

(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2017-505354

(P2017-505354A)

(43) 公表日 平成29年2月16日(2017.2.16)

(51) Int.Cl.

**C08L 55/00** (2006.01)  
**C08K 5/01** (2006.01)  
**C08F 290/04** (2006.01)  
**C09J 133/00** (2006.01)  
**C09J 157/00** (2006.01)

F 1

C08L 55/00  
C08K 5/01  
C08F 290/04  
C09J 133/00  
C09J 157/00

テーマコード (参考)

4 J 002  
4 J 040  
4 J 127

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 24 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2016-536197 (P2016-536197)  
(86) (22) 出願日 平成26年10月30日 (2014.10.30)  
(85) 翻訳文提出日 平成28年7月21日 (2016.7.21)  
(86) 國際出願番号 PCT/EP2014/073305  
(87) 國際公開番号 WO2015/082142  
(87) 國際公開日 平成27年6月11日 (2015.6.11)  
(31) 優先権主張番号 102013224772.9  
(32) 優先日 平成25年12月3日 (2013.12.3)  
(33) 優先権主張国 ドイツ(DE)

(71) 出願人 509120403  
テーザ・ソシエタス・ヨーロピア  
ドイツ連邦共和国、22848 ノルダー  
シュテット、フーゴー＝キルヒベルクス  
トライセ、1  
(74) 代理人 100069556  
弁理士 江崎 光史  
(74) 代理人 100111486  
弁理士 鍛治澤 實  
(74) 代理人 100139527  
弁理士 上西 克礼  
(74) 代理人 100164781  
弁理士 虎山 一郎

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】多相ポリマー組成物

## (57) 【要約】

本発明は、連続アクリレート相及び不連続炭化水素相を形成する樹型コポリマー(A)、並びに前記樹型コポリマー(A)の炭化水素相中に可溶性の少なくとも一種の炭化水素化合物(B)を含む、多相ポリマー組成物に関する。本発明は更に、本発明による多相ポリマー組成物を含む感圧接着剤、並びに物体の接着のための、特に非極性表面を有する物体の接着のための前記感圧接着剤の使用に関する。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

- 30 ~ 64 重量部の櫛形コポリマー (A) であって、重合可能なエチレン - プチレンマクロマー、エチレン - プロピレンマクロマー、エチレン - プチレン - プロピレンマクロマー及びイソブチレンマクロマーからなる群から選択される少なくとも一種のマクロマーの存在下にコモノマー混合物を重合することによって得ることができ、及び連続アクリレート相と不連続炭化水素相  $K_w$  を形成する櫛形コポリマー (A) ; 及び

- 36 ~ 70 重量部の、前記櫛形コポリマー (A) の炭化水素相  $K_w$  中に可溶性の少なくとも二つの炭化水素化合物 (B-1) 及び (B-2) 、

を含む多相ポリマー組成物であって；

10

この際、前記コモノマー混合物が、コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースに 2 ~ 7 重量 % の少なくとも一種のコモノマーであって、アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、無水イタコン酸、マレイン酸、無水マレイン酸、及び DSC 法に従い測定してホモポリマーの静的ガラス転移温度 (Tg) が 40 超の更に別のモノマーからなる群から選択される少なくとも一種のコモノマー；及びコモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースとして 43 ~ 97 重量 % の少なくとも二つの (メタ) アクリレートコモノマーであって、DSC 法に従い測定してホモポリマーの静的ガラス転移温度 (Tg) が、40 以下であるモノマーからなる群から選択される少なくとも二つの (メタ) アクリレートコモノマー

を含み；及び

20

前記少なくとも二つの炭化水素化合物が、少なくとも 70 の軟化点を有する炭化水素樹脂 (B-1) 及び最大で 20 の軟化点を有する炭化水素樹脂 (B-2) を含む、多相ポリマー組成物。

## 【請求項 2】

櫛型コポリマー (A) が、コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースにして、50 ~ 99 重量 % のコモノマー混合物並びに 1 ~ 50 重量 % のマクロマーを含む混合物から重合して得できることを特徴とする、請求項 1 に記載のポリマー組成物。

## 【請求項 3】

コポリマー混合物が、コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースにして 2 ~ 7 重量 % の少なくとも一種のコモノマーであって、アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、無水イタコン酸、マレイン酸及び無水マレイン酸からなる群から選択される少なくとも一種のコモノマー、並びにコモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースにして 43 ~ 97 重量 % の少なくとも二つの (メタ) アクリレートコモノマーであって、エステル基中に C1 ~ C18 アルキル基を有する (メタ) アクリレートコモノマーからなる群から選択される少なくとも二つの (メタ) アクリレートコモノマーを含むことを特徴とする、請求項 1 または 2 に記載のポリマー組成物。

30

## 【請求項 4】

コモノマー混合物が、コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースにして 2 ~ 7 重量 % のアクリル酸を含むことを特徴とする、請求項 1 ~ 3 の何れか一つに記載のポリマー組成物。

40

## 【請求項 5】

コモノマー混合物が、20 重量 % までの少なくとも一種の更に別の共重合可能なモノマーであって、アクリル酸イソボルニル、アクリル酸ステアリル、アクリル酸イソステアリル、アクリル酸ヒドロキシエチル、メタクリル酸ヒドロキシエチル、アクリル酸 4 - ヒドロキシブチル、酢酸ビニル、酪酸ビニル、プロピオン酸ビニル、イソ酪酸ビニル、吉草酸ビニル、ビニルバーサテート、N - ビニルピロリドン、及び N - ビニルカプロラクタムからなる群から選択される少なくとも一種の更に別の共重合可能なモノマーを追加的に含むことを特徴とする、請求項 1 ~ 4 の何れか一つに記載のポリマー組成物。

## 【請求項 6】

50

コモノマー混合物の重合が、少なくとも一種の更に別の非ポリオレフィン系マクロマーの存在下に行われることを特徴とする、請求項 1 ~ 5 の何れか一つに記載のポリマー組成物。

【請求項 7】

炭化水素樹脂 (B - 1) と (B - 2) の重量比 (B - 1) : (B - 2) が 41 : 59 ~ 70 : 30 であることを特徴とする、請求項 1 ~ 6 の何れか一つに記載のポリマー組成物。

【請求項 8】

炭化水素樹脂 (B - 1) 及び (B - 2) が、GPC 法を用いて決定してそれぞれ 1,000 g / モル以下の数平均分子量 (Mn) を有することを特徴とする、請求項 1 ~ 7 の何れか一つに記載のポリマー組成物。

10

【請求項 9】

ポリマー組成物が、GPC 法を用いて決定して 1,000 g / モル超の数平均分子量 (Mn) を有する炭化水素化合物 (C) を追加的に含むことを特徴とする、請求項 1 ~ 8 の何れか一つに記載のポリマー組成物。

【請求項 10】

ポリマー組成物が、可塑剤、油、及び櫛型コポリマーのアクリレート相中に可溶性の樹脂からなる群から選択される少なくとも一種の添加剤を含むことを特徴とする、請求項 1 ~ 9 の何れか一つに記載のポリマー組成物。

20

【請求項 11】

コモノマー混合物がヒドロキシアルキル (メタ) アクリレートを含まないことを特徴とする、請求項 1 ~ 10 の何れか一つに記載のポリマー組成物。

【請求項 12】

請求項 1 ~ 11 の何れか一つに記載の多相ポリマー組成物を製造する方法であって、次のステップ

- 重合可能なエチレン - プチレンマクロマー、エチレン - プロピレンマクロマー、エチレン - プチレン - プロピレンマクロマー及びイソブチレンマクロマーからなる群から選択される少なくとも一種のマクロマーの存在下にコモノマー混合物を重合して、アクリレート主鎖と炭化水素側鎖とを持つ櫛形コポリマー (A) を形成するステップ；ここで前記コモノマー混合物は、

・コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースにして 2 ~ 7 重量 % の少なくとも一種のコモノマーであって、アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、無水イタコン酸、マレイン酸、無水マレイン酸、及び DSC 法に従い測定してホモポリマーの静的ガラス転移温度 (Tg) が 40 超の他のモノマーからなる群から選択される少なくとも一種のコモノマー；及び

・コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースにして 43 ~ 97 重量 % の少なくとも二つの (メタ) アクリレートコモノマーであって、DSC 法に従い測定してホモポリマーの静的ガラス転移温度 (Tg) が 40 以下のモノマーからなる群から選択される少なくとも二つの (メタ) アクリレートコモノマー；

を含み、

- ポリマー組成物 100 重量部をベースにして、30 ~ 64 重量部のこうして得られた櫛形コポリマー (A) を、36 ~ 70 重量部の少なくとも二つの炭化水素化合物 (B - 1) 及び (B - 2) であって、櫛形コポリマー (A) の炭化水素側鎖と相溶性の少なくとも二つの炭化水素化合物 (B - 1) 及び (B - 2) と混合するステップ、ここで (B - 1) は少なくとも 70 の軟化点を有する炭化水素樹脂であり、そして (B - 2) は最大で 20 の軟化点を有する炭化水素樹脂である；

