

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6665161号

(P6665161)

(45) 発行日 令和2年3月13日 (2020.3.13)

(24) 登録日 令和2年2月21日 (2020.2.21)

(51) Int. Cl. F I
G 0 6 F 3/041 (2006.01)
C 0 9 J 5/06 (2006.01)
C 0 9 J 175/06 (2006.01)
 G 0 6 F 3/041 6 6 2
 C 0 9 J 5/06
 C 0 9 J 175/06
 G 0 6 F 3/041 4 9 5

請求項の数 13 (全 25 頁)

(21) 出願番号	特願2017-507732 (P2017-507732)	(73) 特許権者	509292766
(86) (22) 出願日	平成27年8月14日 (2015.8.14)		エイチ. ビー. フラー カンパニー
(65) 公表番号	特表2017-532632 (P2017-532632A)		アメリカ合衆国, ミネソタ 55164-
(43) 公表日	平成29年11月2日 (2017.11.2)		0683, セント ポール, ウィロー レ
(86) 国際出願番号	PCT/US2015/045250		イク プールバード 1200, ポスト
(87) 国際公開番号	W02016/025821		オフィス ボックス 64683
(87) 国際公開日	平成28年2月18日 (2016.2.18)	(74) 代理人	100108453
審査請求日	平成30年8月7日 (2018.8.7)		弁理士 村山 靖彦
(31) 優先権主張番号	62/037,817	(74) 代理人	100110364
(32) 優先日	平成26年8月15日 (2014.8.15)		弁理士 実広 信哉
(33) 優先権主張国・地域又は機関	米国 (US)	(74) 代理人	100133400
(31) 優先権主張番号	62/049,489		弁理士 阿部 達彦
(32) 優先日	平成26年9月12日 (2014.9.12)		
(33) 優先権主張国・地域又は機関	米国 (US)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 リワーク性湿気硬化型ホットメルト接着剤組成物、これを使用する方法およびこれを含む物品

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

電子構成部品と、

第 1 基材と、

第 2 基材と、

ポリウレタンプレポリマーから誘導された、硬化した湿気硬化型ホットメルト接着剤組成物と

を含む電子装置であって、

前記第 1 基材は、前記接着剤組成物により前記第 2 基材に結合され、

前記ポリウレタンプレポリマーは、

40 以上の融点、および、少なくとも 5500 g/mol から 20,000 g/mol までの数平均分子量を有する第 1 結晶性ポリエステルポリオールと、

20 重量%から 50 重量%の非晶質ポリエステルポリオールと、

20 重量%から 40 重量%のポリエーテルポリオールと、

ポリイソシアネートと

の反応生成物を含み、

前記硬化した接着剤組成物は、

30 分間にわたり少なくとも 60 から 100 以下までの温度で前記装置を調整した後、前記第 1 基材と前記第 2 基材の少なくとも 1 つから完全に除去可能であり、

少なくとも 3 MPa の信頼性破断応力及び 1 MPa 以下の 80 破断応力を示す、

10

20

電子装置。

【請求項 2】

前記ポリウレタンプレポリマーは、

前記第 1 結晶性ポリエステルポリオールと、

40 以上の融点を有する第 2 結晶性ポリエステルポリオールであって、5500 g / mol 未満の数平均分子量を有し、かつ、ジオールとポリカルボン酸から誘導された結晶性ポリエステルポリオール、および、500 g / mol から 50,000 g / mol までの数平均分子量を有するポリカプロラクトンポリオールからなる群から選択される第 2 結晶性ポリエステルポリオールと、

前記非晶質ポリエステルポリオールと

前記ポリエーテルポリオールと

前記ポリイソシアネートと

の反応生成物を含む、請求項 1 に記載の電子装置。

【請求項 3】

前記ポリウレタンプレポリマーは、

前記第 1 結晶性ポリエステルポリオールと、

40 以上の融点を有する第 2 結晶性ポリエステルポリオールであって、5500 g / mol 未満の数平均分子量を有し、かつ、ジオールとポリカルボン酸から誘導された結晶性ポリエステルポリオール、および、500 g / mol から 50,000 g / mol までの数平均分子量を有するポリカプロラクトンポリオールからなる群から選択される第 2 結晶性ポリエステルポリオールと、

前記ポリエーテルポリオールと、

25 以下の融点を有する前記非晶質ポリエステルポリオールと、

前記ポリイソシアネートと

の反応生成物を含む、請求項 1 に記載の電子装置。

【請求項 4】

前記第 1 基材は、30 分間にわたり少なくとも 60 から 100 以下の温度で前記装置を調整した後、前記第 1 基材と前記第 2 基材の少なくとも 1 つを損傷させることなく、前記第 2 基材から分離可能である、請求項 1 に記載の電子装置。

【請求項 5】

前記第 1 基材を前記第 2 基材から分離した後、前記第 2 基材上に存在する前記硬化した接着剤組成物の残留物を全て、前記第 2 基材から完全に除去可能である、請求項 4 に記載の電子装置。

【請求項 6】

前記硬化した接着剤組成物は、少なくとも 4 の剥離度を示す、請求項 1 に記載の電子装置。

【請求項 7】

前記第 1 基材は、72 時間にわたり 85 、および、相対湿度 85 % で前記装置を調整し、前記装置を室温まで冷却した後、前記第 2 基材と恒久的に結合したままである、請求項 1 に記載の電子装置。

【請求項 8】

第 1 基材と、

第 2 基材と、

硬化した湿気硬化型ポリウレタンホットメルト接着剤組成物とを含む物品を調整するステップであって、

前記第 1 基材が前記硬化した接着剤組成物により前記第 2 基材に前記調整前に結合しており、

前記ホットメルト接着剤組成物が

40 以上の融点、および、少なくとも 5500 g / mol から 20,000 g / mol までの数平均分子量を有する第 1 結晶性ポリエステルポリオールと、

10

20

30

40

50

20重量%から50重量%の非晶質ポリエステルポリオールと、
20重量%から40重量%のポリエーテルポリオールと、
 ポリイソシアネートと

の反応生成物を含むポリウレタンプレポリマーから誘導されている、物品を30分間にわたり、少なくとも60 から100 以下の温度で調整するステップと、

前記第1基材と前記第2基材の少なくとも1つを損傷させることなく、前記第1基材を前記第2基材から分離させるステップと

前記第1基材から前記接着剤組成物を完全に除去するステップとを含む、

前記調整前に少なくとも3MPaの信頼性破断応力及び1MPa以下の80 破断応力
を示す物品をリワークする方法。

10

【請求項9】

前記分離させるステップは、人により実施され、前記第1基材の少なくとも一部を第1の手で把持するステップと、前記第2基材の少なくとも一部を第2の手で把持するステップと、前記2枚の基材を互いに引き離すステップとを含む、請求項8に記載の方法。

【請求項10】

前記方法は、前記2枚の基材を分離した後、前記第1基材から前記接着剤組成物を剥離することにより、前記接着剤組成物を前記第1基材から完全に除去するステップを更に含む、請求項8に記載の方法。

【請求項11】

20

40 以上の融点、120 以下の軟化点、および、少なくとも5500g/mol から20,000g/mol 以下の数平均分子量を有する第1結晶性ポリエステルポリオールと、

40 以上の融点、95 以下の軟化点、および、500g/mol から50,000g/mol までの数平均分子量を有する第2結晶性ポリエステルポリオールであって、前記第1結晶性ポリエステルポリオールとは異なる第2結晶性ポリエステルポリオールと、

40 以下の融点を有する第3ポリエステルポリオールと、

ポリエーテルポリオールと、

ポリイソシアネートと

の反応生成物を含むポリウレタンプレポリマーを含む湿気硬化型ポリウレタン接着剤組成物であって、

30

前記接着剤組成物は、少なくとも5MPaの25 破断応力、および、1MPa以下の80 破断応力を示し、80 破断応力試験法に準拠する1分以内の試験中に、ポリカーボネート基材から完全に除去できる、湿気硬化型ポリウレタン接着剤組成物。

【請求項12】

前記ポリウレタンプレポリマーは、

1重量%から60重量%の前記第1結晶性ポリエステルポリオールと、

1重量%から40重量%の前記第2結晶性ポリエステルポリオールと、

10重量%から60重量%の前記第3ポリエステルポリオールと

の反応生成物を含む、請求項11に記載の湿気硬化型ポリウレタン接着剤組成物。

40

【請求項13】

第1基材と、

第2基材と、

硬化した接着剤組成物と

を含む物品であって、前記第1基材は、前記硬化した接着剤組成物により前記第2基材に結合し、前記硬化した接着剤組成物は、

少なくとも5500g/mol から20,000g/mol までの数平均分子量、40 以上の融点、および、120 以下の軟化点を有する第1結晶性ポリエステルポリオールと、

20重量%から50重量%の非晶質ポリエステルポリオールと、

50

20重量%から40重量%のポリエーテルポリオールと、
ポリイソシアネートと

の反応生成物を含むポリウレタンプレポリマーから誘導され、

前記接着剤組成物は、30分間にわたり少なくとも60 から100 以下の温度で前記物品を調整した後、溶剤の使用、または、研磨作用なしに前記第1基材と前記第2基材の少なくとも1つから完全に除去可能であり、

前記硬化した接着剤組成物は、少なくとも5MPaの25 破断応力、および、1MPa以下の80 破断応力を示し、

少なくとも3MPaの信頼性破断応力を示す物品。

【発明の詳細な説明】

10

【技術分野】

【0001】

本発明は、リワーク性接着剤の形成に関する。

【背景技術】

【0002】

電子装置の構成部品の多くは、極めて高価である。こうした装置の製造と使用中には、欠陥が生じる場合がある。大抵の場合、装置の高価な構成部品を他の装置で使用するよう、この部品の回収を試みるのが望ましい。だが、多くの場合、高価な部品は、取り外せないように電子装置の所定場所に固定されており、部品を装置から外そうとすると、部品が損傷する。

