ／ｍｏｌの平均分子量（$Ｍ_n$）を有する、請求項８に記載の結合剤系。
【請求項１０】
成分（Ｂ１）は、アルキレンジアミン、シクロアルキレンジアミン、アミノ官能化ポリアルキレングリコールおよび／または多官能性アミンの群から選択される、請求項８に記載の結合剤系。
【請求項１１】
成分（Ｂ２）は、ポリアミン、ポリイミン、ポリエーテル、ポリアミド、ポリアミノアミド、ポリウレタン、ポリオレフィン、ポリビニルアミンまたはそれらの混合物の群から

選択されるポリマーである、請求項８または９に記載の結合剤系。
【請求項１２】
成分（Ｂ２）は、高分枝状ポリマー、特にデンドリマーを示す、請求項８または９に記載の結合剤系。
【請求項１３】
請求項１～１２のいずれかに記載の結合剤系を使用する接着剤／シーラントの製造方法であって、成分（Ａ）を、３０：１～０．２：１、好ましくは１０：１～０．４：１、特に好ましくは５：１～０．５：１および特に２：１～０．６：１のカーボネート基と第１級アミン基との比率で成分（Ｂ）と混合することを含む（ここで第１級アミン基の非存在下においては、該混合比率は、第２級アミン基に対して適用される）、方法。
【請求項１４】
紙、ボール紙、木材、プラスチック、金属または陶器を接着するための２成分接着剤としての、請求項１～１２のいずれかに記載の結合剤系の使用。
【請求項１５】
溶媒非含有または溶媒含有積層接着剤としての、請求項１４に記載の結合剤系の使用。
【請求項１６】
建築用発泡体または流動性シーリング化合物を製造するための、請求項１４に記載の結合剤系の使用。
【請求項１７】
複合フィルムの製造方法であって、少なくとも２つの同一または異なるプラスチックフィルムを、請求項１～１２のいずれかに記載の結合剤系を使用して部分的にまたは完全に接着することを含む、方法。
【請求項１８】
請求項１７に記載の方法で製造された複合フィルム。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、成分（Ａ）として少なくとも２つの環状カーボネート基を有する化合物、または２以上の少なくとも２つの環状カーボネート基を有する化合物の混合物、および成分（Ｂ）として少なくとも２つの（－ＮＨＲ－）原子団を有する化合物、または２以上の少なくとも２つの（－ＮＨＲ－）原子団を有する化合物の混合物から構成される、少なくとも成分（Ａ）および（Ｂ）を含んでなる結合剤系、ならびに、接着剤／シーラントとしての結合剤系の使用、およびこの接着剤／シーラントの使用に関する。
【背景技術】
【０００２】
特にポリオールおよびＮＣＯ末端化合物に基づく２成分結合剤系は、先行技術において長く知られていた。それらは、例えば、金属工業、自動車産業、電気産業、包装産業または建築業において、接着剤、シーラント、充填剤または注型剤として用いられている。「硬化剤」として使用されるＮＣＯ基を有するポリウレタンの欠点は、水分感受性である。その結果として、これらの化合物を保存するために、ぴったりとシールされた包装体を使用しなければならない。一旦開けた場合、該容器は、通常、品質の劣化を避けるために、直ちにまたは迅速に使い尽くさなければならない。一般に、ポリオール成分は、硬化剤と混合する前に、入念に乾燥させなければならない。なぜなら、そうでなければ、残留水分が接着剤フィルム中の望ましくない気泡の形成をもたらし、これは所定の環境下、最終用途の欠点となり得るからである。２成分ポリウレタン接着剤に基づく少なくとも幾つかの結合剤系に関するさらなる欠点は、硬化成分中のモノマーイソシアネート（特に高揮発性および／または易移動性モノマージイソシアネート）の毒性である。高含量の高揮発性ジイソシアネートを含有する生成物の使用は、仕事場に、特にきれいな呼吸できる空気を保持するための、高価な保護手段を導入することを使用者に要求する。ガス、蒸気または粒状物として取り扱われる材料の仕事場での空気中の法的に許容される最大濃度は、（独国

において、例えば、毎年更新される「ＭＡＫ－Ｗｅｒｔ－Ｌｉｓｔｅ ｄｅｒ Ｔｅｃｈｎｉｓｃｈｅｎ Ｒｅｇｅｌ ＴＲＧＳ ９００ ｄｅｓ Ｂｕｎｄｅｓｍｉｎｉｓｔｅｒｉｕｍｓ ｆｕｅｒ Ａｒｂｅｉｔ ｕｎｄ Ｓｏｚｉａｌｅｓ」によって）規定されている。

しかしながら、また、遊離のモノマーポリイソシアネートは、あるいは部分的でさえも、被覆材料または接着材料中に移動し得る。このような移動性成分は、通常、当業者により「移動体（Ｍｉｇｒａｔｅ）」と呼ばれる。水分と接触すると、該移動体のイソシアネート基は、アミノ基と連続的に反応する。

【０００３】

移動体は、包装産業において（特に食品の包装において）非常に望ましくない。一方で、移動体が包装材料を通過することで、包装された生成物の汚染が導かれ得る。他方、包装材料が「移動体非含有」となり、使用できるようになるまで、長い待機時間が必要となる。

【０００４】

モノマージイソシアネートの移動によりもたらされ得る別の望ましくない効果は、積層プラスチックフィルムからのバッグまたはキャリアバッグの製造における、いわゆる抗シーリング効果である。積層プラスチックフィルムは、しばしば脂肪酸アミドに基づくスリップ剤を含有する。移動したモノマーポリイソシアネートと、脂肪酸アミドおよび／または水分との反応によって、プラスチックフィルムのシーリング温度を超える融点を有する尿素化合物がフィルム表面上に形成される。これは、シールされるフィルム間に「異質の」層の形成を導き、均質なシーリング継ぎ目の形成の妨げとなる。

【０００５】

環状カーボネート基を有する化合物および脂肪族ポリアミンに基づく生成物は、原則として、既知である。

米国特許ＵＳ３，０７２，６１３は、接着剤として使用でき、≧０℃の温度での多官能性環状カーボネートと多官能性アミンとの反応によって得られ、ジメチルホルムアミド中の０．２重量％溶液として≧０．１２の還元粘度を示す、ポリウレタン樹脂生成物を記載する。多官能性環状カーボネートは、モノマー化合物の反応から、例えば、ヘキサメチレンジイソシアネートとグリセリンカーボネートとの反応、ジグリセリンとジエチルカーボネートとの反応、または２，２－プロピレン－ビス－（４－フェノール）－ジエポキシドとエチレンカーボネートとの反応から得られる。多官能性アミンは、２～４個のアミノ基および２～２０個の炭素原子を有する脂肪族炭化水素骨格を有する。

【０００６】

米国特許ＵＳ４，８８３，８５３は、接着剤として用いることができ、ウレタンポリオールとポリイソシアネートとの反応から得られるポリウレタンを記載する。該ウレタンポリオールは、多官能性アミンとエチレンカーボネートとの反応によって得られ得る。

【０００７】

米国特許ＵＳ５，９７７，２６２は、その対応する酸が≧１１のｐＫａ値を有する触媒量の塩基の存在下、環状カーボネートおよび第１級アミンからのヒドロキシウレタンの製造方法を記載する。

【０００８】

国際公開ＷＯ０２／０７９１４８は、塩基の存在下、モノマーポリイソシアネートとヒドロキシル基を含有する環状カーボネートとの溶媒中の反応からのカーボネート－ウレタン組成物の製造方法を記載する。該カーボネート－ウレタン組成物は、カーボネート環の開環を伴って過剰のジアミンと反応し、およびアミノ基含有エポキシド架橋剤として役立つ。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【０００９】

本発明の目的は、イソシアネート基を含有する化合物およびポリオールに基づく２成分

結合系と少なくとも同程度に良好な生成物特性を示すが、このタイプの系の欠点を有しない結合系を提供することであった。特に、該系は、良好な接着／シーリング特性を示すべきである。

【課題を解決するための手段】

【００１０】

本発明によれば、上記目的は、請求項を参照することにより達成される。

本発明は、本質的に、少なくとも成分（Ａ）および（Ｂ）を含んでなる結合剤系であって、

ａ）成分（Ａ）として、少なくとも２つの環状カーボネート基を有する化合物、または２以上の少なくとも２つの環状カーボネート基を有する化合物の混合物と、

ｂ）成分（Ｂ）として、少なくとも２つの（－ＮＨＲ－）原子団を有する化合物、または２以上の少なくとも２つの（－ＮＨＲ－）原子団を有する化合物の混合物〔式中、ＲはＨ、アルキル基またはアリール基である〕とを含んでなり、