30

を含む前記方法。

【請求項 13】

請求項 1 ~ 11 の何れか一つに記載の多相ポリマー組成物を含む感圧接着剤。

【請求項 14】

物体の接着のための、請求項 13 に記載の感圧接着剤の使用。

40

50

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、連続アクリレート相及び不連続炭化水素相を有する櫛形コポリマー( A )、並びに櫛形コポリマー( A )の炭化水素相中に可溶性の少なくとも二つの炭化水素化合物( B - 1 )及び( B - 2 )、並びに任意選択的に更に別の添加剤を含む、多相ポリマー組成物に関する。本発明は更に、本発明による多相ポリマー組成物を含む感圧接着剤、並びに物体の接着のための、特に非極性表面を有する物体の接着のための前記感圧接着剤の使用に関する。同様に、該多相ポリマー組成物の製造方法も開示される。

## 【背景技術】

## 【0002】

アクリレートをベースとする感圧接着性ポリマー組成物は、従来技術から既知である。アクリレートベースの接着剤は、それらの耐化学薬品性の故に、特に工業的な用途での接着に適しており、そして従来技術に開示されるポリマー組成物は、様々な基材の接着に使用されている。しかし、既知の組成物の欠点は、低エネルギーの表面を持つ基材(いわゆる「低表面エネルギー材料」、以下「LSE」材料とも称する)でのそれらの使用は困難であることである。これは、一方ではポリプロピレンやLSEワニスでコートされた鋼鉄などの非極性基材上での既知の感圧接着剤の接着力、並びに他方では、最大の接着力を達成できる速度に現れる。非極性表面での既知のアクリレートベースの感圧接着剤の低い接着力の原因としては、既知のポリマー組成物とLSE材料との表面エネルギーに差があること、並びに共有結合もしくは強い非共有結合のために適切な結合点がLSE表面内に欠けていることが考えられる。それ故、既知のアクリレートベースのポリマー組成物とLSE表面との間の接着は、本質的に、より弱いファンデルワールス力に基づいている。

## 【0003】

LSE表面と、ポリアクリレートベースのポリマー組成物との間により強い接着力を発達させるための方策の一つは、粘着樹脂の使用である。他の方策の一つは、LSE基材の表面エネルギーを高めるために、いわゆるプライマー、すなわち接着促進剤を使用する。プライマーの使用は煩雑である一方で、粘着樹脂の使用は、ポリマー組成物の凝集力を低め、これは、負荷がかかった時に結合を破壊する恐れがある。

## 【0004】

このような背景において、U.S.2010/0266837A1(特許文献1)は、櫛形コポリマーと、少なくとも1,000g/molの分子量を有する炭化水素化合物とを含む感圧接着剤を開示している。しかし、従来技術に記載のこれらの感圧接着剤の結果は、未だ必ずしも満足のいくものではなく、そして凝集力に関して妥協する必要なく、良好な接着力を非極性表面に対して示す感圧接着剤への根本的な需要がある。更に、このような感圧接着剤は、良好な耐化学薬品性を有するべきであり、そして短時間後に既に高い接着力を発達させるべきである。

## 【先行技術文献】

## 【特許文献】

## 【0005】

## 【特許文献1】U.S.2010/0266837A1

## 【非特許文献】

## 【0006】

【非特許文献1】J. Brandrup, E. H. Immergut, E. A. Grulke, *Polymer Handbook*, 4th Edition, 1998

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0007】

それ故、本発明は、改善されたポリマー組成物を提供するという課題に基づくものである。

10

20

30

40

50

## 【0008】

本発明は、ポリマー組成物100重量部をベースとして、  
 - 30～64重量部、好ましくは45～60重量部の櫛形コポリマー(A)であって、重合可能なエチレン-ブチレンマクロマー、エチレン-プロピレンマクロマー、エチレン-ブチレン-プロピレンマクロマー及びイソブチレンマクロマーからなる群から選択される少なくとも一種のマクロマーの存在下にコモノマー混合物を重合することによって得ることができ、及び連続アクリレート相と不連続炭化水素相Kwを形成する櫛形コポリマー(A)；  
 - 36～70重量部、好ましくは40～55重量部の、前記櫛形コポリマー(A)の炭化水素相Kw中に可溶性の少なくとも二つの炭化水素化合物(B-1)及び(B-2)；  
 - 並びに、任意選択的に、20重量部まで、好ましくは0～5重量部の更に別の添加剤、を含む、多相ポリマー組成物であって、  
 この際、前記コモノマー混合物が、コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースに2～7重量%の少なくとも一種のコモノマーであって、アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、無水イタコン酸、マレイン酸、無水マレイン酸、及びDSC法(測定法A2)に従い測定してホモポリマーの静的ガラス転移温度が40超、好ましくは80超の更に別のモノマーから選択される少なくとも一種のコモノマー；及びコモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースとして43～97重量%の少なくとも二つの(メタ)アクリレートコモノマーであって、DSC法(測定法A2)に従い測定してホモポリマーの静的ガラス転移温度(Tg)が、40以下、特に25以下であるモノマーからなる群から選択される少なくとも二つの(メタ)アクリレートコモノマー、好ましくはエステル基中にC1～C18アルキル基を有する(メタ)アクリレートコモノマー、特にアクリル酸ブチル、アクリル酸アミル、アクリル酸2-エチルヘキシル、アクリル酸イソオクチル及びアクリル酸デシルから選択される少なくとも二つの(メタ)アクリレートコモノマーを含み；及び

前記少なくとも二つの炭化水素化合物が、少なくとも70の軟化点を有する炭化水素樹脂(B-1)及び最大で20の軟化点を有する炭化水素樹脂(B-2)を含む、多相ポリマー組成物を提供することによって、従来技術のこの課題及び問題に対処するものである。

## 【0009】

更に本発明は、前記多相ポリマー組成物を製造するための方法であって、次のステップ、  
 - 重合可能なエチレン-ブチレンマクロマー、エチレン-プロピレンマクロマー、エチレン-ブチレン-プロピレンマクロマー及びイソブチレンマクロマーからなる群から選択される少なくとも一種のマクロマーの存在下にコモノマー混合物を重合して、アクリレート主鎖と炭化水素側鎖とを持つ櫛形コポリマー(A)を形成するステップ；ここで前記コモノマー混合物は、  
 • コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースにして2～7重量%の少なくとも一種のコモノマーであって、アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、無水イタコン酸、マレイン酸、無水マレイン酸、及びDSC法(測定法A2)に従い測定してホモポリマーの静的ガラス転移温度(Tg)が40超、特に80超の他のモノマーからなる群から選択される少なくとも一種のコモノマー；及び  
 • コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースにして43～97重量%の少なくとも二つの(メタ)アクリレートコモノマーであって、DSC法(測定法A2)に従い測定してホモポリマーの静的ガラス転移温度(Tg)が40以下、特に25以下のモノマーからなる群から選択される少なくとも二つの(メタ)アクリレートコモノマー、好ましくはエステル基中にC1～C18アルキル基を持つ(メタ)アクリレートコモノマー、好ましくはアクリル酸ブチル、アクリル酸アミル、アクリル酸2-エチルヘキシル、アクリル酸イソオクチル及びアクリル酸デシルから選択される少なくとも二つの(メタ)アクリレートコモノマー、

10

20

30

40

50

を含み；

- 30 ~ 64 重量部のこうして得られた樹形コポリマー（A）を、ポリマー組成物100重量部をベースにして36 ~ 70重量部の少なくとも二つの炭化水素化合物（B-1）及び（B-2）であって、樹形コポリマー（A）の炭化水素側鎖と相溶性の少なくとも二つの炭化水素化合物（B-1）及び（B-2）と混合するステップ、ここで（B-1）は少なくとも70の軟化点を有する炭化水素樹脂であり、そして（B-2）は最大で20の軟化点を有する炭化水素樹脂である；
  - 場合によっては更に別の添加剤と混合するステップ；
  - 並びに任意選択的に、反応性官能基を架橋するステップ；
- を含む前記方法に関する。

10

#### 【0010】

本明細書に記載の樹形コポリマー（A）は、個々の樹形コポリマーの複数のポリマー鎖が、例えば溶媒を除去した後に、互いに接触すると直ぐに、連続アクリレート相と不連続炭化水素相Kwを形成する。この際、アクリレート主鎖及び炭化水素側鎖が、連続アクリレート相と不連続炭化水素相とが生じるように会合する。