20

【0003】

タブレットやスマートフォンなどの多くの電子装置に存在するタッチパネルディスプレイは、高価な構成部品の例である。電子装置の製造や修理中、タッチスクリーンを装置から取り外すことが望ましい場合が多い。だが、これを行うと、タッチパネルを損傷させる恐れがある。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【特許文献1】国際公開第2013/016130号

【特許文献2】欧州特許出願公開第0371370号明細書

30

【特許文献3】国際公開第2000/075209号

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

装置の構成部品を取り外せないように固定位置で維持できるが、必要な場合には、必要ときに構成部品を損傷させることなく、取り外せる電子装置を構成することが望ましいはずである。

【課題を解決するための手段】

【0006】

一態様において、本発明は、電子構成部品、第1基材、第2基材、および、ポリウレタンプレポリマーから誘導された、硬化した湿気硬化型接着剤組成物を含む電子装置を特徴としており、第1基材は、接着剤組成物により第2基材に結合され、硬化した接着剤組成物は、約30分間にわたり少なくとも60 から100 以下の温度で装置を調整した後、第1基材と第2基材の少なくとも1つから完全に除去可能であり、少なくとも3MPaの信頼性破断応力を示す。

40

【0007】

一実施形態において、ポリウレタンプレポリマーは、第1結晶性ポリエステルポリオール、および、ポリイソシアネートの反応生成物を含む。別の実施形態において、ポリウレタンプレポリマーは、40 以上の融点、および、少なくとも5500g/molから約20,000g/molまでの数平均分子量を有する第1結晶性ポリエステルポリオール

50

、40 以上の融点を有する第2結晶性ポリエステルポリオールであって、5500 g / mol 未満の数平均分子量を有し、かつ、ジオールとポリカルボン酸から誘導された結晶性ポリエステルポリオール、および、500 g / mol から約50,000 g / mol までの数平均分子量を有するポリカプロラクトンポリオールからなる群から選択される第2結晶性ポリエステルポリオールと、ポリイソシアネートとの反応生成物を、含む。

【0008】

幾つかの実施形態において、ポリウレタンプレポリマーは、40 以上の融点、および、少なくとも5500 g / mol から約20,000 g / mol までの数平均分子量を有する第1結晶性ポリエステルポリオールと、40 以上の融点を有する第2結晶性ポリエステルポリオールであって、5500 g / mol 未満の数平均分子量を有し、かつ、ジオールとポリカルボン酸から誘導された結晶性ポリエステルポリオール、および、500 g / mol から約50,000 g / mol までの数平均分子量を有するポリカプロラクトンポリオールからなる群から選択される第2結晶性ポリエステルポリオールと、ポリエーテルポリオールと、25 以下の融点を有する第3ポリエステルポリオールと、ポリイソシアネートとの反応生成物を、含む。

【0009】

他の実施形態において、第1基材は、約30分間にわたり少なくとも60 から100 以下の温度で装置を調整した後、第1基材と第2基材の少なくとも1つを損傷させることなく、第2基材から分離可能である。幾つかの実施形態において、第1基材は、約30分間にわたり少なくとも60 から100 以下の温度で装置を調整した後、1メガパスカル(MPa)以下の力を使って、第2基材から分離可能である。他の実施形態において、第1基材を第2基材から分離した後、第2基材上に存在する硬化した接着剤組成物の残留物を全て、第2基材から完全に除去可能である。

一実施形態において、第1基材を第2基材から分離した後、第2基材上に存在する硬化した接着剤組成物の残留物を全て、剥離により、第2基材から完全に除去可能である。別の実施形態において、第1基材を第2基材から分離した後、第2基材上に存在する硬化した接着剤組成物の残留物を全て、溶剤を使うことなく、第2基材から完全に除去可能である。

【0010】

一実施形態において、第2基材は、ガラス、高分子、または、これらの組み合わせを含む。別の実施形態において、第2基材は、接触感知式ディスプレイ、接触不感知ディスプレイ、ガラスパネル、または、これらの組み合わせを含む。

【0011】

幾つかの実施形態において、第1基材は、熱可塑性高分子、熱硬化性高分子、金属、金属合金、複合材料、高分子、または、これらの組み合わせを含む。幾つかの実施形態において、第2基材は、接触感知式ディスプレイである。他の実施形態において、第1基材は、個人用電子装置の筐体である。

【0012】

幾つかの実施形態において、電子装置は、スマートフォン、タブレット、カメラ、時計、または、これらの組み合わせである。

【0013】

他の実施形態において、硬化した接着剤組成物は、1MPa以下の80 破断応力を示す。別の実施形態において、硬化した接着剤組成物は、少なくとも5MPaの25 破断応力、および、1MPa以下の80 破断応力を示す。

【0014】

一実施形態において、硬化した接着剤組成物は、少なくとも4の剥離度を示す。

【0015】

別の実施形態において、72時間にわたり、85 、および、相対湿度85%で装置を調整し、装置を室温まで冷却した後、第1基材は、第2基材と恒久的に結合したままである。

【 0 0 1 6 】

一実施形態において、硬化した接着剤組成物は、少なくとも 4 M P a の信頼性破断応力を示す。幾つかの実施形態において、硬化した接着剤組成物は、少なくとも 5 M P a の信頼性破断応力を示す。

【 0 0 1 7 】

他の実施形態において、硬化した接着剤組成物は、少なくとも 3 0 % の強度保持率を示す。別の実施形態において、硬化した接着剤組成物は、少なくとも 5 0 % の強度保持率を示す。

【 0 0 1 8 】

一実施形態において、第 1 結晶性ポリエステルポリオールは、数平均分子量が約 6 0 0 0 g / m o l から 2 0 , 0 0 0 g / m o l 以下までである。

10

他の実施形態において、第 1 結晶性ポリエステルポリオールは、数平均分子量が約 6 0 0 0 g / m o l から約 1 5 , 0 0 0 g / m o l であり、第 2 結晶性ポリエステルポリオールは、数平均分子量が約 1 0 0 0 g / m o l から約 5 0 0 0 g / m o l である。一実施形態において、第 1 結晶性ポリエステルポリオールは、数平均分子量が約 6 0 0 0 g / m o l から約 1 2 , 0 0 0 g / m o l であり、第 2 結晶性ポリエステルポリオールは、数平均分子量が約 2 0 0 0 g / m o l から約 4 5 0 0 g / m o l である。

【 0 0 1 9 】

幾つかの実施形態において、ポリエーテルポリオールは、数平均分子量が約 4 0 0 g / m o l から約 8 0 0 0 g / m o l までである。

20

【 0 0 2 0 】

別の実施形態において、第 3 ポリエステルポリオールは、数平均分子量が約 2 5 0 g / m o l から約 6 0 0 0 g / m o l までである。

【 0 0 2 1 】

別の実施形態において、第 1 結晶性ポリエステルポリオールは、ジオール、および、ポリカルボン酸の反応生成物を含み、第 2 結晶性ポリエステルポリオールは、ポリカプロラクトンポリオールを含む。幾つかの実施形態において、第 1 結晶性ポリエステルポリオールは、数平均分子量が約 6 0 0 0 g / m o l から約 1 2 , 0 0 0 g / m o l であり、ポリカプロラクトンポリオールは、数平均分子量が約 1 0 0 0 g / m o l から約 2 0 , 0 0 0 g / m o l である。

30

【 0 0 2 2 】

別の実施形態において、電子装置は、電子構成部品、第 1 基材、第 2 基材、および、ポリウレタンプレポリマーから誘導された、硬化した湿気硬化型ホットメルト接着剤組成物を含み、第 1 基材は、接着剤組成物により第 2 基材に結合され、硬化した接着剤組成物は、約 3 0 分間にわたり少なくとも 6 0 から 1 0 0 以下までの温度で装置を調整した後、かつ、7 2 時間にわたり 8 5 、および、相対湿度 8 5 % で装置を調整し、装置を室温まで冷却した後、第 1 基材と第 2 基材の少なくとも 1 つから完全に除去可能であり、第 1 基材は、第 2 基材と恒久的に結合したままである。

【 0 0 2 3 】

別の態様において、本発明は、物品をリワークする方法を特徴とし、この方法は、約 3 0 分間にわたり、少なくとも 6 0 から 1 0 0 以下までの温度で物品を調整するステップであって、この物品は、第 1 基材、第 2 基材、および、硬化した湿気硬化型ポリウレタンホットメルト接着剤組成物を含み、第 1 基材は、硬化した接着剤組成物により第 2 基材に結合するステップと、第 1 基材と第 2 基材の少なくとも 1 つを損傷させることなく、第 1 基材を第 2 基材から分離させるステップとを、含む。

40

【 0 0 2 4 】

一実施形態において、この分離させるステップは、1 M P a 以下の力を加えて、第 1 基材を第 2 基材から分離させるステップを、含む。別の実施形態において、分離させるステップは、人により実施され、第 1 基材の少なくとも一部を第 1 の手で把持するステップと、第 2 基材の少なくとも一部を第 2 の手で把持するステップと、これらの 2 枚の基材を互

50

いに引き離すステップとを、含む。幾つかの実施形態において、2枚の基材を分離した後、この方法は、更に、接着剤組成物を第1基材から完全に除去するステップも、含む。他の実施形態において、2枚の基材を分離した後、この方法は、更に、剥離力によって、接着剤組成物を第1基材から完全に除去するステップも、含む。一実施形態において、物品は電子装置である。

