

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4307710号  
(P4307710)

(45) 発行日 平成21年8月5日(2009.8.5)

(24) 登録日 平成21年5月15日(2009.5.15)

(51) Int.Cl.	F 1
B 32 B 5/18	(2006.01) B 32 B 5/18
C 03 C 27/04	(2006.01) C 03 C 27/04 D
C 08 L 63/00	(2006.01) C 08 L 63/00
C 08 L 67/00	(2006.01) C 08 L 67/00
C 09 J 7/02	(2006.01) C 09 J 7/02

請求項の数 3 (全 42 頁)

(21) 出願番号	特願2000-513732 (P2000-513732)
(86) (22) 出願日	平成10年8月28日(1998.8.28)
(65) 公表番号	特表2001-518408 (P2001-518408A)
(43) 公表日	平成13年10月16日(2001.10.16)
(86) 國際出願番号	PCT/US1998/017856
(87) 國際公開番号	W01999/016618
(87) 國際公開日	平成11年4月8日(1999.4.8)
審査請求日	平成17年8月29日(2005.8.29)
(31) 優先権主張番号	08/941,430
(32) 優先日	平成9年9月30日(1997.9.30)
(33) 優先権主張国	米国(US)

(73) 特許権者	590000422 スリーエム カンパニー
	アメリカ合衆国、ミネソタ 55144-1000, セント ポール, スリーエムセンター
(74) 代理人	100077517 弁理士 石田 敏
(74) 代理人	100092624 弁理士 鶴田 準一
(74) 代理人	100087871 弁理士 福本 積
(74) 代理人	100082898 弁理士 西山 雅也
(74) 代理人	100081330 弁理士 樋口 外治

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】シーラント組成物、シーラント組成物を含む物品、およびその使用方法

## (57) 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

(a) 第1および第2主面を有する適合性、圧縮性、溶融流れ耐性フォームコア層と(b)前記コア層の前記第1主面上の熱硬化性シーラント層とを含み、前記熱硬化性シーラント層は、硬化すると、室温において強くかつ永続的な粘着性を示さず、単に接触させることでは広範な異なる表面にしっかりと接着することができず、前記シーラント層が基材と接触することができる面を有し、そして前記コア層が前記熱硬化性シーラント層の引張り強度以下の引張り強度を有する物品。

## 【請求項 2】

第1基材を第2基材に接合する方法であつて：

10

(a) (1) 有限の厚さを有する縁端領域で分離された第1主面および第2主面を有する第1基材と；

(2) 第1および第2主面を有する適合性、圧縮性、溶融流れ耐性コア層であつて、前記コア層が前記熱硬化性シーラント層の引張り強度以下の引張り強度を有し、前記コア層がその第2主面において、

(i) 前記第1基材の前記第1主面、および/または

(ii) 前記第1基材の前記縁端領域に取り付けられ、

前記コア層が振動減衰性を有するコア層と；

(3) 前記コア層の前記第1主面上に設けられた熱硬化性シーラント層であつて、前記熱硬化性シーラント層は、硬化すると、室温において強くかつ永続的な粘着性

20

を示さず、単に接触させることでは広範な異なる表面にしっかりと接着することができず  
、前記シーラント層が第2基材と接触させることができる面を有するシーラント層とを含む物品を作製し；

(b) 前記シーラント層を第2基材と接触させて、前記シーラント層を介して前記第2基材を前記第1基材と接合させることを含む方法。

【請求項3】

前記第1基材がフロントガラスを含み、前記第2基材が前記フロントガラスを保持するフレームを含む請求項2に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

10

発明の背景

本発明は、2つの基材の間、特に基材の少なくとも一方がガラスである場合の2つの基材の間をシーリングすることに関する。

【0002】

金属製、プラスチック製、または木製のフレームなどの塗装される可能性のあるフレーム内にガラス基材を固定することが必要となる用途は数多く存在する。例えば、自動車製造時および製造後にひびが入ったり破壊された場合のフロントガラスを取り替える時のどちらの場合でも、フロントガラスは自動車の金属製またはプラスチック製フレーム内に固定される。

【0003】

20

ポリウレタンペーストなどの従来のシーラントおよび接着剤を使用してガラスを強固に結合させることは困難である。接着力を増大させるために、通常はフレーム内に挿入する前にガラス表面をプライマー処理する。

【0004】

ポリウレタンペーストは、プライマー処理したガラスとフレームの間を塞ぐために従来使用されている。しかしこのようなペーストは、均一かつ再現性よく使用することが困難である。もう1つの問題は、フレームにガラスを押込むと、結合部分からペーストが流れて押し出されることである。これによって、結合部分の厚さとガラスとフレームの接触点が不均一となり、フレームにかかるあらゆる応力がこれらの点から直接ガラスに伝達されるため、これらの部分で破壊点として作用することがある。このことは、自動車フロントガラスを非常に不均一な表面を有するフレームに取り付ける場合に特に問題となる。この問題に対処するため、通常はフレーム周囲のさまざまな場所に不連続な「スペーサー」を配置する。これらのスペーサーはガラスとフレームの接触点が生じるのを避ける一方、硬化時にシーラントは収縮するがスペーサーは収縮しないためこれらのスペーサーは応力集中点としても作用する。従って、スペーサーに適応させた余分なシーラントの使用が必要となる。

30

【0005】

別の問題が、湿気硬化型などの、硬化して接着力が得られるまでに比較的長時間が必要なポリウレタンシーラントペーストの場合に発生する。この無防備な硬化時間の間に、ガラスがフレーム内で振動してシールとガラスが傷つきやすくなる可能性がある。シールの間隙が、風騒音を増大させ、シールの保全性を損なう可能性がある。振動に関連する騒音も望ましくない。さらに、周囲湿気に依存するということは、硬化工程が周囲条件次第で変動することを意味する。

40

【0006】

発明の要約

第1の態様では、本発明は、(a) 第1および第2主面を有する適合性、圧縮性、溶融流れ耐性フォームコア層と、(b) コア層の前記第1主面上の熱硬化性シーラント層とを含む物品(例えば、テープの形状で)を特徴とする。シーラント層は、基材と接触させることができる面を有する。

【0007】

50

「シーラント組成物」または「シーラント層」は、間隙を充填する材料である。従って、シールを形成する際には、本発明によるシーラント組成物は、シーラント組成物が処理される基材の間隙に流入して間隙を塞ぐことができるように十分低い弾性を有し、シーラントの硬化（熱硬化性シーラント組成物の場合）または冷却による固化（熱可塑性シーラント組成物の場合）の後で、なお基材をシールするように十分に間隙を塞ぐ。基材およびシーラント層のバルク組成物と接触させることができるシーラント層の両方の面はこれらの基準を満たしている。本発明で有用なシーラント組成物は、一度硬化（熱硬化性シーラント組成物の場合）または冷却による固化（熱可塑性シーラント組成物の場合）が起こった場合に非粘着性（すなわち、接触しても粘着性がない）となる。

## 【0008】

10

さらに、本発明のシーラント組成物は、粘着テープ協議会（Pressure Sensitive Tape Council）（PSTC）（Glenvie, IL）の設定した感圧接着剤の定義には適合しない。PSTC用語集（PSTC Glossary of Terms）（1985年8月改訂）によると、感圧接着剤は、室温において強く永続的な粘着性を有し、単に接触させて指または手よりも強い圧力は必要とせずに広範な異なる種類の面にしっかりと接着する。感圧接着剤は、紙、プラスチック、ガラス、木材、セメント、および金属などの材料に対して強い接着保持力を發揮するために水、溶剤、または熱による活性化を必要としない。感圧接着剤は十分に凝集性を保持し弾性を有し、そのため粘着性が強いにもかかわらず、残留物を残すことなくめらかな表面から指でつまんで取り除くことができる。

## 【0009】

20

「熱硬化性」または「熱硬化可能な」組成物は、例えば、好ましくは熱または化学線にさらすことによって（とはいえ湿気暴露または他の化学的手段でも十分となりうる）硬化（すなわち架橋）させて、十実的に不融性（すなわち熱硬化性）の材料を得ることができる組成物である。これらの種々の硬化手段の組み合わせも利用できる（例えば、熱と化学線の組み合わせ化学線）。このような組成物は、硬化剤（例えば、熱活性化または光活性化硬化剤）を含むことができる。

## 【0010】

「熱可塑性」組成物は、加熱による軟化と冷却による固化を繰り返すことが可能な組成物である。

30

## 【0011】

「溶融流れ耐性」材料は、シーラント層が巨視的な流動を示す条件下で巨視的質量流に対して抵抗性を示す材料である。一般的に、溶融流れ耐性材料は、約200を上限とする温度にさらした場合に巨視的質量流に対して抵抗性を示す。

## 【0012】

「適合性、圧縮性」材料は、応力をかけた場合に容易に変形するが、関係のある2つの基材間のシールを確立する時間内に圧力を除去した場合に弾力的に回復する傾向にあ、ただし所与の用途において材料にかけられた応力に依存してある程度の永続的固化または変形が発生することがある材料である。

## 【0013】

40

1つの実施態様では、本発明の熱硬化性シーラント層は、(a)エポキシ樹脂と、(b)ポリアクリレート、半結晶性ポリエステル、およびそれらの組み合わせからなる群より選択される樹脂と、(c)(i)熱活性化温度によって特徴づけられる熱活性化硬化剤および(ii)熱分解温度によって特徴づけられる光活性化硬化剤からなる群より選択される硬化剤との混合物を含む。

## 【0014】

別の実施態様では、熱硬化性シーラント層は、組成物の軟化温度より高温で約200未満に加熱した場合、重力以外の外力が作用するまでその形状を実質的に維持する。このような力には、2つの基材と互いに押し付けることによってシーリングする間に作用する圧力が含まれる。所与の組成物がこの挙動を示すかどうかを決定するための試験の1つは、

50

オープン内である角度に維持された板の上に組成物の試料を置き、試料を所望の温度まで加熱し、ある時間内で試料が初期の形状を失い板の表面を流れ落ちる程度を観察することを含んでいる。この試験は外力をかけないで行うため、このような流動はすべて温度と重力単独の複合効果に起因するものである。この試験は、以下の「実施例」の項でより詳細に説明する。

#### 【0015】

別の実施態様では、本発明のシーラント層は、(a)熱活性化温度によって特徴づけられる熱活性化硬化剤と、(b)熱分解温度によって特徴づけられる光活性化硬化剤とからなる群より選択される硬化剤を含有する熱硬化性シーラント組成物を含む。本発明のシーラント組成物は、硬化させる前に、組成物の軟化温度より高温であるが、(a)硬化剤が熱活性化硬化剤である場合は硬化剤の熱活性化温度または(b)硬化剤が光活性化硬化剤である場合は硬化剤の熱分解温度、より低い温度に加熱した場合に、上に概説した試験手順に従って測定すると、重力以外の外力が作用するまでは組成物はその形状を実質的に維持することを特徴とする。10

#### 【0016】

好ましいシーラント組成物の例としては、エポキシ樹脂と、半結晶性ポリエステルと、(a)熱活性化温度によって特徴づけられる熱活性化硬化剤および(b)熱分解温度によって特徴づけられる光活性化硬化剤からなる群より選択される硬化剤との混合物が挙げられる。このシーラント組成物は、硬化させる前に、ポリエステルの融解温度より高温であるが、(a)硬化剤が熱活性化硬化剤である場合は硬化剤の熱活性化温度または(b)硬化剤が光活性化硬化剤である場合は硬化剤の熱分解温度、より低い温度に加熱した場合に、上に概説した試験手順に従って測定すると、重力以外の外力が作用するまでは組成物はその形状を実質的に維持することを特徴とする。好ましくは、このシーラント組成物は、ポリエステルの融解温度より高温で、約200より低温に加熱した場合、重力以外の外力が作用するまではその形状を実質的に維持する。20

#### 【0017】

コア層は、シーラント層の引張り強度以下の引張り強度を有することが好ましい。好適なコア層の例としては、フォームが挙げられ、連続気泡または独立気泡フォームのどちらであってもよいが独立気泡フォームの方が好ましい。好適なフォームの例としては、ポリアクリルフォーム、ポリウレタンフォーム、ポリオレフィンフォームが挙げられる。感圧接着剤の形態、例えば、感圧接着剤フォームのコア層も有用である。30

#### 【0018】

本発明の物品は、コア層の第2主面上に設けられる接着層をさらに含むことができる。このような実施例では、シーラント層および接着層は互いが断熱されていることが好ましい。

#### 【0019】

第2の態様では、本発明は、(a)第1および第2主面を有する適合性、圧縮性、溶融流れ耐性の熱硬化性コア層と、(b)コア層の前記第1主面上の熱硬化性シーラント層とを含む物品を特徴とする。このシーラント層は、基材と接触させることができる面を有する。熱硬化性コア層は、例えば、独立気泡フォームまたは感圧接着剤によって提供することができる。有用な熱硬化性シーラント層としては、前述のものが挙げられる。40

#### 【0020】

第3の態様では、本発明は、(a)第1および第2主面を有する適合性、圧縮性、溶融流れ耐性コア層と、(b)コア層の前記第1主面上の熱可塑性シーラント層を含む物品を特徴とする。シーラント層は、基材と接触させることができると有し、ポリウレタン、ポリエステル、芳香族ポリマー含有ブロックコポリマー、およびシリコーン類からなる群より選択される熱可塑性ポリマーから作られる。有用なコア層としては、前述のものが挙げられる。

#### 【0021】

第4の態様では、本発明は、(a)第1および第2主面を有する適合性、圧縮性、溶融流50

れ耐性熱硬化性コア層と、(b)前記コア層の前記第1主面上にあり基材と接触させることができる面を有するシーラント層と、(c)前記コア層の第2主面上にあり第2基材と接触させることができる面を有する熱硬化性接着層とを含む物品を特徴とする。有用なコア層およびシーラント層としては前述のものが挙げられる。

#### 【0022】

第5の態様では、本発明は、(a)有限の厚さの縁端領域で分離された第1主面および第2主面を有する基材と；(b)第1および第2主面を有する適合性、圧縮性、溶融流れ耐性コア層と；(c)コア層の第1主面上に設けられ第2基材と接触させることができ面を有する熱硬化性シーラント層とを含む物品を特徴とする。好適なコア層およびシーラント層の例としては前述の材料が挙げられる。コア層はその第2主面を、(i)基材の第1主面および／または(iii)基材の縁端領域と貼り合わせる。コア層は物品に振動減衰性を与える。10

#### 【0023】

本発明は、シーラント層を第2基材と接触させて、シーラント層を介して第2基材と第1基材を接合することによってこれらの物品を第2基材と接合する方法も特徴とする。

#### 【0024】

好ましい基材の例はガラスであり、例えば、自動車への使用に適合させたフロントガラスが挙げられる。このような基材は、例えば、金属基材、塗装基材（例えば、塗装金属基材）、そしてフロントガラスの場合には自動車に見られる種類のフレームと接合することができる。表面エネルギーのより高い基材が互いを接合するために特に有用である。第2基材の別の例としては、シーラントが設けられる物品を内部に配置することができるU字型プラケットが挙げられる。20

#### 【0025】

1つの実施態様では、フロントガラスまたは溝に取り付けられる基材の場合に特に有用なことは、基材の第1主面が第1周囲部によって特徴づけられ、前記基材の第2主面が第2周囲部によって特徴づけられ、コア層の第2主面を、(i)第1基材の第1主面の周辺全体をコア層が実質的に取り囲むように基材の第1主面と張りつける、および／または(iii)コア層が縁端領域を実質的に取り囲むように基材の縁端領域と張りつけることである。30

#### 【0026】

第6の態様では、本発明は、(a)第1周囲部で特徴づけられる第1主面と第2周囲部で特徴づけられる第2主面とを有し第1および第2主面は有限の厚さの縁端領域で分離される基材と；(b)第1および第2主面を有する適合性、圧縮性、溶融流れ耐性コア層と；(c)コア層の第1主面上に設けられたシーラント層と；(d)シーラント層を介して第1基材と接合した第2基材とを含む物品を特徴とする。コア層はその第2主面が、(i)第1基材の第1主面の周辺全体をコア層が実質的に取り囲むように基材の第1主面と張りつけられる、および／または(iii)コア層が縁端領域を実質的に取り囲むように基材の縁端領域と張りつけられる。コア層は物品に振動減衰性を与える。好適なコア層およびシーラント層例としては、前述した材料が挙げられる。40

#### 【0027】

好ましい実施態様の1つでは、第1基材はガラスを含み、第2基材は金属を含む。第2の好ましい実施態様では、第1基材はガラスを含み、第2基材は塗装基材（例えば、塗装した金属基材）を含む。特に好ましい実施態様の1つでは、第1基材はフロントガラスであり第2基材はフロントガラスを支持するためのフレーム（例えば、自動車内に形成される）である。

#### 【0028】

第7の態様では、本発明は、エポキシ樹脂と、半結晶性ポリエチルと、(a)熱活性化温度によって特徴づけられる熱活性化硬化剤および(b)熱分解温度によって特徴づけられる光活性化硬化剤からなる群より選択される硬化剤との混合物を含むシーラント組成物を特徴とする。このシーラント組成物は、硬化させる前に、ポリエチル50

の融解温度より高温であるが、(a)硬化剤が熱活性化硬化剤である場合は硬化剤の熱活性化温度または(b)硬化剤が光活性化硬化剤である場合は硬化剤の熱分解温度、より低い温度に加熱した場合に、上に概説した試験手順に従って測定すると、重力以外の外力が作用するまでは組成物はその形状を実質的に維持することを特徴とする。

