

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公表特許公報(A)

(11)公表番号

特表2023-530767

(P2023-530767A)

(43)公表日 令和5年7月19日(2023.7.19)

(51)国際特許分類	F I	テーマコード(参考)
C 0 9 J 4/00 (2006.01)	C 0 9 J 4/00	4 J 0 4 0
C 0 9 J 11/04 (2006.01)	C 0 9 J 11/04	4 J 1 0 0
C 0 8 F 220/10 (2006.01)	C 0 8 F 220/10	

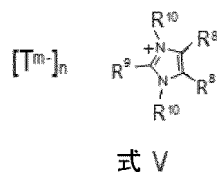
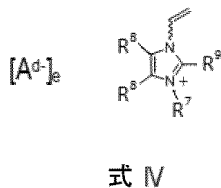
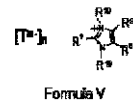
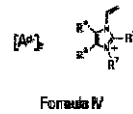
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全42頁)

(21)出願番号	特願2022-579108(P2022-579108)	(71)出願人	391008825 ヘンケル・アクチェンゲゼルシャフト・ ウント・コムパニー・コマンディットゲ ゼルシャフト・アウフ・アクチェン Henkel AG & Co. KGaA ドイツ連邦共和国 デュッセルドルフ ヘ ンケルシュトラッセ 67 Henkelstrasse 67, D - 4 0 5 8 9 D u e s s e l d o r f , Germany
(86)(22)出願日	令和3年5月31日(2021.5.31)	(74)代理人	100145403 弁理士 山尾 憲人
(85)翻訳文提出日	令和4年12月21日(2022.12.21)	(74)代理人	100104592 弁理士 森住 憲一
(86)国際出願番号	PCT/EP2021/064562	(72)発明者	チョウ, カン ウェイ
(87)国際公開番号	WO2021/259594		
(87)国際公開日	令和3年12月30日(2021.12.30)		
(31)優先権主張番号	20382539.3		
(32)優先日	令和2年6月22日(2020.6.22)		
(33)優先権主張国・地域又は機関	欧州特許庁(EP)		
(31)優先権主張番号	63/093,384		
(32)優先日	令和2年10月19日(2020.10.19)		
(33)優先権主張国・地域又は機関	米国(US)		
(81)指定国・地域	AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA 最終頁に続く		最終頁に続く

(54)【発明の名称】 電気化学的に剥離可能な接着剤組成物

(57)【要約】

本発明は、硬化性で電気化学的に剥離可能な接着剤組成物であって、該組成物は、組成物の重量に基づいて、
a) 40 ~ 99重量%の少なくとも1のエチレン性不飽和非イオン性モノマー；
b) 0.9 ~ 50重量%の少なくとも1の重合性イオン性化合物；および
c) 0.1 ~ 10重量%の少なくとも1のフリーラジカル開始剤を含んでなり、
重合性イオン性化合物は、b1) 少なくとも1の一般式IVで示される化合物および/または
b2) 少なくとも1の一般式Vで示される化合物を含んでなる、接着剤組成物。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

硬化性で電気化学的に剥離可能な接着剤組成物であって、該組成物は、組成物の重量に基づいて、

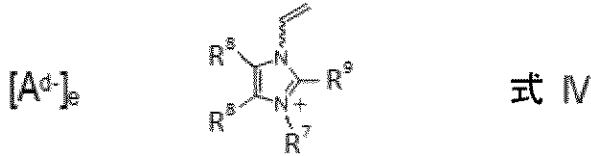
40～99重量%のa)少なくとも1のエチレン性不飽和非イオン性モノマー；

0.9～50重量%のb)少なくとも1の重合性イオン性化合物；

0.1～10重量%のc)少なくとも1のフリーラジカル開始剤

を含んでなり、重合性イオン性化合物は、

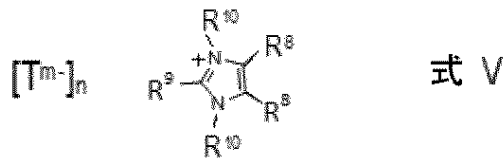
b1)少なくとも1の、一般式IV：



10

で示される化合物、および/または

b2)少なくとも1の、一般式V：



20

[式中、R⁷は、C₁-C₃₀アルキル；C₂-C₈アルケニル；C₁-C₃₀ヘテロアルキル；C₃-C₃₀シクロアルキル；C₆-C₁₈アリール；C₁-C₉ヘテロアリール；C₇-C₁₈アルキルアリール；C₂-C₅ヘテロシクロアルキル；または-R^a-C(=O)-R^b〔ここで、R^aはC₁-C₆アルキレン基であり、R^bはC₁-C₆アルキル基である〕から選択され；

各R⁸は独立して、H、C₁-C₁₈アルキル、C₁-C₁₈ヘテロアルキル、C₃-C₁₈シクロアルキル、C₆-C₁₈アリール、C₁-C₉ヘテロアリール、C₇-C₁₈アルキルアリールまたはC₂-C₅ヘテロシクロアルキルから選択され；

30

R⁹は、HまたはC₁-C₄アルキルであり；

各R¹⁰は独立して、C₁-C₃₀アルキル；C₁-C₃₀ヘテロアルキル；C₃-C₃₀シクロアルキル；C₆-C₁₈アリール；C₁-C₉ヘテロアリール；C₇-C₁₈アルキルアリール；C₂-C₅ヘテロシクロアルキル；または-R^a-C(=O)-R^b〔ここで、R^aはC₁-C₆アルキレン基であり、R^bはC₁-C₆アルキル基である〕から選択され；

Aは、非重合性アニオンであり；

Tは、エチレン性不飽和アニオンであり；

dおよびmはそれぞれ、少なくとも1の値を有する整数であり；

eおよびnは、化合物が電氣的に中性になるような数値であり；

40

は、共有結合、C₁-C₂アルキレン、-CH₂OC(=O)-、-CH₂CH₂OC(=O)-、p-ベンジルまたはp-トリルである]

で示される化合物を含んでなる、接着剤組成物。

【請求項 2】

45～95重量%のa)前記少なくとも1のエチレン性不飽和非イオン性モノマー；

5～30重量%のb)前記少なくとも1の重合性イオン性化合物；

0.1～5重量%のc)前記少なくとも1のフリーラジカル開始剤；および

0～10重量%のd)可溶化剤

を含んでなる、請求項1に記載の接着剤組成物。

50

【請求項 3】

パート a) は、組成物の重量に基づいて 40 ~ 95 重量% の a 1) 少なくとも 1 の、式 (I) :



[式中、G は、水素、ハロゲンまたは C₁-C₄ アルキル基であり ;

R¹ は、C₁-C₃₀ アルキル ; C₂-C₃₀ ヘテロアルキル ; C₃-C₃₀ シクロアルキル ; C₂-C₈ ヘテロシクロアルキル ; C₂-C₂₀ アルケニル ; および C₂-C₁₂ アルキニルから選択される] で示される (メタ) アクリレートモノマーを含んでなる、請求項 1 または 2 に記載の接着剤組成物。

【請求項 4】

パート a) は、組成物の重量に基づいて、50 重量% まで、好ましくは 5 ~ 25 重量% の a 3) 少なくとも 1 の (メタ) アクリレート官能化オリゴマーを含んでなる、請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の接着剤組成物。

【請求項 5】

パート a) は、少なくとも 1 の、3 ~ 5 個の炭素原子を有する、- エチレン性不飽和モノカルボン酸を含んでなる、請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載の接着剤組成物。

【請求項 6】

パート b) において、

R⁷ は、C₁-C₈ アルキル ; C₂-C₄ アルケニル ; C₁-C₈ ヘテロアルキル ; C₃-C₁₂ シクロアルキル ; C₆-C₁₈ アリール ; C₁-C₉ ヘテロアリール ; C₇-C₁₈ アルキルアリール ; C₂-C₅ ヘテロシクロアルキル ; または -R^a-C(=O)-R^b [ここで、R^a は C₁-C₄ アルキレン基であり、R^b は C₁-C₄ アルキル基である] から選択され ;

各 R⁸ は、好ましくは独立して H または C₁-C₂ アルキルから選択され ;

R⁹ は、H またはメチルであり ;

R¹⁰ は、C₁-C₈ アルキル ; C₁-C₈ ヘテロアルキル ; C₃-C₁₂ シクロアルキル ; C₆-C₁₈ アリール ; C₁-C₉ ヘテロアリール ; C₇-C₁₈ アルキルアリール ; C₂-C₅ ヘテロシクロアルキル ; または -R^a-C(=O)-R^b [ここで、R^a は C₁-C₄ アルキレン基であり、R^b は C₁-C₄ アルキル基である] から選択される、

請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の接着剤組成物。

【請求項 7】

パート b) は、

b 1) 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-メチル-, ヨージド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-メチル-, クロリド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-メチル-, プロミド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-メチル-, メタンスルホネート ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-メチル-, 1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, 1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, 1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, ヘキサフルオロホスフェート ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-メチル-, 4-メチルベンゼンスルホネート ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-メチル-, テトラフルオロボレート ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, ヨージド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, プロミド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, 1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, ヘキサフルオロホスフェート ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, テトラフルオロボレート ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-(1-メチルエチル)-, プロミド ; 1H-イミダゾリウム, 3-(1,1-ジメチルエチル)-1-エテニル-, プロミド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-プロピル-, プロミド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-(フェニルメチル)-, プロミド ; 1H-イミダゾリウム, 1-エテニル-3-(4-メチルフェニル)-, クロリド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-(1-メチルプロピル)-, クロリド ; 1H-イミダゾリウム, 1-ブチル-3-エテニル-, プロミド ; 3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-1-メチル-, ヨージド ; 1H-イミダゾ

10

20

30

40

50

リウム, 3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-1-メチル-, クロリド; 1H-イミダゾリウム, 3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-1-メチル-, 1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド; 1H-イミダゾリウム, 3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-1-メチル-, ヘキサフルオロホスフェート; 1H-イミダゾリウム, 3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-1-メチル-, テトラフルオロボレート; 1H-イミダゾリウム, 3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-1-エチル-, クロリド; 1H-イミダゾリウム, 1-[(4-エテニルフェニル)メチル]-3-エチル-, 1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミドの塩; 1H-イミダゾリウム, 1-(3-アミノプロピル)-3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-, クロリド; 1H-イミダゾリウム, 1-ブチル-3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-, クロリドからなる群から選択される少なくとも1の化合物; および/または

10

b 2) 1H-イミダゾリウム, 1-メチル-3-ヘキシル-, 4-エテニルベンゼンスルホネート; 1H-イミダゾリウム, 1-ドデシル-3-エテニル-, 4-エテニルベンゼンスルホネート; 1H-イミダゾリウム, 1-メチル-3-プロピル-, 4-エテニルベンゼンスルホネート; および1H-イミダゾリウム, 3-エチル-1-メチル-, 4-(1-メチルエテニル)ベンゼンスルホネートからなる群から選択される少なくとも1の化合物を含んでなる、請求項1~5のいずれかに記載の接着剤組成物。

【請求項8】

パートb)は、1H-イミダゾリウム, 3-メチル-1-ヘキシル-4-エテニルベンゼンスルホネート; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド; および1H-イミダゾリウム, 3-メチル-1-ブチル-1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミドからなる群から選択される少なくとも1の化合物を含んでなる、請求項1~5のいずれかに記載の接着剤組成物。

20

【請求項9】

パートc)は、アゾニトリル; アゾエステル; アゾアミド; アゾアミジン; アゾイミダゾリン; およびマクロアゾ開始剤からなる群から選択される少なくとも1のアゾフリーラジカル開始剤を含んでなる、請求項1~8のいずれかに記載の接着剤組成物。

【請求項10】

前記組成物は、組成物の重量に基づいて10重量%までの量で可溶化剤d)を含んでなり、前記可溶化剤は、ポリオキシアルキレングリコール; シリコーン界面活性剤; 多価アルコール; および糖からなる群から選択される、請求項1~9のいずれかに記載の接着剤組成物。

30

【請求項11】

前記組成物は、組成物の重量に基づいて10重量%までの量で導電性粒子を含んでなる、請求項1~10のいずれかに記載の接着剤組成物。

【請求項12】

前記導電性粒子は、銀、カーボンブラックおよびそれらの混合物からなる群から選択される、請求項11に記載の接着剤組成物。

【請求項13】

導電性表面を有する第一材料層; および導電性表面を有する第二材料層; を含んでなり、

40

請求項1~12のいずれかに記載の硬化性で電気化学的に剥離可能な接着剤組成物が、第一材料層と第二材料層との間に配置されている、接合構造物。

【請求項14】

1) 両方の表面に電圧を印加して、陽極界面および陰極界面を形成する工程; および
2) これらの表面を剥離する工程
を含む、請求項13に記載の接合構造物の剥離方法。

50

【請求項 15】

工程 1 で印加する電圧は 0.5 ~ 200 V であり、電圧は好ましくは 1 秒 ~ 30 分の間印加される、請求項 14 に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、適用された特定の基材から剥離可能な硬化性接着剤組成物を対象とする。より具体的には、本発明は、重合性電解質を含んでなり、硬化性で電気化学的に剥離可能な接着剤組成物を対象とする。

【背景技術】

【0002】

接着接合およびポリマー被覆は、製品の組み立ておよび仕上げに一般的に使用されている。これらは、ネジ、ボルトおよびリベット等の機械的締結具に代えて用いられ、削減された機械加工コストおよび製造プロセスでの向上した適合性を備えた接合を提供する。接着接合は応力を均等に分散し、疲労の可能性を低減し、接合部を腐食性種から密閉する。

【0003】

接着接合は機械的締結具よりも多くの利点を提供するが、接合された一次材料のリサイクル等、実際の用途で必要とされる接着接合された対象の分解が困難となる傾向にある。サンドブラastingまたはワイヤブラッシング等の機械的プロセスによる接着剤の除去は、一部には、接着剤が基材の間に配置されていることに起因して基材の表面を傷つけずに研磨できないか、または研磨するのが困難であるため、しばしば除外される。米国特許第 4,171,240 号 (Wong) および米国特許第 4,729,797 号 (Lindeら) に開示されているような、化学物質および / または高温の適用による分解は、効果的かもしれないが、実行に時間がかかり得、複雑であり得る。また、攻撃的な化学物質および / または必要とされる過酷な条件により、分離される基材は損傷し、その後の用途に適さなくなる可能性がある。

【0004】

ある著者達は、これらの問題に着目し、硬化組成物を通る電流の通過が接着剤と基材との界面での接合を破壊するように作用する、電気化学的に剥離可能な接着剤組成物の開発を検討している。

【0005】

US 2007/0269659 (Gilbert) には、(i) ポリマーおよび電解質を含み、(ii) 2 つの表面の接合を容易にし、かつ (iii) 陽極界面および陰極界面が形成されるように両表面に印加される電圧に応答して陽極表面および陰極表面の両方から剥離する、2 つの界面で剥離可能な接着剤組成物が開示されている。

【0006】

US 2008/0196828 (Gilbert) には、熱可塑性成分および電解質を含んでなるホットメルト接着剤組成物であって、電解質は、組成物と導電性表面との間に形成された接合でファラデー反応を可能にし、組成物の表面からの剥離を可能にするのに十分なイオン伝導性を組成物に提供する、ホットメルト接着剤組成物が開示されている。

【0007】

WO 2007/142600 (Stora Enso AB) には、導電性表面への接着接合、および十分なイオン伝導特性を提供して、接着剤組成物に電圧を印加したときに前記接着接合の弱化を可能にする、電気化学的に弱化可能な接着剤組成物であって、前記組成物は、前記イオン伝導特性を与えるのに十分な量で少なくとも 1 のイオン化合物を含み、前記イオン化合物は、120 以下の融点を有する、接着剤組成物が開示されている。

【0008】

EP 3363875 A (Nitto Denko Corporation) には、短時間の電圧印加で容易に剥離でき、接着力の高い接着剤層を形成する、電氣的に剥離可能な接着剤組成物が開示されている。同文献の電氣的に剥離可能な接着剤組成物は、ポリマーと、該ポリマーの重量

10

20

30

40

50

に基づいて 0.5 ~ 30 重量% のイオン液体とを含み、イオン液体のアニオンはビス(フルオロスルホニル)イミドアニオンである。

【0009】

WO 2013/135677 (Henkel AG & Co. KGaA) には、20 ~ 90 重量% の少なくとも 1 の、10,000 ~ 250,000 g/mol の分子量 (Mw) を有するポリアミド; 1 ~ 25 重量% の少なくとも 1 の有機または無機塩; および 0 ~ 60 重量% の更なる添加剤を含み、100 ~ 220 の軟化点を有する、ホットメルト接着剤が開示されている。

【0010】

WO 2016/135341 (Henkel AG & Co. KGaA) には、電気電圧を印加すると接着力が少なくとも部分的に失われ、従って、接着剤を用いて接合された基材の剥離が可能となる、反応性ホットメルト接着剤組成物が開示されている。より具体的には、反応性ホットメルト接着剤組成物は、a) 少なくとも 1 のイソシアネート官能性ポリウレタンポリマー; および b) 少なくとも 1 の有機または無機塩を含んでなる。

