

(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2011-504427

(P2011-504427A)

(43) 公表日 平成23年2月10日(2011.2.10)

(51) Int.Cl.	F 1	テーマコード (参考)
B 42 D 15/10 (2006.01)	B 42 D 15/10	2 C 005
C 09 J 201/00 (2006.01)	C 09 J 201/00	4 J 040
C 09 J 175/04 (2006.01)	C 09 J 175/04	
A 01 K 11/00 (2006.01)	A 01 K 11/00	Z

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 28 頁)

(21) 出願番号	特願2010-533458 (P2010-533458)	(71) 出願人	504037346 バイエル・マテリアルサイエンス・アクチ エンゲゼルシャフト Bayer MaterialScien ce AG ドイツ連邦共和国デー-51368レーフ エルクーゼン
(86) (22) 出願日	平成20年10月31日 (2008.10.31)	(74) 代理人	100081422 弁理士 田中 光雄
(85) 翻訳文提出日	平成22年7月12日 (2010.7.12)	(74) 代理人	100101454 弁理士 山田 車二
(86) 國際出願番号	PCT/EP2008/009194	(74) 代理人	100088801 弁理士 山本 宗雄
(87) 國際公開番号	W02009/062602	(74) 代理人	100126789 弁理士 後藤 裕子
(87) 國際公開日	平成21年5月22日 (2009.5.22)		
(31) 優先権主張番号	102007054046.0		
(32) 優先日	平成19年11月13日 (2007.11.13)		
(33) 優先権主張国	ドイツ(DE)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 確認証用の潜在反応性接着剤

## (57) 【要約】

本発明は、A層が熱可塑性材であり、B層が保存安定性を有する潜在反応性接着剤から製造される層であり、C層が熱可塑性材である、A層、B層およびC層を含む確認証に関する。

**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

A層が熱可塑性材であり、B層が安定な潜在反応性接着剤から製造される層であり、C層が熱可塑性材である、A層、B層およびC層を含む確認証。

**【請求項 2】**

前記接着剤が水性分散体を含み、該水性分散体が、融点または軟化点が30℃を超えるジイソシアネートまたはポリイソシアネートと、イソシアネート反応性ポリマーとを含むことを特徴とする、請求項1に記載の確認証。

**【請求項 3】**

前記接着剤が、少なくとも2000mPa sの粘度を有する水性分散体を含むことを特徴とする、請求項2に記載の確認証。 10

**【請求項 4】**

前記イソシアネート反応性ポリマーがポリウレタンであり、該ポリウレタンは、TMAを用いて測定した場合に+110℃未満の温度、好ましくは+90℃未満の温度で部分的にまたは完全に非晶質となるポリマー鎖を結晶化することによって合成されることを特徴とする、請求項2に記載の確認証。

**【請求項 5】**

前記ジイソシアネートまたはポリイソシアネートが、TDIまたはIPDIの二量体、三量体および尿素誘導体からなる群から選択されることを特徴とする、請求項1に記載の確認証。 20

**【請求項 6】**

請求項1に記載の分散体を基体に塗布して結合させ、該分散体を乾燥し、乾燥した接着剤の層をT>65℃、好ましくは80℃<T<110℃の温度で手短に、好ましくは5分以内で加熱することによって非晶質とし、該接着剤の層を非晶質状態で基体に結合させて、ボンド結合を形成することを特徴とする、請求項1に記載の確認証。

**【請求項 7】**

前記A層およびC層の熱可塑性材が、それぞれ独立して、ポリカーボネート、ポリメチルメタクリレート(PMMA)、スチレンのポリマーまたはコポリマー(例えば、好ましくは、透明ポリスチレン(PS)またはポリスチレンアクリロニトリル(SAN)など)、透明熱可塑性ポリウレタン、ポリオレフィン(例えば、好ましくは、透明ポリプロピレンタイプのものまたは環状オレフィン系のポリオレフィン(例えば、Topas Advanced Polymers製のTOPAS(登録商標)など)、テレフタル酸の重縮合物または共重縮合物(例えば、好ましくは、ポリエチレンテレフタレート(PET)もしくはコポリエチレンテレフタレート(CoPET)またはグリコール変性PET(PETG)など)、ポリエチレングリコールナフタレート(PEN)、透明ポリスルホン(PSU)からなる群から選択されることを特徴とする、請求項1に記載の確認証。 30

**【請求項 8】**

前記A層およびC層の熱可塑性材が、それぞれ独立して、ポリカーボネート、テレフタル酸の重縮合物または共重縮合物(例えば、好ましくは、ポリエチレンテレフタレート(PET)もしくはコポリエチレンテレフタレート(CoPET)またはグリコール変性PET(PETG)など)からなる群から選択されることを特徴とする、請求項1に記載の確認証。 40

**【請求項 9】**

以下の工程(i)～(iv)を包含する、請求項1に記載の確認証の製造方法：

(i) 水に懸濁した表面が不活性化されたポリイソシアネートと、イソシアネート反応性ポリマーを含む実質的に水性の分散体または溶液とを混合する工程；

(ii) 工程(i)で調製した混合物をC層に塗布する工程；

(iii) ジイソシアネートまたはポリイソシアネートの反応温度未満の温度で、工程(i)で調製した混合物から水を除去して、B層を形成する工程；

(iv) 工程(iii)で調製したB層に、C層を適用する工程。 50

**【請求項 1 0】**

前記イソシアネートの反応温度未満の温度で水を除去して、このように調製した実質的に乾燥した固体の層が、前記ポリイソシアネートとポリマーとの反応温度未満の温度において、潜在反応性となることを特徴とする、請求項 9 に記載の製造方法。

**【請求項 1 1】**

安定な潜在反応性接着剤の確認証の製造における使用。

**【請求項 1 2】**

電子部品を含むことを特徴とする、請求項 1 に記載の確認証。

**【請求項 1 3】**

前記電子部品が積層回路であることを特徴とする、請求項 1 2 に記載の確認証。

10

**【発明の詳細な説明】****【技術分野】****【0 0 0 1】**

本発明は確認証 (ID 証 : identification document) に関し、本発明の確認証は、A 層、B 層および C 層を有し、A 層が、熱可塑性材 (thermoplastic) であり、B 層が、安定な潜在反応性接着剤 (latent-reactive adhesive) から製造される層であり、そして C 層が、熱可塑性材 (thermoplastic) である。

**【背景技術】****【0 0 0 2】**

ポリカーボネート (PC) ベースの確認証 (ID 証) の製造では、複雑な部品 (電子部品) ならびに回折性の構造 (特に、ホログラム) が積層工程の間に破壊されるといった問題が生じるので、そうならないように、これらは、自由に曲がるように、パッケージされている。この問題は、これまで、その部品に隣接して近接する間隙を充填することによって、あるいは、熱弾性 / 熱可塑性の緩衝層 (例えば、熱可塑性ポリウレタン (TPU)) を用いることによって、回避されていた。このような「軟らかい (ソフト)」挿入物は、積層工程での機械的な応力を低減することを目的とする。これらの材料は化学的な性質が異なるので、これらの材料は、本質的に別体として存在するので、高い保証性 (セキュリティー) のドキュメント (high-security document) において、弱点となる。

20

**【0 0 0 3】**

ポリカーボネート (PC) 系ドキュメントへの電子部品、特に、積層回路 (IC またはチップ) の取り付けにおいて、薄型半導体構造を使用すると、その積層工程において、これらの部品の早期破壊の問題が生じる。様々なフィルム層を積層する PC スマートカードの周知の製造では、PC フィルムをチップ上にそのまま配置する。産業上で確立された手順において、準備したカード構成物に熱と圧力を同時に加えて圧縮し、「いわゆる、モノリシック」ブロックを形成する。PC の固有熱移動率は、PC が直ちに軟化しないことを意味するので、チップは、直接、高圧に曝され、ほとんどの場合、機械的な破壊がチップにもたらされる。