【0025】

別の態様において、本発明は、湿気硬化型ポリウレタン接着剤組成物を特徴としており、この湿気硬化型ポリウレタン接着剤組成物は、40以上の融点、120以下の軟化点、および、少なくとも5500g/molから20,000g/mol以下までの数平均分子量を有する第1結晶性ポリエステルポリオールと、40以上の融点、95以下の軟化点、および、約500g/molから約50,000g/molまでの数平均分子量を有する第2結晶性ポリエステルポリオールであって、第1結晶性ポリエステルポリオールとは異なる第2結晶性ポリエステルポリオールと、40以下の融点を有する第3ポリエステルポリオールと、ポリエーテルポリオールと、ポリイソシアネートとの反応生成物を含むポリウレタンプレポリマーを含み、接着剤組成物は、少なくとも5MPaの25破断応力、および、1MPa以下の80破断応力を示し、80破断応力試験法に準拠する1分以内の試験中に、ポリカーボネート基材から完全に除去できる。

一実施形態において、ポリウレタンプレポリマーは、15重量%から99.5重量%までの第1結晶性ポリエステルポリオールと、1重量%から40重量%までの第2結晶性ポリエステルポリオールと、10重量%から60重量%までの第3ポリエステルポリオールとの反応生成物を、含む。

【0026】

別の態様において、本発明は、第1基材、第2基材、および、硬化した接着剤組成物を含む物品を特徴としており、第1基材は、硬化した接着剤組成物により第2基材に結合し、硬化した接着剤組成物は、少なくとも5500g/molから20,000g/molまでの数平均分子量、40以上の融点、および、120以下の軟化点を有する第1結晶性ポリエステルポリオールと、40以上の融点、95以下の軟化点、および、約500g/molから約50,000g/molまでの数平均分子量を有する第2結晶性ポリエステルポリオールであって、第1結晶性ポリエステルポリオールとは異なる第2結晶性ポリエステルポリオールと、ポリイソシアネートとの反応生成物を含むポリウレタンプレポリマーから誘導され、接着剤組成物は、約30分間にわたり少なくとも60から100以下までの温度で物品を調整した後、溶剤の使用、または、研磨作用なしに、第1基材と第2基材の少なくとも1つから完全に除去可能である。

【0027】

本発明は、2枚の基材を接着剤組成物で互いに恒久的に結合できるが、加熱すると、互いに分離可能な物品を特徴とする。更に、本発明は、接着剤組成物が2枚の基材を分離したことで露出すると、これを基材の少なくとも1つから除去可能とする物品も特徴とする。

【0028】

他の特徴や利点は、以下の推奨実施形態、請求項、および、図面の説明らかとなる。図面では、類似の機能を示すために、類似の番号が使用される。

【図面の簡単な説明】

【0029】

【図1】リワーク性物品の側面図である。

【図2】リワーク性電子装置に関する一実施形態の断面図である。

【図3】リワーク性電子装置に関する別の実施形態の断面図である。

【図4】図3のリワーク性電子装置におけるディスプレイの内面の底面図である。

【図5】図4の改良型ディスプレイの側面図である。

【0030】

用語

10

20

30

40

50

本発明に関して、これらの用語には、以下で記載する意味がある。

「完全に除去可能である」という語句は、接着剤組成物に関して使用する場合、人間の裸眼で判定して、眼に見える接着剤残留物が基材上に残らないよう、基材から除去できることを意味する。

【0031】

「結晶」という語句は、示差走査熱量計を使って測定した際、融解転移（ T_m ）を有することを意味する。

【0032】

「恒久的」と「恒久的に」という語句は、2枚の基材の間で形成された接着剤と共に使用する際、室温で結合した2枚の基材を分離しようとした場合、基材の損傷が起こることを意味する。

【発明を実施するための形態】

【0033】

物品10は、硬化した湿気硬化型ポリウレタンホットメルト接着剤組成物20を介して互いに結合した2枚の基材14、18を含む。室温では、基材を互いに分離すると、基材の少なくとも1つが必ず損傷する。約30分の時間にわたり、少なくとも60、少なくとも70、更には、少なくとも80の温度に維持したオープンで物品を調整した後、手により、望ましくは、1MPa以下の力を使って、基材を互いに引っ張ることで、基材を分離できる。幾つかの実施形態において、約20分の、更には、約10分の高温調整後、基材を互いに分離できる。

【0034】

高温で物品の2枚の基材を分離できるか否かを判定する方法の1つは、本書で言及する2枚のポリカーボネート基材が物品の基材となるよう改良した80破断応力試験法である。望ましくは、この様な改良型80破断応力試験法に従って試験した際、1MPa以下の破断応力を示す。

【0035】

約30分にわたり、少なくとも60、少なくとも70、更には、少なくとも80の高温での物品を調整した後、更に、物品を高温調整から外し、物品の2枚の基材を互いに分離した後1分以内に、溶剤、または、研磨作用の支援なしに、硬化した接着剤組成物を基材の少なくとも1つから完全に除去可能である。接着剤組成物の高温完全除去率は、接着剤組成物を露出させるよう、2枚の基材を互いに分離した後、評価可能である。露出した接着剤組成物の高温完全除去率を測定する方法の1つは、2本の指の間で露出した接着剤組成物の一部を把持して、接着剤組成物の一部を基材から剥がすことを、含む。望ましくは、30分間にわたり、少なくとも60、少なくとも70、更には、少なくとも80の温度で調整した高温調整室から物品を除去して、基材が分離された後、1分内、3分内、更には、5分内の剥離試験法に従って試験した際、基材上に存在する接着剤残留物の一部の全体積は、基材から、4片以下、3片以下、2片以下、更には、1片としても除去可能である。接着剤組成物の剥離性能は、本書で記載の剥離評価尺度に従って、等級化可能である。接着剤組成物は、剥離評価尺度に従って等級付けした際、少なくとも3、少なくとも4、更には、少なくとも5の剥離を示すよう、基材の少なくとも1つから完全に除去できることが望ましい。

【0036】

比較的高い温度と高い湿度に晒された後、試験温度、および、周囲湿度において試験した際、基材が互いに結合したままとなるよう、物品の接着結合は、良好な信頼性を維持することが望ましい。望ましくは、72時間（物品を室温まで冷却した後で決まる）にわたり、85、および、85%の相対湿度で調整した後、2枚の基材は、硬化した接着剤組成物を介して、互いに結合したままである。結合の強度に関する1つの測度は、破断応力である。望ましくは、72時間（物品を室温まで冷却した後で決まる）にわたって、85、および、相対湿度85%で露出した後の物品の破断応力は、初期破断応力、即ち、調整前の25破断応力の少なくとも50%、少なくとも60%、更には、少なくとも75

10

20

30

40

50

%である。72時間にわたる85%、および、相対湿度85%での破断応力は、少なくとも3MPa、少なくとも4MPa、更には、少なくとも5MPaであることが望ましい。

【0037】

物品の第1、第2基材は、種々の特性を有する様々な材料から作ることが可能である。有用な基材には、剛体基材（即ち、基材は、人間が2本の手で曲げることができないか、あるいは、2本の手で基材を曲げようとする、壊れる）、および、柔軟基材（即ち、2本の手で基材を曲げられ、曲げた後、元の形状に戻ることができる）がある。望ましくは、基材の少なくとも1つは、透明、または、半透明であるか、または、透明、または、半透明構成要素を含む。有用な基材には、ガラス（例えば、アルミノケイ酸アルカリ強化ガラスとホウケイ酸塩ガラス）と、石英、窒化ホウ素、窒化ガリウム、サファイア、シリコン、炭化物、セラミック、高分子（例えば、ポリカーボネート、ポリオレフィン（例えば、ポリプロピレン、ポリエチレン、低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、ポリプロピレン、配向ポリプロピレン、および、ポリオレフィンと他のモノマーの共重合体）、ポリエーテルテレフタレート、エチレン酢酸ビニル、エチレンメタクリル酸イオノマー、エチレンビニルアルコール、ポリエステル、例えば、ポリエチレンテレフタレート、ポリカーボネート、ポリアミド、例えば、ナイロン-6とナイロン-6,6、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、セルロース、ポリスチレン、および、エポキシ樹脂）、高分子化合物（例えば、高分子と金属の化合物、セルロース、ガラス、ポリマー、および、これらの組み合わせ）、金属（アルミニウム、銅、亜鉛、鉛、金、銀、プラチナ、および、マグネシウム、並びに、スチール、スズ、黄銅、および、マグネシウムとアルミニウム合金などの金属合金）、炭素繊維化合物、他の繊維系化合物、グラフェン、フィラー、および、その組み合わせが、含まれる。フィラーは、例えば（球形粒子、ビーズ、および、伸長粒子）、繊維、および、これらの組み合わせを含む種々の形態で良い。

【0038】

基材は、単一材料、あるいは、単一層で良く、または、同じ材料、あるいは異なる材料の複数層を含められる。層は、連続、または、不連続であり得る。

【0039】

基材は、例えば、電子装置の構成部品（電子装置のディスプレイ、例えば、ガラスパネル、接触感知式スクリーン、接触不感知式スクリーン、液晶ディスプレイ、および、ポリマーパネル等）と、カバーと、フレームと、筐体（例えば、電子装置の筐体）と、膜と、伝導層と、保護層と、インク層と、光バルブの構成部品（例えば、バルブ、ねじ込口金、および、LED筐体）とを含む種々の物品の構成要素で良い。

【0040】

物品は、例えば、電子装置（例えば、携帯型電子装置（例えば、電話（例えば、セルラー方式電話とセルラー方式スマートフォン）、カメラ、タブレット、電子リーダー、モニター（例えば、病院内で、医療従事者、スポーツ選手、および、個人によって使用されるモニター）、計算機、マウス、タッチパッド、および、ジョイスティック）、ウェアラブル電子装置（例えば、腕時計や眼鏡）、コンピュータ（例えば、デスクトップやラップトップコンピュータ）、コンピュータモニター、テレビ、メディアプレーヤー、電気機器（例えば、冷蔵庫、洗濯機、乾燥機、オーブン、および、電子レンジ）、電球（例えば、白熱灯、発光ダイオード、および、蛍光灯）、並びに、ディスプレイ、または、他の光学構成部品用の可視光透過、または、透明構成部品、ガラス筐体構造、保護用透明カバーを含む物品を含む種々の物品の何れかで良い。