10

【0011】

WO 2017/133864 (Henkel AG & Co. KGaA) には、第一基材および第二基材を可逆的に接合する方法であって、少なくとも第一基材は非導電性基材であり、方法は、a) 非導電性基材の表面を導電性インクで被覆し; b) 電氣的に剥離可能なホットメルト接着剤組成物を、第一基材および/または第二基材の導電性インクで被覆された表面に適用し; c) 電氣的に剥離可能なホットメルト接着剤組成物が 2 つの基材の間に介在するように、第一基材および第二基材を接触させ; d) 接合された基材を提供するために、2 つの基材間の接着接合の形成を可能にし; e) 電氣的に剥離可能なホットメルト接着剤組成物と基材表面との間の少なくとも 1 つの界面における接合が実質的に弱化するように、接合された基材に電圧を印加することを含む、方法が開示されている。

20

【先行技術文献】

【特許文献】

【0012】

【特許文献 1】米国特許第 4,171,240 号

【特許文献 2】米国特許第 4,729,797 号

【特許文献 3】US 2007/0269659

【特許文献 4】US 2008/0196828

【特許文献 5】WO 2007/142600

【特許文献 6】EP 3363875 A

【特許文献 7】WO 2013/135677

【特許文献 8】WO 2016/135341

【特許文献 9】WO 2017/133864

30

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0013】

イオン液体または電解質が接着剤組成物に含まれる場合、電解質とポリマーマトリックスとの適合性を達成するのが困難な場合がある。硬化ポリマーマトリックスからの電解質の漏出および相分離は、既知の技術において、電氣的に剥離可能な接着剤の適用における欠点として認識されてきた。

40

【0014】

当技術分野では、接合される基材の表面に便利に適用でき、その硬化時に前記基材を含む複合構造物内に効果的な接合を提供できるが、硬化接着剤に電位を容易に印加することによって、これらの基材から効果的に剥離できる接着剤組成物を提供することに対する要求がなお存在する。また、この硬化接着剤は、成分の漏れが最小限に抑制され、相分離が起こらない、安定したポリマーマトリックスを提供する必要がある。

【課題を解決するための手段】

50

【 0 0 1 5 】

本発明の第一の実施形態によれば、硬化性で電気化学的に剥離可能な接着剤組成物であって、該組成物は、組成物の重量に基づいて、

40～99重量%、好ましくは45～90重量%のa)少なくとも1のエチレン性不飽和非イオン性モノマー；

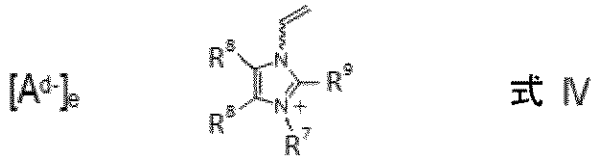
0.9～50重量%、好ましくは5～30重量%のb)少なくとも1の重合性イオン性化合物；および

0.1～10重量%、好ましくは0.1～5重量%のc)少なくとも1のフリーラジカル開始剤

を含んでなり、重合性イオン性化合物は、

10

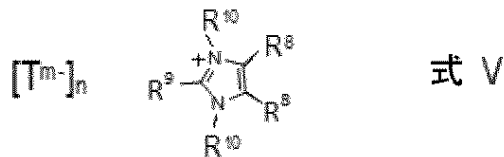
b 1) 少なくとも1の、一般式IV：



で示される化合物、および/または

b 2) 少なくとも1の、一般式V：

20



[式中、R⁷は、C₁-C₃₀アルキル；C₂-C₈アルケニル；C₁-C₃₀ヘテロアルキル；C₃-C₃₀シクロアルキル；C₆-C₁₈アリール；C₁-C₉ヘテロアリール；C₇-C₁₈アルキルアリール；C₂-C₅ヘテロシクロアルキル；または-R^a-C(=O)-R^b〔ここで、R^aはC₁-C₆アルキレン基であり、R^bはC₁-C₆アルキル基である〕から選択され；

各R⁸は独立して、H、C₁-C₁₈アルキル、C₁-C₁₈ヘテロアルキル、C₃-C₁₈シクロアルキル、C₆-C₁₈アリール、C₁-C₉ヘテロアリール、C₇-C₁₈アルキルアリールまたはC₂-C₅ヘテロシクロアルキルから選択され；

30

R⁹は、HまたはC₁-C₄アルキルであり；

各R¹⁰は独立して、C₁-C₃₀アルキル；C₁-C₃₀ヘテロアルキル；C₃-C₃₀シクロアルキル；C₆-C₁₈アリール；C₁-C₉ヘテロアリール；C₇-C₁₈アルキルアリール；C₂-C₅ヘテロシクロアルキル；または-R^a-C(=O)-R^b〔ここで、R^aはC₁-C₆アルキレン基であり、R^bはC₁-C₆アルキル基である〕から選択され；

Aは、非重合性アニオンであり；

Tは、エチレン性不飽和アニオンであり；

dおよびmはそれぞれ、少なくとも1の整数であり；

40

eおよびnは、化合物が電氣的に中性になるような数値であり；

は、共有結合、C₁-C₂アルキレン、-CH₂OC(=O)-、-CH₂CH₂OC(=O)-、p-ベンジルまたはp-トリルである]

で示される化合物を含んでなる、接着剤組成物が提供される。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 1 6 】

【 図 1 a 】 図 1 a は、本発明の第一の実施形態に従った接合構造物を示す。

【 図 1 b 】 図 1 b は、本発明の第二の実施形態に従った接合構造物を示す。

50

【図 2 a】図 2 a は、第一の実施形態の構造物に電圧を印加したときの、第一の実施形態の構造物の初期剥離を示す。

【図 2 b】図 2 b は、第二の実施形態の構造物に電圧を印加したときの、第二の実施形態の構造物の初期剥離を示す。

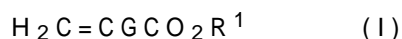
【発明を実施するための形態】

【0017】

接着剤組成物は、一液型（1K）、二液型（2K）または多成分型の組成物として調製され得る。パート b 1）および / またはパート b 2）による前記化合物からなるパート b）が好適であり得る。

【0018】

組成物の一実施形態では、そのパート a）は、組成物の重量に基づいて 40 ~ 95 重量%、好ましくは 45 ~ 90 重量%の、a 1）式（I）：

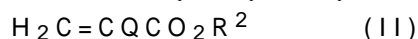


[式中、G は、水素、ハロゲンまたは C₁-C₄アルキル基であり；

R¹ は、C₁-C₃₀アルキル、C₂-C₃₀ヘテロアルキル、C₃-C₃₀シクロアルキル；C₂-C₈ヘテロシクロアルキル；C₂-C₂₀アルケニルおよび C₂-C₁₂アルキニルから選択される]で示される少なくとも 1 の（メタ）アクリレートモノマーを含んでなる。

【0019】

組成物のパート a）は更に、組成物の重量に基づいて 0 ~ 30 重量%、例えば 0 ~ 15 重量%の、a 2）式（II）：



[式中、Q は、水素、ハロゲンまたは C₁-C₄アルキル基であり得；R² は、C₆-C₁₈アリール、C₁-C₉ヘテロアリール、C₇-C₁₈アルカリールおよび C₇-C₁₈アラールキルから選択され得る]

で示される少なくとも 1 の（メタ）アクリレートモノマーを含むことを特徴とし得る。

【0020】

上記実施形態を相互に排除することを意図したものではない、組成物の別の実施形態では、そのパート a）は、組成物の重量に基づいて 0 ~ 50 重量%、好ましくは 5 ~ 25 重量%の a 3）少なくとも 1 の（メタ）アクリレート官能化オリゴマーを含んでなる。

【0021】

硬化性で電気化学的に剥離可能な組成物の電解質 b）を考慮して、上述され、以下で説明される式 IV および V で示されるイオン化合物はともに、ラジカル重合に対して反応性の官能基、好ましくはビニル、アリルまたはアクリル官能基を含む。これにより、重合性電解質は、前記モノマー a）のいずれかと重合するはずである。

【0022】

式 IV（b 1）の化合物に関し、カチオンはイミダゾリウム環に基づいており、選択した硬化プロファイルが完了すると、接着剤マトリックスに共有結合し；対アニオン（A）は、ポリマーマトリックス内を自由に移動する。逆に、式 V（b 2）の化合物については、重合性電解質のアニオンは、硬化時に接着剤マトリックスに共有結合し、イミダゾリウム環に基づくカチオンはマトリックス内を自由に移動する。

【0023】

単独でまたは組み合わせて存在し得る好ましい化合物 b 1）は、下記を包含するがこれらに限定されるものではない：1H-イミダゾリウム，3-エテニル-1-メチル-，ヨージド；1H-イミダゾリウム，3-エテニル-1-メチル-，クロリド；1H-イミダゾリウム，3-エテニル-1-メチル-，プロミド；1H-イミダゾリウム，3-エテニル-1-メチル-，メタンスルホネート；1H-イミダゾリウム，3-エテニル-1-メチル-，1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド；1H-イミダゾリウム，3-エテニル-1-エチル-，1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド；1H-イミダゾリウム，3-エテニル-1-メチル-，ヘキサフルオロホスフェート；1H-イミダゾリウム，3-エテニル-1-メチル-，4-メチルベンゼンスルホネート；1H-イミダゾリ

10

20

30

40

50

ウム, 3-エテニル-1-メチル-, テトラフルオロボレート; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, ヨージド; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, プロミド; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, 1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, ヘキサフルオロホスフェート; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, テトラフルオロボレート; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-(1-メチルエチル)-, プロミド; 1H-イミダゾリウム, 3-(1,1-ジメチルエチル)-1-エテニル-, プロミド; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-プロピル-, プロミド; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-(フェニルメチル)-, プロミド; 1H-イミダゾリウム, 1-エテニル-3-(4-メチルフェニル)-, クロリド; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-(1-メチルプロピル)-, クロリド; 1H-イミダゾリウム, 1-ブチル-3-エテニル-, プロミド; 3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-1-メチル-, ヨージド; 1H-イミダゾリウム, 3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-1-メチル-, クロリド; 1H-イミダゾリウム, 3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-1-メチル-, 1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド; 1H-イミダゾリウム, 3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-1-メチル-, ヘキサフルオロホスフェート; 1H-イミダゾリウム, 3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-1-メチル-, テトラフルオロボレート; 1H-イミダゾリウム, 3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-1-エチル-, クロリド; 1H-イミダゾリウム, 1-[(4-エテニルフェニル)メチル]-3-エチル-, 1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド塩; 1H-イミダゾリウム, 1-(3-アミノプロピル)-3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-, クロリド; 1H-イミダゾリウム, 1-ブチル-3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-, クロリド。

10

20

【0024】

単独でまたは組み合わせて存在し得る好ましい化合物 b 2) は、下記を包含するがこれらに限定されるものではない: 1H-イミダゾリウム, 1-メチル-3-ヘキシル-, 4-エテニルベンゼンスルホネート; 1H-イミダゾリウム, 1-ドデシル-3-エテニル-, 4-エテニルベンゼンスルホネート; 1H-イミダゾリウム, 1-メチル-3-プロピル-, 4-エテニルベンゼンスルホネート; および 1H-イミダゾリウム, 3-エチル-1-メチル-, 4-(1-メチルエテニル)ベンゼンスルホネート。

【0025】

特に、組成物のパート b) が、1H-イミダゾリウム, 3-メチル-1-ヘキシル-4-エテニルベンゼンスルホネート; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド; および 1H-イミダゾリウム, 3-メチル-1-ブチル-1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミドからなる群から選択される少なくとも 1 の化合物を含むか、それからなる場合に、良好な結果が得られた。

30

【0026】

本発明の第二の実施形態によれば、導電性表面を有する第一材料層および導電性表面を有する第二材料層を含んでなり、上述され、添付の特許請求の範囲に記載されている電気化学的に剥離可能な硬化接着剤組成物が、第一材料層と第二材料層との間に配置されている、接合構造物が提供される。

40

【0027】

本発明の第三の実施形態によれば、

i) 両方の表面に電圧を印加して、陽極界面および陰極界面を形成する工程; および

ii) これらの表面を剥離する工程

を含む、上述され、添付の特許請求の範囲に記載されている接合構造物の剥離方法が提供される。

【0028】

この方法の工程 i) は、好ましくは、

a) 1 ~ 100 V の印加電圧; および

b) 1 秒 ~ 180 分の間の電圧印加

50

の少なくとも1つを特徴とする。

【0029】

組成物の接着特性は、その組成物と導電性表面との間の接合線への電位の印加によって破壊される。下記理論に縛られることを意図するものではないが、接着剤組成物と導電性表面との間の界面で起こるファラデー反応が、接着剤と基材との間の相互作用を破壊し、それによりその間の接合が弱化すると考えられる。この界面破壊は、例えば剥離可能な材料の化学的分解、界面でのガス発生、および/または接着剤組成物の架橋密度の変化による材料脆化等の1以上の過程の結果であり得る。

【0030】

定義

本明細書において、単数形「a」、「an」および「the」は、文脈が明確に示していない限り、複数の指示対象を含む。

本明細書で使用される「含んでなる」、「含む」および「含まれる」という用語は、「包含する」、「包含され」、「含有する」または「含有し」と同義であり、包括的またはオープンエンドであり、記載されていない追加の成分、要素、または方法の工程を除外するものではない。

本明細書で使用される場合、「からなる」という用語は、特定されていない要素、成分、部材、または方法の工程を除外する。

量、濃度、寸法およびその他のパラメータが範囲、好ましい範囲、上限値、下限値、好ましい上限値および好ましい下限値の形で表されている場合、上限値または好ましい値と下限値または好ましい値とを組み合わせることによって得られる範囲も、文脈上明確に言及されているかどうかに関係なく具体的に開示されている、と理解されべきである。

また、標準的な理解に従って、「0～x」と表されている重量範囲は具体的に0重量%を含み：前記範囲によって規定される成分は、組成物中に存在しなくてもよいし、x重量%までの量で組成物中に存在してもよい。

用語「好ましい」、「好ましくは」、「好適には」および「特に」は、本明細書では、特定の状況下で特定の利益をもたらし得る本開示の実施形態を指すために頻繁に用いられる。しかし、1つまたは複数の好ましい、好適な、または特定の実施形態の列挙は、他の実施形態が有用でないことを意味するものではなく、また、それらの他の実施形態を開示の範囲から除外することを意図するものでもない。

本明細書の全体にわたって、用語「してよい」は、強制的な意味ではなく寛容な意味で、即ち、可能性があるという意味で用いられている。

本明細書において、室温は23 ± 2 である。本明細書において、「周囲条件」とは、組成物が存在する環境、または被覆層または前記被覆層の基材が存在する環境の温度および圧力を意味する。

【0031】

本明細書における「二液型(2K)組成物」は、第一成分(1)および第二成分(2)がそれらの(高い)反応性のために別個の容器に保存されなければならない組成物であると理解される。2つのパートは適用直前にのみ混合され、その後、典型的には追加の活性化なしで反応し、結合が形成され、それによってポリマーネットワークが形成される。本発明では、架橋反応を促進するために、より高い温度を適用してよい。

本明細書において、用語「電気化学的に剥離可能な」とは、接着剤の硬化後、50Vの電位を60分間印加した場合に、接合強度が少なくとも50%弱化し得ることを意味する。硬化接着剤は、前記接着剤によって接合される2つの基材の間に適用され、電流は接着剤接合線を通して流れる。接合強度は、ASTM D3163-01「引張荷重による剪断における、接着剤で接合された硬質プラスチック重ね剪断接合部の強度の標準測定試験方法」に基づいて室温で実施される引張重ね剪断(TLS)試験により測定される。接合重複領域は2.5cm x 1.0cm(1インチ x 0.4インチ)であり、接着剤厚さは0.1cm(40mil)であった。

「電解質」という用語は、本明細書では、電荷キャリア種の置換によって電気を伝導で

10

20

30

40

50

きる遊離イオンを含む物質として、当技術分野におけるその標準的な意味に従って使用される。この用語は、その電解質構造のカチオン成分またはアニオン成分の少なくとも1が本質的に自由に置換され、電荷キャリアとして機能する、熔融電解質、液体電解質、半固体電解質および固体電解質を包含することが意図されている。

本発明の硬化性接着剤組成物およびそれから得られた硬化接着剤は、接着剤がアニオン、カチオンまたはその両方のイオンの伝導を可能にするという点で「電解質機能」を有している。

電解質機能は、組成物および硬化接着剤が少なくとも1つの極性のイオンを溶媒和する能力に由来すると理解される。

「ファラデー反応」という用語は、物質が酸化または還元される電気化学反応を意味する。

【0032】

本明細書で使用される場合、「モノマー」という用語は、重合反応を受けて構成単位をポリマーの化学構造に寄与できる物質を指す。本明細書で使用される「一官能性」という用語は、1つの重合性部分を有することを指す。本明細書で使用される「多官能性」という用語は、2つ以上の重合性部分を有することを指す。

本明細書で使用される「エチレン性不飽和モノマー」という用語は、ラジカル付加重合の通常の条件下で重合可能な末端二重結合を含む任意のモノマーを指す。

本明細書で使用される場合、用語「当量 (eq.)」は、化学表記法では通常であるように、反応中に存在する反応性基の相対数を指す。

本明細書で使用される「(メタ)アクリル」は、「アクリル」および/または「メタクリル」を指す略語である。従って、「(メタ)アクリレート」という用語は、アクリレートおよびメタクリレートを総称して指す。

本明細書で使用される場合、「 C_1-C_n アルキル」基は、1～n個の炭素原子を含有する一価基、即ちアルカン基を指し、直鎖および分枝鎖有機基を包含する。そのため、「 C_1-C_{30} アルキル」基は、1～30個の炭素原子を含有する一価基、即ちアルカン基を指し、直鎖および分枝鎖有機基を包含する。アルキル基は下記を包含するが、これらに限定されない：メチル；エチル；プロピル；イソプロピル；n-ブチル；イソブチル；sec-ブチル；tert-ブチル；n-ペンチル；n-ヘキシル；n-ヘプチル；および2-エチルヘキシル。