30

**【0 0 0 4】**

自己接着性のフィルムを電子部品に適用すると、所望の構成要素を一緒に結合して確実にカードを形成することが可能となる。しかし、概して、これらの接着層は、カード構成物の弱点となる。カードの縁部を介して、水蒸気や空気が容易にカード内部に拡散し、続いて、層間剥離をもたらし得る。これ以外の環境による影響、特に、温度 (温度変化) によっても、カードが割れて、使用できなくなることもある。

40

**【0 0 0 5】**

潜在反応性接着剤は、それ自体、例えば、欧州特許出願 (EP - A) 第 0 922 720 号公報から公知である。原理としては、潜在反応性接着剤には 2 種類の固体相が存在し、例えば、2 種類の物質が、それぞれの結晶形態 (2 種類) で、混合物として存在するので、室温または通常の周囲の条件では、互いに反応しない。これらの物質は、例えば、加熱によって活性化された場合にだけ、互いに化学反応する。

**【0 0 0 6】**

50

ドイツ国特許（D E）第31 12 054号、同（D E）第32 28 723号および同（D E）第32 28 724号明細書において、150 μm以下の粒径を有する粉末の微粒子固体ポリイソシアネートは、その表面が不活性化されている。このような表面コーティングは、ポリイソシアネートがそのイソシアネート含量およびその反応性を維持しながら、なおかつ、水中または水性溶媒中であっても、安定な1成分系を形成することを意味する。

#### 【0007】

ドイツ国特許（D E）第32 28 724号および同（D E）第32 30 757号明細書では、表面が不活性化された粉末ジイソシアネートを、官能基を含む水性分散ポリマーとポリオールとを組み合わせて、安定な反応性ペーストを形成する。この水含有ペーストを140℃、すなわち、ポリイソシアネートの反応温度以上に加熱すると、これらの2つの成分は架橋し、迅速に発泡して可撓性のコーティングを形成する。10

#### 【0008】

表面が不活性化された微粒子イソシアネートの安定な分散体を製造する方法は、ドイツ国特許（D E）第35 17 333号明細書に記載されている。このようにして得られる安定な分散体は、架橋剤に適している。

#### 【0009】

表面が不活性化された固体の微粒子ポリイソシアネート水性分散体の織物用顔料印刷ペーストおよび染色浴における架橋剤としての使用がドイツ国特許（D E）第35 29 530号明細書に記載されている。この出願の方法によると、織物用顔料印刷ペーストおよび染色浴を熱風または蒸気でファブリックに固定する。20

#### 【0010】

これらの文献に記載されたシステムには不利な点があり、実際には、塗布工程と、硬化工程または架橋工程とを別々に実施することはできないが、多くの用途において、経済的および実施上の両方の理由から、望ましいものであると考えられている。

#### 【0011】

従って、基体が、安定な潜在反応性の層または粉末を含む、潜在反応性の接着剤を有することによって、可能性が広がり、対応した設備がある場所において適用することができ、所定の時間の期間、保存することができ、そして、加工処理を実施してさらなる中間体または最終製品を形成する場所に、移送することもできる。30

#### 【0012】

安定で潜在反応性の材料または層は、国際公開（WO）第93/25599号パンフレットに記載されている。これらは、融点が40℃を超えるイソシアネート反応性ポリマーと、表面が不活性化されたポリイソシアネートとから構成されている。ポリマーの軟化点を実質的に上回る温度でこれらの成分を溶融させて、このような混合物を製造する。これらの材料を製造し、適用するための設備コスト、ならびに、エネルギーコストは、かなりのものである。さらに、これらのシステムでは、安定性および加工性が原因で、表面が不活性化された架橋温度が80℃を超えるポリイソシアネートしか使用することができない。さらに、この用途は、これらの成分の不均一な混合をもたらし、この混合は、選択的であり、なおかつ、制御しなければならないものである。従って、煩雑な処理工程が必要となる。40

#### 【先行技術文献】

#### 【特許文献】

#### 【0013】

【特許文献1】欧州特許出願第0 922 720号公報

【特許文献2】ドイツ国特許第31 12 054号明細書

【特許文献3】ドイツ国特許第32 28 723号明細書

【特許文献4】ドイツ国特許第32 28 724号明細書

【特許文献5】ドイツ国特許第32 28 724号明細書

【特許文献6】ドイツ国特許第32 30 757号明細書50

【特許文献 7】ドイツ国特許第 35 17 333 号明細書

【特許文献 8】ドイツ国特許第 35 29 530 号明細書

【特許文献 9】国際公開第 93 / 25599 号パンフレット

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0014】

本発明が解決しようとする課題は、従って、改善された保証特性（セキュリティー性）（security characteristics）を有する新規な確認証（ID 証）ならびにその製造方法を提供することにある。特に、層間剥離性を改善することを課題とする。

10

【課題を解決するための手段】

【0015】

本発明は、A 層が熱可塑性材であり、B 層が安定な潜在反応性接着剤から製造される層であり、C 層が熱可塑性材である、A 層、B 層および C 層を含む確認証（ID 証）によって、上記課題を解決する。

20

【発明を実施するための形態】

【0016】

本発明において「確認証」（ID 証）（identification document）とは、保証特性（セキュリティー性）（security features）（例えば、チップ、写真、生物測定学的データなど）を備えた多層構造の平坦なドキュメントを意味する。これらの保証特性は、目に見えるものであってもよく、あるいは、少なくともその外側からスキャンできるものであってもよい。確認証の大きさは、通常、チェックカードサイズとパスポートサイズとの間である。また、本発明の確認証は、複合ドキュメント（multi-part document）（例えば、紙または厚紙の構成要素をも含むパスポートにおけるプラスチック製の確認証など）の一部であってもよい。

20

【0017】

さらなる態様では、本発明は、前記接着剤が水性分散体を含み、該水性分散体が、融点または軟化点が 30 を超えるジイソシアネートまたはポリイソシアネートと、イソシアネート反応性ポリマーとを含むことを特徴とする、上記の確認証に関する。

30

【0018】

さらなる態様では、本発明は、前記接着剤が、少なくとも 2000 mPa s の粘度を有する水性分散体を含むことを特徴とする、上記の確認証に関する。

30

【0019】

さらなる態様では、本発明は、前記イソシアネート反応性ポリマーがポリウレタンであり、該ポリウレタンは、熱機械分析（TMA）を用いて測定した場合に +110 未満の温度、好ましくは +90 未満の温度で部分的にまたは完全に非晶質となる（decrystallise）ポリマー鎖を結晶化することによって合成されることを特徴とする、上記の確認証に関する。TMA による測定は、ISO 11359 Part 3 の「浸透温度の決定（Determination of penetration temperature）」に従って同様に行われる。

40

【0020】

さらなる態様では、本発明は、前記ジイソシアネートまたはポリイソシアネートが、TDI または IPDI の二量体、三量体および尿素誘導体からなる群から選択されることを特徴とする、上記の確認証に関する。

【0021】

さらなる態様では、本発明は、請求項 1 に記載の分散体を基体に塗布して結合させ、該分散体を乾燥し、乾燥した接着剤の層を  $T > 65$  、好ましくは  $80 < T < 110$  の温度で手短に、好ましくは 5 分以内で加熱することによって非晶質とし（decrystallising）、該接着剤の層を非晶質状態（decrystallised state）で基体に結合させて、ボンド結合（bonded joint）を形成することを特徴とする、上記の確認証に関する。