#### 【0029】

好ましい実施態様では、このシーラント組成物は、例えば、粒子(シリカ粒子など)、チョップトファイバー、バブル(ガラス、セラミックまたはポリマー製バブルなど)、およびそれらの組み合わせからなる群より選択される接着性付与剤をさらに含む。硬化させる前に、この組成物は、ポリエステルの融解温度より高温で200よりも低い温度に加熱した場合に、重力以外の外力が作用するまではその形状を実質的に維持することが好ましい。10

#### 【0030】

本発明は、少なくとも基材の一方がガラスである場合に特に有用である、2つの基材間にシーリングするためのテープなどの物品の形状の使いやすいシーラントを提供する。このシーラントと一方の基材を、使いやすい1つの物品の形態で提供することができる。このシーラントは、均一かつむらなく使用することができ、基材をフレーム内に押込んだ場合に過度に押し出されることはない。従って、シーリング作業の後の清浄化が簡略化される。このシーラントはプライマーなしで使用することもできる。

#### 【0031】

2つの基材の間に一度配置すると、好ましいシーラントは急速に強度を有するようになり、良好な未硬化強度を有するシーリングが形成される。従ってこのため、シーリング作業の間に基材の一方または両方を保持するための特別の対策の必要が最小限となるかまたは不用となる。強度が急速に確立されるため、フレームに対する基材の移動によって起こりうるものなどの完全硬化の前に基材上にかかる応力に関する問題も解消される。従って、例えば、フロントガラスの取り付けの場合には、硬化が完了する前に、新しく取り付けたフロントガラスを自動車内で保持しなくてもよいようにすることが可能である。20

#### 【0032】

未硬化時硬度が急速に得られる能力と、プライマー処理や結合物からはみ出した過剰のシーラントの清浄化などの工程段階を省略することができる能力とを合わせると、シーリング工程が簡略化される。言い換えると、このことによって、自動車組立ラインにおけるシーラントの使用が容易になる。さらに、これによって自動車組立工程における自由度が高まる。例えば、自動車を製造ラインから外す前にシーラントを硬化させるため製造工程の早い段階でフロントガラスを取り付ける代わりに、製造工程の後の方でフロントガラスの取り付けを行うことが可能となる。30

#### 【0033】

好ましいシーラントは、組成物が熱または化学線にさらされるまでは硬化が開始しないため、品質を低下させることなく長期間保存することができる。好都合なことに、好ましい熱または化学線硬化性シーラントは、湿気硬化シーラントなどの温度および湿気感受性材料の有用性を制限しうる周囲条件とは比較的無関係に硬化する。

#### 【0034】

硬化後には、このシーラントは、良好な引張り強度を有する強靭で成形可能な材料となる。従って、例えば、自動車の使用において遭遇する種類の周囲湿気および応力にシール部分がさらされた場合でさえも基材とフレームの間に良好なシールが維持される。さらに、このシーラントは、硬化時の収縮が少なく、そのため、シールが維持され基材への応力が最小限となる。特にガラス基材の場合には、このような応力はガラスのひび割れの原因となりうる。40

#### 【0035】

圧縮性、適合性コア層は、一体的な接着層スペーサーとして作用し、フレーム内で基材がその上で浮動する振動減衰クッションとなる。基材表面の周囲を実質的に連続的に取り囲むことが好ましいため、物品が通常の使用条件においてさらされる応力を吸収し散逸する50

ために好都合となりうる。さらなる利点として、高剪断速度の破壊的衝撃において、好ましい構造では、基材にかかった応力を伝達することができる。さらに、コア層の圧縮性と適合性によってシーリング能力を高めることができ、これによって必要なシーラント量を減少させ、はみ出すシーラント量を減少させることができる。

#### 【0036】

他の特徴および利点は、それらの好ましい実施例および特許請求の範囲についての以下の説明によって明らかとなるであろう。

#### 【0037】

##### 好ましい実施例の詳細な説明

物品

10

図1に、2つの基材間をシーリングするために有用なテープの形態の多層物品10を示す。テープ10は、シーラント層12と、コア層14と、任意選択の接着層16と、任意選択で一時的に使用する接着層(存在する場合)またはコア層の保護のための剥離可能ライナー18とを特徴とする。ライナー18は、保護する面を取り付ける前に除去する。あるいは、任意である接着層16は、任意選択の第2シーラント層で置き換えることができる。

#### 【0038】

好都合なことには、図面には別個に示していないが、保管、輸送、取り扱いおよび使用が容易となるように、テープ10はロールの形態で提供することができる。このような構造では、通常テープ10は、慣習的に約7.6cmの直径の紙またはプラスチックの芯に巻きつけられる。このような構造では、テープは一時的な剥離可能ライナーと合わせて巻きつけることができ、これによってロールに巻きつけられ隣接する部分を分離することができる。ロール形態のテープ10の設計は、通常の温度および湿度の周囲条件で保管した場合に、物品中のコア層14の永久ひずみの発生、物品の最も幅のある層を越えた物品の任意の層のはみ出し、または物品のわん状変形の起こりうる力を作用させないで容易に巻き上げられるような厚さおよび弾性率を有するシーラント層を選択することによって容易になる。

20

#### 【0039】

テープ10は種々の基材間のシーリングに使用することができる。基材は、互いに同種でも異種であってもよい。好適な基材の例としては、ガラス、金属、プラスチック、木材、およびセラミックスの基材が挙げられる。代表的なプラスチック基材としては、ポリ塩化ビニル、エチレン-プロピレン-ジエンモノマーゴム、ポリウレタン、ポリメタクリル酸メチル、エンジニアリング熱可塑性樹脂(例えば、ポリフェニレンオキシド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリカーボネート)、および熱可塑性弹性オレフィンを含めた熱可塑性エラストマーが挙げられる。ガラス、およびガラスの代わりに使用することができるポリマー(例えば、ポリカーボネートやポリメタクリル酸メチル)は、グレージング材料とも呼ぶことができる。テープ10は、金属、塗装した金属、および多くの種類のポリマーなどのより高い表面エネルギー(Zisman臨界ぬれ張力測定値が35mJ/m<sup>2</sup>を超える)を有する基材のシーリングに特に効果的である。基材の表面は、例えば、塗料、耐摩耗性コーティング層、またはぎらつき防止コーティング層をコーティングしてもよい。例えば、フロントガラスの場合、ガラスはセラミックフリット層を含むことができる。

30

#### 【0040】

テープ10は、ガラス基材と、例えば、金属およびプラスチック基材とをシーリングするために特に有用である。例えば、物品10は、フロントガラスと自動車の金属またはプラスチック製フレームとを封着するために特に有用である。

40

#### 【0041】

コア層14シーラント層12を支持する。コア層14の目的の1つは、テープ10を1組の基材間を封着するために使用する場合の一体的スペーサーとして作用させることである。従って、テープを取り付けた基材をもう一方の基材に圧力をかけて取り付ける間に、シーラントが移動した場合に2つの基材が接触するのをコア層14が防止する。生じる応力

50

によってガラスが破壊されることがあるので、このような接触は基材の一方がガラスである場合は特に望ましくない。またコア層14は、シーラントの硬化によって生じる応力を散逸させ、これによってシーリングにおける応力が最小限になる。

#### 【0042】

コア層14は、2つの基材を一度互いにシーリングした後で種々の振動数の基材の動きに関連する雑音を最小限にする内部振動減衰材として作用することも好ましい。またコア層は、コア層の取り付けられる基材を、基材への応力の伝達およびもう一方の基材からの応力の伝達から隔離する。例えば、自動車に取り付けられるフロントガラスの場合は、コア層はガラスに風が当ることで生じる振動、および自動車フレームから生じる振動を減衰させる。

10

#### 【0043】

コア層14の別の機能は、シーラント層12を接着層16から断熱することであり、これは接着層がテープ10と一体であるか、テープの使用の前に基材表面に別々に取り付けられるかのどちらであるかとは無関係である。このように、シーラントと接着層に起こりうるそれぞれの硬化反応は、互いに分離させることができ、テープを複数の段階で硬化させる自由度が付与される。シーラントおよび接着層の組成物に関する組成の自由度が増加するという利点も得られる。

#### 【0044】

コア層14のさらに別の機能は、テープの凝集破壊が（テープ／基材境界面の破壊とは対照的に）シーラント層または接着層（存在する場合）よりもコア層で優先的に発生するような破壊区域として作用することである。この特徴は、フロントガラスなどのガラス基材を自動車の金属製またはプラスチック製フレームと接着する場合に特に好都合であり、その理由は、応力がかかった場合にガラスとテープの間、およびテープと自動車の間の接着が損なわれず、そのため全体の性能が向上させることができるからである。

20

#### 【0045】

これらの機能を実現するために、コア層14は圧縮性で適合性となるように設計される。これらの特徴によって、コア層14が、例えば、テープが取り付けられる基材のクッショニングになり、シーリングした構造物にかかる応力を吸収および分散させることができる。さらに、圧縮性および適合性が、車体との完全な接触およびシール形成の助けとなる。

#### 【0046】

コア層14は、シーリング操作中に使用される温度および圧力にさらされた場合に巨視的な質量流に抵抗するような溶融流れ耐性をもつようにも設計される。

30

#### 【0047】

テープ10の凝集破壊を促進するために、コア層14は、シーラント層または接着層（存在する場合）のいずれかよりも弱くなるように配合されることが好ましい。すなわち、コア層の極限引張り強度はシーラント層または接着層（存在する場合）のいずれかの極限引張り強度以下であり、それによってコア層内での凝集破壊が促進される。例えば、以下の「実施例」の項に記載の試験手順に従って測定した場合、コア層の極限引張り強度は、シーラント層または接着層のいずれかの極限引張り強度の約80%以下が好ましい。「極限引張り強度」は、以下の「実施例」の項で指定した温度および湿度条件で測定した、テープのそれぞれの熱硬化性層をすべて硬化させた後における引張り強度を意味する。

40

#### 【0048】

通常、コア層14は、以下の「実施例」の項に記載の試験手順に従って測定した極限引張り強度が約6.9 MPa以下、好ましくは約5.2 MPa以下、より好ましくは約3.5 MPa以下である。特定の最大引張り強度値は、テープ10の使用を意図している用途の関数である。例えば、自動車に取り付けられるフロントガラスの場合、コア層の極限引張り強度が約3.5 MPa以下であることが好ましい。

#### 【0049】

凝集破壊をコア層にさらに局在化させるために、連結層（図面中には単独では示していない）をシーラント層とコア層の間に配置して、これら2層の間の接着性を向上させること

50

ができる。同様に第2連結層（これも図面中には単独では示していない）をコア層と接着層（存在する場合）の間に配置することができる。それぞれの層の間の接着力を向上させることで、破壊モードがテープ／基材の境界面における破壊ではなくコア中の凝集破壊となる可能性が増大する。

#### 【0050】

連結層に有用な材料としては、例えば、ポリマーフィルム、感圧接着剤、圧力活性化接着剤、熱活性化接着剤などが挙げられ、いずれも潜在的に硬化性であってもなくてもよい。連結層の選択は、それぞれの層の組成に基づくことが多い。例えば、酸官能基を有するコアおよびシーラント層の場合、熱可塑性ポリアミド類が有用な連結層である。エポキシ含有シーラント層とアクリル系コアの場合、エポキシとポリアミドの混合物の水性分散液が有用である。このような分散液としては、Union Camp Corp. (Wayne, NJ) より市販される商品名Micromid™ 142LTがある。テープ10の個々の層の間の接着力を向上するための他の方法としては、カルボン酸基などの官能基を有するコア層を作製して、コア層がシーラント層、接着層、またはその両方と共有結合できるようにする方法がある。コア層の表面を、例えば、コロナ放電によって処理して、隣接する層との接着力を向上させることもできる。

#### 【0051】

コア層14の厚さは、コア層が結合部分のスペーサーとして機能するため、そして好ましくは振動減衰および断熱性も機能するために十分である必要がある。所与のコア層の個々の厚さは、テープ10に意図される用途に基づいて選択される。例えば、自動車フロントガラスの取り付けの場合、コア層の厚さは、フロントガラスの設計されるフレーム内にテープが適合できるように十分薄いことが必要である。通常、コア層14の厚さは、少なくとも約1mm、好ましくは少なくとも約2mm、より好ましくは少なくとも約3mmである。

#### 【0052】

コア層14的好ましい材料は粘弾性材料である。これらの材料は熱可塑性でも熱硬化性でもよいが、熱硬化性材料が好ましい。コア層14に適した材料の例としては、ポリアクリレートおよびポリウレタンなどの熱硬化性材料と、エチレン-酢酸ビニルコポリマーなどの熱可塑性材料とが挙げられる。好適な市販材料の一例としては、3M Companyより商品名Structural Bonding Tape No. 9214で販売されるものが挙げられる。

#### 【0053】

ポリウレタン系コア層は、固体エラストマーまたは発泡フォームの形態として得ることができ、1液性または2液性組成物から生成することができる。1液性組成物は、水分により活性化するものでもよく、水の場合では、意図的に導入するかまたは大気から得ることによって硬化反応が開始する。あるいは、ブロックイソシアネートを使用することができ、加熱することで脱ブロックして硬化反応を開始する。2液性ウレタンは、1種類以上のイソシアネート系樹脂を含有する第1成分と、1種類以上のポリオールおよび硬化剤を含有する第2成分とを含む。

#### 【0054】

感圧接着剤も適している。このような接着剤は、継手、好ましくは側方継手、そぎ継ぎ、または突合せ継手などのテープ端が同じ面内に残る継手の形態でテープ10の自由端を互いに融合させて連続的シールを得ることができる。さらに、コア層14が感圧接着剤の形態の場合、コア層を直接基材と接着させて、それによって別の接着層（一体またはその他）の必要をなくすことが可能である。

#### 【0055】

好ましくは、コア層14はフォームの形態であり、熱硬化性アクリルフォームが特に好ましい。フォームは連続気泡または独立気泡のどちらの構造であってもよいが、独立気泡フォームが好ましい。好適なフォームの例は、例えばLevensに付与された米国特許第4,223,067号、およびEsmaryに付与された米国特許第4,415,615

10

20

30

40

50

号に記載されている。ポリエチレンおよびエチレン酢酸ビニルを主成分とするフォームも使用することができ、これらは押出し機から樹脂組成物を押出して架橋の前または後で材料を発泡させることで通常は製造される。これらの種類のフォームの市販の供給元としては、Voltek Div. of Sekisui America Corp. (Lawrence, MA) またはSentinel Products Corp. (Hyannis, MA) が挙げられる。

#### 【0056】

コア層14に混入することができる他の材料としては、例えば、安定剤、酸化防止剤、可塑剤、粘着性付与剤、流動性調節剤、接着促進剤（例えば、シラン類およびチタン酸塩類）、着色料、チキソトローブ剤、および他の充填剤が挙げられる。

10

#### 【0057】

シーラント層12は連続層の形態が好ましい。しかし、熱および圧力をかけてシーラントを融合することで最終物品において効果的なシールが形成される限りは不連続層も使用することができる。不規則な表面への良好なシールを得る助けとして、第2基材のシーリングに使用されるシーラント層12の表面にしづを付けることができる。さらに、単層および多層シーラント組成物の両方が想定されている。

#### 【0058】

本発明において有用なシーラント組成物は、一度硬化させた（熱硬化性シーラント組成物の場合）あるいは冷却して固化させた（熱可塑性シーラント組成物の場合）場合に非粘着性（すなわち、接触しても粘着性がない）である。このような組成物の供給を容易にし、テープロールの形態である場合のテープ10の製造および取り扱いを容易にするために、シーラント組成物は周波数1Hzで測定した室温（すなわち、約23）剪断弾性率が、少なくとも約 $3 \times 10^6$  dyn/cm<sup>2</sup>、より好ましくは約 $10^7 \times 10^{10}$  dyn/cm<sup>2</sup>であることが好ましい。

20

#### 【0059】

シーラント層12の厚さはその用途に依存する。しかし一般に、シーラント層12の幅はコア層14の幅以下の長さである。

#### 【0060】

シーラント層12の目的は、1組の基材の間のシールを確立し維持することであるシーラントは、コア層における破壊の局在化を促進するために、硬化（熱硬化性材料の場合）冷却（熱可塑性材料の場合）の後で比較的高い極限引張り強度を有するが脆くならないように設計される。個別の最小引張り強度値は用途に依存する。しかし一般に、以下の「実施例」の項に記載する試験手順に従って測定した場合、引張り強度は、少なくとも約3.5 MPa、好ましくは少なくとも約5.2 MPa、より好ましくは少なくとも約6.9 MPa程度である。例えば、自動車に取り付けられるフロントガラスの場合、シーラント層の極限引張り強度は約3.5 MPaを超えることが好ましい。

30

#### 【0061】

シーラント組成物を流しこんでシールを形成（例えば、熱および/または圧力を加えることによって）させた後で、シーラント層12は、短時間で凝集力が得られるように設計されることが好ましく、これによって優れた未硬化時強度が得られる。強度が得られる速度の指標の1つは、以下の「実施例」の項に記載される試験手順に従って測定したコア層に対するシーラント層の重なり剪断接着力である。最初に熱および圧力を適応してから約30分以内、より好ましくは約15分以内、さらにより好ましくは5分以内にシーラント層の重なり剪断接着力が、コア層の重なり剪断接着力を超えることが好ましい。当然ながら、シーラント組成物もシーリングを意図する基材表面に対して十分な接着力を示す必要があり、希望する接着力はその用途に依存しうることが理解できよう。これは、好ましくは少なくとも約25 psi、より好ましくは少なくとも約50 psi、最も好ましくは少なくとも約100 psiの剪断接着力値によって反映される。しかしある種の用途では、少なくとも約300 psi、より好ましくは少なくとも約500 psi、さらにより好ましくは少なくとも約700 psiなどのより高い値が望ましいこともある。このような値は

