

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第3区分

【発行日】令和5年5月25日(2023.5.25)

【国際公開番号】WO2019/024429

【公表番号】特表2020-528955(P2020-528955A)

【公表日】令和2年10月1日(2020.10.1)

【出願番号】特願2020-504141(P2020-504141)

【国際特許分類】

C 0 8 L 8 3 / 0 4 (2 0 0 6 . 0 1)

C 0 8 K 3 / 2 6 (2 0 0 6 . 0 1)

C 0 8 K 3 / 3 6 (2 0 0 6 . 0 1)

C 0 8 K 5 / 5 4 4 (2 0 0 6 . 0 1)

C 0 8 K 5 / 5 7 (2 0 0 6 . 0 1)

10

【 F I 】

C 0 8 L 8 3 / 0 4

C 0 8 K 3 / 2 6

C 0 8 K 3 / 3 6

C 0 8 K 5 / 5 4 4

C 0 8 K 5 / 5 7

20

【誤訳訂正書】

【提出日】令和5年5月15日(2023.5.15)

【誤訳訂正1】

【訂正対象書類名】特許請求の範囲

【訂正対象項目名】全文

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

30

基剤成分及び触媒パッケージ成分を有する、2成分型湿気硬化シリコーン組成物であつて、前記触媒パッケージが、

(i) $(R^4O)_m(Y^1)_{3-m}-Si$ 末端有機ポリマー [式中、 R^4 は C_{1-10} アルキル基であり、 Y^1 は 1 ~ 8 個の炭素を含有するアルキル基であり、 m は 1, 2 又は 3 であり、前記有機ポリマーは、ポリエーテル、炭化水素ポリマー、及びアクリレートポリマーから選択される] と、

(i i) 式：

$(R^4O)_m(Y^1)_{3-m}-Si(CH_2)_x-(NHCH_2CH_2)_t-Q(CH_2)_x-Si(OR^4)_m(Y^1)_{3-m}$

[式中、 R^4 は C_{1-10} アルキル基であり、 Y^1 は 1 ~ 8 個の炭素を含有するアルキル基であり、 Q は孤立電子対を有するヘテロ原子を含有する化学基であり、各 x は 1 ~ 6 の整数であり、 t は 0 又は 1 であり、各 m は独立して、1、2 又は 3 である]

40

に従う 1 つ以上の二脚状シランと、

(i i i) 非二脚状接着促進剤と、

(i v) スズ系触媒と、任意選択的に

(v) 架橋剤と、

を含む、2成分型湿気硬化シリコーン組成物。

【請求項2】

前記基剤成分が、

(a) 2 5 で粘度が $1000 \sim 200,000$ m P a . s である、少なくとも 2 つの

50

末端ヒドロキシル基又は加水分解性基を有するシロキサンポリマーと、

(b) ヒュームドシリカ、沈降シリカ、及び沈降炭酸カルシウムから選択される1つ以上の補強性充填剤と、任意選択的に

(c) 1つ以上の非補強性充填剤と、

を含む、請求項1に記載の2成分型湿気硬化シリコーン組成物。

【請求項3】

二脚状シラン(i i)が、ビス(トリアルコキシシリルアルキル)アミン、ビス(ジアルコキシアルキルシリルアルキル)アミン、ビス(トリアルコキシシリルアルキル)N-アルキルアミン、ビス(ジアルコキシアルキルシリルアルキル)N-アルキルアミン及びビス(トリアルコキシシリルアルキル)尿素及びビス(ジアルコキシアルキルシリルアルキル)尿素から選択されることを特徴とする、請求項1又は2に記載の2成分型湿気硬化シリコーン組成物。