本発明では、そのようなアルキル基は、非置換であってもよく、ハロゲン、ヒドロキシ、ニトリル (-CN)、アミドおよびアミノ (-NH₂) から選択される1以上の置換基で置換されていてもよい。該当する場合、記載された置換基の好ましいものが明細書に示される。しかし一般には、1～18個の炭素原子を有するアルキル基 (C_1-C_{18} アルキル)、例えば1～12個の炭素原子を有するアルキル基 (C_1-C_{12} アルキル) または1～6個の炭素原子を有するアルキル基 (C_1-C_6 アルキル) が好ましいことに留意すべきである。

本明細書で使用される場合、「 C_1-C_{18} ヒドロキシアルキル」という用語は、1～18個の炭素原子を有するHO-(アルキル)基を指す。ここで、置換基の結合点は酸素原子を介しており、アルキル基は上記で定義した通りである。

「アルコキシ基」とは、-OAで表される一価基を指す。ここで、Aはアルキル基であり、その非限定的な例は、メトキシ基、エトキシ基およびイソプロピルオキシ基である。

【0033】

本明細書で使用される「 C_1-C_6 アルキレン」という用語は、直鎖、分枝鎖または環状部分またはそれらの組み合わせを有し、1～6個の炭素原子を有する飽和二価炭化水素基として定義される。

「 C_3-C_{30} シクロアルキル」という用語は、3～30個の炭素原子を有する、任意に置換されていてよい飽和の単環式、二環式または三環式炭化水素基を意味すると理解される。一般に、3～18個の炭素原子を有するシクロアルキル基 (C_3-C_{18} シクロアルキル基) が好ましいことに留意すべきである。シクロアルキル基の例には下記が包含される：シクロプロピル；シクロブチル；シクロペンチル；シクロヘキシル；シクロヘプチル；シクロオクチル；アダマンタン；およびノルボルナン。本発明では、そのようなシクロアルキ

10

20

30

40

50

ル基は、非置換であってもよく、ハロゲン、 C_1-C_6 アルキルおよび C_1-C_6 アルコキシから選択される1以上の置換基で置換されていてもよい。

本明細書で使用される場合、単独でまたは「アルキル基」のようにより大きな基の一部として使用される「 C_6-C_{18} アリール」基は、単環式環系が芳香族であるか、または二環式若しくは三環式環系の環の少なくとも1が芳香族である、任意に置換されていてもよい単環式、二環式および三環式環系を指す。二環式および三環式環系には、ベンゾ縮合した2~3員炭素環が包含される。本発明では、そのようなアリール基は、非置換であってもよく、ハロゲン、 C_1-C_6 アルキルおよび C_1-C_6 アルコキシから選択される1以上の置換基で置換されていてもよい。例示的なアリール基は以下を包含する：フェニル；(C_1-C_4)アルキルフェニル、例えばトリルおよびエチルフェニル；インデニル；ナフタレニル、
テトラヒドロナフチル、テトラヒドロインデニル；テトラヒドロアントラセニル；および
アントラセニル。フェニル基が好ましいことに留意してよい。

10

本明細書で使用される場合、「 C_2-C_{20} アルケニル」は、2~20個の炭素原子を有し、少なくとも1のエチレン性不飽和単位を有するヒドロカルビル基を指す。このアルケニル基は、直鎖、分岐鎖または環状であり得、任意に置換されていてもよい。用語「アルケニル」は、当業者によって理解されるように、「シス」および「トランス」立体配置、或いは「E」および「Z」立体配置を有する基を包含する。しかしながら一般に、2~10個(C_{2-10})または2~8個(C_{2-8})の炭素原子を有する非置換アルケニル基が好ましいことに留意すべきである。前記 C_2-C_{12} アルケニル基の例は、下記を包含するが、これらに限定されない： $-CH=CH_2$ ； $-CH=CHCH_3$ ； $-CH_2CH=CH_2$ ； $-C(=CH_2)(CH_3)$ ； $-CH=CHCH_2CH_3$ ； $-CH_2CH=CHCH_3$ ； $-CH_2CH_2CH=CH_2$ ； $-CH=C(CH_3)_2$ ； $-CH_2C(=CH_2)(CH_3)$ ； $-C(=CH_2)CH_2CH_3$ ； $-C(CH_3)=CHCH_3$ ； $-C(CH_3)CH=CH_2$ ； $-CH=CHCH_2CH_2CH_3$ ； $-CH_2CH=CHCH_2CH_3$ ； $-CH_2CH_2CH=CHCH_3$ ； $-CH_2CH_2CH_2CH=CH_2$ ； $-C(=CH_2)CH_2CH_2CH_3$ ； $-C(CH_3)=CHCH_2CH_3$ ； $-CH(CH_3)CH=CHCH_3$ ； $-CH(CH_3)CH_2CH=CH_2$ ； $-CH_2CH=C(CH_3)_2$ ；1-シクロペンタ-1-エニル；1-シクロペンタ-2-エニル；1-シクロペンタ-3-エニル；1-シクロヘキサ-1-エニル；1-シクロヘキサ-2-エニル；および1-シクロヘキサ-3-エニル。

20

【0034】

本明細書で使用される場合、「アルキルアリール」は、アルキル置換アリール基を指し、「置換アルキルアリール」は、上記置換基の1以上を更に有するアルキルアリール基を指す。また、本明細書で使用される場合、「アラルキル」は、上記アリール基で置換されたアルキル基を意味する。

30

本明細書で使用される「ヘテロ」という用語は、N、O、Si、PおよびSから選択される1以上のヘテロ原子を含む基または部分を意味する。例えば、「ヘテロ環」とは、環構造の一部としてN、O、Si、PまたはSを有する環状基を指す。「ヘテロアルキル」、「ヘテロシクロアルキル」および「ヘテロアリール」基はそれぞれ、それらの構造の一部としてN、O、Si、PまたはSを含有する、本明細書で使用される「アルキル」、「シクロアルキル」および「アリール」基である。

完全を期すために、「 C_2-C_{30} ヘテロアルキル」という用語は、合計で2~30個の炭素原子を有し、少なくとも1個の炭素原子がヘテロ原子で置換されている「アルキル」基を指す。そのようなヘテロアルキル基の具体的な例は「 C_2-C_{18} アルコキシアルキル」[これは、上記アルコキシ置換基を有するアルキル基を指し、(アルキル-O-アルキル)部分は合計で1~18個の炭素原子を有する]であり：そのような基は、メトキシメチル($-CH_2OCH_3$)、2-メトキシエチル($-CH_2CH_2OCH_3$)および2-エトキシエチル($-CH_2CH_2OCH_2CH_3$)を包含する。ヘテロアルキル基の別の例は、「 C_2-C_{30} アミノアルキル」[これは、合計で2~30個の炭素原子を含み、 $-NH(R')$ 、 $-N(R')(R'')$ または $N^+(R')(R'')(R''')$ から選択される少なくとも1つの基で置換されたアルキル基を指し、 R' 、 R'' および R''' は C_1-C_6 アルキルである]であり：そのような基は、2-(ジメチルアミノ)エチル、2-(ジエチルアミノ)エチルおよび2-(トリメチルアミノ)エチルを包含する。

40

用語「 C_1-C_9 ヘテロアリール」は、1~9個の炭素原子および1~4個のヘテロ原子

50

を有する芳香族基を指し、この基は、可能であればヘテロ原子、または炭素原子を介して結合してよい。このヘテロアリアル環は、1以上のヘテロアリアル環、芳香族環または非芳香族炭化水素環またはヘテロシクロアルキル環に縮合または結合できる。ヘテロアリアル基の例は下記を包含するが、これらに限定されない：ピリジン；フラン；チオフェン；5,6,7,8-テトラヒドロイソキノリン；ピリミジン；チエニル；ベンゾチエニル；ピリジル；キノリル；ピラジニル；ピリミジル；イミダゾリル；ベンズイミダゾリル；フラニル；ベンゾフラニル；チアゾリル；ベンゾチアゾリル；イソキサゾリル；オキサジアゾリル；イソチアゾリル；ベンズイソチアゾリル；トリアゾリル；テトラゾリル；ピロリル；インドリル；ピラゾリル；およびベンゾピラゾリル。

【0035】

用語「C₂-C₈ヘテロシクロアルキル」は、2～8個の炭素原子および1～4個のヘテロ原子を有する飽和環状炭化水素基を意味し、この基は、可能であればヘテロ原子、または炭素原子を介して結合できる。ヘテロシクロアルキル環は、任意に、他のヘテロシクロアルキル環および/または非芳香族炭化水素環に縮合または他の方法で結合できる。好ましいヘテロシクロアルキル基は3員環～7員環である。ヘテロシクロアルキル基の例は以下を包含するが、これらに限定されない：ピペラジン；モルホリン；ピペリジン；テトラヒドロフラン；ピロリジン；ピラゾール；ピペリジニル；ピペラジニル；モルホリニル；およびピロリジニル。

本明細書で使用される用語「脂肪族」は、飽和および不飽和、非芳香族、直鎖、分枝鎖、非環式または環式炭化水素の全てを包含し、これは、置換が安定な部分の形成をもたらすという条件で、1以上の官能基で任意に置換され得る。当業者によって理解されるように、「脂肪族」は、アルキル、アルケニル、アルキニル、シクロアルキル、シクロアルケニルおよびシクロアルキニル基を包含することが意図されている。

本明細書で使用される場合、「芳香族」は、1以上の環を含む不飽和環状炭化水素の主な群を指し、この基は、炭素(C)、窒素(N)、酸素(O)、硫黄(S)、ホウ素(B)またはそれらの任意の組み合わせを含有してよい。少なくともいくつかの炭素は含まれている。芳香族には、アリアル環およびヘテロアリアル環の両方が含まれる。アリアルまたはヘテロアリアル環は、置換が安定な部分の形成をもたらすという条件で、追加の脂肪族、芳香族または他の基によって更に置換されていてもよい。

本明細書で使用される場合、用語「フリーラジカル開始剤」は、照射、熱等の形態の十分なエネルギーに曝露されると、荷電していないがそれぞれが少なくとも1つの不対電子を有する2つのパートに分解する任意の化学種を指す。完全を期すために、用語「フリーラジカル開始剤」は、エネルギーを運ぶ活性化ビーム(例えば電磁放射線等)の照射により活性化され得るフリーラジカル熱開始剤およびフリーラジカル光開始剤を包含する。本発明では、フリーラジカル熱開始剤の使用が好ましい。

本明細書で言及される(硬化性組成物の高分子、オリゴマーおよびポリマー成分のために記載される)分子量は、ASTM 3536に従って行われるように、ポリスチレン校正標準を用いてゲル透過クロマトグラフィー(GPC)で測定できる。

本明細書に記載の被覆組成物の粘度は、別段の規定がない限り、ブルックフィールド粘度計を用いて、20℃および相対湿度(RH)50%の標準条件で測定される。ブルックフィールド粘度計の校正方法、スピンドルのタイプ、および回転速度は、測定する組成物に適合したものが製造業者の指示に従って選択される。

【0036】

a) 非イオン性マトリックスモノマー

本発明の組成物は、その(共)重合により剥離可能な接着剤のマトリックスを生じる、少なくとも1のエチレン性不飽和非イオン性モノマーを含んでなる。モノマーa)は、基本的に、あらゆるエチレン性不飽和非イオン性モノマーであり得る。しかし、本発明は、(メタ)アクリルモノマーが、存在するエチレン性不飽和非イオン性モノマーの総モル量の少なくとも50モル%、好ましくは少なくとも75モル%を構成する組成物に特に適用可能である。

10

20

30

40

50

【 0 0 3 7 】

a 1) 脂肪族および脂環式(メタ)アクリレートモノマー

本発明の重要な実施形態では、本発明の組成物は、組成物の重量に基づいて、40~95重量%、好ましくは45~90重量%の、a 1)少なくとも1の、式(I)：



[式中、Gは、水素、ハロゲンまたはC₁-C₄アルキル基であり；

R¹は、C₁-C₃₀アルキル；C₂-C₃₀ヘテロアルキル；C₃-C₃₀シクロアルキル；C₂-C₈ヘテロシクロアルキル；C₂-C₂₀アルケニル；およびC₂-C₁₂アルキニルから選択される]で示される(メタ)アクリレートモノマーを含んでなる。

例えば、R¹は、C₁-C₁₈アルキル、C₂-C₁₈ヘテロアルキル、C₃-C₁₈シクロアルキル；C₂-C₈ヘテロシクロアルキル；C₂-C₈アルケニルおよびC₂-C₈アルキニルから選択され得る。

【 0 0 3 8 】

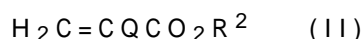
好ましくは、前記モノマー a 1) は、R¹が、C₁-C₁₈アルキルおよびC₃-C₁₈シクロアルキルから選択されることを特徴とする。この好ましい実施形態の記載は、R¹がC₁-C₆ヒドロキシアルキルである実施形態を含むことを明示的に意図している。

式(I)で示される(メタ)アクリレートモノマー a 1) の例は下記を包含するが、これらに限定されない：メチル(メタ)アクリレート；エチル(メタ)アクリレート；ブチル(メタ)アクリレート；ヘキシル(メタ)アクリレート；2-エチルヘキシル(メタ)アクリレート；ドデシル(メタ)アクリレート；ラウリル(メタ)アクリレート；シクロヘキシル(メタ)アクリレート；イソボルニル(メタ)アクリレート；2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート(HEMA)；2-ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート；エチレングリコールモノメチルエーテル(メタ)アクリレート；エチレングリコールモノエチルエーテル(メタ)アクリレート；エチレングリコールモノドデシルエーテル(メタ)アクリレート；ジエチレングリコールモノメチルエーテル(メタ)アクリレート；トリフルオロエチル(メタ)アクリレート；およびパーフルオロオクチル(メタ)アクリレート。

【 0 0 3 9 】

a 2) 芳香族(メタ)アクリレートモノマー

本発明の組成物は、組成物の重量に基づいて、0~30重量%、例えば0.1~30重量%、0.1~25重量%または0.1~15重量%の、a 2)少なくとも1の、式(II)：



[式中、Qは、水素、ハロゲンまたはC₁-C₄アルキル基であってよく；

R²は、C₆-C₁₈アリール、C₁-C₉ヘテロアリール、C₇-C₁₈アルカリールおよびC₇-C₁₈アラールキルから選択され得る]

で示される(メタ)アクリレートモノマーを更に含んでよい。

式(II)で示される(メタ)アクリレートモノマー a 2) の例は、下記を包含するがこれらに限定されず、これらは単独でまたは組み合わせて用いられ得る：ベンジル(メタ)アクリレート；フェノキシエチル(メタ)アクリレート；フェノキシジエチレングリコール(メタ)アクリレート；フェノキシプロピル(メタ)アクリレート；およびフェノキシジプロピレングリコール(メタ)アクリレート。

【 0 0 4 0 】

a 3) (メタ)アクリレート官能化オリゴマー

本発明の重要な実施形態では(これは、脂肪族および脂環式モノマー(a 1)並びに芳香族モノマー(a 2)の包含を相互に排除することを意図していない)、本発明の組成物は、組成物の重量に基づいて0~50重量%、好ましくは5~25重量%の a 3) 少なくとも1の(メタ)アクリレート官能化オリゴマーを含むべきである。前記オリゴマーは、オリゴマー主鎖に結合した1以上のアクリレートおよび/またはメタアクリレート基を有してよく、この(メタ)アクリレート官能基は、オリゴマーの末端に位置してよく、および

／またはオリゴマー主鎖に沿って分布してよい。

【0041】

前記少なくとも1の(メタ)アクリレート官能化オリゴマーが、i) 一分子当たり2以上の(メタ)アクリレート官能基を有する；および／またはii) 300～1000ダルトンの重量平均分子量(Mw)を有することが好ましい。

【0042】

そのようなオリゴマーの例は、下記を包含するがこれらに限定されず、単独でまたは組み合わせて用いられ得る：(メタ)アクリレート官能化ウレタンオリゴマー、例えば(メタ)アクリレート官能化ポリエステルウレタンおよび(メタ)アクリレート官能化ポリエーテルウレタン；(メタ)アクリレート官能化ポリエポキシド樹脂；(メタ)アクリレート官能化ポリブタジエン；(メタ)アクリルポリオール(メタ)アクリレート；ポリエステル(メタ)アクリレートオリゴマー；ポリアミド(メタ)アクリレートオリゴマー；およびポリエーテル(メタ)アクリレートオリゴマー。そのような(メタ)アクリレート官能化オリゴマーおよびそれらの製造方法は、とりわけ、米国特許第4,574,138号；米国特許第4,439,600号；米国特許第4,380,613号；米国特許第4,309,526号；米国特許第4,295,909号；米国特許第4,018,851号；米国特許第3,676,398号；米国特許第3,770,602号；米国特許第4,072,529号；米国特許第4,511,732号；米国特許第3,700,643号；米国特許第4,133,723号；米国特許第4,188,455号；米国特許第4,206,025号；米国特許第5,002,976号に開示されている。前記ポリエーテル(メタ)アクリレートオリゴマーのうち、具体的な例は下記を包含するが、これらに限定されない：PEG 200 DMA(n=4)；PEG 400 DMA(n=9)；PEG 600 DMA(n=14)；およびPEG 800 DMA(n=19)。ここで、割り当てられた番号(例えば400)は、分子のグリコール部分の重量平均分子量を表す。