【0022】

本発明において「熱可塑性材（thermoplastic）」とは、ポリマー鎖を有する熱可塑性

50

材料を意味し、例えば、ポリカーボネート、ポリメチルメタクリレート( PMMA )、スチレンのポリマーまたはコポリマー( 例えは、好ましくは、透明ポリスチレン( PS )またはポリスチレンアクリロニトリル( SAN )など)、透明熱可塑性ポリウレタン、ポリオレフィン( 例えは、好ましくは、透明ポリプロピレンタイプのものまたは環状オレフィン系のポリオレフィン( 例えは、Topas Advanced Polymers 製の TOPAS( 登録商標 ) )など)、テレフタル酸の重縮合物または共重縮合物( 例えは、好ましくは、ポリエチレンテレフタレート( PET )もしくはコポリエチレンテレフタレート( CoPET )またはグリコール変性 PET ( PETG )など)、ポリエチレングリコールナフタレート( PEN )、透明ポリスルホン( PSU )などが挙げられる。

## 【 0023 】

さらなる態様では、本発明は、前記 A 層および C 層の熱可塑性材が、それぞれ独立して、ポリカーボネート、テレフタル酸の重縮合物または共重縮合物( 例えは、好ましくは、ポリエチレンテレフタレート( PET )もしくはコポリエチレンテレフタレート( CoPET )またはグリコール変性 PET ( PETG )など)からなる群から選択されることを特徴とする、上記の確認証に関する。

## 【 0024 】

少なくとも 1 つの安定な潜在反応性層を有し、特に、高い保証性( セキュリティー )を有する ID カード用途での積層体は、従って、表面が不活性化された少なくとも 1 つのポリイソシアネートと、少なくとも 1 つの分散または溶解したイソシアネート反応性ポリマーとを含む、実質的には水性の分散体の使用によって製造することができる。

## 【 0025 】

また、本発明は、少なくとも 1 つの安定な潜在反応性層を有する積層体を製造する方法を提供し、本発明の製造方法では、

( a ) 少なくとも 1 つのイソシアネート反応性ポリマーを含む実質的には水性の分散体または溶液と、

( b ) 少なくとも 1 つの実質的には水に懸濁した表面が不活性化された固体の微粒子ポリイソシアネートとを一緒に混合し、

( c ) この混合物を必要に応じて所定のフィルム厚の基体に塗布し、そして、

( d ) この混合物から、イソシアネートの反応温度未満の温度で、水を除去する。このようにして形成された実質的に乾燥した無水の層または材料は、上記のポリイソシアネートとポリマーとの反応温度未満の反応温度において、安定であり、なおかつ、潜在反応性となる。

## 【 0026 】

驚くべきことに、水の除去および混合物の乾燥が、

( i ) 室温と、上記官能性ポリマーの軟化点との間、あるいは、

( ii ) 上記官能性ポリマーの軟化点を上回る

任意の温度範囲において、進行し得ることがわかった。

但し、いずれの場合も、表面が不活性化されたポリイソシアネートの反応温度を超えないことを条件とする。上記( i )または( ii )に従って乾燥を行うかどうかに関わらず、乾燥後には、表面が不活性化された固体の微粒子ポリイソシアネートを変化せずにそのままの形態で、なおかつ、未反応の形態で、ほとんど無水のポリマーあるいは実質的に無水の層または粉末として、配合または埋包する。ポリマーと、懸濁した不活性化されたイソシアネートとの分散体、懸濁液または溶液を未架橋ポリマーの連続相に加工し、この連続相では、表面が不活性化された未反応の微粒子イソシアネートが懸濁している。

## 【 0027 】

( i ) の場合には、無水の乾燥した潜在反応性のフィルムまたは潜在反応性の粉末が生じ、これは、室温またはわずかに昇温した温度において、保存することができる。表面が不活性化されたイソシアネートと、上記官能性ポリマーの官能基との反応性が維持される。

## 【 0028 】

10

20

30

40

50

(i) の場合には、水を留去した後に、溶融系が生じる。フィルム積層体の結合が、例として挙げられる。この相でも、表面が不活性化されたイソシアネートは、変化せずにそのまま、その反応性を保持する。この結合は、そもそも、ポリマーの熱可塑性の特性に基づく。

【0029】

両方の場合において、表面が不活性化されたイソシアネートの反応温度を超える場合に限って、系は、架橋し、そして、不融性かつ不溶性となる。これは所定の時間の期間の後に生じる。

【0030】

特別な場合では、ごく短い時間で十分であり、反応温度が超過して架橋反応を引き起こすきっかけとなる。不活性化されたポリイソシアネートの反応温度または架橋温度は、30 ~ 180 の範囲、好ましくは 40 ~ 150 の範囲の温度である。

【0031】

濃厚化または反応の温度は、ポリマー中において、イソシアネートの表面不活性化層が、溶解するか、あるいは、他の手段によって破壊される温度である。ポリマー中にポリイソシアネートを放出し、溶解する。最終的な硬化が、ポリイソシアネートと、ポリマーの官能基との反応および拡散によって進行し、これは、粘度および架橋度の上昇を伴う。表面が不活性化されたポリイソシアネートの種類に応じて、濃厚化および反応の温度は、使用するポリマーの軟化点を上下する。

【0032】

ポリイソシアネートの種類、表面安定剤の種類および量、官能性ポリマーの溶解性パラメータによって、ならびに、触媒、可塑剤および他の補助剤によって、反応前の系の安定性、反応温度および反応経路を決定する。これらは、本願の特許明細書中に広く記載され、導入の際に参照される。

【0033】

また、本発明では、このような層または粉末を備えた基体に、塗布後機械加工する (post-application machining) 工程を実施する。これらの工程としては、必要なものとして、例えば、パンチング工程、カッティングして切り分ける工程、ベンディング工程、フォールディング工程、ラミネーティング工程などによる、基体をその最終形態に機械加工する工程などが挙げられる。さらに驚くべきことに、本発明のフィルムまたは粉末は、その可塑状態で、加工することができる事が確立されている。何日もあるいは何ヶ月も経過した後であっても、ポリマーの官能基と、表面が不活性化されたイソシアネートとの間の反応を開始することなく、上記の層または粉末をポリマーの軟化点を超える温度にまで加熱することできる。このような可塑状態での加工処理は、加熱および冷却を繰り返しながらであっても、実施することができる。

【0034】

好ましい態様では、このようなフィルムまたは粉末は、安定であり、潜在反応性の接着剤の系となる。

【0035】

このような潜在反応性の自己接着剤のフィルムを電子部品に適用する場合、所望の構成要素を一緒に結合して、カードを確実に形成することができる。本発明のこれらの接着剤の層には、もはや、そのカード構造における弱点が存在しない。その理由としては、本発明のこれらの接着剤の層は、もはや、カード縁部を介して、その内部に、水蒸気および空気を拡散させることができず、従って、もはや、その後の層間剥離を引き起こすこともできない。このようなカードの構造は、もはや、破壊する以外に、バラバラに分離することができない。

【0036】

本発明の製造方法におけるポリイソシアネートには、全てのジイソシアネートまたはポリイソシアネートあるいはそれらの混合物を適用することができる。ただし、これらは、40 を超える融点を有するものであり、なおかつ、公知の方法によって、粒径が 200

10

20

30

40

50

$\mu\text{m}$ 未満の粉末の形態にすることができるものであることを条件とする。これらは、脂肪族、脂環式、複素環式または芳香族のポリイソシアネートであってもよい。その例として、以下のものを挙げることができる：ジフェニルメタン-4, 4'-ジイソシアネート（MDI）、ナフタレン-1, 5-ジイソシアネート（NDI）、3, 3'-ジメチルビフェニル-4, 4'-ジイソシアネート（TODI）、ダイマーの1-メチル-2, 4-フェニレンジイソシアネート（TDIU）、3, 3'-ジイソシアナト-4, 4'-ジメチル-N,N'-ジフェニルウレア（TDIH）、2モルの1-メチル-2, 4-フェニレンジイソシアネートへの1モルの1, 2-エタンジオール、1, 4-ブタンジオール、1, 4-シクロヘキサン、ジメタノールまたはエタノールアミンの付加体、IPDIのイソシアヌレート（IPDI-T）。