10

【請求項4】

二脚状シラン(i i)が、ビス(3-トリメトキシシリルプロピル)アミン、ビス(3-トリエトキシシリルプロピル)アミン、ビス(4-トリメトキシシリルブチル)アミン、ビス(4-トリエトキシシリルブチル)アミン、ビス(3-トリメトキシシリルプロピル)N-メチルアミン、ビス(3-トリエトキシシリルプロピル)N-メチルアミン、ビス(4-トリメトキシシリルブチル)N-メチルアミン、ビス(4-トリエトキシシリルブチル)N-メチルアミン、ビス(3-トリメトキシシリルプロピル)尿素、ビス(3-トリエトキシシリルプロピル)尿素、ビス(4-トリメトキシシリルブチル)尿素、ビス(4-トリエトキシシリルブチル)尿素、ビス(3-ジメトキシメチルシリルプロピル)アミン、ビス(3-ジエトキシメチルシリルプロピル)アミン、ビス(4-ジメトキシメチルシリルブチル)アミン、ビス(4-ジエトキシメチルシリルブチル)アミン、ビス(3-ジメトキシメチルシリルプロピル)N-メチルアミン、ビス(3-ジエトキシメチルシリルプロピル)N-メチルアミン、ビス(4-ジメトキシメチルシリルブチル)N-メチルアミン、ビス(4-ジエトキシメチルシリルブチル)N-メチルアミン、ビス(3-ジメトキシメチルシリルプロピル)尿素、ビス(3-ジエトキシメチルシリルプロピル)尿素、ビス(4-ジメトキシメチルシリルブチル)尿素、ビス(4-ジエトキシメチルシリルブチル)尿素、ビス(3-ジメトキシエチルシリルプロピル)アミン、ビス(3-ジエトキシエチルシリルプロピル)アミン、ビス(4-ジメトキシエチルシリルブチル)アミン、ビス(4-ジエトキシエチルシリルブチル)アミン、ビス(3-ジメトキシエチルシリルプロピル)N-メチルアミン、ビス(3-ジエトキシエチルシリルプロピル)N-メチルアミン、ビス(4-ジメトキシエチルシリルブチル)N-メチルアミン、ビス(4-ジエトキシエチルシリルブチル)N-メチルアミン、ビス(3-ジメトキシエチルシリルプロピル)尿素、ビス(3-ジエトキシエチルシリルプロピル)尿素、ビス(4-ジメトキシエチルシリルブチル)尿素及びビス(4-ジエトキシエチルシリルブチル)尿素から選択されることを特徴とする、請求項1~3のいずれか一項に記載の2成分型湿気硬化シリコーン組成物。

20

30

【請求項5】

二脚状シラン(i i)が、一般構造

$(R^4O)_3-Si(CH_2)_x-(NHCH_2CH_2)_t-NH(CH_2)_x-Si(OR^4)_3$

を有することを特徴とする、請求項1~4のいずれか一項に記載の2成分型湿気硬化シリコーン組成物。

40

【請求項6】

二脚状シラン(i i)が、ビス(3-トリプロピルオキシシリルプロピル)アミン、ビス(3-メチルジエトキシシリルプロピル)アミン、ビス(3-メチルジメトキシシリルプロピル)アミン、ビス(3-トリエトキシシリルプロピル)アミン、ビス(3-トリメトキシシリルプロピル)アミン、及びN,N'-ビス[(3-トリメトキシシリル)プロピル]エチレンジアミンから選択されることを特徴とする、請求項1~5のいずれか一項

50

に記載の 2 成分型湿気硬化シリコーン組成物。

【請求項 7】

シロキサンポリマー (a) が、前記基剤成分の総重量に基づいて、10 ~ 90 重量%の量で、前記組成物中に存在することを特徴とする、請求項 1 ~ 6 のいずれか一項に記載の 2 成分型湿気硬化シリコーン組成物。

【請求項 8】

混合する場合、前記基剤成分組成物：触媒パッケージ組成物の重量比が、15 : 1 ~ 1 : 1 であることを特徴とする、請求項 1 ~ 7 のいずれか一項に記載の 2 成分型湿気硬化シリコーン組成物。