【0041】

一実施形態において、物品100は、筐体112、フレーム102、硬化した湿気硬化型ポリウレタンホットメルト接着剤組成物108、接着剤組成物108を介してフレーム102に結合するディスプレイ104、および、筐体112とディスプレイ104との間に実装された電子構成部品120（例えば、電子回路、導電性要素、バッテリー、チップ、および、これらの組み合わせ）を含む電子装置である。フレーム102は、図1~3で

10

20

30

40

50

見られるように、ディスプレイ104の少なくとも一部を受容する構造110を含む。約30分にわたり、少なくとも60、少なくとも70、更には、少なくとも80の高温での物品を調整した後(即ち、高温調整)、ディスプレイ104をフレーム102から分離できる。約30分にわたり、少なくとも60、少なくとも70、更には、少なくとも80の高温での物品を調整した後(即ち、高温調整)、ディスプレイ104をフレーム102から分離できる。ディスプレイ104をフレーム102から分離すると、ディスプレイ104、または、フレーム102への接着破壊が起こる恐れがある。あるいは、ディスプレイ104をフレーム102から分離する際、接着剤組成物は、凝集破壊を示す場合がある。ディスプレイ104をフレーム102から分離して、高温調整後1分以内に、露出した接着剤組成物は、溶剤の使用、または、機械式剥離を行うことなく、剥がすことによって、ディスプレイ104、フレーム102、あるいは、双方から完全に取り除くことができる。ディスプレイ104の外表面122と対向するディスプレイ104の内表面124上に露出した接着剤残留物108を、図4、5で示している。

10

【0042】

幾つかの実施形態において、ディスプレイ104の外表面122は、接触感知式である。他の実施形態において、ディスプレイ104の外表面122は、接触不感知式である。

【0043】

ディスプレイは、例えば、発光ダイオード(LED)、有機LED(OLED)、光指向性膜、誘電膜、透明高分子(例えば、ポリカーボネートとポリエチレンテレフタレート)、プラズマセル、電子インク要素、エレクトロウエッチング画素、電気泳動画素、および、液晶ディスプレイ(LCD)構成部品から形成される画像画素を有するディスプレイ構造、接触感知機能(例えば、抵抗システム、容量層システム、表面弾性波システム、光学式接触システム、圧電タッチセンサシステム、および、他の力センサシステムに基づく接触感知機能)を有するタッチセンサー電極、インクコーティング(例えば、インク被覆高分子膜とインク被覆ガラス)、並びに、これらの組み合わせを含む複数の層、および、構成要素を、含められる。

20

【0044】

幾つかの実施形態において、ディスプレイは、ガラス層で覆われたLCD層を含み、検知線は、ガラス層に結合し、駆動線は、検知線へと結合する。他の実施形態において、電極層は、ガラス基材の表面に配置される。必要に応じて、ディスプレイは、保護カバー、および、反射防止コーティングを含む。

30

【0045】

更に、ディスプレイは、基材を製造可能とする材料に関して以前に述べた材料から形成可能であるか、または、この材料を含められ、透明、または、半透明構成部品を含むことが望ましい。フレームと筐体は、例えば、基材を製造可能とする材料に関して以前に述べた材料を含む種々の材料で良い。

【0046】

接着剤組成物

硬化した接着剤組成物は、少なくとも5500g/molから約20,000g/molまでの数平均分子量、および、40以上の融点を有する第1結晶性ポリエステルポリオール、および、ポリイソシアネートの反応生成物であるポリウレタンプレポリマーを含む湿気硬化型ポリウレタンホットメルト接着剤組成物から、誘導される。接着剤組成物は、25破断応力試験法に従って試験した際、少なくとも4MPa、少なくとも5MPa、更には、少なくとも7MPaの25破断応力を示す。

40

【0047】

硬化した接着剤組成物は、リワーク性を有する。硬化した接着剤組成物のリワーク性の有用な測度の1つは、硬化した接着剤組成物を介して統合して結合された2枚の基材を高温で互いに分離可能とする容易さの測度を、含む。望ましくは、硬化した接着剤組成物は、80破断応力試験法に従って試験した際、1.5MPa以下、更には、1MPa以下の破断応力を示す。

50

【0048】

硬化した接着剤組成物のリワーク性のもう1つの有用な測度は、高温完全除去率の測度、即ち、2枚の基材が高温で互いから分離された後、接着した状態にある基材（複数）から、硬化した接着剤組成物を除去可能とする容易さを、含む。約30分にわたり、少なくとも60、少なくとも70、更には、少なくとも80の高温での調整後、硬化した接着剤組成物は、1分以内、2分以内、更には、5分以内に、ポリカーボネート基材から完全に除去可能である。剥がすことで、基材から完全に除去できることが望ましい。約30分にわたり、少なくとも60、少なくとも70、更には、少なくとも80の高温での調整後、硬化した接着剤組成物は、5片未満、3片未満、更には、1片としてでも、ポリカーボネート基材から剥がすことが可能である。硬化した接着剤組成物の完全除去率を測定する有用な1手法は、本明細書で述べる剥離性試験法である。接着剤組成物は、少なくとも3、少なくとも4、更には、少なくとも5の剥離率を示すことが望ましい。

10

【0049】

更に、硬化した接着剤組成物は、良好な信頼性を示すことも望ましい。信頼性の測度の1つは、72時間にわたる85、および、相対湿度85%での調整後、強い結合を維持する硬化した接着剤組成物の性能である。硬化した接着剤組成物は、信頼性破断応力試験法に従って試験した際、少なくとも3MPa、少なくとも4MPa、更には、少なくとも5MPaの信頼性破断応力を示す（即ち、室温で測定した際、72時間にわたる85、および、相対湿度85%での調整後の破断応力）。72時間にわたる85、および、相対湿度が85%での調整後、硬化した接着剤組成物は、更に、強度保持率計算を用いて決定された25での初期破断応力に対して少なくとも50%、少なくとも60%、少なくとも70%、更には、少なくとも75%に相当する強度保持率を示すことが望ましい。

20

【0050】

湿気硬化型ポリウレタンホットメルト接着剤組成物は、粘度が、120において、約20,000センチポアズ(cPs)未満、約1000cPsから約10,000cPs、更には、約2000cPsから約6000cPsである。

【0051】

第1結晶性ポリエステルポリオール

第1結晶性ポリエステルポリオールは、融点が40以上、更には、40から約120であり、数平均分子量が、少なくとも5500g/mol、約6,000g/molから約20,000g/mol、約6,500g/molから約15,000g/mol、約7,000g/molから約12,000g/mol、約7,000g/molから約10,000g/mol未満、更には、約7,000g/molから9500g/mol以下である。第1結晶性ポリエステルポリオールは、ガラス転移点(Tg)が、0以下である。有用な第1結晶性ポリエステルポリオールは、環球法ISO 4625法に従って測定した軟化点が、120以下、110以下、100以下、更には、90以下の結晶性ポリエステルポリオールを、含む。

30

【0052】

適切な結晶性ポリエステルポリオールは、例えば、ジオール（例えば、少なくとも2個の炭素原子の炭素鎖を含む脂肪族ジオール、または、脂環式ジオール）から形成された結晶性ポリエステルポリオール、および、脂肪族二酸を含む。適切な脂肪族ジオールの例には、1,2-エタンジオール、1,4-ブタンジオール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、1,8-オクタンジオール、および、1,10-デカンジオールがある。適切な脂環式ジオールの例には、1,4-シクロヘキサンジオール、および、1,4-シクロヘキサジメタノールがある。適切な脂肪族二酸の例には、アジピン酸、1,12-ドデカン二酸、セバシン酸、テレフタル酸、コハク酸、グルタル酸、二量化脂肪酸、および、これらの組み合わせがある。

40

【0053】

他の適切な結晶性ポリエステルポリオールは、例えば、ジエチレングリコール、1,4-ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、1,6-ヘキサンジオール、および、これ

50

らの組み合わせを含むポリカプロラクトン、および、ジオールから形成される。

【0054】

適切な結晶性ポリエステルポリオールの具体的な例には、ポリ（ヘキサンジオールアジピン酸）ポリオール、ポリ（ブタンジオールアジピン酸）ポリオール、ポリ-イブシロン-カプロラクトンポリオール、ポリ（ヘキサンジオールドデカン二酸）ポリオール、および、これらの組み合わせが、ある。

【0055】

適切な市販の結晶性ポリエステルポリオールは、DYNACOLL 7361, 7371, 7380、および、7381ヘキサンジオールアジピン酸を含むEvonik Industries AG社（ドイツ）からのDYNACOLLシリーズという商品名、STEPANOL PC 105-10ヘキサンジオールアジピン酸を含むStepan Company社（イリノイ州、ノースフィールド）からのSTEPANOLシリーズという商品名、および、CAPA 2402、6100、6200、および、6400カプロラクトンポリオールを含むPerstorp Polyols Inc社（オハイオ州、トレド）からのCAPAシリーズという商品名で、販売されている。

【0056】

ポリウレタンプレポリマーは、ポリウレタンプレポリマー、第1結晶性ポリエステルポリオールの重量に基づいて、約1重量%から60重量%、1重量%から40重量%、2重量%から20重量%、更には、3重量%から10重量%まで誘導されることが、望ましい。