#### 【0011】

本発明による多相ポリマー組成物は、少なくとも二つの相、すなわち少なくとも炭化水素相Kw1とアクリレート相を有する。これらの相が存在することは、DSCを用いたポリマー組成物の静的ガラス転移温度の決定から判明する。これの代わりにまたは補足的に、これらの異なる相の存在は、動的機械分析（DMA）（測定法A3）を用いて確認できる。この場合、いわゆる温度掃引測定において、組成物の個々の構成成分から生ずる二つ以上のガラス転移が測定される。樹形コポリマー（A）と炭化水素化合物（B-1）及び（B-2）との上述の比率の特定の組み合わせの故に、該組成物はこれらの異なる相にもかかわらず安定しており、すなわち一方では樹形コポリマー（A）、他方では炭化水素化合物（B-1）及び（B-2）への巨視的相分離は起こらない。

20

#### 【0012】

本発明による多相ポリマー組成物は、LSE表面を有する物体の接着に格別適していることが判明した。これらは更に耐薬品性及び耐UV性であり、室温（25）でだけでなく、高温下にも、高い凝集力を示し、これは高いせん断強度に表れる。それにもかかわらず、驚くべきことに、該ポリマー組成物は、低エネルギーの物体の表面及びLSEワニスでコーティングされた表面上での、並びに他のLSE材料上の素早い表面流れ（Aufkleben）を保証し、これは、短時間後での高い接着力の発達を可能とする。本発明による多相ポリマー組成物は、更に、透明な感圧接着剤の提供を可能とする。それ故、更に別の観点の一つでは、本明細書に記載の多相ポリマー組成物を含む感圧接着剤、特に透明な感圧接着剤に関する。更に、物体の接着、特に低表面エネルギーの物体（LSE材料）の接着のための該感圧接着剤の使用が開示される。本発明の意味において、このようなLSE材料とは、本来はLSE材料ではないが、その表面が、例えばLSEワニスでのコーティングの故に接着剤に対しLSE材料のように挙動する材料も意味する。

30

#### 【発明を実施するための形態】

#### 【0013】

本発明によれば、上記の課題は、ポリマー組成物100重量部をベースとして、-30 ~ 64重量部、好ましくは45 ~ 60重量部の樹形コポリマー（A）であって、重合可能なエチレン-ブチレンマクロマー、エチレン-プロピレンマクロマー、エチレン-ブチレン-プロピレンマクロマー及びイソブチレンマクロマーからなる群から選択される少なくとも一種のマクロマーの存在下にコモノマー混合物を重合することによって得ることができ、及び連続アクリレート相と不連続炭化水素相Kwを形成する樹形コポリマー（A）；

- 36 ~ 70重量部、好ましくは40 ~ 55重量部の、前記樹形コポリマー（A）の炭化水素相Kw中に可溶性の少なくとも二つの炭化水素化合物（B-1）及び（B-2）；

- 並びに、任意選択的に、20重量部まで、好ましくは0 ~ 5重量部の更に別の添加剤、

40

50

を含む、多相ポリマー組成物であって、

この際、前記コモノマー混合物が、コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースに2～7重量%の少なくとも一種のコモノマーであって、アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、無水イタコン酸、マレイン酸、無水マレイン酸、及びDSC法（測定法A2）に従い測定してホモポリマーの静的ガラス転移温度が40超、好ましくは80超の更に別のモノマーから選択される少なくとも一種のコモノマー；及びコモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースとして43～97重量%の少なくとも二つの（メタ）アクリレートコモノマーであって、DSC法（測定法A2）に従い測定してホモポリマーの静的ガラス転移温度（Tg）が、40以下、特に25以下であるモノマーからなる群から選択される少なくとも二つの（メタ）アクリレートコモノマー、好ましくはエステル基中にC1～C18アルキル基を有する（メタ）アクリレートコモノマー、特にアクリル酸ブチル、アクリル酸アミル、アクリル酸2-エチルヘキシル、アクリル酸イソオクチル及びアクリル酸デシルから選択される少なくとも二つの（メタ）アクリレートコモノマーを含み；及び

前記少なくとも二つの炭化水素化合物が、少なくとも70の軟化点を有する炭化水素樹脂（B-1）及び最大で20の軟化点を有する炭化水素樹脂（B-2）を含む、多相ポリマー組成物によって解決される。

#### 【0014】

好ましい実施形態の一つでは、本明細書に開示されるポリマー組成物は、櫛型コポリマー（A）が、コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースにして50～99重量%のコモノマー混合物並びに1～50重量%のマクロマー、好ましくは75～95重量%のコモノマー混合物並びに5～25重量%のマクロマー、特に好ましくは85～90重量%のコモノマー混合物並びに10～15重量%のマクロマーを含む混合を重合することによって得ることを特徴とする。

#### 【0015】

本発明の更に別の実施形態の一つでは、ポリマー組成物は、追加的に、数平均分子量（Mn）が1,000g/mol超である炭化水素化合物（C）を含む。更に別の実施形態の一つでは、ポリマー組成物は、可塑剤、油、及び櫛形コポリマー（A）のアクリレート相中に可溶性の樹脂、好ましくはロジンエステル及び/またはテルペンフェノール樹脂からなる群から選択される少なくとも一種の添加剤を含む。

#### 【0016】

第二の観点では、本発明は、先行する請求項の何れか一つに従う多相ポリマー組成物を製造する方法であって、次のステップ

- 重合可能なエチレン-ブチレンマクロマー、エチレン-プロピレンマクロマー、エチレン-ブチレン-プロピレンマクロマー及びイソブチレンマクロマーからなる群から選択される少なくとも一種のマクロマーの存在下にコモノマー混合物を重合して、アクリレート主鎖と炭化水素側鎖とを持つ櫛形コポリマー（A）を形成するステップ；ここで前記コモノマー混合物は、

・コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースにして2～7重量%の少なくとも一種のコモノマーであって、アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、無水イタコン酸、マレイン酸、無水マレイン酸、及びDSC法（測定法A2）に従い測定してホモポリマーの静的ガラス転移温度（Tg）が40超、特に80超の他のモノマーからなる群から選択される少なくとも一種のコモノマー；及び

・コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースにして43～97重量%の少なくとも二つの（メタ）アクリレートコモノマーであって、DSC法（測定法A2）に従い測定してホモポリマーの静的ガラス転移温度（Tg）が40以下、特に25以下であるモノマーからなる群から選択される少なくとも二つの（メタ）アクリレートコモノマー、好ましくはエステル基中にC1～C18アルキル基を持つ（メタ）アクリレートコモノマー、好ましくはアクリル酸ブチル、アクリル酸アミル、アクリル酸2-エチルヘキシル、アクリル酸イソオクチル及びアクリル酸デシルから選択される少なくとも二つ

10

20

30

40

50

の(メタ)アクリレートコモノマー、  
を含み；

- 30～64重量部のこうして得られた樹形コポリマー(A)を、ポリマー組成物100重量部をベースにして36～70重量部の少なくとも二つの炭化水素化合物(B-1)及び(B-2)であって、樹形コポリマー(A)の炭化水素側鎖と相溶性の少なくとも二つの炭化水素化合物(B-1)及び(B-2)と混合するステップ、ここで(B-1)は少なくとも70の軟化点を有する炭化水素樹脂であり、そして(B-2)は最大で20の軟化点を有する炭化水素樹脂である；

- 場合によっては更に別の添加剤と混合するステップ；  
- 並びに任意選択的に、反応性官能基を架橋するステップ、  
を含む前記方法に関する。

#### 【0017】

更に本発明は、本明細書に記載のような多相ポリマー組成物を含む感圧接着剤、並びに物体、特に低い表面エネルギーを有する表面を持つ物体(LSE材料)の接着のための上記感圧接着剤の使用に関する。

#### 【0018】

以下には、本発明によるポリマー組成物及びこのポリマー組成物を含む感圧接着剤の成分をより詳しく説明する。

#### 【0019】

##### 樹形コポリマー(A)

主鎖(ポリマー骨格)に側鎖を有し、これらの側鎖が、それらの長さの故に既にポリマーと見なしてもよいような構造を特徴とするポリマーが、樹形コポリマー(英語では‘comb-type graft copolymer’)と称される。

#### 【0020】

本明細書で使用される場合、樹形コポリマー(A)は、特に、重合可能なエチレン-ブチレンマクロマー、エチレン-プロピレンマクロマー、エチレン-ブチレン-プロピレンマクロマー及びイソブチレンマクロマーからなる群から選択される少なくとも一種のマクロマーの存在下にコモノマー混合物をフリーラジカル重合することによって得ることができるコポリマーを言う。