【請求項 9】

前記基剤成分が、前記基剤成分の総重量%を 100 重量%として、
10 ~ 90 重量%のシロキサンポリマー (a) と、
10 ~ 80 重量%の補強性充填剤 (b) と、
0 ~ 20 重量%の非補強性充填剤 (c) と、
を含むことを特徴とする、請求項 1 ~ 8 のいずれか一項に記載の 2 成分型湿気硬化シリコーン組成物。

10

【請求項 10】

前記触媒パッケージが、前記触媒パッケージの総重量%を 100 重量%として、
30 ~ 80 重量%のアルコキシシリル末端有機ポリマー (i) と、
5 ~ 50 重量%の二脚状シラン (i i) と、
5 ~ 25 重量%の非二脚状接着促進剤 (i i i) と、
0.01 ~ 3 重量%のスズ系触媒 (i v) と、
0 ~ 25 重量%の架橋剤 (v) と、
を含むことを特徴とする、請求項 1 ~ 9 のいずれか一項に記載の 2 成分型湿気硬化シリコーン組成物。

20

【請求項 11】

コーティング、コーキング、金型作製材料、又は封入材料である、請求項 1 ~ 10 のいずれか一項に記載の 2 成分型湿気硬化シリコーン組成物の使用。

【請求項 12】

構造物、構造ガラス取付け及び / 又は絶縁ガラス取付け用途、建物の外装要素、ガス充填遮断構造物パネル、太陽電池用途、自動車用途、電子機器用途、LED 照明及び他の電子機器用途並びに工業用アセンブリ及びメンテナンス用途のいずれかにおける、請求項 1 ~ 11 に記載の使用。

30

【誤訳訂正 2】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0041

【訂正方法】変更

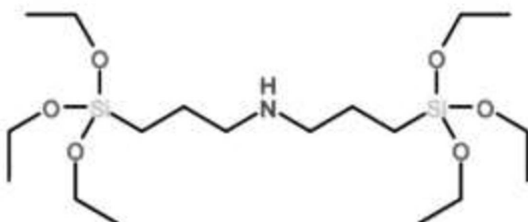
【訂正の内容】

【0041】

この式の場合、二脚状シランは、ビス (3 - トリプロピルオキシシリルプロピル) アミン、ビス (3 - メチルジエトキシシリルプロピル) アミン、ビス (3 - メチルジメトキシシリルプロピル) アミン、並びにビス (3 - トリエトキシシリルプロピル) アミン