成分（Ａ）は、≧１０００ｇ／ｍｏｌの平均分子量（$Ｍ_n$）を有する、結合剤系である。

【発明を実施するための最良の形態】

【００１１】

成分（Ａ）の分子量（$Ｍ_n$）の上限は、約１０，０００，０００ｇ／ｍｏｌである。成分（Ａ）は、好ましくは１５００ｇ／ｍｏｌ～１００，０００ｇ／ｍｏｌ、特に好ましくは２０００ｇ／ｍｏｌ～５０，０００ｇ／ｍｏｌの平均分子量（$Ｍ_n$）を有する。

【００１２】

以下の定義が本明細書に適用される：

（ａ）第１級アミン基は、「－$ＮＨ_2$」（Ｒ＝Ｈ）タイプの原子団であり、

（ｂ）第２級アミン基は、「－ＮＨＲ」タイプの原子団であり、および

（ｃ）第３級アミン基は、「$Ｒ_3Ｎ$」タイプの原子団である。

本発明において、アミノ基は、「－$ＮＨ_2$」タイプの原子団を意味すると理解される。

驚くべきことに、このタイプの結合剤系は、適当な接着剤／シーラントであり、および非常に多様な材料の表面に対する非常に良好な接着性によって特徴付けられることが見出された。本質的にＮＣＯ基を含有しないポリウレタン接着剤／シーラントは、単独で、または通常の有機溶媒中の溶液として、使用することができる。「本質的にＮＣＯ基を含有しない」とは、成分（Ａ）中のＮＣＯ含量が、＜０．１重量％であることを意味する。

【００１３】

本明細書における分子量は、他に規定しない限り、数平均分子量（$Ｍ_n$）を意味する。全ての分子量データは、他に規定しない限り、ゲル透過クロマトグラフィー（ＧＰＣ）により得られた値を意味する。

【００１４】

分子量の基準を満たし、および成分（Ｂ）との反応を妨害する如何なる他の官能基も有しない限り、任意のポリマーが少なくとも２つの環状カーボネート基を有する化合物として使用することができる。少なくとも２つの環状カーボネート基を有する少なくとも１つの化合物は、直鎖状または分枝状のいずれかであり得る。

成分（Ａ）の環状カーボネート基は、好ましくはポリマー鎖の末端に配置される。しかしながら、幾つかの場合、ポリマー鎖全体に渡って統計学的に分布したこれらの基を含んでなる化合物も、成分（Ａ）として使用することができる。環状カーボネート基は、主鎖の一部を形成し得るか、または側鎖に配置され得る。

成分（Ａ）は、好ましくは環状カーボネート基を有するポリマーであり、該ポリマーは、脂肪化合物、ポリエーテル、ポリエーテルポリオール、ポリエステル、ポリエステルポリオール、ポリカーボネート、ポリカルボン酸、ポリアクリレート、ポリメタクリレート、ポリアミド、ポリアミン、ポリウレタンまたはそれらの混合物の群から選択される。脂肪化合物は、好ましくは、アルコキシル化されたヒマシ油または二量体ジオールである。

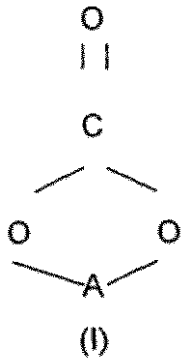
成分Ａとして使用されるポリアミドは、ＮＨ基を有しないものと理解される。

【００１５】

シクロカーボネートは、式（Ｉ）：

【００１６】

【化１】



〔式中、
Ａは、（Ｃ（Ｒ^{1}Ｒ^{2}））$_{n}$（式中、ｎは≧２であり、好ましくはｎは２または３であり、特に好ましくはｎは２である）であり、
Ｒ^{1}およびＲ^{2}は、
ａ）水素原子、または、飽和または不飽和の直鎖もしくは分枝鎖または環状の芳香族またはアリール脂肪族の１～１２個の炭素原子を有する置換されていてもよい炭化水素基、または
ｂ）１～１２個の炭素原子および３個までの酸素原子を有するエーテル基、または
ｃ）Ｒ^{3}Ｘ（式中、Ｒ^{3}は、二価の脂肪族、脂環族、芳香族、アリール脂肪族の、またはエーテルを含有する、１～２０個の炭素原子を有する置換されていてもよい炭化水素基であり、およびＸは、ヒドロキシ－、エポキシ、カルボン酸－、カルボン酸エステル基である）、または
ｄ）Ｚ（式中、Ｚは、不飽和重合性基、特にビニル基、（メタ）アクリル酸－、マレイン酸－、フマル酸－、イタコン酸－またはクロトン酸－エステル基である）
であり、およびＲ^{1}およびＲ^{2}は、同一または互いに異なり得る〕
で示される、炭酸エステル基が環構造の一部である構造であると理解される。

【００１７】

シクロカーボネートの具体例は、エチレンカーボネート（１，３－ジオキソラン－２－オン）；プロピレンカーボネート（４－メチル－１，３－ジオキソラン－２－オン）；グリセリンカーボネート（４－メチルヒドロキシ－１，３－ジオキソラン－２－オン）；５－エチル－５－（ヒドロキシメチル）－１，３－ジオキサン－２－オン；１，３－ジオキサン－２－オン；５－（（アリルオキシ）メチル）－５－エチル－１，３－ジオキサン－２－オン；１，３－ジオキセピン－２－オンである。エポキシド基を有する環状カーボネートは、例えば、独国特許公開ＤＥ　３７２６４９７　Ａ１に記載されている。

【００１８】

環状カーボネートは、例えば、炭酸エステル（例えば、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、ジフェニルカーボネート、エチレンカーボネートまたはプロピレンカーボネートなど）のポリオールによるエステル交換によって得られる。ここで該ポリオールは、好ましくは少なくとも４個のヒドロキシル基を有し、それらのうち２個は、エステル交換によって炭酸エステルと反応して５員環または６員環の環状カーボネートを与える。多価ポリオールの例としては、ジグリセリン、トリグリセリン、ポリグリセリン、糖アルコール（例えば、キシリトール、マンニトール、エリスリトール）、ジ－およびトリメチロールプロパン、ジ－およびトリメチロールエタン、ペンタエリスリトール、ジペンタエリスリトールが挙げられる。ここでジグリセリンが特に好ましい。環状カーボネートは、当業者に既知の従来方法にしたがって、ポリオールから、特にポリオールとカーボネート

とを、１．０：１．０～１．０：１０．０（１，２－または１，３－グリコール基とカーボネート基との比率）の化学量論的比率で、特に触媒の存在下、反応させることにより製造される。触媒としては、例えば、塩基触媒、例えば：アルカリ金属およびアルカリ土類金属のカーボネート、ビカーボネート、アルコラート、カルボキシレート、水酸化物または酸化物など、ならびに、ルイス酸、例えば、二価または四価のスズまたはチタンの有機化合物、例えば、スズ－（ＩＩ）－オクトエート、スズ－（ＩＩ）－ラウレート、ジブチルスズオキシドまたはテトラブチルチタネートなどが挙げられる。触媒は、例えば、ポリオールおよび炭酸エステルに基づいて０．０１～１．０重量％の量で、添加され得る。

また、環状カーボネートは、既知の技術を使用して、二酸化炭素をエポキシ化合物でエステル交換することによって得ることができる。このタイプの反応は、例えば、国際公開ＷＯ８４／０３７０１、独国特許公開ＤＥ－Ａ　３５２９２６３または独国特許公開ＤＥ－Ａ　３６００６０２に記載されている。

脂肪族および芳香族環状カーボネートの両方は、ポリオールとホスゲンとの反応によって得ることができる（例えば、米国特許ＵＳ３，６２４，０１６）。

【００１９】

ポリマーへの少なくとも２つの環状カーボネート基の提供（以下、「官能化」と称する）は、ポリマー鎖の合成の間に成し遂げられ得る。ここでシクロカーボネート基を含有する適当なモノマーが用いられる。しかしながら、予め製造したポリマーを官能化することが好ましい。このため、無水物基またはイソシアネート基を有するポリマーへの環状ヒドロキシアルキルカーボネートの付加が特に好ましい。基本的に、適当な方法は、欧州特許公開ＥＰ　０３２８１５０　Ａ２に記載されている。５員または６員カーボネート環を有する環状ヒドロキシアルキルカーボネートは、付加反応に好ましい。グリセリンカーボネートがとりわけ好ましい。