40

50

、厚さ約0.9mmの電着塗装スチール基材(すなわち、Advanced Coating Technologies Inc.(Hillsdale, MI)より入手したED-5100コーティングパネルを使用)と、Hiawatha Panel & Name Plate Co., Inc.(Minneapolis, MN)より入手した陽極処理アルミニウム基材の間に厚さ約1mmのシーラント層を配置した場合のジョー移動速度50.8mm/minでの剪断接着力測定を参照したものである。

#### 【0062】

シーラント層12の厚さは、物品10に意図される特定のシーリング用途の関数である。しかし通常はシーラント層12の厚さは、少なくとも約0.25mm、好ましくは少なくとも約1mm、より好ましくは少なくとも約1.5mmであり、これらの厚さは、ロール状のテープの形態の物品10を提供するためにも有用である。ある用途では、コア層14とシーラント層12の相対的な厚さは、シーラント層上のコア層によって作用する圧縮力が基材の良好なシールの形成に寄与があるので、多層物品の性能に影響を与えることがある。従って、いくつかの事例では、シーラント層12の厚さが、コア層14の厚さの少なくとも30%、より好ましくはコア層の厚さの少なくとも50%となることが望ましいこともある。

#### 【0063】

溶融流動性組成物をシーラント層12に使用することができる。好適な組成物としては、エポキシ樹脂などの熱硬化性材料、または混和性混合物または物理的混合物を形成するこのような材料と熱可塑性材料の組み合わせが挙げられる。このような混合物の例は、例えば、Johnsonら、"Melt-Flowable Materials and Method of Sealing Surface"(「溶融流動性材料および表面のシーリング方法」)、1995年4月12日出願、出願番号第08/421,055号(本出願と同一の譲受人に譲渡され、その記載内容を本願明細書に引用する)、および(b)Kitanoらに付与された米国特許第5,086,088号(この記載内容も本願明細書に引用する)に記載されている。

#### 【0064】

材料の好適な種類の1つとして、前述のJohnsonらの出願に記載されるような、エポキシ樹脂とポリエステルなどの半結晶性ポリマーとの混合物が挙げられる。シーラント強度の短時間での確立に貢献し、未硬化時に良好な強度を有するシールが得られるので、半結晶性ポリマーは好都合である。

#### 【0065】

「半結晶性」であるポリマーは、示差走査熱分析(DSC)で測定した場合に結晶融点を示し、好ましくは約200の最高融点を示す。またポリマーの結晶性は、加熱して非晶質状態にしたシートを冷却する際の曇りまたは不透明化として観察される。このポリマーを加熱して溶融状態にしてライナー上にナイフコーティングしてシートを作製した場合、シートは非晶質で、透明でよく光が透過することが観察される。シート材料中のポリマーが冷却されると、結晶領域が形成され、結晶化はシートの半透明または不透明状態への曇りが特徴である。ポリマーの結晶化度は、非晶質ポリマーと結晶性の程度の異なる半結晶性ポリマーとの任意の相溶性の組み合わせの混合によって変動させることができる。シートの曇りによって、ポリマーである程度結晶化が起こったことを調べるための簡便な非破壊的方法が得られる。使用の際に、エポキシ含有材料とポリエステル成分の混合物を主成分とする好ましいシーラントが軟化して、流動し、シーリングする面の間隙を満たすと、エポキシ樹脂とポリエステル成分が均一系を形成し、このことは肉眼によって巨視的な相分離が見られないことから確認できる。

#### 【0066】

ポリマーは、所与の温度における結晶化の速度を調整し、これによって未硬化強度が強まる速度を調整するための成核剤を含むことができる。有用な成核剤としては、ミクロクリスタリンワックスが挙げられる。好適なワックスは、例えばPetrolite Corp.販売のUnilin<sup>TM</sup> 700が挙げられる。

10

20

30

40

50

## 【0067】

好みしいポリエステル類は、室温で半結晶性となる水酸基末端およびカルボキシル基末端ポリエステル類である。存在することができる他の官能基としては、-NH、-CONH、-NH<sub>2</sub>、-SH、無水物基、ウレタン基、およびオキシラン基が挙げられる。

## 【0068】

好みしいポリエステルは室温でも固体である。好みしいポリエステル材料は、数平均分子量が約7,500～200,000、より好みしくは約10,000～50,000、最も好みしくは約15,000～30,000である。

## 【0069】

本発明に有用なポリエステル成分は、ジカルボン酸類（または無水物を含めたそれらのジエステル同等物）とジオール類の反応生成物より構成される。二酸類（または字エステル等価物）は、4～12個の炭素原子を含有する飽和脂肪族二酸（環に5～6個の炭素原子を有する分岐、非分岐、または環状物質を含む）および／または8～15個の炭素原子を含有する芳香族酸であってもよい。好適な脂肪族二酸の例としては、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スペリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、1,12-ドデカン二酸、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、1,3-シクロペンタンジカルボン酸、2-メチルコハク酸、2-メチルペンタン二酸、3-メチルヘキサン二酸などが挙げられる。好適な芳香族酸としては、テレフタル酸、イソフタル酸、フタル酸、4,4'-ベンゾフェノンジカルボン酸、4,4'-ジフェニルメタンジカルボン酸、4,4'-ジフェニルチオエーテルジカルボン酸、および4,4'-ジフェニルアミンジカルボン酸が挙げられる。好みしくは二酸の2つのカルボキシル基の間の構造に炭素と水素のみを含み、より好みしくは、その構造がフェニレン基である。上述の二酸の混合物も使用することができる。

## 【0070】

ジオール類としては、2～12個の炭素原子を有する分岐、非分岐、または環状脂肪族ジオール類が挙げられる。好適なジオールの例としては、エチレングリコール、1,3-ブロピレングリコール、1,2-ブロピレングリコール、1,4-ブタンジオール、1,3-ブタンジオール、1,5-ペンタンジオール、2-メチル-2,4-ペンタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、シクロブタン-1,3-ジ(2'-エタノール)、シクロヘキサン-1,4-ジメタノール、1,10-デカンジオール、1,12-ドデカンジオール、およびネオペンチルグリコールが挙げられる。アルキレン基が2～9個の炭素原子、好みしくは2～4個の炭素原子を含有するポリ(オキシアルキレン)グリコール類を含む長鎖ジオール類も使用することができる。上記ジオール類の混合物も使用することができる。

## 【0071】

有用な市販の水酸基末端ポリエステル材料としては、Hulls America, Inc.より入手できる種々の飽和線状半結晶性コポリエステルが挙げられ、例えばDynapol<sup>TM</sup> S330、Dynapol<sup>TM</sup> S1401、Dynapol<sup>TM</sup> S1402、Dynapol<sup>TM</sup> S1358、Dynapol<sup>TM</sup> S1359、Dynapol<sup>TM</sup> S1227、およびDynapol<sup>TM</sup> S1229が挙げられる。Hulls America, Inc.より入手できる有用な飽和線状非晶質コポリエステルとしてはDynapol<sup>TM</sup> S1313およびDynapol<sup>TM</sup> S1430が挙げられる。

## 【0072】

有用なエポキシ含有材料は、開環反応によって重合可能なオキシラン環を少なくとも1つ有するエポキシ樹脂である。このような材料は、大まかに言えばエポキシドと呼ばれるもので、モノマー性およびポリマー性の両方のエポキシドが含まれ、脂肪族、脂環式、または芳香族のいずれでもよい。一般にこれらの材料は1分子当たり平均で少なくとも2つのエポキシ基（好みしくは1分子当たり2つを超えるエポキシ基）を有する。1分子あたりのエポキシ基の「平均」の数は、エポキシ含有材料中に存在するエポキシ基数を、存在するエポキシ分子の総数で割ったものとして定義される。ポリマー性エポキシドとしては、末端

10

20

30

40

50

エポキシ基を有する線状ポリマー（例えば、ポリオキシアルキレングリコールのジグリシジルエーテル）、骨格オキシラン単位を有するポリマー（例えば、ポリブタジエンポリエポキシド）、および側基のエポキシ基を有するポリマー（例えば、グリシジルメタクリレートポリマーまたはコポリマー）が挙げられる。エポキシ含有材料の分子量は58～約100,000以上を変動することができる。種々のエポキシ含有材料の混合物も使用することができる。

#### 【0073】

有用なエポキシ含有材料としては、エポキシシクロヘキセンカルボキシレート類などのシクロヘキセンオキシド基を含有するものが挙げられ、代表的なものとしては、3,4-エポキシシクロヘキシルメチル-3,4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート、3,4-エポキシ-2-メチルシクロヘキシルメチル-3,4-エポキシ-2-メチルシクロヘキサンカルボキシレート、およびビス(3,4-エポキシ-6-メチルシクロヘキシルメチル)アジペートが挙げられる。この種類の有用なエポキシドのより詳細な一覧のためには、米国特許第3,117,099号を参照することができる。

#### 【0074】

特に有用なさらなるエポキシ含有材料は、多価フェノールを例えば、エピクロロヒドリンと反応させることで得られる多価フェノール類のグルシジルエーテル（例えば、2,2-ビス-(2,3-エポキシプロポキシフェノール)プロパンのジグリシジルエーテル）などのグリシジルエーテルモノマー類である。本発明の実施に使用することができるこの種類のエポキシドのさらなる例は、米国特許第3,018,262号に記載されている。エポキシ含有材料を主成分とする他の有用なグリシジルエーテルは、米国特許第5,407,978号に記載されている。

#### 【0075】

使用することができる市販のエポキシ含有材料は多数存在する。特に、容易に入手できるエポキシドとしては、オクタデシレンオキシド、エピクロロヒドリン、スチレンオキシド、ビニルクロロヘキセンオキシド、グリシドール、グリシジルメタクリレート、ビスフェノールAのジグリシジルエーテル（例えば、EPONSU-8、EPON SU-2.5、EPON 828、EPON 1004F、およびEPON 1001Fの商品名でShell Chemical Co.社より、DER-332およびDER-334の商品名でDow Chemical Co.社より入手できるもの）、ビスフェノールFのジグリシジルエーテル（例えば、Ciba-Geigy社のARALDITE GY281）、ビニルクロロヘキセンジオキシド（例えば、Union Carbide Corp.社(Danbury, CT)のERL-4206）、3,4-エポキシシクロヘキシルメチル-3,4-エポキシシクロヘキセンカルボキシレート（例えば、Union Carbide Corp.社のERL-4221）、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル-5,5-スピロ-3,4-エポキシ)シクロヘキサンメタジオキサン（例えば、Union Carbide Corp.社のERL-4234）、ビス(3,4-エポキシシクロヘキシル)アジペート（例えば、Union Carbide Corp.社のERL-4299）、ジペンテンジオキシド（例えば、Union Carbide Corp.社のERL-4269）、エポキシ化ポリブタジエン（例えば、FMC Corp.社のOXIRON 2001）、エポキシラン類（例えば、Union Carbide Corp.社より入手できる- (3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシランや-グリシドキシプロピルトリメトキシラン）、難燃性エポキシ樹脂（例えば、Dow Chemical Co.社より入手できる臭素化ビスフェノール型エポキシ樹脂のDER-542）、1,4-ブタンジオールジグリシジルエーテル（例えば、Ciba-Geigy社のARALDITE RD-2）、水素化ビスフェノールA-エピクロロヒドリン系エポキシ樹脂（例えば、Shell Chemical Co.社のEPONEX 1510）、およびフェノールホルムアルデヒドノボラックのポリグリシジルエーテル（例えば、Dow Chemical Co.社のDEN-431とDEN-438）が挙げられる。

10

20

30

40

50

## 【0076】

有用な光活性化硬化剤は、陽イオン系であり、芳香族ヨードニウム錯塩、芳香族スルホニウム錯塩、およびメタロセン塩が挙げられ、例えば、米国特許第5,089,536号( Palazzottoに付与された)に記載されている。米国特許第5,252,694号(will et alに付与された)に記載されるように、過酸化物およびシユウ酸エステル類をメタロセン塩と合わせて使用することで硬化速度を増大させることができる。有用な市販の光活性化硬化剤としては、芳香族スルホニウム錯塩のFX-512(3M Company社)、芳香族スルホニウム錯塩のCD-1010(Sartomer社)、ジアリールヨードニウム錯塩のCD-1012(Sartomer社)、芳香族スルホニウム錯塩(Union Carbide Corp.社)、芳香族スルホニウム錯塩のUV-I-6974(Union Carbide Corp.社)、およびメタロセン錯塩のIRGACURE 261(Ciba-Geigy社)が挙げられる。例えば、光活性化硬化剤の効率の向上および/または光活性の波長の波長の調整のために光増感剤も加えることができる。光増感剤の例としては、ビレン、フルオロアントレン、ベンジル、クリセン、p-テルフェニル、アセナフテン、フェナントレン、ビフェニル、およびカンファーキノンが挙げられる。

## 【0077】

種々の熱活性化硬化剤も本発明の組成物に加えることができる。例えば、有用な熱活性化硬化剤としては、アミン型、アミド型、ルイス酸錯体型、および無水物型の物質が挙げられ、好ましいものとしてはジシアンジアミド、イミダゾール類、およびポリアミン塩が挙げられる。これらは様々な供給元より入手でき、例えば、Omicron Chemical社より入手できるOmicure<sup>TM</sup>、Ajinomoto Chemical社より入手できるAji-cure<sup>TM</sup>、およびAir Products社より入手できるCurezol<sup>TM</sup>が挙げられる。

## 【0078】

ある場合には、組成物に硬化促進剤を加えると好都合となることもあり、それによってより低い温度で完全に硬化するか、またはより短時間の加熱で完全に硬化する。イミダゾール類が有用であり、その好適な例としては、2,4-ジアミノ-6-(2'-メチルイミダゾリル)エチル-s-トリアジンイソシアヌレート、2-フェニル-4-ベンジル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール、およびNi-イミダゾールフタレートが挙げられる。

## 【0079】

シーラント層14のための他の有用な混合物としては、例えば、Kitanoらに付与された米国特許第5,086,088号に記載されるようなエポキシ-アクリレート混合物が挙げられる。これらの混合物は、(i)アクリル酸またはメタクリル酸のエステルのプレポリマー性(すなわち、通常約100~10,000センチポイズの間の部分的に重合した粘稠シロップ)またはモノマー性シロップ；(ii)任意に強化コモノマー；(iii)エポキシ樹脂；(iv)光開始剤；および(v)エポキシの熱活性化硬化剤を特徴とする組成物の光重合反応生成物が好ましい。(i)アクリル酸またはメタクリル酸のエステルのプレポリマー性(すなわち、通常約100~10,000センチポイズの間の部分的に重合した粘稠シロップ)またはモノマー性シロップ；(ii)任意に強化コモノマー；(iii)エポキシ樹脂；(iv)熱開始剤；および(v)エポキシの光活性化硬化剤を特徴とする組成物の熱重合反応生成物も有用である。好適なエポキシ樹脂および熱活性化硬化剤は前述のものが挙げられる。有用な光開始剤の例としては、キノン類、ベンゾフェノン類、トリアシルイミダゾール類、アシルホスフィンオキシド類、ビスイミダゾール類、クロロアルキルトリアジン類、ベンゾインエーテル類、ベンジルケタール類、チオキサントン類、およびアセトフェノン誘導体、ならびにこれらの混合物が挙げられる。有用な熱開始剤の例としては、有機過酸化物およびアゾ化合物が挙げられる。使用の際に、エポキシ含有材料とポリアクリレート成分の混合物を主成分とする好ましいシーラントが軟化し、流動し、シーリングする表面の間隙を埋めるとときには、肉眼で巨視的な相分離が観察できないことから分かるようにエポキシ樹脂およびポリアクリレート成分は均一で単相

10

20

30

40

50

の系を形成する。

**【 0 0 8 0 】**

種々の成分の相対的な量は、一方は極限引張り強度と耐熱性、他方は可撓性と未硬化時強度の増大の両者のバランスによって選択される。例えば、エポキシ樹脂量を増加させると、極限引張り強度と耐熱性が増大するが、一方可撓性と未硬化時強度の増大速度は減少する。逆に、ポリエステルまたはポリアクリレートの量を増加させると、撓性と未硬化時強度の増大速度は増加するが、一方極限引張り強度と耐熱性は減少する。

**【 0 0 8 1 】**

エポキシ - ポリアクリレート混合物およびエポキシ - ポリエステル混合物の場合では、通常組成物は、全体で 100 部当り、0.01 ~ 95 部のエポキシ含有材料と、それに対応した 99.99 ~ 5 部のポリエステル成分またはポリアクリレート成分とを含む。より好ましくは組成物は、0.1 ~ 80 部のエポキシ含有材料と、それに対応した 99.9 ~ 20 部のポリエステル成分またはポリアクリレート成分とを含む。最も好ましくは組成物は、0.5 ~ 60 部のエポキシ含有材料と、それに対応した 99.5 ~ 40 部のポリエステル成分またはポリアクリレート成分とを含む。