10

20

【0043】

本発明では、a1)、a2)およびa3)の定義に適合しない更なるエチレン性不飽和非イオン性モノマーの存在は排除されない。しかし、そのような更なるモノマーの添加は、エチレン性不飽和非イオン性モノマーの総量が組成物の総重量に基づいて95重量%を超えないという条件によって制限されるべきである。好ましくは、エチレン性不飽和非イオン性モノマーの総量は、組成物の総重量に基づいて90重量%を超えない。

【0044】

本発明を限定することを意図するものではないが、そのような更なるエチレン性不飽和非イオン性モノマーは下記を包含し得る：シリコーン(メタ)アクリレートモノマー、例えば、米国特許第5,605,999号(Chu)に教示およびクレームされているもの；3～5個の炭素原子を有する、-エチレン性不飽和モノカルボン酸、例えば、アクリル酸、メタクリル酸、クロトン酸；クロトン酸のC₁-C₁₈アルキルエステル；4～6個の炭素原子を有する、-エチレン性不飽和ジカルボン酸、並びにそれらの酸の無水物、モノエステルおよびジエステル；ビニルエステル、例えば、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、およびShell Chemical Companyから入手可能なVEOVATMシリーズのモノマー；ハロゲン化ビニルおよびハロゲン化ビニリデン；ビニルエチルエーテル等のビニルエーテル；アルキルビニルケトン、シクロアルキルビニルケトン、アリールビニルケトン、アリールアルキルビニルケトン、およびアリールシクロアルキルビニルケトンを含むビニルケトン；芳香族または複素環式脂肪族ビニル化合物；アルカンポリオールのポリ(メタ)アクリレート、例えば、エチレングリコールジ(メタ)アクリレート、プロピレングリコールジ(メタ)アクリレート、ブチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ネオペンチルグリコールジ(メタ)アクリレート、ヘキシレングリコールジ(メタ)アクリレート、トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレート、グリセリントリ(メタ)アクリレート、およびペンタエリスリトールテトラ(メタ)アクリレート；オキシアルカンポリオールのポリ(メタ)アクリレート、例えば、ジエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ジプロピレングリコールジ(メタ)アクリレート、トリエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、テトラエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ジブチレングリコー

30

40

50

ルジ（メタ）アクリレート、ジ（ペンタメチレングリコール）ジメタクリレート；ポリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート；およびビスフェノールAジ（メタ）アクリレート、例えば、エトキシ化ビスフェノールA（メタ）アクリレート（EBIPMA）。

【0045】

他のエチレン性不飽和重合性非イオン性モノマーの典型的な例は、下記を包含するがこれらに限定されない：エチレングリコールジメタクリレート（EGDMA）；メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、ブタノール、イソブタノール、tert-ブタノール等のC₁-C₄アルコールとのフマル酸、マレイン酸、イタコン酸無水物のモノエステルおよびジエステル。ビニルモノマーの典型的な例は、下記を包含するがこれらに限定されない：酢酸ビニル；プロピオン酸ビニル；ビニルエチルエーテル等のビニルエーテル；およびビニルエチルケトン。芳香族または複素環式脂肪族ビニル化合物の典型的な例は、下記を包含するがこれらに限定されない：スチレン、*n*-メチルスチレン、ビニルトルエン、tert-ブチルスチレン、2-ビニルピロリドン、5-エチリデン-2-ノルボルネン並びに1-、3-および4-ビニルシクロヘキセン等の化合物。

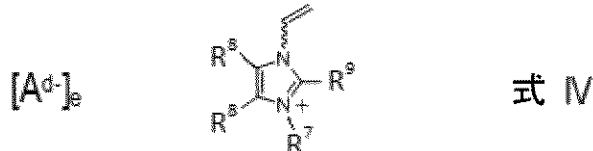
10

【0046】

b) 電解質

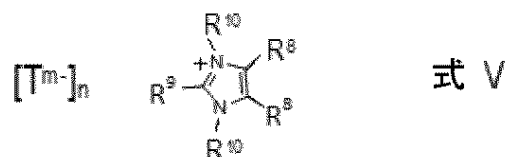
本発明の組成物は、0.9～50重量%、例えば5～50重量%または10～45重量%のb)少なくとも1の重合性イオン性化合物を含んでなり、重合性イオン性化合物は、b1)少なくとも1の、一般式IV：

20



で示される化合物、および/または

b2)少なくとも1の、一般式V：



30

[式中、R⁷は、C₁-C₃₀アルキル；C₂-C₈アルケニル；C₁-C₃₀ヘテロアルキル；C₃-C₃₀シクロアルキル；C₆-C₁₈アリール；C₁-C₉ヘテロアリール；C₇-C₁₈アルキルアリール；C₂-C₅ヘテロシクロアルキル；または-R^a-C(=O)-R^b〔ここで、R^aはC₁-C₆アルキレン基であり、R^bはC₁-C₆アルキル基である〕から選択され；

各R⁸は独立して、H、C₁-C₁₈アルキル、C₁-C₁₈ヘテロアルキル、C₃-C₁₈シクロアルキル、C₆-C₁₈アリール、C₁-C₉ヘテロアリール、C₇-C₁₈アルキルアリールまたはC₂-C₅ヘテロシクロアルキルから選択され；

40

R⁹は、HまたはC₁-C₄アルキルであり；

各R¹⁰は独立して、C₁-C₃₀アルキル；C₁-C₃₀ヘテロアルキル；C₃-C₃₀シクロアルキル；C₆-C₁₈アリール；C₁-C₉ヘテロアリール；C₇-C₁₈アルキルアリール；C₂-C₅ヘテロシクロアルキル；または-R^a-C(=O)-R^b〔ここで、R^aはC₁-C₆アルキレン基であり、R^bはC₁-C₆アルキル基である〕から選択され；

Aは、非重合性アニオンであり；

Tは、エチレン性不飽和アニオンであり；

dおよびmはそれぞれ、少なくとも1の整数であり；

eおよびnは、化合物が電氣的に中性になるような数値であり；

50

は、共有結合、 C_1-C_2 アルキレン、 $-CH_2OC(=O)-$ 、 $-CH_2CH_2OC(=O)-$ 、 p -ベンジルまたは p -トリルである]

で示される化合物を含んでなる。

【0047】

上記式中、 R^7 は、好ましくは、 C_1-C_{12} アルキル； C_2-C_6 アルケニル； C_1-C_{12} ヘテロアルキル； C_3-C_{18} シクロアルキル； C_6-C_{18} アリール； C_1-C_9 ヘテロアリール； C_7-C_{18} アルキルアリール； C_2-C_5 ヘテロシクロアルキル；または $-R^a-C(=O)-R^b$ [ここで、 R^a は、 C_1-C_6 アルキレン基であり、 R^b は C_1-C_6 アルキル基である]から選択される。 R^7 は、より特定には、 C_1-C_8 アルキル； C_2-C_4 アルケニル； C_1-C_8 ヘテロアルキル； C_3-C_{12} シクロアルキル； C_6-C_{18} アリール； C_1-C_9 ヘテロアリール； C_7-C_{18} アルキルアリール； C_2-C_5 ヘテロシクロアルキル；または $-R^a-C(=O)-R^b$ [ここで、 R^a は C_1-C_4 アルキレン基であり、 R^b は C_1-C_4 アルキル基である]から選択される。 R^7 がアルケニル基であり得る場合、イミダゾリウム基は1以上のエチレン性不飽和基を有し得：これに関して例示的な基が、1-H-イミダゾリウム、1-3-ジエチニル；および1-H-イミダゾリウム、3-エチニル-1-(2-プロペン-1-イル)-を包含することに留意されたい。

10

【0048】

各 R^8 は、好ましくは独立して、Hまたは C_1-C_6 アルキル、より特には独立してHまたは C_1-C_2 アルキルから選択される。好ましくは、少なくとも1の R^8 はHであり得る。 R^9 は好ましくはHまたは C_1-C_2 アルキルであり、より特には、Hまたはメチルである。

【0049】

各 R^{10} は、好ましくは独立して、 C_1-C_{12} アルキル； C_1-C_{12} ヘテロアルキル； C_3-C_{18} シクロアルキル； C_6-C_{18} アリール； C_1-C_9 ヘテロアリール； C_7-C_{18} アルキルアリール； C_2-C_5 ヘテロシクロアルキル；または $-R^a-C(=O)-R^b$ [ここで、 R^a は C_1-C_6 アルキレン基であり、 R^b は C_1-C_6 アルキル基である]から選択される。 R^{10} は、より特には、 C_1-C_8 アルキル； C_1-C_8 ヘテロアルキル； C_3-C_{12} シクロアルキル； C_6-C_{18} アリール； C_1-C_9 ヘテロアリール； C_7-C_{18} アルキルアリール； C_2-C_5 ヘテロシクロアルキル；または $-R^a-C(=O)-R^b$ [ここで、 R^a は C_1-C_4 アルキレン基であり、 R^b は C_1-C_4 アルキル基である]から選択される。

20

【0050】

式(IV)で示される化合物に関し、アニオンAは典型的には下記からなる群から選択される：フッ化物；塩化物；臭化物；ヨウ化物；過塩素酸塩；硝酸塩；亜硝酸塩；リン酸塩；硫酸塩；亜硫酸塩；炭酸塩；炭酸水素塩；リン酸水素塩；硫酸水素塩；亜硫酸水素塩；リン酸二水素塩；三フッ化リン酸塩；六フッ化リン酸塩；メチルスルフェート；エチルスルフェート；メチルカーボネート；メチルスルホネート；エチルスルホネート；4-メチルベンゼンスルホネート；ジエチルホスフェート；ギ酸塩；酢酸塩；プロピオン酸塩；酒石酸塩；オクタン酸塩；ビス(2,4,4-トリメチルペンチル)ホスフィネート；ビス(マロナート)ボレート；ビス(オキサレート)ボレート；ビス(ペンタフルオロエチル)ホスフィネート；テトラシアノボレート；テトラフルオロボレート；ビス(フタレート)ボレート；ビス(サリチレート)ボレート；ビス(トリフルオロメチルスルホネート)イミド；ビス(トリフルオロメタンスルホニル)メタン；ビス(トリフルオロメチル)イミデート；テトラキス(ヒドロゲンスルフェート)ボレート；テトラキス(メチルスルホネート)ボレート；トリフルオロメチルスルホネート；トリス(ヘプタフルオロプロピル)トリフルオロホスフェート；トリス(ノナフルオロブチル)トリフルオロホスフェート；トリス(ペンタフルオロエチル)トリフルオロホスフェート；トリス(ペンタフルオロエチルスルホニル)トリフルオロホスフェート；トリクロロジネケート；トリフルオロアセテート；プロモアルミン酸塩；クロロアルミン酸塩；ジクロロ銅酸塩；チオシアン酸塩；トシル酸塩；およびジシアナミド。

30

40

【0051】

アニオンAは、好ましくは、フッ化物；塩化物；臭化物；ヨウ化物；過塩素酸塩；硝酸塩；ギ酸塩；酢酸塩；オクタン酸塩；テトラフルオロボレート；トリフルオロホスフェー

50

ト；ヘキサフルオロホスフェート；メチルスルフェート；エチルスルフェート；メチルカーボネート；メチルスルホネート；4-メチルベンゼンスルホネート；トリフルオロメチルスルホネート；ビス(トリフルオロメチルスルホネート)イミド、トリフルオロホスフェート、トリフルオロアセテート；およびトリス(ペルフルオロエチル)トリフルオロホスフェートからなる群から選択される。

【0052】

より特には、アニオンAは、フッ化物；塩化物；臭化物；ヨウ化物；テトラフルオロボレート；ヘキサフルオロホスフェート；メチルスルフェート；エチルスルフェート；メチルスルホネート；4-メチルベンゼンスルホネート；およびビス(トリフルオロメチルスルホネート)イミドからなる群から選択される。

10

【0053】

アニオンTは、エチレン性不飽和カルボキシレートアニオン(R-COO⁻)；エチレン性不飽和スルホネートアニオン(R-SO₃⁻)；エチレン性不飽和ホスホネートアニオン(R-PO₃²⁻)；エチレン性不飽和ホスフィネートアニオン(R-P(H)O₂⁻)；およびエチレン性不飽和ホスフェートアニオン(R-O-PO₃²⁻) [式中、Rは、通常の条件下で重合するエチレン性不飽和を有する有機基であり、この基は好ましくは、(メタ)アクリル酸、ビニル酸またはアリル酸から誘導される]から選択されてよい。

【0054】

典型的なアニオンTには、下記が含まれる：(メタ)アクリレート；イタンコネート；マレエート；クロトネート；イソクロトネート；ビニルベンゾエート；2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホネート；スルホエチル(メタ)アクリレート；スルホプロピル(メタ)アクリレート；スルホメチル化アクリルアミド；アリルスルホネート；ビニルスルホネート；4-ビニルベンゼンスルホネート(4-スチレンスルホネート)；4-イソプロペニルベンゼンスルホネート(4-メチルスチレンスルホネート)；アリルホスホネート；およびモノアクリルオキシエチルホスフェート。

20

【0055】

式(IV)で示される化合物b1)の例には、下記が含まれるが、これらに限定されない：1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-メチル-, ヨージド；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-メチル-, クロリド；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-メチル-, プロミド；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-メチル-, メタンスルホネート；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, 1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-メチル-, 1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-メチル-, ヘキサフルオロホスフェート；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-メチル-, 4-メチルベンゼンスルホネート；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-メチル-, テトラフルオロボレート；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, ヨージド；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, プロミド；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, 1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, ヘキサフルオロホスフェート；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-, テトラフルオロボレート；1H-イミダゾリウム, 1,3-ジエテニル-, クロリド；1H-イミダゾリウム, 1,3-ジエテニル-, テトラフルオロボレート；1H-イミダゾリウム, 1,3-ジエテニル-, ヘキサフルオロホスフェート；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-エチル-2-メチル-, ヨージド；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1,2-ジメチル-, ヨージド；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1,2-ジメチル-, クロリド；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-2-エチル-1-メチル-, ヨージド；1H-イミダゾリウム, 3-(アミノメチル)-1-エテニル-, プロミド；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-(1-メチルエチル)-, プロミド；1H-イミダゾリウム, 3-(1,1-ジメチルエチル)-1-エテニル-, プロミド；1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-プロピル-, プロミド；1H-イミダゾリウム, 1-(2-アミノエチル)-3-エテニル-, クロリド；1H-イミダゾリウム, 1-(シアノメチル)-3-エテニル-, プロミド；1H-イミダゾリウム, 1-[2-(ジエチルアミノ)]

30

40

50

エチル]-3-エテニル-, クロリド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-(2-プロペン-1-イル)-, クロリド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-(2-プロペン-1-イル)-, 1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-(2-プロペン-1-イル)-, プロミド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-(フェニルメチル)-, プロミド ; 1H-イミダゾリウム, 1-エテニル-3-(4-メチルフェニル)-, クロリド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-(2-ヒドロキシエチル)-, クロリド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-(1-メチルプロピル)-, クロリド ; 1H-イミダゾリウム, 1-ブチル-3-エテニル-, プロミド ; 1H-イミダゾリウム, 3-エテニル-1-(2-エトキシエチル)-, プロミド ; 1H-イミダゾリウム, 1-メチル-3-(2-プロペン-1-イル)-, ヨージド ; 1H-イミダゾリウム, 1-メチル-3-(2-プロペン-1-イル)-, クロリド ; 1H-イミダゾリウム, 1-メチル-3-(2-プロペン-1-イル)-, 1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド ; 1H-イミダゾリウム, 1-メチル-3-(2-プロペン-1-イル)-, ヘキサフルオロホスフェート ; 1H-イミダゾリウム, 1-メチル-3-(2-プロペン-1-イル)-, テトラフルオロボレート ; 1H-イミダゾリウム, 1-エチル-3-(2-プロペン-1-イル)-, ヨージド ; 1H-イミダゾリウム, 2-メチル-3-(2-プロペン-1-イル)-1-プロピル-, プロミド ; 1H-イミダゾリウム, 3-(2-プロペン-1-イル)-1-プロピル-, プロミド ; 1H-イミダゾリウム, 3-(2-ヒドロキシエチル)-1-(2-プロペン-1-イル)-, プロミド ; 1H-イミダゾリウム, 1-ブチル-3-(2-プロペン-1-イル)-, プロミド ; 1H-イミダゾリウム, 1,3-ジ-2-プロペン-1-イル-, プロミド ; 1H-イミダゾリウム, 1,3-ジ-2-プロペン-1-イル-, 1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド ; 1H-イミダゾリウム, 1,3-ジ-2-プロペン-1-イル-, テトラフルオロボレート ; 1H-イミダゾリウム, 3-(2-ヒドロキシエチル)-1-(2-プロペン-1-イル)-, プロミド ; 1H-イミダゾリウム, 1-(2-シアノエチル)-3-(2-プロペン-1-イル)-, プロミド ; 1H-イミダゾリウム, 1-メチル-3-(2-オキソプロピル)-, テトラフルオロボレート ; 1H-イミダゾリウム, 3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-1-メチル-, ヨージド ; 1H-イミダゾリウム, 3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-1-メチル-, クロリド ; 1H-イミダゾリウム, 3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-1-メチル-, 1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド ; 1H-イミダゾリウム, 3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-1-メチル-, ヘキサフルオロホスフェート ; 1H-イミダゾリウム, 3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-1-メチル-, テトラフルオロボレート ; 1H-イミダゾリウム, 3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-1-エチル-, クロリド ; 1H-イミダゾリウム, 1-[(4-エテニルフェニル)メチル]-3-エチル-, 1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミドの塩 ; 1H-イミダゾリウム, 1-(3-アミノプロピル)-3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-, クロリド ; 1H-イミダゾリウム, 1-ブチル-3-[(4-エテニルフェニル)メチル]-, クロリド ; 1H-イミダゾリウム, 1-メチル-3-[[1-オキソ-2-プロペン-1-イル)オキシ]メチル]-, プロミド ; 1H-イミダゾリウム, 1-エチル-3-[[1-オキソ-2-プロペン-1-イル)オキシ]メチル]-, ヨージド ; および1H-イミダゾリウム, 1-ブチル-3-[[1-オキソ-2-プロペン-1-イル)オキシ]メチル]-, ヨージド。完全を期すために、そのような化合物は、本発明の組成物において、単独でまたは2以上の組み合わせで存在してよい。