同様に、このような環状ヒドロキシアルキルカーボネートを、エステル交換によって組み込むことができる。ここで、ポリマーのC_1～C_4－アルキルエステル基は、例えば、直接反応させることができ、または、ポリマーのヒドロキシル基を低分子量C_2～C_6ジカルボン酸エステルのエステル基と反応させ、次いで、残りのC_1～C_4アルキルエステル基をヒドロキシアルキルカーボネートと反応させることができる。低分子量ジカルボン酸エステルは、２～４４個の炭素原子、好ましくは２～１２個の炭素原子、特に好ましくは２～６個の炭素原子を含有するジカルボン酸部分を有し、および直鎖状または分枝状の、脂肪族、脂環族または芳香族構造を示し得るものを意味すると理解される。ヒドロキシアルキルカーボネートの組み込みのさらなる可能性は、それらの酸ハロゲン化物（特に炭酸ハロゲン化物）との反応を介する。さらなる本発明の好ましい実施態様において、二酸化炭素のエポキシド基含有ポリマーへの付加によって得られる化合物を、成分（Ａ）として用いる。このタイプの付加方法は、原則として、独国特許出願公開ＤＥ－ＯＳ　３５２９２６３および独国特許出願公開ＤＥ－ＯＳ　３６００６０２に記載されている。

【００２０】

成分（Ａ）を選択し、環状カーボネート基を用いて官能化することによって、ウレタン基、またはエステル基のみを含んでなるポリマーを得ることができる。ポリマーの粘度は、この方法において影響を受け得る。本発明のさらなる実施態様において、環状カーボネート基を示すさらなる低分子量成分（Ａ１）は、結合剤系に含まれ得る。この成分は、＜１０００ｇ／ｍｏｌ、好ましくは＜８００ｇ／ｍｏｌの分子量を有するべきであり、および少なくとも２つの環状カーボネート基を含んでなる。例えば、それらは、CO_2と反応したジエポキシド、またはエステル基にて上記ヒドロキシ官能性環状カーボネートと反応したジ－またはトリカルボン酸エステルであり得る。また、このタイプの成分は、反応性希釈剤と呼ばれ、および結合剤系の粘度を改変するために、例えば、（Ａ）に基づいて、６０重量％まで、好ましくは２５重量％までの量で添加することができる。

【００２１】

本発明の結合剤系は、成分（Ａ）に加え、成分（Ｂ）として、少なくとも２つの（－ＮＨＲ－）原子団を有する少なくとも１つの化合物、または２以上の少なくとも２つの（－

ＮＨＲ－）原子団を有する化合物の混合物を含んでなる（式中、ＲはＨ、アルキル基またはアリール基である）。

成分（Ｂ）は、成分（Ｂ１）として、６０ｇ／ｍｏｌ～５００ｇ／ｍｏｌ、好ましくは６０ｇ／ｍｏｌ～３００ｇ／ｍｏｌの平均分子量（M_n）を示し、または成分（Ｂ２）として、≧５００ｇ／ｍｏｌの平均分子量（M_n）を示し、ここで成分（Ｂ）は、成分（Ｂ１）または（Ｂ２）のいずれかとして、あるいは（Ｂ１）と（Ｂ２）との混合物として存在する。（Ｂ１）と（Ｂ２）との添加混合物における（Ｂ１）と（Ｂ２）との重量比は、０．５：２０～２０：０．５である。

成分（Ｂ２）の分子量（M_n）の上限は、約５，０００，０００ｇ／ｍｏｌである。好ましくは、成分（Ｂ２）は、８００ｇ／ｍｏｌ～２，０００，０００ｇ／ｍｏｌ、特に好ましくは１，０００ｇ／ｍｏｌ～１，５００，０００ｇ／ｍｏｌの平均分子量（M_n）を有する。

【００２２】

本発明に用いられる成分（Ｂ）は、直鎖状または分枝状のいずれかであり得る。成分（Ｂ）の分子骨格は、脂肪族、芳香族、脂肪族－芳香族、脂環族およびヘテロ環式構造を含んでなり得る。第１級および／または第２級および第３級アミンが該分子中に存在し得るが、少なくとも２つの（－ＮＨＲ－）原子団、好ましくは２個のアミノ基が含まれていなければならない。アミン官能基は、それ自身脂肪族であり、すなわち、アミン窒素に直接隣接した炭素原子は、芳香族環構造の一部ではない。

【００２３】

本発明における添加成分（Ｂ１）は、単一成分として、あるいは成分（Ｂ１）として使用可能な適当な化合物の混合物として、添加される。

成分（Ｂ１）は、好ましくはアルキレンジアミンおよび／またはシクロアルキレンジアミンの群から選択される。

アルキレンジアミンは、一般式$R^4R^5N-Z-NR^6R^7$（式中、R^4、R^5、R^6、R^7は、互いに独立して、Ｈ、アルキルまたはシクロアルキル基であり得、およびＺは、≧２個の炭素原子を含有する直鎖状または分枝状の飽和または不飽和アルキレン鎖を意味する）で示される化合物を意味すると理解される。好ましい例は、ジアミノエタン、ジアミノプロパン、１，２－ジアミノ－２－メチルプロパン、１，３－ジアミノ－２，２－ジメチルプロパン、ジアミノブタン、ジアミノペンタン、１，５－ジアミノ－２－メチルペンタン、ネオペンチルジアミン、ジアミノヘキサン、１，６－ジアミノ－２，２，４－トリメチルヘキサン、１，６－ジアミノ－２，４，４－トリメチルヘキサン、ジアミノヘプタン、ジアミノオクタン、ジアミノノナン、ジアミノデカン、ジアミノウンデカン、ジアミノドデカン、二量体アミン（例えば、Ｃｏｇｎｉｓから商品名Ｖｅｒｓａｍｉｎ ５５１のもと市販）、トリアセトンジアミン、ジオキサデカンジアミン、Ｎ，Ｎ－ビス（３－アミノプロピル）－ドデシルアミン（例えば、Ｌｏｎｚａから商品名Ｌｏｎｚａｂａｃｈ １２．３０のもと市販）またはそれらの混合物である。

【００２４】

シクロアルキレンジアミンは、一般式$R^8R^9N-Y-NR^{10}R^{11}$（式中、R^8、R^9、R^{10}およびR^{11}は、互いに独立して、Ｈ、アルキルまたはシクロアルキル基であり得、Ｙは、≧３個の炭素原子、好ましくは＞４個の炭素原子を含有する飽和または不飽和シクロアルキル基を意味する）で示される化合物を意味すると理解される。ジアミノシクロペンタン、ジアミノシクロヘキサン、ジアミノシクロヘプタン、例えば、１，４－シクロヘキサンジアミン；４，４’－メチレン－ビス－シクロヘキシルアミン、４，４’－イソプロピレン－ビス－シクロヘキシルアミン、イソホロンジアミン、ｍ－キシリレンジアミン、Ｎ－アミノエチルピペラジンまたはそれらの混合物が好ましい。

【００２５】

また、ジアミンは、アルキルならびにシクロアルキル基の両方を一緒に含んでなり得る。好ましい例は、アミノエチルピペラジン、１，８－ジアミノ－ｐ－メンタン、イソホロンジアミン、１，２－（ビスアミノメチル）－シクロヘキサン、１，３－（ビスアミノメ

チル）－シクロヘキサン、１，４－（ビスアミノメチル）－シクロヘキサン、ビス－（４－アミノシクロヘキシル）－メタンである。

成分（Ｂ１）として本発明に使用可能なジアミンのさらなる例は、ビス－（６－アミノヘキシル）－アミン、α，α－ジアミノキシレンなどである。

【００２６】

好ましくは、多官能性アミンは、成分（Ｂ１）および／または成分（Ｂ２）として用いられる。特に、これらは、アミノ官能化ポリアルキレングリコール、例えば、１，２－ビス－（アミノエトキシ）－エタン、１，１３－ジアミノ－４，７，１０－トリオキサトリデカンである。本発明に使用可能なアミノ官能性ポリアルキレングリコールは、例えば、Ｈｕｎｔｓｍａｎ　ＣｏｒｐからＪｅｆｆａｍｉｎｅ（登録商標）として市販されている。Ｊｅｆｆａｍｉｎｅ　Ｄ－２３０、Ｄ－４００、Ｄ－２０００、Ｄ－４０００、Ｔ－４０３、Ｔ－３０００、Ｔ－５０００、ＥＤ－６００、ＥＤ－２００３が好ましい。

同様に、成分（Ｂ１）および／または成分（Ｂ２）として用いることができる好ましい多官能性アミンは、一般式$H_2N-(CH_2CH_2-NH)_x-CH_2CH_2-NH_2$（式中、２≦ｘ≦１０）で示される化合物であり、例えば、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ペンタエチレンヘキサミン、ジプロピレントリアミン、ビス－（３－アミノプロピル）－アミン、Ｎ，Ｎ－ビス（３－アミノプロピル）－エチレンジアミン、ビスヘキサメチレントリアミン、ヘプタエチレンオクタミンなどである。

【００２７】

好ましくは、ポリマーは、成分（Ｂ２）として用いられる。これらは、ポリアミン、ポリイミン、ポリエーテル、ポリアミド、ポリアミノアミド、ポリウレタン、ポリオレフィン、ポリビニルアミンまたはそれらの混合物の群から選択される。

