

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6846335号
(P6846335)

(45) 発行日 令和3年3月24日 (2021.3.24)

(24) 登録日 令和3年3月3日 (2021.3.3)

(51) Int. Cl.	F I
C O 9 J 175/08 (2006.01)	C O 9 J 175/08
C O 8 G 18/10 (2006.01)	C O 8 G 18/10
C O 8 G 18/48 (2006.01)	C O 8 G 18/48 O 5 4
C O 8 G 18/73 (2006.01)	C O 8 G 18/73
C O 9 J 11/04 (2006.01)	C O 9 J 11/04

請求項の数 7 (全 12 頁)

(21) 出願番号	特願2017-503526 (P2017-503526)	(73) 特許権者	502141050
(86) (22) 出願日	平成27年7月14日 (2015.7.14)		ダウ グローバル テクノロジーズ エル
(65) 公表番号	特表2017-528553 (P2017-528553A)		エルシー
(43) 公表日	平成29年9月28日 (2017.9.28)		アメリカ合衆国 ミシガン州 4 8 6 7 4
(86) 国際出願番号	PCT/US2015/040361		, ミッドランド, エイチ エイチ ダウ
(87) 国際公開番号	W02016/014290		ウェイ 2 2 1 1
(87) 国際公開日	平成28年1月28日 (2016.1.28)	(74) 代理人	100092783
審査請求日	平成30年7月5日 (2018.7.5)		弁理士 小林 浩
審判番号	不服2019-14966 (P2019-14966/J1)	(74) 代理人	100095360
審判請求日	令和1年11月7日 (2019.11.7)		弁理士 片山 英二
(31) 優先権主張番号	62/028, 825	(74) 代理人	100120134
(32) 優先日	平成26年7月25日 (2014.7.25)		弁理士 大森 規雄
(33) 優先権主張国・地域又は機関	米国 (US)	(74) 代理人	100187964
			弁理士 新井 剛

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 イソシアナート末端プレポリマーを含有する一液型構造用接着剤

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

イソシアナート末端プレポリマーを含有する一液型構造用接着剤であって、前記プレポリマーは、(a) 前記プレポリマーの重量に基づき 80～85.10 重量%のポリテトラメチレンエーテルグリコール、および (b) 前記プレポリマーの重量に基づき 12～14.26 重量%のヘキサメチレンジイソシアナートを、(c) ジルコニウムアセチルアセトナートとともに反応させることにより重合され、

前記プレポリマー中の前記ジルコニウムアセチルアセトナートの量は、前記プレポリマーの重量に基づき 0.02～0.06 重量%である、前記一液型構造用接着剤。

【請求項 2】

前記ポリテトラメチレンエーテルグリコールが、1500～2200 の Mn を有する、請求項 1 に記載の一液型構造用接着剤。

【請求項 3】

繊維強化プラスチックから作製された、コーティングされた部分または塗装された部分を接着する方法であって、請求項 1 または 2 に記載のイソシアナート末端プレポリマーを含有する一液型構造用接着剤を、前記部分に塗布することを含む、前記方法。

【請求項 4】

前記繊維強化プラスチックがエポキシ樹脂を含む、請求項 3 に記載の方法。

【請求項 5】

前記接着剤が、前記接着剤の重量に基づき 7～40 重量%のカーボンブラックをさらに

10

20

含有する、請求項4に記載の方法。

【請求項6】

前記接着剤が、前記接着剤の重量に基づき9～40重量%のカオリンをさらに含有する、請求項1または2に記載の一液型構造用接着剤。

【請求項7】

前記接着剤が可塑剤を含有しない、請求項1または2に記載の一液型構造用接着剤。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、概して、イソシアナート末端プレポリマーを含有する一液型高係数構造用接着剤に関する。

【背景技術】

【0002】

ポリテトラメチレンエーテルグリコール（PTMEG：polytetramethylene ether glycol）のプレポリマーを基にした一液型ウレタン接着剤が知られている。たとえば、米国特許第5,288,797号には、イソシアナート成分が芳香族イソシアナートである、PTMEGを基にしたプレポリマーを含有する一液型ウレタン系が開示されている。しかしながら、この参照文献には、本発明に記載される接着剤は開示されていない。