10

20

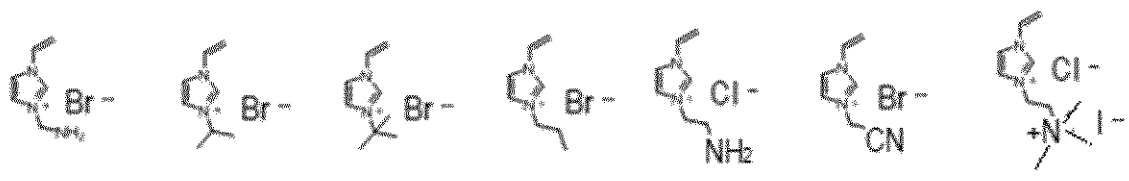
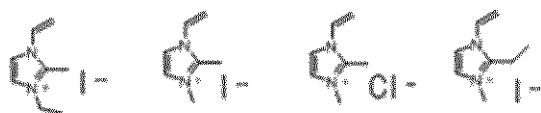
30

40

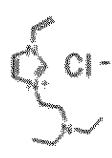
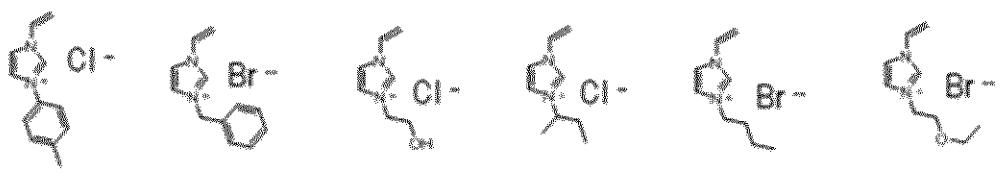
【0056】

本発明を限定することを意図するものではないが、式(IV)で示される化合物の典型例には、下記が包含される。

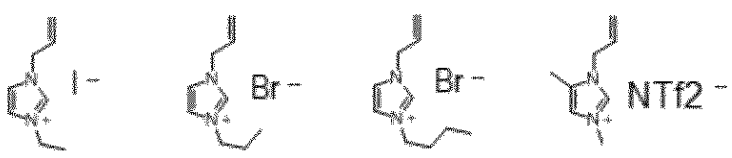
50



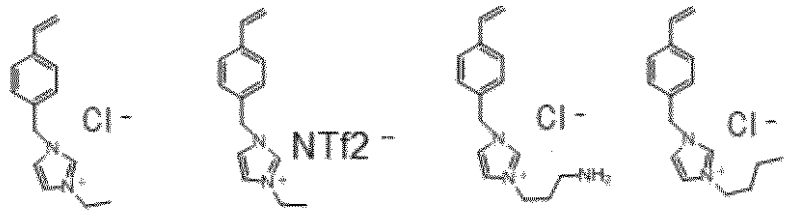
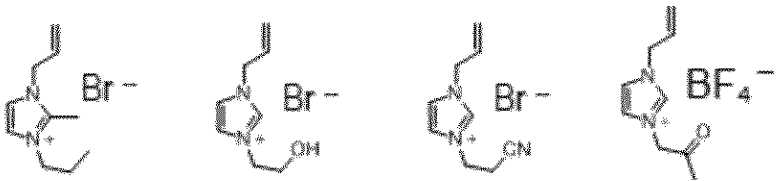
10



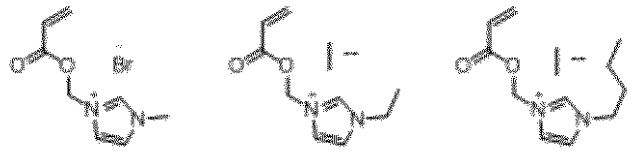
20



30



40



50

【 0 0 5 7 】

完全を期すために、上記式において、NTf₂⁻は、ビストリフルオロメタンスルホンイミデートアニオンを示す。

【 0 0 5 8 】

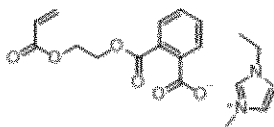
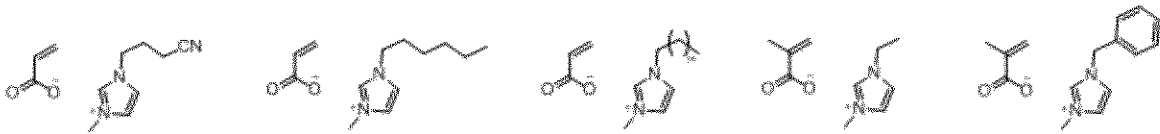
式(V)で示される化合物b2)の例には下記が包含されるが、これらに限定されない：
 1H-イミダゾリウム，3-(3-シアノプロピル)-1-メチル-, 2-プロペノエート；1H-イミダゾリウム，3-ヘキシル-1-メチル-, 2-プロペノエート；1H-イミダゾリウム，3-ヘキサデシル-1-メチル-, 2-プロペノエート；1H-イミダゾリウム，3-エチル-1-メチル-, 2-メチル-2-プロペノエート；1H-イミダゾリウム，1-メチル-3-(フェニルメチル)-, 2-メチル-2-プロペノエート；1H-イミダゾリウム，3-エチル-1-メチル-, 1-[2-[(1-オキソ-2-プロペン-1-イル)オキシ]エチル]1,2-ベンゼンジカルボキシレート；1H-イミダゾリウム，3-エチル-1-メチル-, 2-メチル-2-[(1-オキソ-2-プロペン-1-イル)アミノ]-1-プロパンスルホネート；1H-イミダゾリウム，3-ブチル-1-メチル-, 3-スルホプロピル2-メチル-2-プロペノエート；1H-イミダゾリウム，3-エチル-1-メチル-, 2-(ホスホノオキシ)エチル2-メチル-2-プロペノエートの塩；1H-イミダゾリウム，1-メチル-3-ヘキシル-, 4-エテニルベンゼンスルホネート；1H-イミダゾリウム，1-ドデシル-3-エテニル-, 4-エテニルベンゼンスルホネート；1H-イミダゾリウム，3-エテニル-1-ヘキサデシル-, 4-エテニルベンゼンスルホネート；1H-イミダゾリウム，1-メチル-3-プロピル-, 4-エテニルベンゼンスルホネート；および1H-イミダゾリウム，3-エチル-1-メチル-, 4-(1-メチルエテニル)ベンゼンスルホネート。完全を期すために、そのような化合物は、本発明の組成物において、単独でまたは2以上の組み合わせで存在してよい。

10

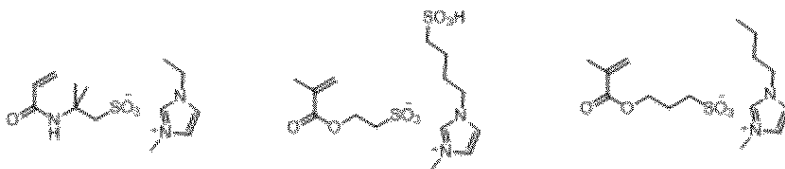
20

【 0 0 5 9 】

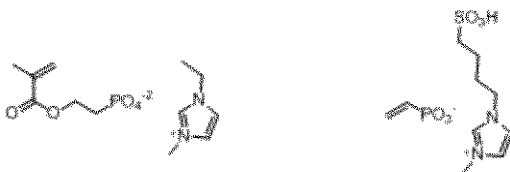
本発明を限定することを意図するものではないが、式(V)で示される化合物の典型例には下記が包含される。



30



40



50



【0060】

一実施形態において、電氣的に剥離可能な接着剤組成物は、b1)式(IV)で示される化合物の1以上；およびb2)式(V)で示される化合物の1以上の両方を含み得ることに留意されたい。両方が存在する場合、b1)とb2)との比が5：1～1：1、例えば4：1～2：1の比であることが好ましい。

10

【0061】

c) フリーラジカル開始剤

本発明の組成物は、c)少なくとも1のフリーラジカル開始剤を含む。組成物は、組成物の総重量に基づいて、通常は0.1～10重量%、例えば0.1～5重量%または0.1～2.5重量%のc)少なくとも1のフリーラジカル開始剤を含むべきである。

【0062】

本発明を限定することを意図するものではないが、ここでの使用に適したフリーラジカル開始剤の例示的なタイプは、例えば、環状過酸化物；ジアシル過酸化物；ジアルキル過酸化物；ヒドロペルオキシド；ペルオキシカーボネート；ペルオキシジカーボネート；ペルオキシエステル；およびペルオキシケタールから選択される有機過酸化物である。

20

【0063】

特定の過酸化物、例えばジアルキル過酸化物は、有用な開始剤として、とりわけ米国特許第3,419,512号(Lees)および米国特許第3,479,246号(Stapleton)に開示されており、本発明においても有用であり得る一方で、ヒドロペルオキシドは、本発明のための開始剤の好ましいタイプを代表する。また、過酸化水素自体を用いてよいが、最も好ましい重合開始剤は有機ヒドロペルオキシドである。完全を期すために、ヒドロペルオキシドの定義には、分解または加水分解してイン・サイチュで有機ヒドロペルオキシドを形成する有機過酸化物または有機過エステル等の材料が包含される：そのような過酸化物および過エステルの例は、それぞれ、シクロヘキシルおよびヒドロキシシクロヘキシルペルオキシド、並びにt-ブチルペルベンゾエートである。

30

【0064】

本発明の一実施形態では、フリーラジカル開始剤は、式：



[式中、 R^P は、18個までの炭素原子を有する脂肪族または芳香族基であり、好ましくは： R^P は、 C_1 - C_{12} アルキル、 C_6 - C_{18} アリールまたは C_7 - C_{18} アラルキル基である]で示されるヒドロペルオキシド化合物の少なくとも1を含んでなるか、またはそれからなる。

【0065】

単独でまたは組み合わせて用いられ得るペルオキシド開始剤の例として、下記が挙げられ得る：クメンヒドロペルオキシド(CHP)；パラ-メンタンヒドロペルオキシド；t-ブチルヒドロペルオキシド(TBH)；t-ブチルペルベンゾエート；t-ブチルペルオキシピバレート；ジ-t-ブチルペルオキシド；t-ブチルペルオキシアセテート；t-ブチルペルオキシ-2-ヘキサノエート；t-アミルヒドロペルオキシド；1,2,3,4-テトラメチルブチルヒドロペルオキシド；過酸化ベンゾイル；過酸化ジベンゾイル；1,3-ビス(t-ブチルペルオキシイソプロピル)ベンゼン；ジアセチルペルオキシド；ブチル4,4-ビス(t-ブチルペルオキシ)パレレート；p-クロロベンゾイルペルオキシド；t-ブチルクミルペルオキシド；ジ-t-ブチルペルオキシド；ジクミルペルオキシド；2,5-ジメチル-2,5-ジ-t-ブチルペルオキシヘキサノエート；2,5-ジメチル-2,5-ジ-t-ブチルペルオキシヘキサン-3-イン；および4-メチル-2,2-ジ-t-ブチルペルオキシペンタン。

40

50

【0066】

本発明を限定することを意図するものではないが、ここでの使用に適したフリーラジカル開始剤の別の例示的なタイプは、例えば、アゾニトリル；アゾエステル；アゾアミド；アゾアミジン；アゾイミダゾリン；およびマクロアゾ開始剤から選択されるアゾ重合開始剤である。

【0067】

適当なアゾ重合開始剤の典型的な例として、下記が挙げられ得る：2,2'-アゾビス(2-メチルブチロニトリル)；2,2'-アゾビス(イソブチロニトリル)；2,2'-アゾビス(2,4-ジメチルバレロニトリル)；2,2'-アゾビス(4-メトキシ-2,4-ジメチルバレロニトリル)；1,1'-アゾビス(シクロヘキサン-1-カルボニトリル)；4,4'-アゾビス(4-シアノ吉草酸)；ジメチル2,2'-アゾビス(2-メチルプロピオネート)；2,2'-アゾビス[2-メチル-N-(2-ヒドロキシエチル)プロピオンアミド]；2,2'-アゾビス(N-ブチル-2-メチルプロピオンアミド)；2,2'-アゾビス[2-(2-イミダゾリン-2-イル)プロパン]ジヒドロクロリド；2,2'-アゾビス[2-(2-イミダゾリン-2-イル)プロパン]；2,2'-アゾビス(2-メチルプロピオンアミジン)ジヒドロクロリド；2,2'-アゾビス[N-(2-カルボキシエチル)-2-メチルプロピオンアミジン]テトラヒドレート；4,4'-アゾビス(4-シアノ吉草酸)、 α , ω -ビス(3-アミノプロピル)ポリジメチルシロキサンとのポリマー(VPS-1001、和光純薬工業株式会社から入手可能)；および4,4'-アゾビス(4-シアノペンタン酸)・ポリエチレングリコールポリマー(VPE-0201、和光純薬工業株式会社から入手可能)。

【0068】

本発明の組成物が、化学線の照射により組成物の重合または硬化を開始する少なくとも1のフリーラジカル光開始剤化合物を含んでよいことは、排除されない。

【0069】

典型的には、フリーラジカル光開始剤は、開裂によってラジカルを形成し、「Norrish型I」として知られているものと、水素の引き抜きによりラジカルを形成し、「Norrish型II」として知られているものとに分類される。Norrish型II光開始剤には、フリーラジカル源として作用する水素供与体が必要である：開始が二分子反応に基づくため、Norrish型II光開始剤は一般に、ラジカルの単分子形成に基づくNorrish型I光開始剤よりも遅い。一方、Norrish型II光開始剤は、近紫外分光領域でより優れた光吸収特性を有する。当業者は、硬化に用いられる化学線およびその波長での光開始剤の感度に基づいて、適当なフリーラジカル光開始剤を選択できるはずである。

【0070】

好ましいフリーラジカル光開始剤は、ベンゾイルホスフィンオキシド；アリアルケトン；ベンゾフェノン；ヒドロキシ化ケトン；1-ヒドロキシフェニルケトン；ケタール；およびメタロセンからなる群から選択されるものである。完全を期すために、これらの光開始剤の2以上の組み合わせは、本発明において排除されない。

【0071】

特に好ましいフリーラジカル光開始剤は、ベンゾインジメチルエーテル；1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン；ベンゾフェノン；4-クロロベンゾフェノン；4-メチルベンゾフェノン；4-フェニルベンゾフェノン；4,4'-ビス(ジエチルアミノ)ベンゾフェノン；4,4'-ビス(N,N'-ジメチルアミノ)ベンゾフェノン(Michlerのケトン)；イソプロピルチオキサントン；2-ヒドロキシ-2-メチルプロピオフェノン(Daracur 1173)；2-メチル-4-(メチルチオ)-2-ホルヒノプロピオフェノン；メチルフェニルグリオキシレート；メチル2-ベンゾイルベンゾエート；2-エチルヘキシル4-(ジメチルアミノ)ベンゾエート；エチル4-(N,N'-ジメチルアミノ)ベンゾエート；フェニルビス(2,4,6-トリメチルベンゾイル)ホスフィンオキシド；ジフェニル(2,4,6-トリメチルベンゾイル)ホスフィンオキシド；およびエチルフェニル(2,4,6-トリメチルベンゾイル)ホスフィンエートからなる群から選択されるものである。再び確実に、これらの光開始剤の2以上の組み合わせは、本発明において排除されない。

【0072】

本発明を限定することを意図するものではないが、ここでの使用に適したフリーラジカル開始剤の別の例示的なタイプは、例えば、アゾニトリル；アゾエステル；アゾアミド；アゾアミジン；アゾイミダゾリン；およびマクロアゾ開始剤から選択されるアゾ重合開始剤である。

本発明の組成物がフリーラジカル光開始剤を含む場合、前記硬化性組成物の照射は、硬化反応を開始する光開始剤から活性種を生成する。その種が生成されると、硬化化学は化学反応と同じ熱力学の規則に従う：反応速度は熱によって加速され得る。モノマーの化学線硬化を促進するために熱処理を用いることは、当技術分野で一般に知られている。

【0073】

当業者によって理解されるように、光増感剤を組成物に組み込んで、送達されたエネルギーを光開始剤c)が用いる効率を改善できる。「光増感剤」という用語は、その標準的な意味に従って用いられ、光開始重合の速度を増加させるか、または重合が起こる波長をシフトさせる任意の物質を表す。光増感剤は、前記フリーラジカル光開始剤の重量に基づいて、0~25重量%の量で用いられるべきである。