10

**【 0 0 8 2 】**

シーラント層 12 に有用な他の溶融流動性熱硬化性組成物としては、ホットメルト組成物であってもよい湿気硬化ウレタンなどのウレタン系材料が挙げられる。このような組成物は、1 種類以上のポリイソシアネート（例えば、4,4' -ジフェニルメレンジイソシアネート、トルエンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、またはヘキサメチレンジイソシアネートなどのジイソシアネート、さらにこれらの物質のイソシアネート誘導体も含まれる）、湿気硬化反応に物質的に干渉しない 1 種類以上の多価水酸基含有材料（例えば、ポリカプロラクトンを含めたポリエステルポリオールまたはポリエーテルポリオール）、任意に湿気硬化反応の触媒（例えば、ジブチルスズジラウレート）、および任意に種々の添加剤および補助剤（例えば、充填剤、着色剤、ビーズ、バブル、纖維、可塑剤、粘着性付与剤、流動調節剤、チキソトロープ剤、接着促進剤）を含むことが多い。

20

**【 0 0 8 3 】**

シーラント層 12 は、熱可塑性組成物から作製することもできる。好適な熱可塑性組成物の例としては、ポリエステル、熱可塑性エラストマーブロックコポリマー（例えば、スチレン - ブタジエン系またはスチレン - イソブレン系ブロックコポリマー）、フェノキシ樹脂、ポリウレタン、シリコーン、およびポリアミドが挙げられる。ポリエステル、ブロックコポリマー、およびポリウレタンが特に好ましい熱可塑性樹脂である。好ましくは、シーラント層に使用される熱可塑性組成物は、架橋した粒子などの分散相を含まない均一で単相の材料として供給される。シーラント層 12 用に選択される熱可塑性組成物は、シーラント搭載物品が組み込まれる最終構造物の使用温度より高い軟化温度（環球軟化試験で測定）を示すことが好ましい。最終構造物の使用温度は、通常の使用条件において最終構造物がさらされると思われる最高温度を意味する。

30

**【 0 0 8 4 】**

シーラント層 12 に好ましい組成物は、流動抵抗性のシーラント組成物であり、従ってシーラントの軟化温度より高温で、熱硬化性シーラント組成物の場合は（a）熱活性化硬化剤の場合は硬化剤の熱活性化温度また（b）光活性化硬化剤の場合は硬化剤の熱分解温度より低温に加熱した場合、テープを取り付けた基材を他方の基材に押し付けて接触させることによる取り付けの間にかかる圧力と同程度の圧力がかかるまでは実質的にその形状を維持する。熱およびかけられた圧力の影響下で、これらの組成物は、平坦でない表面に対して適合し機能的なシールが得られるように調節された流動性が得られる。

40

**【 0 0 8 5 】**

軟化温度は、基材上に載せて同じ位置にとどまる能够のように組成物が十分に柔軟性となる最低温度を表す。軟化温度は、個々のシーラント組成物の関数である。結晶性または半結晶性成分含有シーリング組成物の場合は、軟化温度は一般にこの成分の融解温度に対応する。通常、上限温度は約 200 度である。

50

**【0086】**

ある特定のシーラント組成物がこの性能基準に適合するかどうかを判断するために、以下の「実施例」の項でさらに詳細に説明する試験手順で組成物を試験する。簡潔には、この試験は、オープン内にある角度で取り付けられたプレート上に組成物の試料を置いて、試料を希望する温度まで加熱し、ある時間内で試料が初期形状を失いプレート表面から流れ落ちる程度を観察することで構成される。

**【0087】**

これらの要求に合う組成物の例としては、熱可塑性材料および熱硬化性材料の両方が含まれる。後者の場合には、組成物は、1種類以上の光活性化硬化剤、熱活性化硬化剤、またはそれらの組み合わせを含むことができ、光活性化硬化剤を使用することが好ましい。

10

**【0088】**

これらの要求を満たす特定の組成物としては、前述のエポキシ／ポリエステル組成物およびエポキシ／ポリアクリレート組成物が挙げられるが、特に、熱および重力のみの影響下では溶融流れが発生しないが、代わりにその上に圧力をかけることが必要となるように設計または配合する。有用な配合の1つは、1種類以上の搖変性付与剤を効果的な量、すなわち、希望するレオロジー的性質を実現するために必要な量を組成物に加えることを含む。一般に、搖変性付与剤の全量は、未硬化シーラント組成物の全重量の約20重量%以下、好ましくは約10重量%以下、より好ましくは約5重量%以下、もっとも好ましくは約3～5重量%の範囲内である。

**【0089】**

20

好適な搖変性付与剤は、熱硬化性組成物の場合には硬化に対して物質的に干渉しない、または言い換えると組成物の分解の原因となることがない。搖変性付与剤の代表例としては、粒子状充填剤、ビーズ（ガラス型、セラミック型、またはポリマー型でもよい）、バブル（ガラス型、セラミック型またはポリマー型でもよい）、チョップトファイバー、およびそれらの組み合わせが挙げられる。好適な粒子状充填剤としては、例えば、疎水性シリカおよび親水性シリカ、炭酸カルシウム、チタニア、ベントナイト、クレー、およびそれらの組み合わせが挙げられる。買うていな纖維としてはポリマー纖維（例えば、芳香族ポリアミド、ポリエチレン、ポリエステル、およびポリイミドの纖維）、ガラス纖維、グラファイト纖維、およびセラミック纖維（例えば、ホウ素纖維）が挙げられる。

**【0090】**

30

シーラント層12に混入することができるたの材料としては、例えば、安定剤、酸化防止剤、可塑剤、粘着性付与剤、流動調節剤、接着促進剤（例えば、シラン類およびチタン酸塩類）、着色剤、および他の充填剤が挙げられる。

**【0091】**

接着層16は連続層の形態であることが好ましい。接着層16の幅は用途に依存する。しかし一般に、接着層16の幅はコア層14の幅以下であることが好ましい。さらに単層および多層の接着剤組成物の両方を想定している。

**【0092】**

使用する場合、接着層16は、コア層14とテープ10が取り付けられる基材の表面との間に配置される。接着層16を使用する目的は、基材とコア層14との間の接着性を向上させることである。接着層は図1に示すようにテープ10と一体となることができるし、あるいはテープ10を基材に取り付ける前に基材の面上に別個に設けることもできる。基材がガラスである場合に特に有用である。

40

**【0093】**

接着層16の厚さは、テープが使用される個々の用途に応じて選択される。しかし一般的には、接着層16の厚さは、約500μm以下、好ましくは約250μm以下、より好ましくは約125μm以下である。

**【0094】**

接着層16に適した材料は、取り付け温度で粘着性であるものである。熱可塑性材料および熱硬化性材料の両方を使用することができる。接着層は、シーラント層と比較して、異

50

なる組成、厚さ、またはその両方を備えるように通常は選択される。接着層16の個々の材料の選択は、テープ10を取り付ける基材に依存する。例えば、ガラス基材の場合は熱硬化性材料が好ましく、一方ガラスの周囲端をポリマーで封入した封入ガラス基材の場合では熱可塑性接着材料を使用することが好ましい。

#### 【0095】

接着層は、硬化（熱硬化性材料の場合）または冷却（熱可塑性材料の場合）の後で脆くならずに比較的高い極限引張り強度をもつよう設計することで、コア層における破壊の局在化が促進される。個々の最小引張り強度値は用途に依存する。しかし一般に、以下の「実施例」の項に記載の試験手順に従って測定した場合の引張り強度は、少なくとも約3.5 MPa、好ましくは少なくとも約5.2 MPa、より好ましくは少なくとも約6.9 MPa程度である。例えば、自動車に搭載されるフロントガラスの場合、接着層の極限引張り強度は約3.5 MPaを超えることが好ましい。10

#### 【0096】

熱可塑性材料は、光活性化硬化剤（すなわち、光硬化性材料）または熱活性化硬化剤（すなわち、熱硬化性材料）と混合することができる。接着層16は、シーラント層12の硬化条件とは異なる条件で硬化することが好ましい。例えば、シーラント層12と接着層16がともに光硬化性材料である場合、層12の硬化を開始するために必要な輻射線の波長は、層16の硬化開始に必要な波長とは異なる。同様に、シーラント層12と接着層16とが共に熱硬化性材料である場合は、それらは異なる温度で硬化する。例えば、接着層16は、90～200 の範囲内、好ましくは120～170 の範囲内、より好ましくは140～160 の範囲内で硬化するように通常は配合される。層12に光硬化性材料を使用し、層16に熱硬化性材料を使用することもできるし、その逆も可能である。20

#### 【0097】

接着層16に適した材料の例としては、例えばKitanonらに付与された米国特許第5,086,088号に記載されるようなエポキシ／ポリアクリレート混合物；エポキシ／非晶質ポリエステル混合物；ポリオレフィン接着剤（例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリヘキセン、ポリオクテン、およびそれらの混合物やコポリマー）；エチレン-酢酸ビニルモノマー（例えば、エチレン-酢酸ビニル）コポリマー接着剤エポキシ系接着剤；シリコーン接着剤；シリコーン-アクリレート接着剤；アクリル系接着剤；ゴム系接着剤（例えば、ブチルゴム）；および熱可塑性エラストマーブロックコポリマーを主成分とする接着剤（例えば、スチレン-ブタジエン-スチレン、スチレン-イソブレン-スチレン、またはスチレン-エチレン-プロピレン-スチレンのブロックコポリマー）が挙げられる。これらの材料は、フィルムまたはバルクの形態で得ることができ、ホットメルト材料として提供されることもある。接着層が接着される基材次第で、接着を促進するためにはプライマーを使用すると好都合となることもある。好適な市販材料の例は3M Company社のStructural Bonding Tape No. 9214である。30

#### 【0098】

接着層16に加えることができる他の材料としては、例えば、安定剤、酸化防止剤、可塑剤、粘着性付与剤、流動性調節剤、接着促進剤（例えば、シラン類およびチタン酸塩類）、着色剤、チキソトロープ剤、および他の充填剤が挙げられる。40

#### 【0099】

任意で、一時的な保護ライナー18を使用する場合は、物品10を使用しようとするまで接着層16（存在する場合）またはコア層14を損傷、化学線曝露、およびほこりまたは他の汚染物質から保護し、通常は物品10を基材に取り付けるすぐ前に除去する。ライナー18は、接着剤表面を保護するために従来使用されたものを含む種々の構造体を含むことができる。例えば、ライナーは、ポリオレフィン（例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン等）、シリコーン、またはフルオロシリコーンなどの剥離材料を表面に有する紙またはポリマーウェブの形態でもよく、接着層またはコア層に対して取り付けられる。わずかに粘着性のライナーを、非粘着性表面を保護するために使用することもできる。50

## 【0100】

## 製造

本発明による多層物品は、多くの方法で容易に作製することができる。例えば、シーラント組成物の成分は、シーラント組成物中に存在するすべての熱活性化硬化剤の活性化またはすべての光活性化硬化剤の分解を防止するために十分低い加熱温度において、融解させて適当な混合容器（例えば、バッヂミキサー、押出機押出機など）中で攪拌することができる。混合後、いろいろな種類の方法によってシーラント組成物をその最終形状に成形することができる。例えば、シーラント組成物を、加熱ナイフコーナーを使用して剥離ライナー上にコーティングすることができる。あるいは、シーラント組成物成分を、押出機中で混合し、次に所望の断面を有するダイから押し出して、シーラントの成形されたストリップ；すなわち、所望の断面形状を有するストリップを作製することができる。別の方  
10 法では、組成物をかたまりとして押し出し、あらかじめ定められた間隔をあけた電動の冷却した1組のロールの間に送りだして、シーラント組成物の平坦なシートを形成することができ、続いてこれを所望の厚さにカレンダー仕上することができる。別の方  
20 法では、フラットダイを押出機に取り付けて、シーラント組成物を平坦シートに押し出して、剥離ライナー上または別に作製したコア層上に直接設けることができる。少なくとも一方に所望のパターンがしづ加工された1組のニップルロールの間にシーラントシートを押し出すことによつて、シーラント層の正面に構造を付与することができる。シーラント組成物のシートは、シートを加熱し（必要であれば）所望のパターンを有するしづロール（加熱してもしくなくともよい）でシートを圧縮することによつて、後の任意の段階でしづ加工することもできる。

## 【0101】

シーラント組成物がエポキシ含有材料とポリエステル成分を含む場合の好ましい製造方法の1つでは、これらの成分を、適切なバレル温度分布が得られるように調節したツインスクリュー押出機を使用して混合する。通常、押出機の供給端を比較的低温、例えば約60～70に設定し、バレルの長さの方向に沿つて温度を上昇させ、シーラント組成物成分を均一混合物にするために十分高い温度であるが、押出機のダイ端においてあらゆる硬化剤の活性化を防止するためには十分低い温度、例えば、約60～110まで上昇させる。また押出機内での滞留時間は、あらゆる硬化剤の活性化を避けるような押出機温度分布と釣り合うようにしなければならない。好ましくは、押出機は、ダイ端に向かうバレルに沿つて1つ以上の通気口を備え、それによつて取り込まれた空気と湿気を除去するために減圧することができる。組成物をカレンダーニップ中に押し出すか、または押し出して適切な形状のダイに通し、これによつて所望の厚さおよび幅を有するシーラント組成物のシートが得られる。  
30

## 【0102】

バッヂ混合法も本発明で使用するシーラント組成物の調製に使用することができ、あるシーラント（例えば、湿気硬化のもの）ではこの方法が好ましい場合もある。

## 【0103】

コア層は、その組成に依存して多くの方法で調製することもできる。

## 【0104】

例えば、熱可塑性アクリルコア層の場合は、適当なアクリレートモノマーおよび／またはメタクリレートモノマーを互いに混合して、次に好適な光活性化または熱活性化重合開始剤と混合する。次に好ましくはこのモノマー組成物に窒素などの不活性気体を吹き付けて、組成物から大部分の酸素を除去し、続いて紫外光源にさらすか加熱するかのいずれかによつてモノマー混合物の重合を開始する。一度所望の粘度が得られれば、光源を外す、組成物を冷却する、酸素を吹き付ける、またはそれらの組み合わせによつて反応を停止して、シロップ様粘度を有する粘稠なポリマー／モノマー混合物を得る。  
40

## 【0105】

ポリマー／モノマー混合物は、別の開始剤、ヒュームドシリカ（親水性および／または疎水性タイプ）などの粒子状添加物、ガラス、セラミック、またはポリマー製バブル、ある

いはガラス、セラミック、またはポリマー製ビーズ、チキソトロープ剤などの充填剤、着色剤、安定剤、酸化防止剤、可塑剤、粘着性付与剤、界面活性剤、および他の流動性調節剤、接着促進剤（例えば、シラン類およびチタン酸塩類）、および架橋剤など種々の成分と混合することができる。次にこの組成物について脱気および／または窒素などの不活性気体の吹き付けを行い、次に1組の剥離ライナー（例えば、シリコーンをコーティングした二軸延伸ポリエチレンテレフタレートフィルム）の間にコーティングする。紫外線を照射してさらに重合させる組成物の場合には、剥離ライナーは紫外線を透過するものが好ましい。

#### 【0106】

別の方法では、組成物を発泡機に押し出し、ここで窒素などの不活性気体を組成物に送り込んで発泡フォーム混合物を生成し、続いてこれを少し前で説明したように1組の剥離ライナーの間にコーティングすることができる。最終フォーム生成物の均一性、密度、気泡サイズ、引張り強度、および伸び率は、技術文献に記載されるように、界面活性剤の選択とその量、窒素流速、および発泡機内の圧力によって調節される。

10

#### 【0107】

組成物を化学線を用いて重合させる場合は、1組の剥離ライナーの間のポリマー／モノマー・シロップを含む複合構造物に、例えば、紫外光源、好ましくは低強度の紫外光源（例えば、NIST単位で測定して約20mW/cm<sup>2</sup>未満、より好ましくは約10mW/cm<sup>2</sup>未満）を照射する。組成物の重合に必要な輻射エネルギー量は、厚さおよびその化学構造に依存して変動するが、しかし通常は約200～2,000mJの範囲である。揮発モノマー量を全組成物5重量%未満、より好ましくは2重量%未満に減少させるために十分な輻射線を使用することが好ましい。あるいは、組成物は熱によって重合させることができる。

20

#### 【0108】

重合反応が発熱反応の場合は、複合構造物の温度調節が望ましい（好ましくは85より低温）。この温度調節は、複合構造物の表面に冷却空気を吹き付ける、複合構造物を水浴に浸漬する、複合構造物を冷却したプラテン上で移動させるなどを含めた多くの方法によつて実行することができる。

#### 【0109】

ウレタン系コア層の場合、コア層成分（1液系または2液系のいずれかによるもの）を混合して、直ちに得られた組成物を前述のように2つの剥離ライナー間にコーティングする。わずかな熱を硬化反応の加速に使用することができるが、多くの種類のウレタンは室温で硬化する。あるいは、混合後にウレタン組成物を、剥離ライナーとシーラント層の間、シーラント層と接着層の間、または剥離ライナーと接着層の間にコーティングすることができる。ウレタン組成物をシーラント層および／または接着層にコーティングする場合は、さらなる層、例えば連結層は不用となることもあり好都合である。

30

#### 【0110】

ポリエチレンとエチレン酢酸ビニルを主成分とするフォームも使用することができ、通常は押出機から樹脂組成物を押し出して、架橋の前または後に材料を発泡させることで生成する。

40

#### 【0111】

接着層多くの方法によって調製することができる。感圧接着剤の接着層は、溶剤法、エマルション法、または無溶剤法によって調製することができる組成物から作製することができる。溶剤系およびエマルション系では、組成物を剥離ライナー（前述したものなど）上にコーティングし、次にオープン中で加熱して溶剤または水を蒸発させて、接着フィルムを作製する。このような接着剤は公知であり、例えば、米国特許第Re.24,906号（Ulichに付与された）に記載されている。無溶剤組成物の場合は、プレポリマー組成物を剥離ライナー上にコーティングし、次にエネルギー源にさらして接着フィルムを作製する。これらの種類の方法は、例えば、米国特許第4,181,752号（Martensらに付与された）、および第5,086,088号（Kitanoらに付与され