#### 【0021】

##### コモノマー混合物

(本明細書に記載のように)少なくとも一種のマクロマーの存在下に重合することによって樹形コポリマー(A)に重合されるコモノマー混合物は、コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースにして2～7、好ましくは2～6、更に好ましくは3～5重量%の少なくとも一種のコモノマーであって、アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、無水イタコン酸、マレイン酸、無水マレイン酸、及びDSC法(測定法A2)に従い測定してホモポリマーの静的ガラス転移温度(Tg)が40超、特に80超の他の(いわゆる高Tg)モノマーからなる群から選択される少なくとも一種のコモノマーを含む。該コモノマー混合物は、更に、コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースにして43～97、好ましくは70～95、特に好ましくは80～87重量%の少なくとも二つの(メタ)アクリレートコモノマーであって、DSC法(測定法A2)に従い測定してホモポリマーの静的ガラス転移温度(Tg)が40以下、好ましくは25以下の(いわゆる低Tg)モノマーからなる群から選択される少なくとも二つの(メタ)アクリレートコモノマー、好ましくはエステル基中にC1～C18アルキル基を持つ(メタ)アクリレートコモノマー、好ましくはアクリル酸ブチル、アクリル酸アミル、アクリル酸2-エチルヘキシル、アクリル酸イソオクチル及びアクリル酸デシルから選択される少なくとも二つの(メタ)アクリレートコモノマーを含む。本発明の好ましい実施形態の一つでは、該コモノマー混合物は、コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースにして2～7重量%の少なくとも一種のコモノマーであって、アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、無水イタコン酸、マレイン酸及び無水マレ

10

20

30

40

50

イン酸からなる群から選択される少なくとも一種のコモノマー、並びにコモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースにして43~97重量%の少なくとも二つの(メタ)アクリレートコモノマーであって、エステル基中にC1~C18アルキル基を有する(メタ)アクリレートコモノマー、好ましくはアクリル酸ブチル、アクリル酸アミル、アクリル酸2-エチルヘキシル、アクリル酸イソオクチル及びアクリル酸デシルからなる群から選択される少なくとも二つの(メタ)アクリレートコモノマーを含む。

【0022】

他の言い方をすれば、該コモノマー混合物は、少なくとも三種のコモノマーからなり、そのうちの一種が、アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、無水イタコン酸、マレイン酸、無水マレイン酸、及びホモポリマーがDSC法に従い測定して40超、好ましくは80超の静的ガラス転移温度(Tg)を有する更に別のモノマー(以下、「高Tgコモノマー」とも称する)からなる群から選択される。「高Tgモノマー」という用語は、J. Brandrup, E. H. Immergut, E. A. Grulke, Polymer Handbook, 4th Edition, 1998(非特許文献1)に記載されるような、ホモポリマーの静的ガラス転移温度に依るものである。好ましくは、該コモノマー混合物は、これらの高Tgコモノマーのうちの一種のみを、特に好ましくはアクリル酸またはメタクリル酸、好ましくはアクリル酸を含む。本発明によれば、この高Tgコモノマーは、コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースにして2~7重量%の量で、好ましくは2~6重量%の量で、特に好ましくは3~5重量%の量で使用される。

10

20

30

【0023】

本明細書に記載のコモノマー混合物の構成成分である少なくとも二つの(メタ)アクリレートコモノマーは、ホモポリマーの静的ガラス転移温度(Tg)がDSC法に従い測定して40以下、好ましくは25以下のモノマー(以下、「低Tgコモノマー」とも称する)からなる群から選択される。「低Tgモノマー」という用語は、J. Brandrup, E. H. Immergut, E. A. Grulke, Polymer Handbook, 4th Edition, 1998(非特許文献1)に記載のように、ホモポリマーの静的ガラス転移温度に依るものである。少なくとも二つの(メタ)アクリレートコモノマーは、エステル基中にC1~C18アルキル基を持つ(メタ)アクリレートコモノマー、好ましくはエステル基中にC4~C10アルキル基を持つ(メタ)アクリレートコモノマーから選択される。これらの低Tgコモノマーの好ましい例は、アクリル酸ブチル、アクリル酸アミル、アクリル酸2-エチルヘキシル、アクリル酸イソオクチル及びアクリル酸デシル並びにこれらの異性体である。特に好ましくは、アクリル酸ブチル、アクリル酸2-エチルヘキシル、アクリル酸イソオクチル及び/またはアクリル酸デシルが使用される。特に好ましくは、上記少なくとも二つの(メタ)アクリレートコモノマーのうちの少なくとも一方は、ホモポリマーが0以下の静的ガラス転移温度(Tg)を有するモノマーから選択される。少なくとも二つの(メタ)アクリレートモノマーのうちの前記少なくとも一方は、好ましくはアクリル酸ブチル、アクリル酸2-エチルヘキシル、アクリル酸イソオクチルまたはアクリル酸デシルである。

40

【0024】

更に別の実施形態の一つでは、コモノマー混合物は、追加的に、20重量%まで、好ましくは15重量%まで(コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースとする)の少なくとも一種の更に別の共重合可能なモノマーであって、アクリル酸イソボルニル、アクリル酸ステアリル、アクリル酸イソステアリル、アクリル酸ヒドロキシエチル、メタクリル酸ヒドロキシエチル、アクリル酸4-ヒドロキシブチル、酢酸ビニル、酪酸ビニル、プロピオン酸ビニル、イソ酪酸ビニル、吉草酸ビニル、ビニルバーサテート、N-ビニルピロリドン及びN-ビニルカプロラクタムから選択される少なくとも一種の更に別の共重合可能なモノマー、好ましくはアクリル酸イソボルニル、アクリル酸ステアリル、アクリル酸イソステアリル、酢酸ビニル、酪酸ビニル、プロピオン酸ビニル、イソ酪酸ビニル、吉草酸ビニル、ビニルバーサテート、N-ビニルピロリドン及びN-ビニ

50

ルカプロラクタムから選択される少なくとも一種の更に別の共重合可能なモノマーを含む。

【0025】

特に好ましい実施形態の一つでは、コモノマー混合物は(メタ)アクリル酸ヒドロキシアルキルを含まない。本発明者らは、(メタ)アクリル酸ヒドロキシアルキルを含まないコモノマー混合物が、有利な櫛形コポリマー(A)の提供に格別適しているということから出発している。

【0026】

好ましくは、該コモノマー混合物の個々のコモノマーは、ポリアクリレート骨格(「アクリレート骨格」、「ポリアクリレート主鎖」、「アクリレート主鎖」または「主鎖」とも称する)、すなわち櫛形コポリマー(A)の連続アクリレート相が、-10未満、好ましくは-60~-20の静的ガラス転移温度(DSC法に従い測定)を有するように選択される。

【0027】

特に好ましいコモノマー混合物は、アクリル酸、アクリル酸ブチル、アクリル酸2-エチルヘキシル及びアクリル酸イソボルニル、特に好ましくはアクリル酸、アクリル酸ブチル及びアクリル酸2-エチルヘキシルを含む。

【0028】

例示的な好ましいコモノマー混合物は、3~7重量%のアクリル酸、45~65重量%のアクリル酸ブチル、20~27重量%のアクリル酸2-エチルヘキシル及び15重量%までのアクリル酸イソボルニルからなり、この際、重量%の数値は、コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースとする。

【0029】

マクロマー

該コモノマー混合物は、少なくとも一種のマクロマーの存在下に重合されて、櫛形コモノマー(A)が形成される。マクロマーは、ポリマーの一つまたは複数の末端に反応性で共重合可能な官能性基を持つ比較的低分子量のポリマーである。上記の少なくとも一種のマクロマーは、重合可能なエチレン-ブチレンマクロマー、エチレン-プロピレンマクロマー、エチレン-ブチレン-プロピレンマクロマー及びイソブチレンマクロマーからなる群から選択される。これらのエチレン-ブチレンマクロマー、エチレン-プロピレンマクロマー、エチレン-ブチレン-プロピレンマクロマー及びイソブチレンマクロマーのマクロマー主鎖は好ましくは完全に水素化されている。これらは、対応するモノマーのアニオン重合を用いて得ることができる。既知の方法の一つには、例えば、1,3-ブタジエン及び/またはイソブレンなどのモノマーからヒドロキシル末端共役ジエンポリマーの製造のためのアニオン重合が含まれる。Kraton(登録商標)L1203などの適当なゴム状モノオールが、Kraton Polymers Company社から販売されている。次のステップでは、末端ヒドロキシ官能基を、アクリロイル-またはメタクリロール官能基に転化することができる。

【0030】

マクロマーは、本発明によれば、好ましくは2,000~約30,000g/モル、特に好ましくは2,000~10,000g/モルの分子量を有する(ポリスチレン標準のゲル透過クロマトグラフィ(GPC)を用いて測定、測定法A1)。本発明の好ましい実施形態の一つでは、マクロマーは、DSC法で測定して-30以下、好ましくは-70

~-50のガラス転移温度を有する。対応するマクロマーは、例えばKuraray Co., Ltd.社から商業的に入手可能である。好ましいマクロマーの一つはKuraray Co., Ltd.社のL-1253である。ここで使用するマクロマーは、官能性の共重合可能な反応性基、特にアクリレートまたはメタクリレート官能基をポリマーの一つまたは複数の末端に持つ比較的低分子量のポリマーである。