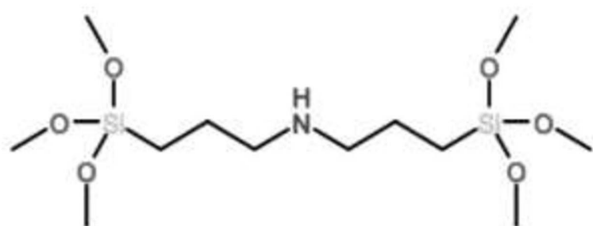
40

【化 1】



50

又はビス(3-トリメトキシシリルプロピル)アミン
【化2】



10

などのビス(トリアルコキシシリルプロピル)アミンから選択され得る。

【誤訳訂正3】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0042

【訂正方法】変更

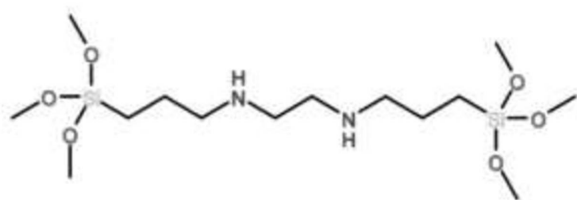
【訂正の内容】

【0042】

あるいは、二脚状シランは、N,N'-ビス((3-トリメトキシシリル)プロピル)エチレンジアミン

【化3】

20



などのビス(トリアルコキシシリルアルキル)アルキレンジアミンであり得る。

【誤訳訂正4】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0063

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0063】

試験例1

本明細書の意図は、基材間の接着強度を改善するために、ヒドロシリル硬化材料の代替として、LEDランプ基材用の縮合硬化接着剤/シーラントを提供することであった。2部型縮合硬化接着剤/シーラントは、速い深部硬化(24時間で90%超の強度)を提供し、20~120分間の典型的なスナップ時間を有する)、ほとんどの基材に対して良好な接着性を有する。これらは、このような組成物を硬化させるために使用されるスズ触媒が、例えば硫黄及びリンを含む他の化学物質によって不活性化されないという付加的な利点を有する。LED照明用途に好適であるために、スナップ時間を3~6分間に著しく低減する必要があり、接着性及び強度の増加は、30分以内に十分迅速である必要があった。

40

【誤訳訂正5】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0064

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0064】

50

触媒パッケージの組成を表 1 a に示す。2 つの基剤組成物を本試験例で利用し、表 1 b において基剤 (1) 及び基剤 (2) として識別した。この試験例に関して、基剤 (1) を利用した。

【表 1】

表 1a

触媒パッケージ	組成 1 (重量%)
トリメトキシシリルエチレン末端ポリジメチルシロキサン、25°Cで粘度=30,000mPa. s	52.5
2, 2, 4, 4, 6, 6-ヘキサメチルシクロトリシラザン	0.5
処理されたヒュームドシリカ	3.50
1, 6-ビス(トリメトキシシリル)ヘキサン	20
アミノプロピルトリエトキシシラン	16
ビス(3-トリメトキシシリルプロピル)アミン	7
ジメチルスズジネオデカノエート	0.275

10

【表 2】

表 1b

基剤成分	基剤 1 (重量%)	基剤 2 (重量%)
処理された沈降炭酸カルシウム	49.5	50
ヒドロキシジメチル末端ポリジメチルシロキサン、25°Cで粘度=4000mPa. s	50.5	50

20

【誤訳訂正 6】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0065

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0065】

触媒パッケージの経時的な粘度は、コーンプレート CP-41 を 1 rpm 及び 5 rpm で使用し、Brookfield (登録商標) コーンプレート粘度計 (RV DIII) を使用して測定した。測定は、特に指示がない限り、25 で行った。室温でエージングした試料について経時的に記録した結果を表 1 c に示し、50 の温度でエージング後の経時的に記録した結果を表 1 d に示す。

30

【表 3】

表 1c

	調製直後	室温で3ヶ月エージング	室温で5ヶ月エージング
外観	OK	OK	4ヶ月の貯蔵後に亀裂を生じ始める
コーンプレートCP-41を1rpmで3分間使用した粘度(mPa. s)	14150	6779	4617
コーンプレートCP-41を5rpmで3分間使用した粘度(mPa. s)	8802	3390	1611

40

50

【表 4】

表1d

	調製直後	50°Cで 2週間 エージング	50°Cで 4週間 エージング	50°Cで 6週間 エージング	50°Cで 8週間 エージング
コーンプレートCP-41を1rpm で3分間使用した粘度(mPa. s)	14150	8449	5796	4814	5207
コーンプレートCP-41を5rpm で3分間使用した粘度(mPa. s)	8802	3910	2299	1709	1709

10

【誤訳訂正 7】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0068

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0068】

試験例 1 では、より高濃度の一級アミノシラン及びビス(3 - トリメトキシシリルプロピル)アミン接着促進剤の添加が確実にスナップ時間を向上させた一方で、これらは、使用される高濃度の接着促進剤が、触媒パッケージ中のシロキサンポリマー担体の不安定化をもたらし、触媒パッケージの粘度の顕著な低下、すなわち貯蔵安定性の悪さをもたらすという点で、他の問題に遭遇した。