10

【0074】

フリーラジカル(光)開始剤の使用は、最終硬化生成物における(光)化学反応から残留化合物を生じ得る。残留物は、赤外、紫外およびNMR分光法；ガスまたは液体クロマトグラフィー；および質量分光法等の従来の分析技術によって検出できる。従って、本発明は、硬化したマトリックス(コ)ポリマーと、フリーラジカル(光)開始剤からの検出可能な量の残留物とを含み得る。残留物は少量で存在し、通常は、最終硬化生成物の好ましい物理化学的特性を妨げない。

【0075】

d)可溶化剤

本発明の組成物は、任意に、可溶化剤を含んでよい。組成物は、例えば、組成物の重量に基づいて0.1~10重量%または0.1~5重量%の可溶化剤を含み得る。可溶化剤は、接着剤組成物中の電解質b)の混和性を促進する機能を有する：可溶化剤は、接着剤組成物の硬化時に形成されるポリマーマトリックスの一部を形成してもしなくてもよいが、その中のイオン移動を促進する働きをする。可溶化剤は、好ましくは、それ自体極性の化合物であり、好ましくは室温で液体であるべきである。

20

【0076】

適当なタイプの可溶化剤は下記を包含する：ポリホスファゼン；ポリメチレンスルフィド；ポリオキシアルキレングリコール；ポリエチレンイミン；シリコーン界面活性剤、例えば、ポリ(C2-C3)オキシアルキレン変性ポリジメチルシロキサンを包含するがこれに限定されない、ポリオキシアルキレン変性ポリジメチルシロキサンおよびポリアルキルシロキサン；官能化ポリアルキルシロキサンおよびエポキシ樹脂のコポリマー、例えば、ポリジメチルシロキサン(PDMS)およびエポキシ樹脂のコポリマー；多価アルコール；および糖。完全を期すために、フッ素化シリコーン界面活性剤、例えばフッ素化ポリシロキサンは、用語「シリコーン界面活性剤」に含まれることが意図されている。

30

【0077】

多価アルコールおよび糖、例えば、エチレングリコール、1,3-プロパンジオール、シクロヘキサジオール、ヒドロキノン、カテコール、レゾルシノール、フロログルシノール、ピロガロール、ヒドロキシヒドロキノン、トリス(ヒドロキシメチル)ベンゼン、残りのベンゼン炭素原子に結合した3つのメチルまたはエチル置換基を有するトリス(ヒドロキシメチル)ベンゼン、イソソルピド、イソマンニド、イソヨージド、グリセロール、シクロヘキサ-1,2,4-トリオール、1,3,5-シクロヘキサントリオール、ペンタン-1,2,3-トリオール、ヘキサ-1,3,5-トリオール、エリスリトール、1,2,4,5-テトラヒドロキシベンゼン、トレイトール、アラビトール、キシリトール、リビトール、マンニトール、ソルビトール、イノシトール、フルクトース、グルコース、マンノース、ラクトース、1,1,1-トリス(ヒドロキシメチル)プロパン、1,1,1-トリス(ヒドロキシメチル)エタン、ジ(トリメチロールプロパン)、トリメチロールプロパンエトキシレート、2-ヒドロキシメチル-1,3-プロパンジオール、ペンタエリスリトールアリルエーテルおよびペンタエリスリトール。

40

【0078】

ポリオキシアルキレングリコールのうち、200~10000g/mol、例えば20

50

0 ~ 2000 g/mol の重量平均分子量を有するポリオキシ(C₂-C₃)アルキレングリコールの使用が特に好ましいことは留意されてよい。

【0079】

添加剤および補助成分

本発明において得られる前記組成物は、典型的には、これらの組成物に改善された特性を与えることができる添加剤および補助成分を更に含んでよい。例えば、添加剤および補助成分は、下記の1以上を与え得る：弾性特性の改善、弾性回復の改善、処理時間の延長、硬化時間の短縮、および残留粘着性の低下。そのような添加剤および補助成分には下記が包含される：非重合性電解質；強化剤；導電性粒子；電氣的に非導電性の充填材；触媒；可塑剤；紫外線安定剤を包含する安定剤；酸化防止剤；反応性希釈剤；乾燥剤；接着促進剤；殺菌剤；難燃剤；レオロジー助剤；着色顔料または着色ペースト；および/または場合により少量の非反応性希釈剤。

10

【0080】

このような添加剤および補助成分は、組成物の性質および本質的な特性に悪影響を及ぼさない限り、所望の組み合わせおよび割合で使用できる。いくつかの場合に例外はあり得るが、これらの添加剤および補助成分は合計で、組成物全体の20重量%を超えて含まれてはならず、好ましくは組成物の10重量%を超えて含まれてはならない。

【0081】

本発明の組成物における非重合性電解質の存在は排除されない。例示的な電解質は、アンモニウム；ピリジニウム；ホスホニウム；イミダゾリウム；オキサゾリウム；グアジニウム；およびチアゾリウムからなる群から選択されるカチオンの非重合性塩を包含する。そのような非重合性塩のアニオンは特に限定されず、好ましいアニオンは、ハロゲン化物；式PF₆⁻、CF₃SO₃⁻、(CF₃SO₃)₂N⁻、CF₃CO₂⁻およびCCl₃CO₂⁻で示されるハロゲン含有化合物および擬ハロゲン化物；カルボン酸アニオン、特に、ホルメート、アセテート、プロピオネート、ブチレートおよびラクテート；ヒドロキシカルボン酸アニオン；ピリジネートおよびピリミジネート；カルボン酸イミド、ビス(スルホニル)イミドおよびスルホニルイミド；スルフェート、特にメチルスルフェートおよびエチルスルフェート；亜硫酸塩；スルホネート、特にメタンスルホネート；並びにホスフェート、特にジメチルホスフェート、ジエチルホスフェートおよびジ-(2-エチルヘキシル)-ホスフェートからなる群から選択される。

20

30

【0082】

組成物に含まれる場合、非重合性電解質は、重合性イオン性化合物(パートb))の総重量の10重量%未満の量で存在しなければならない。

【0083】

本発明の組成物中の強化剤の存在は、硬化接着剤の剥離に有利であり得る。理論に縛られることを意図するものではないが、強化剤は、電位の適用下で硬化接着剤内の相分離を促進する。良好な剥離結果は、特に、本発明の組成物が、マトリックスポリマーに分散したコアシェル粒子の形態の強化ゴム；およびエポキシエラストマー付加物から選択される少なくとも1の強化剤を含む場合に得られた。

【0084】

エラストマー含有付加物は、個々に使用してよく、または2以上の特定の付加物の組み合わせを使用してよい。また、各付加物は、独立して、23の温度で固体の付加物または液体の付加物から選択され得る。典型的には、有用な付加物は、1:5~5:1、例えば1:3~3:1のエポキシとエラストマーとの重量比を特徴としてよい。また、適当なエポキシ/エラストマー付加物に関する参考文献は、米国特許公報2004/0204551号である。更に、本発明で使用するための例示的な市販のエポキシ/エラストマー付加物には、CVC Chemicalから市販されているHYPDX RK8-4、およびCroda Europe Limitedから市販されているB-Tough A3が包含されるが、これらに限定されない。

40

【0085】

「コアシェルゴム」または「CSR」という用語は、当技術分野におけるその標準的な

50

意味に従って用いられており、主成分としてのエラストマーまたはゴム状ポリマーを含むポリマーによって形成されたゴム粒子コアと、コアにグラフト重合されたポリマーによって形成されるシェル層とを表す。シェル層は、グラフト重合工程においてゴム粒子コアの表面の一部または全部を覆っている。重量で、コアはコアシェルゴム粒子の少なくとも50重量%を構成すべきである。

【0086】

コアのポリマー材料は、0 以下のガラス転移温度 (T_g)、好ましくは -20 以下、より好ましくは -40 以下、更により好ましくは -60 以下のガラス転移温度 (T_g) を有すべきである。シェルのポリマーは、室温より高い、好ましくは30 より高い、より好ましくは50 より高いガラス転移温度 (T_g) を有する非弾性、熱可塑性または熱硬化性ポリマーである。

10

【0087】

本発明を限定するものではないが、コアは、ジエンホモポリマー、例えばブタジエンまたはイソプレンのホモポリマー；ジエンコポリマー、例えば、ブタジエンまたはイソプレんと1以上のエチレン性不飽和モノマー（例えば、ビニル芳香族モノマー、(メタ)アクリロニトリルまたは(メタ)アクリレート）とのコポリマー；(メタ)アクリル酸エステルモノマー（例えばポリブチルアクリレート）に基づくポリマー；およびポリシロキサンエラストマー、例えばポリジメチルシロキサンおよび架橋ポリジメチルシロキサンからなるとよい。

【0088】

同様に、本発明を限定するものではないが、シェルは、(メタ)アクリレート、例えばメチルメタクリレート；ビニル芳香族モノマー、例えばスチレン；ビニルシアニド、例えばアクリロニトリル；不飽和酸および無水物、例えばアクリル酸；並びに(メタ)アクリルアミドから選択される1以上のモノマーのポリマーまたはコポリマーからなるとよい。シェルに使用されるポリマーまたはコポリマーは、金属カルボキシレート形成を介して、特に、二価金属カチオンの塩の形成を介して、イオンの架橋する酸基を有してよい。シェルポリマーまたはコポリマーは、一分子あたり2以上の二重結合を有するモノマーによって共有結合で架橋されていてもよい。

20

【0089】

含まれる任意のコアシェルゴム粒子は、10 nm ~ 300 nm、例えば50 nm ~ 250 nmの平均粒度 (d₅₀) を有することが好ましい：前記粒度は、粒子の分布における粒子の直径または最大寸法であり、動的光散乱によって測定される。完全を期すために、本発明では、得られる硬化生成物の(剪断強度、剥離強度、樹脂破壊靱性等を包含する)重要な特性のバランスを提供するための、組成物における、異なる粒度分布を有する2種以上のコアシェルゴム (CSR) 粒子の存在は排除されない。

30

【0090】

コアシェルゴムは市販の製品から選択してよく、その例は下記を包含する：Dow Chemical Companyから入手可能なParaloid EXL 2650A、EXL 2655およびEXL2691A；Arkema Inc.から入手可能なClearstrength (登録商標) XT100；株式会社カネカから入手可能なKane Ace (登録商標) MXシリーズ、特に、MX 120、MX 125、MX 130、MX 136、MX 551、MX553；および三菱レイヨン株式会社から入手可能なMETABLEN SX-006。

40

【0091】

本発明の組成物は、導電性粒子を含んでよい。組成物は、組成物の重量に基づいて、例えば0 ~ 10重量%または0.1 ~ 5重量%の導電性粒子を含有してよい。

【0092】

概して、導電性充填材として使用される粒子の形状を限定する意図は特に存在しない：針状、球状、楕円体状、円柱状、ビーズ状、立方体状または小板状の粒子を単独でまたは組み合わせで使用してよい。また、2以上の粒子タイプの凝集体を使用しても想定される。同様に、導電性充填材として使用される粒子のサイズを限定する意図は特に存

50

在しない。しかし、そのような導電性充填材は、通常は $0.1 \sim 1500 \mu\text{m}$ 、例えば $1 \sim 1250 \mu\text{m}$ の、レーザー回折・散乱法により測定される平均体積粒度を有してよい。

【0093】

導電性粒子状充填材の例としては、以下が挙げられるが、これらに限定されない：銀；銅；金；パラジウム；白金；ニッケル；金または銀被覆ニッケル；カーボンブラック；炭素繊維；グラファイト；アルミニウム；酸化インジウムスズ；銀被覆銅；銀被覆アルミニウム；金属被覆ガラス球；金属被覆充填材；金属被覆ポリマー；銀被覆繊維；銀被覆球；アンチモンドープ酸化スズ；導電性ナノ球；ナノ銀；ナノアルミニウム；ナノ銅；ナノニッケル；カーボンナノチューブ；およびそれらの混合物。導電性充填材として、粒子状の銀および/またはカーボンブラックを使用することが好ましい。

10

【0094】

本発明の組成物は任意に、電氣的に非導電性の充填材を含んでよい。組成物は、組成物の重量に基づいて、例えば $0 \sim 10$ 重量%または $0.1 \sim 5$ 重量%の電氣的に非導電性の粒子を含んでよい。

【0095】

概して、非導電性充填材として使用される粒子の形状を特に限定する意図は存在しない：針状、球状、楕円体状、円柱状、ビーズ状、立方体または小板状である粒子を単独でまたは組み合わせて使用してよい。また、2以上の粒子タイプの凝集体を使用してよいことが想定される。同様に、非導電性充填材として使用される粒子のサイズを特に限定する意図は存在しない。しかし、そのような非導電性充填材は、通常は $0.1 \sim 1500 \mu\text{m}$ 、

20

【0096】

例示的な非導電性充填材は下記を包含するが、これらに限定されない：炭酸カルシウム、酸化カルシウム、水酸化カルシウム（石灰粉末）、沈降ケイ酸および/または焼成ケイ酸、ゼオライト、ベントナイト、ウォラストナイト、炭酸マグネシウム、珪藻岩、硫酸バリウム、アルミナ、クレイ、タルク、酸化チタン、酸化鉄、酸化亜鉛、砂、石英、フリント、雲母、ガラスビーズ、ガラス粉、およびその他の粉碎鉱物物質。有機充填材、特に木材繊維、木粉、おがくず、セルロース、綿、パルプ、綿、木材チップ、細断藁、もみがら、粉碎クルミ殻、および他の細断された繊維も使用できる。ガラス繊維、ガラスフィラメント、ポリアクリロニトリル、炭素繊維、ケブラー繊維またはポリエチレン繊維等の短繊維も添加できる。

30

【0097】

沈降ケイ酸および/または焼成ケイ酸は有利には、 $10 \sim 90 \text{m}^2/\text{g}$ のBET表面積を有する。それらを使用する場合、それらは、本発明の組成物の粘度を更に増加させることはないが、硬化組成物の強化に寄与する。

【0098】

充填材として、有利には $100 \sim 250 \text{m}^2/\text{g}$ の、より高いBET表面積を有する沈降ケイ酸および/または焼成ケイ酸を使用することも同様に考えられる：より大きなBET表面積のために、硬化組成物を強化する効果は、ケイ酸のより少ない重量割合で達成される。

40

【0099】

無機質シェルまたはプラスチックシェルを有する中空球も、非導電性充填材として適している。これらは例えば、Glass Bubbles（登録商標）の商品名で市販されている中空ガラス球であり得る。Expancel（登録商標）またはDualite（登録商標）等のプラスチックベース中空球を使用でき、EP 0 520 426 B1に記載されている：それらは、無機または有機物質で作られており、各々 1mm 以下、好ましくは $500 \mu\text{m}$ 以下の直径を有する。

【0100】

組成物にチキソトロピーを与える非導電性充填材は、多くの用途に好適であり得る：そ

50

のような充填材は、レオロジー助剤とも称され、例えば、硬化ヒマシ油、脂肪酸アミド、またはPVC等の膨潤性プラスチックである。

【0101】

生成される硬化性組成物の所望の粘度は、使用される充填材の量によって決まり得る。後者の事項を考慮すると、組成物中に存在する充填材（導電性および非導電性の両方）の総量は、基材への組成物の適用の選択された方法によって組成物が容易に適用されることを妨げてはならない。例えば、管等の適当な分配装置から押し出しできることが意図された硬化性組成物は、1000～150,000 mPas、好ましくは10,000～100,000 mPasの粘度を有すべきである。

【0102】

本発明の目的のための「可塑剤」は、組成物の粘度を低下させ、従って、その加工性を促進する物質である。本発明では、可塑剤は、組成物の総重量に基づいて、10重量%までまたは5重量%までの量で含まれ得、好ましくは下記群から選択される：ジウレタン；単官能性の直鎖状または分岐状のC4-C16アルコールのエーテル、例えばCetiol OE（Cognis Deutschland GmbH（デュッセルドルフ在）から入手可能）；アビエチン酸、酪酸、チオ酪酸、酢酸、プロピオン酸エステルおよびクエン酸のエステル；ニトロセルロースおよびポリ酢酸ビニルに基づくエステル；脂肪酸エステル；ジカルボン酸エステル；OH基含有またはエポキシド化脂肪酸のエステル；グリコール酸エステル；安息香酸エステル；リン酸エステル；スルホン酸エステル；トリメリット酸エステル；ポリエーテル可塑剤、例えば末端キャップポリエチレンまたはポリプロピレングリコール；ポリスチレン；炭化水素可塑剤；塩素化パラフィン；およびそれらの混合物。基本的に、フタル酸エステルは、可塑剤として使用できるが、その毒性に起因して好ましくないことに留意されたい。

【0103】

本発明の目的のための「安定剤」は、抗酸化剤、紫外線安定剤、熱安定剤または加水分解安定剤として理解されるべきである。本発明では、安定剤は合計で、組成物の総重量に基づいて10重量%までまたは5重量%までの量を構成し得る。本発明での使用に適した安定剤の標準的な市販品の例には、下記が包含される：立体障害フェノール；チオエーテル；ベンゾトリアゾール；ベンゾフェノン；ベンゾエート；シアノアクリレート；アクリレート；ヒンダードアミン光安定剤（HALS）タイプのアミン；リン；硫黄；およびそれらの混合物。

【0104】

基材表面への硬化接着剤の接着力を高めるのを助けるために、金属キレート特性を有する化合物を本発明の組成物に使用してよいことに留意されたい。また、K-FLEX XM-B301の商品名でKing Industriesにより販売されているアセトアセテート官能化変性樹脂も、接着促進剤としての使用に適している。