【0031】

少なくとも一種のマクロマーの存在下にコモノマー混合物を重合、好ましくはフリーラ

10

20

30

40

50

ジカル重合することによって櫛型コポリマー( A )が生じる。櫛形コポリマー( A )は、「グラフトコポリマー」とも称される櫛様のコポリマーである。しかしこの際、「グラフトコポリマー」という呼称は、誤解を招きやすい。というのも、該櫛形コポリマーは、本発明では、マクロマー分子の存在下にコモノマー混合物のコモノマーの重合によって形成し得るものであるためである。すなわち、既に存在するポリマー骨格が、他のモノマーの鎖の結合点として働くグラフト共重合による代わりに、ここで使用されるような櫛形コポリマー( A )の側鎖は、好ましくはコモノマーと、マクロモノマーの共重合可能な反応性基との、好ましくはマクロモノマーのアクリレートまたはメタクリレート官能性基との重合の際に、マクロマー鎖を介して導入される。マクロマーの共重合可能な反応性基は、コモノマー混合物の重合の際に既に、ポリアクリレート骨格(主鎖)に組み込まれる。マクロマーのエチレン-ブチレン鎖、エチレン-プロピレン鎖、エチレン-ブチレン-プロピレン鎖及び/またはイソブチレン鎖が、櫛形コポリマー( A )の側鎖を形成する(ここでは、櫛形コポリマー( A )の炭化水素側鎖とも称する)。その構造の故に、櫛形コポリマー( A )は、「ボトルブラシ型ポリマー(英語: bottle brush polymer)」とも称される。本発明によるポリマー組成物において、この構造、及び炭化水素側鎖の親油性の特性が、櫛形コポリマー( A )の連続アクリレート相及び不連続炭化水素相Kwの形成をもたらす。炭化水素相Kwは、好ましくはミクロ相分離した状態で存在する。相分離、好ましくはミクロ相分離した櫛形コポリマー( A )は、連続アクリレート相と不連続炭化水素相Kwの形成の故に、異なる材料特性を、つまり側鎖のゴム様の、すなわち本発明では疎水性の熱可塑性の特性と、ポリアクリレート骨格の本質的に感圧接着性の特性とを兼ね備えているものと推測される。

10

20

30

40

50

## 【0032】

少なくとも一種のマクロマーの割合は、コモノマー混合物と少なくとも一種のマクロマーとの総重量をベースにして、好ましくは1~50重量%、より好ましくは5~25重量%、特に好ましくは10~15重量%である。

## 【0033】

更に別の好ましい実施形態の一つでは、コモノマー混合物の重合は、少なくとも一種の更に別の非ポリオレフィン系マクロマーの存在下に行われる。この追加的な非ポリオレフィン系マクロマーは、好ましくは、ポリメチルアクリレート、ポリスチレン、ポリジメチルシロキサン、ポリエチレンオキシド及びポリプロピレンオキシドの群から選択される。これらの更なる非ポリオレフィン系マクロマーも、共重合可能なマクロマーである。他の表現では、この非ポリオレフィン系マクロマーも、好ましくは、マクロマーのポリマー鎖の端部に官能性アクリレートまたはメタクリレート基を持つ。本発明の実施形態の一つでは、少なくとも一種の更に別の非ポリオレフィン系マクロマーの割合は、コモノマー混合物とマクロマーとの総重量をベースにして、20重量%まで、好ましくは10重量%まで、特に好ましくは5重量%までである。

## 【0034】

## 炭化水素化合物( B - 1 )及び( B - 2 )

多相ポリマー組成物は、櫛形コポリマー( A )の炭化水素相中に可溶性の少なくとも二つの炭化水素化合物( B - 1 )及び( B - 2 )を含む。これに関連して「可溶性」という用語は、炭化水素化合物( B - 1 )及び( B - 2 )が、櫛形コポリマー( A )の炭化水素側鎖と相溶性であり、そのため、ポリマー組成物内で、櫛形コポリマー( A )の炭化水素側鎖と炭化水素化合物( B - 1 )及び( B - 2 )からなる共同の炭化水素相Kw1を形成することを意味する。この共同の炭化水素相の存在は、DSC法を用いて確認できる。櫛形コポリマー( A )と炭化水素化合物( B - 1 )及び( B - 2 )からなる組成物が、化合物( B - 1 )及び( B - 2 )を加える前に、DSCでの測定において、櫛型コポリマー( A )の静的ガラス転移温度の値に関してのみ異なる場合には、追加的なガラス転移温度の意味で求めることができる追加的な相は存在しない。それとは反対に、該ポリマー組成物の炭化水素相Kw1は、その静的ガラス転移温度Tg( Kw1 )によって特徴づけられる。応じて、櫛型コポリマー( A )のアクリレート骨格が寄与する、ポリマー組成物内の

アクリレート相も、そのガラス転移温度 ( $T_g$  (A c)) について DSC を用いて決定し得る。

【0035】

炭化水素化合物 (B-1) は、軟化点が少なくとも 70、好ましくは 70 ~ 150、特に好ましくは 80 ~ 120 の炭化水素樹脂である。炭化水素化合物 (B-2) は、軟化点が最大でも 20 の炭化水素樹脂である。炭化水素樹脂 (B-1) 及び (B-2) の各々の軟化点は、環球式軟化点 (ASTM E 28-99 に従い測定) である。少なくとも 70 の軟化点を有する炭化水素樹脂 (B-1) は、以下「硬質樹脂」とも称する。軟化点が最大でも 20 の炭化水素樹脂 (B-2) は、以下「軟質樹脂」とも称する。

【0036】

好ましい実施形態の一つでは、炭化水素樹脂 (B-1) 及び / または炭化水素樹脂 (B-2) は、1,000 g / モル以下の数平均分子量 (Mn) (GPC を用いて決定、方法 A1) を有する。炭化水素樹脂 (B-1) 及び (B-2) は、好ましくは 41:59 ~ 70:30 の重量比 (B-1) : (B-2) で存在する。本発明の特に好ましい実施形態の一つでは、軟化点が少なくとも 70 の炭化水素樹脂 (B-1) の割合は、多相ポリマー組成物の全ての炭化水素樹脂の総量をベースにして 41 重量% と 70 重量%との間、特に好ましくは 50 重量% と 60 重量%との間である。

【0037】

適当な硬質樹脂は、石油ベースの合成炭化水素である。例には、脂肪族オレフィンをベースとする樹脂が含まれる。対応する樹脂は、Cray Valley 社から Wing tack (登録商標) 95 の名称で、Exxon 社から Escorze (登録商標) の商品名で、Arakawa Chemical 社から Arkon (登録商標) (P-シリーズ) の商品名で、Hercules Speciality Chemicals 社から Regalrez (登録商標) (1030、2000、5000 シリーズ) の商品名及び Regalite (登録商標) (R-シリーズ) の商品名で、及び Yasuhara Yushi Kogyo Company 社から Clearon (登録商標) の商品名で入手できる。

【0038】

適当な軟質樹脂は、C5-樹脂である Cary Valley 社の Wing tack (登録商標) 10、ポリテルペン樹脂である Dercolyte (登録商標) L TG 並びに完全水素化炭化水素樹脂である Regalite (登録商標) 1010 及び Piccotac (登録商標) 1020 である。

【0039】

本発明の更に別の実施形態の一つでは、 $T_g$  ( $T_g$  (Kw1)) が DSC を用いて決定可能であるポリマー組成物の炭化水素相中の、櫛型コポリマー (A) の炭化水素相中に可溶性の少なくとも二つの炭化水素化合物 (B-1) 及び (B-2) の割合は、ポリマー組成物中の炭化水素相の重量割合をベースにして、すなわち櫛型コポリマー (A) の炭化水素側鎖と炭化水素樹脂 (B-1) 及び (B-2)との量をベースにして少なくとも 80 重量% である。

【0040】

驚くべきことに、炭化水素樹脂 (B-1) 及び (B-2) がポリマー組成物 100 重量部に対し 36 ~ 70 重量部、好ましくは 40 ~ 45 重量部の割合で存在する場合に、炭化水素樹脂 (B-1) 及び (B-2) は特に有利なポリマー組成物の提供に適していることが判明した。ポリマー組成物中の炭化水素化合物 (B-2) の割合が高い場合には、アクリル相内での追加的な炭化水素相の形成が起こり得る。この可能な説明の一つは、櫛型コポリマー (A) の炭化水素相内の炭化水素化合物 (B-2) の溶解度限界を超える量で軟質樹脂 (B-2) が加えられることである。この追加的な炭化水素相は、例えば動的機械分析 (DMA) (測定法 A3) を用いて確認できる。

【0041】

添加剤及び粘着樹脂

10

20

30

40

50

櫛型コポリマー( A )並びに炭化水素化合物( B - 1 )及び( B - 2 )の他に、該ポリマー組成物は、少なくとも一種の添加剤及び/または粘着樹脂を含むことができる。ここで使用される添加剤には、可塑剤、油、及び櫛型コポリマー( A )のアクリレート相中に可溶性の樹脂、好ましくはロジンエステル及び/またはテルペンフェノール樹脂などが挙げられる。好ましいロジンエステルは、水素化ロジンエステルである。好ましいテルペンフェノール樹脂は、耐老化性テルペンフェノール樹脂である。