【発明の概要】

【0003】

本発明は、（a）40～95重量%のポリテトラメチレンエーテルグリコール、及び（b）5～60重量%の脂肪族ジイソシアナートの重合残基を含有するイソシアナート末端プレポリマーを含有する一液型構造用接着剤を目的としている。

【0004】

本発明はさらに、（a）40～95重量%のポリテトラメチレンエーテルグリコール、及び（b）5～60重量%の脂肪族ジイソシアナートの重合残基を含有するイソシアナート末端プレポリマーを含有する一液型構造用接着剤を、繊維強化プラスチックから作製された、コーティングされた部分または塗装された部分に塗布することによる、当該部分を接着させる方法を目的とする。

【発明を実施するための形態】

【0005】

別段の指定がない限り、すべてのパーセンテージは、重量パーセンテージであり、及び全ての温度は、℃である。モノマー単位（たとえばイソシアナート及びポリオール）のパーセンテージは、固体ベースで、すなわち溶媒及び他の添加物を除いたポリマーの重量に基づいている。

【0006】

本発明に有用な脂肪族ジイソシアナートとしては、たとえば、ヘキサメチレンジイソシアナート（HDI：hexamethylene diisocyanate）、メチレンジシクロヘキシルジイソシアナート（methylenedicyclohexyldiisocyanate）または（水素化MDI、“HMDI”）、及びイソホロンジイソシアナート（IPDI：isophorone diisocyanate）が挙げられる。HDIが特に好ましい。

【0007】

ポリテトラメチレンエーテルグリコール（PTMEG、PTHFとしても知られている）は通常、テトラヒドロフランの重合から作製され、 $\text{HO}\{(\text{CH}_2)_4\text{O}\}_n\text{H}$ の構造を有し、式中、 n は約3から約45に変化し得、約250から約3,000の数平均分子量（ M_n ）に相当する。好ましくは、PTMEGの M_n は500から3000、好ましくは800から2600、好ましくは1100から2500、好ましくは1500から2200である。

10

20

30

40

50

【0008】

好ましくは、イソシアナート末端プレポリマーは、少なくとも50重量%のPTMEG、好ましくは少なくとも55重量%、好ましくは少なくとも60重量%、好ましくは少なくとも70重量%、好ましくは少なくとも75重量%、好ましくは少なくとも80重量%；好ましくは90重量%以下、好ましくは86重量%以下、好ましくは82重量%以下、好ましくは78重量%以下のPTMEGの重合残基を含有する。プレポリマーはまた、3～6個のヒドロキシル基を有するポリオール、好ましくはたとえばトリメチロールプロパン、ペンタエリスリトールなどの C_3-C_{10} トリオール（好ましくは C_3-C_8 トリオール）またはテトラオールを少量、含有してもよい。好ましくは3～6個のヒドロキシル基を有するポリオールの重合単位は、0～5重量%、好ましくは0.1～3重量%、好ましくは0.2～1.5重量%の量で存在している。本発明の好ましい実施形態において、プレポリマーは、1以上の追加のポリオール、好ましくはポリカプロラクトンポリオールの重合単位を、好ましくは0～40重量%、好ましくは少なくとも5重量%、好ましくは少なくとも8重量%、好ましくは少なくとも11重量%；好ましくは35重量%以下、好ましくは30重量%以下、好ましくは25重量%以下、好ましくは22重量%以下、好ましくは19重量%以下の総量で含有する。好ましくは、イソシアナート末端プレポリマー中のイソシアナート基の重量は、1～6重量%、好ましくは1.5～5重量%、好ましくは2～4重量%である。好ましくは、ポリカプロラクトンのMnは、400～3000、好ましくは500～2000、好ましくは600～1500、好ましくは600～1000である。好ましくは、イソシアナート末端プレポリマーは、少なくとも8重量%、好ましくは少なくとも10重量%、好ましくは少なくとも12重量%、好ましくは少なくとも14重量%、好ましくは少なくとも18重量%；好ましくは40重量%以下、好ましくは50重量%以下、好ましくは45重量%以下、好ましくは30重量%以下、好ましくは25重量%以下の脂肪族ジイソシアナートの重合残基を含有する。