10

## 【0037】

上記の付加体は、水性分散体としてだけでなく、本発明の利点を提供する。1-メチル-2, 4-フェニレンジイソシアネートと1, 4-ブタンジオールまたは1, 2-エタンジオールとからなる付加体は、固体および液体の系であって、その系が、溶媒を含んでいても、溶媒を含んでいなくても、とても有利な特性を有する。これら上記のものは、すべて、その低い硬化温度または架橋温度（90未満の温度範囲）によって、説明される。従って、このような混合物の使用は、その大部分が水またはポリオールをベースにしたものであってもそうでなくとも、温度に敏感な基体へのコーティングおよび結合に非常に有利となる。

20

## 【0038】

表面の安定化反応は、以下の様々な方法によって、実施することができる。

## 【0039】

- ・不活性化剤の溶液中に、粉末の上記イソシアネートを分散させること

## 【0040】

- ・不活性化剤（不溶性液体分散剤として）の溶液中に、低融点のポリイソシアネートの溶融物を配合すること

## 【0041】

- ・固体微粒子イソシアネートの分散体に、不活性化剤またはその溶液を添加すること

## 【0042】

不活性化剤の濃度は、存在するイソシアネート基の合計に対して、0.1~25当量パーセント、好ましくは0.5~8当量パーセントである。

30

## 【0043】

本発明の使用に関して、粉末ポリイソシアネートの粒径を、しばしば、その合成後の微分散または湿式粉碎の工程によって、0.5~20 $\mu\text{m}$ の範囲の粒径に調整しなければならない。高速ミキサー、ローター・ステーター型の分散デバイス、摩擦ミル、パール・サンドミル、ボールミルおよびグラインディングギャップミルが、40未満の温度では、この目的に適している。ポリイソシアネートおよびその用途に応じて、無反応性の分散剤中または水中で、不活性化剤の存在下、不活性化されるポリイソシアネートの粉碎をその後の不活性化とともに実施する。この粉碎され、なおかつ、表面が安定化されたポリイソシアネートを粉碎分散体から分離し、乾燥させることができる。

40

## 【0044】

また、触媒を添加してもよく、表面の不活性化および架橋反応を制御することができる。触媒は、水溶液または水性分散体中の加水分解に耐えるものであり、また、その後の熱活性化反応をも促進するものが好ましい。ウレタン触媒の例は、有機系のスズ（チン）、鉄、鉛、コバルト、ビスマス、アンチモン、亜鉛の化合物またはその混合物である。ジブチルチルのアルキルメルカプチド化合物が好ましい。その理由としては、その耐加水分解性が高いことが挙げられる。

## 【0045】

ジメチルベンジルアミンなどの三級アミン、ジアザビシクロウンデセン、および三級アミンベースの不揮発性ポリウレタンフォーム触媒を特定の用途のために、あるいは、金属

50

触媒と組み合わせて、使用することができる。しかし、触媒活性は、大気中の二酸化炭素との反応によって、悪影響を受ける場合もある。

【0046】

触媒の濃度は、反応系に対して、0.001~3%、好ましくは0.01~1%の範囲内である。

【0047】

本発明での調製に適した水性分散体は、好ましくは、イソシアネート反応性ディスパージョンポリマーとして、結晶性ポリエステルの軟らかい（ソフト）セグメントを有するポリウレタンまたはポリウレアの分散体を含む。結晶性または部分的に結晶性のポリマー鎖を有するイソシアネート反応性のポリウレタンポリマーの分散体が特に好ましく、これは、熱機械分析（TMA）で測定した場合、50~120の温度で少なくとも部分的に非晶質となる（decrystallise）。

10

【0048】

また、アクリレートディスパージョンポリマーも必要に応じて挙げができるが、注目すべきは、結晶性ポリエステルのソフトセグメントを有するポリウレタンまたはポリウレアのディスパージョンポリマーである。

【0049】

イソシアネート反応性の官能基を有する水溶性または水分散性のエマルションまたはディスパージョンのポリマーは、本発明に従って、ポリイソシアネートの反応パートナーとして適している。これらは、従来技術に従って、溶液、乳液または懸濁液中でのオレフィン系不飽和モノマーの重合によって製造される。フィルム形成ポリマーは、0.2~15%、好ましくは1~8%のモノマーを含むものであり、このモノマーは、ヒドロキシル基、アミノ基、カルボキシル基、カルボンアミド基などのイソシアネート反応性基を含むものであり、重合によって取り込まれる。

20

【0050】

このような官能性モノマーの例として、アリルアルコール、ヒドロキシエチルアクリレート、ヒドロキシエチルメタクリレート、ヒドロキシプロピルアクリレート、ヒドロキシプロピルメタクリレート、ブタンジオールモノアクリレート、エトキシル化またはプロポキシル化されたアクリレートまたはメタクリレート、N-メチロールアクリルアミド、tert-ブチルアミノエチルメタクリレート、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、マレイン酸モノエステルが挙げられる。グリシジルメタクリレートおよびアリルグリシジルエーテルも共重合することができる。これらはエポキシ基を含み、エポキシ基は、さらなる工程において、アミンまたはアミナルコール（例えば、エチルアミン、エチルヘキシルアミン、イソノニルアミン、アニリン、トルイジン、キシリジン、ベンジルアミン、エタノールアミン、3-アミノ-1-プロパノール、1-アミノ-2-プロパノール、5-アミノ-1-ペンタノール、6-アミノ-1-ヘキサノール、2-(2-アミノエトキシ)エタノール）によって誘導体化され、二級アミンを形成する。

30

【0051】

この反応は、官能性ポリマーの官能基と、イソシアネート基との反応性を向上させて、水との二次反応を抑制する。

40

【0052】

また、水溶性のヒドロキシ官能性のバインダー、例えば、ポリビニルアルコール、部分的にケン化されたポリビニルアセテート、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ならびに、水分散性ヒドロキシ官能性ポリエステル、ヒドロキシ官能性スルホポリエステル、ならびに、ポリウレタン分散体、カルボキシルまたはヒドロキシル一級または二級アミノ基を有するポリアミドアミンの分散体が適している。

【0053】

粒径が1~100nmの水性コロイド分散体またはコロイド溶液は、イソシアネート反応性基を有する熱可塑性ポリマーを原料として、コロイドミル中で同様に製造することができる。例えば、高分子量の固体のエポキシ樹脂、ポリエチレンビニルアルコールおよび

50

ポリエチレンコアクリル酸が挙げられる。

【0054】

さらに、得られた高粘度のペーストまたは低粘度の混合物に、不活性または官能性の添加剤を導入または分散させてもよい。官能性の添加剤としては、ヒドロキシ官能性またはアミノ官能性の粉末状または液体状の低分子量から高分子量の化合物が挙げられ、これらの化合物は、上記の反応温度を超えると、固体のポリイソシアネートと反応することができる。従って、化学量論比を調整する必要がある。低分子量の化合物は、その分子量が40～500g/molの化合物を意味し、高分子量の化合物は、その分子量が500～10000g/molの化合物を意味する。例えば、以下のものを挙げることができる：低分子量から高分子量の液体のポリオールまたは／およびポリアミン、固体の多官能性のポリオールまたは／および芳香族ポリアミン。例えば、トリエタノールアミン、ブタンジオール、トリメチロールプロパン、エトキシリ化されたビスフェノールA、末端エトキシリ化ポリプロピレングリコール、3,5-ジエチルトルイレン-2,4-ジアミン、3,5-ジエチルトルイレン-2,6-ジアミン、ポリテトラメチレンオキシドジ-(p-アミノベンゾエート)、トリス-ヒドロキシエチルイソシアヌレート、ヒドロキノンビス-ヒドロキシエチルエーテル、ペンタエリスリトール、4,4'-ジアミノベンズアニリド、4,4'-メチレンビス-(2,6-ジエチルアニリン)が挙げられる。