#### 【 0 0 4 2 】

同様に、(炭化水素化合物( B - 1 )及び( B - 2 )とは異なる)一種以上の粘着樹脂の添加も可能である。添加剤及び粘着樹脂は、存在する場合には、ポリマー組成物 100 重量部に対して、好ましくは 20 重量部までの量で、好ましくは 5 重量部までの量で存在する。

10

#### 【 0 0 4 3 】

更に別の好ましい実施形態の一つでは、ポリマー組成物は、数平均分子量(  $M_n$  )が 1,000 g / モル超の追加的な炭化水素化合物( C )を含む。この追加的な炭化水素化合物( C )は好ましくは更に別の軟質樹脂である。本発明の特別な実施形態の一つでは、炭化水素化合物( C )は、ポリマー組成物のアクリレート相内に不連続相を形成する。他の言い方をすれば、この特別な実施形態においては、ポリマー組成物の連続相内に二つの異なる不連続相が存在する。この実施形態によれば、ポリマー組成物内のこの追加的な相の静的ガラス転移温度  $T_g$  ( C )は、ポリマー組成物のガラス転移温度  $T_g$  ( Kw1 )及び  $T_g$  ( Ac )の間である。

20

#### 【 0 0 4 4 】

更に、老化防止剤、光保護剤及びオゾン保護剤を添加剤として使用することができる。老化防止剤としては、BASF社の Ir g a n o x (登録商標) タイプまたは Cl a r i a n t 社の H o s t a n o x (登録商標)、好ましくは一次老化防止剤、例えば 4 - メトキシフェノールまたは Ir g a f o s (登録商標) 1076、及び二次老化防止剤、例えば BASF社の Ir g a n o x (登録商標) T N P P または Ir g a f o s (登録商標) 168 を使用でき、互いに組み合わせてもよい。更に別の適当な老化防止剤は、フェノチアジン( C - ラジカル捕捉剤)、並びに酸素の存在下でのヒドロキノンメチルエーテル、並びに酸素自体である。光保護剤としては、UV吸収剤( C y a s o r b (登録商標) シリーズ) または立体障害性アミン( T i n u v i n (登録商標) シリーズ) を使用できる。

30

#### 【 0 0 4 5 】

##### 多相ポリマー組成物の製造方法

本発明によるポリマー組成物は、先ず、本明細書に記載のコモノマー混合物を、重合可能なエチレン - プチレンマクロマー、エチレン - プロピレンマクロマー、エチレン - プチレン - プロピレンマクロマー及びイソブチレンマクロマーからなる群から選択される少なくとも一種のマクロマーの存在下に重合して、櫛型コポリマー( A )を形成することによって製造できる。この際、櫛型コポリマー( A )は、当業者には周知の慣用の重合技術によって製造することができる。これらの方法には、溶液重合法、懸濁重合法、エマルジョン重合法及び塊状重合法などが挙げられる。好ましくは、櫛型コポリマー( A )は、溶液状態でフリーラジカル重合を用いて製造される。好ましい溶剤及び溶剤混合物は、マクロマーの十分な溶解性を保証し、そしてこれは、酢酸エチル、アセトン、メチルイソプロピルケトン、ヘキサン、及び/またはヘプタン、並びにトルエン及び上記の溶剤の混合物である。本発明の好ましい実施形態の一つでは、重合の後、残留モノマー含有率は、従来技術から既知の方法を用いて減少させる。

40

#### 【 0 0 4 6 】

該櫛型コポリマーのアクリレート骨格及び炭化水素側鎖は、溶剤(存在する場合)の除去の後に、相分離した、好ましくはミクロ相分離した構造の形で存在し、この際、炭化水素相 Kw1 (これは、櫛型コポリマー( A )の炭化水素側鎖と、この炭化水素相中に可溶性の炭化水素化合物( B - 1 )及び( B - 2 )から形成される)が、ポリマー組成物の連

50

続アクリレート相中に不連続に存在する。これに関連して連続的とは、アクリレート相が、不連続炭化水素相の個々の断片（ドメインとも言う）をマトリックのように包んでいることを意味する。ミクロ相分離した構造の存在は、ポリマー組成物の透明な外観の形態に現れる。このようなポリマー組成物では、炭化水素相のドメインは、可視光の波長（390～780 nm）より小さい大きさを有する。

#### 【0047】

##### 感圧接着剤

本発明は更に、本発明によるポリマー組成物を含む感圧接着剤に関する。驚くべきことに、この感圧接着剤が、非極性表面を持つ基材の接着に格別適していることが見出された。この際、それでもなお、本発明の感圧接着剤は、極性表面の接着にも適している。非極性表面とは、低い表面エネルギーまたは低い表面張力を有する基材のことと理解され、特に45 mN/m未満、好ましくは40 mN/m未満、特に好ましくは35 mN/m未満の表面張力を有する基材のことと解される。表面張力の決定のためには、DIN EN 828に従う接触角を測定する。

10

#### 【0048】

本発明による感圧接着剤は好ましくはフィルムの形で提供される。このためには、ポリマー組成物をそのままでまたは粘着樹脂の添加の後に、キャリア材料（フィルム、フォーム、シンタクチックフォーム、布帛、紙）上で周知のコーティング方法を用いて溶液から感圧接着層として形成することができ、この際、感圧接着層は、40～100 g/m<sup>2</sup>の坪量を有する。

20

#### 【0049】

本発明による接着テープは、

- 本発明による感圧接着剤または本発明による多相ポリマー組成物の単一層でできている、単層の両面自着性の接着テープ（いわゆる「転写式テープ」）；
  - 片面自着性に仕上げされた接着テープ（以下、「片面自着テープ」）、この場合、本発明による感圧接着剤または本発明による多相ポリマー組成物は、多層の製品、例えば本発明による感圧接着剤または本発明による多相ポリマー組成物の一つの層と、発泡されたまたは発泡されていないキャリア層とからなる二層システムの形で提供される、
  - 二つの感圧接着層を備えた、多層で両面自着性に仕上げされた接着テープ（以下、「両面自着テープ」）、そのうちの少なくとも一つの層は、本発明による多層ポリマー組成物を含む；
  - 接着テープ面の一方に熱活性化可能な接着層を、接着テープ面の他方に本発明による感圧接着剤または本発明による多相ポリマー組成物の層を備えた両面接着テープ；
- として構成することができる。このためには、発泡されたもしくは発泡されていない少なくとも一つのキャリアの異なる面上にまたは多層システムの異なる面上に二つの層を設けることができる。

30

#### 【0050】

この際、両面製品は、接着またはシーリングのいずれが想定されているかには関係なく、対称的なまたは非対称的な製品構成を有することができる。

40

#### 【0051】

該接着テープは、輸送、貯蔵またはダイカットプロセスのためには、好ましくは少なくともその片面にライナーを備え、すなわち例えばシリコーンコートフィルムまたはシリコーン紙を備える。

#### 【0052】

以下に、本発明を具体例に基づきより詳しく説明する。

#### 【実施例】

#### 【0053】

以下の模範的な実験は本発明をより詳しく説明するものであり、提示した例の選択によって、本発明が不必要に限定されることはない。

#### 【0054】

50

測定方法（一般的な説明）：

ゲル透過クロマトグラフィ G P C（測定法 A 1）：

本明細書における数平均及び重量平均分子量  $M_n$  及び  $M_w$ 、並びに多分散性 P D の値は、ゲル浸透クロマトグラフィによる決定に関する。この決定は、清澄ろ過した試料 100  $\mu\text{L}$ （試料濃度 4 g / L）に対して行われる。溶離液としては、トリフルオロ酢酸を 0.1 体積 % 含むテトラヒドロフランを用いる。測定は 25 で行う。プレカラムとして、タイプ P S S - S D V、5  $\mu\text{m}$ 、10<sup>3</sup>、I D 8.0 mm × 50 mm のカラムを使用する。分離には、P S S - S D V タイプ、5  $\mu\text{m}$ 、10<sup>3</sup> 並びに 10<sup>5</sup> 及び 10<sup>6</sup>、それぞれ I D 8.0 mm × 300 mm のカラムを用いる（Polymer Standards Service 社のカラム；示差屈折計 Shodex RI 71 によって検出）。貫流量は 1 分当たり 1.0 mL である。キャリブレーションは、櫛型ポリマーの場合は P M M A 標準に対して（ポリメチルメタクリレートキャリブレーション）、炭化水素樹脂の場合は P S 標準に対して（ポリスチレンキャリブレーション）行う。

10

【0055】

静的ガラス転移温度 T<sub>g</sub>（測定法 A 2）

静的ガラス転移温度の決定は、D I N 5 3 7 6 5 に従い動的示差熱量測定により行う。ガラス転移温度 T<sub>g</sub> のデータは、個々の場合において他に記載がなければ、D I N 5 3 7 6 5 : 1994-03 に従うガラス変換温度値 T<sub>g</sub> である。