【００２８】

成分（Ｂ２）として使用することができるポリアミンは、Ｈｅｎｒｙ　ＬｅｅおよびＫｒｉｓ　ＮｅｖｉｌｌｅによるＨａｎｄｂｏｏｋ　ｏｆ　Ｅｐｏｘｙ　Ｒｅｓｉｎｓ、第７章、７－１～７－３３頁、ＭｃＧｒａｗ－Ｈｉｌｌ　Ｂｏｏｋ　Ｃｏｍｐａｎｙ、ニューヨーク、１９６７年およびその参照文献、ならびにＣｌａｙｔｏｎ　Ａ．　ＭａｙによるＥｐｏｘｙ　Ｒｅｓｉｎｓ、４６６～４６８頁、Ｍａｒｃｅｌ　Ｄｅｋｋｅｒ、ニューヨーク、１９８８年およびその参照文献に記載されている。

【００２９】

好ましいポリイミンは、ポリエチレンイミンである。また、ポリエチレンイミンのアミン水素官能基は、例えば、アルキル化、ベンジル化、アセチル化、アルコキシル化、好ましくはエトキシル化またはプロポキシル化によって、部分的に変性され得る。エピクロロヒドリンを用いる変性が特に好ましい。好ましいポリエチレンイミンは、ＢＡＳＦから商品名Ｌｕｐａｓｏｌ（登録商標）　ＰＳ、Ｐ、ＷＦ、Ｂｏ　１５０、ＦＣ、ＦＧ、Ｇ－１００、Ｇ－２０、Ｇ－３５、Ｇ－５００、ＨＦ、ＰＯ－１００、ＰＲ－８５１５およびＳＫのもと、またはＤＯＷから商品名Ｐｏｌｙｅｔｈｙｌｅｎｉｍｉｎ　６、１２、１８、６００、１０００のもと市販されている。

【００３０】

ポリアミノアミドは、主鎖中にアミンおよびアミド官能基の両方を含んでなる。ポリアミノアミドは、ポリアミンおよびジカルボン酸の重縮合によって、またはアクリル酸エステルのジアミンへのマイケル付加および得られたアミノ酸エステルのその後の重縮合によって、製造される。成分（Ｂ２）として使用することができるポリアミノアミドは、Ｈｅｎｒｙ　ＬｅｅおよびＫｒｉｓ　ＮｅｖｉｌｌｅによるＨａｎｄｂｏｏｋ　ｏｆ　Ｅｐｏｘｙ　Ｒｅｓｉｎｓ、第１０章、１０－１～１０－２３頁、ＭｃＧｒａｗ－Ｈｉｌｌ　Ｂｏｏｋ　Ｃｏｍｐａｎｙ、ニューヨーク、１９６７年、ならびにＣｌａｙｔｏｎ　Ａ．　ＭａｙによるＥｐｏｘｙ　Ｒｅｓｉｎｓ、４６９頁、Ｍａｒｃｅｌ　Ｄｅｋｋｅｒ、ニューヨーク、１９８８年およびその参照文献に記載されている。

本発明において、好ましくは、脂肪族ポリアミンと二量体化または三量体化脂肪酸との

重縮合によって得られるポリアミノアミドが使用される。また、非グラフト化およびグラフト化ポリアミノアミド、例えば、国際公開ＷＯ９４／２９４２２に記載されているものも使用することができる。ポリアミノアミドは、Ｃｏｇｎｉｓから商品名Ｖｅｒｓａｍｉｄ（登録商標）のもと、Ｂａｋｅｌｉｔｅ ＡＧから商品名Ｒｕｅｔａｄｕｒのもと、またはＳ．Ｉ．Ｑ． Ｋｕｎｓｔｈａｒｚ ＧｍｂＨから一連の製品ＳＩＱ－Ｔｈｅｒｍのもと市販されている。

【００３１】

成分（Ｂ２）として使用することができるさらなる好ましいポリアミンは、ポリビニルアミンである。ポリビニルアミンは、例えば、Ｎ－ビニルアシルアミン（例えば、Ｎ－ビニルホルムアミド、Ｎ－ビニルアセトアミドなど）を重合し、およびその後にアミド基を完全または部分加水分解することによって、製造することができる。

好ましいポリビニルアミンは、ＢＡＳＦから商品名Ｌｕｐａｍｉｎ（登録商標）：１５００、４５００、４５９５、９０００、９０３０、９０９５のもと市販されている。

【００３２】

アミン末端ポリエーテルウレタンは、例えば、Ｈｅｎｋｅｌから商品名Ｌｉｏｆｏｌ ＵＲ ９６４０のもと入手できる。

成分（Ｂ２）として使用することができるさらなるポリアミンは、分岐点にアミノ基（特に第１級アミノ基）を有する高分枝状ポリマーである。

成分（Ｂ２）として使用される特に好ましい高分枝状ポリマーの群は、デンドリマー、カスケードポリマーまたは星形ポリマーとしても既知である樹状ポリマーである。これらは、予め結合したモノマーの各々に２以上のモノマーを結合することによって、段階的に構築され、各段階でモノマー末端基数が指数的に増大し、最終的に、球形の樹状構造になった合成高分子であると理解される。好ましいデンドリマーは、枝に第１級アミノ官能基を有するポリアミンアミド（ＰＡＭＡＭ）である。≧０の世代のものが好ましい。以下の構造を有するデンドリマーは、０世代として理解される：

$[-CH_2N(CH_2CH_2CONHCH_2CH_2NH_2)_2]_2$

≧１の世代のデンドリマーが特に好ましい。ここで１世代のデンドリマーは、以下の構造を有する：

$[-CH_2N[CH_2CH_2CONHCH_2CH_2N(CH_2CH_2CONHCH_2CH_2NH_2)_2]_2]_2$

より高い世代の構造、好ましくは６世代までの構造は、０世代～１世代からの上記系統的合成から生じる。

【００３３】

デンドリマーは、例えば、アンモニアまたは一般式$R^4R^5N-Z-NR^6R^7$で示される上記アルキレンジアミンの適当な代表例と、アクリル酸エステルとの逐次反応によって、製造することができる。これらの場合、R^4、R^5、R^6およびR^7は、水素を意味する。Ｚは、≧２個の炭素原子を含有する直鎖状または分枝状の飽和または不飽和アルキレン鎖を意味する。ポリマー合成は、アミノ基のオレフィン性二重結合へのマイケル付加およびアミノ基とエステル基との縮合によって行う。したがって、適当なモル過剰のアミンを選択しなければならない。

デンドリマー合成のためのさらなる適当なアミン成分は、アルキル基およびシクロアルキル基の両方を示すシクロアルキレンジアミンの上記群、およびアミン官能化ポリアルキレングリコールの群中に見出される。これらの場合、関連するアミン構築ブロックの全ては、２個の第１級アミノ官能基を有する。

【００３４】

成分（Ｂ２）として用いることができる高分枝状ポリマーのさらなる好ましい群は、例えば、アクリル酸エステルと、一般式$H_2N-(CH_2CH_2-NH)_x-CH_2CH_2-NH_2$（式中、$2 \leqq x \leqq 10$）で示される上記多官能性アミンの適当な代表例（例えば、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ペンタエチレンヘキサミンなど）との逐次反応から生じる。