50

た)に記載されている。

**【0112】**

好みの実施例では、アクリル酸n-ブチルやN-ビニルカプロラクタムなどのアクリルモノマー、ビスフェノールAのジグリシジルエーテルなどのエポキシ樹脂、光開始剤、熱硬化剤、およびヒュームドシリカを高速Cowsミキサーで混合して接着層組成物を調製する。次にアクリルフォームコア層の製造で前述した方法と同様にしてこの組成物をポリエチレンテレフタレート剥離ライナーの間にコーティングして、紫外線源にさらして、潜在的に反応性で硬化性の感圧接着剤を生成する。

**【0113】**

アクリルフォームコア層を上述の種類の無溶剤アクリル系感圧接着剤接着層と併用する場合に特に有用な方法がある。アクリルフォームコア層用組成物を前述のような紫外線透過性剥離ライナー上にコーティングして、次にアクリル系感圧接着剤接着層用の組成物をコア層組成物上にコーティングすることができる。次に第2の紫外線透過性剥離ライナーを接着層組成物上に置いて、その構造物全体を紫外光にさらし、アクリルフォームコア層とアクリル系感圧接着剤接着層の両方を同時に硬化させて、それによって最終複合体を得る。例えばウレタン系コア層の作製と関連して記載した技術を使用して、接着層とコア層、コア層とシーラント層、またはコア層と接着層とシーラント層を同時に作製可能であると考えられる。

**【0114】**

本発明の多層物品は、あらかじめ作製したシーラント層、コア層、および接着層(使用する場合)を積層することによっても作製することができる。例えば、接着層および/またはシーラント層は、圧力の影響下でコア層と容易に積層することができ、これより最終テープを作製することができる。コア層、シーラント層、および接着層をそれぞれ別々に作製する場合は、プライマーまたは連結層を使用することでこれらの層の間の接着性を向上させることができる。プライマーまたは連結層は、相溶性材料をシーラント層上またはコア層上のいずれかに押出コーティングし、いずれかの層上にプライマーをコーティングし、任意にプライマーまたは連結層を乾燥し、次に各層を互いに圧縮して、続いて層を互いに加圧して本発明による多層物品を作製することによって使用することができる。

**【0115】**

別の実施例では、シーラント層をコア層上に直接押出しありはコーティングすることができる。

**【0116】**

一度テープが作製された後で、シーラント層および/またはコア層または接着層(使用する場合)の露出面を保護するために剥離ライナーを任意に積層することができる。テープは希望する最終形状に加工することができ、例えば、希望する幅に切断し、必要であれば適当なプラスチックまたは紙製芯に巻きつけてロール形態にすることによって最終形状に加工することができる。あるいは、テープを細長く切断するありは他の切断方法によってばらばらの長さにしたり、打抜きによって所望の形状にしたりすることができる。

**【0117】**

使用

上述のテープは、種々の基材間のシールを形成するために使用することができる。しかし簡略化のために、シーリング方法を自動車のフロントガラスの取り付けという状況において説明する。

**【0118】**

図2および3を参照にすると、まずテープ10をフロントガラス20の一方の面22に接着層16を介して貼付けて、このときテープが実質的に面22の周囲部を取り囲むようにして、テープがフロントガラスの角でほぼ90°で折れ曲がるときにしわ、ひだ、またはすきまがないようになめらかにガラスと接着させる。この配置によって、従来の不連続なスペーサーの使用に関連する応力集中点の形成が避けられる。接着層が室温で粘着性でない場合は、接着層を活性化させてテープ10をガラスと永続的に接着させ、好ましくはシ

10

20

30

40

50

ーラント層 12 は活性化させない。使用する具体的な活性化方法は、シーラント層および接着層の組成に依存する。好適な活性化方法の例としては熱および化学線（例えば、紫外線または可視光）が挙げられる。温度輻射の場合では、テープかガラスのいずれかまたはその両方を加熱することができる。シーラント層は活性化されないので、加熱処理後のテープ搭載フロントガラスはシーラントが隣のフロントガラスに移行しないで別のテープ搭載フロントガラスのすぐ近くに包装したり棚に置いたりすることができる。テープはフロントガラスが互いに衝突するのも防止し、隣り合って棚に置くか包装したフロントガラスを互いに間隔をあけるコストのかかる包装材料で分離して廃棄または再利用が必要となることもある材料（例えば、ポリマーフォームまたはセルロース製スペーサー）が不用となる。

10

#### 【 0119 】

次の段階はシーラントの加熱であり、例えば、シーラントを加熱ランプのバンクにさらすことによって、シーラントが軟化するが流動しないように加熱する。図 4 および 5 に示すように、次に加熱して軟化させたシーラントを含んだフロントガラスを自動車 26 のフレーム 24 内に取り付ける。自動車フレームに取り付けてからシーラントを加熱してシーラントを軟化させることもできる。取り付けの間に、圧力をかけることによって、軟化したシーラントが流動し自動車の平坦ではない面に対してコア層 12 とともに形状が適合するようになる。シーラントが高い地点から流れ出し、スポット溶接および空隙などのくぼんだ領域を満たし、効果的なシールが形成される。大きく変形した金属領域では、コア層 12 自身が圧縮され、平坦でない面とシールを形成する工程中に永続的に変形させることができる。

20

#### 【 0120 】

シーラント層と自動車フレームとを最初に接触させた後に、巨大な自動車のかたまりによるヒートシンクによってシーラント層が効率的に冷却され、それによって急速にシーラント層が固化し、再結晶して（結晶性または半結晶性成分含有シーラント組成物の場合）、耐久性で永続的な接着が形成される。

#### 【 0121 】

この方法の変形は、光硬化性シーラント層（すなわち、光活性化硬化剤を含有するシーラント層）の使用を含んでいる。テープをフロントガラスに取り付けて、ガラス製造オートクレーブサイクルに送って接着層を活性化し、同時にシーラント組成物を流動させずに軟化させることができるという理由で光硬化性シーラント組成物の使用は好都合である。オートクレーブから取り出した後、構造物を冷却することによって、軟化したシーラント層を再固化させる。次に、例えば、加熱後に化学線を照射するなどの方法によってシーラント組成物活性化した後、テープを取り付けたフロントガラスを自動車フレームに配置する。輻射線は、シーラント組成物の軟化と硬化開始を同時に使う。一旦取り付けた後は、車体によるヒートシンクがシーラント層を効率的に冷却してシーラント層を再固化させ、結晶性または半結晶性成分を含有する組成物の場合は再結晶が起こる。この時点で、シーラントは硬化を続けるが、シーラント層の未硬化時強度は人がその車を十分運転できるほど高い。

30

#### 【 0122 】

光硬化性シーラント組成物の場合、早すぎる活性化、例えば、保管および輸送の間の活性化から組成物を保護する必要もある。これは、例えば、シーラント組成物を輻射線遮断性剥離ライナーで覆うことによって実現できる。あるいは、テープを取り付けた構造物全体を輻射線遮断性容器中で保管することができる。

40

#### 【 0123 】

シーラント層と、コア層と、接着層とを 1 つの一体型テープの形態で含むことが好ましいが、これらの材料を別々にガラス表面に取り付けることもできるし、または互いの種々の組み合わせでガラス表面に使用することもできる。例えば、コア層と接着層を有するテープをガラス表面に取り付けて、その後で分離したシーラント層を取り付けることが可能である。あるいは、接着層をプライマーの形態でガラス表面に設けた後で、2 層テープ（シ

50

ーラント層とコア層を含む)をプライマー処理した表面に取り付けることができる。

**【0124】**

フロントガラスなどの基材の場合、テープを基材表面に取り付けることが好ましいが、図6および7に示すように、テープ10が基材を実質的に取り囲むように基材32の縁端部30の周囲にテープを取り付けることも可能である。このような構造物は、例えば、窓枠などの溝の内部に基材を接着するような建築用途に有用である。

**【0125】**

フロントガラスの一面と自動車のフレームとの間にシールを形成するフロントガラスとは別に、図8に示すように、本発明によるテープ10を取り付けた基材40をU字型ブラケット42の内部でシーリングすることも可能である。

10

**【0126】**

本発明を、以下の非限定的な実施例によってさらに詳細に説明する。

**実施例**

**【0127】**

他に明記しない限り、これらの実施例で使用した材料は、Aldrich Chemical Co. (Milwaukee, WI)などの標準的な製品供給元から入手することができる。実施例で使用したすべての量は、他に記載のない限り重量部で表している。シーラント層は対応するシーラント組成物を所望の厚さにカレンダー仕上することで作製した。従って、シーラント層Aはシーラント組成物Aで構成され、シーラント層Bはシーラント組成物Bで構成され、以下同様である。すべてのシーラント層、コア層、および接着層は、他に明記しない限り公称厚さ1.0mmであった。以下の一覧は、後の実施例で使用した材料の製品供給元を記載している。Fusion Systems Process sor(ランプハウジングおよびコンベア装置)は、他に明記しない限りVバルブを取り付けた。

20

**【0128】**

エポキシ樹脂Aは、米国特許第5,407,978号(Bymarkらに付与された)の実施例1に記載されるような末端を脂肪族エポキシ樹脂でキャップしたビスフェノールAである。

**【0129】**

プライマー組成物Aの組成は: 2.45部のNipol<sup>TM</sup> 1002、1.23部のEpon<sup>TM</sup> 828、2.05部のVersamid<sup>TM</sup> 115、42.20部のメチルエチルケトン、50.84部のトルエン、1.23部の1-ブタノールである。

30

**【0130】**

メタロセン触媒Aは、米国特許第5,089,536号(Palazzottoに付与された)に記載されるような、Cp(キシレン類)Fe<sup>+</sup>SbF<sub>6</sub><sup>-</sup>であり:(<sup>6</sup>-キシレン類)(<sup>5</sup>-シクロペンタンジエニル)鉄(1+)ヘキサフルオロアンチモン酸塩とも記載される。(Cp=シクロペンタジエン)。

**【0131】**

Scotchkote<sup>TM</sup> 215、FX-512、K15ガラスバブル(250メッシリュ)、およびAuto Glass Urethane Windshield Adhesive No. 08693ウレタンペーストシーラントは3M Company社(St. Paul, MN)より入手した。

40

**【0132】**

電着塗装鋼板(ED 5100)、ならびにDCT 5000、DCT 5002、およびStainguard<sup>TM</sup> IVでクリアコーティングした塗装鋼板は、Advanced Coating Technologies, Inc.社(Hillsdale, MI)より入手した。

**【0133】**

ジシアンジアミド(CG-1200)とCurezol<sup>TM</sup> 2MZ-Azineは、Air Products and Chemicals, Inc.社(Allentown

50

n, PA)より入手した。

【0134】

アクリル酸n-ブチル、N-ビニルカプロラクタムは、BASF Corp.社(Mount Olive, NJ)より入手した。

【0135】

Vitel<sup>TM</sup> 5833Bは、Bostik社(Middleton, MA)より入手した。

【0136】

Cab-O-Sil<sup>TM</sup> M5は、Cabot Corp.社(Boston, MA)より入手した。 10

【0137】

Irganox<sup>TM</sup> 1010は、Ciba Specialty Chemicals社(Ardsley, NY)より入手した。

【0138】

Aerosil<sup>TM</sup> R972は、Degussa Corp.社(Ridgefield Park, NJ)より入手した。

【0139】

Voranol<sup>TM</sup> 230-238は、Dow Chemical Co.社(Midland, MI)より入手した。

【0140】

Isocryl<sup>TM</sup> EP550、Octaflow<sup>TM</sup> ST 70、およびOxymer<sup>TM</sup> A-1は、Estron Chemical, Inc.社(Calvert City, KY)より入手した。 20

【0141】

Melinex<sup>TM</sup> 054は、ICI Americas社(Wilmington, DE)より入手できる処理済み二軸延伸フィルムである。

【0142】

Fusion Systems Processorおよび付属品は、Fusion Systems Corp.社(Rockville, MD)より入手した。

【0143】

Versamid<sup>TM</sup> 115は、Henkel Corp.社(Ambler, PA)より入手した。 30

【0144】

Dynapol<sup>TM</sup> S1402、Dynapol<sup>TM</sup> S1313、Dynapol<sup>TM</sup> S1359、Dynacoll<sup>TM</sup> 7130、Synthetic Resin SK、Hydrosil<sup>TM</sup> 2627、Synthetic Resin AP、Synthetic Resin CA、Synthetic Resin LTH、Polyester A(50重量%のブタンジオール、23重量%のテレフタル酸、および27重量%のセバシン酸より構成される水酸基を有する半結晶性コポリマー、融点116、ガラス転移温度-40、160におけるメルトフローレート250g/10min)は、Huls America Inc.(Somerset, NJ)より入手した。 40

【0145】

Santicizer<sup>TM</sup> 278は、Monsanto Co.社(St. Louis, MO)より入手した。

【0146】

Penn Color 9B117顔料は、Penn Color社(Doylesboro, PA)より入手した。

【0147】

Unilin<sup>TM</sup> 700ワックスは、Petrolite Corp.社(St. Louis, MO)より入手した。 50

## 【0148】

# 5 M e y e r ロッド(針金を巻きつけたロッド)は R & D S p e c i a l t i e s 社 (W e b s t e r , N Y ) より入手した。

K B - 1 および S a r C a t <sup>T M</sup> C D 1 0 1 2 は、 S a r t o m e r C o . 社 (E x t o n , P A ) より入手した。

## 【0149】

E p o n <sup>T M</sup> 1 0 0 1 、 E p o n <sup>T M</sup> S U - 8 、 および E p o n <sup>T M</sup> 8 2 8 は、 S h e l l C h e m i c a l C o . 社 (H o u s t o n , T X ) より入手した。

## 【0150】

B e n z o f l e x <sup>T M</sup> S - 4 0 4 は、 V e l s i c o l C h e m i c a l C o r p . 社 (R o s e m o n t , I L ) より入手した。 10

## 【0151】

N i p o l <sup>T M</sup> 1 0 0 2 は、 Z e o n C h e m i c a l s , I n c . 社 (L o u i s v i l l e , K Y ) より入手した。

## 【0152】

陽極処理アルミニウムパネルは、 H i a w a t h a P a n e l & N a m e P l a t e C o . , I n c . 社 (M i n n e a p o l i s , M N ) より入手した。

## 【0153】

## 試験方法

## 45°流れ試験

20

電着塗装パネルを、 5 0 % イソパノール水溶液を噴霧し拭き取って乾燥することで清浄にし、 十分な時間をおいて完全に乾燥させた。測定する試料(通常 1 4 . 5 m m × 2 5 . 4 m m )を、 試料の狭い縁がパネルの下方に向かうように電着塗装パネルと軽く接着させた。次に、 他に明記しない限り、 パネルを 1 7 7 のオープン内に傾斜 4 5 ° で 1 2 分間置いた。次に試料をオープンから取り出し、 室温まで冷却した。試料が初期位置を基準にして流れた距離(単位 m m )として流れを測定した。

## 【0154】

## 引張りおよび伸び率試験

引張り測定は、 以下の要因に注意して通常の方法で行った。 A S T M 法 D - 4 1 2 のダイ C を用いたサイズに試料を切断した。次に試料を、 作製後および試験前に少なくとも 2 4 時間一定の温度( 2 3 ± 2 ) および湿度( 相対湿度 5 0 ± 1 0 % )の条件下において。 引張り強度と伸び率を、 引張り試験機を使用しジョー間隔 5 0 . 8 m m およびクロスヘッド速度 5 0 8 m m / m i n で測定した。最大引張り強度(単位 M P a ) および任意に最大時の%伸び率を記録した。 30

30

## 【0155】

## 重なり剪断試験

以下のようにして、 5 0 % イソプロパノール水溶液で清浄にした陽極処理アルミニウムと電着塗装アルミニウムのクーポン(両者とも 2 5 . 4 m m × 7 6 . 2 m m )の間にシーラント組成物を積層した: 1 2 . 7 m m × 2 5 . 4 m m のシーラント試料を、 全体的な構造物の高さが約 6 3 . 5 m m となるように 2 つのクーポンの狭い端部と面一に取り付けた。 他に明記しない限り、 この積層体に約 2 . 3 k g の圧縮力をかけて 1 4 0 のオープンで 2 5 分間加熱した。次に試料を、 作成後および試験前の少なくとも 2 4 時間一定の温度および湿度( 2 3 ± 2 および相対湿度 5 0 ± 1 0 % )の条件下において。 40

40

## 【0156】

重なり剪断力を I n s t r o n 剪断試験装置を用いてクロスヘッド速度 5 0 . 8 m m / m i n 、 ジョー間隔 5 0 . 8 m m で測定した。試料破壊前の最大力およびその破壊形態(例えば、 凝集破壊、 接着破壊、 その混合)を記録した。