20

【0056】

動的機械分析（D M A）（測定法 A 3）

この試験は、A r e s 社のせん断速度制御レオメータでトルクを負荷して実施し、この際、25 mm のプレート径を有するプレート・コーン形状を用いる。温度掃引測定のためには、測定周波数は 10 rad / 秒、温度範囲は -40 ~ 130 、加熱速度は 2.5 / 分、そして変形は 1 % である。

20

【0057】

固形分含有率（測定法 A 4）：

固形物含有率は、ポリマー溶液中の気化できない構成分の割合の目安である。これは、2 時間 120 で乾燥庫中で、気化可能な成分を蒸発させ、そして残留物を再び計量することによって重量分析により決定される。

30

【0058】

測定法（特に感圧接着剤）：

180 ° 接着力試験（測定法 H 1）

鋼鉄への接着力の決定は、23 ± 1 の温度及び 50 % ± 5 % の相対湿度の試験雰囲気で行う。

40

【0059】

ポリエステル上に層として施与したアクリレート感圧接着剤の 20 mm 幅のストリップを、鋼鉄製プレート上に施与した。この鋼鉄製プレートは、予めアセトンで二回、イソプロパノールで一回洗浄し、その後、溶剤が蒸発し得るように 5 分間空気中で放置した。感圧接着ストリップは、2 kg の重さに相当する押し圧力で二回基材上に押しつけた。次いで直ぐに、この接着テープを 300 mm / 分の速度及び 180 ° の角度で基材から引きはがした。全ての測定は室温で行った。

40

【0060】

測定結果は N / cm で表示し、そして三回の測定から平均する。同様にして、ポリエチレン（P E）及びワニス上での接着力も決定した。ワニスとしては、B A S F 社のワニス U r e g l o s s（登録商標）C o l o r l e s s（製品番号 F F 7 9 - 0 0 6 0 0 9 0 0）をそれぞれ使用した。

50

【0061】

せん断耐久時間（S c h e r s t a n d z e i t）（測定法 H 2）：

接着テープの 13 mm 幅で 20 mm より長い（例えば 30 mm）ストリップを、平滑な鋼鉄表面上に施与した。この鋼鉄表面は、アセトンで三回、イソプロパノールで一回清浄

50

したものであった。接着面は 20 mm × 13 mm (長さ・幅) であった。この際、接着テープは試験プレートの縁から張り出している (例えば、上記指定の 30 mm の長さでは 10 mm)。次いで、接着テープを、2 kg の重さに相当する押し圧力で鋼鉄製キャリア上に四回押しつけた。この試料を垂直に吊して、接着テープの張り出した端が下を向くようにした。

【0062】

室温下に、1 kg の重りを、接着テープの張り出した端に固定した。測定は、標準状態 (23 ± 1, 55 % ± 5 % 空気湿度) で及び加熱庫中 70 で行い、この際、測定のために、試料に 0.5 kg の重さを負荷した。

【0063】

測定されたせん断耐久時間 (接着テープが下地から完全に剥がれるまでの時間; 10, 000 分経過時に測定を中止) は分の単位で表示し、三回の測定からの平均値に相当する。

【0064】

【表1】

商業的に入手可能な使用した化学品

化合物	商品名	製造業者	CAS番号
1,3-ブタジエン、ホモポリマー、水素化、ヒドロキシ末端、モノメタクリレート	L-1253	Kuraray 社	260057-97-4
2,2'-アゾビス(2-メチルブチロニトリル)	Vazo(登録商標)67	DuPont 社	13472-08-7
ビス(4-tert-ブチルシクロヘキシル)パーキシジカーボネート	Perkadox(登録商標)16	Akzo Nobel 社	15520-11-3
炭化水素樹脂 (C <sub>5</sub> ベース、低芳香族類含有率、軟化点(環球式)94°C)	Piccotac(登録商標)1095-N	Eastman 社	-
炭化水素樹脂(水素化物、軟化点(環球式)88°C)	Reagalite(登録商標)R1090	Eastman 社	-
液状炭化水素樹脂 (C <sub>5</sub> ベース)	Wingtack(登録商標)10	Cray Valley 社	26813-14-9
テルペンフェノール樹脂(軟化点110°C; Mw=500~800g/モル; D=1.50)	Dertophene(登録商標)T110	DRT 樹脂	25359-84-6
アルミニウムアセチルアセトネート	-	Sigma-Aldrich 社	13963-57-0
N,N,N',N'-テトラキス(2,3-エポキシプロピル)m-キシレン-a,a'-ジアミン	Erisys <sup>TM</sup> GA-240	CVC Speciality Chemicals Inc. 社	63738-22-7

【0065】

櫛型コポリマー(A) - P1 ~ P6 及び比較例P7の製造

以下に、模範的な櫛型コポリマー(A)の製造を記載する。

【0066】

例 P1 :

ラジカル重合に慣用の 100 L ガラス製反応器に、1.2 kg のアクリル酸 (AS, 3 %)、20.97 kg のアクリル酸ブチル (BA, 52.43 %)、9.83 kg のアクリル酸 2-エチルヘキシル (EHA, 24.57 %)、4.0 kg のアクリル酸イソボルニル (IBOA, 10 %)、4.0 kg のマクロマー L-1253 (10 %) 及び 20.8 kg のアセトン / スピリット 60 / 95 (1 : 1) を満たした。攪拌しながら窒素ガスを 45 分間導通した後、反応器を 58 に加熱し、そして 0.8 kg の Vazo (登録商標) 67 を加えた。次いで、外部の加熱浴を 75 に加温し、そして反応をこの外部温度で一定に行った。1 時間の反応時間後、再び 0.8 kg の Vazo (登録商標) 67 を加えた。5 時間の期間 (Vazo (登録商標) 67 の最後の添加の後から計算) にわたって、それぞれ一時間毎に、粘度の上昇に応じてそれぞれ 5.0 ~ 10.0 kg のスピリット

10

20

30

40

50

60/95で希釈して、十分な混合が保証されるようにした。残留モノマーを減少させるために、反応開始後6時間後と7時間後に、それぞれ1.5kgのビス(4-tert-ブチルシクロヘキシル)パーオキシジカルボネートを加え、その合間に、更に15kgのスピリット60/95で希釈した。反応を24時間の反応時間の後に室温に冷却して停止した。

【0067】

櫛型コポリマー(A)-P2~P6及び比較例P7

櫛型コポリマーP2~P6及び比較例V P 7の製造を例P1に類似して行った。各々の場合に使用したモノマーの質量%のデータを表1に示す。

【0068】

【表2】

表1:ハイブリッドポリマーP2~P6及び比較例V P 7

	2	3	4	5	6	比較例V P 7
AS	3.0%	3.0%	3%	5.0%	7%	8%
BA	60.1%	56.6%	49%	54.5%	53%	52%
EHA	26.9%	25.4%	23%	25.5%	25%	25%
I BOA	—	—	15%	—	—	—
L-1253	10.0%	15.0%	10%	15.0%	15%	15%

【0069】

表2には、櫛型コポリマーP1~P6及び比較例V P 7の、GPCで測定したモル質量分布及びDSCで測定した静的ガラス転移温度をそれぞれ示す。

【0070】

【表3】

表2:ポリマーデータ ポリマーP1~P6及び比較例V P 7

	M <sub>n</sub> [g/mol] <sup>b)</sup>	M <sub>w</sub> [g/mol] <sup>b)</sup>	PD [-] <sup>b)</sup>	静的T <sub>g</sub> [°C] <sup>c)</sup>
P1	63,800	1,640,000	25.71	-37
P2	63,900	1,650,000	25.85	-48
P3	58,700	1,670,000	28.44	-48
P4	64,100	1,620,000	25.27	-33
P5	78,800	1,690,000	21.48	-34
P6	68,700	1,590,000	23.14	-28
V P 7	62,100	1,550,000	24.96	-27

<sup>b)</sup> 測定法A1に従い測定。

<sup>c)</sup> 測定法A2に従い測定。櫛型コポリマーの炭化水素相のガラス転移温度は、これが-50°Cの測定開始温度よりも低いために、求めることができなかった。

【0071】

I I 多相ポリマー組成物P S A 1 ~ P S A 1 0並びに比較例V 1 1 ~ V 1 2の製造

多相ポリマー組成物P S A 1 ~ P S A 1 0並びにV 1 1 ~ V 1 2を、櫛型コポリマーP1~P6から製造した。ポリマーV P 7は、ポリマー組成物V 1 3の製造のために使用した。このためには、上記で得られた櫛型コポリマーP S A 1 ~ P S A 1 0もしくはV P 7を、それぞれ30%の固体物含有率にスピリットで希釈した。次いで、表3に記載の架橋剤(0.3重量%のアルミニウムアセチルアセトネート(アルミニウムキレート)(A)または0.075重量%のErisys GA240(B)のいずれか)、及び表3に記載の一種もしくは複数種の樹脂を溶液に加えた。次いで、36μm厚のPETフィルム(Kemafoil HPH 100、Covema社)上にコーティングし、次いで乾燥した(コーティング速度2.5m/分、乾燥路15m、温度ゾーン1:40、ゾーン2:70、ゾーン3:95、ゾーン4:150)。接着剤塗布量はそれぞれ50g/m<sup>2</sup>であった。