【００３５】
成分（Ｂ２）として用いることができるさらなる好ましい化合物は、成分（Ｂ１）として本発明にしたがって添加される過剰の化合物と、成分（Ｂ２）として本発明にしたがって添加され、それに加えて分子中に少なくとも２つの環状カーボネート基を有する上記化合物との反応によって製造される。
これらの場合、成分（Ｂ２）としての本発明の使用に必要なアミン官能価が反応生成物中に存在するように、シクロカーボネートに対して十分なモル過剰のアミンを用いなければならない。
また、本発明に使用可能な成分（Ｂ２）は、成分（Ｂ１）として使用可能な過剰の上記低分子量多官能性アミンと、１０００ｇ／ｍｏｌ未満、好ましくは１００ｇ／ｍｏｌ～８００ｇ／ｍｏｌの平均分子量（M_n）を有する環状カーボネートとの反応によって製造することができる。これらの場合、まず、本発明の分子量が達成され、および次に、成分（Ｂ２）としての本発明の使用のための本発明のアミン官能価が存在するように、シクロカーボネートに対して適当なモル過剰のアミンを選択しなければならない。
本発明における添加成分（Ｂ２）は、単一成分として、あるいは成分（Ｂ２）として使用可能な適当な化合物の混合物として、添加される。
【００３６】
本発明の結合剤系は、接着剤／シーラントとして特に適当である。
したがって、本発明の主題は、また、本発明の結合剤系を使用する接着剤／シーラントの製造方法である。成分（Ａ）は、３０：１～０．２：１、好ましくは１０：１～０．４：１、特に好ましくは５：１～０．５：１および特に２：１～０．６：１のカーボネート基と第１級アミン基との比率で、成分（Ｂ）と混合される。分子中に第１級アミン基が含まれない場合、該比率は、第２級アミン基に対して適用される。ここで、成分Ａ、Ａ１およびＢ１、Ｂ２の全ての官能基の各々が考慮されるべきである。
本発明の方法の好ましい実施態様において、成分（Ａ）と成分（Ｂ）との間の反応は、溶媒の存在下で行われる。
【００３７】
基本的に、当業者に既知の全ての溶媒を、溶媒として使用することができ、特にエステル、ケトン、ハロゲン化炭化水素、アルカン、アルケンおよび芳香族炭化水素を使用することができる。溶媒の例は、塩化メチレン、トリクロロエチレン、トルエン、キシレン、酢酸ブチル、酢酸アミル、酢酸イソブチル、メチルイソブチルケトン、メトキシブチルアセテート、シクロヘキサン、シクロヘキサノン、ジクロロベンゼン、ジエチルケトン、ジ－イソブチルケトン、ジオキサン、酢酸エチル、エチレングリコールモノブチルエーテルアセテート、エチレングリコールモノエチルアセテート、２－エチルヘキシルアセテート、グリコールジアセテート、ヘプタン、ヘキサン、酢酸イソブチル、イソオクタン、酢酸イソプロピル、メチルエチルケトン、テトラヒドロフランまたはテトラクロロエチレンまたは２以上の上記溶媒の混合物である。
【００３８】
本発明の方法の特定の実施態様において、成分（Ａ）と成分（Ｂ）との間の反応は、触媒の存在下で行う。このため、触媒量の塩基を該混合物に添加する。これらのタイプの塩基および添加量は、米国特許ＵＳ５，９７７，２６６および国際公開ＷＯ０２／０７９１４８に記載されている。特に国際公開ＷＯ９８／５０３４５、第３頁第１行～第４頁第１７行に対して参照がなされる。しかしながら、該触媒は、成分（Ａ）または（Ｂ）中に含ませてもよい。接着またはシーリングのため、接着またはシールされる基材の少なくとも１つの側を、該混合物で被覆し、およびこのように被覆される側は、少なくとも１つのさらなる基材と結合する。
【００３９】
本発明の結合剤系は、非常に多様な基材を接着およびシーリングするのに適当である。基材の例としては、木材、金属、ガラス、植物繊維、石、紙、セルロース水和物、プラスチック（例えば、ポリスチレン、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエチレンテレフタ

レート、ポリ塩化ビニル、塩化ビニルと塩化ビニリデンとのコポリマー、酢酸ビニルとオレフィンとのコポリマー、ポリアミド）、特にプラスチックフィルム、金属（特にアルミニウム、鉛または銅のフィルム）が挙げられる。

【００４０】

特に、本発明の結合剤系は、紙、ボール紙、木材、プラスチック、金属または陶器を接着するための２成分接着剤として適当である。

本発明の特に好ましい実施態様において、本発明の結合剤系は、溶媒非含有または溶媒含有積層接着剤として使用される。

本発明の結合剤系は、従来の全ての付与方法によって、例えば、噴霧、ドクターブレード、溶媒非含有結合剤系を使用する場合に３～４回付与ロール装置または溶媒含有結合剤系を使用する場合に２回付与ロール装置によって、接着される基材に付与することができる。

その低い粘度のため、本発明の結合剤系は、温度感受性プラスチックフィルム、例えば、ポリオレフィンフィルム、特にポリエチレンまたはポリプロピレンのポリオレフィンフィルムを接着するために特に適当である。

したがって、本発明のさらなる主題は、また、本発明の結合剤系を使用することによる、少なくとも２つの同一または異なるプラスチックフィルムの部分的または完全な表面の接着によって得られる複合フィルムの製造方法である。

２成分接着剤としての結合剤系の接着されるフィルム上への付与は、この目的に通常使用される機械（例えば、通例の積層機械）を用いて行うことができる。

本発明のさらなる主題は、本発明の結合剤系を使用することによって、本発明の方法にしたがって製造される複合フィルムである。該複合フィルムは、食料品および高級食材および医薬品を包装するのに特に適当である。

【００４１】

本発明の結合剤系は、通例の添加剤、例えば、可塑剤、シラン、抗酸化剤、ＵＶ安定剤および老化防止化合物を含むことができる。好ましい可塑剤は、フタル酸エステル（例えば、ジオクチルフタレート、ジトリデシルフタレートおよびブチルベンジルフタレート）、リン酸エステル（例えば、トリクレジルホスフェイト）、アジピン酸エステル（例えば、ジオクチルアジペート）または安息香酸エステル（例えば、プロピレングリコールジベンゾエート）である。

アミノ－、エポキシ－またはメルカプトシラン、特にγ－グリシジルオキシプロピル－またはγ－アミノプロピル－トリメトキシシランは、ガラス、金属などへの接着強度を改善するために特に使用される。

【００４２】

無機充填剤（例えば、カーボンブラック、炭酸カルシウム、二酸化チタンなど）が、シーラントとしての使用のための本発明の結合剤系に添加される。好ましくは、高分散シリカ、特に焼成シリカまたは沈降シリカが、それらのチキソトロピック効果のため、無機充填剤として使用され、長期保存時間後でさえもチキソトロピック特性が、本発明の結合剤系に維持される。

【００４３】

本発明のさらなる好ましい実施態様において、本発明の結合剤系は、建築用発泡体または流動性シーリング化合物を製造するために使用される。

特に、本発明の結合剤系は、据え付けの間のまたは温度暴露のための物理的ダメージに対しても必要とされるような、電気的建築部材（例えば、ケーブル、光ファイバー、カバーストリップまたはプラグ）を汚染物（特に水）の浸透に対して保護するための流動性シーリング化合物として適当である。このため、結合剤系は、好ましくは高分散シリカおよび必要に応じて中空品（例えば、ガラスの中空品）ならびに好ましくは炭化水素に基づく溶媒、ポリマーに基づく有機増粘剤および必要に応じて分散剤を含む。流動性シーリング化合物として、該結合剤系は、良好な熱安定性によって特徴付けられる。

【００４４】

本発明の結合剤系は、建築業において、空きスペースを充填するためのおよび建築要素を固定するための建築用発泡体として好ましい。なぜなら、発生時の状態において、それは架橋の始まったときに粘着性となり、多くの材料（例えば、木材、金属、コンクリート、メーソンリー）と良好に接着するからである。発泡体の形成は、低沸点発泡剤、例えば、ハロゲン化炭化水素および／または高揮発性非ハロゲン化炭化水素、例えば、とりわけ、ペンタン、シクロペンタン、プロパン、イソブテン、ジメチルエーテルによって、物理的に生じる。