## 【0157】

## 実施例 1

この実施例では接着層 A の作製について説明する。 2 9 g のアクリル酸 n - ブチル( B A

50

)と29gのN-ビニルカプロラクタム(NVC)を混合し約49で加熱して溶液を調製した。この溶液にさらなる42gのBAと0.05gのヘキサンジオールジアクリレートとを加えた。このアクリレートモノマー溶液と、45gのビスフェノールAのジグリシジルエーテル(Epon<sup>TM</sup> 828)と、25gのビスフェノールAのジグリシジルエーテルオリゴマー(Epon<sup>TM</sup> 1001)とをガラスピンに入れた。このピンを密封して、均一な接着剤溶液が得られるまで周囲温度(約21)でローラー上に置いた。このエポキシ/アクリレート溶液(170.05部)に、7gのCG-1200と2.7gの硬化促進剤(Curezol<sup>TM</sup> 2MZ-Azine)を加え、温度を37より低く保ちながらCowlesブレードミキサーを用いて高速で15分間混合した。最終段階では、0.24gのベンジルジメチルケタール光開始剤(KB-1)と、0.1gのIrganox<sup>TM</sup> 1010酸化防止剤と0.38gのPenn Color 9B117顔料と、8gのCab-O-Sil<sup>TM</sup> M5シリカを加えて、均一な混合物が得られるまで混合した。この接着剤混合物を脱気して、続いてシリコーン剥離材料で処理した2枚のポリエステルフィルムの間に厚さ0.508mmでコーティングした。はさまれた接着剤のコーティング層を、輻射の大部分が300~400nmの間でピーク輻射が351nmの紫外光にさらして、感圧接着テープを作製した。この接着剤は表面および裏面で350mJ/cm<sup>2</sup>(NIST単位)のエネルギーにさらされ、全エネルギーは約700mJ/cm<sup>2</sup>であった。強度は接着剤の表面で4.06mW/cm<sup>2</sup>、裏面で4.03mW/cm<sup>2</sup>であった。

## 【0158】

10

実施例2~7では種々のコア層の作製について説明する。

## 【0159】

20

## 実施例2

87.5部のアクリル酸イソオクチルと、12.5部のアクリル酸と、0.04部の光開始剤(Ciba Geigy社よりIrgacure<sup>TM</sup> 651として入手できるベンジルジメチルケタール)とを混合して組成物を調製した。この混合物を低強度紫外線(後述する)にさらすと粘度が約2200となった。次に0.19部のさらなるベンジルジメチルケタールと、0.55部の1,6-ヘキサンジオールジアクリレートと、8部のK15ガラスパブルと、2部の疎水性シリカ(Aerosil<sup>TM</sup> R972)とを加えた。この組成物を完全に均一となるまで混合し、脱気して、次に90mm発泡機(E.T.Oak社(Hauppauge, NY)より入手できる)に送り込んで約300~350rpmで作動させた。全組成物100部当りに、窒素と、黒色顔料(Penn Color 9B117)と、約1.5部の界面活性剤A/界面活性剤Bの60/40混合物とを、同時に連続的に発泡機に供給した。窒素は希望のフォーム密度が得られるように調節した。界面活性剤AはC<sub>8</sub>F<sub>17</sub>SO<sub>2</sub>N(C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)(C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>O)<sub>7</sub>CH<sub>3</sub>であり、界面活性剤Bは米国特許第3,787,351号の実施例2のフッ化脂肪族の50%固形分の酢酸エチル溶液である。黒色顔料は、Hunter Lab測色計(Color'L'測色計およびD25 Optical Sensorの両方はHunter Lab Associates(Reston VA)より入手できる)で測定した最終生成物のL値が約32となるような量を加えた。

30

## 【0160】

40

発泡させた混合物を205kPaの圧力下でロールコーラーのニップに送り、向かい合う面に剥離剤をコーティングした1組の透明二軸延伸ポリエチレンテレフラーートシートの間に約1mmの厚さにすることで複合体を作製した。発泡器内で希望する量の圧力を得るためにクランプで管を部分的に締めつけた。ロールコーラーから現れた複合体の表面および裏面の両方に、輻射の90%が300~400nmの間で最大が351nmであるSy 1 vania蛍光ブラックライト電球のバンクを照射した。電球によってこの複合体は強度2.65ミリワット/平方センチメートル(mW/cm<sup>2</sup>)で全エネルギー165.4ミリジュール/平方センチメートル(mJ/cm<sup>2</sup>)が表面および裏面のそれぞれに連続的に照射され、次に同様に強度2.70mW/cm<sup>2</sup>で全エネルギー168.5mJ/c

50

$\text{m}^2$ 、次に同様に強度 5 . 9 0 mW /  $\text{cm}^2$  および全エネルギー 5 1 6 . 8 mJ /  $\text{cm}^2$  が照射された。光の測定値は N I S T 単位で測定した。剥離ライナーにはさまれた硬化したコア(すなわち、コア層 A)は密度が約 0 . 6 4 g /  $\text{cm}^3$  であった。

#### 【 0 1 6 1 】

##### 実施例 3

加工条件を以下のように変更したことを除けば、コア層 A について前述したようにしてコア層 B を作製した。複合物の表面と裏面のそれぞれに、S y 1 v a n i a 蛍光ブラックライト電球で、強度 4 . 3 mW /  $\text{cm}^2$  で全エネルギー 1 6 0 . 7 mJ /  $\text{cm}^2$  を連続的に照射し、次に強度 5 . 1 mW /  $\text{cm}^2$  で全エネルギー 8 9 2 . 6 mJ /  $\text{cm}^2$  を照射した。剥離ライナーにはさまれた硬化コアの密度は約 0 . 6 4 g /  $\text{cm}^3$  であった。 10

#### 【 0 1 6 2 】

##### 実施例 4

顔料に 7 7 部の 2 0 % 塩化スズと 8 0 % ポリオキシプロピレンジオールの混合物と、2 3 部の 2 0 % カーボンブラックと 8 0 % ポリオキシプロピレンジオールの混合物との混合物を使用し、顔料の量を最終コアの色の L 値が 4 5 となるように調節したことを除けばコア層 A について前述のしたようにしてコア層 C を作製した。製造条件は以下のように変更した。複合体の表面および裏面のそれぞれに、S y 1 v a n i a 蛍光ブラックライト電球に、強度 1 . 2 5 mW /  $\text{cm}^2$  で全エネルギー 7 3 . 5 mJ /  $\text{cm}^2$  に連続的に照射し、次に同様に強度 1 . 5 0 mW /  $\text{cm}^2$  で全エネルギー 8 8 . 2 mJ /  $\text{cm}^2$  、続いて同様に強度 4 . 3 mW /  $\text{cm}^2$  で全エネルギー 3 5 3 . 5 mJ /  $\text{cm}^2$  を照射した。剥離ライナーにはさまれた硬化コアの密度は約 0 . 6 4 g /  $\text{cm}^3$  であった。 20

#### 【 0 1 6 3 】

##### 実施例 5

コア層 D を、コア層 C の 2 つの層を互いに積層して作製し、全体の厚さは 2 . 0 mm となつた。

#### 【 0 1 6 4 】

##### 実施例 6

コア層 E を、コア層 C の 3 つの層を互いに積層して作製し、全体の厚さは 3 . 0 mm となつた。

#### 【 0 1 6 5 】

##### 実施例 7

コーリングガンから Auto Glass Urethane Windshield Adhesive No . 0 8 6 9 3 をシリコーン剥離材料をコーティングしたポリエステルライナー上に押し出し、厚さ 5 mm のフィルムとなるようにコーティングすることでコア層 F を作製した。 30

#### 【 0 1 6 6 】

実施例 8 ~ 2 8 では、本発明で有用な種々のシーラント層および組成物の作製について説明する。

#### 【 0 1 6 7 】

シーラント層 A ~ C は、両面にシリコーン剥離剤をコーティングしたポリエステルキャリアフィルム上に押し出し、ニップローラーに通して所望の層厚さにした。 40

#### 【 0 1 6 8 】

##### 実施例 8

この実施例では、シーラント層 A の作製を説明する。D y n a p o l T M S 1 4 0 2 ポリエステルと S c o t c h k o t e T M 2 1 5 粉体コーティング樹脂を 2 : 1 の比でツインスクリュー押出機内で溶融混合して厚さ 1 . 5 mm にカレンダー仕上した。代表的な押出機運転条件は：スクリュー R P M = 1 0 0 、融点 = 1 0 3 . 9 、ゾーン 1 温度 = 8 1 . 1 、ゾーン 2 温度 = 8 5 . 5 であった。4 5 ° 流れ試験を 2 5 . 4 mm × 2 5 . 4 mm 試料について行った。試験条件は 1 7 7 で 1 2 分間とした。試料を室温で 3 0 分間冷却し次にその試料を再びオープンに入れることによる再流れについても試験した。流れ 50

れは42mmであった。30分後には流れは見られず、これは熱硬化性材料が形成されたことを示している。

#### 【0169】

##### 実施例9

この実施例では、シーラント層Bの作製について説明する。Dynapol<sup>TM</sup> S1359ポリエステル(60容量部)と、Epon<sup>TM</sup> 1001エポキシ樹脂(10容量部)とジシアソニアミド(体積で7部)とCurezol<sup>TM</sup> 2MZ-Azine(3容量部)との粉体混合物とをツインスクリュー押出機に供給した。Epon<sup>TM</sup> 828エポキシ樹脂(20容量部)を投入口から加えた。

#### 【0170】

10

##### 実施例10

この実施例ではシーラント層Cの作製について説明する。さらに1容量部のAerosil<sup>TM</sup> R972シリカを押出機に供給する粉体混合物に加えたことを除けばシーラント層Bの作製を繰り返した。

#### 【0171】

##### 実施例11

この実施例ではシーラント層Dの作製について説明する。Dynapol<sup>TM</sup> S1359(59部)と、15部のエポキシ樹脂Aと、7部のジシアソニアミドと、3部のCurezol<sup>TM</sup> 2MZ-Azineとをツインスクリュー押出機に供給した。15部のEpon<sup>TM</sup> 828を投入口から加えた。得られた押し出し成形シーラント層Dをカレンダー仕上によって厚さ1.75mmにして、Melinex<sup>TM</sup> 054ポリエステルフィルムをキャリアフィルムとして使用してロールに巻きつけた。

20

#### 【0172】

##### 実施例12

この実施例ではシーラント層Eの作製について説明する。シーラント層Eを、90部のDynapol<sup>TM</sup> S1402と、10部のEpon<sup>TM</sup> 1001と、1部のUnilin<sup>TM</sup> 700ワックスと、0.5部のFX-512(トリアリールスルホニウム塩光開始剤)とを互いに混合することによって作製した。この混合物を均一になるまでホットプレート上で加熱し、次にシリコーン処理ポリエステルライナーの間で圧力をかけて1層にした。このフィルムを室温まで冷却して再結晶させた。

30

#### 【0173】

##### 実施例13

この実施例ではシーラント層Fの作製について説明する。シーラント層Fを、80gのDynapol<sup>TM</sup> S1402と、20gのEpon<sup>TM</sup> 1001と、1gのUnilin<sup>TM</sup> 700ワックスと、0.5gのFX-512とを互いに混合することによって作製した。この混合物を均一になるまでホットプレート上で加熱し、次にシリコーン処理ポリエステルライナーの間で圧力をかけて1層にした。このフィルムを室温まで冷却して再結晶させた。

#### 【0174】

##### 実施例14

40

この実施例ではシーラント層Gの作製について説明する。シーラント層Gを、70部のDynapol<sup>TM</sup> S1402と、30部のEpon<sup>TM</sup> 1001と、1部のUnilin<sup>TM</sup> 700ワックスと、0.5部のFX-512とを互いに混合することによって作製した。この混合物を均一になるまでホットプレート上で加熱し、次にシリコーン処理ポリエステルライナーの間で圧力をかけて1層にした。このフィルムを室温まで冷却して再結晶させた。

#### 【0175】

##### 実施例15

この実施例ではシーラント層Hの作製について説明する。シーラント層Hを、70部のDynapol<sup>TM</sup> S1402と、30部のエポキシ樹脂Aと、1部のUnilin<sup>TM</sup>

50

700ワックスと、0.5部のFX-512とを互いに混合することによって作製した。この混合物を均一になるまでホットプレート上で加熱し、次にシリコーン処理ポリエスティルライナーの間で圧力をかけて1層にした。このフィルムを室温まで冷却して再結晶させた。

#### 【0176】

##### 実施例16

この実施例ではシーラント層Iの作製について説明する。シーラント層Iを、70部のPolyester Aと、30部のEpon<sup>TM</sup> 1001と、1部のUnilin<sup>TM</sup> 700ワックスと、0.5部のFX-512とを互いに混合することによって作製した。この混合物を均一になるまでホットプレート上で加熱し、次にシリコーン処理ポリエスティルライナーの間で圧力をかけて1層にした。このフィルムを室温まで冷却して再結晶させた。  
10

#### 【0177】

##### 実施例17

この実施例ではシーラント層Jの作製について説明する。シーラント層Jを、70部のDynapol<sup>TM</sup> S1402と、30部のエポキシ樹脂Aと、1部のUnilin<sup>TM</sup> 700ワックスと、0.1部のFX-512とを互いに混合することによって作製した。この混合物を均一になるまでホットプレート上で加熱し、次にシリコーン処理ポリエスティルライナーの間で圧力をかけて1層にした。このフィルムを室温まで冷却して再結晶させた。  
20

#### 【0178】

##### 実施例18

この実施例ではシーラント層Kの作製について説明する。シーラント層Kを、70部のDynapol<sup>TM</sup> S1402と、30部のエポキシ樹脂Aと、1部のUnilin<sup>TM</sup> 700ワックスと、0.3部のFX-512とを互いに混合することによって作製した。この混合物を均一になるまでホットプレート上で加熱し、次にシリコーン処理ポリエスティルライナーの間で圧力をかけて1層にした。このフィルムを室温まで冷却して再結晶させた。

#### 【0179】

##### 実施例19

この実施例ではシーラント層Lの作製について説明する。Polyester Aを177に加熱し、次にシリコーンコーティングしたポリエスティルライナーの間で圧力をかけて1層にした。  
30

#### 【0180】

##### 実施例20

この実施例ではシーラント層Mの作製について説明する。Polyester A(100部)を177に加熱し、5部のCab-O-Sil<sup>TM</sup> M5シリカと。手で混合した。この試料をシリコーンコーティングしたポリエスティルライナーの間で圧力をかけて1層にした。

#### 【0181】

##### 実施例21

この実施例ではシーラント層Nの作製について説明する。2つのフィーダと1つの液体投入口を取り付けたBersstorffツインスクリュー押出機をしゅ要して以下の組成物を押し出し成形した。Cab-O-Sil<sup>TM</sup> M5ヒュームドシリカを一方のフィーダーから加えた。もう一方のフィーダーはポリエスティルペレット、ワックス、および固形エポキシの供給に使用した。液体投入口は、液体エポキシ樹脂、ポリエーテルトリオール、光触媒、および増感剤の供給に使用した。以下の組成物を使用した：50部のPolyester A、20部のEpon<sup>TM</sup> 1001、12.5部のEpon<sup>TM</sup> 828、7.5部のVoranol<sup>TM</sup> 230-238ポリエーテルトリオール、1部のUnilin<sup>TM</sup> 700、2部のSarcat<sup>TM</sup> CD 1012光触媒、0.5部の1,3-  
40

ジフェニルイソベンゾフラン、7部のC a b - O - S i l <sup>T M</sup> M 5。

【0182】

押出物を2つの処理ライナー間のカレンダーニップに供給し、厚さ1.5mmにカレンダー仕上した。上方のライナーはポリマーコーティングシリコーン紙ライナーを使用し、下部のライナーは緑色ポリエチレンライナーを使用した。これらのライナーの使用によって、非常に均一なシーラントコーティング層が2つのライナー間に形成され、これらのライナーはシーラントを周囲の光から保護する役目も果たした。紙製ライナーをはがして、緑色ポリエチレンライナーはそのまま残した。再結晶過程が迅速になるため巻き取り性が向上して粘着性のないシーラントが得られるため、Polyester A樹脂を使用することで押出操作が非常に簡略化された。

10

【0183】

実施例22

この実施例ではシーラント層Oの作製を説明する。Polyester A(57部)と、15部のEpon <sup>T M</sup> 1001Fと、12.5部のEpon <sup>T M</sup> 828と、7.5部のVoranol <sup>T M</sup> 230-238と、1部のUnilin <sup>T M</sup> 700と、5部のSanticizer <sup>T M</sup> 278と、2部のジフェニルヨードニウムヘキサフルオロホスフェートと、0.005部の1,3-ジフェニルイソベンゾフランと、3部のAerosil <sup>T M</sup> R972シリカとを127に加熱して手で溶融混合した。シリコーンコーティングしたポリエステル剥離ライナー間で試料に圧力をかけて層状にした。

【0184】

20

実施例23

この実施例ではシーラント層Pの作製について説明する。シーラント層Pを、10部のDynapol <sup>T M</sup> S1402と、10部のEpon <sup>T M</sup> 1001と、4部のBenzoflex <sup>T M</sup> S-404可塑剤とを溶融混合することによって作製した。この試料は、可塑剤を含まない試料よりも再結晶にはるかに長時間を要した。シリコーンコーティングしたポリエステル剥離ライナー間で試料に圧力をかけて層状にした。

【0185】

実施例24

この実施例ではシーラント層Q~Vの作製について説明する。表1に、シーラント層Q~Vの作製に使用した各成分の重量部を示す。これらの成分を溶融混合して、シリコーンコーティングしたポリエステル剥離ライナー間で圧力をかけて層状にした。

30

【0186】

【表1】

成分	シーラント層 Q	シーラント層 R	シーラント層 S	シーラント層 T	シーラント層 U	シーラント層 V
Polyester A	45	45	45	0	0	0
Dynapol™ S1402	0	0	0	45	45	45
Synthetic Resin SK	15	0	0	0	0	0
Synthetic Resin AP	0	15	0	15	0	0
Synthetic Resin CA	0	0	15	0	15	0
Synthetic Resin LTH	0	0	0	0	0	15