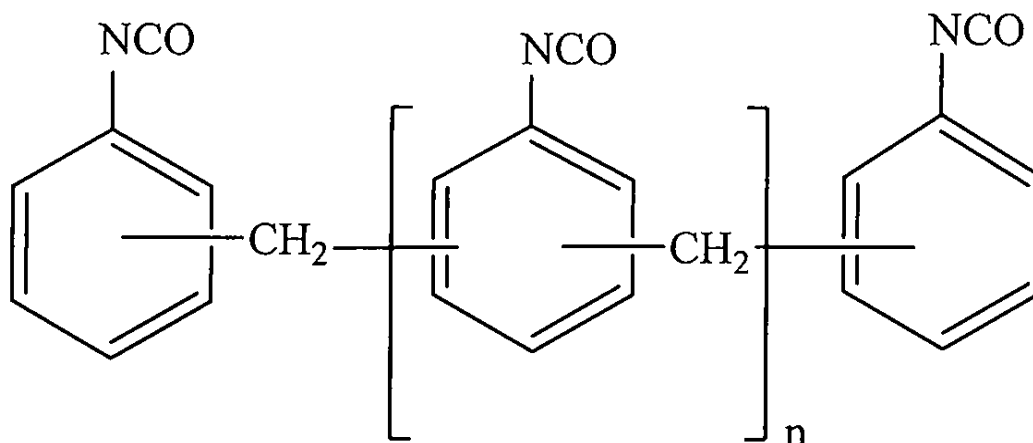
【0057】

ポリイソシアネート

ポリイソシアネートは、少なくとも2つのイソシアネート（-NCO）基を含む。有用なポリイソシアネートには、例えば、芳香族、脂肪族化合物、脂環式、アリールアルキル、および、アルキルアリール、ジ-、トリ-、および、テトラ-イソシアネート、並びに、その混合物が、含まれる。適切なポリイソシアネートは、例えば、モノマー、オリゴマー、および、その混合物を含む種々の形態で良い。有用な芳香族ポリイソシアネートは、例えば、異性体（例えば、ジフェニルメタン4,4'-ジイソシアネート、ジフェニルメタン-2,2'-ジイソシアネート、ジフェニルメタン-2,4'-ジイソシアネート、以下の式を有するオリゴマーメチレンイソシアネート、式中、nは、整数、および、その混合物）を含むジフェニルメタンジイソシアネート化合物（MDI）と、

【0058】

【化1】



カルボジイミド変性MDIと、異性体（例えば、1,5-ナフタレンジイソシアネート（NDI））を含むナフタレンジイソシアネートと、トリフェニルメタントリイソシアネー

ト（例えば、トリフェニルメタン - 4, 4', 4'' - トリイソシアネート）の異性体と、異性体を含むトルエンジイソシアネート化合物（TDI）と、1, 3 - キシレンジイソシアネート（XDI）と、テトラメチルキシレンジイソシアネート（TMXDI）（例えば、p - 1, 1, 4, 4 - テトラメチルキシレンジイソシアネート（p - TMXI）、および、m - 1, 1, 3, 3 - テトラメチルキシレンジイソシアネート（m - TMXDI））と、その混合物とを、含む。

【0059】

有用な脂肪族ポリイソシアネートは、例えば、ヘキサメチレンジイソシアネート（HDI）、イソホロンジイソシアネート（IPDI）、水素化ジフェニルメタンジイソシアネート、1, 6 - ジイソシアネート - 2, 4, 4 - トリメチルヘキサン、1, 4 - シクロヘキサンジイソシアネート（CHDI）、1, 4 - シクロヘキサンプス（メチレンジイソシアネート）（BDI）、1, 3 - ビス（イソシアナトメチル）シクロヘキサン（H₆XDI）、ジシクロヘキシルメタンジイソシアネート（H₁₂MDI）、および、その混合物を、含む。

【0060】

有用なポリイソシアネートは、例えば、Dow Chemical Co. 社（ミシガン州、ミッドランド）からのISONATE 125M純ジフェニルメタンジイソシアネート（MDI）と、Bayer Chemicals 社（ペンシルベニア州、ピッツバーグ）からのMONDUR Mと、Dow Chemical Company 社（ミシガン州、ミッドランド）からのISONATE 50 OP、および、ISONATE 125Mと、BASF 社（ドイツ）からのLUPRANATE Mとを含む種々の商品名で市販されている。

【0061】

任意の第2結晶性ポリエステルポリオール

必要に応じて、ポリウレタンプレポリマーは、融点が40 以上、かつ、第1結晶性ポリエステルポリオールとは異なる少なくとも1つの第2結晶性ポリエステルポリオールから誘導される。第2結晶性ポリエステルポリオールは、数平均分子量が約500 g/mol から約50,000 g/mol までである。有用な第2結晶性ポリエステルポリオールは、環球法ISO 4625法に従って測定した軟化点が、100 以下、95 以下、約90 以下、更には、約80 以下の結晶性ポリエステルポリオールを、含む。

【0062】

融点が40 以上の少なくとも2つの結晶性ポリエステルポリオールの反応生成物をポリウレタンプレポリマーが含む場合、例えば、組成的に類似しているが、分子重量が異なる2つの結晶性ポリエステルポリオール、組成的に異なるが、分子重量が類似の2つの結晶性ポリエステルポリオール、および、組成的に異なり、分子重量も異なる2つの結晶性ポリエステルポリオールを含む種々の混合が、適切である。

【0063】

適切な第2結晶性ポリエステルポリオールは、ジオールと脂肪族二酸、ポリカプロラクトンポリオール、および、その混合物から誘導された結晶性ポリエステルポリオールを、含む。

【0064】

ジオールと脂肪族二酸から誘導されたこれらの結晶性ポリエステルポリオールの場合、適切なジオールは、例えば、少なくとも2個の炭素原子からなる炭素鎖、および、脂環式ジオールを含む。適切な脂肪族ジオールは、例えば、1, 4 - ブタンジオール、1, 5 - ペンタンジオール、1, 6 - ヘキサジオール、1, 8 - オクタンジオール、および、1, 10 - デカンジオールを、含む。適切な脂環式ジオールには、例えば、1, 4 - シクロヘキサジオール、および、1, 4 - シクロヘキサジメタノールがある。適切な脂肪族二酸の例には、例えば、アジピン酸、1, 12 - ドデカン二酸、セバシン酸、テレフタル酸、コハク酸、グルタル酸、二量化脂肪酸、および、これらの組み合わせがある。適切な結晶性ポリエステルポリオールの具体的例には、ポリ（ヘキサジオールアジピン酸）ポ

10

20

30

40

50

リオール、ポリ（ブタンジオールアジピン酸）ポリオール、ポリ－イブシロン－カプロラクトンポリオール、ポリ（ヘキサジオールドデカン二酸）ポリオール、および、これらの組み合わせが、ある。ジオールと二酸から誘導された有用な第2結晶性ポリエステルポリオールは、望ましくは、 5500 g/mol 以下、約 500 g/mol から約 $5,000\text{ g/mol}$ 、約 $1,000\text{ g/mol}$ から約 4000 g/mol 、更には、約 2000 g/mol から約 $4,000\text{ g/mol}$ までである第2結晶性ポリエステルポリオールの数平均分子量を有する。

【0065】

融点が 40 以上で、第2結晶性ポリエステルポリオールがジオールと二酸から誘導される少なくとも2つの結晶性ポリエステルポリオールから、ポリウレタンプレポリマーが誘導される場合、第1結晶性ポリエステルポリオールの重量と第2結晶性ポリエステルポリオールの重量との有用な割合は、約 $10:90$ から約 $90:10$ 、約 $10:90$ から約 $50:50$ 、更には、約 $15:85$ から約 $50:50$ までである。

10

【0066】

適切な結晶性ポリカプロラクトンポリオールは、例えば、ジエチレングリコール、1,4-ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、1,6-ヘキサジオール、および、これらの組み合わせから、誘導される。第2結晶性ポリエステルポリオールに適した結晶性ポリカプロラクトンポリオールは、数平均分子量が、約 500 g/mol から約 $5,000\text{ g/mol}$ 、約 1000 g/mol から約 $20,000\text{ g/mol}$ 、約 $1,000\text{ g/mol}$ から約 $10,000\text{ g/mol}$ 、更には、約 2000 g/mol から約 $6,000\text{ g/mol}$ までである。

20

【0067】

融点が 40 以上で、第2結晶性ポリエステルポリオールがポリカプロラクトンポリオールである少なくとも2つの結晶性ポリエステルポリオールから、ポリウレタンプレポリマーが誘導される場合、第1結晶性ポリエステルポリオールの重量とポリカプロラクトンポリオールの重量の有用な割合は、約 $1:99$ から約 $40:60$ 、約 $2:98$ から約 $30:70$ 、更には、約 $3:97$ から約 $20:80$ までである。

【0068】

適切な第2結晶性ポリエステルポリオールは、例えば、DYNACOLL 7360、7363ヘキサジオールアジピン酸を含むEvonik Industries AG社（ドイツ）からのDYNACOLLシリーズという商品名、例えば、PIOTHANE 2000HAヘキサジオールアジピン酸、および、3000HAヘキサジオールアジピン酸を含むPanolam Industries Int'l, Inc社（メイン州、オーバーン）からのPIOTHANEシリーズという商品名、および、CAPA 2402、6100、6200、および、6400ポリカプロラクトンポリオールを含むPerstorp Polyols Inc社（オハイオ州、トレド）からのCAPAシリーズという商品名を含む様々な商品名で、市販されている。

30

【0069】

ポリウレタンプレポリマーは、ポリウレタンプレポリマー、第2結晶性ポリエステルの重量に基づいて、0重量%から約40重量%、約1重量%から約40重量%、約2重量%から約35重量%、更には、約10重量%から約30重量%まで誘導されることが、望ましい。

40

【0070】

任意の第3ポリエステルポリオール

適宜、ポリウレタンプレポリマーは、第3ポリエステルポリオールから誘導される。第3ポリエステルポリオールは、Tgが 100 未満、かつ、融点が 40 以下である。第3ポリエステルポリオールは、結晶、または、非晶質である。第3ポリエステルポリオールは、数平均分子量が、約 250 g/mol から約 6000 g/mol 、約 1000 g/mol から約 $3,000\text{ g/mol}$ 、更には、約 1000 g/mol から約 $2,000\text{ g/mol}$ までである。