10

【0055】

不活性な添加剤としては、例えば、湿潤剤、有機または無機の増粘剤(シックナー)、可塑剤、充填材、可塑性粉末、顔料、染料、光安定剤、エージング安定剤、防錆剤、難燃剤、発泡剤、粘着樹脂、官能有機シラン、チョップド纖維、および、任意の少量の不活性溶媒が挙げられる。

20

【0056】

本発明の利点は、水性分散体の塗布と、架橋反応(すなわち、最終的な硬化)とを分離したことにある。すなわち、ある場所において、例えば、木材、ガラスまたは他の基体もしくは支持体に、接着剤のフィルムを適用することができ、これらの予め作製された製品を保存および／または出荷することができ、そして、別の場所において硬化して、最終製品を形成することができる。

【0057】

本発明の方法ならびにそれによって製造された製品の使用によるさらなる利点は、分散媒体として水を使用することにある。このような分散体の製造におけるエネルギー消費は低い。有機溶媒の割合は最小となり、これによって、環境保護の観点から、非常に有益な処理となる。

30

【0058】

最初から、水性ポリマー分散体を使用する場合には、さらなる利点があり、実際、表面が不活性化された融点が40～150の範囲のポリイソシアネートも問題なく配合することができる。架橋温度を35～90の範囲とすることができます。このような低架橋温度によって、温度に敏感な基体であっても、熱に曝すことによって、このような1成分系と結合することができる。

40

【0059】

このような水性の懸濁液、分散体または溶液から調製された層または粉末は、数ヶ月間保存することができる。しかし、室温または少し昇温した温度での保存期間は、固体フィルムのポリイソシアネートへの溶解特性によって異なる。無水かつ未架橋の状態での本発明の系における保存期間は、同じポリイソシアネートであってその表面が不活性化されていないものを含む同様の混合物の保存期間と比べると、保存期間が、少なくとも3倍、通常は10倍以上である。本発明における層または粉末は、+2では少なくとも6ヶ月間安定であり、室温では少なくとも1ヶ月間安定である。また、本発明に従って、加工処理することができる。用語「潜在反応性」(latent-reactive)とは、層または粉末が実質的に無水の状態であって、この状態において、表面が不活性化されたポリイソシアネートと、イソシアネート反応性ポリマーとが実質的に架橋していない状態で存

50

在する状態を意味する。

【0060】

熱可塑性加工処理工程ならびに架橋工程における熱は、好ましくは通常の熱または放射熱によって、供給することができる。表面が不活性化された微粒子ポリイソシアネートと、イソシアネート反応性基を有する分散もしくは水溶性のポリマーとの安定な水性の懸濁液、分散体または溶液を基体表面に塗布、特に、刷毛塗り、噴霧、霧化、ナイフ塗布、左官塗布、注入、浸漬、押出によって、またはローラー塗布によって、または印刷によって適用して、結合または被覆することができる。

【0061】

本発明において、積層に適した基体は、熱可塑性材、例えば、ジフェノールに基づくポリカーボネートまたはコポリカーボネート、ポリアクリレートまたはコポリアクリレートならびにポリメタクリレートまたはコポリメタクリレート（例えば、好ましくは、ポリメチルメタクリレート（PMMA）など）、スチレンのポリマーまたはコポリマー（例えば、好ましくは透明ポリスチレン（PS）またはポリスチレンアクリロニトリル（SAN）など）、透明熱可塑性ポリウレタン、ポリオレフィン（例えば、好ましくは透明ポリプロピレンタイプのものあるいは環状オレフィン系のポリオレフィン（例えば、Topas Advanced Polymers 製のTOPAS（登録商標））など）、テレフタル酸の重縮合物または共重縮合物（例えば、好ましくは、ポリエチレンテレフタレート（PET）またはコポリエチレンテレフタレート（COPE）またはグリコール変性PET（PETG）など）、ポリエチレングリコールナフタレート（PEN）、透明ポリスルホン（PSU）である。

10

20

30

40

50

【0062】

基体（同士）を結合させる場合、以下の方法のいずれか1つで実行することができる。

【0063】

1. プレス結合（press bonding）：室温で表面同士を結合させて、温度をポリマーの軟化点を超える、なおかつ、反応温度未満の温度に上昇し、その後、室温に冷却することによって結合させる方法。潜在反応性の結合が形成される。ポリマーの可塑性または熱可塑性の範囲内であっても、この結合体をさらに加工処理して成形することができる。濃厚化温度または反応温度を超える温度に温度を上昇させると、この結合は、その最終的な架橋状態となる。

【0064】

2. プレス結合：室温で表面同士を結合させて、温度をポリマーの軟化点を超える温度に上昇し、均一な接着剤のフィルムを形成し、これが対向する表面を湿潤かつ結合し、さらに濃厚化温度または反応温度を超える温度に温度を上昇し、最終的に架橋することによって、結合させる方法。

【0065】

3. 温度をポリマーの軟化点を超える温度に上昇することによって、結合用にコーティングされた表面を熱可塑性の状態にして、第2の基体に結合し、温度を濃厚化温度または反応温度を超える温度に上昇し、その間、加圧する。必要に応じて、さらなる加工処理工程を実施することができる。この間、系は熱可塑性の状態にある。

【0066】

本発明の製造方法の第2の実施形態において、表面が不活性化された微粒子ポリイソシアネートと、イソシアネート反応性の基を有する分散または水溶性のポリマーとの安定な水性の分散体を、潜在反応性の接着フィルム、接着テープ、接着不織布ファブリックもしくは接着織布ファブリック（その両側への接着が確立できるもの）の形態にする。バッキング（裏当て）がない形態のフィルムやテープなどを製造するために、非接着性のバッキングテープや剥離紙に本発明の分散体を塗布し、室温、または、ポリマーの軟化点以下の温度で水を揮発させる。冷却後、接着剤フィルムをバッキング（裏当て）から分離することができ、バッキング（裏当て）がない状態で保存し、その後、使用することができる。あるいは、バッキングペーパー（裏当て紙）が付いた状態で接着剤フィルムを保存するこ

とができる。

【0067】

接着不織布ファブリックまたは接着織布ファブリックの場合、噴霧、霧化、ナイフ塗布、注入、浸漬、パッドとすることによって、ローラー塗布によって、または印刷によって、反応性分散体を塗布し、室温、または、ポリマーの軟化以下の温度で水を揮発させて、潜在的な熱反応性の接着剤層を備えた、あるいは、このような接着剤層で含浸された、接着不織布ファブリックまたは接着織布ファブリックを保存し、その後、使用する。

【0068】

バッキング（裏当て）がない接着フィルム、接着テープ、接着不織布ファブリックまたは接着織布ファブリックを、基体と基体との間の接着剤層として、使用する。また、接着フィルム、接着不織布ファブリックまたは接着織布ファブリックを可塑状態で一方の基体表面に塗布または焼結することもできる。この積層体は室温で保存することができ、その後、この積層体を第2の基体表面に最終的に結合させる。

【0069】

本発明の製造方法の第3の実施形態において、表面が不活性化された微粒子ポリイソシアネートと、イソシアネート反応性基を有する分散または水溶性のポリマーとの安定な水性分散体を潜在反応性の粉末の形態にする。このような粉末は、潜在反応性接着剤として使用すること、あるいは、粉末コーティングなどのコーティングを目的として使用することができる。

【0070】

本発明の分散体から粉末を製造するために、分散体をスプレー乾燥タワー中で噴霧してもよい。ブローによって導入されるエアーの温度を、ポリマーの軟化点ならびに表面がブロウクされたポリイソシアネートの反応温度未満の温度に維持しなければならない。