## 【0187】

重なり剪断試験方法で先に概説したように、12.7mm×25.4mmの各シーラント層片を、陽極処理アルミニウムクーポンとDCT 5000金属クーポンとの間に配置して、ホットプレート上で加熱してシーラント層を軟化させることで重なり剪断接着パネルを作製した。ほぼ25mm×25mmシーラント層領域が得られるように、シーラントがまだ溶融状態の時に重なり接着が形成された。これらの試料は、試験前に24時間冷却した。表2に、重なり剪断試験の結果を示す。

## 【0188】

## 【表2】

材料	シーラント層 Q	シーラント層 R	シーラント層 S	シーラント層 T	シーラント層 U	シーラント層 V
重なり剪断接着力 (MPa)	4.62	4.04	4.75	2.10	2.37	3.43
破壊形態	AA	AA	AA	AA	AA	AA

## 【0189】

AAはDCT 5000 / シーラント層の境界面における接着破壊を示す。

## 【0190】

## 実施例25

この実施例ではシーラント層Wの作製について説明する。シーラント層Wを、45部のDynapol™ S1402と、30部のDynacol1™ 7130と、20部のEpon™ 828と、5部のVoranol™ 230-238と、1部のSarcat™ CD 1012と、0.005部の1,3-ジフェニルイソベンゾフランとを手で溶融混合し、その混合物をシリコーンコーティングしたポリエステルフィルム上に厚さ1.0mmでコーティングすることによって作製した。

## 【0191】

## 実施例26

この実施例ではシーラント層X～Zの作製について説明する。表3に、シーラント層X～Zの調製に使用した各成分の重量部を示す。これらの成分を手で溶融混合して、シリコ-

10

20

30

40

50

ンコーティングしたポリエステルライナーの間に厚さ1mmでコーティングした。

【0192】

【表3】

成分	シーラント 層X	シーラント 層Y	シーラント 層Z
P o l y e s t e r A	1 2	1 2	1 2
E p o n <sup>TM</sup> 8 2 8	4	4	4
S y n t h e t i c R e s i n C A	4	4	4
メタロセン触媒A	0. 1 5	0. 1 5	0. 1 5
O c t a f l o w <sup>TM</sup> S T 7 0	0. 5	0	0
O x y m e l t <sup>TM</sup> A - 1	0	1	0
I s o c r y l <sup>TM</sup> E P 5 5 0	0	0	2

【0193】

実施例27

この実施例ではシーラント層AAの作製について説明する。シーラント層AAを、12部のVitel<sup>TM</sup> 5833Bポリエステルと、8部のEpon<sup>TM</sup> 828と、0.2部のメタロセン触媒Aとの混合物を手で溶融混合して調製した。この混合物をシリコーンコーティングしたポリエステルライナーの間に厚さ1mmでコーティングした。この層を陽極処理アルミニウム箔に積層し、125のオーブンで加熱して、オーブンから取り出した直後にFusion Systems Processor(ランプモデルi300MB、コンベアモデルLC-6)を使用し24.4m/min(全エネルギーは約103mJであった)で光分解させ、Stainlessguard<sup>TM</sup> IVパネルおよびDCT5000パネルに積層した。どちらの場合も、塗料/シーラント層境界面における接着破壊が見られた。

【0194】

実施例28

この実施例ではシーラント層AB~AHの作製について説明する。表4に、シーラント層AB~AHの作製に使用した各成分の重量部を示す。以下の実施例の作製のために、試料を手で溶融混合して均一混合物を得た。圧舌子を用いてシリカをこの混合物に手でよく分散させた。所望の厚さ1mmが得られるスペーサーを使用して試料をシリコーン処理ポリエチレンテレフタレートライナー間にキャスティングした。

【0195】

【表4】

10

20

30

配合	シーラント層AB	シーラント層AC	シーラント層AD	シーラント層AE	シーラント層AF
Polyester A	16	16	16	16	20
Vitel™ 5833B	4	4	4	4	0
Synthetic Resin CA	8	8	8	8	8
Dynapol™ S1313	4	4	4	4	4
Epon™ 828	6	6	6	6	6
Epon™ SU-8	2	2	2	2	2
Cab-O-Sil™ M-5シリカ	2	0	2	2	2
1,12-ドデカジ二酸	0	0	3	6	1.5
メタロセン触媒A	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2

10

20

## 【0196】

シーラント層を、前述の45°流れ試験によって評価し、以下にその結果を示す。

## 【0197】

## 【表5】

試験結果	シーラント層AB	シーラント層AC	シーラント層AD	シーラント層AE	シーラント層AF
45°流れ試験結果 (120°Cで20分)	<1 mm	94 mm	<1 mm	<1 mm	<1 mm

30

## 【0198】

## 実施例29

この実施例では、間隙充填の効果に対するコア層とシーラント層の厚さの両方の依存性を説明する。前述のようにしてシーラント層ABを厚さ1.0 mm、2.0 mm、および3.0 mmで作製した。コア層Bを互いに積層して、厚さ2.0 mmおよび3.0 mmのコア層を作製した。次に3種類の厚さのシーラントを、3種類の厚さのコア層に積層した。次にテープ試料を幅10 mm × 長さ127 mmに切断した。

## 【0199】

ガラスクーポン(5.08 cm × 12.7 cm × 0.394 cm)を、3-アミノプロピルトリメトキシラン1重量%のメタノール溶液でプライマー処理して、室温で乾燥させた。次にテープ試料をこのプライマー処理したガラス表面に積層した。ED 5100(25.4 mm × 102 mm × 0.89 mm)クーポンを接着層A(厚さ0.51 mm)と積層して種々の厚さのスペーサーを作製し、これらをDCT 5002塗装パネル(102 mm × 305 mm)に取り付けた。第1スタックを5.6 mm、第2スタックを4.0 mm、第3スタックを2.6 mm、最終スタックを1.8 mmとした。スタック間の間隔は10 mmとした。次にパネルを140°で25分間焼付けた。次にテープ搭載ガラスクーポンを120°のオーブンに約5分間入れた。次にこのクーポンを16.5 m/minでFusion Systems Processorに一度通した。次にテープ搭載ガラスクーポンを、クーポンが各間隙にまたがるようにスタックを取り付けたパネル上に押し付け、手で圧力をかけたのちに圧力を開放して、試料を冷却した。次に間隙について

40

50

、シーラントが間隙まで到達して塗装面をぬらしたかどうかを調べた。

#### 【0200】

以下の表に結果を示す。Cはシールが形成されたことを示し、Iはシールが不完全であったことを示す。結果から分かるように、より多くのシーラントが必要となるような間隙にシーラント層を到達させる補助となることで、コア層がシーリングの効率に貢献している。

#### 【0201】

【表6】

コアの厚さ	シーラントの厚さ	間隙の深さ 2. 6 mm	間隙の深さ 4. 0 mm	間隙の深さ 5. 6 mm
1 mm	1 mm	C	I	I
2 mm	1 mm	C	I	I
3 mm	1 mm	C	I	I
1 mm	2 mm	C	C	I
2 mm	2 mm	C	C	I
3 mm	2 mm	C	C	I
1 mm	3 mm	C	C	I
2 mm	3 mm	C	C	C
3 mm	3 mm	C	C	C

10

20

#### 【0202】

##### 実施例3 1

この実施例では、2層テープ構造体Aと、そのプラケット付き窓への使用を説明する。接着層Aを厚さ1.0 mmのシーラント層DのMelinex™ 054側に積層した。得られた積層体を25.4 mm × 50.8 mmの条片に切断した。次に剥離ライナーを接着層側から剥離して、ガラス板のガラス端部付近の一面にテープを取り付けた。次にシーラント層が現われるように、テープをガラス端部の周囲に巻きつけてガラスの反対側で固定した。次に金属製U字型溝付きプラケットをテープ上にすべらせて取り付けた。とまりばめが維持される程度の十分な抵抗があった。次にこの組立品をオープンに入れて、141で25分間焼付けした。シーラント層が、ガラスを取り囲んで溝に充填され、ペースト接着剤系と非常に類似した外観が得られるほど十分に溝の内部を満たした。

30

#### 【0203】

金属とガラスの間の接着強度を、引張りおよび伸び率試験を利用して、70、あるいは37.8相対湿度100%において14日後を上限とする期間後に試験を行うと、ガラスの破損が見られた。いずれの基材においても層間剥離または接着破壊は見られなかった。

#### 【0204】

##### 実施例3 1

この実施例では、2層テープ構造体Bの作製について説明する。#5 Meyer(針金を巻きつけた)ロッドを用いてプライマー組成物Aをコーティングしたコア層Dにシーラント層Wを積層した。プライマーはコア層と積層する前に約5分間乾燥させた。次に得られた積層体を幅12.7 mmの条片に切断した。

40

#### 【0205】

1985年製Buick Somersetのクオーターウィンドウガラスのフリット面を、プライマー組成物Aに2重量%の3-アミノプロピルトリメトキシシランを加えた溶液でプライマー処理した。次にこの溶液をガラスのガラスのフリット結合面にはけ塗りして室温で風乾した。次にテープ構造体のフォームコア層側をそぎ継ぎを用いてガラスと積層し、テープの両端を互いにつなぎ合わせて部品の周囲を取り囲んだ。

#### 【0206】

次に、得られた組立品を、緑色ポリエチレンを積層したライナーを有する幅76.2 mm

50

のラベリングテープで構成される突出部を有するライナーを用いて包みこんだ。ライナーをシーラントの光保護材として機能させ、粘着性ラベリングテープが覆いかぶさることでテープの端部表面に沿って接着することによって、このテープはテープの付いた面を覆うように取り付ける。石英 I R ランプを使用してテープの表面を加熱した。この光源装置がテープを 80 °C に加熱するためには約 2 分間かかった。次にテープを取り付けたガラス組立品に、スーパージアゾブルーランプ (U V P Inc. 社 (San Gabriel, California) より入手できる Black Ray Lamp Model No. XX-15L, Philips B.V. (オランダ) の Model TLD15W / 03 の電球 2つを取り付けたもの) に 25 秒間 (全エネルギーは約 137 mJ であった) を照射して、次に塗装金属の切り抜き片に取り付けた。流れは良好であった。シーラントは、溶接部分の穴および反対側のキノコ型の頭部分まで流れることができ、良好なシールが形成された。

## 【0207】

## 実施例 3 2

これらの実施例では、2 層テープ構造体 C ~ E の作製について説明する。シーラント層 X ~ Z をコア層 C (プライマー組成物 A でプライマー処理した) に積層し、次にコア層を陽極処理アルミニウム箔に積層した。次にシーラント層を、 Fusion Systems Processor からの紫外光 (全エネルギーは約 137 mJ であった) にさらし、 DCT 5000 塗装金属クーポンに室温で取り付け、また冷却したパネルにも取り付けた。試料を終夜養生して、手で引き剥がし、続いてスパチュラで引っかいて強制的に接着破壊させた。

## 【0208】

## 【表 7】

2 層テープ構造体	使用したシーラント層	冷却時最初の引き剥がし	冷却時引っかき	室温最初の引き剥がし	室温引っかき
C	X	AD	AD	AD	AD
D	Y	FS	Coh	FS	Coh
E	Z	FS	Coh/AD	FS	Coh/A D

## 【0209】

表 7において、FS はフォームコア層の分裂 (コア層凝集破壊) を意味し；AD はシーラント層 / 塗装層境界面での接着破壊を意味し；Coh はシーラント層の凝集破壊を意味する。

## 【0210】

## 実施例 3 3

この実施例では 2 層テープ構造体 F の作製について説明する。

## 【0211】

比較例として、Hydro sil™ 2627 ガラスプライマーを 50.7 mm × 100.1 mm のガラス片にコーティングした。Auto Glass Urethane Windshield Adhesive No. 08693 の直径 6.3 mm 分をガラスに使用して、その組立品を DCT 5002 塗装金属クーポンに積層した。

## 【0212】

本発明によると、コア層 E を、上述のようにプライマー処理した別のガラス片上に取り付けた。次に Auto Glass Urethane Windshield Adhesive No. 08693 の直径 6.3 mm 分をフォームコア層に使用して、その組立品を上述のように塗装金属クーポンに取り付けた。

## 【0213】

10

20

30

40

50

どちらの場合も、各試料に十分な圧力をかけると、ウレタンが金属パネルから押し出された。1週間後試料を調べると、それぞれの構造体がしっかりとパネルに接着したことは明らかであったが、コア層Eの試料の場合は、接着破壊をすることなしに金属クーポンに対してガラスをより大きく動かせるようになった。

#### 【0214】

##### 実施例34

この実施例では、ポリエステル連結層を有する3層テープ構造体Aの作製と、そのガラスと金属の接着への使用について説明する。コア層Aを、シーラント層Dのポリエステル側に積層した。コア層Aの反対の面には、接着層Aの厚さ0.25mmの層を積層した。この積層体を幅19mm長さ100mmの条片に切断し、接着層を厚さ4mmの板ガラスに積層した。25.4mm×100.2mmの電着塗装金属クーポンをシーラント層の最上部の上に置いた。フロントガラスの重量のシミュレートの意味で、バネクリップを使用して電着塗装クーポンとガラス板の端を固定して垂直力の負荷をかけた。25.4mm×50.8mmの陽極処理アルミニウムクーポンをシーラント層の反対側の端に載せて、試料を177のオーブンに25分間入れた。オーブンから取り出すと、接着層Aが変色しており、これはテープが熱硬化状態に達したことを示している。シーラント層の流れとクーポンとの結合の形成がどちらの場合にも見られた。

#### 【0215】

陽極処理パネルが変形したときには、クーポンと垂直方向にアクリルフォームコアの激しい変形が起こったが、組立品には損傷がないままであった。

#### 【0216】

##### 実施例35

この実施例では、ポリエステル連結層を有する3層テープ構造体Bの作製と、そのプラケット付き窓への使用を説明する。層厚さ30ミルの接着層Aをコア層Bに手で積層した。シーラント層Fを、コア層Bの反対側の面に積層した。

#### 【0217】

25.4mm×76.2mmの試料条片を作製した複合積層体から切り取り、その接着層を50.8mm×127mmの平板ガラス片に積層した。次にこの組立品を、テープを上向きにして140の強制空気対流オーブンに20分間入れた。焼付け後に観察すると、接着層の外観が変化して色むらのある灰色の外観となり、シーラントは軟化／溶融して半透明の外観となった。シーリング層はテープ端から流出しなかったが、これはテープの接着層およびフォーム層により包みこまれた結果と思われる。シーラントを冷却して再固化すると粘着性のない状態になった。

#### 【0218】

次にこの組立品を終夜養生して、翌日試料に低強度の紫外線を約25.4mmの距離から5分間露出した。露出の後、ヒートガンを使用してテープを加熱した。加熱中に、シーラント部分の外観が半透明で光沢が見られるようになつたが、これはシーラントが軟化したことを見ている。25.4mm×100.2mmの塗装(DCT 5002)鋼板を、溝の深さが約3mmとなるように逆U字型に曲げた。これを軟化したシーラントの長さ方向に手で押しつけて、シーラント層自身の厚さよりも深い間隙をシーラントが満たすことができるかを調べた。目視では、シーラント層が溝の空隙に向かって効率的に流れ、鋼板の最も深い部分と接触させることができた。

#### 【0219】

流れおよび接着の過程中に、シーラントが塗装面の全面をぬらすのが観察でき、次に手による圧力を開放すると、シーラントに端部方向からくびれが生じわざかなくぼみが生じた。このくぼみがふさがれているのかどうかを調べるために、くぼみに水を入れてみた。水はくぼみの中に保持されたことから、効率的なシールが得られていることが分かった。

#### 【0220】

##### 実施例36

この実施例では、ポリエステル連結層を有する3層テープ構造体Cの作製と、そのプラケ

10

20

30

40

50

ット付き窓への使用について説明する。テープ構造体Cは、コア層Bをシーラント層Eに積層することで作製した。コア層Bの反対側の面には接着層Aを積層した。この積層体を12.7mm×25.4mmの条片に切断し、その接着層を厚さ4mmの板ガラスに積層した。次に積層体のシーラント層を、実施例2との関連で説明したSylvania蛍光ブラックライト電球を用いた紫外線に約10cmの距離から5分間露出した。次に積層体を、シーラント層がパネルの上面でパネルと接触するようにDCT5002塗装金属パネル上においた。この試料を141のオーブンに20分間入れた。

#### 【0221】

金属とガラスの間の接着強度を、70、あるいは37.8相対湿度100%において20日後を上限とする期間における引張りおよび伸び率試験により測定した結果、コア層の破壊が見られた。どちらの基材に対しても層間剥離または接着破壊は見られなかった。

10

#### 【0222】

##### 実施例37

この実施例では、ポリエステル連結層を有する3層テープ構造体Dと、そのプラケット付き窓への使用について説明する。テープ構造体Dを、コア層Bをシーラント層Fと積層することで作製した。コア層Bの反対側の面には接着層Aを積層した。この積層体を12.7mm×25.4mmの条片に切断し、その接着層を厚さ4mmの板ガラスに積層した。次に積層体のシーラント層を、実施例2との関連で説明したSylvania蛍光ブラックライト電球を用いた紫外線に約10cmの距離から5分間露出した。次に積層体を、シーラント層がパネルの上面でパネルと接触するようにDCT5002金属パネル上においた。この試料を141のオーブンに20分間入れた。

20

#### 【0223】

金属とガラスの間の接着強度を、70、あるいは37.8相対湿度100%において20日後を上限とする期間における引張りおよび伸び率試験により測定した結果、コア層の破壊が見られた。どちらの基材に対しても層間剥離または接着破壊は見られなかった。