50

【 0 0 7 1 】

第3ポリエステルポリオールは、ポリ酸、または、無水物、エステル、若しくは、そのハロゲン化物、および、化学量論超過ポリオールの反応生成物である。適切なポリ酸には、二酸（例えば、ジカルボン酸）、三酸（例えば、トリカルボン酸）、および、より高次の酸が含まれる。適切なポリ酸は、例えば、芳香族ジカルボン酸と、無水物とそのエステル（例えば、テレフタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸ジメチル、テレフタル酸ジエチル、フタル酸、無水フタル酸、メチル - ヘキサヒドロフタル酸、メチル - ヘキサヒドロフタル酸、メチルテトラヒドロフタル酸、メチルテトラヒドロ無水フタル酸無水物、ヘキサヒドロフタル酸、ヘキサヒドロフタル酸無水物、および、テトラヒドロフタル酸）と、脂肪族ジカルボン酸とその無水物（例えば、マレイン酸、無水マレイン酸、コハク酸、無水コハク酸、グルタル酸、グルタル酸無水物、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、クロレンド酸、1, 2, 4 - ブタン - トリカルボン酸、デカンジカルボン酸、オクタデカンジカルボン酸、二量体酸、二量体化脂肪酸、三量体脂肪酸、および、フマル酸）と、脂環族ジカルボン酸（例えば、1, 3 - シクロヘキサンジカルボン酸、および、1, 4 - シクロヘキサンジカルボン酸）と、イソフタル酸と、テレフタル酸と、これらの組み合わせを、含む。

10

【 0 0 7 2 】

第3ポリエステルポリオールを誘導可能な適切なポリオールの例には、脂肪族ポリオール、例えば、エチレングリコールと、プロパングリコール（例えば、1, 2 - プロパングリコール、および、1, 3 - プロパングリコール）と、ブタングリコール（例えば、1, 3 - ブタングリコール、1, 4 - ブタングリコール、および、1, 2 - ブタングリコール）と、1, 3 - ブタングリコールと、1, 4 - ブタングリコールと、1, 4 - ブチングリコールと、ペンタングリコール（例えば、1, 5 - ペンタングリコール）と、ペンテングリコールと、ペンチネングリコール（pentynediols）と、1, 6 - ヘキサングリコールと、1, 8 - オクタングリコールと、1, 10 - デカンングリコールと、ネオペンチルグリコールと、ジエチレングリコールと、トリエチレングリコールと、テトラエチレングリコールと、ポリエチレングリコールと、プロピレングリコールと、ポリプロピレングリコール（例えば、ジプロピレングリコール、および、トリプロピレングリコール）と、1, 4 - シクロヘキサンジメタノールと、1, 4 - シクロヘキサングリコールと、2量体ジオールと、ビスフェノールAと、ビスフェノールFと、水素化ビスフェノールAと、水素化ビスフェノールFと、グリセロールと、テトラメチレングリコールと、ポリテトラメチレングリコールと、3 - メチル - 1, 5 - ペンタングリコールと、1, 9 - ノナングリコールと、2 - メチル - 1, 8 - オクタングリコールと、トリメチロールプロパンと、ペンタエリスリトールと、ソルビトールと、グルコースと、これらの組み合わせが、含まれる。

20

30

【 0 0 7 3 】

有用な第3ポリエステルポリオールの具体的な例は、ポリグリコールアジピン酸、ポリエチレンテレフタレートポリオール、ポリカプロラクトンポリオール、および、ポリカプロラクトントリオールを、含む。

【 0 0 7 4 】

有用な第3ポリエステルポリオールは、例えば、Bayer Corp社（ペンシルベニア州、ピッツバーグ）からのDESMOPHEN S 107 - 55、Evonik Industries AG社（ドイツ）からのDYNACOLL 7250、Stepanol Company社（イリノイ州、ノースフィールド）からのSTEPANPOL PN - 110ネオペンチルグリコールフタル酸、および、Panolam Industries Int'l, Inc社（メイン州、オーバーン）からのPIOTHANE 2000NAネオペンチルグリコールアジピン酸を含む種々の商品名で市販されている。

40

【 0 0 7 5 】

ポリウレタンプレポリマーは、ポリウレタンプレポリマー、第3ポリエステルポリオールの重量に基づいて、0重量%から約60重量%、約10重量%から約60重量%、更

50

には、約 20 重量% から 50 重量% まで誘導されることが、望ましい。

【0076】

任意のポリエーテルポリオール

更に、ポリウレタンプレポリマーは、ポリエーテルポリオールから誘導される。ポリエーテルポリオールは、数平均分子量が、約 400 g/mol から約 8000 g/mol , 約 500 g/mol から約 4000 g/mol 、更には、約 1000 g/mol から約 2000 g/mol までである。ポリエーテルポリオールは、酸化物モノマー（例えば、エチレンオキシド、酸化プロピレン、1, 2 - ブチレン酸化物、1, 4 - ブチレン酸化物、テトラヒドロフラン、および、これらの組み合わせ）、並びに、ポリオール開始剤（例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、ブタンジオール、ヘキサジオール、グリセロール、トリメチロールエタン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトリール、および、これらの組み合わせ）から誘導される。適切なポリエーテルポリオールは、例えば、酸化プロピレン、エチレンオキシド、および、ブチレン酸化物のホモポリマーと、酸化プロピレン、および、エチレンオキシドの共重合体と、酸化プロピレン、および、ブチレン酸化物の共重合体と、ブチレン酸化物、および、エチレンオキシドの共重合体と、これらの混合物を、含む。適切なポリエーテルポリオールの具体例には、例えば、ポリエチレングリコール、ポリテトラメチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリブタジエングリコール、および、これらの組み合わせが、ある。ポリエーテルポリオールは、不規則構成やブロック構成等を含む多様な構成を取ることができる。

【0077】

適切な市販のポリエーテルポリオールは、例えば、TERATHANE 2000 ポリエーテルグリコール (Invista North America S.A.R.L. Corporation Luxembourg 社、カンザス州、ウィチタ)、ARCOL PPG - 2000、および、PPG - 1000 ポリプロピレングリコール (Bayer Material Science LLC 社、ペンシルベニア州、ピッツバーグ)、および、Monument Chemical Kentucky LLC 社 (ケンタッキー州、ブランデンバーグ) からの Poly G ポリプロピレングリコールを含む種々の商品名で入手可能である。

【0078】

ポリウレタンプレポリマーは、ポリウレタンプレポリマー、ポリエーテルポリオールの重量に基づいて、約 0 重量% から約 60 重量%、約 10 重量% から約 60 重量%、約 10 重量% から約 50 重量%、更には、約 20 重量% から約 40 重量% まで誘導されることが、望ましい。

【0079】

触媒

必要に応じて、触媒をポリウレタンプレポリマーの重合で使用する。例えば、スズ（例えば、ジブチル錫ジラウレートやジブチルスズアセテート）、ビスマス、亜鉛、および、カリウムを原料とする触媒を含む様々な金属触媒が、適している。ポリウレタンプレポリマーは、ポリウレタンプレポリマー、触媒の重量に基づいて、約 0.01 重量% から約 2 重量% まで調製可能である。

【0080】

ポリウレタンプレポリマーの調製

40 以上から約 200 までの高温で、ポリオールとポリイソシアネートとを反応させることで、ポリウレタンプレポリマーを調製できる。ポリオールを、最初に、反応容器に入れたら、反応温度まで加熱し、真空内で乾燥させて、ポリオールが吸収する環境湿度を除去可能である。次に、ポリイソシアネートを反応容器に加える。ポリオールとポリイソシアネートとの反応を、NCO : OH 比が、約 1.3 : 1 から約 6.7 : 1、更には、約 1.5 : 1 から約 2.5 : 1 までにおいて実施して、ポリウレタンプレポリマーの全重量に基づいて、約 1 重量% から約 10 重量% まで、更には、約 2 重量% から約 6 重量% までの最終接着剤としてイソシアネート内容物を得る。

【0081】

ポリウレタン高分子を、適宜、追加添加物で調製してから、適切な防湿容器内でパッケージ化する。

【0082】

触媒

必要に応じて、湿気硬化型ポリウレタンホットメルト接着剤組成物は、湿気硬化を促進する触媒を含む。有用な触媒には、エーテル、および、モルホリン官能基を含む触媒が含まれ、この例には、2, 2 - ジモルホリノエチルエーテル、ジ(2, 6 - ジメチルモルホリノエチル)エーテル、および、4, 4' - (オキシジ - 2, 1 - エタンジイル)ビス - モルホリンがある。適切な市販の触媒は、例えば、J E F F C A T D M D E E 4, 4' - (オキシジ - 2, 1 - エタンジイル)ビス - モルホリンを含み、これは、H u n t s m a n C o r p 社(テキサス州、ヒューストン)から入手可能である。

10

【0083】

触媒が湿気硬化型組成物に存在する場合、湿気硬化型ホットメルト接着剤組成物の全重量に基づいて、約0.01重量%から約2重量%までの量の触媒として存在することが望ましい。

【0084】

追加の添加物

湿気硬化型ホットメルト接着剤組成物は、適宜、例えば、熱可塑性高分子、粘着付与剤、可塑剤、ワックス、安定剤、抗酸化物質、充填剤(タルク、粘土、シリカと処理済みシリカ、カーボンブラック、および、マイカ)、紫外線(UV)捕捉剤と吸収材、染料、蛍光剤、臭気マスク、接着促進剤(即ち、シラン系接着促進剤)、界面活性剤、消泡剤、並びに、これらの組み合わせを含む様々な他の添加物を、含む。