【００４５】

以下、幾つかの実施例によって、本発明をより詳細に説明する。示した量は、他に示さない限り、重量％である。

【実施例】

【００４６】

粘度測定：

溶融粘度を、ＩＣＩコーンプレート粘度計（Ｅｐｐｒｅｃｈｔ　Ｃｏｍｐａｎｙ、コーンタイプＤ）を用いて測定した。

【００４７】

原材料：

１，３－ＢＡＣ　１，３－ビス－（アミノメチル－）シクロヘキサン（三菱ガス化学株式会社）

ＤＢＴＬ　ジブチルスズジラウレート（Ｔｉｎｓｔａｂ　ＢＬ　２７７、Ａｋｃｒｏｓ）

ＤＥＴＡ　ジエチレントリアミン（Ｍｅｒｃｋ）

グリセリンカーボネート　Ｊｅｆｆｓｏｌグリセリンカーボネート（Ｈｕｎｔｓｍａｎ）

ＧＬＹＭＯ　３－グリシジルオキシプロピルトリメトキシシラン（Ｄｙｎａｓｉｌａｎ　ＧＬＹＭＯ、Ｄｅｇｕｓｓａ）

Ｌｕｐｒａｎａｔ　ＭＩＳ　ジフェニルメタンジイソシアネート、異性体混合物（ＢＡＳＦ）

ＭＤＩ　４，４’－ジフェニルメタンジイソシアネート（Ｄｅｓｍｏｄｕｒ　４４　Ｍ、Ｂａｙｅｒ）

ＭＸＤＡ　１，３－キシリレンジアミン（三菱ガス化学株式会社）

ＰＥＩ　ポリエチレンイミン、低分子量、水非含有（Ａｌｄｒｉｃｈ　Ｃｈｅｍｉｃａｌ　Ｃｏｍｐａｎｙ）

ポリオールＡ　液体ポリエステルポリオール（Ｈｅｎｋｅｌ、ＯＨ価５８）

ポリオールＢ　液体ポリエステルポリオール（Ｈｅｎｋｅｌ、ＯＨ価１４０）

ポリオールＣ　無定形ポリエステルポリオール（ＯＨ価４３）（Ｄｙｎａｃｏｌｌ　７１５０、Ｄｅｇｕｓｓａ）

ポリオールＤ　結晶性ポリエステルポリオール（ＯＨ価２８）（Ｄｙｎａｃｏｌｌ　７３６０、Ｄｅｇｕｓｓａ）

ポリオールＥ　三官能性ポリプロピレングリコール（ＯＨ価２２８）（Ｖｏｒａｎｏｌ　ＣＰ　７５５、Ｄｏｗ）

ポリオールＦ　二官能性ポリプロピレングリコール（ＯＨ価５．９）（Ａｃｃｌａｉｍ　１８２００Ｎ、Ｂａｙｅｒ）

ＴＥＰＡ　テトラエチレンペンタミン（Ｂａｙｅｒ）

ＣＰＰ－フィルム　キャストポリプロピレン、タイプＰＰ０９４６．０８０（厚み５０μｍ）（Ｎｏｒｄｅｎｉａ）

ＰＥＴ－フィルム　ポリエチレンテレフタレート－フィルム、タイプＲＮＫ　１２（厚み１２μｍ）（Ｍｉｔｓｕｂｉｓｈｉ）

【００４８】

〔実施例１〕

攪拌機、温度計および不活性ガスを導入するための注入および排出バルブを備えた１Ｌの四首フラスコ中に、１２０ｇのポリオールＡ、１００ｇのポリオールＢおよび８０ｇの

ポリオールＣを添加し、溶融させ、そして＜１０ｍｂａｒの圧力下、１２０℃で１時間乾燥させた。乾燥窒素を通気後、内部温度を９０℃まで低下させ、そして８１．９９ｇのＭＤＩを添加した。

次いで、該混合物を１００℃にてさらに攪拌した。１時間後、ＮＣＯ価は２．２５重量％となった。２４．１６ｇの乾燥したグリセリンカーボネートを添加し、そしてＮＣＯ価が０．１重量％未満になるまで１００℃と１２０℃との間で攪拌を続けた。得られたプレポリマーは、１２５℃にて４９Ｐａ・ｓの溶融粘度を有した。

【００４９】

〔実施例２〕

９０ｇの実施例１からのプレポリマーを、室温にて攪拌しながら１００ｇの酢酸エチルに溶解させた。次いで、０．６２ｇのＤＥＴＡを５０ｇのこの溶液に添加し、そして該混合物を１５分間均質化した。次いで、この混合物を、ドクターブレード（ギャップ５００μｍ、Ｅｒｉｃｈｓｅｎ）を用いてシリコーンペーパー上にコートし、乾燥するまで室温にて空気中に放置し、そして、時々、溶融粘度を決定した。溶融粘度（１２５℃で測定）は、１時間後に１．６Ｐａ・ｓとなり、２４時間後に１３Ｐａ・ｓとなり、および４日間後に７４Ｐａ・ｓとなった。１５日間後、該フィルムは、６．２Ｎ／ｍｍ^{2}の最終引張強度および３３０％の破壊時の伸び率を有した。

【００５０】

〔実施例３〕

９０ｇの実施例１からのプレポリマーを、室温にて攪拌しながら１００ｇの酢酸エチルに溶解させた。次いで、０．１２ｇのＰＥＩを、２５ｇのこの溶液に添加し、そして該混合物を１５分間均質化した。次いで、この混合物を、ドクターブレード（ギャップ５００μｍ、Ｅｒｉｃｈｓｅｎ）を用いてシリコーンペーパー上にコートし、乾燥するまで室温にて空気中に放置し、そして、時々、溶融粘度を決定した。溶融粘度（１２５℃で測定）は、１時間後に６７Ｐａ・ｓとなり、および２４時間後に１２３Ｐａ・ｓとなった。１週間後のコントロール試験は、架橋のため、試料について溶融粘度がもはや測定できなかったことを示した。ブナ材試験片の重複接着（Ｒｏｃｈｏｌｌ　Ｃｏｍｐａｎｙ、長さ×幅×厚み１００×２５×５ｍｍ、重複長さ１０ｍｍ）を、上記溶液を用いて行った。室温にて１４日間保存後、４．６Ｎ／ｍｍ^{2}の引張剪断強度が、木材の部分破壊を伴い測定された。

【００５１】

〔実施例４〕

１０１．７７ｇの実施例１からのプレポリマーを、室温にて攪拌しながら１００ｇの酢酸エチルに溶解させた。次いで、０．４３ｇのＭＸＤＡを、２５ｇのこの溶液に添加し、そして該混合物を１５分間均質化した。次いで、この混合物を、ドクターブレード（ギャップ５００μｍ、Ｅｒｉｃｈｓｅｎ）を用いてシリコーンペーパー上にコートし、乾燥するまで室温にて空気中に放置し、そして、時々、溶融粘度を決定した。溶融粘度（１２５℃で測定）は、２４時間後に１３Ｐａ・ｓとなり、および７日間後に５１Ｐａ・ｓとなった。

【００５２】

〔実施例５〕

１０１．７７ｇの実施例１からのプレポリマーを、室温にて攪拌しながら１００ｇの酢酸エチルに溶解させた。次いで、０．４４ｇの１，３－ＢＡＣを、２５ｇのこの溶液に添加し、そして該混合物を１５分間均質化した。次いで、この混合物を、ドクターブレード（ギャップ５００μｍ、Ｅｒｉｃｈｓｅｎ）を用いてシリコーンペーパー上にコートし、乾燥するまで室温にて空気中に放置し、そして、時々、溶融粘度を決定した。溶融粘度（１２５℃で測定）は、２４時間後に５Ｐａ・ｓとなり、および７日間後に６９Ｐａ・ｓとなった。１３日間後、該フィルムは、４Ｎ／ｍｍ^{2}の最終引張強度および３８０％の破壊時の伸び率を有した。

【００５３】

〔実施例６〕

攪拌機、温度計および不活性ガスを導入するための注入および排出バルブを備えた１Ｌの四首フラスコ中に、１２０ｇのポリオールＡ、１００ｇのポリオールＢおよび８０ｇのポリオールＣを添加し、溶融させ、そして＜１０ｍｂａｒの圧力下、１２０℃で１時間乾燥させた。乾燥窒素を通気後、内部温度を９０℃まで低下させ、そして８１．９９ｇのＬｕｐｒａｎａｔ　ＭＩＳを添加した。次いで、該混合物を１００℃にてさらに攪拌した。３時間後、ＮＣＯ価は２．３９重量％となった。次いで、２５．６６ｇの乾燥したグリセリンカーボネートを添加し、そしてＮＣＯ価が０．１重量％未満になるまで１００℃と１２０℃との間で攪拌を続けた。さらに、該反応を、１滴のＤＢＴＬを添加することによって触媒した。得られたプレポリマーは、１２５℃にて２４Ｐａ・ｓの溶融粘度を有した。

【００５４】

〔実施例７〕

９０．１３ｇの実施例６からのプレポリマーを、室温にて攪拌しながら１００ｇの酢酸エチルに溶解させた。次いで、０．５９７ｇのＴＥＰＡを、２５ｇのこの溶液に添加し、そして該混合物を１５分間均質化した。次いで、この混合物を、ドクターブレード（ギャップ５００μｍ、Ｅｒｉｃｈｓｅｎ）を用いてシリコーンペーパー上にコートし、そして乾燥するまで空気中に放置した。１７日間後、該フィルムは、１２．６Ｎ／ｍｍ^{2}の最終引張強度および３０２％の破壊時の伸び率を有した。ブナ材の試験片を、上記溶液を用いて（実施例３と同様に）接着した。室温にて１４日間保存後、４．８Ｎ／ｍｍ^{2}の引張剪断強度が、木材の部分破壊を伴い測定された。

【００５５】

〔実施例８〕

攪拌機、温度計および不活性ガスを導入するための注入および排出バルブを備えた１Ｌの四首フラスコ中に、７０ｇのポリオールＡ、７０ｇのポリオールＢ　８０ｇのポリオールＣおよび８０ｇのポリオールＤを添加し、溶融させ、そして＜５ｍｂａｒの圧力下、１２０℃で１時間乾燥させた。乾燥窒素を通気後、内部温度を９０℃まで低下させ、そして５８．１５ｇのＭＤＩを添加した。次いで、該混合物を１００℃にてさらに攪拌した。３時間後、ＮＣＯ価は１．６５重量％となった。次いで、１６．６１ｇの乾燥したグリセリンカーボネートを添加し、そしてＮＣＯ価が０．１重量％未満になるまで１００℃と１２０℃との間で攪拌を続けた。得られたプレポリマーは、１２５℃にて５６Ｐａ・ｓの溶融粘度を有した。