20

【誤訳訂正 8】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0069

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0069】

試験例 2

この試験例では、2つの触媒パッケージ例 1 及び例 2 の前述と同様の試験による安定性を、本発明に対応する先行技術の非反応性シリコン担体材料の安定性と比較する。使用した触媒パッケージの組成を表 2 a に示す。ポリエーテル(1)は、25 で 32000 ~ 45000 mPa. s の粘度を有するトリメトキシシリル末端ポリエーテルであり、ポリエーテル(2)は、25 で約 120,000 mPa. s の粘度を有するトリメトキシシリル末端ポリエーテルであった。

30

40

50

【表 6】

表2a

	例1 (重量%)	例2 (重量%)	組成2 (重量%)
ポリエーテル(1)	60.70		
ポリエーテル(2)		60.7	
トリメチル末端ポリジメチルシロキサン、25°Cで60,000mPa・s			60.70
2, 2, 4, 4, 6, 6-ヘキサメチルシクロトリシラザン	0.5	0.5	0.50
処理されたヒュームドシリカ	3.5	3.5	3.50
1, 6-ビス(トリメトキシシリル)ヘキサン	14	14	14.00
アミノプロピルトリエトキシシラン	16	16	16.00
ビス(3-トリメトキシシリルプロピル)アミン	5	5	5.00
ジメチルスズジネオデカノエート	0.3	0.3	0.30
	100.00	100.00	100.00

10

【誤訳訂正 9】

20

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0070

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0070】

触媒パッケージの経時的な粘度は、特に指示がない限り、コーンプレートCP-41を5rpmで使用し、Brookfield(登録商標)コーンプレート粘度計(RVDIII)を使用して測定した。測定は、特に指示がない限り、25で行った。室温でエージングした試料について経時的に記録し、50の温度でエージングした後の経時的に記録した結果を表2bに示す。

30

【表 7】

表2b

	粘度 例1(mPa・s)	粘度 例2(mPa・s)	粘度 組成2(mPa・s)
室温(RT)で調製直後	6838	4853	36742 (5rpmで測定した場合、 粘度が測定範囲外になるため1rpm で測定)
RTで1週間エージング	6857	4460	17349
RTで1ヶ月間エージング	7132	4696	11258
50°Cで1週間エージング	6562	4558	6464
50°Cで2週間エージング	6091	4774	6307
50°Cで4週間エージング	6012	4657	2731

40

【誤訳訂正 10】

【訂正対象書類名】明細書

50

【訂正対象項目名】 0 0 7 1

【訂正方法】 変更

【訂正の内容】

【 0 0 7 1 】

触媒パッケージ中にポリエーテル(1)及び(2)担体材料を使用した組成物は、室温及び高温経時劣化の両方の後の経時的な粘度に関して適度に一定の測定値を保持したことが理解されるであろう。これらの結果を考慮して、異なるポリマー担体として、組成物中のポリエーテル及びシロキサンについて、ゲル浸透クロマトグラフィーを用いて重量平均分子量値を決定した。結果を表2cに示す。

【表8】

表2c

	例1 Mw	例2 Mw	組成2 Mw
調製直後	35093	26292	107164
RTで1ヶ月間エージング	29980	23548	82176
50°Cで1週間エージング	33967	26660	67179
50°Cで2週間エージング	26918	21606	47704
50°Cで4週間エージング	27390	23239	36546

10

20

【誤訳訂正 1 1】

【訂正対象書類名】 明細書

【訂正対象項目名】 0 0 7 3

【訂正方法】 変更

【訂正の内容】

【 0 0 7 3 】

試験例 3

この研究では、二脚状シラン(i i)の非存在下での高濃度の触媒の効果測定することを意図しており、及びまた二脚状シラン(i i)の存在は、スナップ時間に影響を及ぼした。評価に使用した組成を表3aに示し、得られた結果を表3bに示す。