20

【0085】

有用な熱可塑性高分子には、例えば、エチレン酢酸ビニル、エチレン酢酸ビニルとビニルアルコールとの共重合体、エチレン酪酸ビニル、エチレン・アクリル酸、エチレンメタクリル酸、エチレンアクリルアミド共重合体、エチレンメタクリルアミド、アクリル酸共重合体(例えば、メチルアクリレート、エチルアクリレート、メタクリル酸メチル、アクリル酸2 - エチルヘキシル、メタクリル酸2 - エチルヘキシル、メトキシエチルメタクリル酸、メトキシエチルアクリル酸、エチレンエチルアクリレート、エチレンnブチルアクリル酸、および、エチレンヒドロキシエチルアクリル酸)、エチレンnブチルアクリレート - 酸化炭素ターポリマー、ポリオレフィン(例えば、ポリプロピレンとポリエチレン)、熱可塑性ポリウレタン、ブチレン/ポリ(アルキレンエーテル)フタル酸、熱可塑性ポリエステル、および、これらの組み合わせが、含まれる。

30

【0086】

有用な粘着付与剤は、例えば、炭化水素樹脂、ロジンエステル(例えば、グリセロールロジンエステル、ペンタエリトリールロジンエステル、および、その水素化物質)、例えば、芳香族変性炭化水素樹脂、アルファメチルスチレン樹脂、スチレン、ポリスチレン、クマロン、インデン、および、ビニルトルエンを含む芳香性樹脂、スチレン化テルペン樹脂、ポリフェノール、ポリテルペン、並びに、これらの組み合わせを、含む。

40

【0087】

有用な可塑剤は、例えば、フタル酸ジオクチルエステルを含む液体芳香族エステル可塑剤、フタル酸ジシクロヘキシルとシクロヘキサジメタノールジベンゾエートとを含む固体可塑剤、並びに、これらの組み合わせを含む。

【0088】

有用なワックスには、例えば、ヒドロキシ変性ワックス、一酸化炭素変性ワックス、ヒドロキシステアリン酸アミドワックス、脂肪アミドワックス、例えば、高密度低分子重量ポリエチレンワックス、パラフィンワックス、および、微小結晶ワックスを含む炭化水素ワックスが、含まれる。

【0089】

50

有用な市販の抗酸化物質の例には、C i b a - G e i g y 社（ニューヨーク州、ホーソン）から入手可能な I R G A N O X 565、1010、1076 ヒンダードフェノール性酸化防止剤、および、G r e a t L a k e s C h e m i c a l s 社（インディアナ州、ウェストラファイエット）からの A N O X 20 ヒンダードフェノール性酸化防止剤が、ある。これらの抗酸化物質は、フリーラジカルスカベンジャーとして働き、単独で使用したり、あるいは、例えば、亜リン酸酸化防止剤（例えば、C i b a - G e i g y 社から入手可能な I R G A F O S 168）を含む他の酸化防止剤と併用しても良い。他の抗酸化物質には、C y t e c I n d u s t r i e s 社（コネチカット州、スタンフォード）から入手可能な C Y A N O X L T D P チオエーテル抗酸化剤、および、A l b e m a r l e 社（ルイジアナ州、バトンルーージュ）から入手可能な E T H A N O X 330 ヒンダードフェノール性酸化防止剤がある。存在する場合、湿気硬化型ポリウレタンホットメルト接着剤組成物は、接着剤組成物の全重量に基づいて、約2重量%以下の抗酸化物質を含むことが望ましい。

10

【0090】

有用な市販の充填剤の例には、L u z e n a c A m e r i c a , I n c 社（コロラド州、エングルウッド）からの M I S T R O N V A P O R タルクがある。存在する場合、湿気硬化型ポリウレタンホットメルト接着剤組成物は、接着剤組成物の全重量に基づいて、約5重量%未満、更には、約2重量%未満のこうした含有物を含むことが、望ましい。

【0091】

使用

20

湿気硬化型接着剤組成物は、例えば、自動微細線分注、スロットダイコーティング、ロールコーティング、グラビアコーティング、転写式塗布、パターンコーティング、スクリーン印刷、スプレーコーティング、フィラメントコーティング、押し出し式、エアナイフ、トレーリングブレード、はけ塗り、浸し塗り、ドクターブレード、オフセットグラビアコーティング、輪転グラビアコーティング、および、これらの組み合わせを含む任意の適切な塗布法を使用して、塗布できる。湿気硬化型接着剤組成物は、連続、あるいは、不連続コーティングにより、単層、あるいは、複数層、および、これらの組み合わせとして、塗布可能である。

【0092】

湿気硬化型ポリウレタン接着剤組成物は、例えば、約40 から約200 、約60 から約175 、更には、約90 から約120 までを含む任意の適切な温度で塗布できる。

30

【0093】

必要に応じて、接着を強化するために、例えば、コロナ処理、化学処理、火炎処理、および、これらの組み合わせを含む基材表面への接着を強化するための何らかの適切な方法を使って、湿気硬化型接着剤組成物を塗布する基材の表面を、表面処理する。

【0094】

湿気硬化型接着剤組成物は、種々の手段による塗布後、硬化できる。硬化反応は、利用可能な活性水素原子を含む化合物とポリウレタンプレポリマーのNCO基との間で発生する。水、硫化水素、ポリオール、アンモニアなどの活性化化合物を含め、フリー活性水素有する様々な反応性化合物は、当分野で知られている。これらの硬化反応は、周囲の湿気を活用して発生可能であるか、または、結合線の組成物に活性組成物を添加できる。

40

【0095】

ここで、本発明を以下の例によって記載する。別途指定されない限り、例で示す全ての部分、比率、割合、および、量は、重量である。

【実施例】

【0096】

試験手順

例で使用する試験手順は、以下を含む。別途指示がない限り、全ての比率と割合は、重量である。別途指定されない限り、この手順は、室温（つまり、約20 から約25 ま

50

での周囲温度)で実施する。

【0097】

粘性試験法

ブルックフィールドサーモセル粘度計、および、軸番号27を使用して、粘度を120で測定する。

【0098】

融解転移(T_m)試験法

以下のプロセスに従って、融解転移の存在を、示差走査熱量計により決定する。試料を25で平衡にして、速度200/分で120まで加熱し、10分間、120に保ち、速度5/分で120から-40まで冷却し、10分間、-40に維持してから、5/分で、-40から120まで加熱する。第2加熱ステップ、つまり、-40から120までの加熱中の吸熱ピークの存在は、融解転移の存在を表す。

【0099】

25 破断応力試験法

試料の調製

25での接着剤組成物の破断応力を測定するために、最低限の接着剤の絞り出しで接着面積2.5センチメートル(cm)×1.3cm(1インチ(in)×1/2in)を生み出すのに十分な量で、接着剤組成物を第1ポリカーボネート試験試片(寸法が10cm×2.5cm×0.318cm(4in×1in×1/8in))の1表面に塗布することで、試料を調製した。次に、この接着剤組成物を第2ポリカーボネート試験試片(寸法が10cm×2.5cm×0.318cm(4in×1in×1/8in))に接触させて、10秒間、7キログラムの重量を構造全体に加えた。そして、重量を外し、25と50%の相対湿度で温度と湿度とを制御した室内に、生成された試料を7日間入れて、接着剤組成物を硬化させた。

【0100】

試料の試験

「引張荷重によるせん断中の接着剤で結合した硬質プラスチックラップ-せん断継手の強度を測定するための標準法(Standard Test Method for Determining Strength of Adhesively Bonded Rigid Plastic Lap-Shear Joints in Shear by Tension Loading)」と題されたASTM D3163に従い、5cm/分(2in/分)のクロスヘッド速度におけるINSTRON機械試験装置を使用して、25での試料の破断応力を測定した。5個の試料を試験して、単位MPaの平均値を報告した。

【0101】

80 破断応力試験法

試料の調製

80での接着剤組成物の破断応力を決定するために、25破断応力試験法で述べたとおりに、試料を調製した。次に、INSTRON機械試験装置の試験グリップを覆う80での温度管理室内に、試料を入れた。30分間、試料を80で加熱した。

【0102】

試料の試験

試料を80の室内に入れた状態の間、ASTM D3163に従って、試料の破断応力を測定した。5個の試料を試験して、単位MPaの平均値を報告した。

【0103】

接着剤剥離性試験法

同試験は、80破断応力試験法と共に実施した。80破断応力試験法に従って試験された試料について、試料の破断応力を測定した直後、試料を室から取り除いた。室から試料を除いた後の1分以内に、接着した基材から、基材上に存在する残りの接着剤組成を、手で全て剥がした。そして、以下で記載の接着剤剥離性評価尺度に従って、接着剤剥離

性を等級付けした。等級は 1 ～ 5 の範囲であり、5 が基材表面から剥がしやすく、1 が基材表面から最も剥がしにくい。5 個の試料を試験して、等級番号に従う剥離度として報告した。

【 0 1 0 4 】

【表 1】

接着剤剥離性評価尺度

等級	カテゴリー	説明
5	優れた剥離性	接着剤残留物を全て、基材表面から簡単に剥がすことができ、接着剤残留物が、1つの塊片として完全に取れる。
4	比較的容易な剥離性	接着剤残留物を全て、基材表面から剥がすことができ、接着剤残留物が、5個以下の塊片として取れる。
3	比較的困難な剥離性	接着剤残留物を全て、基材表面から剥がすことができるが、接着剤残留物が、5個よりも多い塊片として取れる。
2	困難な剥離性	接着剤残留物を、基材表面から100%除去できないが、50%以上の接着剤は、基材表面から取ることができる。
1	極めて困難な剥離性	基材表面から取り除ける接着剤残留物は、50%未満である。

10

【 0 1 0 5 】

信頼性試験法

20

2 5 破断応力試験法に従って、試料を調製、硬化した。そして、8 5 と 8 5 %の相対湿度で温度と湿度を制御した室内で7 2 時間にわたり、試料を調整し、その後、試料を室から外し、2 5 、および、5 0 %の相対湿度において、制御された環境内で1日、平衡化させた。そして、2 5 破断応力試験法の試料試験法に従って、試料を試験した。5 個の試料を試験して、単位 M P a の信頼性破断点応力として平均値を記録した。