【0071】

あるいは、本発明の分散体は、接着表面を有する、循環ベルトの非接着性の表面上にスプレーすることができるか、あるいは、印刷工程によって塗布することができる。水を揮発した後、テープから乾燥粒子を剥ぎ取り、必要に応じて篩にかけて分級し、そして、使用するまで保存する。

【0072】

また、バッキング（裏当て）がないフィルムまたはテープから、粉碎工程によって、場合によっては低温での粉碎工程によって、潜在反応性粉末を製造することもできる。このような粉末を熱反応性の架橋可能な接着剤またはコーティングパウダーとして使用する。塗布設備および塗布方法は従来技術のものであり、これらは当業者に公知である。

【0073】

本発明の製造方法によって製造される潜在反応性の予め調製された層は、好ましくは、可撓性または剛性の基体（例えば、金属、プラスチック、ガラス、木材、木製複合材、カード、フィルム、平坦な合成材料、織物など）に適した高耐熱性のボンド結合（bonded joint）として使用される。

【0074】

また、本発明に従って製造される反応性コーティングパウダーは、粉体コーティングに適した塗布方法によって加工処理することもできる。ポリイソシアネートを選択することによって、架橋温度を低くすることができ、熱によるダメージを受けることなく、熱に敏感な基体（例えば、プラスチック、織物および木材）をコーティングすることができる。また、この製造方法によって、コーティングパウダーを焼結できるだけでなく、基体上で溶融させることもでき、密閉された層を形成することができる。次いで、後続の熱処理工程において、必要に応じて、さらなる機械加工工程または熱加工工程の後、完全な架橋を行う。

【実施例】

【0075】

実施例

10

20

30

40

50

A ) 使用する市販品 :

【0076】

Dispercol 1 (登録商標) U 53

ポリウレタン分散体（ドイツ国、Leverkusen 51368、Bayer Material Science AG製）；固体分含量約40重量%；直鎖ポリウレタンからなるイソシアネート反応性ポリマー。この分散体を乾燥させてフィルムを23に冷却した後、ポリマーを結晶化させる。フィルムは、熱機械分析（TMA）を用いて測定すると、+65未満の温度では、その大部分が非晶質となる（decrystallised）。

【0077】

Desmodur (登録商標) DN

溶媒を含まない親水性に修飾された、HDI三量体に基づく架橋剤イソシアネート（NCO含量約20%、粘度約1200mPas（23））。

【0078】

Dispercol 1 (登録商標) BL XP 2514

表面が不活性化されたTDIウレトジオン（TDI二量体）の水中懸濁液（固体分含量約40%）。

【0079】

Dispercol 1 (登録商標) U VP KA 8755

ポリウレタン分散体（ドイツ国、Leverkusen 51368、Bayer Material Science AG製）；固体分含量約40重量%；直鎖ポリウレタンからなるイソシアネート反応性ポリマー。この分散体を乾燥させてフィルムを23に冷却した後、ポリマーを結晶化させる。フィルムは、熱機械分析を用いて測定すると、+65未満の温度では、その大部分が非晶質となる（decrystallised）。

【0080】

Borchi (登録商標) Gel L 75 N

非イオン性の液体の脂肪族ポリウレタン系増粘剤：粘度（23）>9000mPas；不揮発性成分：約50重量%。

【0081】

Aqua Press (登録商標) ME

市販のミルキーホワイト分散体（Proell製）。

【0082】

Borchi (登録商標) Gel ALA

アニオン性のアクリレート系増粘剤の水溶液：粘度（20）（Brookfield, LVT, hydrometer IV, 6 rpm）：25000~60000mPas；不揮発性成分：約10重量%。

【0083】

Dispercol 1 (研究開発品) KRAU 2756 K-1

ポリウレタン分散体（ドイツ国、Leverkusen 51368、Bayer Material Science AG製）；固体分含量約45重量%；直鎖ポリウレタンからなるイソシアネート反応性ポリマー

【0084】

分散体を乾燥させ、フィルムを23に冷却させた後、このポリマーを部分的に結晶化させる。フィルムは、熱機械分析を用いて測定すると、+65未満の温度では、その大部分が非晶質となる（decrystallised）。

【0085】

ISO 11359のパート3「浸透温度の決定（Determination of penetration temperature）」に従って、同様に、TMAによる測定を実施した。

【0086】

B ) 保存条件：

【0087】

10

20

30

40

50

## 保存 A

室温での分散体の塗布、フィルムの室温での蒸発によるほとんどの水の除去、最大3時間後、すぐに、その表面(同士)を90または120(目的温度)で積層して結合し、架橋反応を誘導する。冷却し、通常の条件で24時間保存する。

## 【0088】

## 保存 B

室温での分散体の塗布、フィルムの室温での蒸発によるほとんどの水の除去、通常の条件で1日保存、次いで、90または120(目的温度)で積層し、架橋反応を誘導する。冷却し、通常の条件で24時間保存する。

## 【0089】

## 保存 C

室温での分散体の塗布、フィルムの室温での蒸発によるほとんどの水の除去、通常の条件で7日間保存、次いで、90または120(目的温度)で積層し、架橋反応を誘導する。冷却し、通常の条件で24時間保存する。

## 【0090】

## 保存 D

フィルムに塗布し、室温での蒸発によって、ほとんどの水を除去する。接着剤層で覆われた表面を21日間、大気中に放置する。次いで、90または120(目的温度)で積層し、架橋反応を誘導する。冷却し、通常の条件で24時間保存する。

## 【0091】

## C)サンプル製造および試験方法

DIN 53357に規定の剥離試験に従って、2枚のフィルム間の結合の接着強さを試験する:

## 【0092】

2枚のフィルムからなる試験片(寸法:  $200 \times 50 \times 0.15 \text{ mm}^3$ )を1つの層に重ねて、プレス結合した(積層体化した)。フィルムを約40mmの長さだけ引っ張ったまま放置して舌(タン)部を2箇所形成する。この舌(タン)部は、張力試験機のクランプに挟むことができるものである。結合する表面を測定すると約 $160 \times 50 \text{ mm}^2$ である。この結合の強さを120で測定した。

## 【0093】

異なる様々な試験条件または試験を詳しく説明する。

## 【0094】

## D)反応性接着剤分散体の塗布および試験

## 【0095】

使用する接着剤分散体:

## 【0096】

接着剤分散体の調製

概説:

まず、増粘剤を用いて、Dispercoll U分散体の粘度を上昇させる。

## 【0097】

## 【表1】

	重量部
Dispercoll (登録商標) U 53	100
Borchigel (登録商標) ALA	2

## 【0098】

次いで、5~10重量部の不活性化されたポリイソシアネートを100重量部のDispercoll U分散体に加え、混合する。

10

20

30

40

50

percol 1 U 53 に、搅拌しながら、添加して、以下の水性懸濁液を得る。

【0099】

上記のポリイソシアネートを用いて、反応性分散体接着剤を高速ミキサー内で以下のように製造した。

【0100】

【表2】

例1（比較例：本発明でない）	
	重量部
Dispercoll (登録商標) U 53	100
Borchigel (登録商標) ALA	2

10

20

30

【0101】

【表3】

例2（本発明）	
	重量部
Dispercoll (登録商標) U 53	100
Borchigel (登録商標) ALA	2
Desmodur (登録商標) DN	5

【0102】

【表4】

例3（本発明）	
	重量部
Dispercoll (登録商標) U 53	100
Borchigel (登録商標) ALA	2
Dispercoll (登録商標) BL XP 2514	10

30

【0103】

【表5】

例4	
	重量部
Dispercoll (登録商標) U 53	100
Borchigel (登録商標) ALA	2
IPDI三量体処方物 (Jeffamine T-403)	20
由来の3当量%アミノ基)	

40

50

【0104】

例 5 ( 比較例であって、本発明ではない )

Aqua Press (登録商標) (市販の水性 1 成分結合剤) (ドイツ国、Weisenburg、Proeill KG 製)