10

20

30

40

50

【0072】

【表4】

表3：ハイブリッド感圧接着剤例P SA 1～P SA 10並びに比較例V 1 1～V 1 6

	ポリマー	架橋剤 <sup>d)</sup> Regalite R1090 [%]	Piccotac 1095-N [%]	Wingtack 10 [%]	樹脂合計 割合 [%]	マクロマー に対する 樹脂割合 [%]	樹脂全体に 対する硬質 樹脂の割合 [%]
P SA 1	P 1	A	24.2	—	16.2 40.4	83.3	60.0
P SA 2	P 2	A	23.1	—	23.1 46.2	85.7	50.0
P SA 3	P 2	A	25.8	—	22.8 48.6	86.5	53.1
P SA 4	P 3	A	25.8	—	22.8 48.6	81.0	53.1
P SA 5	P 4	A	24.4	—	24.4 48.8	86.5	50
P SA 6	P 5	A	—	29.4 24.3	53.7	83.0	54.8
P SA 7	P 5	A	—	28.2 23.8	52.0	82.4	54.3
P SA 8	P 5	A	—	27.1 22.7	49.8	81.5	54.5
P SA 9	P 5	B	—	27.1 22.7	49.8	81.5	54.5
P SA 10	P 6	A	—	27.1 22.7	49.8	81.5	54.5
V 1 1	P 1	A	30.0	—	— 30.0	75.0	100.0
V 1 2	P 3	B	21.1	—	14.0 35.1	72.7	60.0
V 1 3	VP 7	A	—	24.0 16.0	40.0	63.4	60.0

<sup>d)</sup> 架橋剤A : 0.3重量%アルミニウムキレート、

架橋剤B : 0.075重量%E r i s y s GA 2 4 0。

【0073】

例P SA 1～P SA 10並びに比較例の全ての接着技術的データを表4に記載する。

【0074】

【表5】

表4：多相ポリマー組成物P SA 1～P SA 10並びに比較例V 1 1～V 1 4の接着技術的データ

例	直後の接着力 (KK)、 鋼鉄 [N/cm]	直後の接着力 (KK)、 FF-79 [N/cm]	直後の接着力 (KK)、 PE [N/cm]	せん断耐久時間 (SSZ)、 室温 [分]
P SA 1	9.54	8.28	4.62	10,000
P SA 2	11.97	8.89	6.98	10,000
P SA 3	12.79	10.52	7.02	10,000
P SA 4	10.40	9.14	6.16	10,000
P SA 5	12.71	9.12	2.94	10,000
P SA 6	14.54	14.02	6.55	5905 (K)
P SA 7	15.12	14.94	8.6	7464 (K)
P SA 8	15.74	15.39	7.56	7108 (K)
P SA 9	14.12	13.38	7.22	10,000
P SA 10	7.68	7.88	4.01	10,000
V 1 1	7.18	3.84	2.60	3682 (A)
V 1 2	8.40	4.02	3.18	7246 (A)
V 1 3	7.02	4.13 (R)	1.23 (R)	10,000

【0075】

直後の接着力 (KK) の測定は測定法 H 1 に従い行い、室温でのせん断耐久時間 (SSZ) の測定は測定法 H 2 に従い行った。A : 接着破壊、K : 凝集破壊、R : 自励振動 (スリップスティック不良)。

10

20

30

40

50

## 【 0 0 7 6 】

比較例 V 1 1 ~ V 1 2 は、櫛型コポリマー ( A ) と、不利な量の炭化水素化合物 ( B - 1 ) 及び ( B - 2 ) との組み合わせを説明している。高すぎるアクリル酸濃度でのハイブリッドポリマーの使用は、試験した非極性表面 P E 及びワニス F F - 7 9 ( V 1 3 ) 上での接着力の劇的な低下を招く。

## 【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No PCT/EP2014/073305
<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> INV. C08F255/10 C09J151/06 C08L51/06 C08L91/00 ADD.		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C08F C09J C08L		
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 practicable, search terms used) EPO-Internal, WPI Data		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 2 479 231 A1 (AVERY DENNISON CORP [US]) 25 July 2012 (2012-07-25) paragraphs [0015], [0030], [0035], [0038], [0059], [0074]; claims 1-15; table 1 -----	1-14
A	US 2003/166767 A1 (FOREMAN PAUL B [US] ET AL) 4 September 2003 (2003-09-04) paragraph [0025]; claims 31-33; example 10 -----	1-14
A	EP 1 211 269 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO LTD [JP]) 5 June 2002 (2002-06-05) paragraphs [0037], [0038], [0097], [0098], [0102]; claims 1-14; examples 3, 6, -----	1-14
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C.		<input checked="" type="checkbox"/> 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		
Date of the actual completion of the international search  26 January 2015		Date of mailing of the international search report  02/02/2015
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 6818 Patentlaan 2 NL-2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer  Madalinski, Maciej

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International application No  
PCT/EP2014/073305

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date
EP 2479231	A1 25-07-2012	NONE		
US 2003166767	A1 04-09-2003	TW 593614 B US 2003166767 A1		21-06-2004 04-09-2003
EP 1211269	A1 05-06-2002	AU 762483 B2 AU 2695200 A CA 2369599 A1 EP 1211269 A1 US 6608143 B1 WO 0068288 A1		26-06-2003 21-11-2000 16-11-2000 05-06-2002 19-08-2003 16-11-2000

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

		Internationales Aktenzeichen PCT/EP2014/073305
<b>A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES</b> INV. C08F255/10 C09J151/06 C08L51/06 C08L91/00 ADD.		
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC		
<b>B. RECHERCHIERTE GEBIETE</b> Recherchiertes Mindestpräfertstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationsymbole) C08F C09J C08L		
Recherchierte, aber nicht zum Mindestpräfertstoff 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		
<b>C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN</b>		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 2 479 231 A1 (AVERY DENNISON CORP [US]) 25. Juli 2012 (2012-07-25) Absätze [0015], [0030], [0035], [0038], [0059], [0074]; Ansprüche 1-15; Tabelle 1 -----	1-14
A	US 2003/166767 A1 (FOREMAN PAUL B [US] ET AL) 4. September 2003 (2003-09-04) Absatz [0025]; Ansprüche 31-33; Beispiel 10 -----	1-14
A	EP 1 211 269 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO LTD [JP]) 5. Juni 2002 (2002-06-05) Absätze [0037], [0038], [0097], [0098], [0102]; Ansprüche 1-14; Beispiele 3, 6, -----	1-14
<input type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie		
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : *A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besondere Bedeutung anzusehen ist *E* frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. 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 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 erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden *Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist *Z* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts	
26. Januar 2015	02/02/2015	
Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax (+31-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter Madalinski, Maciej	

**INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT**

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP2014/073305

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 2479231	A1 25-07-2012	KEINE	
US 2003166767	A1 04-09-2003	TW 593614 B US 2003166767 A1	21-06-2004 04-09-2003
EP 1211269	A1 05-06-2002	AU 762483 B2 AU 2695200 A CA 2369599 A1 EP 1211269 A1 US 6608143 B1 WO 0068288 A1	26-06-2003 21-11-2000 16-11-2000 05-06-2002 19-08-2003 16-11-2000

## フロントページの続き

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード(参考)
C 0 9 J 11/06 (2006.01)	C 0 9 J 11/06	
C 0 9 J 11/08 (2006.01)	C 0 9 J 11/08	

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, T, J, TM), EP(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, R, O, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG), 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, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, H, N, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, 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

(72) 発明者 パーテンブローク・マルテン

ドイツ連邦共和国、20253 ハンブルク、クリスティアン・フェルスター・ストラーセ、7

(72) 発明者 ブレンツェル・アレクサンダー

ドイツ連邦共和国、20259 ハンブルク、エッペンドルファー・ヴェーク、46

F ターム(参考) 4J002 BQ001 EA016 EA017 EE038 GJ01

4J040 DF001 DG001 FA031 FA041 FA081 FA181 FA231 JA13 JB09 KA31  
 LA01 LA08 MA10 MB03 MB09 PA33 QA02  
 4J127 AA07 BB021 BB101 BB221 BC021 BD071 BE161 BE16X BE341 BE34Y  
 BF011 BF01X BG021 BG02Y BG031 BG03Y BG101 BG10Y BG171 BG17Y  
 CB124 CB141 CB142 CB153 CC023 EA21 EA22 FA14