【 0 1 0 6 】

強度保持率計算

2 5 破断応力を測定し (S_i)、信頼性破断応力を測定し (S_2)、生成値を 2 5 破断応力で除算し (S_i)、更に、1 0 0 で乗算することで、強度保持率を決定し、この強度保持率は、以下の式で表される。

30

%強度保持率 = $[S_2 / S_i] * 100$ 。

【 0 1 0 7 】

同計算値は、5 個の試料について決定し、平均値を報告する。

【 0 1 0 8 】

例 1 ～ 1 0、および、比較対照 1 ～ 3

例 1 ～ 1 0、および、比較対照 1 ～ 3 を、以下のとおり調製した。表 1 で記載される種類と量のポリエーテルポリオール、および、ポリエステルポリオールを、MODAFLOW フロー剤 (Monsanto Chemical Company Corporation 社、ミズーリ州、セントルイス) と共に、ガラス反応器に装填した。この混合物を、1 2 0 の真空中で9 0 分間、乾燥させた。そして、激しい攪拌により、ジフェニルメタン 4 , 4 ' - ジイソシアネートを、窒素雰囲気生成装置中の混合物にゆっくりと添加した。イソシアネート添加後、9 0 分間、または、目標とする 3 % のフリーイソシアネートを実現するまで、1 2 0 の真空で反応が進行できるようにした。窒素雰囲気生成装置内で、触媒を混合物に添加した。真空中の 1 0 分間の混合後、反応容器から、剤形を排出して、窒素でパージしながらブリキ缶に格納した。

40

【 0 1 0 9 】

例 1 ～ 1 0、および、比較対照 1 ～ 3 に従って調製した構造物を、2 5 破断応力試験法、8 0 破断応力試験法、接着剤剥離試験法、および、信頼性試験法に従って、試験した。更に、例 1 ～ 1 0、および、比較対照 1 ～ 3 について、強度保持率を求めた。結果を表 2 として報告する。

50

【 0 1 1 0 】
【 表 2 】

(21)

JP 6665161 B2 2020.3.13

表 1

	比較対照 1	比較対照 2	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	比較対照 3	実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 10
1000MW ポリプロピレングリコール	22.6	22.7	23.2	23.25	23.5	23.14	23.06	22.99	22.92	27.6	27.7	27.75	27.9
2000MW ネオペンチルグリコール アジピン酸	22.6	22.7	23.2	23.25	23.5	23.14	23.06	22.99	22.92	27.6	27.7	27.75	27.9
2000MW ヘキサジオール アジピン酸	33.14		0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
3000MW ヘキサジオール アジピン酸	0	34.2	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
3500MW ヘキサジオール アジピン酸	0	0	0	0	0	0	0	0	0	6	12	18.1	0
5500MW ヘキサジオール アジピン酸	0	0	34.26	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
9000MW ヘキサジオール アジピン酸	0	0	0	34.82	0	25.99	17.28	8.61	0	17.97	12	6.04	24
11000MW ヘキサジオール アジピン酸	0	0	0	0	34.34	0	0	0	0	0	0	0	0
4000MW ポリカプロラクトン	0	0	0	0	0	8.66	17.28	25.83	34.34	0	0	0	0
4,4' MDI ¹	21.4	20.14	19.08	18.42	18.4	18.81	19.06	19.32	19.56	20.57	20.34	20.1	19.94
DMDEE ²	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25
MODAFLOW	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01

1 = 4, 4' MDI = ジフェニルメタン 4, 4'-ジイソシアネート

2 = DMDEE = 4, 4' - (オキシジ-2, 1-エタンジイル) ビス-モルホリン

【 0 1 1 1 】

10

20

30

40

【表 3】

表 2

特性	比較対照 1	比較対照 2	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	比較対照 3	実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 10
25℃破断応力(MPa)	4.7	5.3	4.3	5.2	5.1	9.4	6.1	10.4	5.1	5.1	6.1	4.9	4.9
80℃破断応力(MPa)	1.1	1.3	1	0.5	0.6	0.7	0.8	0.9	1.3	0.8	0.9	0.9	0.7
25℃剥離性	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
80℃剥離性	1	2.8	3.6	5	3.6	5	5	4.8	2.6	4.6	4.8	4.4	5
信頼性破断応力(MPa)	6.1	7.3	5.5	0.7	0.7	2.7	2.7	3.6	7.4	1.6	2.5	3.3	1.1
強度保持率(%)	129.8	137.7	127.9	13.5	13.7	28.7	44.3	34.6	145.1	31.4	41.0	67.3	22.4

【0 1 1 2】

例 1 1 ~ 1 3

例 1 1 ~ 1 3 を、以下のとおり調製した。表 2 で記載される種類と量のポリエステルポリオールを、MODA FLOW フロー剤と共に、ガラス反応器に装填した。この混合物を、1 2 0 の真空中で 9 0 分間、乾燥させた。そして、激しい攪拌により、ジフェニルメ

10

20

30

40

50

タン 4 , 4 ' - ジイソシアネートを、窒素雰囲気生成装置中の混合物にゆっくりと添加した。イソシアネート添加後、90 分間、または、目標とする 3 % のフリーイソシアネートを実現するまで、120 の真空で反応が進行できるようにした。窒素雰囲気生成装置内で、触媒を混合物に添加した。真空中の 10 分間の混合後、反応容器から、剤形を排出して、窒素でパージしながらブリキ缶に格納した。

【 0 1 1 3 】

例 1 1 ~ 1 3 に従って調製した構造物を、25 破断応力試験法、80 破断応力試験法、接着剤剥離試験法、および、信頼性試験法に従って、試験した。更に、例 1 1 ~ 1 3 について、強度保持率を求めた。結果を表 3 として報告する。

【 0 1 1 4 】

【表 4】

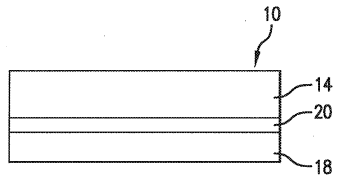
表 3

	実施例11	実施例12	実施例13
2000MWネオペンチルグリコールアジピン酸	19. 3	19. 53	19. 63
3500MWヘキサンジオールアジピン酸	28. 38	0	0
9000MWヘキサンジオールアジピン酸	0	28. 73	43
4000MWポリカプロラクトン	13. 86	14. 05	0
1020MWネオペンチルグリコールフタル酸	19. 3	19. 53	19. 63
4, 4' MDI	18. 9	17. 9	17. 48
DMDEE	0. 25	0. 25	0. 25
MODAFLOW	0. 01	0. 01	0. 01
特性			
25°C破断応力(MPa)	4. 4	3. 5	3. 1
80°C破断応力(MPa)	1. 3	0. 5	0. 4
25°C剥離性	0	0	0
80°C剥離性	4. 4	5	5

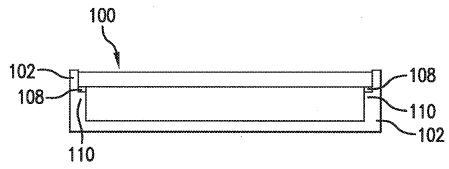
【 0 1 1 5 】

他の実施形態は、特許請求の範囲内にある。本明細書で使用される全ての文書を、参照により本明細書で援用する。

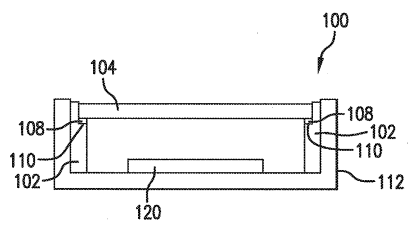
【図 1】



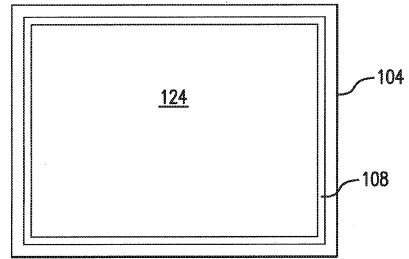
【図 2】



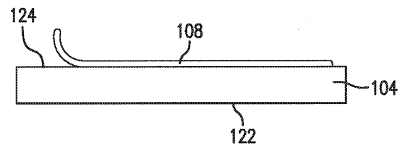
【図 3】



【図 4】



【図 5】



フロントページの続き

- (72)発明者 スディプト・ダス
アメリカ合衆国・ミネソタ・５５１０１・セント・ポール・ワクータ・ストリート・４０６
- (72)発明者 ヘンリー・ビー・マイヤー
アメリカ合衆国・ミネソタ・５５０８２・スティルウォーター・プリムローズ・アヴェニュー・ノース・９８３３
- (72)発明者 アンソニー・ジェイ・オストルンド
アメリカ合衆国・ミネソタ・５５０３８・センターヴィル・コットンウッド・コート・７０９７

審査官 梅本 章子

- (56)参考文献 中国特許出願公開第１０３２８９６３１（ＣＮ，Ａ）
特開平０３－１５２１１２（ＪＰ，Ａ）
特表２００８－５４５５５５（ＪＰ，Ａ）
米国特許第０６８４４０７３（ＵＳ，Ｂ１）
特開２００７－１６１９９１（ＪＰ，Ａ）
特開２００９－２４２５５７（ＪＰ，Ａ）
特開２０１２－２１１２８５（ＪＰ，Ａ）
国際公開第２００８／０６５９２１（ＷＯ，Ａ１）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)

G 0 6 F 3 / 0 4 1
B 3 2 B 1 / 0 0 - 4 3 / 0 0
C 0 8 G 1 8 / 0 0 - 1 8 / 8 7、7 1 / 0 0 - 7 1 / 0 4
C 0 9 J 1 / 0 0 - 5 / 1 0、9 / 0 0 - 2 0 1 / 1 0