【 0105 】

例 6

スパイラルナイフを用いて、例 1 ~ 5 の接着剤混合物を厚さ 150 μm の Makrnofol (登録商標) ID 6 - 2 (両面にテクスチャ加工したポリカーボネートフィルム (Bayer Material Science AG 製) であって、特に、ID カード用のものであり、6 等級 (粗さ (R<sub>3z</sub>) が約 9 μm) から 2 等級 (粗さ (R<sub>3z</sub>) が約 4 μm) のもの ) に、湿潤フィルム厚が 100 μm となるように、塗布した。フィルムを一般的な条件で乾燥させた。

10

【 0106 】

上記で説明した保存 A、B または C の後、コーティングした各フィルムを未コーティングの Makrnofol (登録商標) ID 6 - 2 (150 μm のフィルム) に積層し、上記のセクション C ) に記載したように試験した。90 または 120 、 2 kp/cm<sup>2</sup> の機械的圧力で積層を実施した ( プレス結合 ) 。

【 0107 】

次に、上記の剥離試験を用いて結合の機械的強度を試験し、保存 A ~ C ( 保存期間 ) および温度との関係を試験した。

【 0108 】

20

【表6】

例		保存	積層温度	平均 N/cm
例1	本発明でない	A	90	1.03
例1	本発明でない	B	90	0.46
例1	本発明でない	C	90	1.38
例1	本発明でない	A	120	0.80
例1	本発明でない	B	120	0.88
例1	本発明でない	C	120	0.66
例2	本発明	A	90	8.67
例2	本発明	B	90	6.54
例2	本発明	C	90	2.64
例2	本発明	A	120	4.95
例2	本発明	B	120	3.21
例2	本発明	C	120	2.51
例3	本発明	A	90	11.57
例3	本発明	B	90	13.24
例3	本発明	C	90	13.42
例3	本発明	A	120	10.48
例3	本発明	B	120	17.90
例3	本発明	C	120	14.77
例4	本発明	A	90	3.52
例4	本発明	B	90	5.84
例4	本発明	C	90	5.99
例4	本発明	A	120	3.28
例4	本発明	B	120	4.26
例4	本発明	C	120	2.59
例5	本発明でない	A*	90	1.54
例5	本発明でない	A*	120	0.93

## 【0109】

\* 最初に強度さえも存在しなかったので、さらなる保存を実施した。

## 【0110】

例3からの最良の系を用いて、コーティングフィルムの保存安定性について、さらなる試験を行った。

## 【0111】

10

20

30

40

50

## 【表7】

例7	重量部
Dispercoll (登録商標) VP KA 8755	700
Borchigel (登録商標) L 75 N	7
Dispercoll (登録商標) BL XP 2514	70

10

## 【0112】

## 【表8】

例8	重量部
KRAU 2756 K-1	700
Borchigel (登録商標) L 75 N	7
Dispercoll (登録商標) BL XP 2514	70

20

## 【0113】

スパイラルナイフを用いて、例7～8の接着剤混合物を厚さ250μmのMakrnofol (登録商標) ID 1-1 (Bayer Material Science AG 製の両面が円滑なポリカーボネートフィルムであって、特に、IDカード用のもの)に湿润フィルム厚が50μmとなるように塗布した。このフィルムを減圧乾燥キャビネット(50)中で乾燥させた。

## 【0114】

上記で説明した保存AまたはDの後、各コーティングフィルムを未コーティングのMakrnofol (登録商標) ID 1-1 (250μmフィルム)に積層し、上記のセクションC)で説明したように試験した。120または135で2kp/cm<sup>2</sup>の機械的圧力下で積層を実施した(プレス結合)。

30

## 【0115】

次いで、上記の剥離試験を用いて、結合の機械的強度を試験し、保存AおよびD(保存期間)ならびに温度との関係を試験した。

## 【0116】

【表9】

例		保存	積層温度	平均 N/cm
例7	本発明	A	120	31.30
例7	本発明	D	120	71.04
例7	本発明	A	135	73.59
例7	本発明	D	135	140.41
例8	本発明	A	120	55.82
例8	本発明	D	120	63.36
例8	本発明	A	135	38.87
例8	本発明	D	135	95.02

10

20

## 【0117】

21日間保存した後であっても、例7および例8の接着剤組成物による積層体の特徴は、依然として非常に強固なボンド結合(bonded joint)を形成していることであった。さらにより好ましい結合が、120よりも、135の活性化温度において、達成された。

## 【0118】

剥離試験後、結合したフィルムの表面はひどいダメージを受け、このような表面は、さらに使用することが全くできなかった。本発明の実施例で使用した接着剤では、ダメージを受けることなく、結合した層の熱による分離も回避することができ、このようにして、本質的な目標は達成され、セキュリティーカードとして使用することができる。

## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/EP2008/009194

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>				
INV.	B32B7/12 C08G18/70	B32B27/08 B32B37/12	B32B33/00 C08G18/79	C08J5/12 C09J5/06
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) B32B C0BJ C09J C08G B42D				
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				
<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 0 922 720 A (ABEND THOMAS P [CH] ABEND THOMAS [CH]) 16 June 1999 (1999-06-16) cited in the application page 3, lines 23,53, paragraphs 12-14,16,18,19,23,39,43,47; claims 1,8,11,14,17,19 paragraph [0033]			1,2,4,5
X	WO 93/25599 A (ABEND THOMAS P [CH]) 23 December 1993 (1993-12-23) cited in the application page 9, paragraph 5 - page 10, paragraphs 4,5; claims 11-18,25 page 11, paragraphs 2,3			9,10
A	EP 0 444 259 A (BAYER AG [DE]) 4 September 1991 (1991-09-04) page 6, line 31; claims 1-4,6,7			3
A				9
A				1,3
				-/-
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C.		<input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
<p>* Special categories of cited documents :</p> <p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier document but published on or after the international filing date</p> <p>"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)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> <p>"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</p> <p>"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</p> <p>"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.</p> <p>"8" document member of the same patent family</p>				
Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report			
29 Januar 2009	05/02/2009			
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentstaan 2 NL - 2200 HV Rijswijk Tel: (+31-70) 340-2040 Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer Derz, Thomas			

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No PCT/EP2008/009194
---

## 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 1 600 485 A (BAYER MATERIALSCIENCE AG [DE]) 30 November 2005 (2005-11-30) paragraphs [0007], [0008], [0029], [0035], [0037], [0047], [0048], [0058]; claims 1,9-20	1,4,5
X	DE 196 31 283 A1 (ORGÄ KARTENSYSTEME GMBH [DE]) 5 February 1998 (1998-02-05) claims 1-5	1,7,8,11
A	EP 0 949 310 A (EFTEC AG [CH]) 13 October 1999 (1999-10-13) paragraphs [0002], [0025]; claim 11	4

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International application No PCT/EP2008/009194
---