【００５６】

〔実施例９〕

６４．５８ｇの実施例８からのプレポリマーを、室温にて攪拌しながら１００ｇの酢酸エチルに溶解させた。次いで、０．８６９ｇのＪｅｆｆａｍｉｎｅ　Ｔ　４０３を、５０ｇのこの溶液に添加し、そして該混合物を１５分間均質化した。ブナ材の試験片を、この溶液を用いて（実施例３と同様に）接着した。室温にて１４日間保存後、３．３Ｎ／ｍｍ^{2}の引張剪断強度が測定された。

【００５７】

〔実施例１０〕

６４．５８ｇの実施例８からのプレポリマーを、室温にて攪拌しながら１００ｇの酢酸エチルに溶解させた。次いで、０．０９８ｇのＰＥＩを、２５ｇのこの溶液に添加し、そして該混合物を１５分間均質化した。次いで、この混合物を、ドクターブレード（ギャップ５００μｍ、Ｅｒｉｃｈｓｅｎ）を用いてシリコーンペーパー上にコートし、乾燥するまで室温にて空気中に放置し、そして、時々、溶融粘度を決定した。溶融粘度（１２５℃で測定）は、２４時間後に４４Ｐａ・ｓとなり、および７日間後に１１３Ｐａ・ｓとなった。２１日間後、該フィルムは、５Ｎ／ｍｍ^{2}の最終引張強度および１６０％の破壊時の伸び率を有した。ブナ材の試験片を、上記溶液を用いて（実施例３と同様に）接着した。室温にて１４日間保存後、６Ｎ／ｍｍ^{2}の引張剪断強度が、木材の部分破壊を伴い測定された。

【００５８】
〔実施例１１〕
９９ｇの実施例８からのプレポリマーを、室温にて攪拌しながら１００ｇの酢酸エチルに溶解させた。次いで、０．１２４ｇのＰＥＩを、２５ｇのこの溶液に添加し、そして該混合物を１５分間均質化した。次いで、この混合物を、らせん状被覆ブレード（Ｋ Ｈａｎｄ Ｃｏａｔｅｒ ６２０、Ｋ－Ｓｔａｂ番号１、Ｅｒｉｃｈｓｅｎ Ｃｏｍｐａｎｙ）を用いてＰＥＴフィルム上にコートし、そしてヘアドライヤー（タイプ２９８、Ｈａｎｎｓ Ｃｏｍｐａｎｙ、加熱レベル１、フィルムからの距離約２０ｃｍ）を用いて３分間ブローイングおよび送風することによって該溶媒を留去した。その直後、表面をコロナ処理したＣＰＰフィルムのシートを付与し、そしてＰａｔｔｅｘプレスローラー（Ｈｅｎｋｅｌ）を用いて均一にかつ気泡がないように強くプレスし、および室温にて保存した。次いで、１５ｍｍ幅の片を、この複合フィルムから切り取り、そして複合物の接着強度を、引張試験機（Ｉｎｓｔｒｏｎ ４３０１）による９０°剥離試験で決定した。試験速度は１００ｍｍ／分であった。室温にて４日間保存後、１６Ｎ／１５ｍｍの値が測定され、そしてＰＥＴフィルム中の裂け目が観察された。
【００５９】
〔実施例１２〕
９９ｇの実施例８からのプレポリマーと一緒に１ｇのＧＬＹＭＯを、室温にて攪拌しながら１００ｇの酢酸エチルに溶解させた。次いで、０．１２４ｇのＰＥＩを、２５ｇのこの溶液に添加し、そして該混合物を１５分間均質化した。次いで、この混合物を、らせん状被覆ブレード（Ｋ Ｈａｎｄ Ｃｏａｔｅｒ ６２０、Ｋ－Ｓｔａｂ番号１、Ｅｒｉｃｈｓｅｎ Ｃｏｍｐａｎｙ）を用いてアルミニウム／ＰＥＴ複合フィルム［Ｌｉｏｆｏｌ ＵＫ ３６４０／６８００（Ｈｅｎｋｅｌ）を用いて積層した、アルミニウムホイル（１２μｍ厚、Ｎｏｒｓｋ Ｈｙｄｒｏ）；ＰＥＴ－フィルム（１２μｍ厚、タイプＲＮＫ １２、三菱）］のアルミニウム側にコートし、そしてヘアドライヤー（タイプ２９８、Ｈａｎｎｓ Ｃｏｍｐａｎｙ、加熱レベル１、フィルムからの距離約２０ｃｍ）を用いて３分間ブローイングおよび送風することによって該溶媒を留去した。その直後、表面をコロナ処理したＣＰＰフィルムのシートを付与し、そしてＰａｔｔｅｘプレスローラー（Ｈｅｎｋｅｌ）を用いて均一にかつ気泡がないように強くプレスし、および室温にて保存した。次いで、１５ｍｍ幅の片を、この複合フィルムから切り取り、そして複合物の接着強度（アルミニウムに対するポリプロピレン）を、引張試験機（Ｉｎｓｔｒｏｎ ４３０１）による９０°剥離試験で決定した。試験速度は１００ｍｍ／分であった。室温にて１４日間保存後、１１Ｎ／１５ｍｍの値が測定され、そしてアルミニウム／ＰＥＴ複合フィルム中の裂け目が観察された。
【００６０】
〔実施例１３〕
攪拌機、温度計および不活性ガスを導入するための注入および排出バルブを備えた１Ｌの四首フラスコ中に、１００ｇのポリオールＥを添加し、そして＜５ｍｂａｒの圧力下、１２０℃にて０．５時間乾燥した。乾燥窒素を通気後、内部温度を５０℃まで低下させ、そして１０６．８ｇのＬｕｐｒａｎａｔ ＭＩＳを添加した。次いで、該混合物を１００℃にてさらに攪拌した。１時間後、ＮＣＯ価は８．８８重量％となった。次いで、５１．６１ｇの乾燥したグリセリンカーボネートを添加し、そしてＮＣＯ価が０．１重量％未満になるまで１００℃と１２０℃との間で攪拌を続けた。得られたプレポリマーは、１２５℃にて４０Ｐａ・ｓの溶融粘度を有した。
【００６１】
〔実施例１４〕
０．５６ｇのＴＥＰＡを、７．２２ｇの実施例６からのプレポリマーおよび１．４５ｇの実施例１３からのプレポリマーの酢酸エチル溶液（２５ｇ）に添加し、および該混合物を１５分間均質化した。次いで、この混合物を、ドクターブレード（ギャップ５００μｍ、Ｅｒｉｃｈｓｅｎ）を用いてシリコーンペーパー上にコートし、乾燥するまで室温にて

空気中に放置し、そして、時々、溶融粘度を決定した。溶融粘度（１２５℃で測定）は、１時間後に２５Ｐａ・ｓとなり、２８時間後に６４Ｐａ・ｓとなり、および６日間後に１２８Ｐａ・ｓとなった。ブナ材の試験片を、上記溶液を用いて（実施例３と同様に）接着した。室温にて１４日間保存後、６Ｎ／ｍｍ^{2}の引張剪断強度が、木材の部分破壊を伴い測定された。

【００６２】

〔実施例１５〕

攪拌機、温度計および不活性ガスを導入するための注入および排出バルブを備えた１Ｌの四首フラスコ中に、４００ｇのポリオールＦを添加し、そして＜５ｍｂａｒの圧力下、８０℃の内部温度にて１時間乾燥させた。乾燥窒素を通気後、１０．５３ｇのＭＤＩを添加した。次いで、該混合物を８０℃にてさらに攪拌した。２時間後、ＮＣＯ価は０．３８重量％となった。次いで、２．４８ｇの乾燥したグリセリンカーボネートを添加し、そしてＮＣＯ価が０．１重量％未満になるまで８０℃と８５℃との間で攪拌を続けた。得られたプレポリマーは、１２５℃にて６３Ｐａ・ｓの溶融粘度を有した。

１ｇのＰＥＩを、１００ｇの得られたプレポリマー中に攪拌混合した。ブナ材の試験片を、この混合物を用いて（実施例３と同様に）接着した。室温にて１４日間保存後、０．８Ｎ／ｍｍ^{2}の引張剪断強度が測定された。この混合物は、とりわけ、シーラントとして適当である。

【００６３】

〔実施例１６〕

攪拌機、温度計および不活性ガスを導入するための注入および排出バルブを備えた１Ｌの四首フラスコ中に、１２０ｇのポリオールＡ、１００ｇのポリオールＢ、８０ｇのポリオールＣおよび１０ｇのポリオールＥを添加し、そして＜１０ｍｂａｒの圧力下、１２０℃で１時間乾燥させた。乾燥窒素を通気後、内部温度を９０℃まで低下させ、そして８１．９９ｇのＬｕｐｒａｎａｔ　ＭＩＳを添加した。次いで、該混合物を１００℃にてさらに攪拌した。２時間後、ＮＣＯ価は２．２４重量％となった。次いで、２４．６８ｇの乾燥したグリセリンカーボネートを添加し、そしてＮＣＯ価が０．１重量％未満になるまで１００℃と１２０℃との間で攪拌を続けた。さらに、該反応を、１滴のＤＢＴＬを添加することによって触媒した。得られたプレポリマーは、１２５℃にて３８Ｐａ・ｓの溶融粘度を有した。