【表9】

表3a

	組成4	例3	組成5	組成6
ポリエーテル(1)	66.7	59.7	64	54
処理されたヒュームドシリカ	3	3	3	3
ビス(トリメトキシシリル)ヘキサン	14	14	14	14
アミノプロピルトリエトキシシラン	16	16	16	16
ビス(3-トリメトキシシリルプロピル)アミン	0	7	0	0
ジメチルスズジネオデカノエート	0.3	0.3	3	13
合計	100.00	100.00	100.00	100.00

30

40

【誤訳訂正 1 2】

【訂正対象書類名】 明細書

【訂正対象項目名】 0 0 7 6

【訂正方法】 変更

【訂正の内容】

【 0 0 7 6 】

50

接着破壊 / 凝集破壊

接着破壊（A F）は、試料が基材表面からきれいに分離している（剥がれている）状態を指す。凝集破壊（C F）は、コーティング自体が基材表面から分離せずに破断するときに観察される。ほとんどの場合、凝集破壊は、その以前に引き離された積層体上で観察された。いくつかの場合では、混合された破壊型が観察された。すなわち、一部の領域は、はがれている（すなわちA F）が、一部はコーティングで覆われたまま（すなわちC F）である。このような場合、C F（C F %）を示す割合を記録する（C F % + A F % = 100 %を念頭に置く）。この試験例では、触媒パッケージを基剤1と混合した。

【表10】

表3b

	組成4	例3	組成5	組成6
スナップ時間(分)	23.5	3.75	7.00	5.00
調製直後の粘度	14481	8115	17899	10060
50°Cで2週間エージング後の粘度	11455	5934	9156	6661
重ね剪断引張強度(ガラス/ガラス界面における接着力の蓄積)(KPa)	887	907	1147	1103
ガラス上の凝集破壊(%)	100	100	100	100
重ね剪断引張強度(ガラス/PBT界面における接着力の蓄積)(KPa)	730	747	860	1215
ガラス上の凝集破壊(%)	95	100	100	100
PBT上の凝集破壊(%)	95	75	60	100
重ね剪断引張強度(ガラス/アルミニウム界面における接着力の蓄積)(KPa)	975	1183	1265	1360
ガラス上の凝集破壊(%)	100	100	100	100
アルミニウム上の凝集破壊(%)	100	100	100	100

【誤訳訂正13】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0079

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0079】

試験例4

この試験例では、スズ系触媒（iii）なしで組成物が硬化するかどうかを判定することが求められた。使用した組成物を表4aに示す。

10

20

30

40

50

【表 1 1】

表4a

	組成7	組成8	組成9	組成10
ポリエーテル(1)	64	60	57	52
処理されたヒュームドシリカ	3	3	3	3
ビス(トリメトキシシリル)ヘキサシラン	14	14	14	14
アミノプロピルトリエトキシシラン	16	16	16	16
ビス(3-トリメトキシシリルプロピル)アミン	3	7	10	15
ジメチルスズジネオデカノエート	0	0	0	0
合計	100.00	100.00	100.00	100.00

10

スナップ時間結果などを求めるために、触媒パッケージを基剤1と混合した。

【表 1 2】

表4b

	組成7	組成8	組成9	組成10
スナップ時間(時間)	>3.5	>3.5	>3.5	3
粘度調製直後(mPa. s)	10394	7388	5423	3537
50°Cで2週間エージングした後の粘度(mPa. s)	9274	6798	5108	3136
重ね剪断引張強度(ガラス/ガラス界面における 接着力の蓄積)(KPa)	30	26	25	20
ガラス上の凝集破壊(%)	硬化し なかった	硬化し なかった	硬化し なかった	硬化し なかった

20

【誤訳訂正 1 4】

30

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0081

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0081】

試験例 5

触媒パッケージを、以下の表 5 a に示されている触媒パッケージの組成を有する代替のアルコキシシリル末端有機ポリマー(i)の選択を用いて調製した。ここで、アルコキシシリル末端有機ポリマー(i)は以下のとおりであった。

40

50