#### 【0224】

##### 実施例38

この実施例では、ポリエステル連結層を有する3層テープ構造体Eの作製と、そのプラケット付き窓への使用について説明する。テープ構造体Eを、コア層Cをシーラント層Gに積層することによって作製した。コア層Cの反対側の面には接着層Aを積層した。この積層体を12.7mm×25.4mmの条片に切断し、その接着層を厚さ4mmの板ガラスに積層した。次に積層体のシーラント層を、実施例2との関連で説明したSylvania蛍光ブラックライト電球を用いた紫外線に約10cmの距離から5分間露出した。次に積層体を、シーラント層がパネルの上面でパネルと接触するようにDCT5002金属パネル上においた。この試料を141のオーブンに20分間入れた。

30

#### 【0225】

金属とガラスの間の接着強度を、70、あるいは37.8相対湿度100%において20日後を上限とする期間における引張りおよび伸び率試験により測定した結果、コア層の破壊が見られた。どちらの基材に対しても層間剥離または接着破壊は見られなかった。

#### 【0226】

40

##### 実施例39

この実施例では、ポリエステル連結層を有する3層テープ構造体Fの作製と、そのプラケット付き窓への使用について説明する。テープ構造体Fを、コア層Bをシーラント層Hに積層することによって作製した。コア層Bの反対側の面には接着層Aを積層した。この積層体を12.7mm×25.4mmの条片に切断し、その接着層を厚さ4mmの板ガラスに積層した。次に積層体のシーラント層を、実施例2との関連で説明したSylvania蛍光ブラックライト電球を用いた紫外線に約10cmの距離から5分間露出した。次に積層体を、シーラント層がパネルの上面でパネルと接触するようにDCT5002金属パネル上においた。この試料を141のオーブンに20分間入れた。

#### 【0227】

50

金属とガラスの間の接着強度を、70、あるいは37.8 相対湿度100%において20日後を上限とする期間における引張りおよび伸び率試験により測定した結果、コア層の破壊が見られた。どちらの基材に対しても層間剥離または接着破壊は見られなかった。

#### 【0228】

##### 実施例4 0

この実施例では、ポリエステル連結層を有する3層テープ構造体Gの作製と、そのプラケット付き窓への使用について説明する。テープ構造体Gを、コア層Bをシーラント層Iに積層することによって作製した。コア層Bの反対側の面には接着層Aを積層した。この積層体を12.7mm×25.4mmの条片に切断し、その接着層を厚さ4mmの板ガラスに積層した。次に積層体のシーラント層を、実施例2との関連で説明したSylvania蛍光ブラックライト電球を用いた紫外線に約10cmの距離から5分間露出した。次に積層体を、シーラント層がパネルの上面でパネルと接触するようにDCT5002金属パネル上においた。この試料を141のオープンに20分間入れた。

10

#### 【0229】

金属とガラスの間の接着強度を、70、あるいは37.8 相対湿度100%において20日後を上限とする期間における引張りおよび伸び率試験により測定した結果、コア層の破壊が見られた。どちらの基材に対しても層間剥離または接着破壊は見られなかった。

#### 【0230】

##### 実施例4 1

この実施例では、ポリエステル連結層を有する3層テープ構造体の作製と、そのプラケット付き窓への使用について説明する。テープ構造体Hを、コア層Bをシーラント層Jに積層することによって作製した。コア層Bの反対側の面には接着層Aを積層した。この積層体を12.7mm×25.4mmの条片に切断し、その接着層を厚さ4mmの板ガラスに積層した。次に積層体のシーラント層を、実施例2との関連で説明したSylvania蛍光ブラックライト電球を用いた紫外線に約10cmの距離から5分間露出した。次に積層体を、シーラント層がパネルの上面でパネルと接触するようにDCT5002塗装金属パネル上においた。この試料を141のオープンに20分間入れた。金属とガラスの間の接着強度を、70、あるいは37.8 相対湿度100%において20日後を上限とする期間における引張りおよび伸び率試験により測定した結果、コア層の破壊が見られた。どちらの基材に対しても層間剥離または接着破壊は見られなかった。

20

#### 【0231】

##### 実施例4 2

この実施例では、ポリエステル連結層を有する3層テープ構造体Iの作製と、ガラスを金属に接着させることへのその使用について説明する。テープ構造体Iを、コア層Bをシーラント層Kに積層することによって作製した。コア層Bの反対側の面には接着層Aを積層した。この積層体を12.7mm×25.4mmの条片に切断し、その接着層を厚さ4mmの板ガラスに積層した。次に積層体のシーラント層を、実施例2との関連で説明したSylvania蛍光ブラックライト電球を用いた紫外線に約10cmの距離から5分間露出した。次に積層体を、シーラント層がパネルの上面でパネルと接触するようにDCT5002金属パネル上においた。この試料を141のオープンに20分間入れた。

30

#### 【0232】

金属とガラスの間の接着強度を、70、あるいは37.8 相対湿度100%において20日後を上限とする期間における引張りおよび伸び率試験により測定した結果、コア層の破壊が見られた。どちらの基材に対しても層間剥離または接着破壊は見られなかった。

#### 【0233】

##### 実施例4 3

この実施例では3層テープ構造体Jの作製について説明する。シーラント層L自身を4層の厚さまで積層し、最終厚さを4.0mmにした。次にこの4層積層試料を厚さ1.0mmのコア層Bにさらに積層し、続いて接着層Aをアクリルフォームの反対側の面に積層した。次に多層試料を25.4mm×12.7mmに切断し、ガラス板の一端に水平方向に

40

50

積層した。次にテープが上端に位置するようにしてガラスを垂直方向になるように台に載せて、141に設定したオープンに25分間入れた。オープンから取り出すと、シーラント層全体が流れた。

#### 【0234】

##### 実施例44

この実施例では3層テープ構造体Kの作製について説明する。シーラント層Mを自身に積層して4層の厚さにすると、最終厚さが約4.0mmになった。次にこの4層積層試料を厚さ1.0mmのコア層Bにさらに積層し、続いて接着層Aをアクリルフォームの反対側の面に積層した。次に多層試料を25.4mm×12.7mmに切断し、ガラス板の一端に水平方向に積層した。次にテープが上端に位置するようにしてガラスを垂直方向になるように台に載せて、141に設定したオープンに25分間入れた。オープンから取り出すと、シーラント層はガラスパネルの面から約25.4mm下方に流れた。

10

#### 【0235】

##### 実施例45

この実施例では3層テープ構造体Lの作製について説明する。シーラント層N自身に積層して4層の厚さにすると、最終厚さが約4.0mmになった。次にこの4層積層試料を厚さ1.0mmのコア層Bにさらに積層し、続いて接着層Aをアクリルフォームの反対側の面に積層した。次に多層試料を25.4mm×12.7mmに切断し、ガラス板の一端に水平方向に積層した。次にテープが上端に位置するようにしてガラスを垂直方向になるように台に載せて、141に設定したオープンに25分間入れた。オープンから取り出すと、シーラント層の流れは見られず、シーラントの端は角張ったままであった。材料を冷却した後に、141で5分間再加熱してオープンから取り出し、0.63mmの穴を切り抜いた25.4mm×100.2mmの電着塗装金属クーポンを10%のシリカを含有するシーラントに押し付けた。シーラントが容易にクーポンの周囲に流れだして穴の中に入り込むのが観察され、裏側で膨張することによってクーポンがシーラントに物理的に固定された。シーラントを急速に冷却して再結晶させると強固な結合／シールが形成された。

20

#### 【0236】

##### 実施例46

この実施例では3層テープ構造体Mについて説明する。接着層Aを厚さ3.0mmのコア層Eに積層し次にこれを厚さ1.5mmのシーラント層Oに積層した。

30

#### 【0237】

##### 実施例47

この実施例では、本発明によるガラス窓の取り付けを説明する。ガラスと金属を1985年製Buick Somersetのクオーターウィンドウ（ポリ塩化ビニル（PVC）で封入されていると考えられる）から切り取った。両面を清浄にして、使用前に従来の自動車修理用塗料で金属を再塗装した。3層テープ構造体Mを、幅約12.7mmの条片にした。テープの接着層をガラス周囲に室温条件で接着した後、石英赤外ランプで加熱して接着層を活性化させた。この工程中にPVC封入材料から煙がではじめた。試料を冷却して、シーラント面を赤外線にさらしてテープを再加熱した。シーラントが軟化した後、積層構造体を実施例31との関連で記載したスーパージアゾブルーランプを使用した光に10秒間露出し、この露出は（約110mJ/cm<sup>2</sup>）であった。次にこの試料を、ガラス面に均一な圧力がかかるようにして切り抜き金属にすぐに取り付けた。

40

#### 【0238】

##### 実施例48

この実施例では、本発明による別のガラス窓の取り付けについて説明する。実施例47と同様に、ガラスを約82.2まで赤外線で予備加熱した。3層テープ構造体Mを容易にガラス周囲に取り付けることができた。両端を約76.2mmにわたって互いに重ね合わせてシールを形成した。さらに赤外線で裏側（ガラスを通して）を加熱した。約20分後試料を冷却した。シーラント面を赤外線で再加熱し、続いて実施例31との関連で記載し

50

たスーパージアゾブルーランプを使用した光に露出し、切り取り金属に取り付けると、良好なシールが得られた。

#### 【0239】

##### 実施例49

この実施例では、3層テープ構造体を使用した金属とガラスのシーリングについて説明する。接着層Aをコア層Fの一面に積層し、試料を幅12.7mmにきり取り、得られた条片をガラス基材に積層し、140のオーブンに25分間入れた。試料をオーブンから取り出した後、室温まで冷却して、Auto Glass Urethane Winds shield Adhesive No. 08693の直径10mm分をコア層Fに付けて、得られた積層体を、シーラントが表面から押し出されるように十分な圧力をかけてDCT 5002金属パネルに積層した。周囲条件でフィルムを終夜硬化させると、良好なシールが形成された。

#### 【0240】

##### 実施例50

この実施例では、3層テープ構造体を使用した金属とガラスのシーリングについて説明する。シーラント層ABをウレタンペーストの代わりに使用したことを除けば実施例49の手順を繰り返した。従って、シーラント層ABをコア層Fの面に積層し、その組立品を120で約5分間加熱した。次にFusion Systems Processorを使用して16.5m/minで1回通すことで試料を露出させた。次に試料をDCT 5002金属パネル上に置いて、よくぬれるまで十分に圧力をかけた。

#### 【0241】

##### 実施例51

この実施例では、3層テープ構造体を使用した金属とガラスのシーリングについて説明する。この実施例においては、幅25.4mmのテープの形態の接着層Aを102mm×203mmのガラス片の周囲を囲むように取り付けた。テープを取り付けたガラスを140で25分間硬化させた。

#### 【0242】

シーラント層AFを、コア層Bを2層積層（厚さ2mm）したものに積層し、幅12.7mmに切断した。次にこの条片を硬化させた接着層Aに積層した。硬化接着層とコア層の間に強固な結合が見られた。ガラス周囲を取り囲んだ後の2つの端部はそぎ継ぎで取り付けた。次にこの組立品を120で約5分間加熱し、Fusion Systems Processorを使用して16.5m/minで露出させた。次にこの組立品をDCT 5002金属パネルに積層すると良好なシールが形成された。

#### 【0243】

##### 実施例52

この実施例では、3層テープ構造体を使用した金属とガラスのシーリングについて説明する。この実施例においては、接着層Aをコア層Bを2層積層（厚さ2mm）したものに積層し、幅12.7mmのテープの形態に切断した。テープの接着層A側をイソプロパノールで清浄にした102mm×203mmのガラス片の周囲に積層した。テープの両端はそぎ継ぎで互いに重ね合わせて、試料を140で25分間焼付けした。試料を冷却した。冷却後、シーラント層AB（幅12.7mm）をコア層に積層し、その両端を互いに突合させた。次にこの組立品を120で5分間加熱して、Fusion Systems Processorを使用して16.5m/minで露出させた。次にこの組立品をDCT 5002金属パネルに積層すると良好なシールが得られた。

#### 【0244】

他の実施例も特許請求の範囲である。上述の特定の実施例および図面を参照にして本発明を説明してきたが、本発明の精神はそれらに限定されるものではなく、添付の特許請求の範囲によって定められる。

#### 【図面の簡単な説明】

本発明は以下の図面を参照することでより十分に理解できると思われる。図面における同

10

20

30

40

50

様の参照番号は全体で同様または類似の構成要素を表している。

【図1】 本発明による多層物品の拡大された断片的な断面図である。

【図2】 本発明による多層テープがその一方の主面に固定された自動車フロントガラスの平面図である。

【図3】 図2の線3-3に沿った拡大断面図である。

【図4】 本発明による自動車へのフロントガラスの取り付けを説明する分解組立斜視図である。

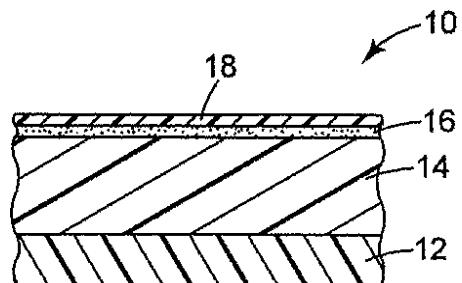
【図5】 本発明による、自動車のフレームへフロントガラスを固定するための多層テープの使用を示す略断面図である。

【図6】 本発明による縁端面に固定した多層テープを有する基材の平面図である。 10

【図7】 図6の線7-7に沿った拡大断面図である。

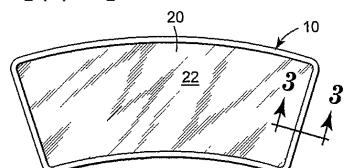
【図8】 本発明による多層テープを使用したブラケット内でシーリングした基材を示す断面図である。

【図1】



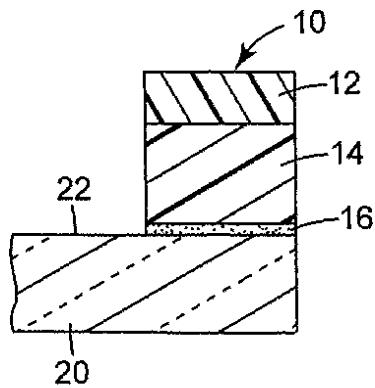
**Fig. 1**

【図2】



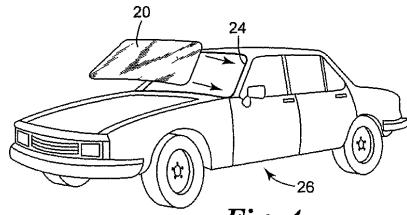
**Fig. 2**

【図3】



**Fig. 3**

【図4】



**Fig. 4**

【図 5】

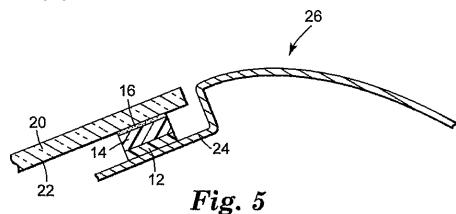


Fig. 5

【図 7】

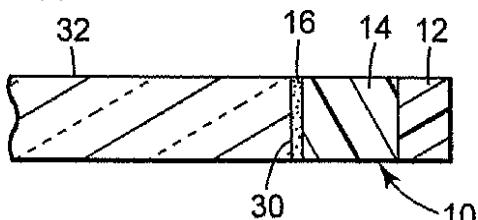


Fig. 7

【図 6】

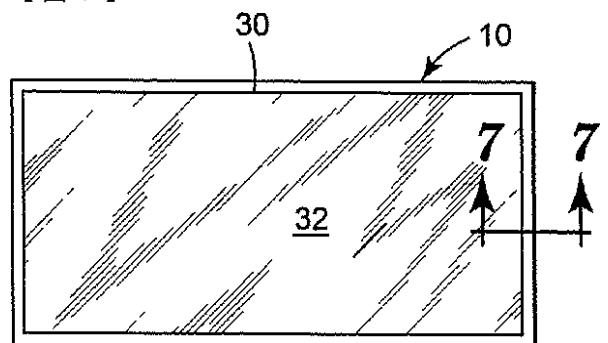


Fig. 6

【図 8】

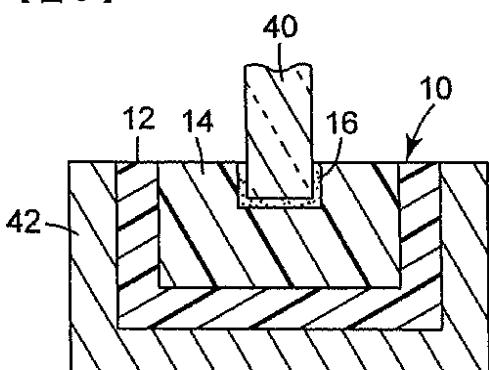


Fig. 8

---

フロントページの続き

(72)発明者 ジョンソン ,マイケル エー .

アメリカ合衆国 ,ミネソタ 55133-3427 ,セント ポール ,ピー .オー .ボックス 3  
3427

(72)発明者 ジョージ ,クレイトン エー .

アメリカ合衆国 ,ミネソタ 55133-3427 ,セント ポール ,ピー .オー .ボックス 3  
3427

(72)発明者 ボエッチャー ,ロバート ジェイ .

アメリカ合衆国 ,ミネソタ 55133-3427 ,セント ポール ,ピー .オー .ボックス 3  
3427

審査官 加藤 浩

(56)参考文献 特開昭63-241087(JP,A)

特開昭52-089140(JP,A)

特開平02-272076(JP,A)

特開平09-099466(JP,A)

特開平01-274872(JP,A)

特開平04-271972(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl. , DB名)

B32B 1/00-43/00

C03C 27/04

C08L 63/00

C08L 67/00

C09J 7/02