10

20

【0009】

イソシアナート末端プレポリマーは、所望により変化し得るイソシアナート基とヒドロキシル基のモル比を用いて、好ましくは2.5：1～1.2：1、好ましくは2.4：1～1.3：1、好ましくは2.3：1～1.4：1、好ましくは2.3：1～1.5：1のNCO/OH基のモル比内で調製されてもよい。好ましくは、プレポリマーの形成を補助するために適切な触媒、好ましくはスズ触媒またはジルコニウム触媒、好ましくはたとえばジルコニウムアセチルアセトナートなどのZr(IV)触媒が用いられる。好ましくは、プレポリマー中の触媒の量は、0.005～0.15重量%、好ましくは0.01～0.1重量%、好ましくは0.02～0.08重量%である。

30

【0010】

一液型構造用接着剤は、イソシアナート末端プレポリマーを、たとえば増量剤（たとえばカーボンブラック、カオリン、ヒュームドシリカなど）及び触媒（たとえばビスマス触媒、スズ触媒、または亜鉛の触媒など）などの他の典型的な接着剤成分と共に含有する。ビスマス触媒が特に好ましく、好ましくはBi(III)塩、好ましくはカルボン酸塩である。触媒（複数含む）の総量は、好ましくは0.01～4重量%、好ましくは0.02～3重量%、好ましくは0.05～1重量%であり、重量は接着剤の総重量に基づく。好ましくは、接着剤の尿素及びウレタンの含有量は、3～40重量%；好ましくは少なくとも3.2重量%、好ましくは少なくとも3.4重量%、好ましくは少なくとも3.6重量%、好ましくは少なくとも3.8重量%；好ましくは30重量%以下、好ましくは20重量%以下、好ましくは10重量%以下、好ましくは6重量%以下である。好ましくは、カーボンブラックは、5～60重量%、好ましくは少なくとも7重量%、好ましくは少なくとも9重量%；好ましくは50重量%以下、好ましくは40重量%以下、好ましくは30重量%以下の量で存在する。好ましくは、カオリンは、5～60重量%、好ましくは少なくとも7重量%、好ましくは少なくとも9重量%；好ましくは50重量%以下、好ましくは40重量%以下の量で存在する。好ましくは、イソシアナート末端プレポリマーは、20～100重量%；好ましくは少なくとも30重量%、好ましくは少なくとも35重量%

40

50

、好ましくは少なくとも40重量%；好ましくは少なくとも45重量%；好ましくは90重量%以下、好ましくは85重量%以下、好ましくは82重量%以下の量で接着剤中に存在する。

【0011】

本発明は、繊維強化プラスチックから作製された、コーティングされた部分または塗装された部分を接着させる方法を目的とする。これらの部分は互いに、またはたとえば電着スチールフレームもしくは電着金属ルーフなどの異なる物質に接着される。好ましい繊維強化プラスチックは、エポキシ複合材料、またはたとえばSMCなどの熱可塑性物質である。基板は似た物質であっても、異なる物質であってもよい。接着層の好ましい厚さは1～5mm、好ましくは2～4mmである。本発明組成物は、たとえば自動調剤装置及びドラムポンプからの塗布などの従来的な塗布技術を用いて所望される基板に塗布されてもよい。

10

【実施例】

【0012】

【表 1 - 1】

表1:原材料のリスト

プレポリマー		
ポリオール	供給業者	化学的性質
ACCLAIM 6300	バイエル	6300 PPO トリオール(低モノオール)
VORANOL 4000LM	DOW	4000 PPO ジオール(低モノオール)
VORANOL 3322	DOW	3500 PPO トリオール
VORANOL 2000L	DOW	2000 PPO ジオール
ポリTHF 2000	BASF	2000 PTHF ジオール
トリメチロールプロパン	Perstorp	短鎖トリオール
CAPA 2077A	Perstorp	750 PCL ジオール
イソシアナート		
ISONATE M125	DOW	MDI
DESMODURE H	バイエル	HDI
ISONATE M 143	DOW	液化MDI
可塑剤		
VESTINOL 9	Evonik	フタル酸ジイソノニル
触媒		
METATIN S-26	DOW	スズー(II)オクトアート
ベンジルアルコール中、Zr(IV) AcAc 40%	Sigma Aldrich / DOW	Zr(IV)アセチルアセトナート
接着剤		
可塑剤		
VESTINOL 9	Evonik	フタル酸ジイソノニル
ヒュームドシリカ		
HDK 20	Wacker Chemie	焼成シリカ
カーボンブラック		
PRINTEX 30	Evonik	カーボンブラック
か焼カオリン		
POLESTAR 200R	Imerys	か焼カオリン
未コーティングカオリン		
CARBITAL 140	Imerys	未コーティングカオリン
イソシアナート		
DESMODURE N3300	バイエル	三量体化HDI