【0105】

貯蔵寿命を更に延長するために、乾燥剤を使用することにより、水分の浸透に関して本発明の組成物を更に安定化させることがしばしば推奨される。反応性希釈剤を使用することにより、特定の用途のために本発明の接着剤組成物の粘度を低下させる必要性も、しばしば存在する。存在する反応性希釈剤の総量は、組成物の総重量に基づいて、典型的には0～10重量%、例えば0.1～5重量%であってよい。

【0106】

本発明の組成物中の溶媒および非反応性希釈剤の存在も、これがその粘度を有効に低下できる場合は排除されない。例えば、例示のみを目的として、組成物は下記の1以上を含有してよい：キシレン；2-メトキシエタノール；ジメトキシエタノール；2-エトキシエタノール；2-プロポキシエタノール；2-イソプロポキシエタノール；2-ブトキシエタノール；2-フェノキシエタノール；2-ベンジルオキシエタノール；ベンジルアルコール；エチレングリコール；エチレングリコールジメチルエーテル；エチレングリコールジエチルエーテル；エチレングリコールジブチルエーテル；エチレングリコールジフェニルエー

10

20

30

40

50

テル；ジエチレングリコール；ジエチレングリコールモノメチルエーテル；ジエチレングリコールモノエチルエーテル；ジエチレングリコールモノ-n-ブチルエーテル；ジエチレングリコールジメチルエーテル；ジエチレングリコールジエチルエーテル；ジエチレングリコールジ-n-ブチルエーテル；プロピレングリコールブチルエーテル；プロピレングリコールフェニルエーテル；ジプロピレングリコール；ジプロピレングリコールモノメチルエーテル；ジプロピレングリコールジメチルエーテル；ジプロピレングリコールジ-n-ブチルエーテル；N-メチルピロリドン；ジフェニルメタン；ジイソプロピルナフタレン；Solvesso（登録商標）製品（Exxonから入手可能）等の石油留分；アルキルフェノール、例えば、tert-ブチルフェノール、ノニルフェノール、ドデシルフェノールおよび8, 11, 14-ペンタデカトリエニルフェノール；スチレン化フェノール；ビスフェノール；芳香族炭化水素樹脂、特にフェノール基を有するもの、例えば、エトキシ化若しくはプロポキシ化フェノール；アジペート；セバケート；フタレート；ベンゾエート；有機リン酸若しくはスルホン酸エステル；およびスルホンアミド。

10

【0107】

上記は別にして、前記非反応性希釈剤は合計で、組成物の総重量に基づいて、10重量%未満、特に5重量%未満または2重量%未満を構成することが好ましい。

【0108】

方法および用途

組成物を生成するために、上記のパートを一緒にして混合する。混合により、接着剤組成物において重合性電解質（化合物b1）および/またはb2）が均一に分散されることが重要である：このような十分かつ効果的な混合により、硬化後に得られるポリマーマトリックス内の荷電種の均一な分布が決まり、それによって導電性基材との界面での電気化学反応をサポートするのに十分なイオン伝導性が提供され得る。

20

【0109】

当技術分野で知られているように、一液型（1K）硬化性組成物を生成するために、組成物の成分を、反応性成分の反応を阻害または防止する条件下で、一緒にして均一に混合する：そのような条件は、当業者により容易に理解され得る。そのため、硬化性成分を、例えば意図的な照射を行わずに無水条件下で所定量、手動で混合するのではなく、静的ミキサーまたは動的ミキサー等の機械により混合することがしばしば好適であり得る。

【0110】

二液型（2K）組成物について、反応性成分は、それらの硬化を誘発するような方法で一緒にされ、混合される。一液型（1K）および二液型（2K）組成物の両方について、反応性化合物は、均一な混合物を得るために十分な剪断力の下で混合する必要がある。これは、特別な条件または特別な装置がなくても達成できると考えられる。とはいうものの、適当な混合装置には以下が包含され得る：静的混合デバイス；電磁攪拌棒装置；ワイヤーウィスクデバイス；オージェ；パッチミキサー；プラネタリーミキサー；C.W. プラベンダーまたはBanburry（登録商標）スタイルミキサー；並びにブレードスタイルブレンダーおよびロータリーインペラー等の高剪断ミキサー。

30

【0111】

一般に2リットル未満の容量が用いられる小規模なライナー用途の場合、二液型（2K）組成物のための好ましいパッケージは、2つの管状チャンバーが互いに並んで、または互いに入れ子で配置され、ピストンで密閉されている、並列ダブルカートリッジまたは同軸カートリッジである：有利には密接に取り付けられた静的または動的ミキサーを介した、これらのピストンの駆動により、成分をカートリッジから押し出すことができる。大容量の用途では、組成物の二成分をドラム缶またはバケツで有利に保管してよい：この場合、二成分は、油圧プレス、特にフォロアプレートを介して押し出され、パイプラインを介して、硬化剤とバインダー成分とを確実に十分かつ高度に均一に混合できる混合装置に供給される。いずれにしても、いずれのパッケージにおいても、バインダー成分を気密性および防湿性を備えたシールを伴って配置し、両成分を長時間、理想的には12ヶ月以上保存できるようにすることが重要である。

40

50

【0112】

本発明に適当であり得る二液型組成物の分配装置および方法の非限定的な例には、米国特許第6,129,244号および米国特許第8,313,006号に開示されているものが包含される。

【0113】

適用可能な場合、二液型(2K)組成物は、一般に、混合直後、例えば混合後2分までに測定される初期粘度を示すように調製されるべきであり、これにより、該組成物を基材に適用する方法は制限されない。また、二液型(2K)組成物は、少なくとも30分、通常は少なくとも60分または120分のポットライフを示すように調製すべきである。この「ポットライフ」は、硬化性組成物の粘度が、20 および相対湿度50%で、新たに混合された硬化性組成物の粘度の2倍の値に達するのに要する時間である。

10

【0114】

本発明の最も広い方法の実施形態によれば、上記組成物は基材に適用され、次いでイン・サイチュで硬化される。組成物の適用前、関連する表面を前処理してそこから異物を除去することがしばしば推奨される：この工程は、該当する場合、その後の組成物の接着を容易にできる。そのような処理は当技術分野で知られており、例えば下記の上記の1以上により構成される一段階または多段階の方法で行うことができる：基材に適した酸および任意に酸化剤によるエッチング処理；超音波処理；化学プラズマ処理、コロナ処理、大気圧プラズマ処理およびフレームプラズマ処理を包含するプラズマ処理；水性アルカリ脱脂浴への浸漬；水性洗浄エマルジョンによる処理；四塩化炭素またはトリクロロエチレン等の洗浄溶媒による処理；および好ましくは脱イオン水または脱塩水による、水洗。水性アルカリ脱脂浴を使用する場合、表面に残っている脱脂剤は、基材表面を脱イオン水または脱塩水で濯ぐことによって除去することが好ましい。

20

【0115】

いくつかの実施形態では、好ましくは前処理された基材への、本発明の被覆組成物の接着は、それにプライマーを適用することによって容易にし得る。当業者は適当なプライマーを選択できる一方で、プライマーの選択に関する参考文献は、米国特許第3,671,483号；米国特許第4,681,636号；米国特許第4,749,741号；米国特許第4,147,685号；および米国特許第6,231,990号を包含するが、これらに限定されない。

【0116】

次いで組成物は、好ましくは前処理され、任意にプライマー処理された基材の表面に、以下のような従来の適用方法によって適用される：刷毛塗り；例えば、組成物が無溶媒の場合は4回適用ロール装置、または組成物が溶媒含有組成物の場合は2回適用ロール装置を用いたロールコーティング；ドクターブレード塗布；印刷法；並びにエアアトマイズスプレー、エアアシストスプレー、エアレススプレーおよび大容量低圧スプレーを包含するがこれらに限定されないスプレー法。

30

【0117】

上述の通り、本発明は、導電性表面を有する第一材料層および導電性表面を有する第二材料層を含んでなり、上述され、添付の特許請求の範囲に記載されている電気化学的に剥離可能な硬化接着剤組成物が、第一材料層と第二材料層との間に配置されている、接合構造物を提供する。このような構造を製造するため、第一材料層および/または第二材料層の少なくとも1の初期表面に接着剤組成物を適用し、次いで、場合により圧力の印加を伴って、電氣的に剥離可能な接着剤組成物が2つの層の間に配置されるように2つの層を接触させてよい。

40

【0118】

組成物は、10~5000 μm 、例えば50~2500 μm の湿潤フィルム厚で表面に適用することが推奨される。この範囲内でより薄い層を適用すると、より経済的であり、有害な厚い硬化領域の可能性が低減する。しかし、不連続な硬化フィルムの形成および短い接触の両方を回避するために、より薄い被覆または層を適用する際には、十分な制御を行う必要がある。

50

【 0 1 1 9 】

適用された本発明の組成物の硬化は、典型的には40 ~ 200、好ましくは50 ~ 190、特に60 ~ 180の範囲の温度で起こる。適当な温度は、存在する特定の化合物および所望の硬化速度に依存し、必要に応じて簡単な予備試験を用いて、当業者が個々の場合に決定できる。もちろん、前記範囲内でのより低い温度での硬化は、通常一般的な周囲温度から混合物を実質的に加熱または冷却する必要がなくなるので有利である。しかし、妥当な場合は、組成物の各成分から生成される混合物の温度は、マイクロ波誘導を包含する従来的手段を用いて、混合温度および/または適用温度より高くしてもよい。

【 0 1 2 0 】

下記添付図面を参照して本発明を説明する。

図1 aは、本発明の第一の実施形態に従った接合構造物を示す。

図1 bは、本発明の第二の実施形態に従った接合構造物を示す。

図2 aは、第一の実施形態の構造物に電圧を印加したときの、第一の実施形態の構造物の初期剥離を示す。

図2 bは、第二の実施形態の構造物に電圧を印加したときの、第二の実施形態の構造物の初期剥離を示す。

【 0 1 2 1 】

添付の図1 aに示されているように、硬化接着剤層(10)が2つの導電性基材(11)の間に配置されている接合構造物が提供される。図1 bに示されているように、導電性基材(11)の上に非導電性材料層(12)を配置し、より複合的な接合構造物を形成してもよい。導電性基材(11)の各層は、電池、または直流(DC)のAC駆動源であつてよい電源(13)と電氣的に接触している。この電源(13)の正端子および負端子は、1つの固定位置に示されているが、当業者は、システムの極性を逆にできることをもちろん理解するであろう。

【 0 1 2 2 】

2つの導電性基材(11)は、とりわけ、下記により構成され得る層の形態で示されている：金属フィルム；金属メッシュまたはグリッド；析出金属粒子；その中に配置された導電性要素によって導電性になった樹脂材料；または導電性酸化層。導電性要素の例として、銀フィラメント、単層カーボンナノチューブ、および多層カーボンナノチューブを挙げることができる。導電性酸化層の例として、インジウムスズ酸化物(ITO)等のドーパ酸化インジウム、ドーパ酸化亜鉛、アンチモンズ酸化物、スズ酸カドミウム、およびスズ酸亜鉛を挙げることができる。導電性材料の選択は別として、当業者は、導電性基材(11)が、硬化接着剤層(10)との接触が制限されたグリッドまたはメッシュの形態である場合、剥離操作の有効性が低下し得ることを理解するであろう。

【 0 1 2 3 】

各導電性基材(11)の間に電圧が印加されると、その間に配置された接着剤組成物(10)に電流が供給される。これにより、基材(11)と接着剤組成物との界面で電気化学反応が誘発される。この電気化学反応は、正電気を帯びたまたは陽極の界面では酸化的であり、負電気を帯びたまたは陰極の界面では還元的であると理解される。この反応は、基材からの剥離性組成物の容易な除去を容易にする基材間の接着接合を弱めると考えられる。

【 0 1 2 4 】

説明のみを目的とした図2 aおよび2 bに示すように、剥離は、正極と電氣的に接触している導電性表面(11)と接着剤組成物(10)との間の界面である正の界面で起こる。基材を分離する前に電流の方向を逆にするにより、両方の基材界面で接着接合を弱めてもよい。

【 0 1 2 5 】

しかし、接着剤層(10)の組成は、正または負の界面のいずれかで、または両方から同時に剥離が起こるように調整できることに留意されたい。いくつかの実施形態では、陽

10

20

30

40

50

極界面および陰極界面を形成するように両表面に印加された電圧は、陽極と陰極の両方の接着剤 / 基材界面で同時に剥離を引き起こす。別の実施形態では、組成物が両方の界面で直流に応答しない場合、逆の極性を用いて両方の基材 / 接着剤界面を同時に剥離することができる。剥離が生じるのに十分な合計時間が各極で可能である場合、電流は任意の適当な波形で適用できる。これに関して、正弦波形、矩形波形および三角波形が適当であり得、制御された電圧または制御された電流源から印加できる。

【 0 1 2 6 】

本発明を限定することを意図するものではないが、下記条件の少なくとも1つ、好ましくは両方が推進される場合、剥離操作が効果的に実施され得ると考えられる： a) 1 ~ 100 V、例えば20 ~ 50 Vの電圧の印加；および b) 1秒 ~ 180分、例えば1秒 ~ 30分の間の電圧の印加。硬化接着剤からの導電性基材の剥離が、(例えば重りまたはバネを介して加えられる)力の適用によって促進される場合、電位は秒単位での印加だけでよい場合がある。

10

【 0 1 2 7 】

下記実施例は、本発明を説明するものであって、本発明の範囲を限定することを意図するものではない。

【実施例】

【 0 1 2 8 】

実施例

実施例では、以下の材料および該材料の略称を用いた。

20

MMA：メチルメタクリレート

MAA：メタクリル酸

EGDMA：エチレングリコールジメチルアクリレート

PEG-MEA：ポリエチレングリコールメチルエーテルアクリレート

BENZYL MA：ベンジルメタクリレート

HEMA：(ヒドロキシエチル)メタクリレート

IBOA：イソボルニルアクリレート

AIBN：アゾビスイソブチロニトリル、Sigma Aldrichから入手可能

BPO：過酸化ベンゾイル、PanReac AppliChemから入手可能

HEXMIM StSO₃：1H-イミダゾリウム、3-メチル-1-ヘキシル-4-エテニルベンゼンスルホネート

30

EMIM Acrylate：1H-イミダゾリウム、1-エチル-3-メチル-アクリレート

ViEIM NTf₂：1H-イミダゾリウム、3-エテニル-1-エチル-1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド

BMIM NTf₂：1H-イミダゾリウム、3-メチル-1-ブチル-1,1,1-トリフルオロ-N-[(トリフルオロメチル)スルホニル]メタンスルホンアミド

PEG400：ポリエチレングリコール、Sigma Aldrichから入手可能

CN966H90：10%の2(2-エトキシエトキシ)エチルアクリレートと混合された脂肪族ポリエステルベースウレタンジアクリレートオリゴマー、Sartomerから入手可能

SR9054：酸アクリレート接着促進剤、Sartomerから入手可能

40

【 0 1 2 9 】

組成物の第一セットの調製：下記表1 a および1 b に記載の組成物EDA 1 ~ EDA 14 並びに対照1、2 および3を混合により調製した。

表 1 a

成分	対照1 (g)	EDA1 (g)	EDA2 (g)	EDA3 (g)	EDA4 (g)	EDA5 (g)	EDA6 (g)	EDA7 (g)	EDA8 (g)
MMA	0.780	0.780	0.780	0.780	0.780	0.780	0.780	0.780	0.780
MAA	0.100	0.100	0.100	0.100	0.100	0.100	0.100	0.100	0.100
EGDMA	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020
PEG-MEA	0.100	0.100	0.100	0.100	0.100	0.100	0.100	0.100	0.100
AIBN	0.061	0.073	0.073	0.077	0.069	0.065	0.069	0.069	0.061
HEXMIM StS03		0.623 (1.78 mmol)		0.208 (0.59 mmol)	0.104 (0.30 mmol)	0.052 (0.15 mmol)	0.208 (0.59 mmol)	0.312 (0.89 mmol)	
ViEIM NTf2			0.717 (1.78 mmol)	0.717 (1.78 mmol)	0.359 (0.89 mmol)	0.180 (0.44 mmol)	0.240 (0.59 mmol)	0.120 (0.30 mmol)	
コポリマーPE									0.463 (1.16 mmol)

10

【 0 1 3 0 】

20

表 1 b

成分	EDA9 (g)	EDA10 (g)	EDA11 (g)	EDA12 (g)	対照2 (g)	EDA13 (g)	対照3 (g)	EDA14 (g)
MMA	0.780	0.780	0.780	0.780			0.630	0.630
MAA	0.100	0.100	0.100	0.100	0.100	0.100	0.100	0.100
EGDMA	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020
PEG-MEA	0.100	0.100	0.100	0.100	0.100	0.100	0.100	0.100
BENZYL MA					0.780	0.780	0.150	0.150
AIBN	0.061	0.061	0.061	0.073	0.039	0.047	0.057	0.065
HEXMIM StS03	0.052 (0.15 mmol)	0.052 (0.15 mmol)	0.052 (0.15 mmol)			0.105		0.105
ViEIM NTf2	0.179 (0.44 mmol)	0.179 (0.44 mmol)	0.179 (0.44 mmol)			0.359		0.359
BMIM NTf2			0.012	0.20				
カーボンブラック	0.012							
PEG-400		0.012						

30

【 0 1 3 1 】

表 1 a および 1 b に示す重合性電解質の括弧内の量はミリモル (mmol) 単位である。

対照 1、2 および 3 は、イオン種を含まず、接着剤を形成する非イオン性マトリックスモノマーによって構成されている。組成物 EDA1 ~ EDA7、EDA9 ~ EDA11 および EDA13 ~ EDA14 は、非イオン性マトリックスモノマーと重合性イオン性化合物との共重合に基づく。