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date	
EP 0922720	A 16-06-1999	AT 264351 T AT 203035 T AT 252121 T AU 748817 B2 AU 1330299 A BR 9813562 A CA 2314320 A1 WO 9929755 A1 CN 1284973 A DE 59705314 D1 DE 59809938 D1 DK 1029879 T3 DK 922720 T3 DK 1037935 T3 EP 1029879 A1 EP 1037935 A1 ES 2218026 T3 ES 2161429 T3 ES 2209221 T3 GR 3036520 T3 HK 1034985 A1 ID 24970 A JP 4099312 B2 JP 2001525468 T PT 922720 T PT 1037935 T US 6348548 B1			15-04-2004 15-07-2001 15-11-2003 13-06-2002 28-06-1999 10-10-2000 17-06-1999 17-06-1999 21-02-2001 06-12-2001 20-11-2003 19-07-2004 29-10-2001 16-02-2004 23-08-2000 27-09-2000 16-11-2004 01-12-2001 16-06-2004 31-12-2001 19-11-2004 31-08-2000 11-06-2008 11-12-2001 30-01-2002 31-03-2004 19-02-2002
WO 9325599	A 23-12-1993	CA 2114842 A1 DE 59310300 D1 EP 0598873 A1 ES 2182828 T3 JP 3303885 B2 JP 6509839 T KR 100276573 B1 PT 598873 T		23-12-1993 10-10-2002 01-06-1994 16-03-2003 22-07-2002 02-11-1994 15-12-2000 31-01-2003	
EP 0444259	A 04-09-1991	CA 2033740 A1 DE 4002727 A1 JP 3044397 B2 JP 5009391 A		01-08-1991 01-08-1991 22-05-2000 19-01-1993	
EP 1600485	A 30-11-2005	AR 049181 A1 BR PI0501990 A CA 2508200 A1 CN 1702138 A DE 102004026118 A1 JP 2005336494 A MX PA05005603 A US 2005267255 A1		05-07-2006 24-01-2006 28-11-2005 30-11-2005 15-12-2005 08-12-2005 30-11-2005 01-12-2005	
DE 19631283	A1 05-02-1998	NONE			
EP 0949310	A 13-10-1999	AU 3244299 A BR 9909465 A WO 9951698 A1 DE 59903408 D1 ES 2187190 T3		25-10-1999 19-12-2000 14-10-1999 19-12-2002 16-05-2003	

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International application No  
PCT/EP2008/009194

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0949310 A	JP 2002510742 T MX PA00009862 A	09-04-2002 24-04-2002	

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (April 2005)

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP2008/009194
---

<b>A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES</b>				
INV.	B32B7/12	B32B27/08	B32B33/00	C08J5/12
	C08G18/70	B32B37/12	C08G18/79	C09J5/06
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC				
<b>B. RECHERCHIERTE GEBIETE</b>				
Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole ) <b>B32B C0BJ C09J C08G B42D</b>				
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) <b>EPO-Internal, WPI Data</b>				
<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 0 922 720 A (ABEND THOMAS P [CH]) ABEND THOMAS [CH] 16. Juni 1999 (1999-06-16) in der Anmeldung erwähnt Seite 3, Zeilen 23,53, Absätze 12-14,16,18,19,23,39,43,47; Ansprüche 1,8,11,14,17,19 Absatz [0033]			1,2,4,5
X	WO 93/25599 A (ABEND THOMAS P [CH]) 23. Dezember 1993 (1993-12-23) in der Anmeldung erwähnt Seite 9, Absatz 5 – Seite 10, Absätze 4,5; Ansprüche 11-18,25 Seite 11, Absätze 2,3			9,10
A	EP 0 444 259 A (BAYER AG [DE]) 4. September 1991 (1991-09-04) Seite 6, Zeile 31; Ansprüche 1-4,6,7			3
A				9
A				1,3
				-/-
<input checked="" type="checkbox"/>	Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie			
<p>* 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 internationale 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 ausgetragen)      *O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenlegung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht      *P* Veröffentlichung, die vor dem Internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist</p> <p>*T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationale 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 erfindenderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden      *Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfindenderischer 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 nahelegend ist      *8* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist</p>				
Datum des Abschlusses der Internationalen Recherche		Absendedatum des internationalen Recherchenberichts		
29. Januar 2009		05/02/2009		
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchebehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5816 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel: (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Bediensteter <b>Derz, Thomas</b>		

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP2008/009194
---

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 1 600 485 A (BAYER MATERIALSCIENCE AG [DE]) 30. November 2005 (2005-11-30) Absätze [0007], [0008], [0029], [0035], [0037], [0047], [0048], [0058]; Ansprüche 1,9-20	1,4,5
X	DE 196 31 283 A1 (ORGA KARTENSYSTEME GMBH [DE]) 5. Februar 1998 (1998-02-05) Ansprüche 1-5	1,7,8,11
A	EP 0 949 310 A (EFTEC AG [CH]) 13. Oktober 1999 (1999-10-13) Absätze [0002], [0025]; Anspruch 11	4

**INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT**

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen PCT/EP2008/009194
---

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung	
EP 0922720	A	16-06-1999	AT 264351 T AT 203035 T AT 252121 T AU 748817 B2 AU 1330299 A BR 9813562 A CA 2314320 A1 WO 9929755 A1 CN 1284973 A DE 59705314 D1 DE 59809938 D1 DK 1029879 T3 DK 922720 T3 DK 1037935 T3 EP 1029879 A1 EP 1037935 A1 ES 2218026 T3 ES 2161429 T3 ES 2209221 T3 GR 3036520 T3 HK 1034985 A1 ID 24970 A JP 4099312 B2 JP 2001525468 T PT 922720 T PT 1037935 T US 6348548 B1		15-04-2004 15-07-2001 15-11-2003 13-06-2002 28-06-1999 10-10-2000 17-06-1999 17-06-1999 21-02-2001 06-12-2001 20-11-2003 19-07-2004 29-10-2001 16-02-2004 23-08-2000 27-09-2000 16-11-2004 01-12-2001 16-06-2004 31-12-2001 19-11-2004 31-08-2000 11-06-2008 11-12-2001 30-01-2002 31-03-2004 19-02-2002
WO 9325599	A	23-12-1993	CA 2114842 A1 DE 59310300 D1 EP 0598873 A1 ES 2182828 T3 JP 3303885 B2 JP 6509839 T KR 100276573 B1 PT 598873 T		23-12-1993 10-10-2002 01-06-1994 16-03-2003 22-07-2002 02-11-1994 15-12-2000 31-01-2003
EP 0444259	A	04-09-1991	CA 2033740 A1 DE 4002727 A1 JP 3044397 B2 JP 5009391 A		01-08-1991 01-08-1991 22-05-2000 19-01-1993
EP 1600485	A	30-11-2005	AR 049181 A1 BR P10501990 A CA 2508200 A1 CN 1702138 A DE 102004026118 A1 JP 2005336494 A MX PA05005603 A US 2005267255 A1		05-07-2006 24-01-2006 28-11-2005 30-11-2005 15-12-2005 08-12-2005 30-11-2005 01-12-2005
DE 19631283	A1	05-02-1998	KEINE		
EP 0949310	A	13-10-1999	AU 3244299 A BR 9909465 A WO 9951698 A1 DE 59903408 D1 ES 2187190 T3		25-10-1999 19-12-2000 14-10-1999 19-12-2002 16-05-2003

**INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT**

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Anzeichen  
PCT/EP2008/009194

im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0949310 A	JP 2002510742 T MX PA00009862 A	09-04-2002 24-04-2002	

---

フロントページの続き

(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,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,MT,NL,NO,PL,PT,RO,SE,SI,SK,T  
R),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BR,BW,BY,  
BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,D0,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,K  
G,KM,KN,KP,KR,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PG,PH,PL,PT  
,RO,RS,RU,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,ST,SV,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,ZA,ZM,ZW

(72)発明者 ハインツ・ポートライナー  
　　ドイツ47800クレーフェルト、ベテルシュトラーセ39番

(72)発明者 イエルク・ビュックナー  
　　ドイツ51467ベルギッシュ・グラートバッハ、イム・プラッケンブルフ41番

(72)発明者 メーメト・センギズ・イエシルダグ  
　　ドイツ51377レーフエルクーゼン、フリードリッヒシュトラーセ8アーヴ

(72)発明者 クラウス・マイヤー  
　　ドイツ41539ドルマゲン、カミレンシュトラーセ40番

(72)発明者 ハラルト・クラウス  
　　ドイツ51371レーフエルクーゼン、オイレンカンプ13番

F ターム(参考) 2C005 HA30 HB01 KA02 KA37 LA02  
4J040 EF001 HC16 HC25 JA03 JB02 KA16 LA02 LA08 MA10 MB03  
NA21 PA30 PA33 QA02