【0013】

【表 1 - 2】

触媒:		
Cat2010	DOW	ジメチルルスズ – ジラウレート/NMP/ベ スチノール
BiCat 8108M	Shepherd	ネオデカン酸ビスマス(III)
DMDEE	BASF	2, 2' – ジモルホリノジエチルエーテル

【0014】

10

発明製剤及び比較製剤

7つのプレポリマーを合成し、典型的な一液型PU接着製剤中で評価した。

【0015】

・比較製剤A、B及びCは、ジイソシアナート化合物として芳香族MDIを使用している。それらすべては、PPOポリエーテルポリオールを使用している。製剤Aは、PPOトリオールを使用し、B及びCは異なる分子量のPPOジオールを使用し、ならびにCはさらにPPOトリオールを使用している。

【0016】

・製剤DはAと似ているが、芳香族(MDI)の代わりに脂肪族ジイソシアナート、HDIを使用している。

20

【0017】

・製剤Eは結晶性ポリエステル及び脂肪族ジイソシアナート(HDI)と共にPPOポリエーテルポリオールを使用している。

【0018】

・発明製剤FはEと似ているが、PPOの代わりにPTHF(PTMEG)ポリエーテルジオールを使用し、ポリエステルは使用していない。

【0019】

・発明製剤GはPTHF、ポリエステル、及び脂肪族ジイソシアナートの代わりに芳香族ジイソシアナートを使用している。

【0020】

30

【表 2】

表2: プレポリマー製剤

プレポリマー	A	B	C	D	E	F	G
	比較	比較	比較	比較	比較	発明	比較
ポリオール							
ACCLAIM 6300	74.69	---	---	91.52	61.04	---	---
VORANOL 4000LM	---	79.44	---	---	---	---	---
VORANOL 3322	---	---	42.40	---	---	---	---
VORANOL 2000L	---	---	42.22	---	---	---	---
ポリTHF 2000	---	---	---	---	---	85.10	65.34
トリメチロールプロパン	---	---	---	---	---	0.58	0.37
CAPA 2077A	---	---	---	---	22.79	---	9.76
可塑剤							
VESTINOL 9	15.04	10.00	---	---	---	---	---
イソシアナート							
HDI	---	---	---	8.45	16.15	14.26	---
ISONATE M125	10.26	10.55	15.37	---	---	---	
ISONATE M143	---	---	---	---	---	---	24.47
触媒							
METATIN S-26	0.01	0.01	0.01	0.03	---	---	
BzOH中、 Zr-(IV)-AcAc 40重量% (*)	---	---	---	---	0.02	0.06	0.06
総計	100.00	100.00	100.00		100.00	100.00	100.00
推定NCO [%]	1.882	1.880	1.885	2.304	4.227	3.000	3.000
NCO/OH	2.20:1	2.13:1	1.57:1	2.22:1	2.10:1	1.723:1	1.716

(*) BzOH中、Zr-(IV)-AcAc 40%:40%ジルコニウム-(IV)-アセチルアセトナートのベンジルアルコール溶液

【0021】

一般的なプレポリマーの調製：

ラボリアクター中でポリオール（１）、ポリオール（２）及び可塑剤を混合する。真空下で混合物を攪拌し、120℃まで加熱する。物質の温度が120℃に達したら、真空下で50℃まで冷却する。次いで、イソシアナートを添加し、混合物を窒素雰囲気下で5分間攪拌する。触媒を添加し、混合物を30分間反応させ、次いで、イソシアナート含有量を測定する。イソシアナート含有量が（過剰量のジブチルアミンを添加し、1NのHClを用いて逆滴定を行うことにより）推定値の0.25%未満から0.1%超までである場合、真空を設定し、さらに20分間混合物を混合させる。表3はプレポリマー中のウレタン及び尿素単位（ハードセグメント）の含有量を表す。列H及び列Lは、参照プレポリマー製剤と発明プレポリマー製剤の間の差異は主に総尿素及びウレタンハードセグメントの量にあることを示す。