【００６４】

〔実施例１７〕

１０１．８２ｇの実施例１６からのプレポリマーを、室温にて攪拌しながら１００ｇの酢酸エチルに溶解させた。次いで、０．１２６ｇのＰＥＩを、２５ｇのこの溶液に添加し、そして該混合物を１５分間均質化した。次いで、この混合物を、ドクターブレード（ギャップ５００μｍ、Ｅｒｉｃｈｓｅｎ）を用いてシリコーンペーパー上にコートし、乾燥するまで室温にて空気中に放置し、そして、時々、溶融粘度を決定した。溶融粘度（１２５℃で測定）は、２４時間後に２０Ｐａ・ｓとなった。重ねたブナ材の試験片を、上記溶液を用いて（実施例３と同様に）互いに接着した。室温にて１４日間保存後、５Ｎ／ｍｍ^{2}の引張剪断強度が測定された。

【００６５】

〔実施例１８〕

攪拌機、温度計および不活性ガスを導入するための注入および排出バルブを備えた１Ｌの四首フラスコ中に、８０ｇのポリオールＡ、８０ｇのポリオールＢおよび１００ｇのポリオールＤを添加し、そして＜１０ｍｂａｒの圧力下、１２０℃で１時間乾燥させた。乾燥窒素を通気後、内部温度を９０℃まで低下させ、そして６３．２５ｇのＭＤＩを添加した。次いで、該混合物を１００℃にてさらに攪拌した。１時間後、ＮＣＯ価は２．１７重量％となった。次いで、１９．７２ｇの乾燥したグリセリンカーボネートを添加し、そしてＮＣＯ価が０．１重量％未満になるまで１００℃と１２０℃との間で攪拌を続けた。得られたプレポリマーは、１２５℃にて１４Ｐａ・ｓの溶融粘度を有した。

【００６６】
〔実施例１９〕
６２．８５ｇの実施例１８からのプレポリマーを、室温にて攪拌しながら１００ｇの酢酸エチルに溶解させた。次いで、０．０９７ｇのＰＥＩを、２５ｇのこの溶液に添加し、そして該混合物を１５分間均質化した。次いで、この混合物を、ドクターブレード（ギャップ５００μｍ、Ｅｒｉｃｈｓｅｎ）を用いてシリコーンペーパー上にコートし、乾燥するまで室温にて空気中に放置し、そして、時々、溶融粘度を決定した。溶融粘度（１２５℃で測定）は、２４時間後に２２Ｐａ・ｓとなった。重ねたブナ材の試験片を、上記溶液を用いて（実施例３と同様に）互いに接着した。室温にて１４日間保存後、６．６Ｎ／ｍｍ^{2}の引張剪断強度が、木材の部分破壊を伴い測定された。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP2005/006455

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 C08G71/00

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)
IPC 7 C08G

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

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)
EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DE 37 26 497 A1 (HOECHST AG) 16 February 1989 (1989-02-16) cited in the application example II.2	1-18
X	US 3 084 140 A (GURGIOLO ARTHUR E ET AL) 2 April 1963 (1963-04-02) example 13	1-18
X	US 4 806 611 A (HOENEL ET AL) 21 February 1989 (1989-02-21) example 18	1-18
A	US 4 616 066 A (TOMINAGA ET AL) 7 October 1986 (1986-10-07) column 4, lines 9-11	1-18

-/--

[X] Further documents are listed in the continuation of box C.

[X] Patent family members are listed in 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 document 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

"T" 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	Date of mailing of the international search report
15 September 2005	27/09/2005

Name and mailing address of the ISA	Authorized officer
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Müller, M

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (January 2004)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP2005/006455

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 1 020 457 A (POLYMATE LTD; CHEMONOL LTD) 19 July 2000 (2000-07-19) example 4; table 1	1-18

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (January 2004)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No
PCT/EP2005/006455

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)		Publication date
DE 3726497	A1	16-02-1989	AT	107324 T	15-07-1994
			CA	1331250 C	02-08-1994
			EP	0303158 A2	15-02-1989
			ES	2056081 T3	01-10-1994
			JP	1066243 A	13-03-1989
			US	5132458 A	21-07-1992
US 3084140	A	02-04-1963	NONE		
US 4806611	A	21-02-1989	CA	1317409 C	04-05-1993
			DE	3644370 A1	07-07-1988
			EP	0272665 A2	29-06-1988
			ES	2061479 T3	16-12-1994
			JP	63166854 A	11-07-1988
US 4616066	A	07-10-1986	DE	3535770 A1	10-04-1986
			GB	2166138 A	30-04-1986
			JP	1788088 C	10-09-1993
			JP	4071090 B	12-11-1992
			JP	61089220 A	07-05-1986
EP 1020457	A	19-07-2000	AU	1172800 A	01-08-2000
			WO	0042033 A1	20-07-2000
			US	6407198 B1	18-06-2002

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2005/006455

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 C08G71/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 C08G

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)
EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	DE 37 26 497 A1 (HOECHST AG) 16. Februar 1989 (1989-02-16) in der Anmeldung erwähnt Beispiel II.2	1-18
X	US 3 084 140 A (GURGIOLO ARTHUR E ET AL) 2. April 1963 (1963-04-02) Beispiel 13	1-18
X	US 4 806 611 A (HOENEL ET AL) 21. Februar 1989 (1989-02-21) Beispiel 18	1-18
A	US 4 616 066 A (TOMINAGA ET AL) 7. Oktober 1986 (1986-10-07) Spalte 4, Zeilen 9-11	1-18

-/--

[X] Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

[X] Siehe Anhang Patentfamilie

° Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
15. September 2005	27/09/2005

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde	Bevollmächtigter Bediensteter
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax (+31-70) 340-3016	Müller, M

Formblatt PCT/ISA/210 (Blatt 2) (Januar 2004)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2005/006455

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 1 020 457 A (POLYMATE LTD; CHEMONOL LTD) 19. Juli 2000 (2000-07-19) Beispiel 4; Tabelle 1	1-18

INTERNATIONALE RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2005/006455

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
DE 3726497	A1	16-02-1989	AT	107324 T	15-07-1994
			CA	1331250 C	02-08-1994
			EP	0303158 A2	15-02-1989
			ES	2056081 T3	01-10-1994
			JP	1066243 A	13-03-1989
			US	5132458 A	21-07-1992
US 3084140	A	02-04-1963	KEINE		
US 4806611	A	21-02-1989	CA	1317409 C	04-05-1993
			DE	3644370 A1	07-07-1988
			EP	0272665 A2	29-06-1988
			ES	2061479 T3	16-12-1994
			JP	63166854 A	11-07-1988
US 4616066	A	07-10-1986	DE	3535770 A1	10-04-1986
			GB	2166138 A	30-04-1986
			JP	1788088 C	10-09-1993
			JP	4071090 B	12-11-1992
			JP	61089220 A	07-05-1986
EP 1020457	A	19-07-2000	AU	1172800 A	01-08-2000
			WO	0042033 A1	20-07-2000
			US	6407198 B1	18-06-2002

フロントページの続き

(51)Int.Cl.	F I		テーマコード（参考）
	Ｃ０９Ｋ 3/10	D	
	Ｂ３２Ｂ 27/00	D	

(81)指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LS,MW,MZ,NA,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM),EP(AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,MC,NL,PL,PT,RO,SE,SI,SK,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KM,KP,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,MA,MD,MG,MK,MN,MW,MX,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PG,PH,PL,PT,RO,RU,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,SY,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,YU,ZA,ZM,ZW

(74)代理人 100104592
弁理士 森住 憲一
(72)発明者 トーマス・メーラー
ドイツ連邦共和国デー－４０５９３デュッセルドルフ、ゲッピンガー・シュトラーセ４番
(72)発明者 ハンス－ゲオルク・キンツェルマン
ドイツ連邦共和国デー－５０２５９プルハイム、ドヒュンシュトラーセ１０番

Ｆターム(参考) 4F100 AB01B AB01C AD00B AD00C AH03A AK01B AK01C AK03A AK25A AK31A AK41A AK45A AK46A AK51A AK54A AL05A AP00B AP00C AT00B AT00C BA02 BA03 BA06 BA07 BA10B BA10C CB00A CB02A DG10B DG10C DJ01B GB07 GB15 GB32 GB41 JA07A JL11 JL12 YY00A
4H017 AB01 AB03 AB07 AB13 AB17 AC13 AD02 AD06 AE05
4J040 DA001 DF001 DF021 ED001 EE001 EF001 EG001 EH011 GA04 JA02 JB02 LA01 MA02 MA08 MA09 MA10 NA06