【 0 1 3 2 】

EDA8 は、非イオン性マトリックスモノマーと硬化した重合性電解質 (PE) コポリマーとの混合物であり、下記方法により得た：まず、ViEIM NTf2 (0.359 g) お

50

よびHexMIM StSO₃ (0 . 1 0 4 g) をアゾビスイソブチロニトリル (0 . 0 0 8 g) と 3 6 0 0 r p m で 1 分間高速混合した ; その後、混合物を 8 0 で 1 5 分間、次いで 1 2 0 で 2 時間硬化させた ; 最後に、硬化させた材料を非イオン性マトリックスモノマーおよびアゾビスイソブチロニトリルと混合した。

【 0 1 3 3 】

E D A 1 2 は、参考であって、非イオン性マトリックスモノマーと非重合性イオン性化合物 (B M I M N T f 2) との混合物に基づく。

【 0 1 3 4 】

下記組成物 E D A 1 ~ E D A 1 4 および対照のための適用基材は、厚さ 1 . 2 5 m m のアルミニウム (A A 6 0 1 6) であり、被覆組成物の適用は、直径 1 0 0 ~ 2 0 0 ミクロンのガラスビーズをスパーサーとして用いて行った。引張試験用に、2 . 5 c m x 1 0 c m のサンプルに基材を切断した。「ISO 4587 接着剤 - 硬質基材同士の接合アセンブリの引張重ね剪断強度の測定 (国際標準化機構、2003) 」に基づき、室温で、引張重ね剪断 (T L S) 試験を実施した。記載された各基材の接合重複領域は 2 . 5 c m x 1 . 0 c m であり、接着剤厚さは 0 . 1 c m (4 0 m i l) であった。1 0 k N セルを備えた I N S T R O N 3 3 6 6 を用いた。

【 0 1 3 5 】

8 0 で 1 5 分間および 1 2 0 で 1 2 0 分間の適用により、重複領域において、適用した接着剤組成物を硬化させた。次いで、最初の引張試験の前に、接合構造物を室温で 2 4 時間保存した。

【 0 1 3 6 】

実施例 1

前記 2 4 時間の保存時間の後、接着剤層に 5 0 V の一定電位を 3 0 分間印加する前後に、引張重ね剪断強度を調べた。その結果を、以下の表 2 に示す。

表 2

接着剤	初期接合強度 (MPa)	50V、30分後の接合強度 (MPa)
対照1	2.03 (± 0.59)	2.11 (± 0.28)
EDA1	3.67 (± 0.56)	3.15 (± 0.06)
EDA2	2.18 (± 0.36)	1.48 (± 0.20)
EDA3	3.44 (± 0.31)	0
EDA4	3.07 (± 0.58)	0.71 (± 0.62)
EDA5	2.63 (± 0.51)	1.10 (± 0.23)
EDA6	2.66 (± 0.34)	1.71 (± 0.12)
EDA7	3.85 (± 0.71)	2.80 (± 0.63)
EDA8	2.09 (± 0.13)	2.08 (± 0.33)
EDA9	2.61 (± 0.09)	0.97 (± 0.09)
EDA10	1.98 (± 0.41)	0
EDA11	2.35 (± 0.11)	0
EDA12 (参考)	1.60 (± 0.60)	0
対照2	1.76 (± 0.77)	1.17 (± 0.61)
EDA13	2.60 (± 0.54)	1.54 (± 0.12)
対照3	1.53 (± 0.63)	2.32 (± 0.45)
EDA14	2.67 (± 0.86)	0

重合性イオン性化合物を含有する組成物は、初期接合強度が上昇する。重合性イオン性化合物と非イオン性マトリックスモノマーとの共重合に基づく組成物の接合強度は、電圧の印加後に低下する。

【 0 1 3 7 】

実施例 2

この実施例では、前記 2 4 時間の保存時間の後、接着剤層に異なる一定電位を 3 0 分間印加する前後に、引張重ね剪断強度を測定することにより、前記接着剤組成物 E D A 5 の電気剥離挙動を調べる。その結果を、以下の表 3 に示す。

表 3

接着剤	初期接合強度 (MPa)	20V、30分後の接合強度 (MPa)	50V、30分後の接合強度 (MPa)	80V、30分後の接合強度 (MPa)
対照	2.03 (± 0.59)		2.11 (± 0.28)	
EDA5	2.63 (± 0.51)	1.59 (± 0.22)	1.10 (± 0.23)	0

10

【 0 1 3 8 】

実施例 3

この実施例では、前記 2 4 時間の保存時間後および 2 ヶ月の保存時間後、接着剤層に 5 0 V の一定電位を 3 0 分間印加する前後に、引張重ね剪断強度を測定することにより、前記接着剤の電気剥離挙動を調べる。その結果を、以下の表 4 に示す。

表 4

接着剤	初期接合強度 (MPa)	50V、30分後の接合強度 (MPa)	2ヶ月老化後の接合強度 (MPa)	2ヶ月老化、50V、30分後の接合強度 (MPa)
対照	2.03 (± 0.59)	2.11 (± 0.28)		
EDA5	2.63 (± 0.51)	1.10 (± 0.23)	2.34 (± 0.03)	0.97 (± 0.42)
EDA11	2.35 (± 0.11)	0	2.30 (± 0.26)	0
EDA12 (参考)	1.60 (± 0.60)	0	0	0

20

重合性イオン性化合物と非イオン性マトリックスモノマーとの共重合に基づく組成物は、2 ヶ月後に初期接合強度を維持しており、電圧の印加後の接合強度の低下をなお示す。

【 0 1 3 9 】

組成物の第二セットの調製：下記表 5 に示す組成物 E D A 1 5 ~ E D A 1 9 および対照 4 を、混合して調製した。

30

表 5

成分	対照 4 (g)	EDA15 (g)	EDA16 (g)	EDA17 (g)	EDA18 (g)	参考EDA19 (g)
CN966H90	0.600	0.600	0.600	0.600	0.600	0.600
HEMA	0.340	0.340		0.340	0.340	0.340
IBOA			0.340			
SR9054	0.060	0.060	0.060	0.060	0.060	0.060
BPO	0.040	0.040	0.040	0.040	0.040	0.040
HEXMIM StS03		0.208	0.208		0.312	
EMIM7クリレート				0.108		
ViEIM NTf2		0.717	0.717	0.717		
ViEIM MMS					0.760	
BMIM NTf2						0.231

40

対照 4 は、イオン種なしで、接着剤を形成する非イオン性マトリックスモノマーにより構成されている。組成物 E D A 1 5 ~ E D A 1 8 は、重合性イオン性化合物と非イオン性

50

マトリックスモノマーとの共重合に基づく。

EDA19は、参考例であり、非重合性イオン性化合物(BMIM NTf2)と非イオン性マトリックスモノマーとの混合物に基づく。

【0140】

下記組成物EDA15～EDA19および対照4のための適用基材は、1.25mmの厚さを有するアルミニウム(AA6016)および1.5mmの厚さを有するステンレス鋼(1.4301)であり、スペーサーとして100～200ミクロンの直径を有するガラスビーズを用いて被覆組成物の適用を実施した。引張試験のため、基材を2.5cm×10cm(1インチ×4インチ)寸法のサンプルに切断した。「ISO 4587接着剤-硬質基材同士の接合アセンブリの引張重ね剪断強度の測定(国際標準化機構、2003)」に基づいて室温で引張重ね剪断(TLS)試験を実施した。各基材の接合重複領域は2.5cm×1.0cmであり、接着剤厚さは0.1cm(40mil)であった。20kNセルを有するZwick Z020を採用した。

10

適用した接着剤組成物を、80～15分間および120～30分間の印加により、重複領域にて硬化させた。次いで、接合構造物を、最初の引張試験の前に室温で24時間保存した。

【0141】

実施例4

前記24時間の保存時間の後、接着剤層に50Vの一定電位を30分間印加する前後に、引張重ね剪断強度を測定した。結果を、以下の表6に示す。

20

表6

接着剤	アルミニウム		ステンレス鋼	
	初期接合強度 (MPa)	50V、30分後の接合強度 (MPa)	初期接合強度 (MPa)	50V、30分後の接合強度 (MPa)
対照4	11.02 (± 0.39)	11.19 (± 0.46)	11.05 (± 0.54)	10.58 (± 0.10)
EDA15	12.38 (± 0.64)	0	9.19 (± 1.03)	0
EDA16	9.76 (± 0.17)	4.39 (± 0.12)	試験せず	試験せず
EDA17	5.82 (± 0.14)	0	試験せず	試験せず
EDA18	10.54 (± 0.04)	2.86 (± 0.03)	試験せず	試験せず
EDA19	6.03 (± 0.39)	0	6.46 (± 0.62)	0

30

重合性イオン性化合物を含有する組成物EDA15～EDA18は初期接合強度を維持する一方で、組成物EDA17は初期強度の低下を示した。非重合性イオン液体を含有する組成物EDA19は、50%の初期強度低下を示した。重合性イオン性化合物と非イオン性マトリックスモノマーとの共重合に基づく組成物の接合強度は、電圧の印加後に低下する。

【0142】

実施例5

この実施例では、前記24時間の保存時間の後、並びに1週間後、1ヶ月後、2ヶ月後および3ヶ月後の保存時間の後、接着剤層に50Vの一定電位を30分間印加する前後に、引張重ね剪断強度を測定することにより、前記接着剤(EDA19と比較したEDA15)の電気剥離挙動を調べる。23℃、相対湿度50%に設定された気候調整室を用いた。結果を以下の表7および8に示す。

40

表 7

アルミニウム				
保存時間	EDA15		EDA19	
	初期接合強度 (MPa)	50V、30分後の接合強度 (MPa)	2ヶ月老化後の接合強度 (MPa)	2ヶ月老化、50V、30分後の接合強度
初期	12.38 (± 0.64)	0	6.03 (± 0.39)	0
1週間	12.45 (± 0.56)	0	5.83 (± 0.38)	0
1ヶ月	10.00 (± 0.88)	0	4.48 (± 0.95)	0
2ヶ月	10.94 (± 0.20)	0	4.18 (± 0.16)	0
3ヶ月	11.03 (± 1.43)	0	試験せず	試験せず

10

【 0 1 4 3 】

表 8

ステンレス鋼				
保存時間	EDA15		EDA19	
	初期接合強度 (MPa)	50V、30分後の接合強度 (MPa)	2ヶ月老化後の接合強度 (MPa)	2ヶ月老化、50V、30分後の接合強度
初期	9.19 (± 1.03)	0	6.46 (± 0.62)	0
1週間	9.38 (± 0.69)	0	5.46 (± 0.33)	0
1ヶ月	9.09 (± 1.75)	0	4.25 (± 0.30)	0
2ヶ月	8.51 (± 0.51)	0	4.58 (± 0.21)	0
3ヶ月	8.13 (± 0.28)	0	試験せず	試験せず

20

重合性イオン性化合物と非イオン性マトリックスモノマーとの共重合に基づく組成物 EDA15 は、3ヶ月後に接合強度がわずかに低下している(12%)。非重合性イオン液体と非イオン性マトリックスモノマーとの混合物に基づく組成物は、アルミニウムおよびステンレス鋼の両方について、2ヶ月後に30%という接合強度のより高い低下を示している。全ての組成物は、電圧の印加後に接合強度の低下を示す。

30

【 0 1 4 4 】

上記の説明および実施例を考慮すると、当業者には、特許請求の範囲から逸脱することなく、それらを同等に修正できることは明らかであろう。

【 符号の説明 】

【 0 1 4 5 】

- 1 0 硬化接着剤層
- 1 1 導電性基材
- 1 2 非導電性材料層
- 1 3 電源

40

50

【図面】

【図 1 a】

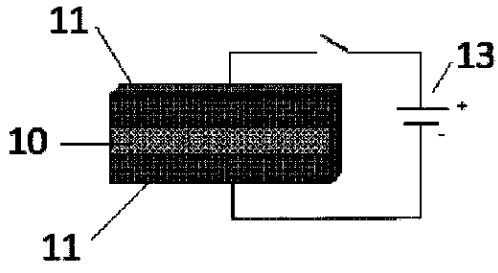


Fig. 1a

【図 1 b】

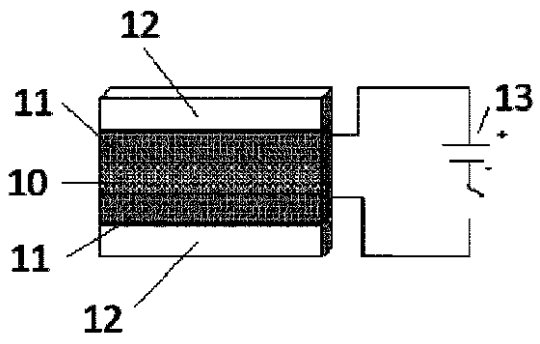


Fig. 1b

10

【図 2 a】

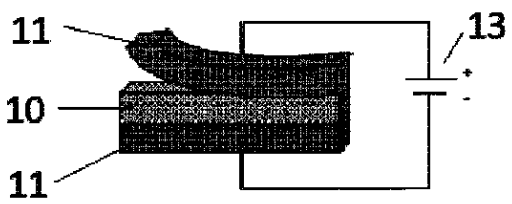


Fig. 2a

【図 2 b】

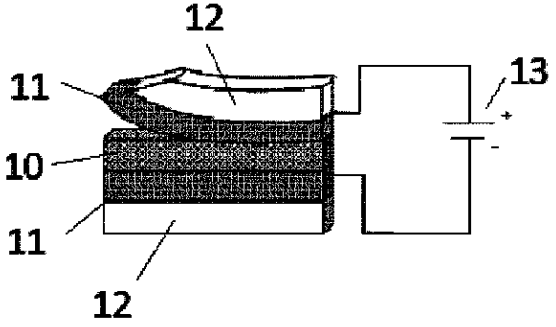


Fig. 2b

20

30

40

50

【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2021/064562

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER INV. C08F220/14 C08K5/36 C09J4/00 C08K5/3445 ADD.		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C08F C08K C09J		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) EPO-Internal, WPI Data		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2009 258717 A (NIPPON SYNTHETIC CHEM IND) 5 November 2009 (2009-11-05)	1-9
A	paragraph [0045] - paragraphs [0056], [0074]; claims 1-9; examples A-1, A-2	10-15
X	----- WASHIRO S ET AL: "Highly ion conductive flexible films composed of network polymers based on polymerizable ionic liquids", POLYMER, ELSEVIER SCIENCE PUBLISHERS B.V, GB, vol. 45, no. 5, 1 March 2004 (2004-03-01), pages 1577-1582, XP004487412, ISSN: 0032-3861, DOI: 10.1016/J.POLYMER.2004.01.003	1,2,6-9
A	paragraph [02.2] - paragraph [02.5] ----- -/--	3-5, 10-15
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents :		
A document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance		*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
E earlier application or patent but published on or after the international filing date		*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
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)		*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
O document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means		*Z* document member of the same patent family
P document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		
Date of the actual completion of the international search 12 July 2021		Date of mailing of the international search report 21/07/2021
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer Giani, Elena

1

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (April 2005)

page 1 of 2

10

20

30

40

50

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2021/064562

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2020/086454 A1 (NITTO DENKO CORP [JP]) 30 April 2020 (2020-04-30) Samples S1-S31; page 2, line 11 - line 23; claims 1-21 -----	1-15

10

20

30

40

1

50

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2021/064562

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
JP 2009258717 A	05-11-2009	JP 5350855 B2 JP 2009258717 A	27-11-2013 05-11-2009
-----	-----	-----	-----
WO 2020086454 A1	30-04-2020	TW 202028401 A WO 2020086454 A1	01-08-2020 30-04-2020
-----	-----	-----	-----

10

20

30

40

50

フロントページの続き

,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,D
K,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),O
A(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,B
B,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DJ,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD
,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IR,IS,IT,JO,JP,KE,KG,KH,KN,KP,KR,KW,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LU,
LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,
RU,RW,SA,SC,SD,SE,SG,SK,SL,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,WS,ZA,ZM,Z
W

(特許庁注：以下のものは登録商標)

1. ケブラー

- スペイン 0 8 2 9 0 セルダニョラ・デル・バリェス、カレル・デル・ボイクス 3、プエルタ 5
(72)発明者 ペラル クレスポ、ダニエル
- スペイン 0 8 0 2 5 バルセロナ、タクディルト 5 7、エスカレラ 5、キント・セグンダ
(72)発明者 アンドゥイクス カント、クララ
- スペイン 0 8 1 7 2 バルセロナ、サン・クガ・デル・バリェス、カレル・ミグディア 2 5 ペ、ピソ
1
(72)発明者 ディアス ロビラ、アンナ マリア
- スペイン 0 8 1 4 0 バルセロナ、カルデス・デ・モンブイ、カレル・ホアキン・ムンブル 5
(72)発明者 ベルメス リェド、アレハンドロ
- スペイン 0 8 2 9 1 バルセロナ、リポリエト、カレル・パドロ 3 4、セグンド・セグンダ
(72)発明者 ペレス パディリャ、ビクトル
- ドイツ 1 2 4 8 9 ベルリン、ネルテシュトラーク 3 3
- F ターム (参考) 4J040 EE011 FA081 HA026 JA02 JB02 KA32 MA02 MA10 MB05 MB09
PA42
4J100 AB07Q AL03P CA03 JA03