【0022】

【表 3】

表3:比較プレポリマー及び発明プレポリマー中のウレタン及び尿含有量

	プレポリマー				接着剤		
	(F)	(G)	(H)	(I)	(J)	(K)	(L)
プレポリマー	プレポリマー中の総ウレタン、重量%	プレポリマー硬化後の総尿素、重量%	硬化後の総ウレタン及び尿素、重量%	接着剤中の総プレポリマー	接着剤硬化後の総ウレタン	硬化後の接着剤中の総尿素	硬化後の接着剤中の総ウレタン及び尿素
A	2.22	1.30	3.52	(1)51.4	1.14	0.67	1.81
B	2.36	1.30	3.66	(2)51.4	1.21	0.67	1.88
C	4.52	1.30	5.83	(3)51.4	2.33	0.67	2.99
D	2.73	1.59	4.32	(4)62.4	1.70	0.99	2.70
E	5.43	2.92	8.35	(5)57.4	3.12	1.68	4.79
E	5.43	2.92	8.35	(6)56.4	3.06	1.65	4.71
F	5.82	2.07	7.90	(7)53.8	3.13	1.11	4.25
G	7.35	2.07	9.42	(8)52.4	3.85	1.09	4.93
F	5.82	2.07	7.90	(9)51.5	3.00	1.09	4.09

10

20

【0023】

接着剤

表4は、製剤化した接着剤の製剤設計の詳細を示す。プレポリマーは基本粘性が低いいため、プレポリマーD、E及びFを使用する接着剤は可塑剤を必要としない。

【0024】

【表 4】

表4:接着剤の詳細

	比較	比較	比較	比較	比較	比較	発明	比較	発明
	1	2	3	4	5	6	7	8	9
ポリオール	PPO	PPO	PPO	PPO	PPO/ PCL	PPO/ PCL	PTHF	PTHF/ PLC	PTHF
NCOのタイプ	MDI	MDI	MDI	HDI	HDI	HDI	HDI	MDI	HDI
P ¹ 、重量%	12.5	9.9	6.6	<0.5	0	0.7	0	5.7	3.47
	%	%	%	%	%	%	%	%	%
(A)	51.4	---	---	---	---	---	---	---	---
(B)	---	51.4	---	---	---	---	---	---	---
(C)	---	---	51.4	---	---	---	---	---	---
(D)	---	---	---	62.4	---	---	---	---	---
(E)	---	---	---	---	57.4	56.8	---	---	---
(F)	---	---	---	---	---	---	53.8	---	51.5
(G)	---	---	---	---	---	---	---	52.4	---
PRINTEX 30	16.0	16.0	16.0	16.0	16.0	16.0	16.0	16.0	18.0
POLESTAR R200	21.0	21.0	20.0	16.0	21.0	21.0	24.0	20.4	22.0
HDK 20H	0.5	0.5	0.5	16.0	---	---	---	---	2.0
CARBITAL 140	5.0	5.0	4.1	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	2.0
DESMODUR N3300	1.0	1.0	1.0	---	---	---	---	---	---
VESTINOL 9	4.1	4.1	6.0	---	---	---	---	5.0	2.0
Cat2010	0.9	0.9	0.9	0.5	---	1.0	1.0	1.0	2.0
BiCat 8108M	---	---	---	---	0.5	---	---	---	---
DMDEE	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.2	0.2	0.2	0.5
総計	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.00	100.0

1. P=可塑剤

【0025】

接着剤：

プレポリマー、カーボンブラック、焼成シリカ、未コーティングカオリン、コーティング済カオリン、可塑剤、及びイソシアナートを遊星型ミキサーに入れ、窒素雰囲気下、30℃で10分間混合する。次いで真空に設定し、混合物をさらに30分、30℃で混合する。混合物が均一になったら、触媒（1）及び触媒（2）を混合物に添加し、10分間、窒素雰囲気下、30℃で混合する。次いで真空に設定し、混合物をさらに20分間混合する。

【0026】

試験結果

適用された方法

DIN 53504に準じた引張強度、引張弾性係数、引張伸び。

DIN ISO 34-1に準じた引裂抵抗。

DIN EN 1465に準じた実験せん断強度：基板：電着スチール、接着面積：

10 * 25 mm、接着層の厚さ：2 mm

【0027】

プレポリマーの結果

表5は、プレポリマー自体の試験データを示す。MDIよりもHDIを使用したプレポリマーは他の製剤と比較して有意な粘性の低下を示し、ゆえに、当該プレポリマーは、当該プレポリマーまたは接着性剤のいずれかに対し可塑剤を加えることなく使用することができる。

【0028】

【表5】

表5:プレポリマーの試験結果

	NCO [%]	NCO	NCO /OH	GPC [Mn]	GPC [Mw]	GPC PDI	GPC:サンプル 回収率 [Mn>1000]%	粘性23℃: ニュートン [Pas]	フタル酸ジ イソノニル 濃度[%]
(A)	1.821	MDI	2.2: 1.0	17400	44400	2.6	75.8	132	15
(B)	1.922	MDI	2.1: 1.0	8800	11400	1.3	81.1	19	10
(C)	2.651	MDI	2.0: 1.0	12400	29900	2.4	74.9	77	15
(D)	2.23	HDI	2.2: 1.0	7700	27300	3.5	91.1	103	0
(E)	4.014	HDI	2.1: 1.0	4400	13600	3.1	95.3	26	0
(F)	2.955	HDI	1.7: 1	5400	11500	2.1	95.3	71	0
(G)	3.025	MDI	1.7: 1	5400	16700	3.1	93.7	1298	0

【0029】

接着剤試験結果

表6は、調製された接着性剤の試験データを示す。以下を結論づけることができる：

- ・全ての発明製剤は、20MPaを超える弾性係数を満たす。
- ・発明製剤は、高い弾性係数と、200%を超える高いバルク伸長を兼ね備えている。
- ・30MPaを超える最も高い弾性係数は、芳香族（たとえばMDI）ジイソシアナートよりも脂肪族（たとえばHDI）ジイソシアナートを使用することにより得られる。
- ・PPOよりもPTMEGをベースとしたポリエーテルポリオールを使用することにより、バルク伸長及び引裂強度はさらに有意に増加される。
- ・純粋にPPOをベースとしたプレポリマーは、弾性係数要求を満たさない。
- ・発明製剤は、凝集破壊様式と併せて高い重ねせん断強度を示す。

【0030】

【表 6】

表6:接着剤の物理的データ及び機械的データ

	比較	比較	比較	比較	比較	比較	発明	比較	発明
製剤	1	2	3	4	5	6	7	8	9
ポリオール	PPO	PPO	PPO	PPO	PPO/ PCL	PPO/ PCL	PTHF	PTHF/ PCL	PTHF
NCOのタイプ	MDI	MDI	MDI	HDI	HDI	HDI	HDI	MDI	HDI
引張強度 [MPa]	7.5	5.3	7.3	7.7	10.8	10.8	19.1	13.8	16.1
破壊時の伸び [%]	210	666	301	173	273	251	424	303	467
弾性係数 [MPa]	10.3	7.7	7.4	11.5	39.2	41.8	44.3	25.8	28.3
引裂抵抗 [N/mm]	9.3	31.2	9.5	8.3	20.8	24.3	38.9	21.3	46.6
室温、24時間後の重 ねせん断強度[MPa]	---	---	---	---	2.6	0.4	---	---	0.4
室温、7日後の重ね せん断強度[MPa]	---	---	---	---	8.1	7.5	---	---	9.5
室温、14日後の重ね せん断強度[MPa]	---	---	---	---	7.8	8.1	---	---	13.6

10

20

【0031】

表7は、バルク接着剤データ及びプレポリマー組成物の限界を示す。

【0032】

【表 7】

表7:バルク特性に対する条件

引張強度 [MPa]	>15
破壊時の伸び [%]	>350
弾性係数 [MPa]	>28
引裂抵抗 [N/mm]	>30

30

フロントページの続き

(74)代理人 100104282

弁理士 鈴木 康仁

(72)発明者 アンドレアス・ルッツ

スイス連邦 ホルゲン ツェーハー 8 8 1 0 バッハトーベルストラッセ 3

(72)発明者 ダニエル・シュナイダー

スイス連邦 ホルゲン ツェーハー 8 8 1 0 バッハトーベルストラッセ 3

合議体

審判長 門前 浩一

審判官 木村 敏康

審判官 天野 斉

(56)参考文献 特表 2 0 1 4 - 5 0 5 7 6 1 (J P, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., D B名)

C09J175/08